

PHD ÉRTEKEZÉS

Femtosekundumos optikai elrendezések modellezése

Kozma Ida Zsuzsanna

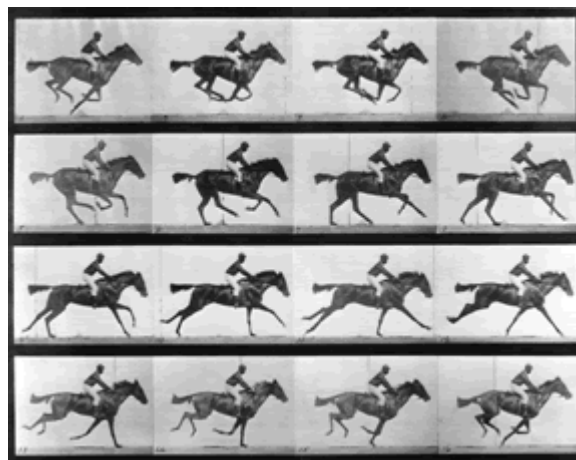
TÉMAVEZETŐ:

DR. HEBLING JÁNOS

A FIZIKAI TUDOMÁNY KANDIDÁTUSA

PÉCSI TUDOMÁNYEGYETEM
KÍSÉRLETI FIZIKA TANSZÉK

PÉCS
2002



Edward Muybridge: „Annie G.” Galloping - 1887

TARTALOMJEGYZÉK

1	BEVEZETÉS	4
2	TUDOMÁNYOS ELŐZMÉNYEK	6
2.1	ULTRARÖVID IMPULZUSOK TERJEDÉSE OPTIKAI RENDSZEREBEN	6
2.1.1	CSOPORTSEBESSÉG DISZPERZIÓ, FÉNYIMPULZUSOK TORZULÁSA	6
2.1.2	ULTRARÖVID IMPULZUSOK TERJEDÉSÉNEK MODELLEZÉSE — GEOMETRIAI OPTIKA	11
2.2	RÖVID IMPULZUSOKAT ALKALMAZÓ MÉRÉSI TECHNIKÁK	13
2.2.1	IMPULZÍV MÓDON GERJESZTETT RAMAN-SZÓRÁS	13
2.2.2	TERAHERTZES IMPULZUSOK KELTÉSE ÉS DETEKTÁLÁSA	15
2.3	ULTRARÖVID IMPULZUSOKAT ALKALMAZÓ GERJESZTÉSI ELRENDEZÉSEK	18
2.3.1	DINAMIKUS RÁCSOK KELTÉSE	20
2.3.2	DÖNTÖTT IMPULZUSFRONTÚ GERJESZTÉS	25
3	CÉLKITŰZÉSEK	27
4	TUDOMÁNYOS EREDMÉNYEK	28
4.1	DINAMIKUS RÁCSOK GERJESZTÉSÉRE HASZNÁLT, REFLEXIÓS OBJEKTÍVET TARTALMAZÓ ELRENDEZÉS VIZSGÁLATA	28
4.1.1	IMPULZÍV MÓDON GERJESZTETT RAMAN-SZÓRÁS MÉRÉSE GAP KRISTÁLYBAN	28
4.1.2	A SZÁMOLÁSOKKAL ELEMZETT KÍSÉRLETI ELRENDEZÉS	29
4.1.3	SZÁMOLÁSI MÓDSZEREK ÉS EREDMÉNYEK	30
4.2	DINAMIKUS RÁCSOK GERJESZTÉSÉRE HASZNÁLT OPTIKAI ELRENDEZÉSEK ÖSSZEHASONLÍTÓ VIZSGÁLATA	35
4.2.1	A VIZSGÁLT OPTIKAI RENDSZEREK	35
4.2.1.1	Az 1. elrendezés	37
4.2.1.2	A 2. elrendezés	37
4.2.1.3	A 3. elrendezés	38
4.2.2	EREDMÉNYEK	38
4.2.2.1	Az impulzusok térbeli átfedése	38
4.2.2.2	Az impulzusok időbeli átfedése	39
4.2.2.3	Az elrendezések érzékenysége a beállítási hibákra	41
4.2.2.4	További gyakorlati vonatkozások	44
4.3	KÉSÉSI IDŐ KORREKCIÓJA SZÖGDISZPERZIÓVAL RENDELKEZŐ OPTIKAI RENDSZEREK MODELLEZÉSÉNÉL	48
4.3.1	KORREKCIÓS ELJÁRÁS A CSOPORTKÉPES SZÁMOLÁSÁRA	49
4.3.2	SZÖGDISZPERZIÓVAL RENDELKEZŐ ELRENDEZÉSEK	50
4.3.3	EREDMÉNYEK	52
4.4	DÖNTÖTT IMPULZUSFRONTÚ GERJESZTÉSEN ALAPULÓ ELRENDEZÉSEK VIZSGÁLATA	57
4.4.1	TERAHERTZES IMPULZUSOK ELŐÁLLÍTÁSA ÉS DETEKTÁLÁSA GAP KRISTÁLYBAN	57
4.4.2	TERAHERTZES IMPULZUSOK ELŐÁLLÍTÁSA LiNbO_3 ÉS LiTaO_3 KRISTÁLYBAN ÉS A SUGÁRZÁS KRISTÁLYON KÍVÜL VALÓ DETEKTÁLÁSA	61
5	ÖSSZEFOGLALÁS	65
6	SUMMARY	67
	KÖSZÖNETNYILVÁNÍTÁS	69
	IRODALOM	70

1 BEVEZETÉS

Az ultragyors lézer technológia és spektroszkópia femtoszekundumos lézerek impulzusait alkalmazza anyagi vizsgálatoknál. A rövid impulzushossznak köszönhetően a nagyon gyorsan lejátszódó folyamatok is nyomkövethetővé válnak. Az impulzusok azonban az optikai rendszereken való áthaladás során jelentős időbeli torzulást szenvedhetnek az optikai elemek anyagi, illetve szögdiszperziójának következtében. Femtoszekundumos optikai rendszerek tervezésekor a legfontosabb szempont olyan elrendezések létrehozása, amelyek az ultrarövid impulzusokat úgy juttatják el a mintához, hogy közben azok eredeti hossza nem növekszik meg jelentősen.

A tervezéshez szükség van olyan hatékony számolási módszerekre, amelyek az impulzusok terjedését megbízhatóan modellezik. A valós sugárvezetésen alapuló numerikus eredmények a geometriai optika érvényességi határán belül pontos információt adnak a leképezés térbeli tulajdonságairól. Nagy időbeli felbontású méréseket megvalósító rendszerek esetén azonban szükséges meghatározni azt, hogy az impulzus spektrális komponensei egymásmáshoz képest mekkora késést szenvednek, amíg elérnek a mintához.

A dolgozatban azon eredményeimet mutatom be, amelyeket femtoszekundumos impulzusok alkalmazó optikai rendszerek térbeli és időbeli tulajdonságainak vizsgálata során értem el. A vizsgált elrendezésekkel eredményes kísérleti munka folytattunk, egyrészt félvezető kristály polariton dinamikájának vizsgálatára, másrészt terahertzes impulzusok keltésére.

Az értekezés hat fő fejezetre tagolódik. Ezen bevezetést követően a 2. fejezetben a tudományos előzmények között röviden áttekintem az ultrarövid impulzusok lineáris terjedésének elméletét, valamint azt a geometriai optikai megközelítést, amely az impulzusok terjedésének modellezésekor alkalmazható. Ennek során definiálom azt a fizikai mennyiséget, a csoportkésést, amellyel az impulzusok optikai rendszerekben való terjedése jól jellemezhető, és amely mennyiség meghatározása a jelen értekezés egyik témája. A doktori munkám során végzett modellező számolásaim kétféle mérési technikával végzett kísérletekhez kapcsolódtak: fonon-polaritonok dinamikájának impulzív módon gerjesztett Raman szórással történt vizsgálatához, valamint terahertzes impulzusok döntött impulzusfrontú gerjesztéssel való előállításához és detektálásához. Az ezekkel kapcsolatos fizikai jelenségeket, valamint a két mérési technikát részletesen ismertetem. Végezetül rendszerezem azokat az optikai elrendezéseket, amelyekkel ezen mérési eljárások megvalósíthatók.

A 3. fejezetben megfogalmazom célkitűzéseimet.

A 4. fejezetben négy pontba foglalva mutatom be kutatásaim eredményeit. Az új tudományos eredmények között elsőként a dinamikus rácsok gerjesztésére használt, mikroszkóp objektívet tartalmazó optikai rendszert modellező számolásaimat mutatom be. Utána áttérek azon eredményeim ismertetésére, amely dinamikus rácsok keltésére szolgáló három optikai rendszer összehasonlító vizsgálata során értem el. Ezután megmutatom, hogy szögdiszperzióval rendelkező optikai rendszerek modellezésekor a szokásos számolási módszer nem ad megbízható eredményt olyan leképezéseknél, amelyek nem aberrációmentesek, és ismertetem azt az általam kidolgozott módszert, amely kezeli ezt a problémát. Végezetül ismertetem a terahertzes impulzusok keltésével kapcsolatos modellező számolásaimat, ezen számolások eredményei alapján megépített kísérleti elrendezéseket, valamint a mérési eredményeinket.

Az 5. és 6. fejezetben röviden összefoglalom a dolgozatban ismertetett tudományos eredményeimet magyarul és angolul.

Az értekezésben bemutatott tudományos eredményeim döntött impulzusfrontú ultrarövid fénynyalábot alkalmazó gerjesztési elrendezésekkel fonon polaritonok sebesség-illesztett impulzív gerjesztését valósítottuk meg. Az impulzusfront dőlését a fénynyaláb reflexiós rácson való diffrakciójával lehet kiváltani, ám a kívánt szögdiszperzió leképezését a nemlineáris anyagba többféleképpen lehet megvalósítani. Eltérő optikai elemeket tartalmazó leképező rendszerek modellezését és optimalizálását végeztem el többféle nemlineáris kristályra. Ezen számolások alapján összeállított kísérleti elrendezésekkel terahertzes sugárzást állítottunk elő és detektáltunk GaP, LiNbO₃ és LiTaO₃ kristályokban. többsége a *Pécsi Tudományegyetem Kísérleti Fizika Tanszékén*, a 4.4 fejezet kísérleti eredményei a *Max-Planck-Institut für Festkörperforschung* intézetben születtek.

2 TUDOMÁNYOS ELŐZMÉNYEK

2.1 Ultrarövid impulzusok terjedése optikai rendszerekben

A kísérletek időbeli feloldását mindig az korlátozza, hogy milyen rövid kontrollált jelenséget tudunk kiváltani. Például egy dinamikus folyamat fotografiai rögzítését a kamera legrövidebb zárideje, vagy a rögzítendő folyamatot megvilágító stroboszkópikus fényimpulzus legrövidebb felvillanása határozza meg. Ez a fotografiai felvételek időbeli feloldását a milliszekundumos, illetve a mikroszekundumos tartományra korlátozza. Az ultrarövid lézerimpulzusok fejlődése következtében az időbeli felbontás korlátjai több nagyságrenddel eltolódtak, és időbontott vizsgálatok váltak lehetővé a femtoszekundumos (10^{-15} s) tartományon [1,2].

A femtoszekundumos impulzusok a legrövidebb ember által előállított kontrollálható események közé tartoznak¹. A nagyon rövid impulzushossz lehetővé teszi időben gyorsan lejátszó jelenségek kiváltását, detektálását és vizsgálatát. A kísérleti elrendezésen való áthaladás során a femtoszekundumos lézer impulzusok széles frekvenciaspektruma viszont az impulzus időbeli kiszélesedéséhez vezethet. Emiatt az ultrarövid impulzusok előállításához, diagnosztikai vizsgálatához és alkalmazásához olyan optikai eszközök szükségesek, amelyek vagy egyáltalán nem változtatják meg a rajtuk áthaladó impulzusok időbeli tulajdonságait, vagy azt jól ismert módon teszik.

2.1.1 Csoportsebesség diszperzió, fényimpulzusok torzulása

Egy hullám fázissebessége általában függ a frekvenciájától - ez a diszperzió jelensége [3]. Optikai terek esetén a vákuum diszperziós relációja

$$\omega = ck, \quad (2.1)$$

ahol ω a sugárzás körfrekvenciája, k a hullámszám és c egy állandó sebesség. Ebben az esetben az ω középponti frekvenciájú hullámcsomag

$$v_f = \frac{\omega}{k} \quad (2.2)$$

fázissebessége, és

¹ A legrövidebb lézerimpulzus a látható tartományban néhány femtoszekundum időtartamú, míg gáz halmazállapotban lévő atomok nagyintenzitású femtoszekundumos lézerimpulzusokkal történő besugárzásakor az extrém ultraibolya és lágy-röntgen tartományban magasabbrendű felharmonikusok kelthetők. Ezek összessége attoszekundumos (10^{-18} s) impulzusokat eredményezhet.

$$v_{cs} = \frac{\partial \omega}{\partial k} \quad (2.3)$$

csoportsebessége egyaránt c -vel egyenlő. Minden optikai közegben az abszorpciós rezonanciák jelenléte miatt ez a diszperziós reláció megváltozik, és az impulzus megváltoztatja az alakját a közegben való terjedés közben, térben és időben kiszélesedik

A véges frekvenciaspektrummal rendelkező impulzusok optikai rendszerekben való terjedésének tárgyalásakor az alábbi lineáris közelítés érvényes [4]: az optikai rendszer utáni $E_{ki}(t)$ elektromos mező a rendszer előtti $E_{be}(t)$ mezővel az

$$E_{ki}(t) = \int_{-\infty}^{\infty} dt' S(t, t') E_{be}(t') \quad (2.4)$$

kapcsolatban áll, ahol $S(t, t')$ a rendszer impulzus válaszfüggvénye. A (2.4) egyenlet Fourier transzformáltja

$$\tilde{E}_{ki}(\omega) = \tilde{S}(\omega) E_{be}(\omega) \quad (2.5)$$

alakú, ahol a rendszer $\tilde{S}(\omega)$ átviteli függvénye a definíció szerint

$$\tilde{S}(\omega) \delta(\omega - \omega') = \int_{-\infty}^{\infty} dt' \int_{-\infty}^{\infty} dt S(t, t') e^{i\omega t} e^{-i\omega' t'} . \quad (2.6)$$

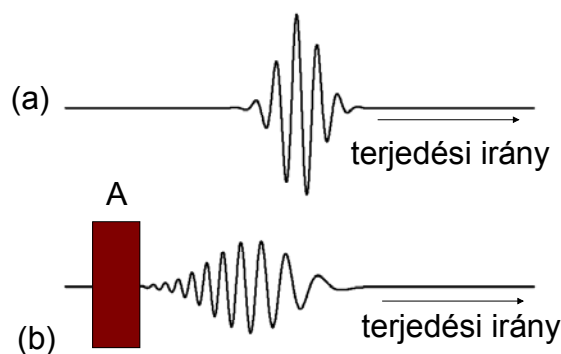
Az átviteli függvény argumentuma az úgynevezett $\varphi(\omega)$ spektrális fázis átviteli függvény; ez az impulzus ω frekvenciájú spektrális komponense által összegyűjtött fázis, miközben az optikai rendszert meghatározó bemeneti és kimeneti referenciasíkok között halad át. Ennek a függvénynek fontos szerepe van az ultragyors optikai folyamatok leírásánál.

A fázisfüggvényt Taylor-sorba fejthetjük az ω_0 központi körfrekvencia körül, feltéve, hogy a fázis lassan változik a frekvenciával:

$$\begin{aligned} \varphi(\omega) = & \varphi(\omega_0) + (\omega - \omega_0) \varphi'(\omega_0) + \frac{1}{2} (\omega - \omega_0)^2 \varphi''(\omega_0) \\ & + \frac{1}{6} (\omega - \omega_0)^3 \varphi'''(\omega_0) + \dots \end{aligned} \quad (2.7)$$

ahol

$$\varphi'(\omega_0) = \left. \frac{\partial \varphi}{\partial \omega} \right|_{\omega=\omega_0}, \quad \varphi''(\omega_0) = \left. \frac{\partial^2 \varphi}{\partial \omega^2} \right|_{\omega=\omega_0}, \quad \varphi'''(\omega_0) = \left. \frac{\partial^3 \varphi}{\partial \omega^3} \right|_{\omega=\omega_0}, \quad \text{stb.} \quad (2.8)$$



2.1. ábra Gauss-impulzus elektromos térnek sematikus ábrázolása (a) zavartalan terjedés során, valamint (b) pozitív diszperziójú A anyagon való áthaladás után. Az utóbbin megfigyelhető a frekvencia eltolódás az alacsonyabb frekvenciájúaktól a magasabbak felé (jobbról balra).

Egy rendszer diszperzív tulajdonságait a spektrális fázisfüggvényben szereplő (2.8) deriváltak határozzák meg.

Az impulzus terjedés szempontjából a $\varphi(\omega_0)$ abszolút fázis azt mutatja meg, hogy - egyszerű impulzusalakok esetén - a vivőfrekvencia fázisa hol van az impulzus burkolójának maximumához képest. Optikai rendszerek tervezése során általában nem veszik figyelembe, mivel egy vagy két optikai ciklusnál hosszabb impulzusok esetén nem játszik szerepet a fényanyag kölcsönhatásban [5].

A sor második tagja által leírt monoton fázisváltozás a fényimpulzus

$$\tau(\omega) = \frac{d\varphi}{d\omega} \quad (2.9)$$

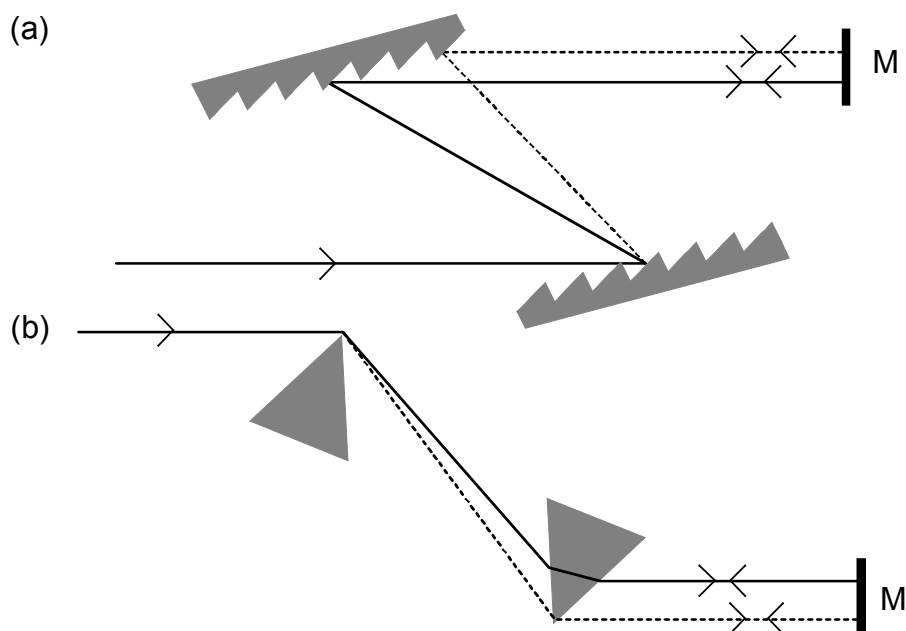
időnyi késését okozza, ha a magasabb rendű tagok elhanyagolhatóak. Amennyiben ezek a tagok jelentősek, akkor τ csak az ω_0 átlagos körfrekvenciájú hullámcsoport késési idejét adja meg, ezért ezt a mennyiséget csoportkésésnek nevezzük.

A magasabbrendű fázisderiváltakat másod-, harmad-, stb. rendű csoportkésés diszperzióknak nevezzük, és a bemenő fényimpulzus alakjának és fázismodulációjának megváltozását okozzák.

A diszperzió az optikában az anyagok törésmutatójának frekvenciafüggéséből származhat. Amikor az impulzus egy L hosszúságú, $n(\omega)$ törésmutatójú anyagon halad át, a fázisfüggvény

$$\varphi(\omega) = \frac{\omega}{c} n(\omega)L \quad (2.10)$$

alakú. Az optikai anyagok többsége normális diszperziót mutat (a rövidebb hullámhosszak felé haladva a törésmutató értéke növekszik), így az áthaladó impulzus fázismodulációja „pozitív” lesz, azaz a nagyobb frekvenciájú komponensek lemaradnak az alacsonyabb frekvenciájúakhoz képest. Ezt szemlélteti a 2.1. ábra.

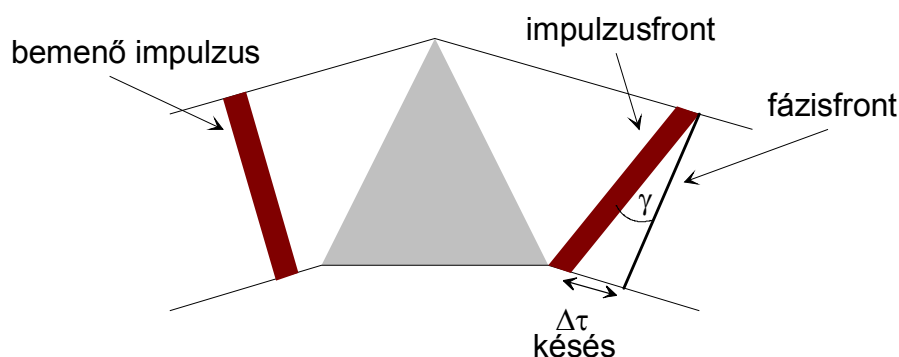


2.2. ábra Diszperzió kompenzálására használt (a) rácson és (b) prizmás kompresszor. A pontozott vonal a hosszú, a szaggatott vonal a rövid hullámhosszú spektrális komponensek által megtett utat jelöli. Az impulzus térbeli diszperziója a T tükrön való visszaverődés után megszűnik.

Az egymás után elhelyezkedő közegekben való terjedés során az egyes közegek által létrehozott fáziseltolódások összeadódnak. Ez lehetővé teszi, hogy a $\varphi(\omega)$ fáziskarakterisztikájú eszköz által fázismodulálttá tett, eredetileg transzformáció limitált impulzus ismét transzformációlimitálttá váljon egy másik, $-\varphi(\omega)$ fáziskarakterisztikájú eszközön való áthaladás során. Ezek az anyagi diszperzió kompenzálására használt negatív csoportkésés diszperzióval rendelkező eszközök az impulzuskompresszorok. E. B. Treacy használt elsőként impulzuskompresszort 1968-ban [6]. Azóta számos rácson [7] és prizmapáron [8] alapuló kompressziós sémát fejlessztek ki. A két lefontosabb sémát a 2.2. ábra mutatja. Mindkét esetben az optikai elem - a rácson, illetve a prizmán – bekövetkező diffrakció szögének frekvenciafüggése miatt az elem páron történő áthaladáskor a fényimpulzus kisebb frekvenciájú hullámcsohajának hosszabb utat kell megtennie, mint a nagyobb frekvenciájúnak. Az optikai elemek szeparációjának megfelelő megválasztásával a kezdeti pozitív csoportkésés diszperzió megszüntethető. A rácson kompresszorok kis rácsszeparáció esetén is jelentős negatív csoportkésés diszperziót hoznak létre, így kompakt eszközök építését teszik lehetővé. Hátrányos tulajdonságuk viszont a nagy transzmissziós veszteség. A prizmapárokkal történő

csoportkésés diszperzió legnagyobb előnye, hogy a Fresnel reflexiós veszteségek a megfelelő lineáris polarizációjú nyaláboknál minimalizálhatóak, és gyakorlatilag veszteség nélküli a rendszer, amennyiben a prizma törőszöge úgy van megválasztva, hogy a középponti hullámhosszú komponens minimális eltéréseknél a beesés szöge Brewster szög legyen. Mindkét típusú kompresszort kettős-átmenetű elrendezésben használják, így a spektrális komponensek térbeli szétválása megszűnik.

Mindkét optikai rendszerben refrakcióból, vagy diffrakcióból származó szögdiszperzió okozza a diszperziót. Ezért szokás az ilyen típusú diszperziót a geometriai diszperzió elnevezéssel megkülönböztetni az anyagi diszperziótól.



2.3. ábra Prizmán áthaladó fényimpulzus impulzusfrontjának dőlése a fázisfronthoz képest.

Amennyiben a rövid impulzus terének transzverzális (nyalábkeresztmetszet menti) változását is figyelembe vesszük, egy másik fontos diszperziós jelenséggel, az impulzusfront késésből származó, úgynevezett impulzusfronttorzulással is számolnunk kell. Ezt a minden diszperzív elemnél fellépő jelenséget elsőként az optikai prizmán áthaladó impulzusokban fellépő impulzusfrontdőlésként ismerték fel 1975-ben, amely abból származik, hogy (a 2.3. ábrán látható módon) a prizma különböző pontjain áthaladó nyaláb eltérő vastagságú anyagon halad át, így eltérő csoportkésést szenved [9], amely értéke egy adott λ hullámhosszúságú bemenő hullámhossznál

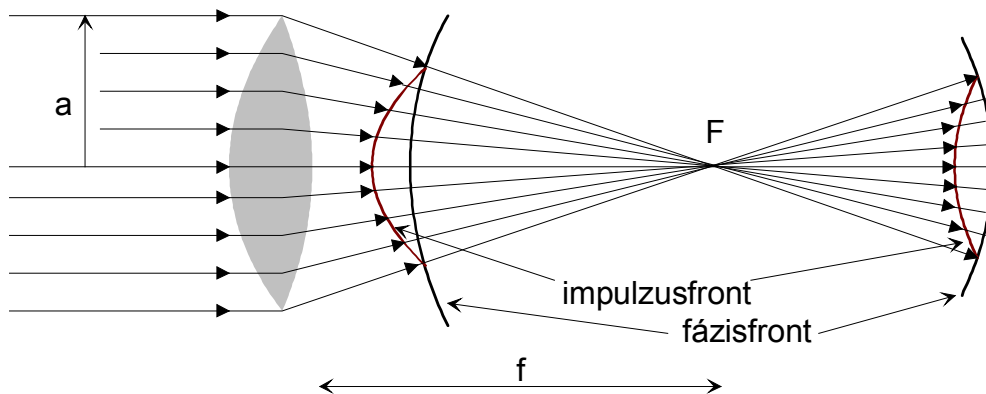
$$\Delta\tau = \frac{L}{c} \left(-\lambda \frac{dn(\lambda)}{d\lambda} \right) \quad (2.11)$$

mértékű. Később rámutattak arra, hogy hasonló jelenség történik rácson való diffrakció [10] során is. Rövid impulzusok lencsén és lencserendszeren való áthaladásakor megfigyelt impulzusfronttorzulásból származó késés [11,12] bizonyos esetekben a csoportsebesség diszperzióból származó késésnél akár nagyságrendekkel is nagyobb mértékű lehet, ennek a jelenségnek a vizsgálata azonban egészen a nyolcvanas évek végéig váratott magára [13]. Bor

Zsolt mutatott rá először lencséken és lencse rendszereken áthaladó femtoszekundumos impulzusok torzulását vizsgálva arra, hogy a lencse anyagában a fázissebesség és csoportsebesség közti különbség következtében az impulzusfront kését szenved a fázisfronthoz képest, amely különbség az eltérő lencsevastagság következtében a nyaláb keresztmetszete mentén változik (2.4. ábra). A lencse szélén haladó sugár ΔT idővel hamarabb ér a fókusz síkba, mint a lencse közepén áthaladó nyaláb, így rövid impulzusok fókuszálásakor a fókuszpontba érkező impulzus hossza jelentősen megnő. Homogén megvilágítás esetén ez a ΔT paraméter az impulzus kiszélesedésének mértékét adja meg. Fermat elvéből és analitikus sugárvetési számolást alkalmazva paraxiális megközelítésben megmutatható [13], hogy

$$\Delta T = \frac{a^2 k_0}{2f_0(n_0 - 1)} \left. \frac{dn}{d\omega} \right|_{\omega=\omega_0}, \quad (2.12)$$

ahol a a lencse apertúrájának sugara, f_0 a lencse fókusztávolsága, k_0 a hullámvektor, és n_0 a lencse anyagának törésmutatója. A nulla indexű mennyiségek minden esetben az ω_0 középponti körfrekvenciánál vett értéket jelentik.



2.4. ábra Lencsén áthaladó fényimpulzus impulzusfrontjának kését a fázisfronthoz képest.

Egy 10 cm fókusztávolságú BK 7-es lencse esetében például az optikai tengelyen, és attól 1 cm-re haladó sugár között 50 fs késés alakul ki, ami napjaink ultragyors lézer technológiája által rutinszerűen alkalmazott impulzushosszakkal összemérhető nagyságú.

2.1.2 Ultrarövid impulzusok terjedésének modellezése — geometriai optika

Az optikai tervező programok sugárvetési algoritmusai [14] pontos információt adnak az optikai leképező-rendszerek térbeli tulajdonságairól. Nagy időbeli felbontású méréseket megvalósító rendszerek esetén azonban az alkalmazott rövid impulzusok időbeli torzulása nem hanyagolható el. Számos dolgozat tárgyalja a femtoszekundumos impulzusok optikai

rendszerekben való terjedését a hullámoptikai elmélet alapján [15,16]. Ezek a probléma hullámoptikai leírásán alapuló szimulációk azonban minden esetben megerősítették a fázisfronttorzulásra vonatkozó korábbi, geometriai optikai számolás eredményeit [13].

Gyakorlati problémák megoldása során a hullámoptikai megközelítés hátránya az, hogy bonyolult numerikus számolások elvégzését kívánja meg. Azontúl számos egyszerűsítésre és közelítésre van szükség ahhoz, hogy a modellek egyszerűségét és a gyakorlati problémák megoldásához való alkalmazhatóságát megőrizzék. Emiatt egyszerűségük és gyorsaságuk miatt továbbra is fontosak maradnak azok a törekvések, amelyek a femtoszekundumos impulzusok terjedését sugárkövetésen alapuló módszerekkel megbízhatóan próbálják leírni.

Az irodalomban szokásos számolási módszer a repülési idő meghatározása a geometriai úthosszból. Ez a geometriai optikán alapuló eljárás számtalan területen nyert alkalmazást: többek között a nyolcvanas években használták az szub-pikoszekundumos impulzusokat előállító optikai rezonátorok modellezésére éppúgy [17], mint napjainkban attoszekundumos impulzusok jellemzésére szolgáló Michelson interferométerek tervezésére [18].

A csoportkésés (2.9) egyenletben megadott definíciójából kiindulva a (2.10) egyenlet alapján, és a frekvenciafüggést hullámhosszfüggéssé átalakítva, megkapjuk egy diszperzív közegen áthaladó impulzus csoportkésését:

$$\tau(\lambda) = \frac{1}{c} \left(nL - L\lambda \frac{dn}{d\lambda} - n\lambda \frac{dL}{d\lambda} \right). \quad (2.13)$$

Amennyiben egy optikai elrendezés esetén ismerjük az úthossz hullámhossz függését és a különböző optikai közegekben felhalmozódó csoportkésést összegezzük, információt nyerhetünk arról, hogy a rendszerből kilépő impulzusfront milyen torzulást szenved. A sugárkövetéses analízisen alapuló tipikus módszer az impulzusfronttorzulás jellemzésére a relatív csoportkésés meghatározása egy $\Delta\lambda$ félértékszélességű impulzus két szélső spektrális összetevőjénél a nyaláb keresztmetszetének különböző pontján a képsíkban.

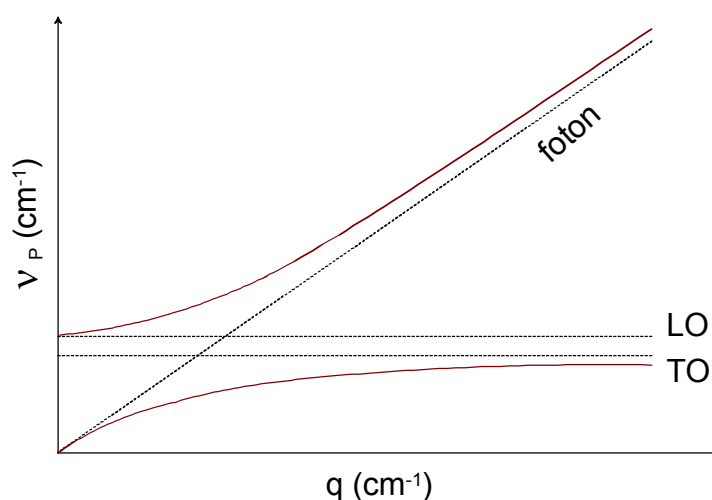
A femtoszekundumos impulzusok hatékony felhasználása érdekében fontos, hogy a forrástól a mérés helyéig eljutva a lehető legkisebb torzulást szenvedje az impulzus. A modellező számolások segítségével elvégezhető az optikai rendszerek optimalizálása, így az azokon áthaladó impulzusok torzulása minimalizálható.

2.2 Rövid impulzusokat alkalmazó mérési technikák

A napjainkban elterjedt rövid impulzusokat alkalmazó mérési technikák közül a szilárdtestek polariton dinamikájának vizsgálatát lehetővé tevő impulzív módon gerjesztett Raman szórás, és a THz frekvenciatartományú spektroszkópiában alkalmazható, szub-pikoszekundumos terahertzes impulzusok előállításának és detektálásának egy-egy módszerét ismertetem. A két technika kiragadását a számos időfeloldott mérési eljárás közül az indolokja, hogy modellező számolásaim ezeket a technikákat megvalósító elrendezésekre vonatkoznak.

2.2.1 Impulzív módon gerjesztett Raman-szórás

Az atomrács gerjesztésének normál módusai kvantáltak, a rácsrezgések kvantumai a fononok [19]. A kristályszerkezetben a rezgéseknek kétféle módusát különböztetjük meg: a longitudinális módust, amennyiben az atomoknak egyensúlyi helyzetből való elmozdulásuk megfelel a fonon terjedési irányának, illetve a transzverzális módust, amikor a hullám terjedési irányára merőleges az atomok rezgése. Ausztikai fonon jelenlétében az egységcellák egymáshoz képest mozognak, míg optikai fonon esetén az egységcellán belül elhelyezkedő ionok mozognak egymáshoz képest.



2.5. ábra Fonon diszperziós görbéjének sematikus ábrázolása.

A szilárdtestek atomrács gerjesztéseinek időbeli változását a kényszerített Raman-szórás segítségével lehet nyomon követni. A kényszerített Raman-szórás négyfotonos folyamat, és akkor valósul meg, ha egy vagy két lézerimpulzus két pumpáló fotonja koherensen gerjeszti az atomrácsot, amin egy harmadik próba lézerimpulzusból származó foton szóródik. Ionos kristályokban a gerjesztő elektromágneses tér és a transzverzális optikai fononok között erős csatolás jön létre, az úgynevezett fonon-polariton [19,20]. A 2.5. ábra a csatolás nélküli fononok

és fotonok, valamint a polaritonok diszperzióját, azaz energiájának a hullámszámfüggvényét mutatja. A polariton alsó diszperziós ágát az

$$\Omega_P(q) = \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{\omega_{LO}^2 + \frac{q^2}{4\pi^2 \epsilon_\infty} - \sqrt{\left(\omega_{LO}^2 + \frac{q^2}{4\pi^2 \epsilon_\infty}\right)^2 - \frac{4q^2}{4\pi^2 \epsilon_\infty} \omega_{TO}^2}} \quad (2.14)$$

egyenlet írja le [21], ahol ω_P , ω_{LO} és ω_{TO} a polariton és a longitudinális, valamint a transzverzális fonon frekvenciája, q a polariton hullámszámvektorának a nagysága, és ϵ_∞ a relatív dielektromos állandó a ω_{LO} -hoz képest nagy frekvenciánál. A GaP félvezető kristálynál mérték ki először ezt az összefüggést szórási szögben feloldott spontán Raman szórás segítségével, így bizonyítva először kísérletileg a polaritonok létezését [22].

Az optikai fononok és a polariton akusztikus fononná tudnak bomlani, amely bomlás közvetlenül időben nyomon követhető. GaP-ban keltett polariton élettartamát először koherens anti-Stokes-i Raman szórással mérték [23,24]. Az ezekben a szórási kísérletekben lejátszódó folyamatokra az energia- és a momentum megmaradási tételt felírva megkapjuk az ω_L és ω_S frekvenciájú, valamint \vec{k}_L és \vec{k}_S impulzusú fotonok által keltett polariton

$$\omega_P = \omega_L - \omega_S \quad (2.15)$$

frekvenciáját és

$$\vec{q} = \vec{k}_L - \vec{k}_S \quad (2.16)$$

hullámszámvektorát. Az ilyen jellemzőkkel rendelkező fononon egy késleltetett ω_L frekvenciájú impulzus szóródva

$$\omega_A = \omega_L + \omega_P \quad (2.17)$$

frekvenciájú és

$$\vec{k}_A = \vec{k}_L + \vec{q} \quad (2.18)$$

hullámszámvektorú lesz. A fény intenzitásának a késleltetéstől való függéséből a polaritonok élettartamát meg lehet határozni; 361 cm^{-1} , 354 cm^{-1} és 344 cm^{-1} $\omega_P/2\pi$ értékű polaritonok esetén $5,5 \text{ ps}$ [23], $1,3 \text{ ps}$ és $0,5 \text{ ps}$ [24] értékeket kaptak.

A polaritonok oszcillációinak feloldásához a pikoszekundumos időtartamú lézerpulzusokat alkalmazó technikák időbeli felbontása nem volt elegendő, erre az impulzív

módon gerjesztett Raman szórás alapján alapuló mérés technika ad lehetőséget [25,26]. Az impulzív gerjesztés alatt azt értjük, hogy a rácsrezgést létrehozó, illetve azon szóródó fotonok olyan impulzusból származnak, amelynek időtartama jelentősen rövidebb a szórást okozó rezgés periódusánál. A ultrarövid gerjesztő fényimpulzus széles frekvenciaspektrumában előfordulnak olyan frekvenciapárok, amelyekre a (2.15) és (2.17) egyenletpár teljesül. Kis frekvenciájú rezgések esetén a fázisillesztés (2.16) és (2.18) egyenletben felírt feltételei közelítőleg fennállnak párhuzamos hullámszámvektorok esetén is, ilyenkor egy pumpa-próba típusú elrendezés alkalmas a rezgések megfigyelésére [27,28]. Nagy frekvenciájú anyagi rezgések esetén azonban, így tehát polaritonok dinamikájának vizsgálata során is, a fázisillesztéshez két, egymással Θ szöget bezáró pumpáló nyaláb szükséges. Az ezt megvalósító gerjesztési elrendezéseket a 2.3 fejezetben fogom ismertetni.

2.2.2 Terahertzes impulzusok keltése és detektálása

Az elektromágneses spektrum közeli és középső infravörös tartománya elérhető optikai parametrikus frekvencia konverzióval, 18 μm -nél hosszabb hullámhosszú impulzusok azonban csak az úgynevezett terahertzes technikákkal állíthatóak elő. Az ultrarövid impulzusokat alkalmazó távoli infravörös frekvenciatartományú spektroszkópia lehetővé teszi különböző anyagok komplex dielektromos állandójának teljes karakterizálását [29,30], ennek következtében a dinamikus hatásokat szubpikoszekundumos időskáláig fel lehet bontani [31].

Gyakorlatilag két módja van szubpikoszekundumos terahertzes impulzusok előállításának: a fotovezetés és az optikai egyenirányítás. A fotovezetés során az abszorbeáló félvezetőt besugárzó lézerefény töltéshordozókat hoz létre a vezetési sávban. Amennyiben ezeket a töltéshordozókat elektromos tér gyorsítja, egy tranziens fotoáram alakul ki, ami elektromágneses hullámot sugároz [29,32,33].

Az optikai egyenirányítás egy nemlineáris kölcsönhatás. Ennek során a terahertz frekvenciájú sugárzás látható hullámhosszú ultrarövid gerjesztő impulzus hatására keletkezik a kristályban, különbségi frekvenciakeltés következtében. Ez akkor hatásos, ha a résztvevő sugárzások hullámszámaiból képzett Δk érték nulla:

$$\Delta k = k(\omega_l + \omega_{THz}) - k(\omega_l) - k(\omega_{THz}) = 0, \quad (2.19)$$

ahol ω_l a látható, és ω_{THz} a THz impulzus körfrekvenciája, valamint ω_l és $\omega_l + \omega_{THz}$ a gerjesztő ultrarövid impulzus véges sáv szélességű spektrális tartományába esik. Amikor ez

teljesül, akkor fázisillesztésről beszélünk. Ebben az esetben a látható fény v_l^{cs} csoportsebességét a terahertzes impulzus v_{THz}^f fázissebességéhez kell illeszteni [34,35]:

$$v_l^{cs} = v_{THz}^f. \quad (2.20)$$

Az optikai egyenirányítás ellentétes folyamata az elektrooptikai mintavételezés: az elektrooptikai kristályt érő terahertzes sugárzás hatására, a Pockels-jelenség következtében a kristályban kettőtörés indukálódik. A kettőtörő kristályban áthaladó látható hullámhosszúságú ultragyors próbaimpulzusban fáziskülönbség alakul ki, amely megmérhető. A látható fény relatív késleltetését változtatva, a terahertzes impulzus elektromos terének időbeli változása nyomon követhető [36].

A sebességillesztés (2.20) egyenletben megadott feltétele nagy tiltott sávú félvezető anyagoknál, mint pl. a GaP, 800 nm-es központi hullámhosszúságú gerjesztő lézerefénynél teljesül. A közelmúltban 10-40 THz-es tartományon hangolható sebességillesztett terahertzes sugárzást keltettek kettőtörő GaSe félvezetőben [37], ám ebben az esetben a beesési szöggel való hangolás a nemlineáris folyamat hatékonyságának sajnálatos csökkenésével jár. Továbbá a kettőtörésen alapuló sebességillesztés közvetlen a fononfrekvencia alatti értékeknél még az olyan erősen kettőtörő kristályokban, mint a GaSe sem lehetséges. Ennek az az akadálya, hogy ezen a tartományon az elektromágneses sugárzás sebessége sokkal kisebb, mint a fononfrekvencia felett, az elektromágneses rezgés és a fonon-foton mechanikai rezgés között fellépő erős kölcsönhatás miatt [20,38]. Ez az alapvető probléma minden anyagnál jelen van, emiatt a teljes fononfrekvencia alatti tartományon nem lehet sebességillesztést elérni.

Ezt a problémát megkerüli az elektrooptikai Cserenkov-sugárzáson alapuló terahertzes impulzus előállítás módszer [39]. Ha egy töltött részecske gyorsabban mozog egy folyadékban vagy gázban, mint az adott közegben érvényes fénysebesség, akkor a környező anyagban Cserenkov-sugárzást kelt. Ez az elektromágneses sugárzás a haladási irány körül egy kúp palástja mentén figyelhető meg. A kúp nyílásszöge a közegtől és az elektron sebességétől függ. A sebesség növekedésével a nyílásszög csökken. Az észlelhető fotonok számát az elektron sebessége, a közeg törésmutatója, és a közegben megtett út hossza határozza meg. A nyolcvanas évek elején fedezték fel, hogy megfelelő feltételek mellett elektrooptikai anyagban terjedő femtoszekundumos impulzusok nagyon gyors elektromágneses tranzienseket keltenek. A nemlineáris optikai effektus következtében kialakuló impulzus a részecskefizikából ismert Cserenkov sugárzáshoz hasonlóan kúp mentén terjed, és a frekvenciája a terahertzes tartományba esik. Ennek a technikának a használhatóságát azonban több tényező is behatárolja.

Egyrészt ebben az esetben a kristályban erősen lefókuszált lézertimpulzus kelt fejhullámot, amely egy

$$\Theta_{Cs} = \cos^{-1}\left(\frac{v_{THz}^f}{v_l^{cs}}\right) \quad (2.21)$$

fénylásszögű kúp mentén terjed. A kúp mentén való terjedő sugárzást nehéz a gyakorlati felhasználás számára összegyűjteni. Másrészt az elektrooptikai Cserenkov-hatás csak akkor hatékony, ha a fényimpulzus w nyálábkeresztmetszete kisebb, mint a tengelymenti hossza:

$$w = v_l^{cs} \cdot \tau_l, \quad (2.22)$$

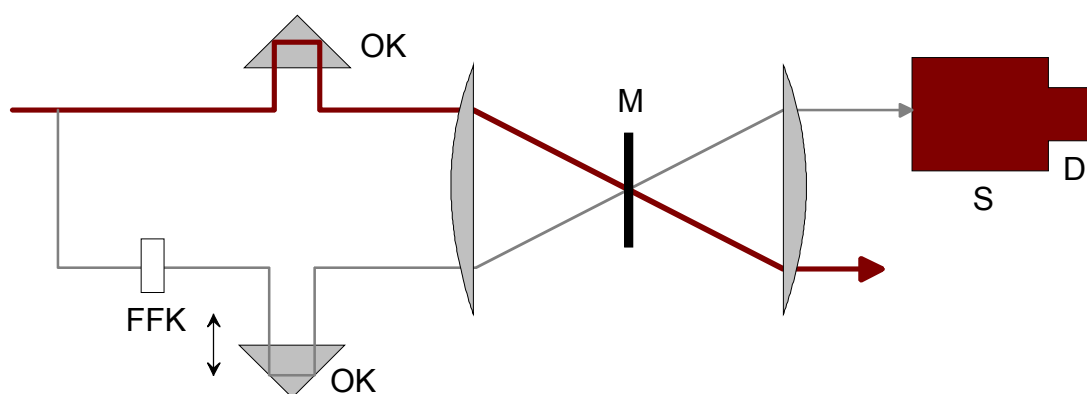
ahol τ_l a látható fény impulzushossza, aminek jelentősen rövidebbnek kell lennie a terahertzes mező rezgésének periódusánál. Így az előállított sugárzás energiáját nem lehet növelni a gerjesztő lézernyaláb energiájának növelésével a kristály roncsolása nélkül. A lézernyaláb keresztmetszete szintén nem növelhető korlátlanul, ugyanis a lézernyaláb átmérőjének lényegesen rövidebbnek kell lennie az előállítandó terahertzes sugárzás hullámhosszánál, különben a kisugárzott terahertzes impulzus energiája gyorsan lecsökken [40,41].

Az a sebességillesztési elrendezés, amely általánosan alkalmazható ultrarövid lézertimpulzusok és az általuk gerjesztett, a nemlineáris kristály fononfrekvenciájánál kisebb frekvenciájú terahertzes impulzusok sebességének az illesztésére, a következő fejezetben kerül bemutatásra.

2.3 Ultrarövid impulzusokat alkalmazó gerjesztési elrendezések

A legtöbb elektronikai eszköz nem képes néhány pikoszekundumnál gyorsabban lecsengő jelek mérésére. Ugyan léteznek olyan speciális elektronikai eszközök (pl. *streak camera*), amelyek pikoszekundumos, vagy akár néhány száz femtoszekundumos időtartamú folyamatok valós idejű detektálására is alkalmasak, azonban ezek kis érzékenysége és korlátozott időfelbontása alternatív detektálási technikák használatát teszi szükségessé. A leelterjedtebben alkalmazott eljárások két ultrarövid impulzusnak egymáshoz képest változtatható késleltetésén alapszanak. Az ultragyors spektroszkópiában használt technikák alapja szintén a megfelelően gyors impulzusok közötti időkésleltetés beállítása. Az alkalmazott sémáknak és az azokat megvalósító gerjesztési elrendezéseknek számtalan változata létezik. A következő fejezetekben a pumpa-próba mérési elvet megvalósító két független módszernek az irodalomban használt lehetséges gerjesztési elrendezéseit ismertetem.

A pumpa-próba mérési elv azon alapszik, hogy a reakciót indító gerjesztő impulzus hatására az anyagban lejátszódó folyamatot egy változó késleltetésű impulzussorozat felhasználásával nyomon követjük. A pumpa nyaláb általában intenzívebb, mint a próba, és a két impulzus eltérő központi hullámhosszúságú lehet, a vizsgálandó kémiai vagy biológiai folyamat természetétől függően. A minta anyagában bekövetkező változások hatására a próba nyaláb a mintán való áthaladás során erősödik, gyengül, vagy törést szenved, polarizációja megváltozik. Ezek a változásokat megmérhetők.

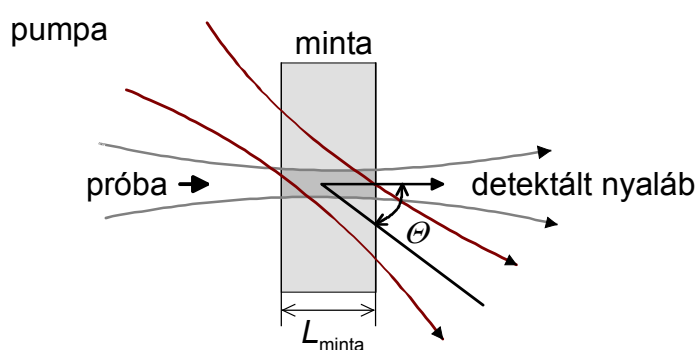


2.6. ábra Hagyományos pumpa-próba spektroszkópiai elrendezés. A intenzívebb prumpanyaláb a mintára (M) van fókuszálva, míg a pumpanyalábból kiválasztott nyaláb a pumpához hasonlóan rövid időtartamú, de nagy spektrális sávszélességű fényimpulzust állít elő: fehér fényű kontinuum (FFK). Ezt a próbát a változtatható mértékű optikai késleltetésen (OK) és a mintán való áthaladás után a spektrométer (S) spektrális összetevőire bontja, majd egy lassú detektor (D) észleli.

Az első időbontott spektroszkópiai vizsgálatoknál való alkalmazása óta [42] a módszert széles körben használják a különböző anyagi tulajdonságok meghatározására. A 2.6. ábra egy tipikus gerjesztési elrendezést ábrázol [43]. A mintára fókuszált pumpa nyaláb kisebb részét egy

optikai nyalábosztóval két részre osztják, a pumpa nyalábot általában másik hullámhosszra konvertálják. Az itt ábrázolt példán fehér fényű kontinuumot generálnak, de más konverziós eljárásokat is alkalmaznak nagy tartományon változtatható hullámhosszúságú próbanyaláb előállítására. Az ábrán látható esetben a próbanyalábot a mintán való áthaladás után egy spektrométer a spektrális összetevőkre bontja, így a minta transzmissziós tranziens spektruma megmérhető. A mért jelet a két impulzus közötti időbeli késés függvényében ábrázolva a mintában a gerjesztés hatására fellépő folyamatok kialakulásáról, majd azok elhalásáról információ nyerhető. Ezzel a módszerrel a transzmisszió változásával járó folyamatokon kívül bármilyen más, optikailag detektálható változás (például a polarizációban, törésmutatóban, stb.) vizsgálható [44,45].

A vizsgálandó anyagi folyamat meghatározza az alkalmazandó pumpa és próba impulzusok hullámhosszát, intenzitását, valamint a nyalábok paramétereit. Aminek minden esetben teljesülnie kell, az a pumpa és próba térbeli és időbeli átfedése a gerjesztett mintában, különben a mért jel a minta gerjesztetlen területéről származik, ami mérési hibákhoz vezet.



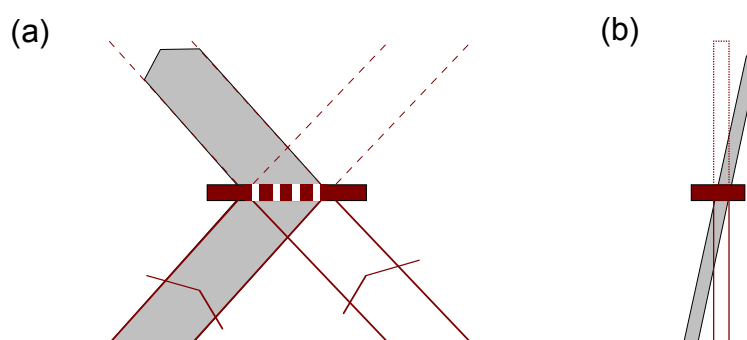
2.7. ábra Pumpa-próba mérések pumpálási sémája.

A térbeli átfedést el lehet érni az úgynevezett kollineáris, vagy hosszirányú pumpálással, mint az a 2.7. ábrán látható. Ez a típusú geometria nagyobb intenzitású nyalábok használatát teszi lehetővé, ám egyúttal rövidebb minták használatát követeli meg. Az elérhető legnagyobb térbeli átfedés mértéke a két nyaláb által bezárt Θ szögtől, a foltmérettől és a nyalábok divergenciájától függ. A pikoszekundumos és femtoszekundumos tartományon végzett méréseknél a minták hossza 2 mm alatti, hogy az anyagi diszperzió nemkívánatos hatását csökkentsék. A Θ szög tipikus értékei a fókuszálástól függően néhány fok és 30° között váltakoznak.

A időbeli feloldást a hosszabb impulzus hossza határozza meg.

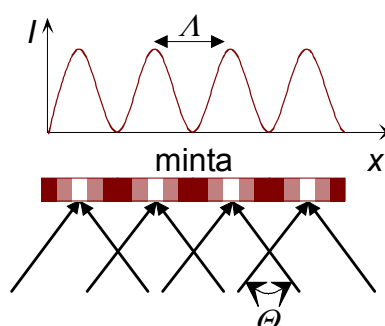
2.3.1 Dinamikus rácsok keltése

Ha két, vagy több intenzív koherens fénynyaláb inkohereus kölcsönhatásba lép egy közeg abszorpciós tartományában, akkor az anyag optikai tulajdonságai a keresztezett nyalábok interferencia mintájának megfelelő térbeli modulációjúak lesznek [46]. Az így kialakuló tranziens rácsok megszűnnek a gerjesztő fényforrás kikapcsolása után. Ezen dinamikus rács keltésén alapuló technikákat széles körben alkalmazzák különböző folyamatok időbontott vizsgálatánál, egy harmadik, a dinamikus rácson diffraktált próba nyalábot annak időbeli késésének függvényében mérve.



2.8. ábra Az indukált-rács spektroszkópiai elrendezés sematikus rajza: (a) a két pumpáló nyaláb által meghatározott (b) és az arra merőleges síkban.

A próba nyalábot szokás a két pumpa nyaláb által meghatározott síkkal kis szöget bezárva küldeni a mintára [47]. Ekkor a 2.8.(b) ábrán látható módon a szórt fény is szöget zár be ezzel a síkkal, és így hatásosan elkülöníthető a pumpáló nyaláboktól, javítva ezáltal a mérés jel/zaj viszonyát. Annak ellenére, hogy a próba nyaláb diffrakciójának hatásfoka általában nem haladja meg a 10 %-ot, a kedvező geometriának köszönhetően a mérés érzékenysége elegendően nagy ahhoz, hogy nagyon gyenge tranziensek vizsgálata is elvégezhető legyen.



2.9. ábra Két azonos intenzitású, koherens nyaláb interferenciájának hatására az anyag optikai tulajdonságai térben periodikusan megváltoznak.

A legegyszerűbb esetben (2.9. ábra) a mintát két azonos spektrális eloszlású, párhuzamos polarizációjú de különböző terjedési irányú síkhullám világítja meg. Ahol a két nyaláb keresztezi

egymást, ott térbeli szinuszos moduláció alakul ki az interferencia következtében. A kialakuló rácsszerkezet Λ állandója a nyalábok által bezárt Θ szögből és a pumpáló fény λ_g hullámhosszából kapható meg:

$$\Lambda = \frac{\lambda_g}{2 \sin\left(\frac{\Theta}{2}\right)}. \quad (2.23)$$

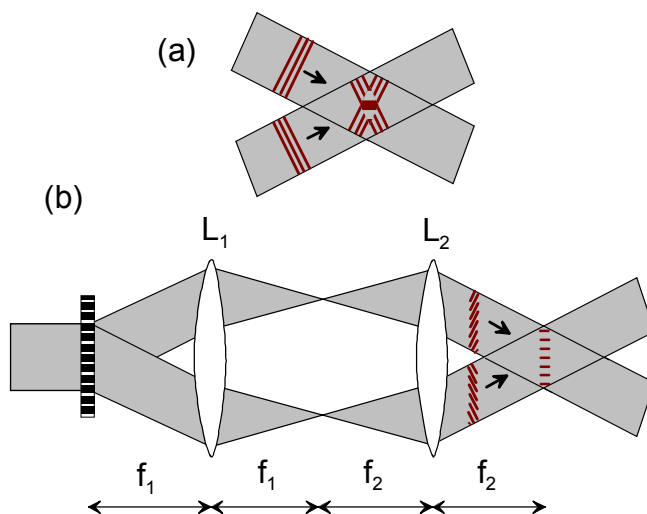
A nagy időbeli felbontást lehetővé tevő ultrarövid impulzusok alkalmazásakor azt a nyilvánvaló problémát kell megoldani, hogy a rövid impulzushossz következtében az egymással Θ szöget bezáró impulzusok térbeli átfedése a 2.10.(a) ábrán látható módon jelentősen lecsökken. Azt a hosszúságot, amin a térbeli átfedés létrejön, a $v^{cs} \tau (\sin \Theta/2)^{-1}$ formulából lehet kiszámolni, ahol v^{cs} a fény közegbeli sebessége és τ az impulzushossz.

A polariton dinamika vizsgálatakor, a két, egymással Θ szöget bezáró pumpáló nyalábbal gerjesztett polariton hullámszámvektorának a nagysága a

$$q = \sqrt{k_L^2 + k_S^2 - 2k_L k_S \cos \Theta} \quad (2.24)$$

formulából számolható [48,49]. A transzverzális optikai fononok frekvenciájához közel eső frekvenciájú polariton hullámszámvektora olyan nagy (lásd 2.4. ábra), hogy a polariton gerjesztéséhez a két pumpáló nyalábnak nagy szöget kell bezárnia egymással. A méréseknél tipikusan alkalmazott 20 fs-os impulzushossz és 20°-os szög esetén a térbeli átfedés mindössze 35 μm mentén jön létre. Egyértelmű, hogy ilyen kicsi térbeli átfedésnél, a gerjesztési hatásosság alacsony és a jel csak kis területről gyűjthető be, ami a mérési pontatlanságot növeli.

A rövid pumpáló impulzusok használatának a másik hátrányos következménye a kisszámú kialakuló interferenciacsík. Transzformáció limitált impulzusok esetén a $2v^{cs} \tau / \lambda_g$ összefüggés adja meg az interferenciacsíkok számát, ami szerint a 20 fs hosszúságú és 800 nm központi hullámhosszú nyalábok esetén mindösszesen 15 interferenciacsíkot eredményez. Fonon-polaritonon történő impulzív módon gerjesztett Raman szórás mérésekor a keltett polaritonok periódusa az interferencia csíkok számával egyezik meg. A kis számú interferenciacsík következtében a jel, ami az állóhullámok következtében alakul ki, hamar elhal, amint az egymással szembenhaladó hullámok elhagyják a gerjesztett tartományt. Így a polariton frekvencia meghatározása bizonytalanná válik.



2.10. ábra (a) A keresztezett femtoszekundumos nyalábok csak egy kis területen fednek át. (b) Elrendezés a nyalábok keresztezésére, ami a teljes nyalábkeresztmetszet menti fedést lehetővé teszi.

Ezen problémák kiküszöbölésére A. A. Maznev és munkatársai a 2.10.(b) ábrán látható elrendezést javasolták, ami transzmissziós rácson diffraktált nyaláboknak a mintán való keresztezésén alapul [50]. Ez a diffraktív optikát tartalmazó elrendezés azt a közismert jelenséget használja ki, hogy a rácson való áthaladáskor az impulzusfront döntött lesz [51], így a különböző diffrakciós rendekhez tartozó impulzusok impulzusfrontjai párhuzamosak lesznek egymással. A diffrakciós rácson áthaladó femtoszekundumos impulzus két konfokális lencséből álló teleszkóp segítségével kerül újra idő- és térbeli átfedésbe a mintán a két első diffrakciós rend. Az elképzelés maga olyan elemeket tartalmaz, amik nem újak az irodalomban: rácsokat régóta alkalmaznak nyalábosztóként az interferometriában [52], elosztott visszacsatolású festéklézerek pumpálásánál holografikus rácsokat képeznek le a lézeraktív anyagba [53], és a [50]-hez hasonló elrendezést már korábban használtak tranziens rács keltésén alapuló méréseknél [54]. Elsőként mégis a 2.10.(b) ábrán látható elrendezés kapcsán mutatták meg elméleti levezetéssel, hogy ha az első lencse fókuszában van a rács, akkor a második lencse fókusz síkjában a két első rendben terjedő impulzus nem szenved torzulást, és a térbeli és időbeli átfedés a teljes nyalábkeresztmetszet mentén teljesül. A periódikus intenzitáseloszlás Λ periódusa

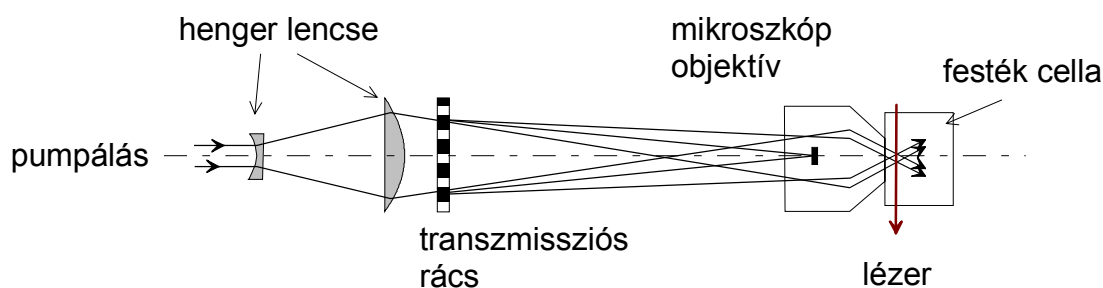
$$\Lambda = \frac{1}{2} \frac{f_2}{f_1} \Lambda_r = \frac{1}{2} M \Lambda_r, \quad (2.25)$$

ahol f_1 és f_2 a két lencse fókusz távolsága, Λ_r pedig a transzmissziós rács periódusa, M pedig a leképezés nagyítása. Ez a intenzitáseloszlás a teljes nyalábkeresztmetszet mentén létrejön, az

impulzushossztól függetlenül. Másrészt, ugyan az impulzusfront dőlésből származó szögdiszperzió az impulzusok időbeli kiszélesedését okozza a rács és a két lencse közös fókuszsíkjá között [55,51,56], a második lencse fókuszsíkjában azonban a impulzusok hossza ismét az eredeti lesz. A párhuzamos impulzusfrontoknak köszönhetően az impulzusok teljes hosszában kialakul az interferenciakép.

Kísérletileg demonstrálták, hogy az elrendezéssel 6000 cm^{-1} rácsvektorú dinamikus rácsot lehet gerjeszteni. Bizonyos méréseknél, többek között a polariton dinamika vizsgálatánál előnyös az olyan optikai elrendezés használata, ami lehetővé teszi a dinamikus rács rácsállandójának hangolását, valamint nagy rácsvektorú dinamikus rácsok keltését. Ennek az értéknek a növelését azonban az optikai lencsék behatárolt numerikus apertúrája gátolja.

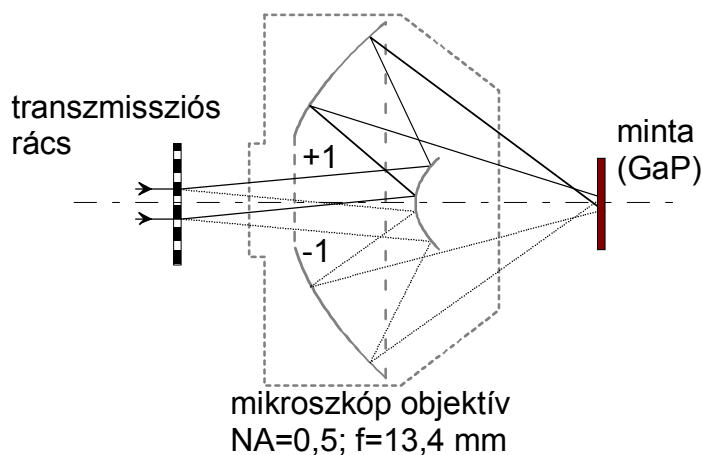
Sokkal nagyobb rácsállandót eredményez a transzmissziós rácsnak egy, a szokásos iránnyal ellentétesen elhelyezett mikroszkóp objektívvel való leképezése. Ezt a típusú elrendezést elosztott visszacsatolású festéklézer pikoszekundumos impulzusokkal való gerjesztésénél használták [57]. A elrendezés működési elvét mutatja a 2.11. ábra. A femtoszekundumos tartományon az anyagi diszperzió miatt azonban a lencsés objektívek az impulzusok időbeli kiszélesedését eredményeznék, így nem használhatóak.



2.11. ábra Elosztott visszacsatolású festéklézer gerjesztése: transzmissziós rács leképezése mikroszkóp objektívvel.

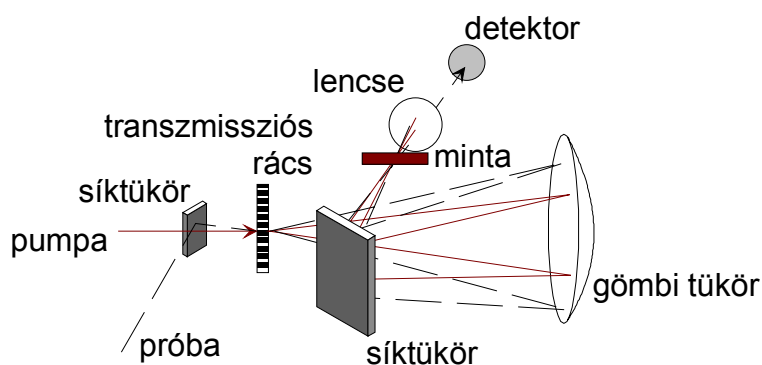
Hebling János és munkatársai a dinamikus rácsok ultragyors gerjesztésére a 2.12. ábrán látható elrendezést valósították meg, amely egy holografikus rácsnak egy reflexiós mikroszkóp objektívvel történő leképezésével hozza létre a dinamikus rácsot [58]. A leképezés kicsinyítésének változtatásával a dinamikus rács periódusa folyamatosan változtatható. Impulzív módon gerjesztett Raman-szórás mérése során, GaP-ban 64000 cm^{-1} hullámszámvektorú polaritont gerjesztve megmutatta, hogy az elrendezés alkalmas nagy rácsállandójú dinamikus rács keltésére femtoszekundumos időfelbontás mellett. Az alkalmazott tükrös objektív nyilvánvalóan előnyös tulajdonsága a lencsés objektívvel szemben az, hogy nincs anyagi diszperzió, így sem a kromatikus aberrációval sem pedig az impulzus kiszélesedésével nem kell

számolni [59]. Másrészt egy adott numerikus apertúrához tartozó fókusztávolság és a látómező nagyobb a tükrös objektív esetén, amely körülmények az elrendezéssel végzett kísérleti munkát megkönnyítik.



2.12. ábra Optikai elrendezés dinamikus rácsok keltésére mikroszkóp objektívvel.

Egy ugyanezen az elven alapuló alternatív elrendezésnél a transzmissziós rácsot egy gömbtükrrel képezték le dinamikus rácsok keltésén alapuló méréseknél [60]. A mérések során a rácstól a tükröt a görbületi sugárral megegyező távolságra helyezték el, ezzel 1:1-es leképezést megvalósítva. A tükrre beeső és onnan visszavert nyalábok térbeli szétválasztását a 2.13. ábrán látható módon, a tükrnek kidöntésével érték el.



2.13. ábra Az optikai elrendezés dinamikus rácsok keltésére gömbtükrrel.

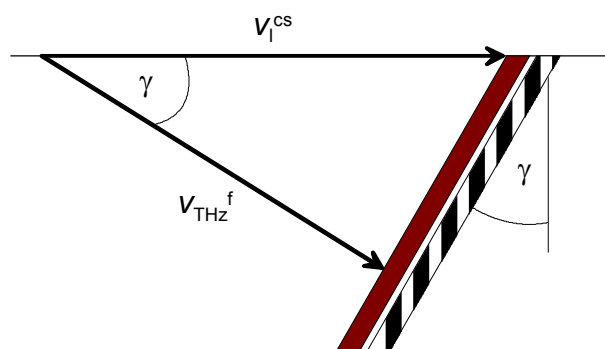
Érdemes megjegyezni, hogy a transzmissziós rács után a pumpa és a próbanyalábnak mindkét első diffrakciós rendje megjelenik, így kis módosítással mindhárom elrendezéssel a mért jel nagysága jelentősen növelhető *heterodyn*-típusú detektálással [61,60,62].

Ezeknél az elrendezéseknél is a gerjesztő nyalábok, valamint a próbanyaláb térbeli és időbeli átfedése éppúgy kritikus a mérés megbízhatósága szempontjából, mint az előző fejezetben ismertetett pumpa-próba méréseknél. A fenti három elrendezés mind ugyanazon az

elven alapszik: a diffraktív optikai elem egyrészt nyalábosztóként szerepel, másrészt létrehozza azt az impulzusfront dőlést, ami az ultrarövid impulzusok hatékony keresztvezését lehetővé teszi. Mindhárom alkamas dinamikus rács keltésén alapuló mérések megvalósítására, mint amilyen például a 2.2.1 fejezetben ismertetett impulzív módon gerjesztett Raman-szórás. A háromféle leképezés azonban nyilvánvalóan olyan, hogy a gerjesztési elrendezések használhatóságát limitáló leképezési hibákat fog bevezetni, amik eltérő típusúak és mértékűek.

2.3.2 Döntött impulzusfrontú gerjesztés

A 2.2.2 fejezetben ismertetett nehézségeket az ultrarövid impulzusok és az általuk gerjesztett, a nemlineáris kristály fononfrekvenciájánál kisebb frekvenciájú terahertzes impulzusok sebességének az illesztésére a Hebling János és munkatársai által javasolt és megvalósított sebességillesztési elrendezés nyújt megoldást [63].



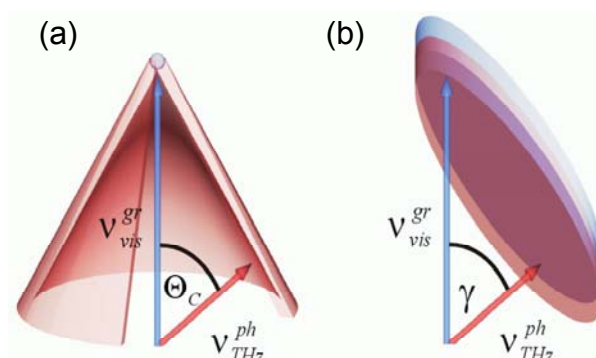
2.14. ábra Impulzív fonon-polariton keltése döntött impulzusfrontú gerjesztő impulzussal: az ultrarövid gerjesztő impulzus a sematikus ábrán jobb felé halad, míg a polariton a gerjesztő impulzusfrontra merőlegesen, azaz az optikai impulzussal γ szöget bezárva.

A 2.14. ábrán látható elrendezés működésének alapja az, hogy a pumpáló impulzus impulzusfrontja a fázisfrontjához képest döntve van [55,56]. A döntött impulzusfront mentén keltett terahertzes sugárzás, ami ebben az esetben a nemlineáris kristályban keltett fonon-polariton, Huygens-elve alapján az impulzusfrontra merőlegesen terjed v_{THz}^f sebességgel. A sebességillesztéshez ezzel a sebességgel nem a pumpáló impulzus v_l^{cs} sebességének, hanem annak a terahertzes sugárzás terjedési irányára eső vetületének kell megegyeznie. A sebességillesztés feltétele tehát a (2.20) egyenlet helyett a

$$v_l^{cs} \cos \gamma = v_{THz}^f \quad (2.26)$$

lesz. Nyilvánvaló, hogy a γ szög helyes megválasztásával gyakorlatilag bármely olyan frekvenciára teljesülni tud a sebességillesztés, ami a transzverzális optikai fonon frekvenciájánál

kisebb, mivel a fononfrekvencia alatt a fázissebesség általában lényegesen kisebb a látható tartománybeli sebességnél.



2.15. ábra A terahertzes sugárzás keltésére alkalmas kétféle séma: (a) a Cserenkov-típusú gerjesztés esetén a pumpáló nyaláb erősen lefókuszált, és a sugárzás θ_c félnyílásszögű kúp mentén terjed; (b) a döntött impulzusfrontú gerjesztés esetén a nyalábkeresztmetszet tetszőlegesen nagy lehet, és a keletkező sugárzás síkhullám.

A 2.15. ábra a szokásos Cserenkov-típusú és az új döntött impulzusfrontú gerjesztési geometriát hasonlítja össze. Látható, hogy míg a korábbi gerjesztési sémánál a lefókuszált nyaláb által keltett sugárzás nem tud kölcsönhatásba lépni a korábban keltett, a kúp palástja mentén terjedő sugárzással, addig a kiterjedt döntött impulzusfront mentén különböző időpontban keltett sugárzás kölcsönhat egymással a nemlineáris kristályban, a konverzió hatásosságát növelve. Az utóbbi gerjesztési geometria másik nyilvánvaló előnye, hogy a keletkező terahertzes sugárzás síkhullám, így a lehetséges alkalmazások számára lényegesen egyszerűbben lehet kezelni, mint a kúppalást alakú elektrooptikai Cserenkov sugárzást.

Ennek a gerjesztési elrendezésnek működőképességét bizonyító pumpa-próba típusú mérés során a pumpa és próba impulzusok frontjának dőlése egy reflexiós rácson történő diffrakció során jöhet létre [64]. A kérdés, az előző fejezet végén felvetetthez hasonlóan az, hogy milyen optikai elemek alkalmazásával lehet a kívánt szögdiszperziót a nemlineáris kristályban úgy elérni, hogy a nyalábok térbeli és időbeli átfedése a lehető legkedvezőbb legyen.

3 CÉLKITŰZÉSEK

Ultrarövid impulzusokat alkalmazó pumpa-próba típusú méréseknél alapvető fontosságú olyan optikai rendszer használata, amely térbeli és időbeli átfedést fenntartva képezi le a femtoszekundumos impulzusokat a vizsgált térfogatba. Az optikai rendszerek jellemzésének egyik lehetséges módja sugárkövetésen alapuló modellező számolások elvégzése.

Munkám során célul tűztem ki dinamikus rácsok ultragyors gerjesztésére alkalmas elrendezés modellezését és optimalizálását sugárkövetéses módszerrel. A számolásaim GaP-ban impulzív módon gerjesztett Raman-szórás méréséhez kapcsolódtak, amivel az atomrács gerjesztettségének időbeli változását lehet nyomon követni.

Az irodalomban nincs tisztázva az a kérdés, hogy az ultrarövid impulzusokkal keltett tranziens rácsok pumpálási elrendezései közül melyik a kedvezőbb. Ezzel kapcsolatban elvégeztem modellező számolásaim alapján három, ugyanazon az elven alapuló, ám eltérő leképezést megvalósító rendszer összehasonlító vizsgálatát.

Célul tűztem ki hangolható terahertzes impulzusok keltésére és detektálására alkalmas optikai rendszer modellezését annak meghatározására, hogy a lehetséges optikai leképező rendszerek közül melyik a legmegfelelőbb a kívánt szögdiszperzió leképezésére a nemlineáris anyagba.

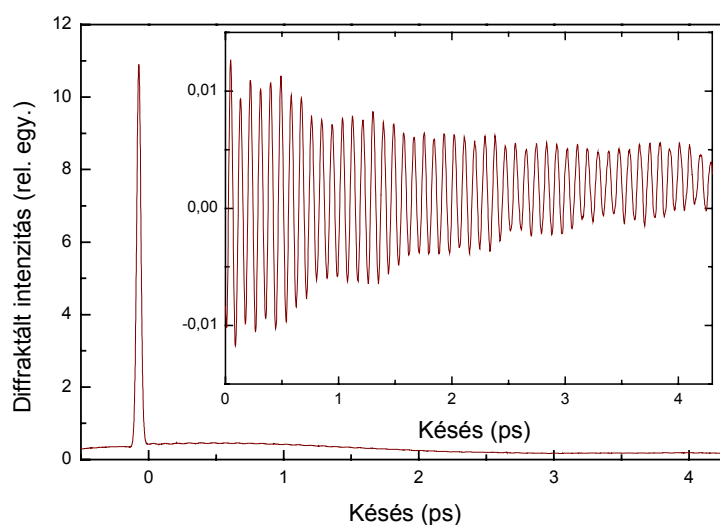
A szögdiszperzióval rendelkező rendszerekre vonatkozó vizsgálataim rámutattak egy mások által nem tárgyalt problémára. Amennyiben a szögdiszperzióval rendelkező optikai rendszer leképezése nem mentes képalkotási hibáktól, nem ad megbízható eredményt az irodalomban használt módszer a csoportkésés meghatározására a geometriai úthossz alapján. Vizsgálataim célul tűzték ki egy olyan eljárás kidolgozását, amely leképezési hibával rendelkező rendszerek esetén a geometriai úthossz alapján lehetővé teszi a csoportkésés meghatározását.

4 TUDOMÁNYOS EREDMÉNYEK

4.1 Dinamikus rácsok gerjesztésére használt, reflexiós objektívet tartalmazó elrendezés vizsgálata

4.1.1 Impulzív módon gerjesztett Raman-szórás mérése GaP kristályban

A 4.1. ábrán GaP mintában fonon-polaritonokon mért impulzív módon gerjesztett Raman-szórás jele látható [65]. A mérés a 2.12. ábrán látható gerjesztő elrendezéssel volt elvégezve: a nyalábosztóként használt transzmissziós rácson diffraktált nyalábokat egy tükrös objektív képezte le a mintára. A gerjesztett polaritonok hullámszámvektorának a nagysága $q = 64000 \text{ cm}^{-1}$ volt. Az ábrán a nulla késleltetésnél látható keskeny csúcs az optikai Kerr-effektus miatt jelenik meg. Ennek a jelnek a 36 fs félértékszélességű csúcsa jelentősen kisebb, mint a transzmissziós rács helyett hagyományos nyalábosztót és egy 50 nm fókusztávolságú fókuszáló lencsét tartalmazó elrendezéssel a $q = 34000 \text{ cm}^{-1}$ hullámszámvektorú polaritonok gerjesztésekor mért jel 45 fs-os félértékszélessége. Ez azt támasztja alá, hogy a transzmissziós rácsot és mikroszkóp objektívet tartalmazó elrendezés nem hozott létre jelentős impulzushosszabbodást. Fontos kiemelni azt a körülményt, hogy ez a jobb időbeli feloldás sokkal nagyobb hullámszámvektornál valósult meg, mert a szokásos elrendezésnél az időbeli feloldás erősen csökken a gerjesztett dinamikus rács rácsállandójának növekedésével. A 4.1. ábra inzertje kinagyítja árbázolja a görbének a keltett fononok következtében oszcilláló részét. A kitűnő jel/zaj viszony elérését szintén elősegítette az alkalmazott gerjesztő elrendezés jó időbeli feloldása.



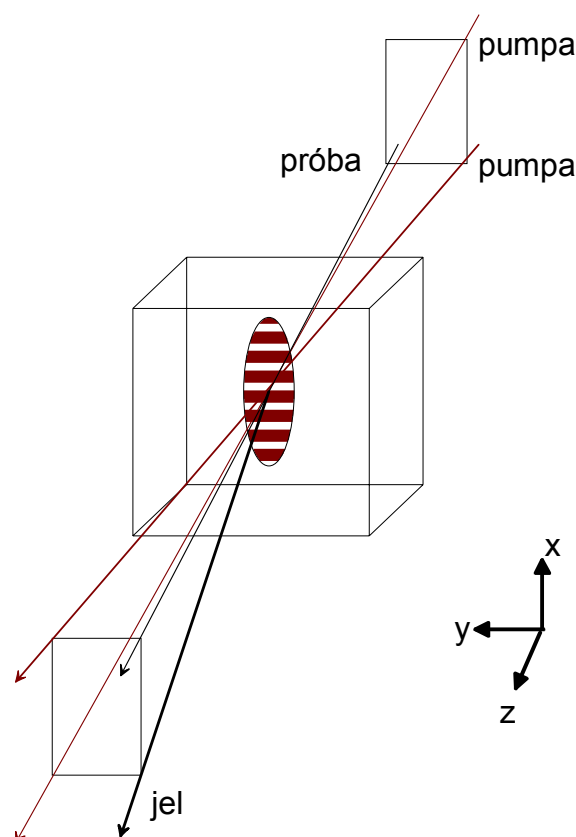
4.1. ábra A tükrös mikroszkóp objektívet tartalmazó elrendezéssel mért impulzív módon gerjesztett Raman-szórás jele.

A kapott kísérleti eredmények ellenőrzésére, valamint annak vizsgálatára, hogy melyek az alkalmazható pumpáló impulzusok időtartmának alsó korlátai, sugárkövetésen alapuló számolásokat végeztem el. A leképező rendszer időbeli tulajdonságainak elemzése mellett cél volt az elrendezés beállítási hibákra való érzékenységének elemzése is.

4.1.2 A számolásokkal elemzett kísérleti elrendezés

A szimulációknak az alábbi kísérleti elrendezést kellett modellezniük: a mérőelrendezés 2.12. ábrán feltüntetett része előtt elhelyezett hagyományos nyalábosztó állította elő a próbaimpulzust. A pumpa nyaláb és a késleltetett próba nyaláb a transzmissziós rácstra egymással 20 mrad szöget bezárva érkeztek (haladási irányuk 10 mrad szöget zárt be az ábra síkjával kifelé, illetve befele), az egymást térben fedő keresztmetszetük a rácson $\sim 1,5$ mm (magasság) \times 0,1 mm (szélesség) volt. A Heidenhain GmbH által gyártott, 50 vonal/mm karcolatsűrűségű transzmissziós rács a beeső teljesítmény 74%-át a ± 1 rendekbe diffraktálta, míg a nullad rendbe kevesebb, mint 2%-ot. A nullad rendű nyalábok domináns részét, valamint az elsőnél magasabb rendeket a tükrös objektív kitakarta. Így lényegében a nyalábok első rendjei hozták létre a kivilágított diffrakciós rácsfelület kicsinyített képét a GaP mintában. A Coherent reflexiós objektív (katalógus szám: 25-0555) a nagy numerikus apertúrája (0,5) és a hosszú fókusztávolsága (13,4 mm) miatt lett kiválasztva. A leképezéssel megvalósított kicsinyítés megválasztásakor figyelembe kell venni egyrészt azt, hogy a mintára fókuszált intenzitás kedvezően növelhető, amely az impulzív módon gerjesztett Raman-szórás nemlineáris folyamatának magasabb jelét eredményezi. Másrészt nyilvánvalóan előnytelen a keltett dinamikus rács területének a kicsinyítés következtében való csökkenése. A kísérletek során a megvalósított kicsinyítés 10,2-szeres volt; az ábra a jobb láthatóság érdekében ettől eltérő, körülbelül háromszoros kicsinyítésnek felel meg.

Mivel az impulzív módon gerjesztett Raman-szóráson alapuló mérés technika csak egy próbanyalábot alkalmaz, az egyik próbanyaláb az objektív előtt ki volt takarva. A két pumpanyaláb gerjesztette a GaP-ban a két nyaláb terjedési iránya által bezárt szög által jól meghatározott hullámszámvektorú polaritonokat. A minta mögött a két transzmittált pumpanyaláb és a próbanyaláb egy téglalap három csúcsán helyezkedik el, míg a jel (azaz a fononokon szóródó próba) a negyedik csúcson található (4.2. ábra). Ezt a jelet mérte egy fotodióda, a pumpa és próbaimpulzusok közötti időbeli késés függvényében. A hatékony jelátlagolást egy 70 Hz frekvenciával működő gyors szkennelő késleltető egység tette lehetővé. A 820 nm központi hullámhosszú és 25 fs időtartamú impulzusokat egy Kerr-lencsét alkalmazó módusszinkronizált Ti:zafír lézer állította elő.

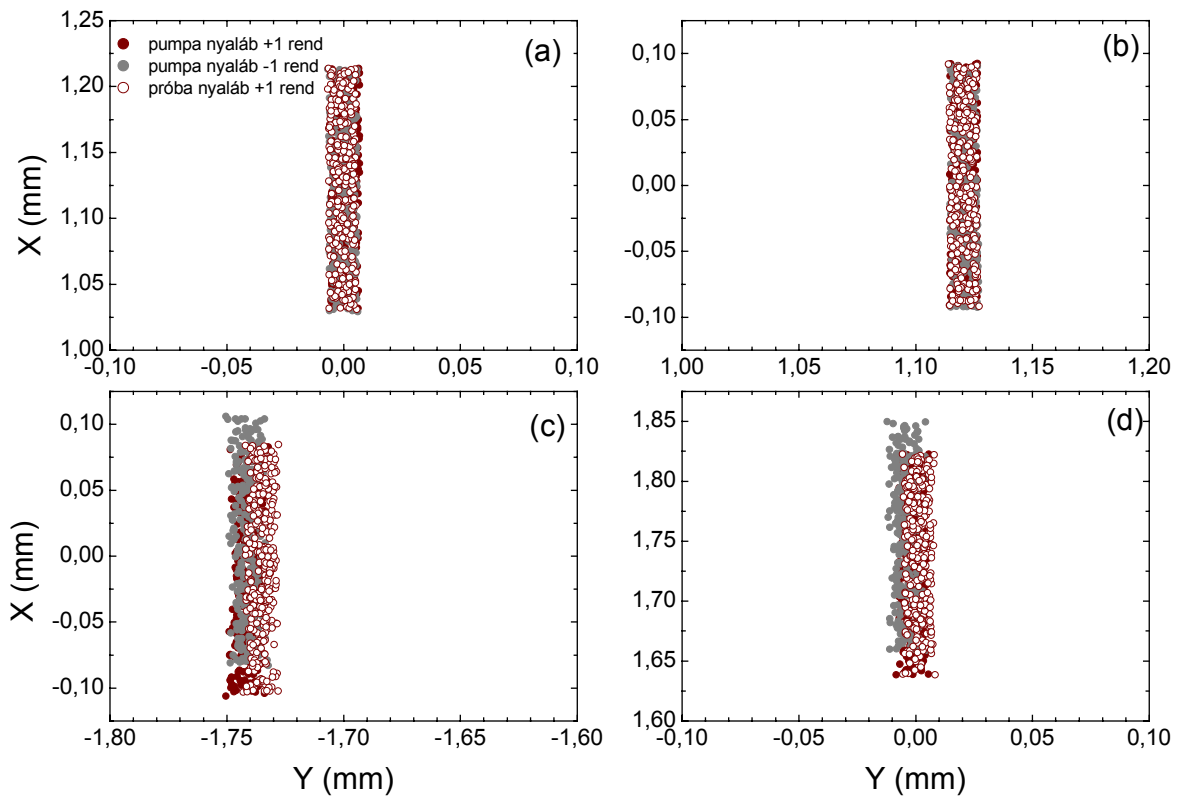


4.2. ábra Az impulzív módon gerjesztett szórési kísérlet sematikus ábrája.

4.1.3 Számolási módszerek és eredmények

A modellező számolásokat a Stellar Software cég Beam4 nevű optikai tervezőprogramjával végeztem [66]. Az elrendezésnek a különböző beállítási hibákra való érzékenységét az alábbi módon vizsgáltam. A 2.12. ábrán feltüntetett optikai elemek felületeit definiálva, majd a sugársokaságokat átvezetve a tárgyteréből a képsíkba, meghatároztam a pompa és a próbaimpulzusok foltjainak pozícióját. A sugarakat a tervezőprogram véletlen-sugárgenerátorával keltettem, amely a nyaláboknak a transzmissziós rácsra eső, általam definiált határoló pontjai között véletlenszerűen indít sugarakat úgy, hogy azok a nyaláb téglalap keresztmetszetét kitöltsék, terjedési irányuk pedig a határoló sugarak terjedési irányával egyezzen meg. (Itt jegyzem meg, hogy a munkám során, így ezen értekezésben is, a legtöbb optikai tervezőprogram által használt szabványos koordinátarendszert és egyezményes jelölést használtam [67]. A felületek pozícióját egy jobbsodrású Descartes-féle koordinátarendszerben definiáltam, amely Z tengelye az optikai tengely, és az YZ síkja a meridionális sík, így tehát a 2.12. ábra síkja az XY síknak felel meg.) Ezek után az objektívet elmozdítottam a különböző kritikus szabadsági fokoknak megfelelően, és az így létrehozott beállítási hibák mértékének

függvényében határoztam meg a foltok egymásról való lecsúszását. Ezen tolerancia analízis eredményeit a 4.3. ábra összegzi.. Ezen látható, hogy az objektív 1 mm-rel történő oldalirányú mozgatása és 2°-kal való megdöntése ellenére nem romlott jelentősen a nyalábok térbeli átfedése a mintán. Ennél nagyobb mértékű beállítási hibák esetén az okoz problémát, hogy a nyalábok lelépnek a kisebb tükörről. Ezzel szemben az objektív optikai tengely menti elhelyezése sokkal nagyobb pontosságot kíván meg: a pumpáló nyalábok nagy keresztvezési szögének következménye a megkövetelt 50 μm beállítási pontosság.

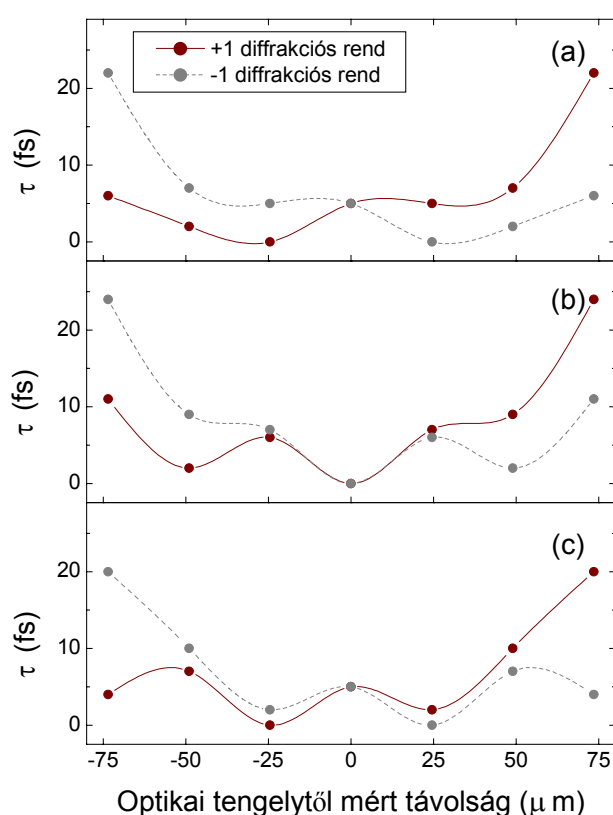


4.3. ábra A beállítási hibák hatása a nyalábok térbeli átfedésére a tükrös objektívet tartalmazó leképező rendszernél: (a) X tengely és (b) Y tengely mentén 1 mm-rel való elmozdítás, valamint (c) X tengely és (d) Y tengely körül 2 fokkal való elforgatás esetén.

Az elrendezés időbeli feloldására a 2.1.2 fejezetben ismertetett módszert alkalmaztam: meghatároztam a különböző hullámhosszú sugarak által a rács és a minta között megtett L optikai úthosszát és ebből kiszámoltam a csoportkésést. Mivel az elrendezés nem tartalmaz anyagi diszperzióval rendelkező optikai elemeket, (2.13) egyenlet helyett itt a

$$\tau(\lambda) = \frac{1}{c} \left(L - \lambda \frac{dL}{d\lambda} \right) \quad (4.1)$$

összefüggéssel számoltam. A számolást a transzmissziós rács különböző helyéről induló sugarak esetén elvégezve a teljes nyalábkeresztmetszet mentén megkaptam a csoportkésés értékét. A számolások során a GaP minta vastagságát $150\ \mu\text{m}$ -nek tételeztem fel. Ezeket az eredményeket a 4.4. ábra mutatja. E szerint a nyaláb keresztmetszete mentén, azaz a $1,5\ \text{mm}$ széles kivilágított rács teljes leképzett területén a csoportkésés változása $20\ \text{fs}$ -nál kisebb. Ebből az következik, hogy az elrendezés időbeli feloldása jobb, mint $20\ \text{fs}$. A csoportkésés változás a középső, $1\ \text{mm}$ széles sávban még kisebb: $10\ \text{fs}$ alatti. A nyaláb tengely menti része a mintába leképezve $98\ \mu\text{m}$ nagyságú és 50 interferenciacsíkot tartalmaz.



4.4. ábra A transzmissziós rács és a minta különböző síkjai közötti terjedés során a mintán lévő nyalábkeresztmetszet mentén fellépő relatív csoportkésés a $150\ \mu\text{m}$ vastag minta (a) közepéig, és $60\ \mu\text{m}$ -rel a minta közepe (a) előtti, illetve (c) mögötti síkig számolva $80\ \text{mm}$ tubushossz és $28,34\ \text{mm}$ tükörseparáció esetén.

Összehasonlításként hasonló szimulációt végeztem el az impulzusok időbeli átfedésére olyan elrendezés esetén, amelyben a leképezést a mikroszkóp objektív helyett egy $80\ \text{mm}$ fókusztávolságú és $0,3$ numerikus apertúrájú akromatikus lencse valósította meg (Linos AG katalógus: 32 2301). Ebben az esetben a csoportkésés változásra kapott érték $140\ \text{fs}$ körüli. Egy szokásos, nyalábosztó és lencse kombinációjából álló elrendezésnél, ez az érték elérheti a $220\ \text{fs}$ -ot, ami körülbelül kilencszerese a mikroszkópjobjektív elrendezésre vonatkozó értéknek.

Az ultrarövid impulzusoknak a diffraktív optikán alapuló keresztezésére javaslatot tevő dolgozat [50] szerint a teleszkópikus képtovábbító optikai elrendezéstől eltérő rendszer alkalmazása a transzmissziós rács leképezésére az impulzusfrontok görbülését fogja okozni, amely egyúttal a repülési idő változásával is jár. A két interferáló nyaláb impluzusfrontjainak ilyen görbülete az időbeli átfedés romlását és a kialakuló periódikus intenzitáseloszlás területének csökkenését eredményezné. Számolásaim eredményei nem igazolták ennek a szisztematikus impulzusfront-görbületnek a kialakulását.

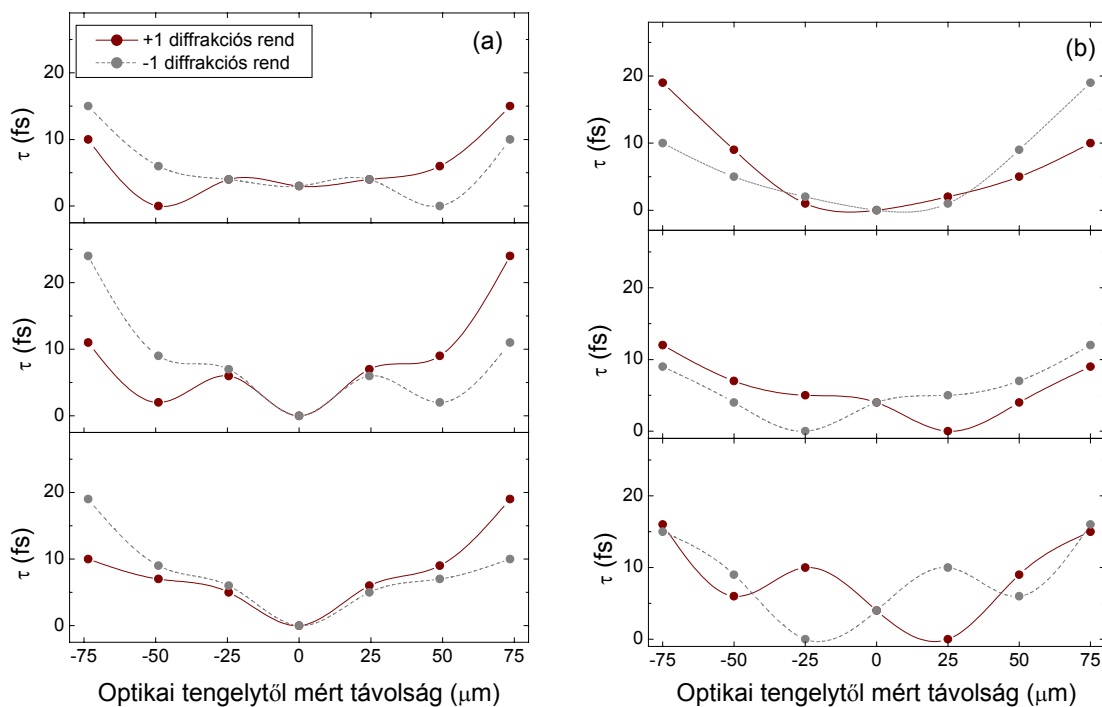
A tükros objektívek történetéből [68] közismert, hogy K. Schwarzschild talált analitikus megoldást olyan két tükörből álló teleszkóp objektív tervezésére, amely a szférikus hibára korrigált, és kóma-mentes [69]. Ő fedezte fel, hogy az úgynevezett fordított-telefotó típusú teleszkóp (amelyben a belépő párhuzamos fénysugarak először a nagy, konvex tükör felületére érnek, majd onnan verődnek a második konkáv tükörré) azzal a rendkívüli tulajdonsággal bír, hogy amennyiben mindkét felület gömbtükör és ugyanaz a középpontjuk, akkor az elsőrendű szférikus aberráció, a kóma és az asztigmia értéke nulla lesz, amennyiben a tükrök görbületi sugarainak arányára teljesül az

$$\frac{r_1}{r_2} = \frac{(\sqrt{5} + 1)}{(\sqrt{5} - 1)} = 2,618034 \quad (4.2)$$

összefüggés. Nyilvánvaló módon, ugyanez az algebrai megoldása végtelen nagy tubushosszú két-tükros mikroszkóp objektív aberrációmentes leképezésének. A mikroszkóp objektív véges tubushossznál való használatkor aszférikus konkáv tükröt kell használni, mint azt C. R. Burch megmutatta 1947-ben [70]. Sajnálatos módon, a kereskedelmi forgalomban levő mikroszkópjektívek tükrei gömbtükrök. Erdős Pál mutatta meg 1955-ben, hogy két, közel koncentrikus, konvex és konkáv gömbtükrökből álló rendszer alkalmas az optikai tengely közeli tárgyak leképezésére véges tárgy- és képtávolság esetén [71]. Ennek megfelelően az aberrációk korrigálására egy adott véges tubushossznál, a két tükör szeparációját szokás a (4.2) egyenletben szereplő görbületi sugarak $r_1 - r_2$ különbségétől kissé eltérő értékűnek megválasztani.

A leképezés kicsinyítését változtatva a létrehozott dinamikus rács periódusa is változik a (2.25) egyenlet szerint. Ezt a transzmissziós rács és a mikroszkóp objektív közötti távolság változtatásával lehet elérni, ami tulajdonképpen a mikroszkópiában tubushossznak nevezett mennyiségnek felel meg. Természetesen a különböző tubushosszú és tükörszeparációjú leképezésekhez tartozó csoportkésés különbség nem ugyanakkora lesz. A 4.5. ábra általam vizsgált két esetet mutat meg, amin jól látszik, hogy a csoportkésés változás eltérő mértékű és

jellegű, azonban egyik esetben sem haladja meg a 20 fs-ot. A τ értékének a 4.4. és 4.5. ábrákon látható kismértékű változása a tükrös objektív viszonylag kicsi leképezési hibáinak következménye.



4.5. ábra A transzmissziós rács és a minta különböző síkjai közötti terjedés során a mintán lévő nyalábkeresztmetszet mentén fellépő relatív csoportkésés a 150 μm vastag minta közepéig, és 30 μm -rel a minta közepe előtti, illetve mögötti síkig számolva (a) 80 mm és 28,34 mm, valamint (b) 55 mm tubushossz és 28,45 mm tükörszeparáció esetén.

A modellező számolásaim eredményeinek összegezése a következő: holografikus rácsnak reflexiós objektívvel történő leképezésével nagy és változtatható rácsállandójú dinamikus rács gerjeszhető femtoszekundumos időfelbontás mellett. A kísérleti összeállítás modellezése során azt találtam, hogy az elrendezés a geometriai elállításokra viszonylag érzéketlen, és 25 fs-nál rövidebb impulzusok használatát engedi meg, az időbeli felbontás jelentős romlása nélkül.

4.2 Dinamikus rácsok gerjesztésére használt optikai elrendezések összehasonlító vizsgálata

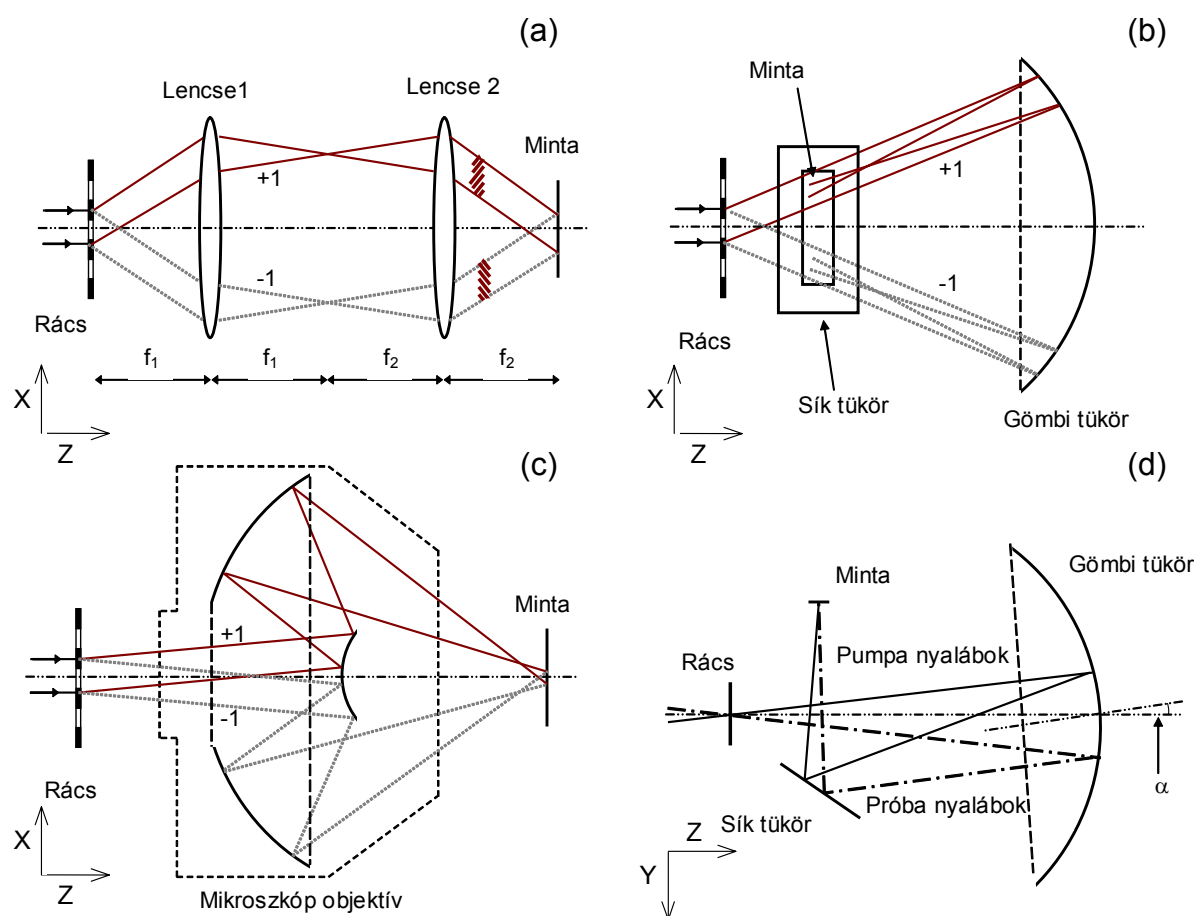
A lézerrel gerjesztett dinamikus rácsok használatán alapuló mérési eljárásoknak jelentős szerepük van különböző jelenségek időbontott vizsgálatában. A tranziens rácsot létrehozó optikai eljárások különböző módon állítják elő és irányítják az interferáló nyalábokat a vizsgált közegre. A nagy időfelbontású méréseket lehetővé tevő ultrarövid impulzusok különleges pumpálási elrendezések használatát követelik meg. A 2.3.1 fejezetben három olyan elrendezést ismertettem, amelyek dinamikus rácsok femtoszekundumos impulzusokkal való gerjesztését és vizsgálatát teszik lehetővé, és működési elvük ugyanazon a diffrakciós optikai megközelítésen alapul.

A három elrendezést azonban eltérő fizikai jelenségek vizsgálatánál, ennek következtében jelentősen eltérő kísérleti körülmények között alkalmazták. A két konfokális lencsét tartalmazó elrendezés működőképességét egyszerű autokorrelációs méréssel demonstrálták, ahol a pumpáló impulzusok hossza 30 fs volt [50], valamint pikoszekundumos impulzusokkal gerjesztett kiterjedt és felszíni hullámokat vizsgáltak *heterodyne*-típusú detektálási technikával [62]. A gömbtükrös rendszert Raman-szórású kísérletben alkalmazták *heterodyne* detektálással CS₂ mintán 65 fs hosszúságú gerjesztő impulzusokkal [60], illetve protein dinamikát vizsgáló kísérletekben 100 fs-os pumpáló impulzusokkal [72]. A mikroszkóp objektívet tartalmazó elrendezés működési elvét és alkalmazhatóságát bemutató kísérletben transzverzális optikai fononpolaritonok gerjesztettségének időbeli lecsengését vizsgáltuk 25 fs hosszúságú impulzusokkal [65]. Ezek alapján nem lehetséges annak megítélése, hogy melyik képes a legjobb minőségű leképezés megvalósítására. Erre a kérdésre keresve a választ, elvégeztem ennek a három gerjesztési elrendezésnek összehasonlító elemzését [73], amely kiterjedt az alkalmazható pumpáló impulzusok időtartma alsó korlátainak, az impulzusok képsíkbeli térbeli átfedési minőségének, és az elrendezések beállítási hibákra való érzékenységének vizsgálatára. A gerjesztési elrendezések egyéb, gyakorlati vonatkozásait is összevettem, többek között a kivitelezés nehézségeit, nagy rácsállandójú dinamikus rácsok keltésének lehetőségét, és a mérési módszerek alkalmazhatóságát vizsgálva.

4.2.1 A vizsgált optikai rendszerek

Ugyan az optikai elrendezéseket ismertettem a 2.3.1 fejezetben, úgy vélem, hogy a számolásaimban használt modellek részletes leírásakor hasznos azok sematikus ábráját ismét megmutatni a 4.6.(a)-(c) ábrán. Mindárom elrendezés kulcseleme a transzmissziós rács, amit a mintára képezünk le. A rácsra érkező nyalábokat a transzmissziós rács két részre osztja (a

diffракció $+1$ és -1 rendjében), és ez a két nyaláb fog a képsíkban ismét találkozni. A transzmissziós rácson való diffракció következtében az impulzusok impulzusfrontjai megdőlnék, azaz egymással párhuzamosak lesznek (látsd. 4.6.(a) ábra). Mindhárom elrendezés kihasználja ezt az előnyös jelenséget, hiszen az ilyen típusú nyalábosztásból származó nyalábok interferenciája során létrejövő periódikus intenzitáseloszlás a teljes nyalábkeresztmetszet mentén létrejön. A kialakuló intenzitáseloszlás térbeli periódusa $(1/2)M\lambda_r$. A transzmissziós rácscarcolatainak sűrűségét (G_x) úgy választottam meg az 1. és a 2. elrendezésnél, hogy a kialakuló intenzitáseloszlás térbeli periódusa megközelítőleg ugyanaz legyen a két esetben.



4.6. ábra Dinamikus rácserjesztésre alkalmas elrendezések. A transzmissziós rácst leképező optikai elem (a) az 1. elrendezés esetén két lencse, (b) a 2. elrendezés esetén egy gömbtükör és (c) a 3. elrendezés esetén egy tükrös objektív. A 2. elrendezést (b) oldal- és (d) felülnézetben is ábrázoltam.

A kicsinyítés (a leképezés kicsinyítési tényezője $M^* = M^{-1}$) bizonyos mérési eljárás során előnyös lehet, mivel megnöveli a pumpálás intenzitását a mintában, amely egyúttal a megfigyelt nemlineáris folyamat nagyobb jelét eredményezi. Ugyanakkor a gerjesztett dinamikus rác kiseb kiterjedése előnytelen lehet. Munkám során megvizsgáltam azt is, hogy kicsinyítés esetén az egyes rendszerek leképezése milyen minőségű.

A szimulációk során a fénynyalábok tulajdonságait a Ti:zafír lézerek tipikus tulajdonságaival megegyezőnek tételeztem fel; 25 fs-os impulzushossz, $\lambda = 815$ nm középponti hullámhossz, és $\Delta\lambda = 40$ nm sáv szélesség. A hagyományos módon osztott pumpa és próba nyaláb egymással 20 mrad szöget bezárva érkezik a transzmissziós rácsra (a diffrakció síkja merőleges arra a síkra, amelyiken a két beeső nyaláb keresztezi egymást); a rácson az egymáson fedésbe levő foltok mérete 1,5 mm (magasság) \times 0,1 mm (szélesség). A 150 μm vastag GaP mintában a transzmissziós rács után kialakuló négy nyaláb következtében jelenik meg a rács képe. Azoknál a mérési technikáknál, ahol csak egy próba nyalábra van szükség, a két próbanyaláb egyike kitartható a leképező optikai rendszer előtt.

4.2.1.1 Az 1. elrendezés

Az első vizsgált rendszer (a dolgozat szövegében *1. elrendezés*-ként utalok rá) a 4.6.(a) ábrán látható módon két gömbi lencséből áll, amelyek közötti távolság a fókusz távolságaik összegével egyezik meg. A transzmissziós rács az első lencse tárgyoldali gyújtópontjában helyezkedik el, és a diffraktált nyalábok a második lencse képoldali gyújtópontjában találkoznak. Az 1:1-es leképezést megvalósító elrendezést (a két lencse fókusz távolsága megegyezik) külön esetként vizsgáltam meg.

A nagy rácsállandójú dinamikus rácsok keltéséhez szükség van arra, hogy a pumpáló nyalábok egymással nagy szöget bezárva érkezzenek a mintára. Emiatt a modellezés során a kereskedelmi forgalomban kapható tipikusan nagy numerikus apertúrájú lencsét használtam (a zárójelben megadott referencia számok a Linos AG katalógusában található számokra vonatkoznak). Az $f_1 = f_2$ esetben egy $G_x = 300$ vonal/mm karcolatsűrűségű transzmissziós rács és két 80 mm fókusz távolságú lencse (32 2301) kombinációját használtuk. Az $f_1 \neq f_2$ esetben $G_x = 112$ vonal/mm és $f_1 = 200$ mm (32 2304), illetve $f_2 = 80$ mm (32 2301) értékeket tételeztem fel.

4.2.1.2 A 2. elrendezés

A transzmissziós rácson diffraktált nyalábok mintán való keresztezésének a 4.6.(b) ábrán látható másik módja egy 1:1-es leképezést megvalósító gömbtükör használata (*2. elrendezés*). A 100 mm görbületi sugarú gömbtükör a görbületi sugarával megegyező távolságra helyezkedik el a $G_x = 620$ vonal/mm karcolatsűrűségű transzmissziós rácstól. A gömbtükört az XZ síkból kissé ki kell dönteni annak érdekében, hogy a beeső és a visszavert nyalábok térben egymástól elváljanak. A könnyebb érthetőség kedvéért ezt az elrendezést a 4.6.(d) ábrán felülnézetből is

ábrázoltam. Ennek a síkból való kidöntésnek a szögét nem adja meg pontosan a [60] referencia, így a dőlésszög értékének 3° -ot választottam, amely vélhetően elegendő helyet teremt a síktükör számára ahhoz, hogy a gömmtükörről visszavert nyalábokat a mintára továbbítsa.

A *2. elrendezés* kicsinyítését folytonosan lehet változtatni, a transzmissziós rács és a gömmtükör közötti távolság növelésével.

4.2.1.3 A 3. elrendezés

A transzmissziós rács leképezésére tükrös mikroszkóp objektívet is lehet használni (*3. elrendezés*), a szokásossal ellentétes irányban elhelyezve, mint azt a 4.6.(c) ábra mutatja. A Coherent cég egyik nagy numerikus apertúrájú objektívjének adatait (katalógus szám: 25-0555) használtam a számolások során. A transzmissziós rács $G_x = 50$ vonal/mm karcolatsűrűségű volt.

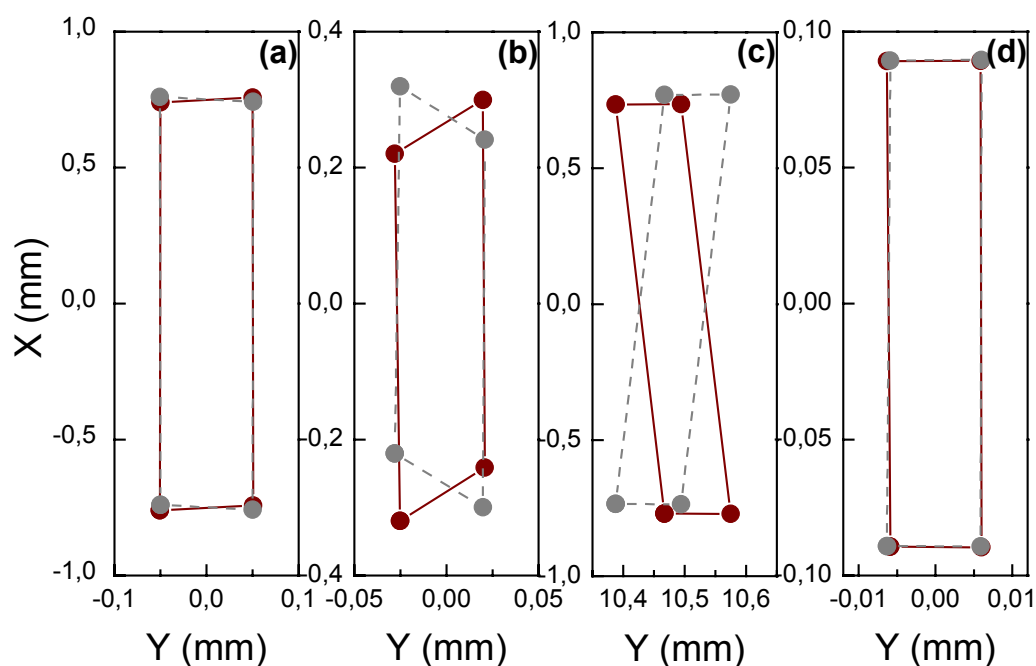
A leképezés kicsinyítését a transzmissziós rács és a mikroszkóp objektív közötti távolsággal könnyen lehet változtatni.

4.2.2 Eredmények

A számolások során a 4.1.2 fejezetben ismertetett módszereket alkalmaztam a nyalábok térbeli és időbeli átfedésének vizsgálata során.

4.2.2.1 Az impulzusok térbeli átfedése

A 4.7. ábra a diffraktált nyalábok térbeli átfedését mutatja a képsíkban, ami a $150\ \mu\text{m}$ vastag GaP minta közepén helyezkedik el. Annak érdekében, hogy az ábrák könnyebben áttekinthetőek legyenek, csak a diffraktált pumpa nyalábok foltjait ábrázoltam. A próba nyalábok megfelelő foltjai minden esetben szinte tökéletes átfedésben vannak velük, így az ábrázolásuk való elhagyásával nem vesz el információ. A két diffrakciós rend két elrendezés által megvalósított leképezésnél fedi egymást a teljes keresztmetszet mentén: az *1. elrendezés* $f_1 = f_2$ esetében, illetve a *2. elrendezésnél*, ezeket a 4.7. ábra (a) és (d) grafikonja mutatja. Amikor teleszkópikus elrendezés 1-től eltérő kicsinyítési tényezőjű leképezést valósít meg, az impulzusok torzulást szenvednek, és a paralellogramma alakú foltok nem fedik egymást tökéletesen, mint azt a 4.7.(b) ábra is mutatja. A *2. elrendezés* meglehetősen rossz átfedésű leképezést valósít meg (lásd a 4.7.(c) ábrát). Ennek egyértelműen az az oka, hogy a gömmtükört eleve ki kell az optikai és az X tengely által meghatározott síkból dönteni, a beeső és visszavert nyalábok egymástól való szétválasztása érdekében. Szeretném felhívni a figyelmet, hogy a 4.7. ábra grafikonjainak skálabeosztása az eltérő kicsinyítések miatt különbözik egymástól.



4.7. ábra A diffraktált pumpa nyálábok átfedése a képsíkon (a) az 1. elrendezés esetén, amikor $f_1 = f_2$ ($M^* = 1$), (b) az 1. elrendezés esetén, amikor $f_1 \neq f_2$ ($M^* = 2,5$), (c) a 2. elrendezés esetén ($M^* = 1$), és (d) a 3. elrendezés esetén ($M^* = 8.4$).

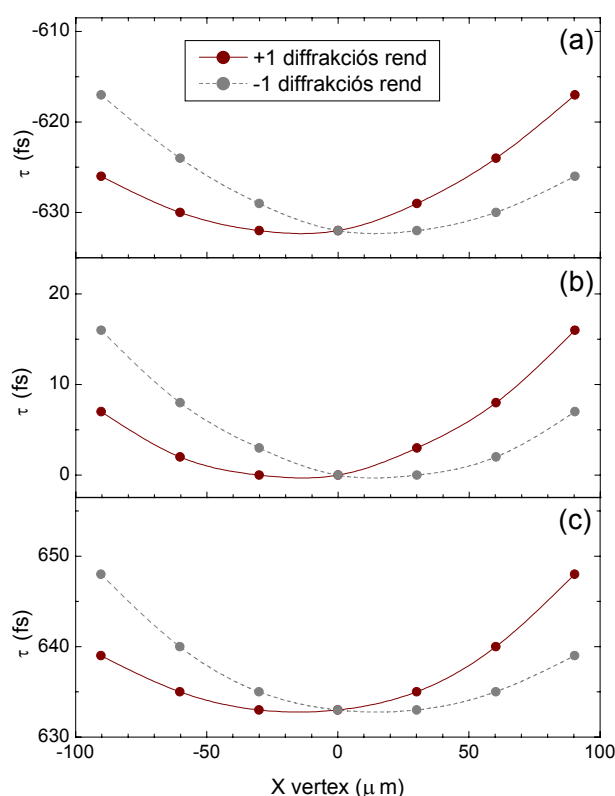
4.2.2.2 Az impulzusok időbeli átfedése

A nyálábok időbeli átfedésének vizsgálatakor a mintát az optikai tengelyen úgy pozicionáltam, hogy a transzmissziós rács mindig a $150 \mu\text{m}$ vastag GaP minta közepére legyen leképezve, azaz a térbeli átfedés a pumpáló és próba nyálábok két diffrakciós rendje között a minta XY síkkal párhuzamos felezősíkjában jöjjön létre. A $M^* = 8,4$ kicsinyítésű 3. elrendezésre vonatkozó számolás eredményeit a 4.8. ábra mutatja példaként. A görbék a transzmissziós rács és a képsík között felhalmozódó csoportkésést mutatják a 4.4. ábrához hasonló módon.

Amennyiben ezeket a görbéket összevetjük a 0 fejezet hasonló típusú számolások eredményeit mutató görbéivel (például a 4.4. ábra), szembetűnő a különbség a görbék lefutásában. A korábbi szimulációknál a görbék hullámzását a numerikus számolások véges pontossága okozta. Az újabb számolásokat nagyobb numerikus pontossággal végeztem, ennek köszönhető, hogy simább görbéket kaptam.

A 4.8. ábrán bemutatott számolásokat a másik két elrendezésre is elvégeztem. A csoportkésés változása a nyáláb mentén minden esetben 25 fs alatt maradt, ami azt jelenti, hogy ilyen, vagy ennél hosszabb impulzusokkal végzett mérés esetén az időbeli felbontást nem az optikai rendszerek leképezése, hanem az alkalmazott impulzus hossza fogja korlátozni. A

3. elrendezés esetén találtam a τ csoportkésés képsíkban való váltakozására a legkisebb értéket (16 fs). Megvizsgálva a kicsinyítés hatását a leképezések időbeli tulajdonságára, az 1. elrendezésnél azt az eredményt kaptam, hogy nincs jelentős eltérés a kicsinyítés nélküli, illetve a kicsinyítést megvalósító elrendezés időbeli tulajdonságai között. Ezzel szemben, a gömbtükröt tartalmazó elrendezés nyalábjainak időbeli átfedése jelentősen romlik a leképezés kicsinyítésének növelésekor. $M^* = 1,6$ mértékű kicsinyítésnél, a csoportkésés váltakozása meghaladja a 100 fs-ot. Azaz, a 2. elrendezés csak 1:1, illetve ahhoz közeli arányú leképezés megvalósítására használható.



4.8. ábra A számolt csoportkésés a 3. elrendezésnél (55 mm tubushossz és 28,55 mm tükörszeparáció esetén) a leképezett terület közepétől való távolság függvényében. A különböző görbék (b) a képsíkban, (a) 60 μm -rel a képsík előtt és (c) 60 μm -rel a képsík után fellépő csoportkésésnek felelnek meg.

Fontos kiemelni az 1. elrendezés lencséiben fellépő anyagi diszperzió okozta problémát. Meghatároztam, hogy az $f_1 = f_2$ modell akromatikus lencséiben egy 25 fs hosszúságú impulzus esetén a csoportkésés diszperzió következtében fellépő impulzus kiszélesedés mekkora. Az optikai tengelyen való áthaladáskor ez az érték kétszer 52 fs. Ekkora mértékű kiszélesedést nem lehet elhanyagolni femtoszekundumos impulzusok felhasználásakor, azokat a szokásos kompressziós technikák valamelyikével kompenzálni kell. A másik két elrendezés nyilvánvaló előnye, hogy csak reflektív optikai elemeket alkalmaz, és így mentes az anyagi diszperziótól.

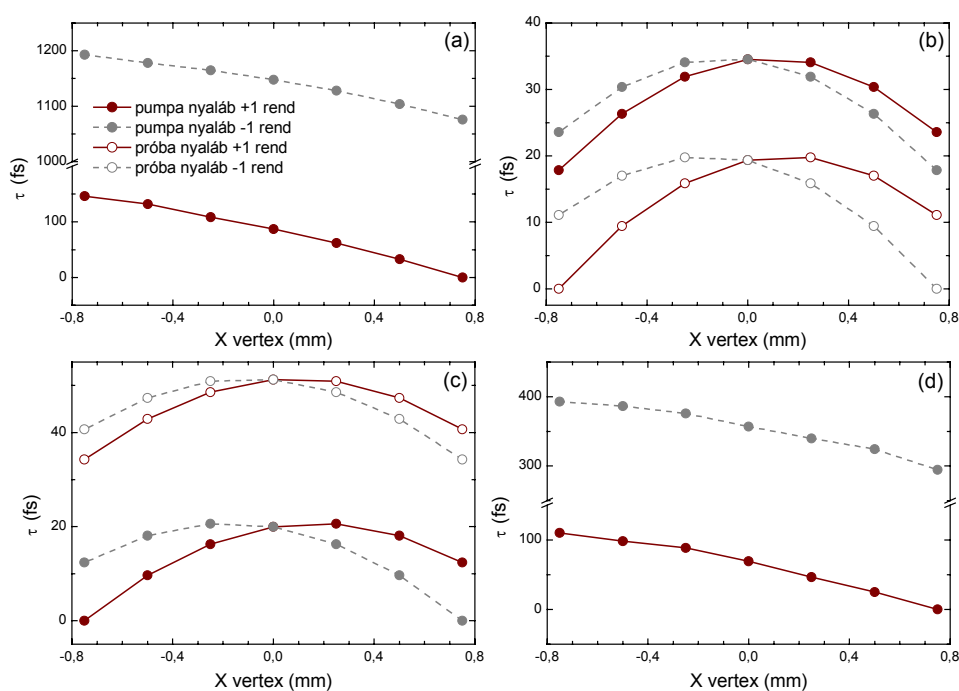
A részletesen elemzett három optikai elrendezésen kívül más optikai elrendezéseket is megvizsgáltam. Ezeknek a kiegészítő számolásoknak az volt a célja, hogy esetleges alternatív elrendezések használhatóságát, illetve használhatatlanságát tisztázzák. Amikor például a $G_x = 100$ vonal/mm karcolatsűrűségű transzmissziós rácsot egyetlen, 80 mm fókusztávolságú akromatikus lencsével képezzük le (Linos AG katalógus: 32 2301), az időbeli átfedés jelentősen elromlik (a csoportkésés változása háromszorosa volt a részletesen vizsgált három elrendezés esetén talált, 25 fs-nál kisebb értéknek). Ez azt mutatja, hogy transzmissziós rács és egyetlen lencse kombinációjából álló elrendezés nem alkalmas dinamikus rácsok ultrarövid impulzusokkal való keltésére. Egy másik, hasonlóan várt eredményt kaptam abban az esetben, amikor a teleszkóp akromatikus lencséit egyszerű 60 mm fókusztávolságú plankonvex lencsékkel (Linos AG katalógus: 31 2340) helyettesítettem (ebben az esetben a transzmissziós rács $G_x = 300$ vonal/mm karcolatsűrűségű volt). A csoportkésés változása meghaladta a 100 fs-ot. Az *1. elrendezés* modelljének akromatikus lencségei nem a közeli infravörös, hanem a látható hullámhossz tartományra voltak tervezve. Ennek ellenére a longitudinális színi eltérítésük háromszor kisebb, mint a megfelelő plán-konvex lencséké. A közeli infravörös tartományra tervezett akromatikus lencsék használatakor a csoportkésés változás értékének további csökkenése várható.

Meghatároztam az impulzusok kiszélesedését a mintán való áthaladás során. A $150\ \mu\text{m}$ vastag GaP-ban a 25 fs hosszúságú impulzus az eredeti hosszával megegyező mértékű, 25 fs kiszélesedést szenved. Ez 16 %-kal kisebb annál az értéknél, mint ami a GaP anyagi diszperziójából származik. Ez az eltérés a szögdiszperzió jelenlétével magyarázható, ami az anyagi diszperzió egy részét kompenzálja [56].

4.2.2.3 Az elrendezések érzékenysége a beállítási hibákra

A különböző elrendezések esetén összehasonlítottam a lehetséges beállítási hibák hatását egyrészt a pumpa és próbanyalábok térbeli átfedésére, másrészt a időbeli feloldásra. Az elrendezések optikai elemeinek azonos mértékű beállítási hibáját szimuláltam; mégpedig az optikai tengelyre merőleges tengelyek körül elforgattam őket 1° -kal, és ugyanezen tengelyek mentén 0,5 mm-rel eltoltam őket. Az *1. elrendezésre* és *3. elrendezésre* vonatkozó szimulációk eredményeit a 4.9. és 4.10. ábra mutatja. (Az ábrák könnyebb átláthatósága érdekében csak a pumpa nyaláb diffrakciós rendjeinek csoportkésését ábrázoltam, amikor ezek a próba nyaláb megfelelő görbéivel fedésben vannak, azaz a 4.9.-4.11. ábra (a) és (d) részei esetében.) A modellezés során azt találtam, hogy a mikroszkóp objektívet tartalmazó *3. elrendezés* volt a

legkevésbé érzékeny a beállítási hibákra. A két ábrát összevetve látható, hogy ugyanazon beállítási hibák minden esetben rosszabb időbeli átfedést eredményeztek az 1. elrendezés impulzusainál, az egyik esetben a pumpa és a próba nyalábok két első diffrakciós rendje közötti időbeli késés az 1 ps-ot is meghaladta (4.9.(a) ábra). A diffrakciós rendek között fellépő késés mellett további problémát okoz a 4.9.(a) és (d) ábrán látható jelenség, azaz az a 150 fs körüli késés, ami egyetlen impulzus két szélé között alakul ki. Már pusztán ez az időbeli torzulás is meghaladja az impulzusok eredeti időbeli hosszát. Ezzel szemben a 2. elrendezés és a 3. elrendezés néhány fokos kimozdítást is megenged.



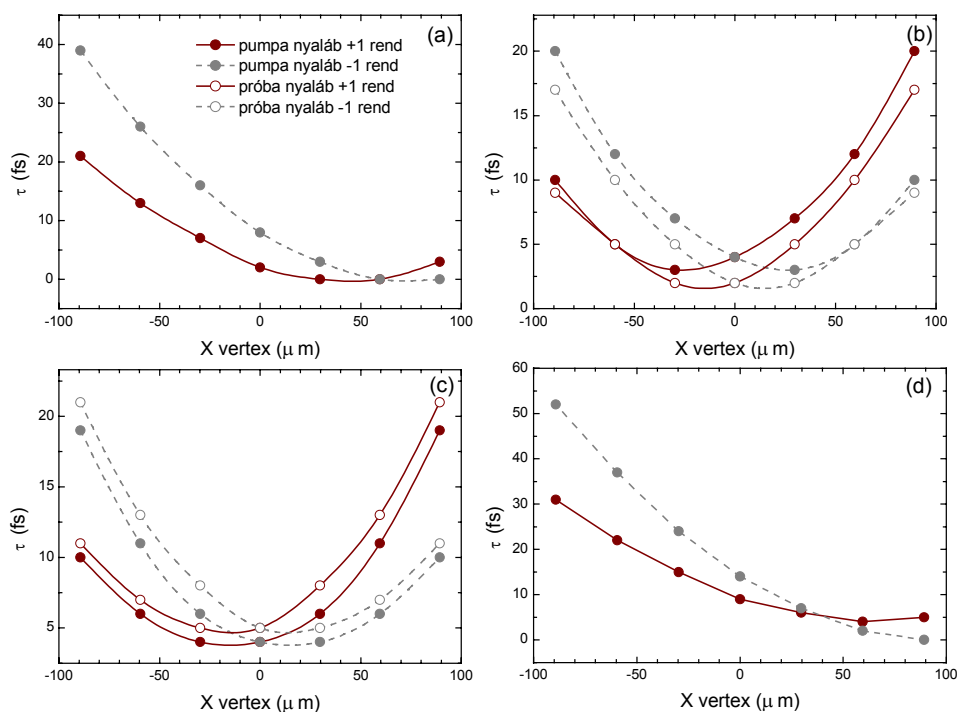
4.9. ábra A beállítási hibák hatása az 1. elrendezés impulzusainak időbeli átfedésére, amikor az első lencsét (a) az X tengely mentén 0,5 mm-rel eltoltam, (b) az X tengely körül 1°-kal elforgattam, (c) az Y tengely mentén 0,5 mm-rel eltoltam, és (d) az Y tengely körül 1°-kal elforgattam.

Megvizsgáltam a hibásan beállított esetekben az impulzusok térbeli átfedését is. Az időbeli átfedés romlása mindig jelentősebb, így a leképezések időbeli tulajdonsága az, amely a beállítás pontosságával szemben a szigorúbb követelményt támasztja.

A 4.10. ábra alapján azt a kijelentést tehetjük, hogy az objektívvel való leképezésnél az impulzusok időbeli átfedése nem romlik jelentősen akkor, amikor az Y tengely mentén eltoltam 0,5 mm-rel, illetve az X tengely mentén elforgattam 0,5°-kal. Ahhoz, hogy az időbeli felbontást megőrizzük, az X tengely menti eltolás, illetve az Y tengely menti elforgatás nem haladhatja meg ezeknek az értékeknek a felét. A 4.9. ábrán láthatjuk, hogy az 1. elrendezés ennél lényegesen

nagyobb beállítási pontosságot kíván meg; a teleszkóp első lencséjének Y tengely menti eltolás, és X tengely körüli elforgatás mértéke nem szabad, hogy a számolásokban használt értékek negyedét meghaladja, míg az X tengely menti eltolás, illetve az Y tengely körüli elforgatásnak a számolt érték hatoda alatt kell maradnia.

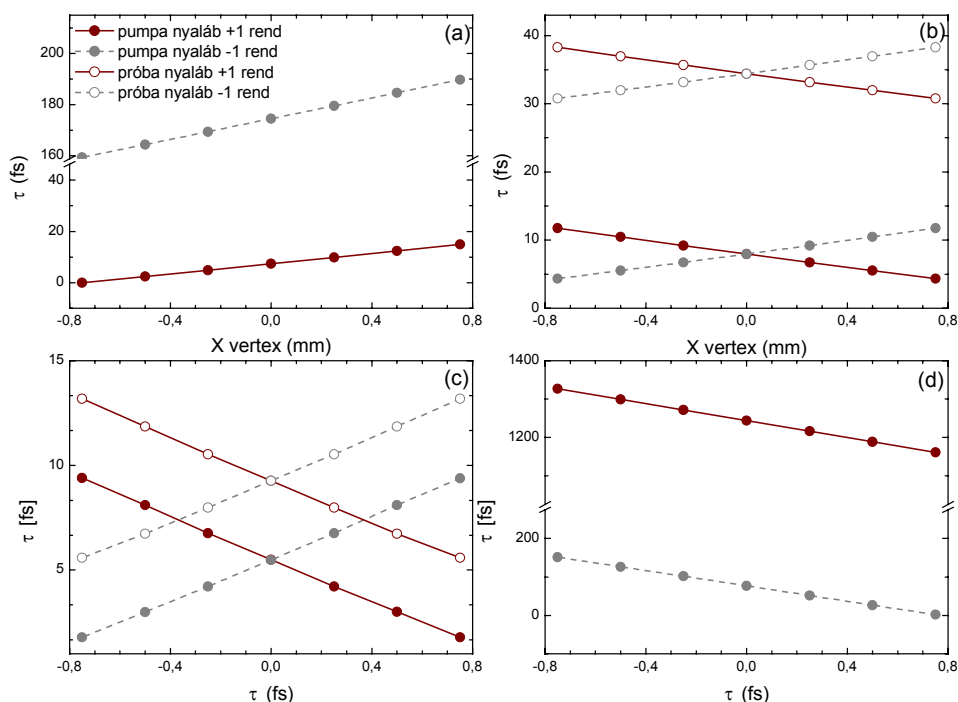
A mikroszkóp objektívet tartalmazó 3. elrendezés további előnyös tulajdonsága, hogy a tükrök szeparációjának (általában a gyártó által elvégzett) beállítása után, a két tükör beállítása nem független egymástól. Ezzel szemben az 1. elrendezés lencséit külön kell beállítani. A fenti szimulációk során csupán az első lencse beállítási hibáit modelleztem. A második lencse hibás beállítása az átfedés további romlását okozhatja.



4.10. ábra A beállítási hibák hatása a 3. elrendezés impulzusainak időbeli átfedésére, amikor az objektívet (a) az X tengely mentén 0,5 mm-rel eltoltam, (b) az X tengely körül 1° -kal elforgattam, (c) az Y tengely mentén 0,5 mm-rel eltoltam, és (d) az Y tengely körül 1° -kal elforgattam.

Felmerült az a kérdés, hogy az elrendezések ilyen jelentős mértékben eltérő érzékenysége ugyanolyan beállítási hibákra magyarázható-e azzal, hogy az 1. elrendezés refraktív optikai elemeket tartalmaz. Ennek elemzésére elvégeztem egy, az 1. elrendezéshez hasonló rendszer vizsgálatát, amelyben a teleszkópikus rendszert lencsék helyett két gömbi tükör alkotta. Mindkét tükör görbületi sugara 200 mm volt, ezek vetítették a $G_x = 420$ vonal/mm karcolatsűrűségű transzmissziós rácsot a mintára. Az 1. elrendezéshez hasonlóan, amikor a két gömbi tükör

beállítása hibátlan volt, az impulzusok csoportkésésének változása 25 fs alatt maradt. Azonban, amint a korábbiakhoz hasonló mértékű hibákat vezettem be a rendszer első, konkáv tükrének beállításakor, a 4.11. ábrán látható módon az impulzusok időbeli átfedése ugyanolyan módon romlott el, mint a refraktív optikát tartalmazó teleszkópikus rendszernél. Ezek alapján jutottam arra a következtetésre, hogy a teleszkópikus elrendezések beállítási hibákra való nagy érzékenysége a rendszerek leképezési hibáiból származik. A leképezési hibák egy része javítható az optikai tengelyből kidöntött parabolikus tükrök használatával [74].



4.11. ábra A beállítási hibák hatása két fókuszáló reflektív optikai elemet tartalmazó elrendezés impulzusainak időbeli átfedésére, amikor az első tükröt (a) az X tengely mentén 0,5 mm-rel eltoltam, (b) az X tengely körül 1° -kal elforgattam, (c) az Y tengely mentén 0,5 mm-rel eltoltam, és (d) az Y tengely körül 1° -kal elforgattam.

4.2.2.4 További gyakorlati vonatkozások

A továbbiakban az elrendezések alkalmazhatóságával kapcsolatos megfontolásokat ismertetem. Minden dinamikus rácsok keltésére ultrarövid impulzusokat használó kísérleti elrendezés esetében fontos szempont, hogy az adott elrendezést hogyan lehet az optikai asztalon megvalósítani. Ebből a szempontból hátrányosabb az 1. elrendezés, amely két, egymástól függetlenül állítható optikai elemből áll. Ez nem csak azt jelenti, hogy a tényleges beállítás nehézkes. Számolásaim szerint abban az esetben, amikor a teleszkóp lencséinek fókusz távolsága nem egyezik meg egymással, a legjobb időbeli átfedést megvalósító lencsepozíciót nem lehet

pusztán az impulzusok térbeli átfedésének vizsgálatával megtalálni. Az $f_1 \neq f_2$ esetben az optikai elemek optimális helyzetét egyedül az elrendezés sugárkövetésen alapuló modellezésével lehet meghatározni. A többi elrendezésnél ugyanis mindig a legjobb térbeli átfedés esetén jön létre a legjobb időbeli átfedés, így az optimális pozíció beállításához elegendő megfigyelni a nyalábok átfedését a mintán. Ezzel szemben a kicsinyítést megvalósító teleszkópikus elrendezés esetén az akromatikus lencsákat egymástól a hátsó fókusz távolságaik $f_1^h + f_2^h$ összegével megegyező távolságra elhelyezve, és a mintát az optikai tengelyen úgy elhelyezve, hogy a nyalábok a 4.7(b) ábrához hasonló módon a legjobban átfedjenek, egymástól nagyon eltérő értékeket kaptam a szélső spektrális komponensek csoportkésésére. A lencsék közötti távolságot változtatva, és a mintát újrapozícionálva találtam meg több lépésben azt a konfigurációt, amelynél az időbeli átfedés a legjobb volt. Ezek a megvizsgált esetek azonban a térbeli átfedést tekintve egymással azonosak voltak. Az, hogy ekkor a lencsék távolsága jelentősen eltért a $f_1^h + f_2^h$ értéktől, azzal magyarázható, hogy a nyalábok az optikai tengelytől távol, a lencsék széléhez közel haladnak. Így érthető, hogy az optimális helyzet miért tér el oly jelentősen a paraxiális optika alapján várt pozíciótól. Kompakt jellegükből kifolyólag, a teleszkópikus elrendezéshez képest a 2. elrendezés és a 3. elrendezés több előnyös tulajdonsággal rendelkezik; könnyebben kivitelezhetőek, és a beállításuk is egyszerűbb.

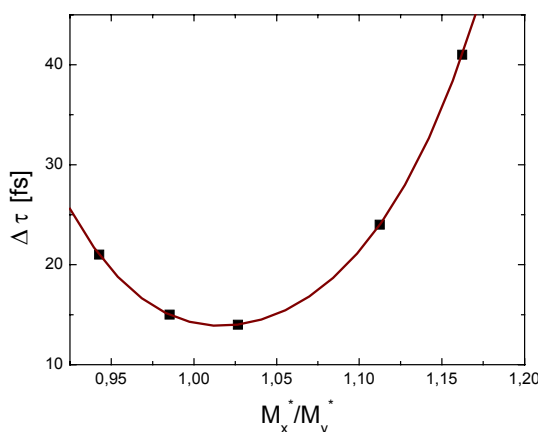
1. TÁBLÁZAT

A számolt csoportkésés változás tubushossztól való függése 28,45 mm tükörszeparációjú objektívnél

Tubushossz (mm)	Vertikális (M^*_x)	Horizontális (M^*_y)	M^*_x / M^*_y	$\Delta\tau$ (fs) a nyaláb	
	kicsinyítés			közepén	szélén
40	6.99	7.41	0.943	22	22
52	7.93	8.19	0.968	20	20
55	8.20	8.55	0.959	12	18
60	8.59	8.40	1.023	16	20
80	10.62	9.90	1.073	50	60

A mikroszkóp objektívet tartalmazó 3. elrendezés alkalmas ugyanazon optikai elemek felhasználásával változtatható rácsállandójú dinamikus rácsok gerjesztésére. A transzmissziós rács és a tükrös objektív közötti távolság változtatásával a leképzés kicsinyítése változtatható. Az 1. táblázat egy állandó tükörszeparációjú és változó tubushosszú objektívre vonatkozó számolási sorozat részleteit foglalja össze. Abban a tartományban, ahol a $\Delta\tau$ csoportkésés változás a 20 fs-os érték alatt marad a nyaláb közepén, a mintában gerjesztett dinamikus rács

rácsállandójának reciproka 390 és 490 vonal/mm között változtatható folyamatosan, pusztán a transzmissziós rács optikai tengelyen való elhelyezkedés változtatásával. A dinamikus rács rácsállandója sokkal nagyobb tartományon hangolható, amennyiben a objektív tükreinek szeparációját is megváltoztatjuk.



4.12. ábra A számolt csoportkésés változás és a mikroszkóp objektívet tartalmazó leképező rendszer asztigmiaja közötti összefüggés.

A 4.12. ábra a *3. elrendezésnél* számolt csoportkésés változást mutatja a vertikális és horizontális kicsinyítési tényező hányadosának függvényében. A számolt pontokra illesztett görbén az látszik, hogy a csoportkésés változása akkor a legkisebb, amikor a rendszer által megvalósított leképezés asztigmia mentes. Tehát a csoportkésés változását a mikroszkóp objektív (igen kicsi) leképezési hibái okozzák, amelyek eredetét a 0. fejezetben tárgyaltam.

Ebben a fejezetben azt a munkámat ismertettem, amely során dinamikus rácsok gerjesztésére alkalmas három elrendezést vizsgálatam meg, és hasonlítottam össze egymással. Meghatároztam a legrövidebb alkalmazható impulzushosszakokat. Azt találtam, hogy mindhárom elrendezés használható 20 fs-os impulzusokat alkalmazó kísérleti technikáknál, az időbeli felbontás enyhe csökkenése mellett. Amennyiben az elrendezések beállítása hibátlan, a kevésbé költséges elemeket tartalmazó *1. elrendezés* és *2. elrendezés* alkalmazása tűnik a legjobb választásnak. A *2. elrendezéssel* azonban csak $M = 1$ nagyítási tényezőjű leképezés valósítható meg. Az *1. elrendezés* kedvezőtlen tulajdonsága a beállítási hibákra való nagy érzékenysége, a nehézkes kezelhetősége, és az alkalmazott lencsék anyagában fellépő anyagi diszperzió. A *3. elrendezés* alkalmas nagy rácsállandójú dinamikus rácsok keltésére. Továbbá előnyös a használata nagy ismétlődési frekvenciájú fényforrások esetén, mivel a leképezés során létrejövő kicsinyítés következtében növekszik a mintában az intenzitást. A vizsgálatok két fontos további eredménye egyrészt annak megállapítása, hogy a kicsinyítést megvalósító *1. elrendezés* esetében a

lencsék optimális pozícióját csak sugárkövetésen alapuló számolásokkal lehet meghatározni, másrészt annak megmutatása, hogy a *3. elrendezés* leképezésének asztigmája és az időbeli felbontás között erős a kölcsönösségi viszony.

4.3 Késési idő korrekciója szögdiszperzióval rendelkező optikai rendszerek modellezésénél

Az előző fejezetekben ismertetett modellezések során használt számolási módszer nem új. Optikai rendszerek modellezésével foglalkozó munkákban számos példa található a csoportkésés meghatározására, amely E. B. Treacy 1969-es közleményében levezetett, a (2.9) egyenletben megadott kifejezéssel, illetve annak egy adott geometriára jellemző speciális alakú változatával számol [13,18,75]. Az előző fejezetben ismertetett munkám során a (2.13) egyenlettel számoltam. A számolások során a (2.13) egyenletben szereplő differenciálhányadosokat két, egymáshoz közel fekvő λ_1 és λ_2 hullámhosszakkal, és az ezekhez tartozó $L(\lambda_1)$ és $L(\lambda_2)$ optikai úthosszakkal számolt

$$\frac{dn}{d\lambda} = \frac{n(\lambda_1) - n(\lambda_2)}{\lambda_1 - \lambda_2} \quad (4.3a)$$

$$\frac{dL}{d\lambda} = \frac{L(\lambda_1) - L(\lambda_2)}{\lambda_1 - \lambda_2} \quad (4.3b)$$

differencia hányadossal közelítettem.

Nyilvánvaló, hogy a (4.3) egyenlet csak azokra az esetekre érvényes, amikor a tárgyter egy közös pontjában eredő különböző hullámhosszú komponensek a képsíkban ismét egy közös pontban találkoznak; azaz az optikai rendszer aberráció mentes, egyébként korrekció elvégzésére van szükség. Ezt a problémát felismerve, kidolgoztam egy korrekciós módszert [76]. A korrekció elhagyásából származó hibák mértéke függ a modellezett elrendezés geometriájától. A korábbi modellező számolásaimat [73], ezúttal a korrekciót alkalmazva, megismételtem. Azt az eredményt kaptam, hogy a korrekció elhagyásából származó hiba ezeknél az elrendezéseknél nem haladta meg a 2 fs-ot, ami elhanyagolható a feltételezett 25 fs-os impulzushossz mellett. Ez a kis mértékű eltérés a szokásos és az új, korrekciós eljárással kapott eredmények között megmagyarázza, hogy a korrekció szükségességét miért nem ismerték fel korábban.

Az elkövetkezőkben bemutatom az általam kifejlesztett korrekciós eljárást, és megmutatom, hogy vannak olyan optikai rendszerek, amikor ennek a korrekciós eljárásnak az elvégzése elkerülhetetlen. Ennek demonstrálására két optikai elrendezés esetén végeztem sugárkövetésen alapuló számolást a csoportkésés meghatározására korrekció nélkül, illetve a korrekciót alkalmazva. A modellként használt optikai rendszereket az ultrarövid impulzusokat alkalmazó döntött impulzusfrontú gerjesztési elv megvalósításával terahertzes impulzusok

keltésére és detektálására használtuk, így a kapott eredmények megbízhatóságát a kísérleti eredményekkel való összevetéssel ellenőrizhettem.

4.3.1 Korrekciós eljárás a csoportkésés számolására

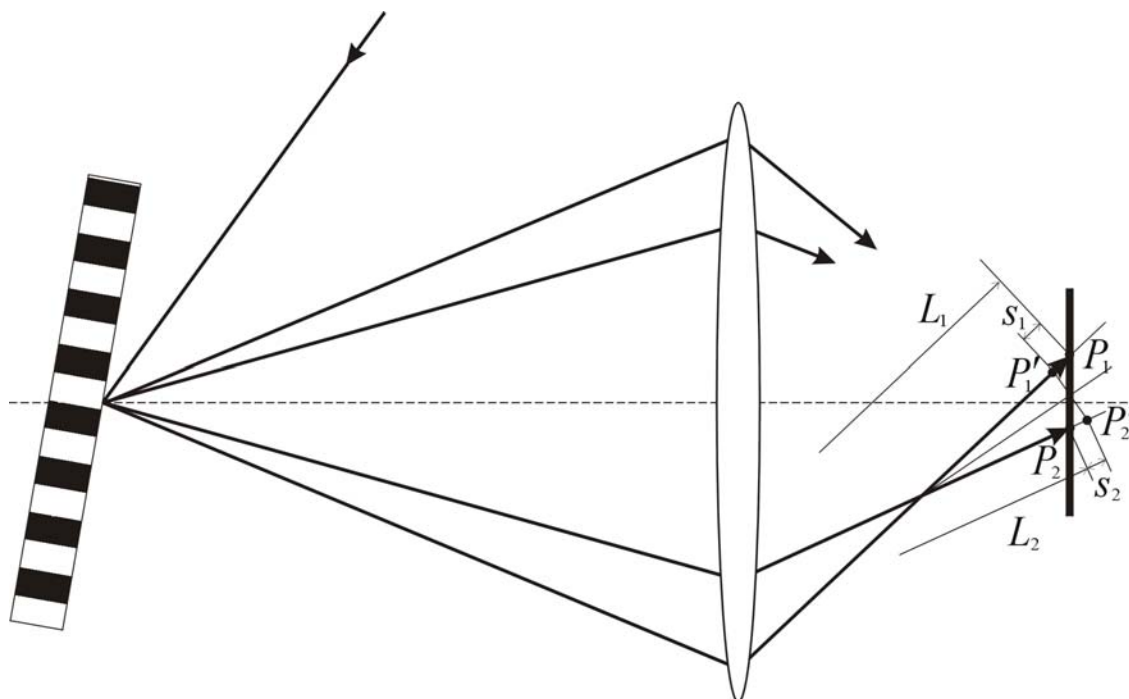
Szögdiszperzióval rendelkező optikai rendszerek esetén, amennyiben a rendszer által megvalósított leképezés nem tökéletes, az aberráció következtében a tárgy egy pontjából származó különböző hullámhosszú sugarak elkerülhetik egymást a képsíkban. Ilyen helyzet állhat elő például, amikor egy véges spektrális sáv szélességű impulzus nagy karcolatsűrűségű reflexiós rácson diffraktálódik. A szögdiszperzió következtében az impulzus különböző hullámhosszúságú komponensei a térben szétterülnek. Egy adott rács szögdiszperzióját megadó kifejezést a rácsegyenlet

$$m\lambda = d(\sin \alpha + \sin \beta) \quad (4.4)$$

deriválásából kapjuk meg:

$$D = \frac{d\beta}{d\lambda} = \frac{m}{d \cos \beta} = \frac{m}{d \left[1 - (m\lambda/d - \sin \alpha)^2 \right]^{1/2}}, \quad (4.5)$$

ahol m a diffrakció rendje, $d = 1/G_x$ a rácsállandó, α és β pedig a beesés és a diffrakció szöge. Az első diffrakciós rendhez tartozó különböző komponenseket egy fókuszáló optikával, pl. gyűjtőlencsével leképezve, a leképező rendszer aberrációja következtében a különböző hullámhosszú spektrális komponensek nem egy pontban találkoznak. Ezt szemlélteti a 4.13. ábra, ami a probléma megértésének elősegítése érdekében sematikus jellegű és erősen torzított. Amennyiben a szokásos módon határozzuk meg az egymáshoz közel eső λ_1 és λ_2 hullámhosszú sugárpárosra a (4.3) egyenlet differenciáhányadosait és azok értékével számoljuk a (2.13) egyenletből a csoportkésést, valószínűtlen τ értékeket kapunk. Ennek oka az, hogy nagyon kicsi $\Delta\lambda$ spektrális szeparáció esetén is a képsíkban a sugarak közötti távolság jelentős, így a reflexiós rács és a képsík között mért L_1 és L_2 távolság már nem ugyanahhoz a fázisfronthoz tartozó optikai úthosszakat jelentik. Ezt az effektust kell kompenzálni úgy, hogy az optikai utakat metszük a két sugár által bezárt szög szögfelezőjére állított merőlegessel, majd az így kapott P_1' metszéspont és P_1 képpont közötti s_1 szakaszt kivonjuk az L_1 optikai úthosszból, illetve a P_2' metszéspont és P_2 képpont közötti s_2 szakaszt hozzáadjuk az L_2 optikai úthosszhoz.



4.13. ábra A csoportkésés számolásának új módszerét bemutató vázlatrajz. A $\Delta\lambda$ spektrális szeparációjú sugárpár optikai úthossza a reflexiós rács és a képsík között L_1 és L_2 . Ezek értékeit módosítani kell az s_1 szakasz kivonásával, illetve az s_2 szakasz hozzáadásával.

Számolásaimban a sugármeneteknek csak az XZ síkra eső vetületét vettem figyelembe. Ezt az egyszerűsítést az teszi lehetővé, hogy szögdiszperzióval rendelkező rendszerek esetén a leképezési hibák ebben, azaz a diszperzió síkjában sokkal jelentősebbek, mint az arra merőleges síkban, továbbá a számolás ebben a síkban érzékeny a korrekció hiányára, mivel az egy pontban eredő különböző hullámhosszú spektrális komponensek az XZ képsíkban kerülik el egymást a diszperzió következtében. Különböztetesen a korrekciós eljárást mindkét síkra el kellene végezni, ami egyúttal bonyolultabb számolással járna.

4.3.2 Szögdiszperzióval rendelkező elrendezések

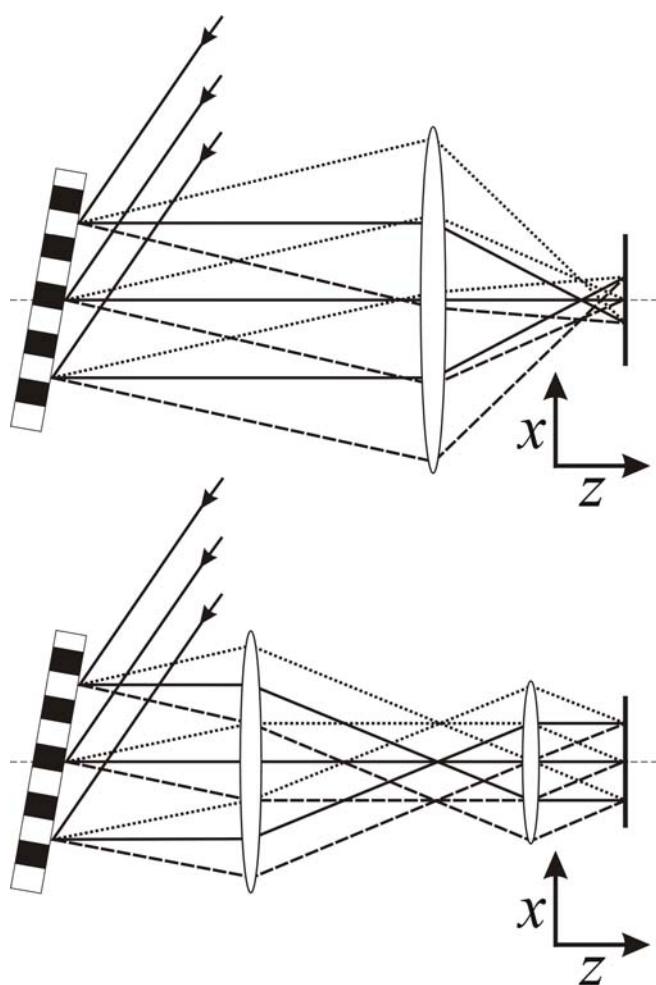
A 2.3.2 fejezetben ismerttettem azt a gerjesztési elvet, amivel hangolható, nagy kiterjedésű terahertzes sugárzás gerjeszthető. A gerjesztő impulzusok impulzusfrontja egy reflexiós rácson való diffrakció után vált döntötté. Az így létrejövő impulzusfront dőlés és a rács szögdiszperziója között a

$$\tan \gamma = \lambda \frac{d\beta}{d\lambda} \quad (4.6)$$

összefüggés áll fenn [55,77]. A rácsnak a nemlineáris anyagba, esetünkben egy $100 \mu\text{m}$ vastag GaP kristályba való leképezését többféle optikai rendszerrel meg lehet valósítani. Kicsinyítés esetén a impulzusfront dőlésszöge megnövekedik a képsíkban, a

$$\tan \gamma' = M^* \tan \gamma \quad (4.7)$$

összefüggés szerint [64]. A szimulációkat két lehetséges fókuszáló optikai elrendezésre végeztem el; az egyik egyetlen gömbi lencséből állt, a másik vizsgált elrendezés két konfokális gömbi lencséből álló teleszkópikus rendszer volt. A 4.14. ábra részletesen mutatja mindkét elrendezés esetén a pumpáló nyaláb szélein és közepén haladó sugarak menetét a rács és a minta között. A feltüntetett sugarak a 810 nm-es középponti hullámhossznak, illetve a feltételezett 30 nm-es sávszélességű hullámhossztartomány két szélső komponensének felelnek meg, ami 23 fs-os impulzushosszt jelent szekáns hiberbólikus alakú impulzusoknál. A pumpa és próba nyalábok impulzusai egymással szöget bezárva érkeznek a rácsra. Az ábra síkjára eső vetületük fedik egymást. A könnyebb átláthatóság érdekében erősen torzított a két séma; erre az ábrázolásra a Z optikai tengely és az arra merőleges X tengely menti távolságok közötti jelentős különbség miatt van szükség.



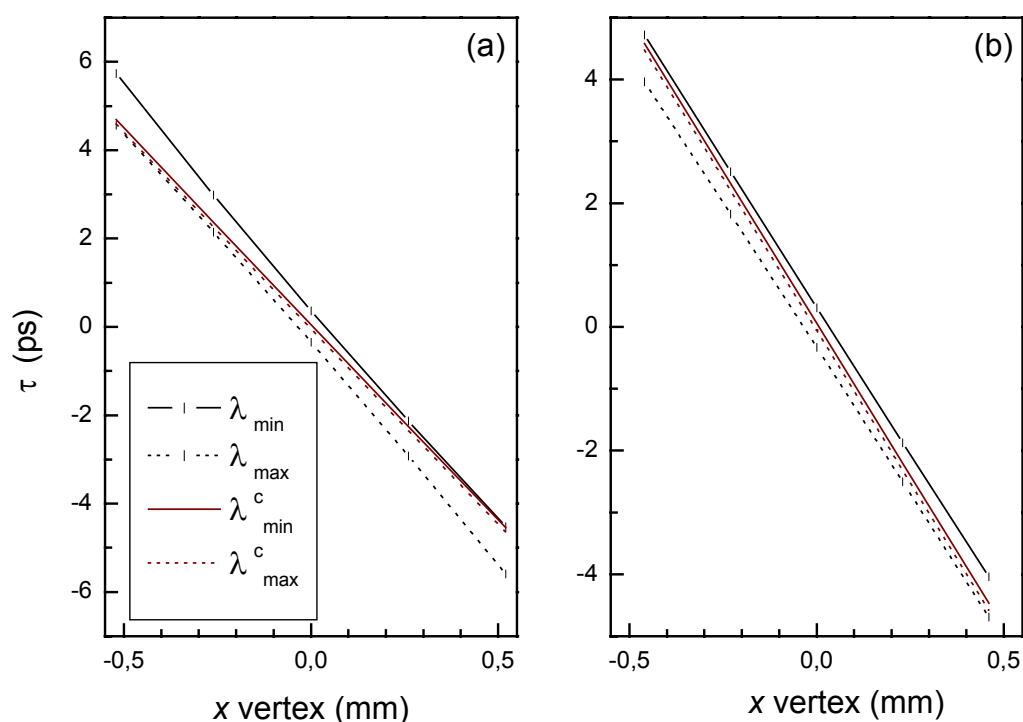
4.14. ábra A pumpáló nyaláb középső és a két szélső sugármenete a középponti hullámhossznál (folytonos vonal), valamint a hosszú (pontozott vonal), és a rövid hullámhosszú (szaggatott vonal) spektrális komponensnél, amikor a reflexiós rácsot (a) gömbi lencsével, illetve (b) két gömbi lencséből álló teleszkóppal képezzük le.

Mindkét elrendezés ugyanakkora, 3-as kicsinyítési tényezőjű szaggitális kicsinyítést valósít meg. Kereskedelmi forgalomban kapható, tipikusan nagy numerikus apertúrájú gömbi akromatikus lencsék adatait használtam az elrendezések modellezésénél. Az egy lencsés elrendezésnél a fókusztávolság 50 mm volt (Linor AG katalógus: 23 2265). A teleszkópikus elrendezés lencségei a közeli IR hullámhosszra tervezett akromatikus lencsék voltak, és fókusztávolságaik értéke 60 mm, illetve 20 mm volt (Edmund Industrial Optics katalógus számok NT45-798, illetve NT45-786). A kellő mértékű impulzusfront dőlés elérése érdekében 1200 vonal/mm karcolatsűrűségű reflexiós rácsot használtunk. A vizsgált rendszereknél a spektrális összetevők szögi eltérése olyan nagy mértékű volt, hogy a lencsék teljes numerikus apertúráját kitöltötték a nyalábok. A nyalábban egy bizonyos hullámhosszú komponensnek megfelelő sugarak a lencséken az optikai tengelytől jelentősen eltérő távolságokban haladnak át és a rendszeren való áthaladás során az egyes nyalábok által megtett utak nagy mértékben eltérnek egymástól. Szükségszerűen, amikor a lencsék gömbfelületét nemcsak a paraxiális tartományban használjuk, a monokromatikus aberrációk is jelentőssé válnak.

4.3.3 Eredmények

A szimulációk során mindkét módszerrel elvégeztem az impulzusok terjedésének modellezését a két vizsgált rendszerben. A csoportkésést egyrészt a 2.1.2 fejezetben ismertetett módszerrel határoztam meg, a tervezőprogram által numerikusan számolt optikai úthosszakból korrekció nélkül, másrészt a 4.3.1 fejezetben ismertetett új módszerrel, az optikai úthosszak értékének szükséges korrekciójával. A 4.15. ábra ezeknek a számolásoknak az eredményeit hasonlítja össze. A csoportkésést a képsíkban X tengely mentén az optikai tengelytől való távolság függvényében ábrázoltam a 30 nm-es spektrális sáv szélesség szélén levő rövid (folytonos vonal), illetve a hosszú hullámhosszú (pontosított vonal) spektrális komponensre, a 4.15.(a) ábrán az egy lencsés elrendezésnél, a 4.15.(b) ábrán pedig a teleszkópikus elrendezésnél. A korrekció nélküli számolások eredményeit minden esetben függőleges vonalkézással jelöltem. Mindét elrendezésnél a korrekciót alkalmazva a kapott impulzusfront dőlése kis mértékben csökken.

Sokkal szembetűnőbb a különbség a kétféle számolással kapott eredmények között, ha a két szélső spektrális komponens közötti időbeli különbséget vizsgáljuk meg. A 4.16.(a) ábrán az egy lencsés elrendezésen áthaladó rövid és hosszú hullámhosszú spektrális komponensek repülési ideje közti különbséget tüntettem fel, abban az esetben, amikor az optikai úthosszakra nem alkalmaztam korrekciót. A különbség az így kapott csoportkésésekben 1 ps körüli. Ez a valószínűtlenül nagy érték 97 fs körüli értékre csökken, a 4.16.(b) ábrán látható módon, a

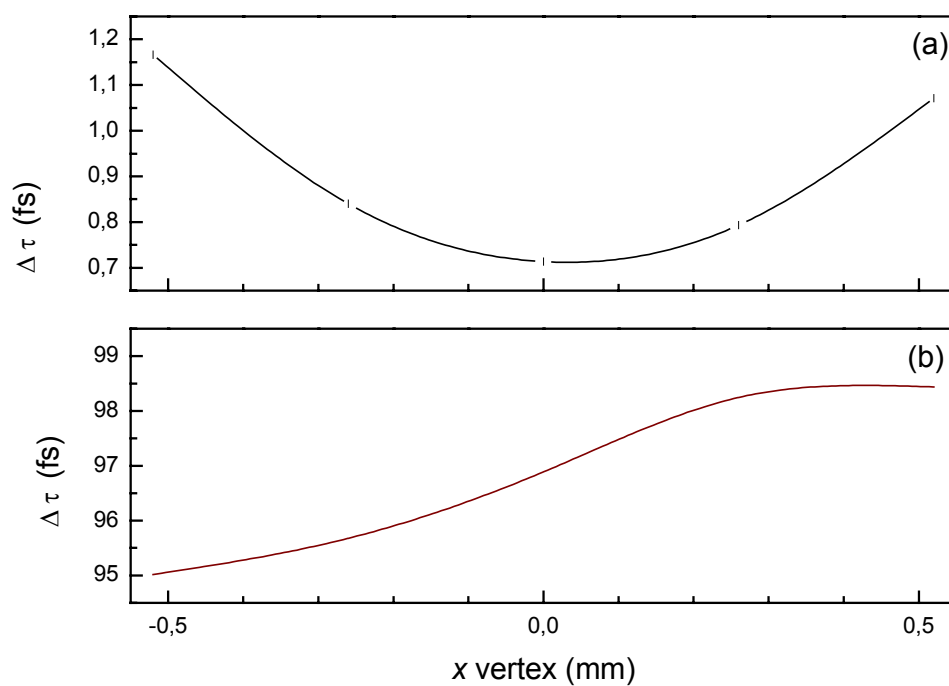


4.15. ábra A számolt csoportkésés a leképezett terület közepétől mért távolság függvényében (a) az egy lencsés, és (b) a teleszkópikus rendszer esetén. A vonalázott szimbólumok a korrekció nélküli számolási eljárással kapott görbéket jelölik, mind a rövid (folytonos vonal), mind pedig a hosszú hullámhosszú (pontozott vonal) spektrális komponensek esetén.

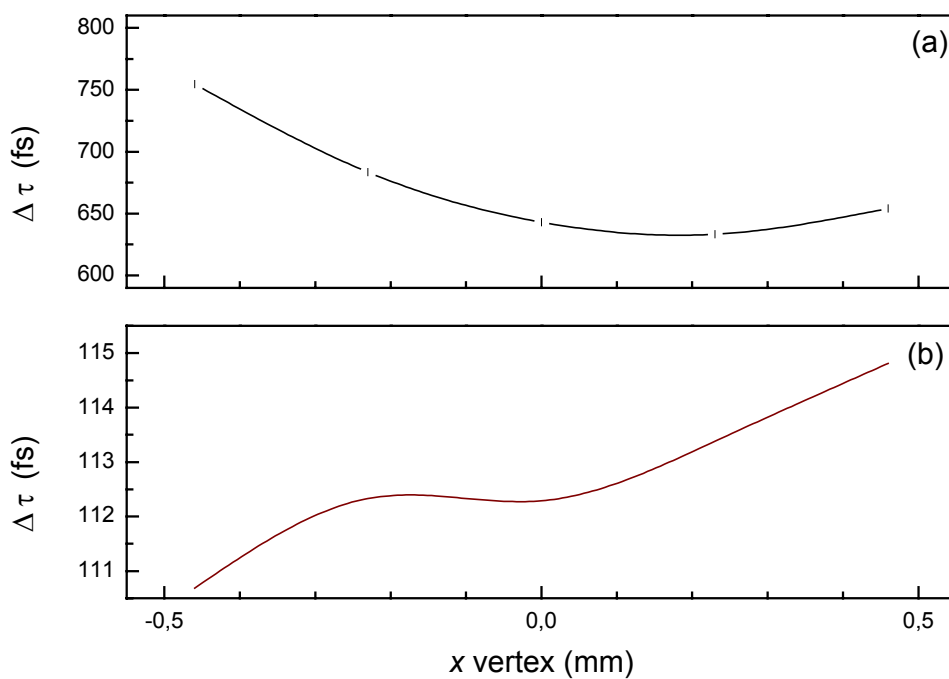
korrekció alkalmazása után. Az impulzus ezen időbeli kiszélesedése egyrészt az anyagi diszperzióból származik. Kiszámoltam az egy lencsés elrendezés akromatikus lencséjénél fellépő anyagi diszperzióból származó csoportkésés különbséget a két vizsgált hullámhossznál. Az optikai tengelyen haladó sugarak esetén ez az érték 40 fs.

A 4.16. ábrához hasonlóan, a 4.17. ábra a kétféle számolási módszerrel meghatározott csoportkésés különbséget mutatja a két lencséből álló teleszkópikus rendszerre. Ebben az esetben a két szélső spektrális komponens csoportkésésének korrekció nélkül kapott 680 fs-os értéke 113 fs körüli értékre csökken. Ezeknél a hullámhosszaknál a két akromatikus lencse anyagi diszperziójából származó csoportkésés különbség 111 fs.

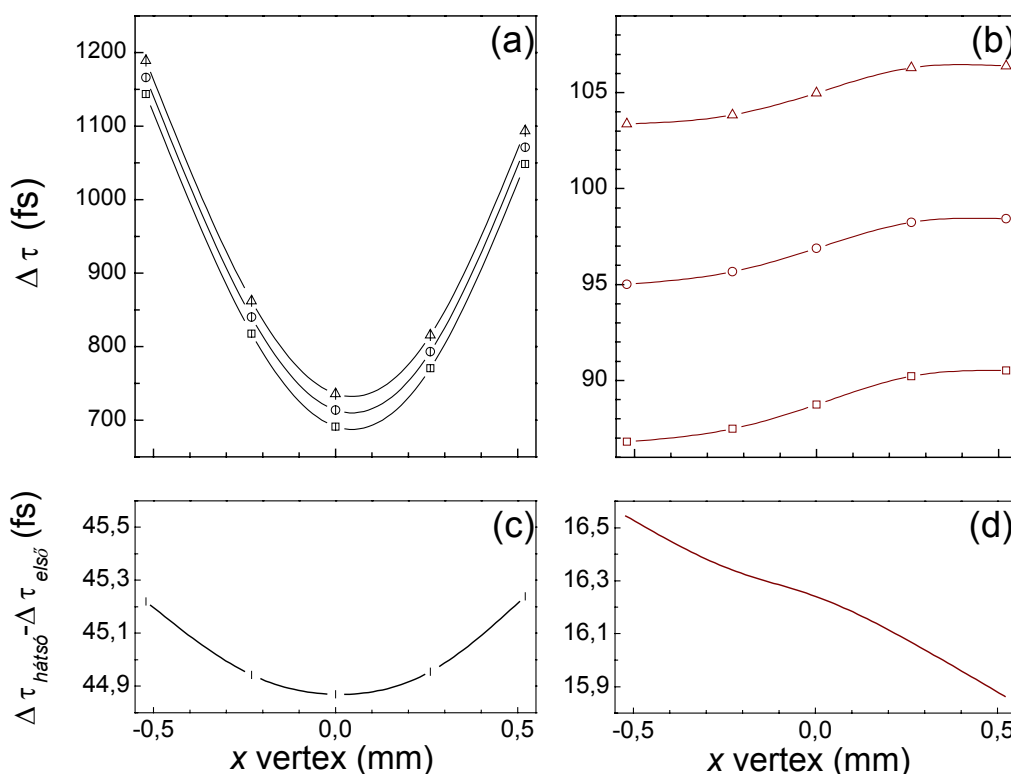
Mindkét elrendezés esetén a csoportkésés különbség a nyaláb keresztmetszete mentén közel állandó értékű, a váltakozás nem haladja meg a 4 fs-ot. Ennek köszönhetően az optikai rendszereken való áthaladáskor kialakuló csoportkésés különbség hagyományos impulzus kompresszorokkal megszüntethető.



4.16. ábra (a) A korrekció nélkül, illetve (b) a korrekcióval számolt csoportkésés különbség az egy lencsés rendszer esetén.



4.17. ábra (a) A korrekció nélkül, illetve (b) a korrekcióval számolt csoportkésés különbség a teleszkópikus rendszer esetén.



4.18. ábra (a) A korrekció nélkül, illetve (b) a korrekcióval számolt csoportkésés különbség az egy lencsés elrendezés esetén, a $100\ \mu\text{m}$ vastag minta közepén (körök), és a minta első (négyzet), illetve a hátsó felületén (háromszög). A kétféle módszerrel végzett számolásokból kapott (c) korrigálatlan, illetve (d) korrigált impulzus kiszélesedés a mintában.

Az impulzus mintában való terjedésének vizsgálata egy másik fontos szempont. Szimulációkat végeztem az egy lencsés elrendezésre, a csoportkésés meghatározására a $100\ \mu\text{m}$ vastag GaP minta közepén, valamint $50\ \mu\text{m}$ -rel ezen sík előtt, és után, azaz a minta első és hátsó felületén. A 4.18.(a) és (b) ábra ezen síkokban kapott csoportkésés különbségeket ábrázolja a korrekció nélküli, illetve a korrekciót alkalmazó módszerrel. A csoportkésés különbségének megváltozása a minta első és hátsó felülete között tulajdonképpen az impulzusok mintában való időbeli kiszélesedését adja meg. Ezeket a szokásos módszerrel, illetve a korrekcióval meghatározott $\Delta\tau_{hátsó} - \Delta\tau_{első}$ értékeket a 4.18.(c) és (d) ábra görbéi mutatják. Összehasonlítva a két görbéről leolvasható értékeket a GaP anyagi diszperziójából számolt $16,2\ \text{fs}$ -os időbeli kiszélesedéssel, ismételten azt a következtetést vonhatjuk le, hogy az optikai úthosszakra sugárkövetésen alapuló, szokásos eljárással kapott értékek általam kidolgozott korrekciója az ultrarövid impulzusok modellezésének megbízható módszere.

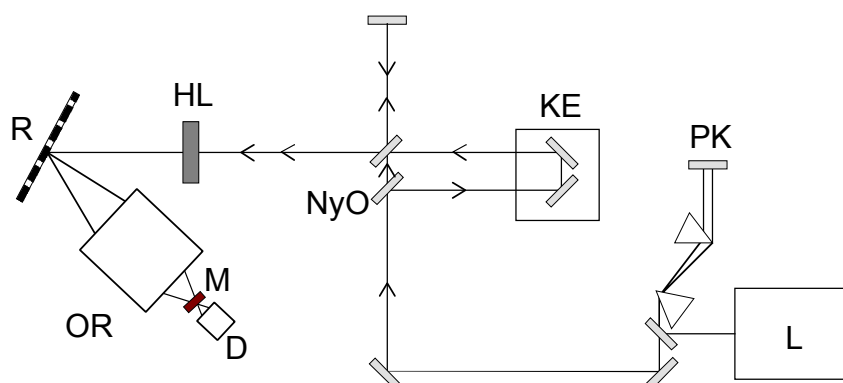
Összefoglalva, továbbfejlesztettem azt a módszert, ami az ultragyors impulzusok spektrális komponensei csoportkésését a geometriai optikai úthossz alapján határozza meg. Megmutattam, hogy az impulzusok terjedésének modellezésére szokásosan használt módszer hibás eredményeket adhat azon szögdiszperzióval rendelkező rendszerek esetén, amelyek leképezése nem mentes képalkotási hibáktól. Ezt a limitációt elsőként ismertem fel. Kidolgoztam egy eljárást, ami ezt a problémát kezeli, a sugárkövetésen alapuló számolással kapott optikai úthosszak korrekciójának általam kifejlesztett módszerével. Két, terahertzes impulzusok keltésére és észlelésére alkalmas optikai elrendezést, mint esettanulmányt vizsgálva megmutattam a korrekciós módszer nélkülözhetetlenségét. A kidolgozott módszer megbízható és hatékony eszköz a femtoszekundumos optikai rendszerek karakterizálására és optimalizására.

4.4 Döntött impulzusfrontú gerjesztésen alapuló elrendezések vizsgálata

A 2.3.2 fejezetben ismertetett gerjesztési elv kísérleti megvalósításával nagy felületen kelthetőek hangolható terahertzes impulzusok. A terahertzes impulzusokat előállító kísérletek egy részéhez az előző fejezetben ismertetett, illetve ahhoz hasonló számolások elvégzésével [63,78], egy részéhez pedig kísérleti munkámmal is [79] hozzájárultam². A modellezés során az volt a feladat, hogy megtaláljam azt az optikai rendszert, amely a lehető legideálisabb leképezést valósítja meg a különböző nemlineáris kristályok esetén. Ezen modellező számolásaim alapján megépített kísérleti elrendezésekkel kétféle típusú méréseket végeztünk; a keltett terahertzes impulzusokat egyrészt a nemlineáris kristályban detektáltuk pumpa-próba típusú mérésekkel, másrészt a keltett sugárzást a kristályon kívül bolométerrel mértük.

4.4.1 Terahertzes impulzusok előállítása és detektálása GaP kristályban

A 4.3 fejezetben esettanulmányként tárgyalt optikai rendszerek vizsgálatához az a kísérlet sor adta a motivációt, amit Hebling János kezdett el terahertzes sugárzás keltésére és detektálására a döntött impulzusfrontú gerjesztési technikával, GaP kristályt használva elektrooptikai anyagként.

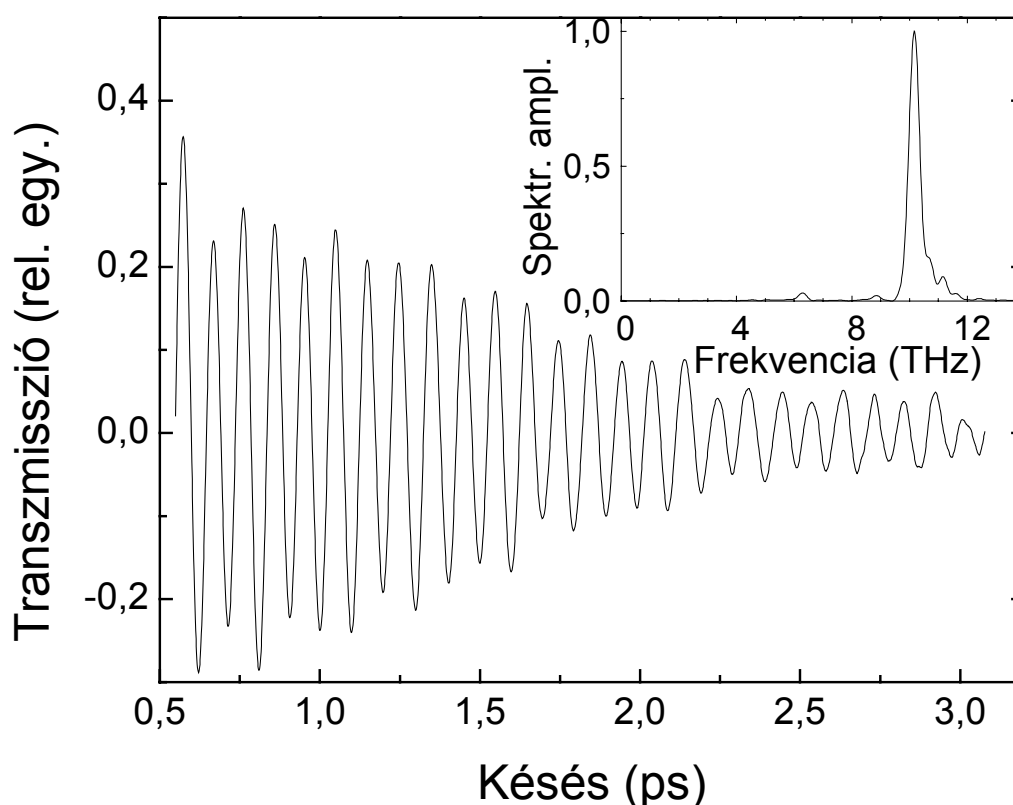


4.19. ábra Terahertzes sugárzás keltésére és detektálására szolgáló kísérleti elrendezés sémája: a L Ti:zafir lézer impulzusai a diszperzió kompenzálására egy PK prizmás kompresszoron haladnak át. Az 50%-os NyO nyalábosztó enyhe dőlése a pumpa és próbanyalábokat térben elválasztja egymástól (ezek rajz síkjára eső vetülete fedi egymást). A próba nyaláb egy gyorsan szkennelhető KE késleltető egységen halad keresztül. Egy HL hengerlencse fókuszálja a pumpáló és próba nyalábot a R reflexiós rácsra, ami létrehozza a nyalábok impulzusfrontjának dőlését. A rács képét a M mintára a OR optikai rendszer képezi le. A próba nyalábok transzmisszióját egy D detektor méri.

A 4.19. ábrán az ezt megvalósító kísérleti elrendezés sémája látható. A 810 nm középponti hullámhosszú, 25 fs-os, 350 mW átlagos teljesítményű gerjesztő lézerimpulzusok forrása egy Ti:zafir lézer volt, amely 76 MHz ismétlődési frekvenciával működött. A pumpáló impulzusok által keltett fonon polaritonok jelenlétét változtatható késleltetésű, a pumpáló

² Ezen fejezetben ismertetett kísérleti eredményeink egy része még nem jelent meg, jelenleg publikálás alatt áll.

impulzusokkal megegyező próba impulzusok transzmisszióját mérve észleltük. A pumpa és próba nyalábok egy 1200 vonal/mm karcolatsűrűségű reflexiós rácson diffraktálódtak. A rács előtti 150 mm fókusztávolságú hengerlencse mindkét nyalábot egy horizontális vonallá fókusztálta a rácstra. A diffrakció következtében létrejövő impulzusfront dőlést a mintába leképező rendszert az ábrán „optikai rendszer”-ként jelöltem. Az elsőként megépített rendszerben egy $f = 50$ mm-es lencse képezte le a rácst a GaP kristályba. A leképezés körülbelül háromszoros kicsinyítést valósított meg. A fonon-polaritonok egy $130 \mu\text{m}$ vastag GaP kristályban gerjesztődtek, amely felületének orientációja $[111]$ volt. A transzmittált próba nyalábot egy monokromátor a spektrális összetevőire bontotta, amit ezek után egy fotodióda detektált. A próba késleltetését több ezerszer szkennelve, a fotodióda jelét egy számítógép rögzítette és átlagolta.

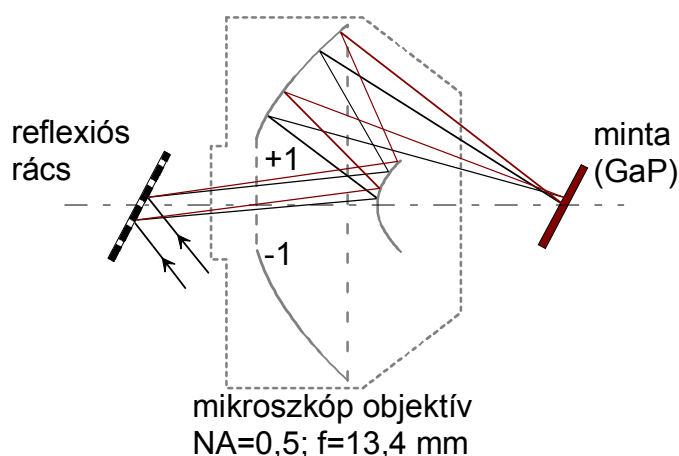


4.20. ábra A transzmisszió mért függése a próba impulzus késleltetésétől $\gamma=39,3^\circ$ dőlési szög esetén. Az inzert e függvény spektrumát mutatja: A 0,44 THz széles spektrum maximumát 10,16 THz frekvenciánál mértük.

Ezzel a rendszerrel mért mérési eredményt mutatja a 4.20. ábra: a görbe a próba nyaláb transzmisszióját ábrázolja $\gamma = 39,3^\circ$ dőlésnél. A jól megfigyelhető 98,4 fs periódusú oszcillációt a generált transzverzális optikai fonon-polaritonok okozták. A 10,16 THz-es frekvencia jó egyezést mutat a sebességillesztést kifejező (2.25) egyenletből, és a polariton diszperzióját leíró

(2.14) egyenletből $39,3^\circ$ -os dőlési szögnél számolt $10,12$ THz értékkel. Az ábra inzertje a tarnszmisszió időbeli lefutásának Fourier transzformáltját mutatja. Ezt a polariton $0,44$ THz széles jele dominálja. A rács leképezésének kicsinyítését, ezáltal γ értékét 30 - 65° tartományban változtatva, a mérések szerint $9,0$ és $10,7$ THz között lehetett az előállított polaritonok frekvenciáját hangolni. A rácsot nulladrendben használva, $\gamma = 0^\circ$ dőlés esetén csak a longitudinális optikai fononok által okozott oszcillációt lehet a jelben megfigyelni.

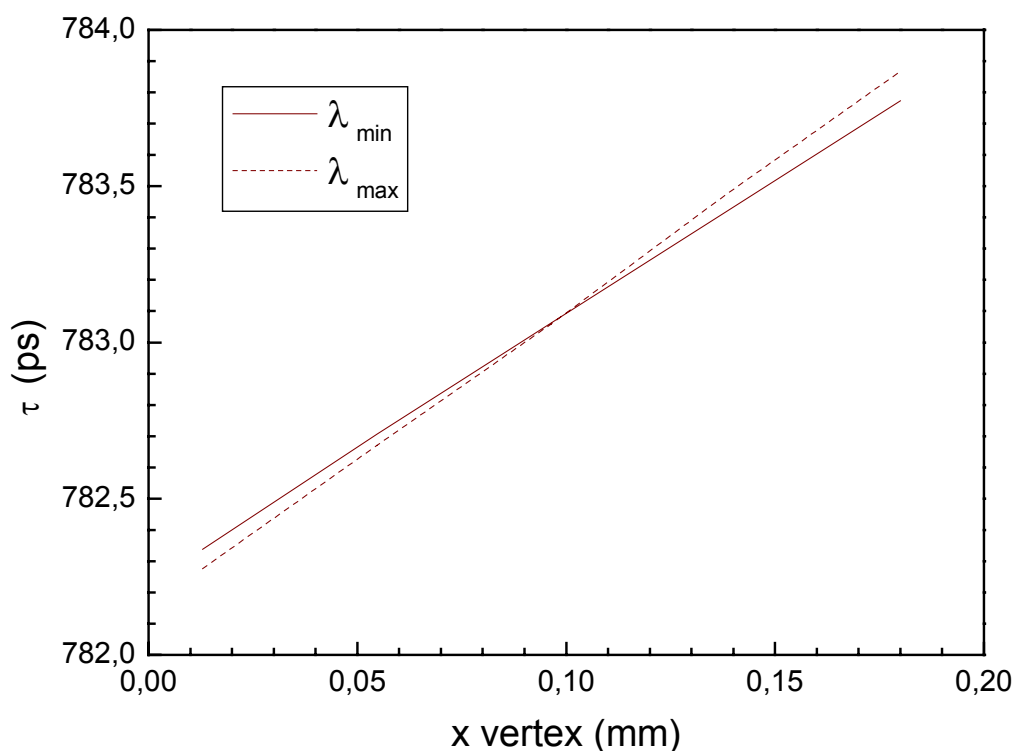
Az első kísérletekben használt, egy lencséből álló elrendezésre vonatkozó modellező számolásaim eredményeit a 4.3.3 fejezetben tárgyaltam. A szimuláció során kapott eredményeimet megerősítették a kísérletek: az ultrarövid impulzusok szélső spektrális komponensei között fellépő, közel állandó csoportkésés érték kompenzálható, az ultrarövid impulzusok az időbeli felbontás jelentős romlása nélkül leképezhetőek a mintába, amit a keltett polaritonoktól származó jel jó minősége meggyőzően mutat.



4.21. ábra Mikroszkóp objektív használata a terahertzes kísérleti elrendezés optikai rendszereként.

A dinamikus rácsok keltésével kapcsolatos kísérletek, valamint ezzel kapcsolatos modellező számolásaim azt mutatták, hogy a tükrös mikroszkóp objektívvel előnyös tulajdonságú leképezés valósítható meg ultrarövid impulzusok mintán való keresztvezetésére. Ennek alapján vetődött fel mikroszkóp objektív alkalmazásának lehetősége a döntött impulzusfrontú technikánál. A 4.21. ábrán a nyalábok menete látható a mikroszkóp objektíven keresztül a rács és a minta között. A sematikus ábra jól mutatja, hogy a kisebbik tükör kitakarja az optikai tengely közelében haladó sugarakat, így az objektívet az optikai tengelyről kidöntve kell alkalmazni. Ennek következtében a kristályt is kissé megdöntve kell elhelyezni, hogy a felülete merőleges legyen a beeső sugarakra. Az eredmények összevethetőségének érdekében a számolások során a 4.3.2 fejezetben ismertetett optikai rendszerekkel megegyező leképezést akartam megvizsgálni. Miután a 1200 vonal/mm karcolatsűrűségű rács nagy szögdiszperziója

miatt a spektrális komponensek oly nagy mértékben szóródnak szét, hogy az objektív apertúrájába nem férnek bele, ezért 600 vonal/mm karcolatsűrűségű ráccsal számoltam, és úgy állítottam be a rács és a mikroszkóp objektív közötti távolságot, hogy az $M^* = 6$ kicsinyítésű leképezésnek feleljen meg. A impulzusok feltételezett tulajdonságai megegyeztek a korábbi modellben használt adatokkal (ld. 4.3.2 fejezet).



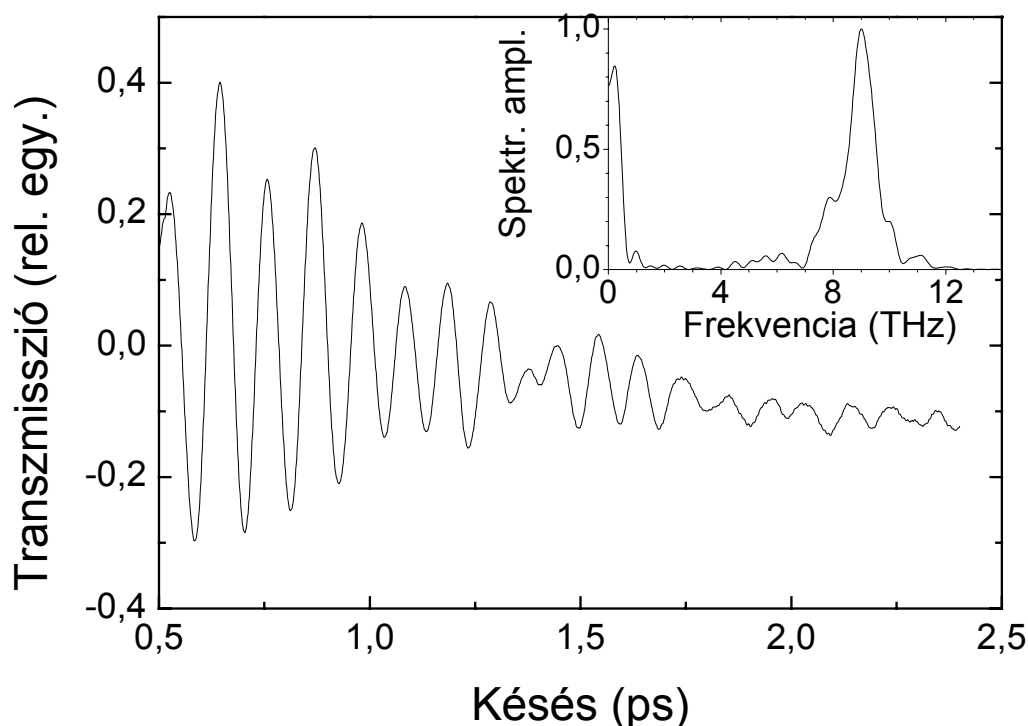
4.22. ábra A tükrös objektívet tartalmazó rendszernél a számolt csoportkésés a optikai tengelytől való távolság függvényében a képsíkban.

A 4.3.1 fejezetben ismertetett eljárással meghatároztam az impulzusok szélső spektrális komponenseinek csoportkésését. Az így kapott eredményt a 4.22. ábra mutatja. Jól látható, hogy a spektrális sáv szélesség két szélső hullámhosszához tartozó impulzusfrontok keresztezik egymást. Mivel a csoportkésés különbség nem állandó az impulzus keresztmetszete mentén, hanem a +60 fs illetve a -95 fs értékek között folyamatosan változik, az impulzusok különböző spektrális komponenseinek egymástól való lemaradását, illetve előresietését nem lehet a szokásos kompenzációs módszerekkel kiegyenlíteni. Megvizsgáltam azt is, hogy a csoportkésés különbség hogyan függ a képsík (azaz a GaP minta) felületének dőlésétől. Azt tapasztaltam, hogy az optimálisnak talált értéktől $\pm 1^\circ$ -kal való elfordítás már jelentősen befolyásolja a csoportkésés különbség értékét, annak 15-20%-os növekedését okozva.

Ez az eredmény azt vetítette előre, hogy bár az optikai rendszer nem tartalmaz olyan elemet, amelynek anyagi diszperziójának előnytelen következményeivel számolnunk kellene, a

leképezés során az impulzusok olyan jelentős időbeli torzulást szenvednek, ami miatt nem tűnt alkalmasnak terahertzes impulzusok keltésére. Továbbá a beállítást megnehezíti a minta pozicionálása által megkövetelt pontosság.

A mikroszkóp objektív alkalmazásával végzett kísérleteink során tapasztaltak egybeestek a modellezésem eredményei alapján vártakkal. A 600 vonal/mm karcolatsűrűségű rácsot reflexiós objektívvel (Coherent katalógus szám: 25-0555) leképezve a GaP kristályba hatszoros kicsinyítést megvalósítva sikerült ugyan terahertzes impulzust keltetni, (lásd 4.22. ábra); a mért jelek azonban azt mutatták, hogy a keltett GaP polaritonok minősége elmaradt az egy lencsét alkalmazó optikai rendszerrel kapott eredményektől.



4.23. ábra A transzmisszió mért függése a próba impulzus késleltetésétől $\gamma=23,5^\circ$ dőlési szög esetén. A 0,99 THz széles spektrum maximumát 9 THz frekvenciánál mértük.

4.4.2 Terahertzes impulzusok előállítása LiNbO₃ és LiTaO₃ kristályban és a sugárzás kristályon kívül való detektálása

Terahertzes impulzusokat állítottunk elő LiNbO₃ és LiTaO₃ kristályban is. Célunk az volt, hogy ezúttal a sugárzást ne elektrooptikai mintavételezéssel detektáljuk a kristályban, hanem közvetlenül a kibocsájtott sugárzást mérjük. Emiatt esett a választás a GaP helyett olyan kristályokra, amelyekben nagyobb hatékonysággal lehet terahertzes sugárzást keltetni. A LiNbO₃ és LiTaO₃ ferroelektromos kristályokat széles körben alkalmazzák optikai, nemlineáris optikai és

elektrooptikai tulajdonságaik különösen előnyös kombinációja miatt. Számunkra a nagyobb nemlineáris optikai együtthatójuk miatt voltak vonzóak.

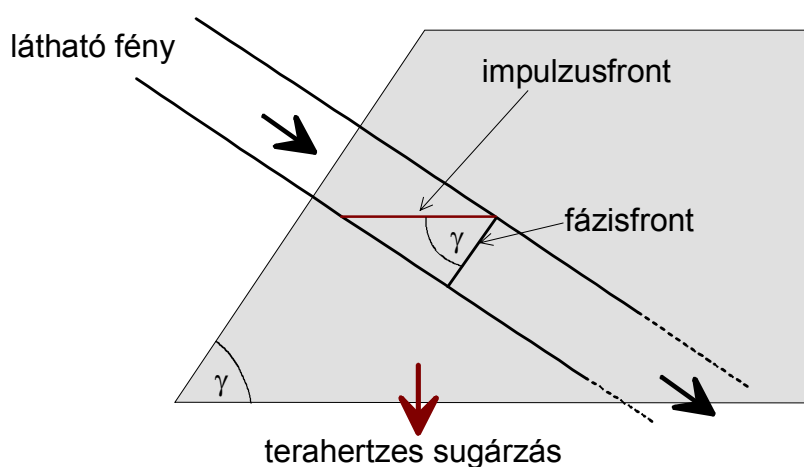
A kísérletek tervezése során meg kellett határoznunk, hogy a kristály két kritikus felülete milyen szöget zárjon be egymással. A kristály azon felülete, amelyen a gerjesztő látható fényimpulzus belép merőleges kell, hogy legyen a látható fény fázisfrontjára, míg az a felülete, amelyen a terahertzes sugárzás kilép ismét merőleges legyen a terahertzes sugárzás terjedési irányára. A 4.24. ábrán is látható módon ez azt jelenti, hogy a két felület által bezárt szögnek meg kell egyeznie a gerjesztő impulzus impulzusfrontjának γ dőlésszögével a kristályban. Ismerve egy adott kristály n_i^{cs} csoporttörésmutatóját a gerjesztő impulzus középponti hullámhosszánál, meg lehet határozni azt a γ impulzusfront dőlést, ami az általunk kiválasztott frekvenciájú terahertzes sugárzást gerjeszteni tudja - a 2.26 egyenlet alapján:

$$\gamma = \cos^{-1}\left(\frac{n_i^{cs}}{n_{THz}}\right), \quad (4.8)$$

ahol n_{THz} a kristály anyagának törésmutatója a keltett terahertzes sugárzás hullámhosszánál. Az impulzusfront γ' dőlése a levegőben a

$$\gamma' = \text{tg}^{-1}(n_i^{cs} \cdot \gamma) \quad (4.9)$$

összefüggésből számolható. Az optikai rendszernek, ami a gerjesztő impulzust leképezi a kristályba ekkora impulzusfrontdőlést létrehozó szögdiszperzióval kell rendelkeznie. A leképező rendszer szögdiszperziója a (4.6) egyenletből határozható meg, illetve az impulzusfront dőlését kicsinyítést megvalósító leképezéssel tovább lehet növelni a (4.7) egyenletnek megfelelően.



4.24. ábra A nemlineáris kristálynak a gerjesztő látható fényt fogadó, illetve a terahertzes sugárzást kibocsátó felületének szöge megegyezik az impulzusfront dőlésének γ szögével a kristályban.

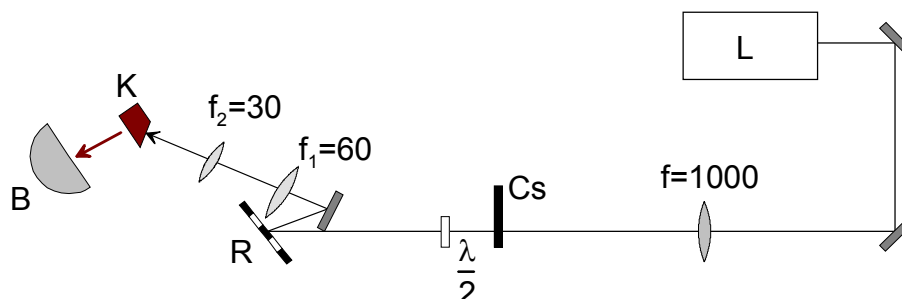
Ezek alapján a kétféle kristályra meghatároztuk azt az optikai elrendezést, ami az általunk kiválasztott frekvenciájú terahertzes impulzusok előállításához a legmegfelelőbb.

A LiNbO_3 kristály esetén 1-2 THz frekvenciájú sugárzás keltéséhez a kristályban az impulzusfront dőlésének $\gamma = 63^\circ$, míg a levegőben $\gamma' = 78^\circ$ nagyságúnak kell lennie. Számolásaim alapján a 2000 vonal/mm karcolatsűrűségű rácsra a gerjesztő impulzusoknak $\alpha = 62^\circ$ beesési szög alatt kell érkeznie (ekkor a diffrakció szöge $\beta = 46^\circ$); a diffrakciót követően, az impulzusfront dőlés egy $f_1 = 60$ mm és egy $f_2 = 30$ mm lencséből (Edmund Industrial Optics katalógus számok NT45-798, illetve NT45-788) álló teleszkóppal növelhető tovább. Az optikai rendszer modellezését elvégeztem a 4.3.1 fejezetben ismertetett eljárással, a szükséges korrekciót alkalmazva. 800 nm középponti hullámhosszú és $\Delta\lambda = 16$ nm sávszélességű impulzusokat feltételezve egyrészt a kristályban fellépő impulzusfrontdőlésre $64,14^\circ$ -os értéket kaptam, másrészt a két szélső hullámhossz komponens közötti eltérés a 65 fs és 68 fs értékek között váltakozott az impulzus keresztmetszete mentén. Összevetve ezt a teleszkóp két lencséje, valamint a kristály anyagának csoportkésés diszperziójából számolt 63 fs időtartamú kiszélesedéssel azt az következtetést lehet levonni, hogy az optikai elemek által megvalósított leképezés elhanyagolható mértékben növeli az impulzusok kiszélesedését. A közel állandó csoportkésés különbség az impulzus két szélső spektrális komponense között az irodalomból ismert technikákkal kompenzálható [80].

A LiTaO_3 kristálynál 1.8 THz frekvenciájú sugárzás esetén γ értékének 68° -nak, míg γ' értékének 80° -nak kell lennie. Ez megvalósítható ugyanazokból az optikai elemekből álló rendszerrel, mint a LiNbO_3 esetén. A kissé különböző értékű létrehozandó impulzusfront dőlést úgy állíthatjuk be, hogy a rácsra más szögben érkeznek a nyalábok. Ebben az esetben a beesési szögre $\alpha = 51^\circ$, a diffrakció szögére $\beta = 55^\circ$ értéknek kell teljesülni. A modellezés során ismét visszakaptam a tervezett impulzusfrontdőlést, másrészt megint egy közel állandó értékű, 70 fs körüli különbséget kaptam a két szélső spektrális komponens csoportkésésére.

Ezen számolásaim alapján állítottuk össze a kísérleti elrendezéseket, amelyet sematikusan mutat a 4.25. ábra mindkét kristály esetén. Egy 200 kHz ismétlődési frekvenciával működő Coherent Rega 900 erősítőrendszer néhány μJ energiájú impulzusai diffraktálódtak egy 2000 vonal/mm karcolatsűrűségű reflexiós rácson, amely létrehozza az impulzusfront dőlést. A kettes kicsinyítési tényezőjű teleszkópon áthaladva a kristály felületére merőlegesen érkeznek a gerjesztő impulzusok. Ezzel a felülettel az adott γ szöget bezáró másik kristályfelületen lépett

ki a terahertzes sugárzás. A mérések során a terahertzes sugárzás átlagteljesítményét hitelesített, Si bolométerrel mértük (Infrared Laboratories Inc. egység szám: 1091 Kompozit típusú Dewar: 1369, előerősítő: 950).



4.25. ábra Kísérleti elrendezés terahertzes sugárzás keltésére, és kristályon kívül való detektálására: a L lézer impulzusait Cs csopper szaggatja, és egy lencse fókuszálja a R reflexiós rácstra, ami létrehozza a nyalábok impulzusfrontjának dőlését. A rács képét a K kristályba egy teleszkópikus rendszer továbbítja. A kristályból kilépő terahertzes sugárzást bolométerrel mértük.

A LiNbO_3 kristállyal, 200 mW pumpáló átlagteljesítmény esetén $2 \mu\text{W}$ átlagteljesítményű terahertzes sugárzást mértünk, amelyből 10 pJ impulzusenergiát és 10 W csúcsteljesítményt számoltunk. A terahertzes nyaláb divergenciája 60 mrad volt vízszintes és függőleges irányban is. A LiTaO_3 kristály esetén két nagyságrenddel kisebb átlagteljesítményű terahertzes sugárzást mértünk. A jelentős eltérésnek több oka lehet. Egyrészt a LiTaO_3 kristálynak nagyobb az abszorpciója a terahertzes tartományban, másrészt pumpáló impulzusok leképezésekor a kristályon a pumpáló foltméret kisebb volt. Ezen kívül a számolt beeső és diffraktált szögpáros nagyon közel esett egymáshoz, így a kísérleti megvalósításkor ettől eltérő szögekkel tudtuk csak a beeső és a rácson diffraktált nyaláb térbeli szeparációját megoldani ($\alpha = 45^\circ$, $\beta = 64^\circ$). Nyilvánvaló, hogy az így megvalósított impulzusfront dőlés eltért a számolt értéktől. A két kristályfelület így nem a megfelelő szögben volt lecsiszolva, azaz a keltett terahertzes sugárzás nem a felületre merőlegesen lépett ki a kristályból, aminek következménye lehetett a lényegesen gyengébb jel.

A terahertzes sugárzás különböző kristályokban való előállítására, valamint karakterizálására irányuló kísérletek jelenleg is folyamatban vannak. A LiNbO_3 kristályra vonatkozó részeredményeinkhez hasonlóan magas értékeket eddig nem mértek szobahőmérsékleten. Az eredmények megvalósulásához az optikai rendszerek megtervezésével és a kísérleti munkában való részvétellel járultam hozzá.

5 ÖSSZEFOGLALÁS

1. *Dinamikus rácsok ultragyors gerjesztésére alkalmas elrendezés modellezését és optimalizálását végeztem el sugárkövetésen alapuló számolásokkal [65].*

Egy holografikus rácsnak reflexiós objektívvel történő leképezésével nagy időfelbontású méréseket lehetővé tevő dinamikus rácsot lehet gerjeszteni femtoszekundumos impulzusokkal. Impulzív módon gerjesztett Raman spektroszkópai mérések demonstrálták, hogy az elrendezés alkalmas nagy és változtatható rácsállandójú dinamikus rács gerjesztésére femtoszekundumos időfelbontás mellett. A kísérleti összeállítás modellezése során azt találtam, hogy az elrendezés 25 fs-nál rövidebb impulzusok használatát engedi meg az időbeli felbontás jelentős romlása nélkül. A kísérletek során kapott eredmények megerősítették modellező számolásaim eredményeit.

2. *Számolásaim alapján elvégeztem ultrarövid impulzusokkal gerjesztett tranzien্স rácsok pumpálási elrendezéseinek összehasonlító vizsgálatát [73].*

Dinamikus rácsot létrehozó optikai eljárások különböző módon állítják elő és irányítják az interferáló nyalábokat a mintára. A vizsgálat többek között választ adott arra, hogy az irodalomban ultragyors folyamatok pumpa-próba mérésére alkalmazott pumpálási elrendezések időbeli felbontásának mik a határai, milyen a nyalábok térbeli átfedésének minősége, valamint arra, hogy a beállítási hibákra való érzékenység hogyan befolyásolja az elrendezések használhatóságát, különös tekintettel a nagy és változtatható rácsállandójú dinamikus rácsok keltésére.

Rámutattam, hogy az 1:1-től eltérő mértékű leképezést megvalósító teleszkópikus rendszer esetén a legjobb időbeli felbontást biztosító lencsetávolságot csak sugárkövetésen alapuló modellszámolásokkal lehet megtalálni.

Megmutattam, hogy a mikroszkóp objektívet tartalmazó rendszernél az időbeli felbontás és a leképező rendszer asztigmatizmusa között szoros kapcsolat áll fenn.

3. *Kidolgoztam egy olyan eljárást, amely lehetővé teszi leképezési hibával rendelkező rendszerek esetén is a csoportkézés meghatározását a geometriai úthossz alapján. Ez a geometriai optikán alapuló módszer megbízható és hatékony eszköz a femtoszekundumos impulzusokat alkalmazó optikai rendszerek térbeli és időbeli tulajdonságainak vizsgálatához. A korrekció szükségességét terahertzes sugárzás keltésére és detektálására alkalmas optikai elrendezések modellezésével demonstráltam [76].*

Egy impulzus spektrális komponenseinek csoportkésését az általuk megtett geometriai úthosszból lehet meghatározni. A csoportkésés számolására általánosan használt képlet csak az aberrációmentes optikai rendszerekre érvényes. Amennyiben a rendszer leképezése nem mentes képalkotási hibáktól, korrigálni kell a sugárkövetésen alapuló számolásokból származó úthosszakat. Megmutattam, hogy bizonyos rendszerek esetén, mint amilyen például a nagy szögdiszperziójú, döntött impulzusfrontú ultrarövid fénynyalábot alkalmazó gerjesztési elrendezés, ennek a korrekciónak az elhagyása komoly hibákat okoz.

4. *A számolásaim alapján elvégeztem hangolható terahertzes impulzusok keltésére és detektálására alkalmas optikai rendszerek elemzését. Ezzel hozzájárultam annak kísérleti demonstrálásához, hogy a döntött impulzusfrontú gerjesztésen alapuló elrendezéssel változtatható frekvenciájú terahertzes síkbullám állítható elő [78].*

Döntött impulzusfrontú ultrarövid fénynyalábot alkalmazó gerjesztési elrendezésekkel fonon polaritonok sebesség-illesztett impulzív gerjesztését valósítottuk meg. Az impulzusfront dőlését a fénynyaláb reflexiós rácson való diffrakciójával lehet kiváltani, ám a kívánt szögdiszperzió leképezését a nemlineáris anyagba többféleképpen lehet megvalósítani. Eltérő optikai elemeket tartalmazó leképező rendszerek modellezését és optimalizálását végeztem el többféle nemlineáris kristályra. Ezen számolások alapján összeállított kísérleti elrendezésekkel terahertzes sugárzást állítottunk elő és detektáltunk GaP, LiNbO₃ és LiTaO₃ kristályokban.

6 SUMMARY

1. *I have performed the modeling and optimization of an optical setup for the excitation of dynamic gratings based on ray-tracing calculations [65].*

The holographic grating-reflecting microscope objective setup can be used for the excitation of dynamic gratings by ultrashort light pulses, making measurements with high time resolution possible. Impulsive stimulated Raman scattering experiments demonstrated that the arrangement is capable of creating dynamic gratings with high and variable grating groove density with femtosecond time resolution. Modeling calculations have shown that the setup can be used for experimental techniques that use pulses as short as 25 fs without significant deterioration of the time resolution. The simulation results were confirmed by experimental work.

2. *Based on my modeling calculations, I have investigated and compared the ability of three optical setups to create dynamic gratings [73].*

Optical techniques involving the generation of dynamic gratings differ in the way in which the interfering beams are created and directed onto the medium. The investigations of pumping arrangements used for pump-probe experiments revealed the limits of the applicable pulse duration, the quality of the spatial overlap of the pulses, the sensitivity of the setups for alignment errors, having a special emphasis on the ability of the setups to create dynamic grating with variable grating groove density.

It was shown that for imaging with a demagnification ratio other than 1:1 with the telescopic system, the optimal position of the lenses corresponding to the best time resolution can only be found by ray-tracing calculations.

It was found that a strong correlation exists between the time resolution and the astigmatism of the setup consisting of a microscope objective.

3. *I have developed a method to determine the group delay of the spectral components of a pulse from their geometrical optical length in case of setups having angular dispersion and imaging errors. This technique, which is based on geometrical optics, is a reliable and effective tool for the investigation of the spatial and temporal characteristics of femtosecond optical systems. I have analyzed optical arrangements used for the generation and detection of terahertz pulses to demonstrate the indispensability of the new technique [76].*

The group delay of the spectral components of a pulse can be determined from their optical path length. The commonly used formula to determine the group delay is only valid for

aberration free optical systems. In case the system has imaging errors, the optical paths lengths obtained from ray-tracing calculations should be corrected. It was shown that the negligence of the correction causes significant errors for certain systems having high angular dispersion, such as the pumping arrangement applying ultrashort pulses with tilted pulse front.

4. *On the basis of my calculations, I have analyzed optical systems used for the generation and detection of tunable terahertz pulses, thus contributing to the experimental demonstration of the capability of the tilted-pulse-front technique to generate plane waves with tunable frequency in the terahertz range [78].*

Phonon-polaritons were generated impulsively with a pumping arrangement using pulses with tilted pulse front. The tilt of the pulse front was introduced by diffraction off a reflective grating; however, there are different ways of imaging the grating onto the nonlinear material. Various imaging systems comprised of different optical elements for different nonlinear crystals were modeled and optimized. On the basis of these calculations the experimental systems were built and velocity-matched efficient ultrashort THz pulse generation was achieved in GaP, LiNbO₃ and LiTaO₃ crystals.

KÖSZÖNETNYILVÁNÍTÁS

Ezúton mondok köszönetet *dr. Hebling János* egyetemi docensnek, aki témavezetőként a tudományos problémák felvetésével és megoldásukhoz nyújtott hasznos tanácsaival, segítségével, a munkához szükséges feltételek biztosításával lehetővé tette a fenti eredmények megszületését.

Köszönetet mondok *dr. Jürgen Kubl*nak (Max-Planck-Institut für Festkörperforschung), aki lehetővé tette, hogy a csoportjában folyó kísérleti munkákban részt vegyek.

Megköszönöm *dr. Almási Gábor* egyetemi adjunktusnak azt, hogy önzetlen segítségére mindig számíthatok.

Megköszönöm *dr. Eberhard Riedle* professzornak (Ludwig-Maximilians-Universität, Lehrstuhl für BioMolekulare Optik) bizalmát és támogatását, amellyel az értekezés elkészítéséhez jelentősen hozzájárult.

Köszönet illeti *Gerburg Schidert* (Karl-Franzens-Universität, Institut für Experimentalphysik) az értekezés kéziratának alapos átolvasásáért és értékes kritikai megjegyzéseiért.

Köszönettel tartozom édesapámnak, *dr. Kozma Lászlónak*, akitől oly sokat tanultam – nem pusztán a fizikáról.

Különösen nagy hálával tartozom családomnak.

IRODALOM

1. G. Steinmeyer, D. H. Sutter, L. Gallmann, N. Matuschek, U. Keller:
Frontiers in ultrashort pulse generation: Pushing the limits in linear and nonlinear optics
Science **286**, 1507-1501 (1999)
2. T. Elsaesser, J. G. Fujimoto, D. A. Wiersma, W. Zinth (eds.):
Ultrafast Phenomena XI
Springer, Berlin, Vol. **63** (1998)
3. M. Born, E. Wolf:
Principles of Optics
Cambridge University Press, Cambridge (1999) pp. 14-24.
4. I. Walmsley, L. Waxer, C. Dorrer:
The role of dispersion in ultrafast optics
Rev. Sci. Instrum. **72**, 1-29 (2001)
5. G. G. Paulus, F. Grasbon, H. Walther, P. Villoresi, M. Nisoli, S. Stagira, E. Priori, S. De Silvestri:
Absolute-phase phenomena in photoionization with few-cycle laser pulses
Nature **414**, 182-184 (2001)
6. E. B. Treacy:
Compression of picosecond light pulses
Phys. Lett. **28A**, 34-35 (1968)
7. E. B. Treacy:
Optical pulse compression with diffraction gratings
IEEE J. Quantum Electron. **5**, 454-458 (1969)
8. R. L. Fork, O. E. Martinez, J. P. Gordon:
Negative dispersion using pairs of prisms
Opt. Lett. **9**, 150-152 (1984)
9. M. R. Topp, G. C. Orner:
Group dispersion effects in picosecond spectroscopy
Opt. Commun. **13**, 276-281 (1975)
10. N. H. Schiller, R. R. Alfano:
Picosecond characteristics of a spectrograph measured by a streak camera/video readout system
Opt. Commun. **35**, 451-454 (1980)
11. J. Ihlemann, A. Helmbold, H. Staerk:
Chromatic time lag in picosecond streak-camera objectives
Rev. Sci. Instrum. **59**, 2502-2503 (1988)
12. S. Szatmári, G. Kühnle
Pulse front and pulse duration distortion in refractive optics, and its compensation
Opt. Commun. **69**, 60-65 (1988)
13. Z. Bor:
Distortion of femtosecond laser pulses in lenses and lens systems
J. Mod. Opt. **35**, 1907-1918 (1988)

14. D. C. Sinclair:
„Optical design software”
in. M. Bass, E. W. Van Stryland (eds.):
Handbook of Optics(2nd edition)
McGraw-Hill Professional Publishing, New York (1994) pp. 34.1-34.26
15. Z. Bor, Z. Horváth:
Distortion of femtosecond pulses in lenses. Wave optical description
Opt. Commun. **94**, 249-258 (1992)
16. M. Kempe, W. Rudolph:
Impact of chromatic and spherical-aberration on the focusing of ultrashort light-pulses by lenses
Opt. Lett. **18**, 137-139 (1993)
17. J. P. Gordon, R. L. Fork:
Optical resonator with negative dispersion
Opt. Lett. **9**, 153-155 (1984)
18. E. Gouliemakis, G. Nersisyan, N. A. Papadogiannis, D. Charalambidis, G. D. Tsakiris, K. Witte:
A dispersionless Michelson interferometer for the characterization of attosecond pulses
Appl. Phys. B **74**, 197-206 (2002)
19. C. Kittel:
Bevezetés a szilárdtestfizikába
Műszaki Könyvkiadó, Budapest (1981) pp. 123-142, 319-359
20. A. S. Barker, R. Loudon:
Response function in the theory of Raman scattering by vibrational and polariton modes in dielectric crystals
Rev. Mod. Phys. **44**, 18-47 (1972)
21. S. Ushioda, J. D. McMullen:
Measurement of the frequency dependence of the phonon damping function by Raman scattering from polaritons in GaP
Solid State Commun. **11**, 299-304 (1972)
22. C. H. Henry, J. J. Hopfield:
Raman scattering by polaritons
Phys. Rev. Lett. **15**, 964- 966 (1965)
23. A. Laubereau, D. Von der Linde, W. Kaiser:
Direct observation of the lifetime of a polariton mode in gallium phosphide
Optics Commun. **7**, 173-175 (1973)
24. T. Juhász, W. E. Bron:
Subpicosecond-resolved polariton decay
Phys. Rev. Lett. **63**, 2385-2388 (1989)
25. R. Merlin:
Generating coherent the THz phonons with light pulses
Solid State Commun. **102**, 207-220 (1997)

-
26. T. Dekorsy, G. C. Cho, H. Kurz:
in. M. Cardona, G. Güntherodt (eds.):
Light Scattering in Solids VIII · Fullerenes, Semiconductor Surfaces, Coherent Phonons
Springer Verlag, Berlin-Heidelberg-New York (2000)
 27. X.-Y. Yan, E. B. Gamble, K. A. Nelson:
Impulsive stimulated scattering: General importance in femtosecond laser pulse interactions with matter, and spectroscopic applications
J. Chem. Phys. **83**, 5391-5399 (1985)
 28. X.-Y. Yan, K. A. Nelson:
Impulsive stimulated scattering: I. General theory
J. Chem. Phys. **87**, 6240-6256 (1987)
 29. D. Grischkowsky, S. Keiding, M. Van Exter, C. Fattinger:
Far-infrared time-domain spectroscopy with terahertz beams of dielectrics and semiconductors
J. Opt. Soc. Am B **7**, 2006-2015 (1990)
 30. M. C. Nuss, P. M. Mankiewich, M. L. O'Malley, E. H. Westerwick, P. B. Littlewood:
Dynamic conductivity and „coherence peak” in $Zn_2Cu_3O_7$ Superconductors
Phys. Rev. Lett. **66**, 3305-3308 (1991)
 31. A. Leitenstorfer, S. Hunsche, J. Shah, M. C. Nuss, and W. H. Knox:
Femtosecond Charge Transport in Polar Semiconductors
Phys. Rev. Lett. **82**, 5140-5143 (1999)
 32. P. R. Smith, D. H. Auston, M. C. Nuss:
Subpicosecond photoconducting dipole antennas
IEEE J. Quantum Electron. **24**, 25-260 (1988)
 33. D. You, R. R. Jones, P. H. Bucksbaum, D. R. Dykaar:
Generation of high-power sub-single-cycle 500-fs electromagnetic pulses
Opt. Lett. **18**, 290-292 (1993)
 34. A. Nahata, A. S. Welington, T. F. Heinz:
A wideband coherent terahertz spectroscopy system using optical rectification and electro-optic sampling
Appl. Phys. Lett. **69**, 2321-2323 (1996)
 35. Q. Wu, X.-C. Zhang:
7 terahertz broadband GaP electro-optic sensor
Appl. Phys. Lett. **70**, 1784-1786 (1997)
 36. Q. Wu and X.-C. Zhang:
Ultrafast electro-optic field sensors
Appl. Phys. Lett. **68**, 1604-1606 (1996)
 37. R. Huber, A. Brodschelm, F. Tauser, A. Leitenstorfer:
Generation and field-resolved detection of femtosecond electromagnetic pulses tunable up to 41 THz
Appl. Phys. Lett. **76**, 3191-3193 (2000)
 38. H.J. Bakker, G.C. Cho, H. Kurz, Q. Wu, X.-C. Zhang:
Distortion of terahertz pulses in electro-optic sampling
J. Opt. Soc. Am. B **15**, 1795-1801 (1998)

-
39. D. H. Auston, K. P. Cheung, J. A. Valdmanis, D.A. Kleinman:
Cherenkov radiation from femtosecond optical pulses in electro-optic media
Phys. Rev. Lett. **53**, 1555-1558 (1984)
 40. T. E. Stevens, J. K. Wahlstrand, J. Kuhl, R. Merlin:
Cherenkov radiation at speeds below the light threshold: Phonon assisted phase matching
Science **291**, 627-630 (2001)
 41. D. A. Kleinman, D. H. Auston:
Theory of electrooptic shock radiation in nonlinear optical media
IEEE J. Quantum Electron. **20**, 964-970 (1984)
 42. G. Porter, M. R. Topp:
Nanosecond flash photolysis and the absorption spectra of excited singlet states
Nature **220**, 1228-1229 (1968)
 43. G. D. Reid, K. Wynne:
„Ultrafast laser technology and spectroscopy”
in. R. A. Meyers (ed.)
Encyclopedia of analytical chemistry
John Wiley & Sons Ltd, Chichester (2000) pp. 13644-13670
 44. J. N. Heyman, K. Unterrainer, K. Craig, J. Williams, M. S. Sherwin, K. Campman, P. F. Hopkins, A. C. Gossard, B. N. Murdin C. J. G. M. Langerak:
Far-infrared pump-probe measurements of the intersubband lifetime in an AlGaAs/GaAs coupled-quantum well
Appl. Phys. Lett. **68**, 3019-3021 (1996)
 45. V. V. Lozovoy, O. M. Sarkisov, A. S. Vetchinkin, S. Ya. Umanskii:
Coherent control of the molecular iodine vibrational dynamics by chirped femtosecond light pulses: theoretical simulation of the pump-probe experiment
Chem. Phys. **243**, 97-114 (1999)
 46. H J. Eichler, P. Günter, D. W. Pohl:
Laser Induced Dynamic Gratings
Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York (1986)
 47. G. P. Wiederrecht, T. P. Doughertz, L. Dhar, K. A. Nelson, D. E. Leairdm A. M. Weiner:
Explanation of anomalous polariton dynamics in LiTaO₃
Phys. Rev. B **51**, 916-931 (1995)
 48. J. Etchepare, G. Grillon, A. Antonetti, J. C. Loulergue, M. D. Fontana G. E. Kugel:
Third-order nonlinear susceptibilities and polariton modes in PbTiO₃, obtained by temporal measurements
Phys. Rev. B **41**, 12362-12365 (1990)
 49. J. Hebling:
Determination of the momentum of impulsively generated phonon polariton
Phys. Rev. B **65**, 092301-1-092301-3 (2002)
 50. A. A. Maznev, T. F. Crimmins, K. A. Nelson:
How to make femtosecond pulses overlap
Opt. Lett. **23**, 1378-1380 (1998)

-
51. O. E. Martinez:
Pulse distortions in tilted pulse schemes for ultrashort pulses
Opt. Commun. **59**, 229-232 (1986)
 52. F. O. Weinberg, N. B. Wood:
J. Sci. Instrum. **36**, 227 (1959)
 53. Z. Bor:
A novel pumping arrangement for tunable single picosecond pulse generation with a N₂ laser pumped distributed feedback dye laser
Opt. Commun. **29**, 103-108 (1979)
 54. J. A. Rogers, M. Fuchs, M. J. Banet, J. B. Hanselman, R. Logan, K. A. Nelson:
Optical system for rapid materials characterization with the transient grating technique: Application to nondestructive evaluation of thin films used in microelectronics
Appl. Phys. Lett. **71**, 225-227 (1997)
 55. Z. Bor, B. Rácz:
Group velocity dispersion in prisms and its applications to pulse compression and travelling-wave excitation
Opt. Commun. **54**, 165-170 (1985)
 56. J. Hebling:
Derivation of the pulse front tilt caused by angular dispersion
Opt. Quant. Electron. **28**, 1759-1763 (1996)
 57. S. Szatmári F. P. Schäfer:
Subpicosecond, widely tunable distributed feedback dye laser
Appl. Phys. B **46**, 305-311 (1988)
 58. J. Hebling, I. Z. Kozma, J. Kuhl:
Diffraction grating-reflecting microscope objective set-up for excitation of dynamic grating by ultrashort light pulses
CLEO 2000, San Francisco, California, USA, May 7-12, 2000 **CMK3**
 59. C. R. Burch:
Reflecting microscopes
Proc. Phys. Soc. (London) **59**, 41-46 (1947)
 60. G. D. Goodno, G. Dadusc, R. J. D. Miller
Ultrafast heterodyne-detected transient-grating spectroscopy using diffractive optics
J. Opt. Soc. Am. B **15**, 1791-1794 (1998)
 61. P. Vöhringer, N. F. Scherer:
Transient grating optical heterodyne detected impulsive stimulated Raman scattering in simple liquids
J. Phys. Chem. **99**, 2684-2695 (1995)
 62. A. A. Maznev, K. A. Nelson, J. A. Rogers:
Optical heterodyne detection of laser-induced gratings
Opt. Lett. **23**, 1319-1321 (1998)
 63. J. Hebling, G. Almási, I. Z. Kozma, J. Kuhl:
Generation of tunable THz radiation by femtosecond tilted-pulse-front excitation
QELS 2002, Long Beach, California, USA, May 19-24, 2002 **QTuD1**

-
64. S. Szatmári, G. Kühnle, P. Simon:
Pulse compression and traveling wave excitation scheme using a single dispersive element
Appl. Opt. **29**, 5372-5379 (1990)
 65. J. Hebling, I. Z. Kozma, J. Kuhl:
A compact high-aperture optical setup for excitation of dynamic gratings by ultrashort light pulses
J. Opt. Soc. Am. B **17**, 1803-1805 (2000)
 66. <http://www.stellarsoftware.com>
 67. R. E. Hopkins, R. Hanau:
US military handbook for optical design
Sinclair Optics, Fairport (1987)
 68. S. C. B. Gascoigne:
Recent advances in astronomical optics
Appl. Opt. **12**, 1419-1429 (1973)
 69. K. Schwarzschild:
Astron. Mitt. Sternwarte Göttingen **10**, 3 (1905)
 70. C. R. Burch:
Semi-aplanat reflecting microscopes
Proc. Phys. Soc. (London) **59**, 47-49 (1947)
 71. P. Erdős:
Mirror anastigmat with two concentric spherical surfaces
J. Opt. Soc. Am. **49**, 877-886 (1959)
 72. G. D. Goodno, V. Astinov, R. J. D. Miller:
Diffraction optics-based heterodyne-detected grating spectroscopy: Application to ultrafast protein dynamics
J. Phys. Chem. B **103**, 603-607 (1999)
 73. I. Z. Kozma, J. Hebling:
Comparative analysis of optical setups for excitation of dynamic gratings by ultrashort light pulses
Opt. Commun. **199**, 407-415 (2001)
 74. V. Astinov, K. J. Kubarych, C. J. Milne, R. J. D. Miller:
Diffraction optics implementation of six-wave mixing
Opt. Lett. **25**, 853-855 (2000)
 75. Z. Zhang, T. Zagi, T. Arisawa:
Ray-tracing model for stretcher dispersion calculation
Appl. Opt. **36**, 3393-3399 (1997)
 76. I. Z. Kozma, G. Almási, J. Hebling:
Geometrical optical modeling of femtosecond setups having angular dispersion
Appl. Phys. B (2002) közlésre elfogadva
 77. Z. Bor, B. Rácz, G. Szabó, M. Hilbert, H. A. Hazim:
Femtosecond pulse front tilt caused by angular dispersion
Opt. Eng. **32**, 2501-2504 (1993)
 78. J. Hebling, G. Almási, I. Z. Kozma, J. Kuhl:
Velocity matching by pulse front tilting for large-area THz-pulse generation
Opt. Express **10**, 1161-1166 (2002)

79. G. Almási, J. Hebling, I. Z. Kozma, J. Kuhl:
Generation and modeling of tunable THz radiation by femtosecond tilted-pulse-front excitation
19th Congress ICO, Optics for the Quality of Life, Florence, Italy, August 25-30, 2002, **261**
80. T. Schmidt- Ullig, S. Szatmári, G. Marowsky, P. Simon:
Generation of tunable sub-picosecond pulses in the UV with a travelling wave dye laser
Appl. Phys. B **68**, 61-65 (1999)