

PÉCSI TUDOMÁNYEGYETEM
Fizika Doktori Iskola
Nemlineáris optika és spektroszkópia program

**Nagy energiájú THz-es impulzusok és ultra
szélessávú IR sugárzások vizsgálata organikus
sókristály emitterekből**

PhD értekezés

Monoszlai Balázs

Témavezetők:

Dr. Fülöp József András
Tudományos főmunkatárs
Pécsi Tudományegyetem

Prof. Dr. Christoph Peter Hauri
Csoportvezető
Paul Scherrer Intézet



PÉCS, 2017

1. Előzmények

A THz-es sugárzás fontossága jelentősen megnőtt az utóbbi évtizedekben, a fejlődő lézer- és THz-es tudományok miatt. A THz-es sugárzásnak számos tervezett és már megvalósított alkalmazása van különböző területeken, mint például az ipar [1], biztonság és védelem [2], gyógyászat [3] és a tudományos kutatások úgymint az anyag "irányítása" [4] vagy elektrongyorsítás [5]. A THz-es forrásfejlesztés az alapja e tanulmányoknak. Célja, hogy képesek legyünk egyszerű, könnyen hozzáférhető forrásokat létrehozni, amelyek paraméterei fölött nagyfokú befolyással bírunk. A forrásfejlesztés még mindig egy gyorsan haladó intenzív fejlesztés alatt lévő területe a THz-es tudományoknak

Az organikus sókristályok (OSK) a kristályok egy olyan csoportja amely tagjai szerves elemekből épülnek fel és néhányuk extrém nagy nemlineáris együttthatóval rendelkezik (pl. DAST 490 ± 90 pm/V, 1535 nm-en pumpálva [6]). Használhatóak mind THz keltésre az optikai egyenirányítás révén és THz detektálásra az elektrooptikai effektus segítségével. Legközismertebb OSK típusok a DAST, DSTMS, OH1, HMQ-TMS és BNA kristályok. Habár néhány tulajdonságuk hasonló, különböző karakterisztikával bírnak. Tipikus kristályméretnek tekinthető a néhány mm ami pár száz μ m-es vastagsággal párosul. Erősen kettőtörő kristályok, ezért a THz keltés kollineáris fázisillesztéssel számos IR hullámhosszon elérhető. Számos erős abszorpciós csúccsal rendelkeznek a THz-es tartományban, ami a komplex molekula szerkezetükre vezethető vissza [7]. A

keltett THz-es spektrum tipikusan 0.1 THz-nél indul és 3 THz-ig vagy 5 THz-ig terjed, de 15 THz-et elérő sávzélességet is demonstráltak már [8] [9] [10]. A THz-es impulzus energiák tipikusan a néhány tíz μ -os tartományba esnek de kiemelkedően magas 0.9 mJ-t is elértek már [11]. Az energia konverziós hatások általában 1-3% között van amennyiben megfelelő a pumpáló hullámhossz és intenzitás [9] [11].

2. Célkitűzések és módszerek

Akár csak bármilyen más forrás OSK-ok szintén különböző hátrányoktól szenvednek. Az elsődleges cél az volt, hogy kísérleti úton ellenőrizzünk alternatív lehetőségeket, amik megoldhatják a felmerült problémákat vagy kihasználhatják az eddig kihagyott lehetőségeket/tulajdonságokat. A DAST és DSTMS

OSK-okban keltett THz-es és módosított IR sugárzásokat vizsgáltuk és karakterizáltuk az alábbi esetekben:

Nem szokványos pumpáló hullámhossz: Az 1500 nm környékén működő nagyenergiájú pumpáló források komplexitása és nehéz hozzáférhetősége miatt megpróbáltuk azt egy könnyebben hozzáférhető "hétköznapi", 800 nm-en működő Ti:zafírral lézerrel helyettesíteni. Az eredményeket összehasonlítottuk más könnyen hozzáférhető forrásokkal, valamint számításokkal kiegészíteni, hogy megkapjuk a várható THz-es spektrumot az ideális hullámhosszak környékén történő pumpálás esetén.

Kibővített kristály felület: Összehasonlítottunk egy osztott struktúrájú kristály (kisebb orientált kristály szegmensek mozaik elrendezésben) és egy

egykristályban keltett nyalábok tulajdonságait. Amit az egykristályok növesztése és megmunkálása során fellépő nehézségek inspiráltak.

Pumpáló nyaláb újrahasznosítása: Kísérletileg megvizsgáltuk egy DAST kristályon áthaladó pumpáló nyaláb tulajdonságait mint extrém sávszélességgel rendelkező potenciális IR forrás.

3. Tézispontok

- 1) Demonstráltuk, hogy a DAST (4×10^{-5}) és DSTMS (6×10^{-5}) organikus sókristályok hatásfoka összemérhető más, optikai egyenirányításon alapuló THz-es forrásokéval, mint a ZnTe (3.1×10^{-5}) vagy a LiNbO_3 (11.6×10^{-5}) kristályok, amikor a Titán-zafír lézerek hullámhosszán vannak pumpálva. [12]
- 2) Megmutattuk, hogy a keltett THz-es sugárzás spektruma kibővült a magasabb THz-es frekvenciák felé, amikor a DAST vagy DSTMS organikus sókristályok az optimális 680-740 nm körüli hullámhosszokkal voltak pumpálva a Titán-zafír lézerek hullámhossza helyett, köszönhetően a spektrálisan szélesebb fázisillesztési tulajdonságaiknak. [12]

- 3) Kísérleti úton bizonyítottuk, hogy egy osztott struktúrájú kristály (kisebb orientált kristály szegmensek mozaik elrendezésben) esetén, a belőle származó különálló nyalábok képesek a magas-fokú koherens interferenciára, amely a közel egyciklusú THz-es impulzus hullámformájában valamint az $M^2 \approx 1.8$ értékű nyaláb faktorral rendelkező Gauss-szerű látható torzulásoktól mentes fókusz foltban nyilvánul meg. Ezért egy osztott struktúrájú kristályban keltett THz-es nyaláb és egy egykristályban keltett THz-es nyaláb tér és időbeli tulajdonságai technikailag azonosak a fókuszpontok közelében. [13]
- 4) Kísérletileg megmutattuk, hogy a DAST organikus sókristályon áthaladó pumpáló infravörös nyaláb extrém mértékű spektrális kiszélesedésen mehet

keresztül és elérheti a ~ 1.5 -oktávós spektrális sávzélességet lefedve ezzel az $1.2\ \mu\text{m}$ és $3.5\ \mu\text{m}$ között tartományt. [14]

4. Publikációs jegyzék

1. Az eljárás témakörében készült publikációk

B. Monoszlai, C. Vicario, M. Jazbinsek, C.P. Hauri: “High energy terahertz pulses from organic crystals: DAST and DSTMS pumped at Ti:sapphire wavelength”, *Optics Letters*, Vol. 38, Issue 23, pp. 5106-5109 (2013)

Carlo Vicario, **B. Monoszlai**, and Christoph P. Hauri: “GV/m Single-Cycle Terahertz Fields from a Laser-Driven Large-Size Partitioned Organic Crystal”, *Phys. Rev. Lett.* 112, 213901, (2014)

C. Vicario, **B. Monoszlai**, G. Arisholm, and C.P. Hauri: “Generation of 1.5-octave intense infrared pulses by nonlinear interactions in DAST crystal”, *Journal of Optics*, Vol. 17, 094005, (2015)

2. Az eljárás témakörében készült nem referált konferencia absztraktok

-

3. Az eljárás témakörén kívül készült publikációk

C. Vicario, **B. Monoszlai**, Cs. Lombosi, A. Mareczko, A. Courjaud, J. A. Fülöp, C. P. Hauri: "Pump pulse width and temperature effects in lithium niobate for efficient THz generation", *Optics Letters*, Vol. 38, Issue 24, pp. 5373-5376 (2013)

P. N. Juranic, A. Stepanov, P. Peier, C. P. Hauri, R. Ischebeck, V. Schlott, M. Radovic, C. Erny, F. Ardana-Lamas, **B. Monoszlai**, I. Gorgisyan, L. Patthey, R. Abela: "A scheme for a shot-to-shot, femtosecond-resolved pulse length and arrival time measurement of free electron laser x-ray pulses that overcomes the time jitter problem between the FEL and the laser", *JINST*, Vol. 9, pp. P03006 (2014)

A. Trisorio and M. Divall and **B. Monoszlai** and C. Vicario and C. P. Hauri: "Intense sub-two-cycle infrared pulse generation via phase-mismatched cascaded nonlinear

interaction in DAST crystal”, *Optics Letters*, Vol. 39, Issue 9, pp. 2660-2663 (2014)

P. N. Juranić, A. Stepanov, R. Ischebeck, V. Schlott, C. Pradervand, L. Patthey, M. Radović, I. Gorgisyan, L. Rivkin, C. P. Hauri, **B. Monozslai**, R. Ivanov, P. Peier, J. Liu, T. Togashi, S. Owada, K. Ogawa, T. Katayama, M. Yabashi, and R. Abela: “High-precision x-ray FEL pulse arrival time measurements at SACLA by a THz streak camera with Xe clusters”, *Optics Express*, Vol. 22, Issue 24, pp. 30004-30012 (2014)

C. Vicario, **B. Monozslai**, M. Jazbinsek, S.-H. Lee, O-P. Kwon and C. P. Hauri: “Intense, carrier frequency and bandwidth tunable quasi single-cycle pulses from an organic emitter covering the Terahertz frequency gap”, *Scientific Reports* 5, Article number: 14394 (2015)

J. A. Fülöp, Gy. Polónyi, **B. Monozslai**, G. Andriukaitis, T. Balciunas, A. Pugzlys, G. Arthur, A. Baltuska, and J. Hebling: “Highly efficient scalable monolithic semiconductor

terahertz pulse source”, Optica Vol. 3, Issue 10, pp. 1075-1078 (2016)

Gy. Polónyi, **B. Monoszlai**, G. Gäumann, E. J. Rohwer, G. Andriukaitis, T. Balciunas, A. Pugzlys, A. Baltuska, T. Feurer, J. Hebling, and J. A. Fülöp: “High-energy terahertz pulses from semiconductors pumped beyond the three-photon absorption edge”, Optics Express Vol. 24, Issue 21, pp. 23872-23882 (2016)

4. Az eljárás témakörén kívül készült nem referált konferencia absztraktok

-

5. Referenciák

- [1] S. Krimi, J. Klier, J. Jonuscheit, G. von Freymann, R. Urbansky és R. Beigang, „Highly accurate thickness measurement of multi-layered automotive paints using terahertz technology,” *Applied Physics Letters*, %1. kötet109, %1. szám2, p. 021105, 2016.
- [2] S. R. Murrill, E. L. Jacobs, S. K. Moyer, C. E. Halford, S. T. Griffin, F. C. D. Lucia, D. T. Petkie és C. C. Franck, „Terahertz imaging system performance model for concealed-weapon identification,” *Appl. Opt.*, %1. kötet47, %1. szám9, pp. 1286-1297, Mar 2008.
- [3] Y. C. Sim, J. Y. Park, K.-M. Ahn, C. Park és J.-H. Son, „Terahertz imaging of excised oral cancer at frozen temperature,” *Biomed. Opt. Express*, %1. kötet4, %1. szám8, pp. 1413-1421, Aug 2013.
- [4] T. Kampfrath, K. Tanaka and K. A. Nelson, "Resonant and nonresonant control over matter and light by intense terahertz transients," *Nat. Photonics*, vol. 7, pp. 680-690, 2013.
- [5] E. A. Nanni, W. R. Huang, K.-H. Hong, K. Ravi, A. Fallahi, G. Moriena, R. J. Dwayne Miller és F. X. Kärtner, „Terahertz-driven linear electron

acceleration,” Nature Communications, %1. kötet6, pp. 8486--, #oct# 2015.

- [6] A. Schneider, „Generation and detection of terahertz pulses in organic crystals,” in PhD thesis, Zürich, Swiss Federal Institute of Technology, 2005.
- [7] P. D. Cunningham és L. M. Hayden, „Optical properties of DAST in the THz range,” Opt. Express, %1. kötet18, %1. szám23, pp. 23620-23625, Nov 2010.
- [8] C. Ruchert, C. Vicario és C. P. Hauri, „Scaling submillimeter single-cycle transients toward megavolts per centimeter field strength via optical rectification in the organic crystal OH1,” Opt. Lett., %1. kötet37, pp. 899-901, Mar 2012.
- [9] C. P. Hauri, C. Ruchert, C. Vicario és F. Ardana, „Strong-field single-cycle THz pulses generated in an organic crystal,” Applied Physics Letters, %1. kötet99, %1. szám16, p. 161116, 2011.
- [10] C. Vicario, B. Monoszlai, M. Jazbinsek, S. H. Lee, O. P. Kwon és C. P. Hauri, „Intense, carrier frequency and bandwidth tunable quasi single-cycle pulses from an organic emitter covering the Terahertz frequency gap,” Scientific Reports, %1. kötet5, pp. 14394--, #sep# 2015.
- [11] C. Vicario, A. V. Ovchinnikov, S. I. Ashitkov, M. B. Agranat, V. E. Fortov és C. P. Hauri, „Generation of

0.9-mJ THz pulses in DSTMS pumped by a Cr:Mg₂SiO₄ laser," Opt. Lett., %1. kötet39, pp. 6632-6635, Dec 2014.

- [12] B. Monoszlai, C. Vicario, M. Jazbinsek és C. P. Hauri, „High-energy terahertz pulses from organic crystals: DAST and DSTMS pumped at Ti:sapphire wavelength," Opt. Lett., %1. kötet38, %1. szám23, pp. 5106-5109, Dec 2013.
- [13] C. Vicario, B. Monoszlai és C. P. Hauri, „GV/m Single-Cycle Terahertz Fields from a Laser-Driven Large-Size Partitioned Organic Crystal," Phys. Rev. Lett., %1. kötet112, p. 213901, May 2014.
- [14] C. Vicario, B. Monoszlai, G. Arisholm és C. P. Hauri, „Generation of 1.5-octave intense infrared pulses by nonlinear interactions in DAST crystal," Journal of Optics, %1. kötet17, %1. szám9, p. 094005, 2015.