

PHD ÉRTEKEZÉS

**A LiNbO_3 nemlineáris optikai
tulajdonságainak vizsgálata Z-scan módszerrel**

Pálfalvi László

TÉMAVEZETŐ:

DR. HEBLING JÁNOS

A FIZIKAI TUDOMÁNY KANDIDÁTUSA

**MTA-PTE NEMLINEÁRIS OPTIKAI ÉS KVANTUMOPTIKAI
KUTATÓCSOPORTJA**

**PÉCSI TUDOMÁNYEGYETEM
FIZIKAI INTÉZET
KÍSÉRLETI FIZIKA TANSZÉK**

**PÉCS
2003**

Tartalomjegyzék

Bevezetés.....	3
I. Tudományos előzmények	
1. A LiNbO ₃ jellemzése.....	5
1.1 Az anizotrópia.....	5
1.2. A LiNbO ₃ nemlineáris optikai tulajdonságai, alkalmazásai.....	8
1.3 A sztöchiometrikus és a kongruens LiNbO ₃	12
1.4 Fényindukált törésmutató-változások LiNbO ₃ -ban.....	14
2. A Z-scan módszer.....	18
2.1 A vizsgálat eszköze: a Gauss-nyaláb.....	18
2.2 A Z-scan eljárás.....	21
2.3 A nemlineáris abszorpció hatása.....	29
2.4 A Z-scan módszer alkalmazásai.....	30
II. Célkitűzések.....	32
III. Tudományos eredmények	
3. A Z-scan módszerrel kapcsolatos elméleti eredmények.....	33
3.1 Kritikai észrevételek, megjegyzések a különböző Z-scan elméletekkel kapcsolatban.....	33
3.2 Saját elméleti modellszámítások eredményei.....	36
3.3 Az abszorpció hatása.....	39
4. Kísérleti eredmények.....	41
4.1 A vizsgált minták, felhasznált eszközök.....	41
4.2 A fotorefraktív LiNbO ₃ minták.....	45
4.3 A nem fotorefraktív minták.....	49
4.4 A termooptikai effektus.....	63

4.5 A termooptikai effektus vizsgálatára alkalmas számítások és azok eredménye.....	74
4.6 A mérés során felmerülő nehézségek.....	78
5. Az eredmények hasznosítása.....	81
IV. Az eredmények összefoglalása.....	82
Irodalomjegyzék.....	88
Köszönetnyilvánítás.....	94

Bevezetés

Az optikának napjainkban igen népszerű és sokak által művelt ága a nemlineáris optika. Az egyik legismertebb és széles körben használt nemlineáris és elektrooptikai anyag a LiNbO_3 (LN). Optikai frekvencia-átalakítóként, holografikus tárolóként, piezoelektromos szűrőként egyaránt használják tömb és hullámvezető formában is.

Ph.D. hallgatóként részt vettem egy projektben, melynek célja periodikusan polarizált LN (PPLN) kristályok hazai előállításának optikai frekvencia-átalakítóknál történő alkalmazásához. Ehhez a kristályok koercitív erejével és a nemlineáris optikai tulajdonságaival kapcsolatos átfogó vizsgálatok elvégzésére van szükség. A koercitív erő meghatározása a polarizálási folyamat szempontjából, a nemlineáris optikai tulajdonságok vizsgálata pedig az alkalmazás szempontjából fontos. A LN-ban bármilyen eredetű fényindukált törésmutató-változás az optikai frekvencia-átalakítás szempontjából hátrányos, ugyanis a nyaláb torzulásához vezet. Munkám során a LN-ban indukálódott törésmutató-változásokat vizsgáltam. A különböző összetételű LN kristályok növesztése az SZFKI Kristálytechnológiai Osztályán történt. Kísérleti munkám túlnyomó részét a PTE Kísérleti Fizika Tanszékén, kisebb hányadát pedig az SZFKI-ban végeztem. Értekezésem célja a vizsgálatok, és azok eredményeinek a bemutatása, értelmezése.

Az anyagban az öt erő fényintenzitás hatására bekövetkező törésmutató-változásnak többféle eredete lehet, ilyen pl. a Kerr-effektus, a fotorefrakció vagy a termooptikai effektus. 1991-ben M. SHEIK-BAHAE és szerzőtársai mérési eljárást dolgoztak ki optikai nemlinearitások nagy érzékenységgel történő meghatározására [1]. Ez annyit jelent, hogy a MW/cm^2 -es intenzitás szinten $\Delta n = 10^{-5}$ -es törésmutató-változás mutatható ki. A módszer a „Z-scan” nevet viseli, ahol a „scan” szó a minta szkennelésére utal, ami fókuszált Gauss-nyaláb fókusz síkjának a környezetében történik. Az alapcikkben [1] ismertetett módszer nagyon korlátozott esetekben teszi lehetővé az alkalmazhatóságot. A módszer érvényességi körének kiterjesztése azóta is folyamatban van.

A „Tudományos előzmények” című fejezetet a LN optikai tulajdonságaival, az anyag előállításával kapcsolatos tudnivalók ismertetésével indítom. A fejezetben szó esik a nemlineáris frekvencia-átalakításról, mint alkalmazási területről, ugyanis ez

implikálja a célkitűzést. Ezután a LN kristályban fény által indukált törésmutató-változásokról szólok, melyek okozói lehetnek a nyalábtorzulásoknak.

A fejezet második alfejezete a vizsgálati módszerre vonatkozik. Mindenekelőtt a Gauss-nyalábokkal kapcsolatos ismereteket foglalom össze, amelyek szükségesek lesznek a későbbiekben. Ezután ismertetem a vizsgálati módszert irodalmi áttekintés alapján, és szót ejtek néhány alkalmazási területről is.

A célok megfogalmazása után következik a „Tudományos eredmények” ismertetése. A publikációkban az egyes szerzők eredményei között nincs teljes összhang, ha úgy tetszik két táborba sorolhatók a szerzők. Ezért érdekesnek tűnik az egyes elméletek összehasonlító elemzése. Ezután a saját megfontoláson alapuló modellnek és annak eredményeinek ismertetése következik.

Kísérleti eredményeim képezik a dolgozat legterjedelmesebb részét. Ezen rész bevezető fejezetében a mérési elrendezésről, a felhasznált eszközökről és a mintákról szólok. Olyan egymást kiegészítő méréseket végeztem az egyes mintákon, amelyek alapján egyértelműen eldönthető, hogy milyen effektusnak tulajdonítható a bennük indukálódott törésmutató-változás. A vizsgálatok eredménye alapján a mintákat alapvetően két csoportra oszthatjuk: fotorefraktívakra, illetve olyanokra, melyekben a törésmutató-változásnak termikus eredete van. Összefüggést állapítok meg a minták hovatartozása és kémiai összetétele között. Az eredményeket nem a mérések elvégzésének időrendi sorrendjében ismertetem, hanem ahogy a logikai felépítés megkívánja. Szót ejtek a mérés nehézségeiről is.

A „Tudományos eredmények” c. részben olyan elméleti modellt is ismertetek, amellyel a tisztán termooptikai effektust mutató minták abszorpciós együtthatói meghatározhatók.

Dolgozatomat a klasszikus felépítéshez híven a mérések és számítások során nyert eredmények összefoglalásával zárom.

I. Tudományos előzmények

1. A LiNbO₃ jellemzése

1.1. Az anizotrópia

A LN trigonális szerkezetű kristály. Az egyik jellemzője az anyagnak, hogy kettősen törő, ami számos alkalmazásnak az alapja. A kettős törés a kristályszerkezettel szoros kapcsolatban van. A jelenségnek a magyarázata elektrodinamikai alapokon nyugszik. A kettős törésért felelős tulajdonság az anizotrópia. A közegben az elektromos eltolás és a térerősség között a

$$\mathbf{D} = \hat{\epsilon}\mathbf{E} \quad (1.1)$$

kapcsolat van, ahol $\hat{\epsilon}$ a szimmetrikus dielektromos tenzor. A kettős törés jelenségének és az anizotrópia egyéb fontos következményeinek a megértéséhez a Maxwell-egyenletek útján juthatunk el. A részletes levezetés több helyen is megtalálható [2-4], ezért ezt most mellőzöm.

Tekintsünk egy végtelen kiterjedésű homogén, nem mágneses, anizotrop közeget, melyben az (1.1)-ben leírt kapcsolat érvényes. A forrásmentes Maxwell-egyenletek megoldásai a jól ismert síkhullámok, melyek az (1.1) feltétel figyelembe vételével az alábbi érdekes tulajdonságokat mutatják.

Az egyik érdekesség, hogy a hullámterjedés iránya (\mathbf{k}) nem egyezik meg az energiaterjedés irányával (\mathbf{S}), hanem pontosan akkora szöget zárnak be egymással, mint az elektromos eltolás és a térerősség. Ezt a szöget walk-off szögnek nevezik, amelyet az elektromos térerősség iránya, és a dielektromos tenzor határoz meg. Az energiaterjedés sebessége sem egyezik meg a hullám fázissebességével, közöttük a walk-off szög koszinusza teremt kapcsolatot. Továbbá a \mathbf{k} , \mathbf{E} , \mathbf{D} , \mathbf{S} (hullámvektor, térerősség, elektromos eltolás, Poynting-vektor) vektorok valamennyien merőlegesek a \mathbf{H} mágneses térerősségvektorra.

A másik következmény a síkhullám fázissebességére vonatkozik, melyet a következő, ún. Fresnel-egyenlet ad meg:

$$\sum_{i=1}^3 \frac{u_i^2}{v_i^2 - v^2} = 0. \quad (1.2)$$

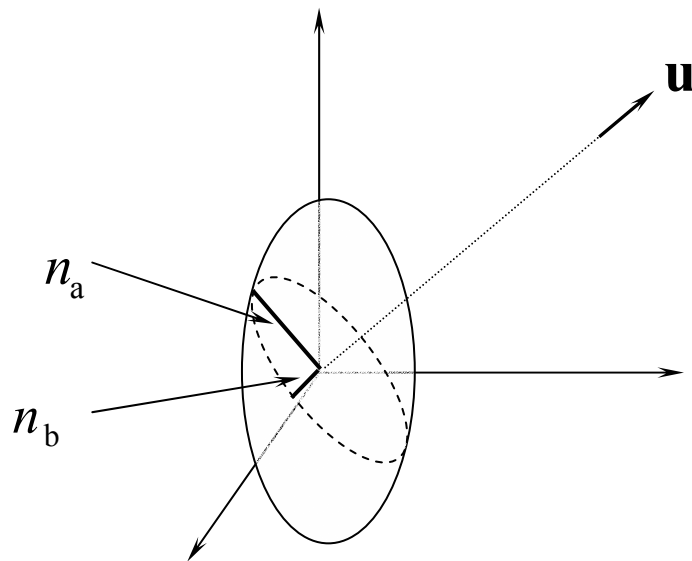
A fenti egyenletben u_i a hullámterjedés irányvektorának az i -edik komponense a főtengetelyrendszerben, v_i az ún. fősebesség, ami $v_i = c/\sqrt{\varepsilon_i/\varepsilon_0}$ módon határozható meg, ahol c a vákuumbeli fénysebesség. Főtengetelyrendszerben az $\hat{\varepsilon}$ tenzornak csak diagonális elemei vannak, ezeket jelöljük $\varepsilon_1 = \varepsilon_{11}, \varepsilon_2 = \varepsilon_{22}, \varepsilon_3 = \varepsilon_{33}$ módon, általánosan ε_i -vel. A Fresnel-egyenletben v a hullámterjedés sebessége az adott irányban. Ennek a negyedfokú egyenletnek minden terjedési irányra két pozitív valós megoldása van. Ez azt jelenti, hogy a kristályban egy adott irányban történő terjedéshez két különböző terjedési sebesség tartozik. Ez a kettős törés magyarázata. A két terjedési sebességhez tartozó polarizációk merőlegesek egymásra.

A legáltalánosabb esetben, amikor is mindhárom fősebesség különbözik ($\varepsilon_1 \neq \varepsilon_2 \neq \varepsilon_3$), akkor kéttengelyű, amennyiben két fősebesség azonos, akkor egytengelyű, ha pedig mindhárom fősebesség egyező, izotrop közegről beszélünk. A kristályoptikai tengely pedig az a kitüntetett irány, melyben mindkét, egymásra merőleges polarizáció azonos fázissebességgel terjed.

Kettősen törő anyagokban a hullámterjedés szemléletessé tehető a törésmutató ellipszoid bevezetésével. Mivel $\hat{\varepsilon}$ szimmetrikus tenzor, ezért a

$$\sum_{i,j=1}^3 \frac{\varepsilon_0}{\varepsilon_{ij}} x_i x_j = 1 \quad (1.3)$$

összefüggés teljesül, ami egy ellipszoid felületet ír le, melynek tengelyei egybeesnek a főtengetelyekkel. A tengelymetszetek az $n_i = \sqrt{\varepsilon_i/\varepsilon_0}$ főtörésmutatók, az ellipszoidot pedig törésmutató-ellipszoidnak nevezzük. Adott irányban történő terjedés esetén a fázissebességeket a következő módon határozzuk meg a törésmutató ellipszoid segítségével. A terjedési irányra merőlegesen felvesszünk egy síkot, mely tartalmazza a törésmutató ellipszoid középpontját. Ez a sík kimetsz egy ellipszist, melynek főtengetelyei n_a illetve n_b (lásd az 1.1. ábrát!). A két merőleges polarizáció sebessége pedig $v_a = c/n_a$ illetve $v_b = c/n_b$.



1.1. ábra. A fény terjedésének szemléltetése anizotrop közegben a törésmutató ellipszoid segítségével

Egytengelyű kristályban a törésmutató-ellipszoid forgási ellipszoid, melynek szimmetriatengelye a kristályoptikai tengely. Ennek az a következménye, hogy a törésmutató-ellipszoidból kimetszett ellipszis egyik tengelye független a terjedési iránytól. Ezt ordinárius törésmutatónak hívjuk, a polarizációt pedig, melyhez ez a törésmutató tartozik, ordinárius polarizációnak. A másik törésmutatót, illetve polarizációt extraordináriusnak hívjuk. Az extraordinárius törésmutató értéke viszont függ a terjedési iránytól (amit az optikai tengellyel bezárt θ szöggel jellemezhetünk, $n_e(\theta)$ -val jelöljük). Az ordinárius törésmutatóra illetve az extraordinárius törésmutató maximális értékére pedig az n_o illetve n_e jelöléseket használjuk (ezek a törésmutató-ellipszoid főtengeleik félhosszai). Az adott terjedési irányhoz tartozó extraordinárius törésmutatót pedig az

$$\frac{1}{n_e(\theta)^2} = \frac{\sin^2\theta}{n_e^2} + \frac{\cos^2\theta}{n_o^2} \quad (1.4)$$

összefüggéssel adhatjuk meg. Amennyiben $n_o < n_e$, akkor pozitív, ellenkező esetben negatív egytengelyű kristályról beszélünk.

A hétféle kristályrendszer jellemzői egyértelműen meghatározzák a kettős törés jellegét. A köbös kristályok optikailag izotropok, nem kettőstörők. A trigonális, a hexagonális és a tetragonális kristályok egytengelyűek. A triklin, az ortorombos és a monoklin kristályok kéttengelyűek. A LN negatív kettőstörő kristály, törésmutatói különösen nagyok, értékük $n_e = 2,242\ 39$ illetve $n_o = 2,332\ 63$, $T = 300\ \text{K}$ hőmérsékleten, $\lambda = 514\ \text{nm}$ hullámhosszon [5].

1.2. A LiNbO₃ nemlineáris optikai tulajdonságai, alkalmazásai

Ha polarizálható közegben elektromos tér van jelen, akkor a polarizáció és az elektromos térerősség között a

$$\mathbf{P} = \varepsilon_0 \chi \mathbf{E} \quad (1.5)$$

összefüggés áll fenn. Ez az egyenlet azonban csak „kis” térerősségek esetén érvényes, a térerősséget növelve érvényét veszti ez a lineáris közelítés. Ekkor a polarizációt, mint a térerősség függvényét sorba fejthetjük, és a közelítés mértékének megfelelően véges számú sorfejtési tagot veszünk figyelembe.

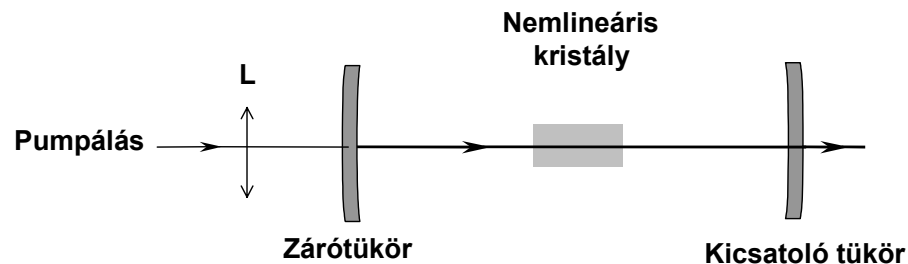
$$\mathbf{P} = \varepsilon_0 (\chi^{(1)} + \chi^{(2)} \mathbf{E} + \chi^{(3)} \mathbf{E}^2 + \dots) \mathbf{E}. \quad (1.6)$$

Vannak anyagok, melyek már viszonylag gyenge elektromos tér hatására is nemlineáris viselkedést mutatnak a polarizációban, ezeket hívják nemlineáris optikai anyagoknak. A sorfejtés különböző tagjai felelősek a különböző nemlineáris optikai folyamatokért. A lineáris tag együtthatója a korábban már definiált törésmutatóval van kapcsolatban. Mivel $\chi^{(1)} + 1 = \varepsilon / \varepsilon_0$, a törésmutató $n = \sqrt{\chi^{(1)} + 1}$. Ezt a későbbiekben gyakran lineáris törésmutató néven fogom emlegetni, jelölésére pedig az n_0 szimbólumot tartom fenn. Anizotrop esetben pedig $\chi^{(1)}$ megfelelő főtengely-rendszerbeli elemei szerepelnek a fő törésmutatók kifejezéseiben.

Valamennyi nemlineáris optikai folyamat leírásánál a következő módon járunk el. Az (1.6) egyenletben szereplő polarizációt felbontjuk lineáris tag és nemlineáris

tagok összegére ($\mathbf{P} = \varepsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E} + \mathbf{P}_{nl}$). A problémát a Maxwell-egyenletek irányából közelítve olyan hullámeqyenletet kapunk, melynek forrása a nemlineáris polarizáció. Az egyenletek levezetését és a különböző nemlineáris optikai folyamatok vizsgálatát mellőzöm ugyanis jelen dolgozatnak nem ez a célja.

A másodrendű nemlineáris optikai folyamatok során a nemlineáris polarizáció a sorfejtés második tagjával egyezik meg. Ez a tag felelős az összeg- és különbség frekvencia, a másodharmonikus, a magasabb harmonikusok közvetett úton történő keltéséért továbbá az optikai parametrikus erősítésért (OPA). Ha ω_1 és ω_2 (kör)frekvenciájú komponens is jelen van a nemlineáris közegben, akkor létrejöhet az $\omega_1 + \omega_2$ összeg- illetve az $\omega_1 - \omega_2$ különbségfrekvencia is. Ha az ω_1 frekvenciájú komponens intenzitása sokkal nagyobb az ω_2 frekvenciájú komponens intenzitásánál, akkor ez utóbbi komponens intenzitása jelentősen megnőhet. Ez a folyamat az OPA. Az optikai parametrikus oszcillátor (OPO) egy rezonátorba helyezett nemlineáris kristályból áll, melyben parametrikus erősítés történik.



1.2. ábra. Az OPO sematikus vázlata

Az elrendezés vázlata a 1.2. ábrán látható. Gyakran azonban az ettől eltérő ún. gyűrűrezonátort használják, melynek előnye, hogy megoldható az, hogy a fény csak egy irányba járja át a kristályt. Az ω_2 komponens a visszacsatolás révén az anyagon többszörösen áthaladva jelentősen erősödhet. Az irodalomban az ω_1 frekvenciájú komponens „pump”-nak (pumpálás), a visszacsatolt ω_2 komponens „signal”-nak (jel) az $\omega_1 - \omega_2$ komponens pedig „idler”-nek nevezzük. A parametrikus folyamat során fenn kell állnia az energia megmaradással is összhangban lévő

$$\omega_p = \omega_s + \omega_i \quad (1.7)$$

összefüggésnek, ahol a p, s, i indexek a pumpra, signalra illetve idlerre vonatkoznak. Ha a hullámszámokat a szokásos $k_j = \frac{n(\omega_j) \cdot \omega_j}{c}$ módon definiáljuk, ahol j = p, s, i, akkor elméletileg igazolható, hogy a frekvencia-átalakítás hatásfoka a parametrikus erősítés során arányos a

$$\frac{\sin^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)}{\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)^2} \quad (1.8)$$

mennyiséggel [6], ahol L a nemlineáris anyagban megtett távolság, valamint

$\Delta k = k_p - k_s - k_i$. Az (1.8) összefüggésből egyértelműen látszik, hogy a hatásfok akkor maximális, ha $\Delta k = 0$, azaz

$$k_p = k_s + k_i. \quad (1.9)$$

Ezt a feltételt fázisillesztésnek hívjuk, ami kifejezi az impulzus-megmaradást is. Általános esetben a fázisillesztési feltételben a hullámszámokat hullámvektorokkal kell helyettesíteni, az (1.9) egyenlet viszont valamennyi hullámvektort egyirányúnak tekint (kolineáris fázisillesztés). A fázisillesztés megvalósítása a kettős törés kihasználásával lehetséges. Mint láttuk, anizotrop közegben a hullám terjedési sebessége függ a terjedési iránytól, azon kívül a polarizációtól. Egytengelyű kristályban csak az extraordinárius polarizációjú hullám terjedési sebessége függ az iránytól. A pump, signal és idler polarizációjának, valamint a közegben egy alkalmas irány [(1.4) egyenlet] megválasztásával elérhető, hogy az (1.7) és az (1.9) egyenletek egyaránt teljesüljenek adott frekvenciájú pumpálás és jel esetén. Amennyiben a fázisillesztés szöge [(1.4) szerint] nem 90° kritikus fázisillesztésről beszélünk. Az ordinárius és az extraordinárius törésmutatók függenek a hőmérséklettől, ezért a hőmérséklet alkalmas megválasztásával bizonyos hullámhosszak esetén a fázisillesztés szöge beállítható 90°-ra, vagyis ún. nem kritikus fázisillesztést valósíthatunk meg. Ezt az eljárást hőmérsékleti fázisillesztésnek hívjuk. Ez többek között azért is hasznos, mert ebben az esetben a walk-off szög értéke zérus.

A frekvencia-átalakítás hatásfokát többek között az anyag $\chi^{(2)}$ szuszceptibilitás tenzorának effektív értéke is meghatározza [6]. Gyakran használják a $d_{ijk} = \frac{1}{2} \chi_{ijk}^{(2)}$ jelölést, ahol $\hat{\mathbf{d}}$ az anyag másodrendű nemlineáris optikai tenzora. A d_{eff} effektív értékek [7] felhasználásával valamennyi kristályrendszerben meghatározhatók. A (matematikai értelemben) harmadrendű $\hat{\mathbf{d}}$ tenzor egy másodrendű 3×6-os tenzorrá redukálható figyelembe véve a $d_{ijk} = d_{ikj}$ szimmetriát. Az indextömörítésekkel egy d_{IK} mátrixelemekkel reprezentálható tenzorhoz jutunk, ahol $I = 1 \dots 3$, illetve $K = 1 \dots 6$. Az I index esetén az 1, 2, 3 jelenti az x , y és z koordinátát, K esetén az 1, 2, 3 felel meg rendre xx -nek, yy -nak és zz -nek, 4, 5, 6 pedig jelenti yz -t, xz -t és xy -t.

LN esetén a d_{33} (d_{333}) tenzorelem értéke kimagaslóan nagy a többihez képest, értéke 30 pm/V [5]. Mivel a frekvencia-átalakítás hatásfoka d_{eff} négyzetével arányos, ezért célszerű a polarizációkat úgy megválasztani, hogy valamennyien a kristályoptikai z irányba mutassanak. Viszont, ha ezt így tesszük, akkor a geometriai úton történő, kettős törésen alapuló fázisillesztés nem alkalmazható. A hőmérsékleti fázisillesztés sem vezet útra a LN esetén. Ha viszont a polarizációk nem a legmegfelelőbb irányúak, lényegesen kisebb hatásfokot tudunk csak elérni. Tehát együttesen a fázisillesztés megvalósítása és a legnagyobb értékű nemlineáris optikai tenzorelem kihasználása problémát okoz.

Megmutatták, hogy a fent említett, kettős törésen alapuló fázisillesztési módszer helyett az ún. kvázi-fázisillesztés is egy lehetséges alternatíva melynek hatalmas előnye, hogy a polarizációk megválasztásában szabadságot élvezünk. Konkrétan LN esetén megmutatták [8], hogy a kristályban a mikrométer tartományba eső periódushosszú domén-szerkezet alakítható ki növesztéssel, vagy utólagos polarizálással. A szomszédos tartományokban a nemlineáris optikai tenzorelem értéke ellentétes. Az így előállított LN kristályt periodikusan polarizált LN (PPLN) kristálynak hívjuk. A Λ periódushossz kiszámítása $\Lambda = 2\pi/\Delta k$ módon történik, ahol parametrikus erősítés esetén $\Delta k = |k_p - k_s - k_i|$. Ezzel a módszerrel elérhetjük, hogy a parametrikus folyamat hatásfokát a d_{33} tenzorelem értéke határozza meg. Megjegyzem azonban, hogy elsőrendű kvázi-fázisillesztés esetén a folyamatért felelős effektív d együttható $2/\pi$ -szerese az adott irányhoz tartozó – esetünkben d_{33} – együtthatónak.

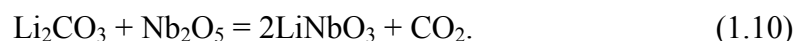
A PPLN kristály nagy optikai nemlinearitása miatt igen perspektivikus anyagnak tűnik a frekvencia-átalakításhoz, pl. OPO-kban történő alkalmazáshoz. PPLN OPO-k

vizsgálata nem tárgya a dolgozatnak, viszont ezen alkalmazás az egyik fő motivációja kutatásaimnak. Femtoszekundumos PPLN OPO-val kapcsolatos kutatási eredményeimről a [9,10] publikációkban lehet olvasni.

1.3. A sztöchiometrikus és a kongruens LiNbO₃

A LN olyan ionvegyület amely a Li⁺ és Nb⁻ ionokat 1:1 arányban tartalmazza az összegképlet szerint. A kristályösszetétel azonban nem mindig ilyen egyszerű. Amennyiben valóban 1:1 az arány, az összetételt sztöchiometrikusnak hívjuk, mivel ez felel meg a sztöchiometriai képletnek. Ha a [Li]/[Nb] – a szögletes zárójel a koncentrációt (pontosabban részecskeszám sűrűséget) jelenti, az ion töltését nem jelöltem – arány 1-től kissé eltér, tipikusan 0,98 és 1 közé esik, az összetételt kvázi sztöchiometrikusnak mondjuk. Azt az összetételt melyben a [Li]/[Nb] arány 0,945, kongruensnek mondjuk. Az irodalomban az „összetétel” kifejezés helyett gyakran használják a „sztöchiometria” szót, függetlenül attól, hogy ténylegesen kongruens vagy sztöchiometrikus az összetétel. Az összetétel annál „sztöchiometrikusabb”, minél közelebb esik a [Li]/[Nb] arány az 1-hez. Döntően a kristálynövesztés módja határozza meg a kristály sztöchiometriáját. Amennyiben az alapanyagban a lítium és a nióbbium koncentrációi 51,4 illetve 48,6% ([Li]/[Nb] = 0,945) úgy mondjuk, hogy a nióbbium-oxid kongruensen olvad és a beépülés során is marad ez az arány. Amennyiben az összetétel ettől különböző, az olvadék az egyik összetevőben el kezd hígulni, a másikban dúsulni, csak a kongruensben lesz ez az arány állandó.

A már hagyományosnak tekinthető növesztési eljárás a Czochralski-módszer. Az alapanyagok tipikusan a lítium-karbonát és a nióbbium-oxid, az előállítás reakcióegyenlete pedig



Egy másik lehetséges módszer, ha lítium-oxidot használunk lítium-karbonát helyett. Ekkor nem keletkezik szén-dioxid melléktermékként. A növesztés magas hőmérsékleten Si-fűtőszálat használva indifferens Pt-tégelyben történik zárt nitrogén, oxigén vagy argon gázban. A növesztés során egy már meglévő magot az olvadékból húznak ki,

ügyelve arra, hogy az olvadék felszínének hőmérséklete mindvégig 1253 °C legyen. A növesztés sebessége a néhány mm/órától a néhány mm/napig terjedhet. A kongruens kristály növesztése sokkal gyorsabb folyamat, mint a sztöchiometrikusé.

Míg a Czochralski-módszer olvadékos módszer, addig létezik oldatos módszer is. Ez esetben nem szükséges mag a növesztés megkezdéséhez, mert a magképződés kis zavar hatására is megindul. Az oldat lassú hűtésével pedig az oldat tömennyé válik, majd kikristályosodik.

A flux-növesztés az oldatos és az olvadékos módszer ötvözete. Ekkor magot helyeznek az oldatba és a kikristályosodást a folyadék áramoltatásával segítik elő, melyet a hőmérséklet-eloszlással befolyásolnak. Egy lehetséges módszer a K₂O-t tartalmazó oldatból (fluxból) történő növesztés. Ezzel a módszerrel lehet sztöchiometrikus kristályokat előállítani [11].

A kongruens és a sztöchiometrikus kristályok összetételében nem szembetűnő a különbség, azonban elegendő ahhoz, hogy számos fizikai tulajdonságuk jelentősen különbözzön. Többek között ilyen a törésmutató. Az ordinárius törésmutató gyakorlatilag független az összetételtől, az extraordinárius viszont jelentősen függ tőle. A $Li/([Li]+[Nb])$ arányt változtatva a 48,6%-os kongruens és az 50%-os sztöchiometrikus összetétel között az extraordinárius törésmutató monoton csökkenését tapasztaljuk [12]. Itt jegyzem meg ennek gyakorlati hasznát, miszerint a nem kritikus fázisillesztés (lásd 1.2. fejezet) megvalósításában a hőmérséklet megválasztásán kívül az összetétel alkalmas megválasztása is segítségül lehet. A nemlineáris és elektrooptikai tulajdonságok [13], valamint számos mechanikai, hőtani és ferroelektromos tulajdonság is összetételfüggő.

A LN fizikai tulajdonságaira (attól függően, hogy számunkra mi a kedvező) a sztöchiometrián kívül jelentős befolyással lehetnek bizonyos szennyező anyagok, melyek adalékolása a növesztés során történik. A kristálynövesztés során ugyan ismert a szennyező anyagok mennyisége, azonban arra, hogy ebből ténylegesen mennyi épült be a rácsba, utólagos analitikai és spektroszkópiai mérésekkel következtethetünk.

A sztöchiometrikus kristály esetén a koercitív erő két nagyságrenddel kisebb (200 V/mm), mint a kongruens kristályban [14-15]. Ennek köszönhetően a periodikus polarizáció során elég lényegesen gyengébb polarizáló elektromos teret használni a periodikus struktúra létrehozásához. Ez jelentősen megkönnyíti az átpolarizálást és lehetővé teszi vastagabb PPLN minták előállítását is.

1.4. Fényindukált törésmutató-változások a LiNbO₃-ban

Vannak anyagok, melyek törésmutatója az őt érő fényintenzitás hatására megváltozik. Ezt a jelenséget fényindukált törésmutató-változásnak hívjuk, melynek több különböző oka lehet. A LN-ban lejátszódó optikailag indukált törésmutató-változás tanulmányozása már a 60-as évek vége óta érdekes téma [16].

A törésmutató-változás egyik oka lehet a Kerr-effektus, melyért az (1.6) egyenletben a sorfejtés harmadik tagja felelős. A törésmutató az

$$n = n_0 + n_2 I \quad (1.11)$$

formában adható meg, ahol n_0 a lineáris, n_2 a nemlineáris törésmutató, I pedig a fény intenzitása. LN esetén $n_2 = 5,3 \cdot 10^{-19} \text{ m}^2/\text{W}$, melynek mérése csak impulzuszérezéssel lehetséges [17].

Vannak anyagok többek között ilyen a LN, de ilyen pl. a KNbO₃ és a BaTiO₃, melyek fotorefraktívak. Ez a tulajdonság szintén fény hatására bekövetkező törésmutató-változásban mutatkozik meg. A törésmutató maradandó megváltozása is előidézhető. Ez teszi lehetővé a holografikus rögzítést, információ tárolást. A fotorefrakció mechanizmusa a következő:

Az anyagban a fény hatására szabad töltéshordozók gerjesztődnek, melyek a vezetési sávban könnyedén elmozdulhatnak (fotovezetés). A részecskéket, melyek az elektront leadják donornak, a visszamaradt részecskét pedig ionizált donornak hívjuk. Inhomogén megvilágítás esetén inhomogén töltéseloszlás alakul ki, amelynek hatására az anyagban inhomogén belső elektromos tér jön létre. Az elektrooptikai (Pockels-) effektusnak köszönhetően az inhomogén elektromos tér egy vele arányos törésmutató-változás eloszlást indukál. Tehát a fotorefraktív anyagoknak fotovezetéssel, valamint jó elektrooptikai tulajdonsággal kell rendelkezniük. A megvilágítás megszűnte után az anyag sötétvezetésétől függően rövidebb vagy hosszabb idő alatt visszaáll az eredeti töltéseloszlás. A töltés visszarendeződése gyorsítható az anyag felmelegítésével vagy homogén monokromatikus megvilágításával. Egy egyszerűsített modell, mely egyetlen koordinátától függő $I(x)$ intenzitás-eloszlást tételez fel, stacionárius állapotban azt az eredményt adja, hogy

$$\Delta n(x) \propto \frac{1}{I(x)} \cdot \frac{dI}{dx}, \quad (1.12)$$

azaz a törésmutató-változás nem a lokális intenzitással arányos, ráadásul annak deriváltjától is függ [4]. A modell ugyan több elhanyagolást tesz, nevezetesen a donorok és az ionizált donorok koncentráció arányának a helyfüggését, térfogati fotovoltaiikus effektust, a lyukak jelenlétét valamint a sötétvezetést. A fotorefrakciót pontosabban leíró egyenletek és azok különböző közelítő megoldásai megtalálhatók a [18,19] publikációkban.

Többen megmutatták, hogy LN esetén a fotorefrakció igen jelentős mértékben függ a kristály sztöchiometriájától. A sztöchiometrián kívül pedig függ az esetleges adalék anyagok típusától és azok koncentrációjától. A szabad töltés gerjesztődés valószínűsége a fény intenzitása mellett függ az anyagban lévő donorok és ionizált donorok koncentrációjának különbségétől. A rekombináció valószínűsége pedig az akceptorok sűrűségével és a fotoelektronok koncentrációjával arányos [4,18,19]. Átmeneti fémekkel pl. vassal való adalékolással (a továbbiakban a szennyezés helyett többnyire az irodalomban gyakran használatos „dopolás” kifejezést fogom használni) az anyag fotorefraktivitása növelhető [18]. A vas a rácsba vagy Fe²⁺, vagy pedig Fe³⁺ formájában épül be. Az Fe²⁺ ion donorként viselkedik, az Fe³⁺ ion pedig akseptorként. A fotorefraktivitás mértékét pedig ezen ionok koncentrációja határozza meg. Hasonló hatást érhetünk el, ha vas helyett a Mn, Cu, Cr fémeket használunk dopoló anyagként.

A Mg, Zn, Sc és In adalékolásának pont ellentétes hatása van, mint az átmeneti fémeknek, a fotorefrakciót csökkentik [20–24]. A nem sztöchiometrikus (kongruens vagy kvázi sztöchiometrikus) összetételben ugyanis Li hiány van, ami annyit jelent, hogy Li helyeket Nb tölt be. A szennyezés (pl. Mg) az ilyen Li helyeken ülő Nb-ionokat (Nb antisite) helyettesít. Ha a szennyezés koncentrációja túllép egy bizonyos küszöbértéket, amikor is az összes antisite Nb-iont már helyettesítette, megkezdődik az eredeti helyükön lévő Li ionok helyettesítése. Ez néhány fizikai tulajdonság hirtelen megváltozásában mutatkozik meg (pl. fotovezetés, infravörös abszorpciós sáv) [20,21]. A sztöchiometrikus (kvázi sztöchiometrikus) összetétel esetén a kisebb koncentrációjú antisite Nb-ok miatt érhetően kisebb a küszöbkoncentráció, mint a kongruens kristály esetén. Minél sztöchiometrikusabb az összetétel, annál alacsonyabb ez a küszöb.

A LN fotorefrakciójával számos tanulmány foglalkozik. Több cikkben is foglalkoznak a különböző sztöchiometriájú és dopolású minták fotorefrakciójának

összehasonlításával [22–26]. Egyik ilyen módszer a fotorefraktív roncsolási küszöb vizsgálata [22, 23]. A mintákon áthaladó folytonos lézernyaláb fotorefrakció okozta torzulását, kristályoptikai tengely irányába történő megnyúlását figyelték meg bizonyos küszöbintenzitás felett. A minták összehasonlítása pedig a roncsolási küszöb alapján történt. [23]-ban vizsgálták továbbá a minták fotovezetési tulajdonságait, az infravörös abszorpciós sávnak és az UV abszorpciós élnek a viselkedését, valamint a Curie-hőmérsékletet. Méréseik során tiszta (esetenként különböző módszerrel növesztett) sztöchiometrikus, kongruens, valamint Mg-mal dopolt sztöchiometrikus és kongruens mintákat használtak. Az eredmények azt mutatták, hogy a tiszta mintákban a sztöchiometrikus összetétel esetén kisebb a roncsolási küszöb. A Mg-mal dopolt sztöchiometrikus minták esetén pedig az 1,8 mol%-os Mg koncentráció felett nem tapasztaltak roncsolódást a maximálisan 8 MW/cm² intenzitás esetén 532 nm hullámhosszon. Az abszorpciós mérések és a Curie-hőmérséklet vizsgálatának eredményei is ezzel egybehangzóak voltak. A Mg koncentráció növelése az infravörös abszorpciós sávnak is és az UV abszorpciós élnek a rövidebb hullámhosszak felé tolódását eredményezte. A Curie-hőmérséklet pedig a Mg koncentráció növelésével nőtt. Az 1,8 mol%-os küszöb Mg koncentráció felett viszont nem tapasztaltak további eltolódás sem az infravörös abszorpciós sávban, sem az abszorpciós élben szintúgy a Curie-hőmérsékletben sem. [22]-ben megmutatták, hogy a roncsolási küszöb az azonos Mg koncentráció esetén a kongruens kristályban alacsonyabb, és a különböző sztöchiometriájú ([Li]/[Nb] = 0,993, ill. 0,998) minták közül a „kevésbé sztöchiometrikus” esetén az alacsonyabb. A [24] cikk szerint mind a kongruens, mind pedig a sztöchiometrikus összetétel esetén praktikusán 4,6 mol% felett szűnik meg a fotorefrakció.

A Mg-mal dopolt minták fotorefrakciójának UV tartományban történő vizsgálatával a [25] cikkben foglalkoznak. A minták fotorefrakciójának jellemzésére egy „fotorefraktív érzékenység” nevű mennyiséget definiálnak a következő módon:

$$S = \left. \frac{d(\Delta n)}{d(I t)} \right|_{t=0}, \quad (1.13)$$

ahol Δn a törésmutató-változás, $I t$ pedig számértékileg az egységnyi felületén t idő alatt áthaladt energia. Az eredmények azt mutatják, hogy az UV tartományban a Mg koncentráció növelése a minta fotorefrakció iránti érzékenységének a növekedésével jár,

azaz ellentétesen viselkedik, mint látható tartományban. A vassal történő dopolás pedig a fotorefraktivitást mérsékli az UV-ben.

A [26] publikációban megállapítják, hogy a tiszta minták közül a kongruens érzékenyebb a sztöchiometrikusnál. Ez a megállapítás ellentmondásban áll [22]-vel, noha [26]-ban a mérési módszer nem a törésmutató-változás vizsgálatára irányult, hanem a fényindukált kettős törés [$\Delta(n_e - n_o)$] fáziskompenzáción alapuló mérése történt, annak időbeli változásának vizsgálatával. [26]-ban vassal szennyezett mintával is foglalkoztak, ami érzékenyebbnek tűnt mindkét tiszta mintánál. Ezen fáziskompenzációs módszer egyébként már régóta ismert [16].

A fotorefrakció során fellépő törésmutató-változás meghatározására többen használták a Z-scan módszert, főként LN és a hasonló tulajdonságokkal bíró KNbO₃ kristályokra [19,27–29,30,31]. Erről a mérési módszerről, és az eredményekről most szándékosan nem szólok itt a bevezető részben, hisz ez a vizsgálati módszer képezi dolgozatom fő egységeinek az alapját.

Fotorefraktív anyagokban fény hatására felléphet egy szórási jelenség (ezt szokták holografikus szórás néven is emlegetni), amit megkülönböztetnek a konvencionális fotorefrakciótól. Az angol szakirodalom erre a „speckle” elnevezést használja. A jelenség oka nem más, mint a beeső és a kristályhibákon szóródott hullámok interferenciája által létrehozott dinamikus rács. A tiszta, vassal szennyezett LN, illetve vassal szennyezett KNbO₃ kristályokat folytonos fénnel világítják meg és CCD kamerával vizsgálják a szórásképeket [30–32]. A felvételeken a nyaláb torzulásán kívül inhomogenitások is megfigyelhetők. Az analízisre a Z-scan módszert is használják [31]. A szórási folyamat elméleti modellezésével a [32, 33] cikkekben foglalkoznak.

A Kerr-effektus, a fotorefrakció és a holografikus szórás mellett van még egy fontos effektus, ami a fényindukált törésmutató-változások közé sorolható: a termooptikai effektus. Amennyiben a közeg az őt érő fényt abszorbeálja, hőmérséklete megváltozik. Mivel az anyagok törésmutatója függ a hőmérséklettől, így az is megváltozik. Folytonos megvilágítás esetén a megvilágító fény intenzitás-eloszlása a hővezetési egyenleten keresztül meghatároz egy hőmérséklet-eloszlást az anyagban, ami helyfüggő törésmutatót eredményez.

2. A Z-scan módszer

2.1. A vizsgálat eszköze; a Gauss-nyaláb

Ha a lézernyalábot jellemezni kell, akkor a fő ismérvek közé szokták sorolni a kis divergenciát, jó fókuszálhatóságot, és esetlegesen a nagy teljesítményüket. Vannak azonban olyan alkalmazások, ahol fontos szerepe van annak, hogy pontosan milyen a lézernak az intenzitás-eloszlása a nyaláb keresztmetszete mentén, hogy pontosan hogyan függ a nyalábméret a távolságtól (távolság alatt a rezonátorban kialakuló nyalábnyaktól való távolságot értem), valamint, hogy a hullámfrontok milyen geometriájúak. A Maxwell-egyenletekből bizonyos közelítést alkalmazva olyan hullámegyenlethez juthatunk, melynek megoldása jól leírja a valóságos lézernyalábot. Ezt a speciális elektromágneses hullámot, ami kielégíti ezt a hullámegyenletet, Gauss-nyalábnak hívjuk. A folytonos lézerek közül az Ar^+ -lézer produkálja az egyik legjobb minőségű Gauss-nyalábot, méréseimet is ilyen lézerrel végeztem. Nem csak folytonos, hanem impulzuslézer fénye is lehet Gauss-nyaláb, ez esetben az egyes módusok Gauss-eloszlásúak.

A Gauss-nyalábokhoz a Maxwell-egyenletből a következő úton jutunk el. Homogén, izotrop közegben a Maxwell-egyenletek a

$$\Delta \mathbf{E} - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = 0 \quad (2.1)$$

hullámegyenletre vezetnek, melyben az elektromos térerősség helyett ugyanúgy szerepelhet a mágneses indukció, vagy a skalár- illetve a vektorpotenciál. A (2.1) egyenlet megoldásai síkhullámok, melyet a (2.1) egyenletbe visszahelyettesítve és az $e^{i\omega t}$ időbeli fázissal egyszerűsítve a

$$(\Delta + k^2) \mathbf{E}(\mathbf{r}) = 0 \quad (2.2)$$

úgynevezett Helmholtz-egyenlethez jutunk (sokszor csak a helyfüggések érdekelnek minket). Az egyenletben $k = 2\pi n/\lambda$, ahol λ a vákumbeli hullámhossz. Keressük ennek az egyenletnek a megoldását

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{A}(x, y, z)e^{-ikz} \quad (2.3)$$

alakban, mely z irányban terjedő hullámot ír le, melynek amplitúdója mindhárom koordinátától függ. Ha ezt a megoldást a Helmholtz-egyenletbe visszahelyettesítjük és a $\partial^2 \mathbf{A} / \partial z^2$ tagot elhanyagoljuk, akkor a

$$\frac{\partial^2 \mathbf{A}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{A}}{\partial y^2} - 2ik \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial z} = 0 \quad (2.4)$$

úgynevezett paraxiális hullámeqyenlethez jutunk. A paraxiális szó a közelítésre utal, ugyanis a $\partial^2 \mathbf{A} / \partial z^2$ tag elhanyagolása annyit jelent, hogy a hullám amplitúdója z irányban „lassan” változik. Az elektromos térerősség bármelyik komponensének a helyfüggésére a (2.4) egyenlet megoldásaként

$$E_i(\mathbf{r}) = E_{0i} \frac{w_0}{w(z)} \exp\left(-\frac{r^2}{w(z)^2}\right) \exp\left(-ikz - ik \frac{r^2}{2R(z)} + i \operatorname{tg}^{-1}\left(\frac{z}{z_0}\right)\right) \quad (2.5)$$

adódik. A nyalábot, melyben az elektromos térerősség ily módon változik, Gauss-nyalábnak hívjuk. A fenti egyenletben $r^2 = x^2 + y^2$, w_0 a nyalábnyak, $w(z)$ illetve $R(z)$ a nyaláb sugara, illetve görbületi sugara adott z -ben, z_0 pedig az ún. Rayleigh-hossz. Ezen mennyiségek között a következő összefüggések érvényesek

$$z_0 = \frac{w_0^2 \pi n}{\lambda}, \quad (2.5a)$$

$$w(z) = w_0 \left(1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2\right)^{1/2}, \quad (2.5b)$$

$$R(z) = z \left(1 + \left(\frac{z_0}{z}\right)^2\right). \quad (2.5c)$$

A nyaláb intenzitása $I(\mathbf{r}) \equiv I(r, z) \propto \sum_{i=1}^3 E_i E_i^*$, ami

$$I(r, z) = I_0 \left(\frac{w_0}{w(z)} \right)^2 \exp\left(-\frac{2r^2}{w(z)^2} \right), \quad (2.6)$$

alakú, ahol I_0 az intenzitás az $r = 0$, $z = 0$ pontban. A fenti képletből látszik, hogy a Gauss-nyaláb intenzitás-eloszlása hengersizmetrikus. A z szimmetriatengelyt optikai tengelynek hívjuk. A (2.6) egyenletből az is látszik, hogy az optikai tengely mentén az intenzitás

$$I(0, z) = I_0 \left(\frac{w_0}{w(z)} \right)^2 = \frac{I_0}{1 + (z/z_0)^2} \quad (2.7)$$

módon függ z -től, ezt (2.5b) felhasználásával könnyű belátni. Rögzített z esetén pedig az intenzitás r -szerinti eloszlását Gauss-függvény írja le, innen ered a Gauss-nyaláb elnevezés. Ennek megfelelően pedig a $w(z)$ nyalábsugár szemléletes jelentése: az az optikai tengelytől mért távolság, ahol az intenzitás az adott $I(0, z)$ csúcshintenzitás $1/e^2$ szeresére csökken. A fenti összefüggések az ún. TEM₀₀ (alap) módusra vonatkoznak, a magasabb rendű módusokkal most nem foglalkozom.

A Gauss-nyaláb jellemzése két mennyiséggel történik, mégpedig a nyalábsugárral és a görbületi sugárral. A geometriai optikában egy fénysugarat szintén két mennyiséggel adtuk meg: az optikai tengelytől mért távolsággal és az azzal bezárt szöggel. A geometriai optikában akkor beszélünk paraxiális közelítésről, amikor az optikai tengellyel bezárt szög kicsi volt (1-nél jóval kisebb). Ebben a közelítésben könnyedén le tudtuk írni a terjedést a következő módon. A fénysugarat minden egyes helyen egy kétkomponensű vektorral reprezentáltuk, melynek első komponense az optikai tengelytől mért távolság, a második komponense pedig a tengellyel bezárt szög. Ezt jelöljük

$$\begin{pmatrix} r \\ r' \end{pmatrix}$$

módon! Ha egy helyen (1) adott ez a vektor, akkor egy másik helyen (2) megkaphatjuk

$$\begin{pmatrix} r_2 \\ r_2' \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} \begin{pmatrix} r_1 \\ r_1' \end{pmatrix} \quad (2.8)$$

módon, ahol a 2×2 -es mátrixot $ABCD$ mátrixnak nevezzük. Az $ABCD$ mátrixot pedig az határozza meg, hogy milyen közeg vagy optikai elem helyezkedik el az (1) és a (2) hely között. Ezeket nevezetes esetekre számos irodalom megadja [3, 4, 34], de levezetésük is egyszerű.

A Gauss-nyalábban is paraxiális közelítést alkalmaztunk a levezetés során, és szintén két adattal jellemeztük. Belátható, hogy a terjedés során ezen két adat (nyalábsugár és a görbületi sugár) transzformációs képleteiben szintén az $ABCD$ mátrix elemei jelennek meg. A transzformációt pedig az

$$\frac{1}{q} = \frac{1}{R} - i \frac{\lambda}{\pi n w^2} \quad (2.9)$$

módon bevezetett q paraméter segítségével könnyű leírni:

$$q_2 = \frac{Aq_1 + B}{Cq_1 + D}. \quad (2.10)$$

Sokszor pedig az

$$\frac{1}{q_2} = \frac{C_1 + D(1/q_1)}{A + B(1/q_1)} \quad (2.11)$$

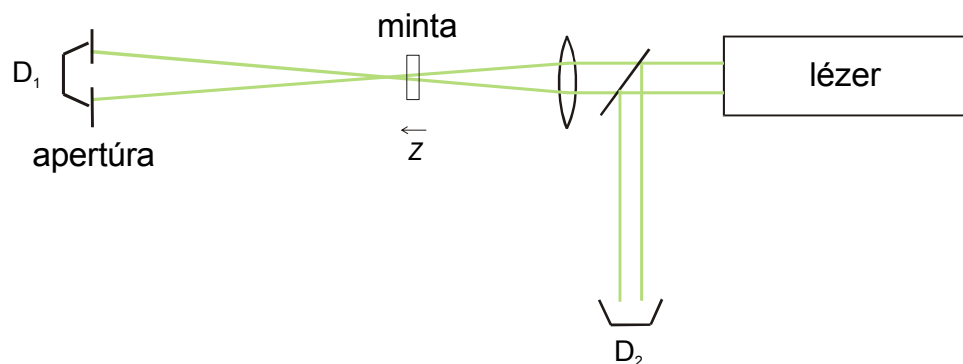
összefüggést kényelmesebb használni.

2.2. A Z-scan eljárás

Az 1.2. és az 1.4. fejezetekben szó volt a nemlineáris törésmutatóról. Ahogy az (1.11) egyenletben definiáltuk, az anyag törésmutatóját egy konstans tag és egy intenzitásfüggő tag összegeként adhatjuk meg. A továbbiakban az olyan típusú közegeket, melyek törésmutatója ily módon adható meg – függetlenül a nemlinearitás eredetétől (Kerr-effektus vagy bármi más), – nemlineáris közegnek, az n_2 együttthatót

pedig eredetétől függetlenül nemlineáris törésmutatónak hívom. Ezt a fejezetet nem véletlen előzi meg a Gauss-nyalábokkal kapcsolatos tudnivalók összefoglalása, hisz egy olyan mérési módszer ismertetése következik, mely Gauss-nyalábot használ a vizsgálat eszközeként.

M. SHEIK BAHAE és szerzőtársai 1990-ben mérési eljárást fejlesztettek ki azzal a céllal, hogy vékony minták nemlineáris törésmutatóját meghatározzák [1]. A vékony kifejezés alatt olyan mintavastagságot értünk, ami lényegesen kisebb az alkalmazott Gauss-nyaláb Rayleigh-hosszánál. A kísérleti elrendezés a következő: Gauss-nyalábot lencsével a 2.1. ábrán látható módon fókuszálunk. A nemlineáris mintát a nyalábterjedésre merőlegesen helyezük el a fókusz sík környezetében. Távoli zónában elhelyezünk egy kör alakú apertúrát, melynek középpontja egybeesik az optikai tengellyel. Amennyiben az apertúra mérete lényegesen kisebb a nyaláb apertúrazónabeli méreténél, kis- vagy zárt apertúras mérésről beszélünk.



2.1. ábra. A Z-scan elrendezés kísérleti vázlata

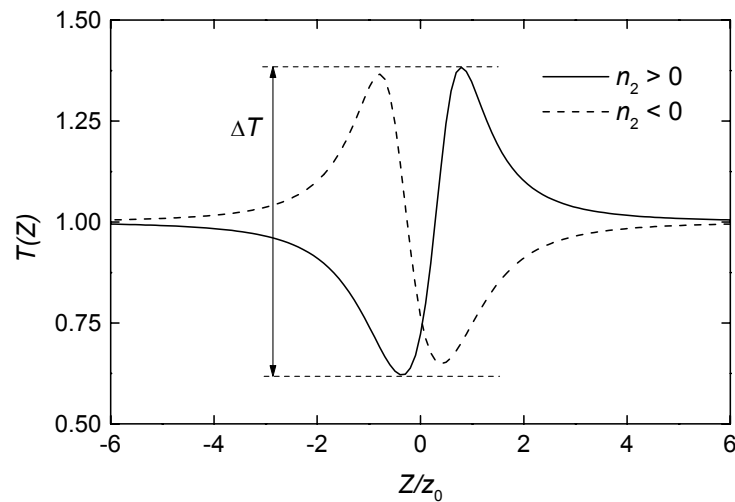
Ha az apertúra mérete összemérhető a nyalábmérettel, véges apertúras mérésről beszélünk. Nyitott apertúras mérés esetén pedig a teljes nyaláb átmegy az apertúrán. Az apertúra mögé teljesítménymérő detektort (D_1) helyezünk, az általa mért teljesítményt jelöljük P_1 -gyel. A lencse és a lézerforrás közé egy nyalábosztót helyezünk el, mellyel a mintára eső nyalábnak egy részét kicsatoljuk, melynek teljes P_2 teljesítményét a D_2 detektorral mérjük. Ennek egyetlen szerepe a lézertől kijövő teljesítmény esetleges időbeli fluktuációjának nyomon követése. A mérés során a mintát a fókusz sík környezetében a nyaláb terjedési irányában (z) mozgatjuk (szkenneljük), miközben az végig merőleges a nyalábra. A negatív z értékek jelentik a fókusz sík előtti, a pozitívak pedig a fókusz sík mögötti pozíciókat. A szkennelési tartomány pedig z_0 -nak kb. 10-

szere, mely lehetőség szerint szimmetrikus a fókusz síkra. Az adott mintapozícióban (Z) megmérjük a P_1 és P_2 teljesítményeket. (A továbbiakban jelölésbeli különbséget teszünk a z koordináta és a minta Z koordinátája között.) A Z-scan görbét pedig úgy kapjuk, hogy a P_1/P_2 hányadost normalizáljuk (ezt normált transzmisszióknak nevezzük), majd ábrázoljuk a mintapozíció függvényében. A normálás feltétele pedig az, hogy a $T(Z)$ normált transzmisszió a $T(\infty) = T(-\infty) = 1$ feltételnek tegyen eleget, ami annyit jelent, hogy kellően hosszú szkennelési tartomány esetén a szélső pozíciókban mért értékek 1-gyel legyenek egyenlők.

A nemlineáris hatás miatt a Gauss-nyaláb intenzitása a mintában r -től függő törésmutató-változást indukál, melynek hatására az optikai úthossz a mintában az optikai tengelytől különböző távolságokban más és más. Tehát a nemlineáris közeg lencseként viselkedik, melynek fókusztávolsága függ a mintapozíciótól, hisz a Gauss-nyaláb intenzitása r -től és z -től is függ. Így a nemlinearitás okozta törésmutató-változás a mintában szintén r -től és z -től függ:

$$\Delta n(r, z) = n_2 I(r, z). \quad (2.12)$$

A nemlineáris mintában indukálódott lencse fókusztávolságának a Z -függése azt eredményezi, hogy a minta mögött egy adott helyen (így az apertúra síkjában is) a nyalábméret függ a minta pozíciójától.



2.3. ábra. Vékony minta elméleti Z-scan görbéi pozitív, illetve negatív nemlinearitás esetén

Ez pedig nyilván maga után vonja azt, hogy az apertúrán átmenő teljesítmény is függ a minta helyétől. Ha a (2.12)-ben szereplő n_2 értéke pozitív, akkor gyűjtő, ellenkező esetben pedig szóró lencseként viselkedik a minta. Tipikus kis apertúrás Z-scan görbét mutat a 2.3. ábra. A folytonos vonal szemlélteti az $n_2 > 0$, a szaggatott vonal pedig az $n_2 < 0$ esetet. A Z-scan görbék felvételével lehetőség nyílik n_2 -nek nagy érzékenységgel történő mérésére.

A [35, 36] cikkekben a Z-scan módszernek egy olyan kivitelezését ismertetik, melyben a D_1 teljesítménymérőt egy ernyővel helyettesítik, referenciadetektort pedig nem is használnak. Az ernyőn látható teljes nyalábkeresztmetszetről CCD felvételeket készítenek a különböző mintapozíciókban. A CCD felvételek Gauss-görbével történő illesztéséből a nyalábméretet meg lehet határozni, amiből a nyaláb csúcsintenzitására tudunk következtetni. [36]-ban hangsúlyozzák ennek a módszernek az előnyét, miszerint ez a módszer kevésbé érzékeny a lézer instabilitásaira és a teljesítmény fluktuációira. Megjegyzem, hogy ez főként azok számára előnyösebb, akik a P_2 referencia teljesítmény mérése nélkül alkalmazták a Z-scan technikát.

SHEIK és szerzőtársai a Z-scan mérésekkel kapcsolatos első publikációban [1], melynek ma már ezres nagyságrendű hivatkozása van, olyan analitikus formulát adtak meg, mellyel történő illesztés vékony minta és kis nemlinearitás esetén teszi lehetővé n_2 meghatározását. Vékony minta ($L \ll z_0$, L a minta hossza) esetén, figyelmen kívül hagyhatjuk a nyalábméret mintán belüli megváltozását. A nemlinearitás mértékét pedig a mintában a szkennelés során fellépő maximális nemlineáris fázistolással jellemezzük. Vékony minta esetén $\Delta\phi_0 = kI_0n_2L$, ahol k a hullámszám. A nemlinearitást akkor tekintjük kicsinek, ha $\Delta\phi_0 \ll \pi$. A mintán áthaladó, nem abszorbeálódó nyaláb okozta nemlineáris fázistolásra a

$$\frac{d(\Delta\phi)}{dz} = n_2 I(r, z) k \quad (2.13)$$

egyenlet érvényes. A fenti egyenlet megoldása alapján a Z pozícióban lévő mintát elhagyó nyaláb közvetlenül a kilépés után

$$\Delta\phi(r, Z, t) = \Delta\phi_0(Z, t) \cdot \exp\left(-\frac{2r^2}{w(Z)^2}\right) = \frac{\Delta\phi_0(t)}{1 + \left(\frac{Z}{z_0}\right)^2} \cdot \exp\left(-\frac{2r^2}{w(Z)^2}\right) \quad (2.14)$$

fázistolódást szenved a nemlinearitásnak köszönhetően. A megoldás során felhasználtuk a Gauss-nyaláb intenzitásra vonatkozó (2.6) egyenletet. Célunk, hogy meghatározzuk a nyaláb apertúráján átmenő részének teljesítményét, ami kis apertúrák közelítésben ekvivalens a nyaláb közepe intenzitásának ismeretével. A mintából közvetlen kilépő Gauss-nyaláb $\exp[i\Delta\phi(r, Z, t)]$ szorzót kap. Ezt a fázisszorzót Taylor-sorba fejtvé, felhasználva (2.14)-et kapjuk:

$$e^{i\Delta\phi(r, Z, t)} = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{[i\Delta\phi_0(Z, t)]^m}{m!} e^{-\frac{2mr^2}{w(Z)^2}}. \quad (2.15)$$

Ez az összegzés úgy is interpretálható, mintha végtelen sok Gauss-nyaláb indulna a minta kimeneti síkjától, melyek a szabad terjedést leíró egyenletnek megfelelően terjednek az apertúráig, ahol létrehozhatnak valamilyen eredő térerősséget. Az apertúrájánál az elektromos tér erőssége

$$E_a(r, t) = E(Z, 0, t) \sum_{m=0}^{\infty} \frac{[i\Delta\phi_0(Z, t)]^m}{m!} \frac{w_{m0}}{w_m} \exp\left(-\frac{r^2}{w_m(Z)^2} - \frac{ikr^2}{R_m} + i\theta_m\right) \quad (2.16)$$

lesz, ahol $E(Z, 0, t)$ a térerősség a minta bemeneti síkjának $r = 0$ pontjában. Az m -mel indexezett Gauss-nyalábok megfelelő mennyiségei között az alábbi összefüggések érvényesek:

$$w_{m0}^2 = \frac{w(Z)^2}{2m+1}, \quad (2.17a)$$

$$d_m = \frac{kw_{m0}^2}{2}, \quad (2.17b)$$

$$w_m^2 = w_{m0}^2 \left(g^2 + \frac{d^2}{d_m^2} \right), \quad (2.17c)$$

$$R_m = d \left(1 - \frac{g}{g^2 + d^2/d_m^2} \right)^{-1}, \quad (2.17d)$$

$$\theta_m = \operatorname{tg}^{-1} \left(\frac{d/d_m}{g} \right), \quad (2.17e)$$

ahol d a minta–apertúra távolság. A $g = 1 + d/R(Z)$ mennyiség bevezetése azért szükséges, mert a nyalábnyak nem a minta síkjában van. Ezzel a korrekcióval a mintából kilépő, m -mel indexezett (2.16) Gauss-nyalábok terjedése (2.5)-höz teljesen hasonló alakot ölt. A $T(Z)$ normált transzmissziót a

$$T(Z) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_0^{r_a} |E_a(Z, r, t)|^2 r dr dt}{\int_{-\infty}^{\infty} \int_0^{r_a} |E_a(Z, r, t, n_2 = 0)|^2 r dr dt} \quad (2.18)$$

módon határozzuk meg, ahol r_a az apertúra sugara. A (2.18) definíció ekvivalens a mérés menetének leírása során említett normált P_1/P_2 aránnyal. A transzmissziót (2.18)-ból numerikusan meghatározva azt találjuk, hogy kis fázistolás esetén a végtelen összegnek az első két taggal történő közelítése elegendő. Ebben az esetben a kis apertúrás számítások egy analitikus formulára vezetnek, ami lényegesen megkönnyíti az elmélet alkalmazását. Ez a következő:

$$T(Z/z_0) = 1 - \frac{4\Delta\phi_0 \cdot (Z/z_0)}{[(Z/z_0)^2 + 9][(Z/z_0)^2 + 1]}, \quad (2.19)$$

ahol $\Delta\phi_0 = kI_0 n_2 L$. Az I_0 intenzitás ismeretében a (2.19) formulával történő illesztés lehetővé teszi a nemlineáris törésmutató meghatározását. Továbbá, az érvényességi határon belül fennáll, hogy a Z-scan görbe ΔT amplitúdója arányos n_2 -vel ($\Delta\phi_0$ -lal): $\Delta T = 0,406 \cdot \Delta\phi_0$, ahol az arányossági tényezőt érzékenységnek hívjuk.

Egy évre [1]-nek a megjelenése után SHEIK és szerzőtársaitól megjelent egy újabb publikáció [37], melyben olyan eljárást ismertetnek, amely tetszőleges mintavastagságra és tetszőleges mértékű nemlinearitásra érvényes. Ez a dolgozat az elméleti Z-scan görbéket numerikusan származtatja a következő gondolatmenettel. A

vastag mintát vékony szeletekre bontja, melyeknek – mint vékony lencséknek – meghatározza a fókusz távolságát. A vékony lencse fókusz távolsága pedig az adott helyen lévő csúcsintenzitástól, a nyálábmérettől és a szelet vastagságától függ. A Gauss-nyaláb intenzitás-eloszlásában pedig parabolikus közelítést alkalmaz. Kis mintavastagságra viszont megad egy analitikus képletet is, mely a következő:

$$T^{-1}(Z/z_0) = \frac{w_a^2}{w_0^2} = D^2 \left(1 - \frac{2\Delta\phi_0(D-x)x}{aD(1+x^2)^2} \right)^2 + \left(1 - \frac{2\Delta\phi_0(D-x)}{a(1+x^2)^2} \right)^2. \quad (2.20)$$

A fenti formulában $D = d/z_0$, $x = Z/z_0$, a pedig egy ún. korrekciós tényező.

A [38]-as cikkben J. A. HERMANN és szerzőtársa vastag mintákra használható analitikus képletet ad meg

$$T(Z/z_0) = 1 - \frac{1}{4} \frac{\Delta\phi_0}{L} z_0 \ln \left(\frac{9 + \left(\frac{Z-L}{z_0} \right)^2}{1 + \left(\frac{Z-L}{z_0} \right)^2} \cdot \frac{1 + \left(\frac{Z}{z_0} \right)^2}{9 + \left(\frac{Z}{z_0} \right)^2} \right), \quad (2.21)$$

mely azonban nagy nemlinearitásokra nem érvényes. A képlet szerint egy adott mértékű nemlinearitást meghaladva a transzmisszió negatívvá válik, ami fizikailag nem értelmezhető.

C. H. KWAK-nak az 1998-ban megjelent cikke [39] viszont tetszőleges mértékű nemlinearitások Z-scan módszerrel történő meghatározásával foglalkozik, noha csak vékony minták esetén. A Gauss-nyaláb intenzitás profiljában szintén parabolikus közelítést alkalmaz, akár csak SHEIK [37]-ben. A Gauss-nyaláb fázisában szerepel egy r^2 -tel arányos tag, melyet a nemlinearitás okozta extra taggal (ami a parabolikus közelítés miatt szintén r^2 -es) összevonva a számítások leegyszerűsödnek. A parabolikus közelítés tehát azt is eredményezi, hogy a terjedés során a nyaláb megtartja Gauss-alakját. A levezetés végeredménye pedig a következő képlet:

$$T(Z/z_0) = \frac{1}{1 - \frac{4x}{(1+x^2)^2} \Delta\phi_0 + \frac{4}{(1+x^2)^3} \Delta\phi_0^2}, \quad (2.22)$$

melyben x a korábban definiált mennyiség.

A [40–42] cikkek megfelelő részei a Kerr-közegben való terjedés leírásával foglalkoznak. A tárgyalásmód a fényterjedés irányában véges kiterjedésű közegre érvényes. A részletes gondolatmenet a [40] függelékében található, ahol egy K ún. Kerr paraméter kerül bevezetésre. Ennek segítségével a nyalábot jellemző q paraméterben egy transzformációt hajtunk végre. Az ily módon bevezetésre kerülő q' paraméter azzal az előnnyel bír, hogy rá a z irányú terjedés során az [40]-nek az (A.14) összefüggése érvényes, mely még egyszerűbb alakban:

$$dq' = dz, \quad (2.23)$$

ami q -k nyelvén a szabad térben történő terjedés. A terjedés leírása során nem kell mást tenni, mint a közegbe lépés után megtenni a $q \rightarrow q'$ transzformációt, majd a kilépés előtt ennek az inverzét.

[35]-ben a közegbeli nyalábterjedés szintén a q paraméter transzformációjának a segítségével történik. Az erre vonatkozó összefüggés a cikk (A5) egyenlete. A cikkben n_2 alatt ugyan mást értenek (konstansok erejéig), mivel ott a az elektromos térerősség amplitúdóját jelenti, nem pedig az intenzitást. Az általunk használt jelölésekkel a

$$dq/dz = \frac{4In_2}{n_0w^2} q^2 \quad (2.24)$$

egyenlettel írhatjuk le a terjedést. Mivel ez az összefüggés az aktuális nyalábméretet is tartalmazza, amit szintén q határoz meg, csak numerikus számítások végzésére alkalmas. Viszont semmiféle megszorítást nem kell tennünk a minta vastagságára vagy n_2 értékére.

Szintén a nyaláb görbületének és sugarának a numerikus nyomon követésén alapul a [43] cikkbeli tárgyalás.

[44]-ben pedig nem történik más, mint a kis nemlinearitásokra és vékony mintákra alkalmas (2.19) formulának a vastag mintákra történő kiterjesztése a

$$T(Z/z_0) = 1 + \frac{\Delta\phi_0}{L} z_0 n_0 \int_z^{z+L} F(u) du \quad (2.25)$$

integrállal, melyben

$$F(u) = \frac{4u}{(u^2 + 9) \cdot (u^2 + 1)}, \quad (2.26)$$

ahol a Z mintapozíció alatt a minta bemeneti síkjának a helyét értjük.

Végezetül [45]-ben egy olyan módszert ismertettek, melyben a Gauss-nyaláb helyett a szintén hengerszimmetrikus Airy-nyalábot használják. Vékony mintákra megállapítják, hogy ebben az esetben az érzékenység mintegy másfélszer nagyobb, mint Gauss-nyaláb esetén. Ezen nem túl nagy érzékenységbeli különbség viszont nem elég erős érv, hogy Gauss-nyaláb helyett Airy-nyalábot használjunk, ugyanis a lézerek Gauss-nyalábot produkálnak.

2.3. A nemlineáris abszorpció hatása

A közegekben a nemlineáris törésmutató mellett felléphet egy másik nemlineáris effektus: a nemlineáris abszorpció. Ezt a

$$dI/dz = -\beta I^2 \quad (2.27)$$

egyenlet írja le, ahol β a nemlineáris abszorpció együttható. Ha jelen van a nemlineáris abszorpció, az befolyással van a Z -scan görbékre is. Az [1] cikk is foglalkozik a nemlineáris abszorpció hatásával. A nyitott apertúras mérésekkel lehetőség nyílik β meghatározására. Ezzel a módszerrel ugyanis a nemlineáris törésmutató hatását kiküszöböljük (csak vékony minta esetén), hisz a mintán áthaladó teljes nyaláb intenzitását vizsgáljuk. A mért összintenzitás a mintapozíciótól függően változik, hisz az abszorpció nemlineáris, az egyes mintapozíciókban pedig az intenzitás-eloszlás más és más. A normált transzmisszióra az [1] cikk a következő képletet adja meg:

$$T(Z) = \frac{1}{q_0(Z)} \ln(1 + q_0(Z)), \quad (2.28)$$

ahol $q_0(Z) = \beta I_0 L / (1 + Z^2 / z_0^2)$. A képlet csak vékony mintákra érvényes. Amennyiben nem folytonos nyalábot használunk, a kifejezés módosul, időbeli Gauss impulzus esetén az [1] cikk (31) egyenlete lesz a mérvadó. A [38] publikáció (28) egyenlete pedig a zárt apertúras mérésekhez olyan, vastag mintákra is használható analitikus képletet ad meg, amely az n_2 paraméter mellett β -t is tartalmazza.

2.4. A Z-scan módszer alkalmazásai

Az alapcikkben [1] az elmélet ismertetése mellett mindjárt találunk egy alkalmazást is, nevezetesen ZnSe film nemlineáris törésmutatójának és nemlineáris abszorpciós együtthatójának mérését. Hasonlóan, [39]-ben is vékonyréteget vizsgáltak a Z-scan módszerrel. Gyakori, hogy oldatok nemlinearitásait vizsgálják, így történik [35]-ben is, ahol etanolban oldott klorofill n_2 paraméterét határozták meg. Az n_2 ez esetben nem a Kerr-effektusban szereplő nemlineáris törésmutató volt, hanem termikus eredetű effektus együtthatója. Ezen effektus részletes elemzése külön fejezetben fog történni. Megjegyzem, hogy több szerző a Z-scan módszerben folytonos fény helyett impulzusokat használt [46-50], illetve végeztek időbontott [51, 52], valamint reflexiós [53, 54] Z-scan méréseket.

A fotorefrakció vizsgálatára többen is alkalmazták a Z-scan módszert LN, illetve KNbO₃ kristály esetén. Mivel a fotorefrakció során fellépő törésmutató-változás nem adható meg a valamennyi Z-scan elmélet által feltételezett $\Delta n = n_2 I$ alakban, az illesztés nem tehető meg az irodalmakban leírt módszerekkel. Az egydimenziós fotorefrakciós modell [(1.12) egyenlet] is azt mutatja, hogy maga a törésmutató-változás a töltésszeparáció végett kialakult fotovoltaiikus térerősséggel arányos, nem pedig a fényintenzitással. Amennyiben az egydimenziós intenzitás-eloszlás helyett Gauss-nyalábot használunk, a mintán átmenő nyaláb anizotrop (elliptikus) torzulást szenved, ami az illesztés során bizonyos korrekciók megtételét teszi szükségessé a formulákban [30]. Továbbá azt is megmutatták [19, 27, 29], hogy a Gauss-nyalábbal együtt egy I_s

homogén megvilágítást (sötétintenzitás) is kell alkalmazni, tehát egysugaras Z-scan méréssel nem vizsgálható egzakt módon a fotorefrakció.

II. Célkitűzések

A LN kristály nagyon perspektivikus anyag az optikai frekvencia-átalakítóknak történő alkalmazásra. Nemlineáris optikai tenzorának d_{33} eleme kimagaslóan nagy. Megmutatták, hogy a hagyományos kettős törésen alapuló fázisillesztés helyett lehetőség nyílik a kvázi-fázisillesztésre. Ennek előnye, hogy ily módon az előbb említett tenzorelem kihasználható. Az utóbbi időben sikeresen növesztettek jó minőségű sztöchiometrikus kristályokat. Ezeknek az egyik előnye a kongruenssel szemben, hogy a kvázi-fázisillesztéshez szükséges periodikus struktúra előállításához szükséges elektromos térerősség mintegy két nagyságrenddel kisebb a kis koercitív erő miatt. Továbbá többen igazolták, hogy a fotorefrakció, ami ezen alkalmazások szempontjából hátrányos, Mg adalékolásával jelentősen csökkenthető.

Ahhoz, hogy az alkalmazásokhoz a legmegfelelőbb sztöchiometriájú és Mg koncentrációjú kristályt megtaláljuk, a LN-ban fellépő fényindukált törésmutató-változások alapos vizsgálatára van szükség. Olyan mérési eljárást kell kifejleszteni, ami alkalmas a törésmutató-változások eredetének tisztázására. Az irodalomból tudjuk, hogy a tiszta és a vassal szennyezett minták fotorefraktív érzékenysége relatíve nagy, míg a Mg-mal történő dopolásnak csökkentő hatása van a fotorefrakcióra. Annak ellenére, hogy a tiszta és a vassal dopolt minták nem jöhetnek szóba az alkalmazások szempontjából, mégis vizsgáljuk fotorefraktív tulajdonságaikat, hogy annak jellegzetességét még jobban megismerjük. Az egysugaras Z-scan módszer néhány kiegészítő méréssel alkalmasnak bizonyul erre a célra, valamint a perspektivikus minták kvantitatív jellemzésére.

III. Tudományos eredmények

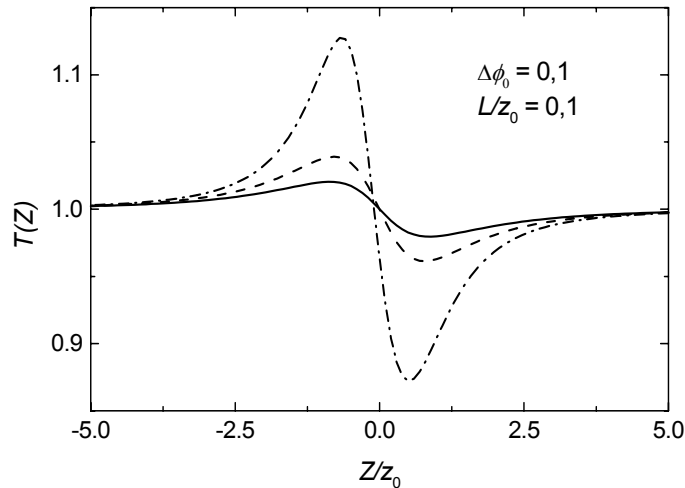
3. A Z-scan módszerrel kapcsolatos elméleti eredmények

3.1. Kritikai észrevételek, megjegyzések a különböző Z-scan elméletekkel kapcsolatban

Az utóbbi évtizedben számos publikáció jelent meg a Z-scan eljárás elméletével kapcsolatban, így érdemes megvizsgálni, hogy ezek mennyire koherensek. SHEIK és szerzőtársai egy év különbséggel közöltek két publikációt. A későbbinek [37] előnye a korábbival [1] szemben, hogy az ismertetett módszer érvényességi köre jóval szélesebb; jelentős nemlinearitások és véges vastagságú minták esetén alkalmazható. Természetesen kis nemlinearitásra és vékony mintára vissza kellene adnia azt az eredményt, amit [1] jósol. A szerző maga állapítja meg, hogy a két elmélet eredménye között ellentmondás van, melyet az alábbi magyarázattal próbál feloldani. A [37]-ben használt parabolikus közelítés miatt a vékony mintákra kapott (2.19) egyenletben a sorfejtés többi tagjának hatását egy a korrekciós tényezővel kell figyelembe venni. A [37]-ben szereplő 4. ábrán látható is az eredmény, miszerint $a = 5$ esetén a két görbe amplitúdója közel azonos. A görbék egyenes szakaszai viszont meredekségeikben különböznek, ami egy illesztés során különböző z_0 -kat jelent. Továbbá a nagy görbületű részekben is jelentős eltérés van a két görbe között. Nem tisztázott okok miatt ezt az összehasonlítást nem a kis apertúras állapotra, hanem véges méretű apertúra esetére tették meg.

Az összehasonlításokat én is elvégeztem. Olyan speciális esetet választottam, melynek során a nemlinearitás mértéke $\Delta\phi_0 = 0,1$, valamint $L/z_0 = 0,1$. Ezen feltételek mindkét publikáció elméletének érvényességi körén belül vannak. Az [1] publikáció felbontásos módszerét (2.2. fejezet) alkalmazva megmutattam, hogy ebben az esetben a végtelen összegben elég két tagot ($m = 0, 1$) figyelembe venni ahhoz, hogy a (2.19) analitikus formulát használhassuk. Ezen két tag figyelembevétele pedig ekvivalens a [37]-ben ismertetett parabolikus közelítéssel. Tehát a görbék érzékenységében fennálló lényeges különbség nem magyarázható egy magasabb rendű tagokért felelős a korrekciós tényező szükségességével. Viszont [1] felbontásos módszerét nyomon követve (dolgozatomban a (2.16)-(2.17) egyenletek) a következő észrevétel merülhet

fel. A (2.14) egyenletben szereplő $\exp\left(-\frac{2r^2}{w(Z)^2}\right)$ részt (2.17a) felhasználásával (2.16)-ban $\exp\left(-\frac{2mr^2}{(2m+1)w_{m0}(Z)^2}\right)$ -ként kellene felfedeznünk. Amiatt, hogy a mintából történő kilépési helyen nem nyalábnyaka van az adott m-mel indexezett Gaussnyalábnak, w_{m0} helyett (2.17c)-nek megfelelően w_m -et írunk. Így (2.16)-ban $\exp\left(-\frac{2mr^2}{(2m+1)w_m(Z)^2}\right)$ tag adódna. Viszont ehelyett $\exp\left(-\frac{r^2}{w_m(Z)^2}\right)$ jelenik meg. Ennek oka, hogy a (2.17a)-ban szereplő $2m + 1$ helyett $2m$ -t vettek. Ennek az elhanyagolásnak viszont komoly következménye van az érzékenységekben. (2.17a)-ban a $+1$ -nek véleményem szerint csak annyi szerepe van, hogy $m = 0$ esetén ne kelljen 0-val osztani. Ha e helyett $2m + \varepsilon$ -t írunk, ahol $\varepsilon \ll 1$, akkor ez kizárja a 0-val való osztást és máris összhang lesz a (2.15), (2.16), (2.17a) és (2.17c) egyenletek között. Ennek a változtatásnak a hatását a 3.1. ábrán láthatjuk. A folytonos görbe az [1] cikk elméleti görbéje [dolgozatomban (2.19) egyenlet], a szaggatott görbe a részletes számolás eredménye $\varepsilon \ll 1$ -re ($\varepsilon = 1$ esetén pontosan egybeesne a folytonossal), a pontvonalból álló pedig a [37] cikk görbéje ($D \gg 1$ esetén). Láthatjuk, hogy ezúton már közelebb került egymáshoz a két görbe, de még mindig van jelentős érzékenységbeli különbség.



3.1. ábra. SHEIK különböző elméletei alapján meghatározott Z-scan görbék (folytonos, pontvonal). A szaggatott pedig az $1 \rightarrow \varepsilon$ korrekció megtétele után számított görbe.

HERMANN [38] (2.21) képletét vékony mintára, kis nemlinearitásra alkalmazva, egyezést találunk (2.19)-cel. A (2.25) egyenletben leírt, [1]-nek a vastag mintákra történő általánosítása [44] szintén egyezést mutat (2.21)-gyel. Publikációinkban az illesztéseket [38] nemlineáris abszorpciót is figyelembe vevő formulájával tettem meg. Ennek oka az volt, hogy ekkor még a különböző közlemények eltéréseit, és annak okait nem vizsgáltam, valamint ez a képlet kényelmesen kezelhető volt.

A RAFAEL QUINTERO-TORES által ismertett gondolatmenet [43] pedig valamelyest hasonló [37]-hez. Végeredményként egy olyan formulát hoz ki a transzmisszióra, melyben az anyag lineáris törésmutatója is szerepel oly módon, ahogy nem lenne szabad. Ugyanis, ha vékony mintát használunk, melyben a diffrakció elhanyagolható, eredményünk nem függhet a közeg törésmutatójától.

HAUS [40] és KUEI cikkei [41–42] között szintén nincs teljes összhang. HAUS cikkének [40] a függelékében bevezetésre kerül a $2K = \frac{8P}{\pi} \left(\frac{\pi}{\lambda}\right)^2 n_2$ Kerr-paraméter, ami a 2.2. fejezetben említett transzformációhoz szükséges. Ezen függelék (A.14) egyenletének megoldásaként viszont a cikk (4.4) összefüggését tekinti, melyben megjelenik a közeg nemlineáris törésmutatója. Később KUEI [41]-ben hivatkozik erre az eredményre, és megemlíti nélkül korrigálja a hibát. Ha a Kerr paramétert $K = \frac{8P}{\pi} \left(\frac{\pi}{\lambda}\right)^2 n_0 n_2$ módon definiáljuk és ha a q' -re vonatkozó helyes (2.23) terjedési egyenletet használjuk, akkor pontosan olyan Z-scan görbét kaphatunk, mint [35]-ben. A [40] és a [41, 42] viszont csak $n_0 = 1$ esetén egyezik meg. A [41] és [42] cikkek alapján számolt Z-scan görbéknek az n_0 értékétől való függetlensége, szintén ezen publikációk helyességét támasztja alá. Továbbá [41] és [42] teljesen egybecseng SHEIK numerikus modelljének eredményeivel [37]. A Z-scan görbék származtatásához persze a mintába lépéstől az apertúráig végig kell követni a Gauss-nyalábot, ennek tárgyalását majd saját modellem ismertetése során teszem meg.

KWAK eredményei [39] az alkalmazhatósági határokon belül teljesen összhangban vannak SHEIK numerikus módszerével származtatható eredményeivel, viszont a (2.20) és (2.22) analitikus képletek $D \gg 1$ esetén csak akkor egyeznek meg, ha (2.20) második tagjának nevezőjében a 2-es hatványkitevő helyett $3/2$ van. Ez feltehetőleg [37]-ben csak elírás.

3.2. Saját elméleti modellszámítások eredményei

Láthatjuk, hogy sok módszer létezik a Z -scan görbék származtatására. Ezen görbéknek a mérési pontok illesztésekor van szerepük, hisz így tudjuk az anyagi paramétereket meghatározni. Az ismertett módszerek túlnyomó része csak erős korlátok között teszi lehetővé az alkalmazhatóságot. Az alábbiakban ismertetek egy saját elgondoláson alapuló modellt a Z -scan görbék elméleti meghatározására. Ezen módszer érvényes tetszőleges mintavastagság és tetszőleges mértékű nemlinearitás esetén is.

A módszerrel a nyalábot végigkövetjük a mintába való belépéstől az apertúráig. Legyen ismert a w_0 nyalábnyak a fókusz síkban. A fókuszban a q_f paraméter tehát:

$$q_f = i \frac{\pi w_0^2}{\lambda}. \quad (3.1)$$

Amennyiben a veszteségektől eltekintünk, tetszőleges z helyen az optikai tengely menti intenzitás és a csúcshintenzitás között a következő összefüggés van:

$$I_0 w_0^2 = I(0, z) w(z)^2. \quad (3.2)$$

Az $I(r, z)$ intenzitásra pedig parabolikus közelítést használva:

$$I(r, z) = I(0, z) \cdot e^{-\frac{2r^2}{w(z)^2}} \approx I(0, z) \left(1 - \frac{2r^2}{w(z)^2} \right). \quad (3.3)$$

Ezt az $n(r, z) = n_0 + n_2 I(r, z)$ összefüggésbe beírva a következőhöz jutunk:

$$n(r, z) \approx n_0 + n_2 I(0, z) \left(1 - \frac{2r^2}{w(z)^2} \right) = n(0, z) \left(1 - \frac{2n_2 I(0, z)}{n(0, z)} \cdot \frac{r^2}{w(z)^2} \right), \quad (3.4)$$

amely szerint a törésmutatónak az r -től való függése nagyon hasonlít a gradiens-törésmutatójú közeg

$$n(r) = n_0 \left(1 - \frac{r^2}{2l^2} \right) \quad (3.5)$$

összefüggéséhez [34]. Alapvető különbség viszont, hogy esetünkben a (3.5)-beli l érték nem konstans, hanem $l = l(z)$. Emiatt a mintát célszerű olyan $\Delta Z \ll L$ rétegekre bontani, melyeken belül l állandónak tekinthető. A véges minta tehát gradiens-törésmutatójú közegek sorozatával helyettesíthető. A (3.5)-ben szereplő $l(z)^2$ tehát:

$$l(z)^2 = \frac{n_0 w(z)^4 + n_2 I_0 w_0^2 w(z)^2}{4n_2 I_0 w_0^2}. \quad (3.6)$$

Amennyiben $n_0 \gg n_2 I_0$, a fenti összefüggés az

$$l(z)^2 = \frac{n_0 w(z)^4}{4n_2 I_0 w_0^2} \quad (3.7)$$

alakra egyszerűsödik.

Ha a minta bemeneti síkja a fókuszsíktól Z távolságra van, akkor közvetlenül a belépés után a 0. rétegben a q paraméter:

$$q_0 = (q_f + Z) n_0. \quad (3.8)$$

A gradiens-törésmutatójú közeg $ABCD$ mátrixát [34] felhasználva, valamint kihasználva, hogy a minta szeletekre bontása olyan finom, hogy

$\Delta Z = L/N \ll l_i = l(Z + i\Delta Z)$ teljesül (N a beosztások száma), akkor

$$T_i = \begin{pmatrix} 1 & \Delta Z \\ -\frac{\Delta Z}{l(Z + i\Delta Z)^2} & 1 \end{pmatrix} \quad (3.9)$$

adódik az i -edik réteg $ABCD$ mátrixára. Innen (2.10)-t felhasználva, a szomszédos zónák q_i és q_{i+1} paramétereinek közti kapcsolat:

$$q_{i+1} = \frac{q_i + \Delta Z}{-\frac{\Delta Z}{l_i^2} + 1}, \quad (3.10)$$

ahol l_i a (3.6)-ból meghatározható mennyiség, melyben a $w(z)$ (azaz w_i) q_i -ből (2.9) alapján egyszerűen meghatározható. A q paraméter segítségével tehát végigkövethető a nyaláb a mintában. A minta kimeneti síkján történő törést pedig a

$$q_e = \frac{q_N}{n_0} \quad (3.11)$$

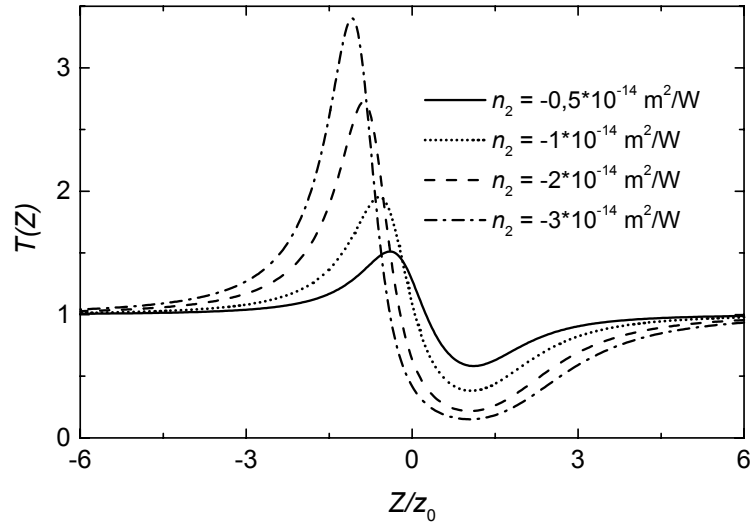
egyenlettel írjuk le. Innen a detektorig a szabad térben $s - L - Z$ távolságot kell megtenni, ahol s a fókusz–apertúra távolság. Az apertúránál, tehát

$$q_a = q_e + s - L - Z, \quad (3.12)$$

ahonnan (2.9) alapján w_a számolható. Ennek ismeretében pedig a normált transzmisszió a

$$T(Z/z_0) = \frac{w_a^2(Z, n_2 = 0)}{w_a^2(Z, n_2)} \quad (3.13)$$

módon adható meg. A számításokat elvégeztem vékony, illetve vastag mintákra, kis és nagy nemlinearitásokra egyaránt. A számítások során a fókusz–apertúra távolságot a szkennelési tartománynál jóval nagyobbra választottam ($s \gg z_0$). Ha ez a feltétel teljesül, akkor a görbe független s értékétől. Viszont arra még ezen feltétel mellett is érzékeny a görbe, hogy a fókusz–apertúra, vagy a minta–apertúra távolságot tartjuk állandónak. Továbbá az eredmények a hullámhossztól függetlenek. Vastag minta esetén a Rayleigh-hossz, a lineáris és nemlineáris törésmutató, a teljesítmény és a mintavastagság határozza meg a Z -scan görbét. Így tehát, ha n_2 kivételével valamennyit ismerünk ezek közül, akkor az, mint illesztési paraméter meghatározható. Amennyiben más releváns paraméter (pl. z_0) is ismeretlen, úgy több paraméteres illesztésről van szó.



3.2. ábra. Néhány saját elmélet alapján származtatott Z-scan görbe vastag mintára és különböző mértékű nemlinearitásokra

A 3.2. ábra az elméleti görbéket mutatja vastag minta ($L/z_0 = 2$) esetén. A számítások során $z_0 = 1$ mm, $P = 1$ W, $n_0 = 2,2723$ valamint $\lambda = 514$ nm volt feltételezve. Az n_2 paraméterek az ábrán fel vannak tüntetve. Eredményeim vékony minta esetén teljes összhangban vannak a [39], vastag minta esetén pedig a [35, 37, 41, 42] cikkek eredményeivel. Számítási módszerem előnye, hogy tetszőleges mintavastagságra és tetszőleges mértékű nemlinearitásra érvényes. Előny továbbá, hogy az abszorpció (lineáris és nemlineáris), valamint a speciális eseteknek megfelelő változó nemlineáris törésmutató (lásd 4.5. fejezet) könnyen beépíthető a modellbe.

3.3. Az abszorpció hatása

Az előző fejezetben csak a nemlineáris törésmutató hatását vizsgáltuk, az abszorpciót figyelmen kívül hagytuk. Amennyiben lineáris abszorpció van jelen, a minta adott pontjában abszorbeálódó fény mennyisége arányos a lokális intenzitással:

$$dI/dz = -\alpha I, \quad (3.14)$$

ahol α a lineáris abszorpció együttható. Az L vastagságú minta úgy viselkedik, mintha $L_{\text{eff}} = (1 - e^{-\alpha L})/\alpha$ hosszúságú lenne [1]. Viszont a normált Z -scan görbéknek ennek semmiféle hatása nincs akár nyitott, akár pedig zárt apertúras mérésekről van szó. A nemlineáris abszorpció, – melyet a (2.27) ír le – viszont befolyásolja a görbét. Zárt apertúras mérések esetén a β , mint újabb független illesztési paraméter jelenik meg [38], nyitott apertúras mérések során pedig vékony minta esetén az egyetlen illesztési paraméter [1] (ha a nyaláb minden paramétere ismert). Amennyiben síkhullám terjedését vizsgáljuk, és fellép a lineáris és a nemlineáris abszorpció is, az intenzitás változást a

$$dI/dz = -\alpha I - \beta I^2 \quad (3.15)$$

egyenlet írja le. Ennek megoldása az $u(z) = 1/I(z)$ változó bevezetésével könnyen megadható, mely

$$I(z) = \frac{I_0}{\left(1 + I_0 \frac{\beta}{\alpha}\right) e^{\alpha z} + \frac{\beta}{\alpha} I_0} \quad (3.16)$$

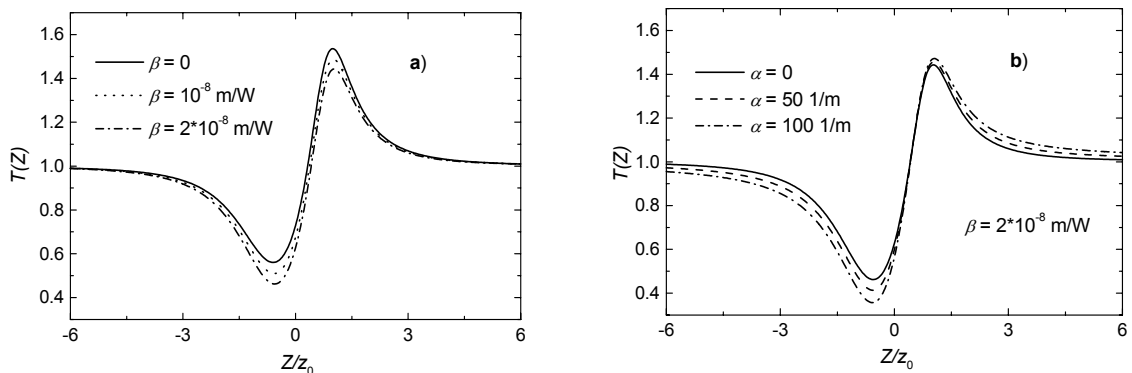
alakú.

Ha Gauss-nyaláb terjedése során vizsgáljuk az abszorpciót, akkor az egzakt tárgyalás bonyolulttá válik, főleg, ha nemlineáris törésmutatóval bír a közeg. Az előző fejezetben ismertetett modellben az abszorpciót nem túl bonyolult figyelembe venni, mégpedig a következő módon. A (3.10) egyenlet alapján a mintában a q -paramétert nyomon tudjuk követni. Veszteségmentes esetben tehát ismert minden rétegben q , azaz w , vagyis a tengelymenti intenzitás is. Így minden egyes rétegben, ahol a tengelymenti intenzitásnak a diffrakcióból származó változásával nem kell számolnunk,

$$\Delta I = -\alpha I \Delta z - \beta I^2 \Delta z \quad (3.16)$$

alapján határozhatjuk meg az abszorbenciát. Egy adott rétegben pedig annival kevesebb az intenzitás a veszteségmentes esethez képest, mint amennyi az előző rétegekben abszorbeálódott. A modellnek hiányossága azonban, hogy az abszorpció

nemlinearitása miatt az optikai tengelytől különböző távolságokban az intenzitás relatív csökkenése különböző. Ez pedig a Gauss-intenzitáseloszlás torzulását eredményezi. Amennyiben tisztán nemlineáris abszorpció valósul meg a 3.3a. ábra görbéi mutatják ennek hatását adott n_2 mellett. A 3.3b. ábrán pedig adott n_2 és β mellett a lineáris abszorpció hatása látható. Amikor nem volt jelen nemlineáris abszorpció, akkor nem lehetett a lineáris abszorpció hatását észlelni, most viszont lehet. A 3.3a. illetve 3.3b. ábrák görbéinek számításai során $L/z_0 = 1$, $P = 1,85$ W illetve $n_2 = 6 \cdot 10^{-15}$ m²/W voltak feltételezve, melyek a mérések során reálisak lehetnek. Az abszorpciók együtthatókat az ábrákon feltüntettem.



3.3. ábra. Számított Z-scan görbék olyan esetekre, amikor a nemlineáris törésmutató mellett a nemlineáris abszorpció is jelen van (3.3a.), illetve a lineáris és nemlineáris abszorpció együttesen jelen van (3.3b.)

4. Kísérleti eredmények

4.1. A vizsgált minták, felhasznált eszközök

A mérések célja lézerindukált törésmutató-változás vizsgálata LN kristályban. A mérések túlnyomó részét a PTE Kísérleti Fizika tanszékének kutató laboratóriumaiban végeztem, kisebb hányadát pedig az MTA-SZFKI laboratóriumában. Ennek oka csupán az volt, hogy lézerünk meghibásodott, a hiba elhárítása pedig hosszú időt vett igénybe. Ennek hátránya az volt, hogy a mérési körülmények nem voltak azonosak, amit az eredmények összehasonlításánál szem előtt kell tartani. A vizsgálatokhoz valamennyi mintát az SZFKI Kristálytechnológiai Osztályán állították elő. A vizsgálatokhoz tiszta,

vassal, illetve magnéziummal dopolt LN mintákat használtam, melyek a 4.1. táblázatban vannak rendszerezve.

Minta	Kód, növesztési szám	Li konc. mol%	Adalék konc. mol%
Sztöchiometrikus sLN	#1 179 801	50	-
Kongruens + Fe cLN: 10 ⁻³ % Fe	#2 148 211	48,6	10 ⁻³ mol% Fe
Kongruens + Fe cLN: 10 ⁻² % Fe	#3 149 907	48,6	10 ⁻² mol% Fe
Kongruens cLN	#4 118 121	48,6	-
Kongruens + Mg cLN: 5,0% Mg	#5 140 002	48,6	5,0 mol% Mg (4,5 mol%)
Sztöchiometrikus + Mg sLN: 0,67% Mg	#6 170 105	49,82	0,67 mol% Mg (2,2 mol%)
Sztöchiometrikus + Mg sLN: 5,0% Mg	#7 170 002	49,92	5,0 mol% Mg (4,5 mol%)
Kongruens + Mg cLN: 6,1% Mg	#8 149 908	48,6	6,1 mol% Mg (8,0 mol%)

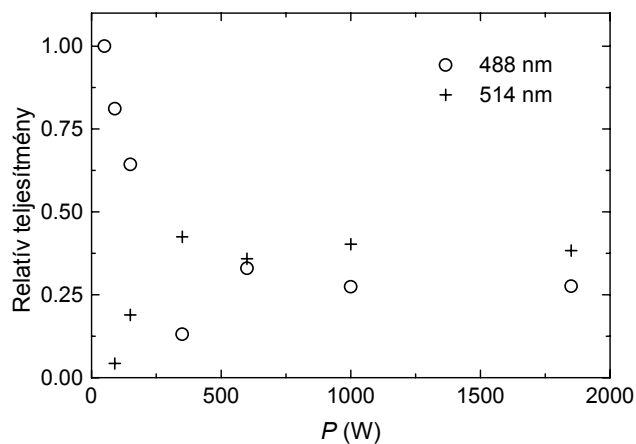
4.1. táblázat. A mérések során használt minták és azok összetételei

Az első oszlopban a sztöchiometria, valamint az adalékolás típusa van feltüntetve. A második oszlopban szerepel a minta növesztési sorszáma, valamint jelen dolgozatbeli kódja. A harmadik oszlop tartalmazza a pontos [Li]/[Nb] arányt, melynek meghatározása a dopolatlan minták esetén az UV abszorpciós él pozíciójának mérésével történt. Dopolt minták esetén pedig feltételeztük, hogy az arány ugyanaz, mint azon dopolatlan minták esetén, melyek növesztése a dopoltakkal azonos körülmények között történt. A negyedik oszlopban a beépült dopoló anyag koncentrációja szerepel. Ennek meghatározása atomabszorpciós spektroszkópiai módszerrel történt. Ezen minták esetén zárójelben megadjuk az oldatbeli koncentrációt is.

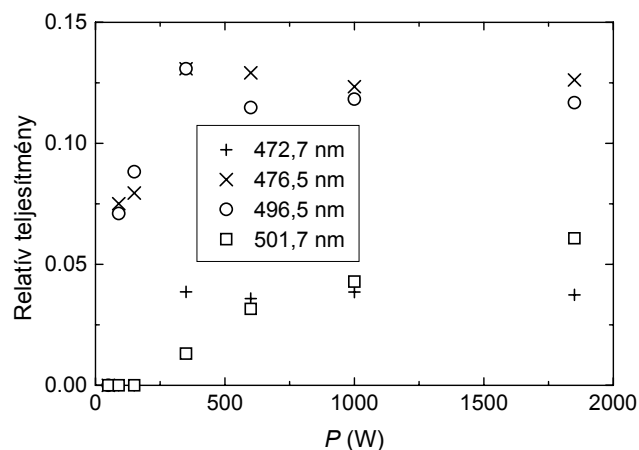
A kongruens kristályok növesztése a hagyományos Czochralski-módszerrel történt, míg a sztöchiometrikusaké flux módszerrel, K_2O (12–13 mol%) tartalmú oldatban. A Mg adalékolás pedig MgO formájában történt.

Valamennyi minta vastagsága $L = 2$ mm volt, szélességeik pedig 5 és 10 mm között változtak. A különböző minták a könnyebb megkülönböztethetőség kedvéért szélességeikben különböztek. A mintáknak Y -metszeteit vizsgáltam, kivéve #6-ot, melynek a Z -metszetét is.

A PTE laboratóriumában rendelkezésünkre állt egy COHERENT-INNOVA 90 típusú Ar-ion lézer (Lézer 1), melynek csúcsteljesítménye 4,5 W körül volt összvonalon. Valamennyi mérés során összvonalon működtettem a lézert. Az egyes hullámhosszak relatív teljesítményei a 3.4. és a 3.5. ábrákon látható a lézertől kijövő összteljesítmény függvényében. A 3.4. ábrán látható, hogy nagy teljesítmények esetén az 514 és a 488 nm-es vonalak a meghatározók, míg kis teljesítmény esetén a 488 nm-es.



3.4. ábra. Összvonalon működő Ar-ion lézer 488 nm, illetve 514 nm-es vonalának relatív teljesítménye



3.5. ábra. Összvonalon működő Ar-ion lézer kevésbé intenzív vonalainak relatív teljesítménye

A Z-scan elrendezésben (2.1. ábra) a D_1 detektor egy TEXAS INSTRUMENTS gyártmányú fotodióda, míg D_2 egy SCIENTECH típusú termikus detektor volt. A termikus detektor időállandója 10 s körül volt. Nagy teljesítmény esetén a D_1 fotodióda sérülésének elkerülése végett a mintán átmenő fényt üveg felületen reflektáltattam, mielőtt az apertúrára engedtem. Az SZFKI laborjában pedig SPECTRA PHYSICS gyártmányú Ar-ion lézerrel dolgoztam (Lézer 2). Mivel a mérések kisebb hányada történt ezzel a lézerrel, ezért a dolgozatban ahol nincs jelölés, ott úgy értendő, hogy Lézer 1-gyel történt a mérés. Csak a Lézer 2-t fogom külön feltüntetni. A Z-scan mérésekhez a fókuszálást három különböző lencsével tettem meg: $f = 80, 91$ ill. 100 mm fókusz távolságúakkal. Ez utóbbi kettő kvarc, az első pedig üveglencse volt. Nyalábosztónak ékes üveglemezt, a minta pozicionálására pedig mechanikus (PTE), illetve piezoelektromos (SZFKI) eltolót használtam.

A kis apertúras megfigyelés a mintától legalább 30 cm-es távolságban történt. Ezzel biztosítottam a távoli zónabeli megfigyelést, hisz a Rayleigh-hossz a mm-es tartományba esett, a szkennelési tartomány pedig 20–30 mm volt. A kör alakú apertúra átmérője 1–3 mm között volt, ami kb. tized része az apertúrasíkban lévő tipikus foltméretnek.

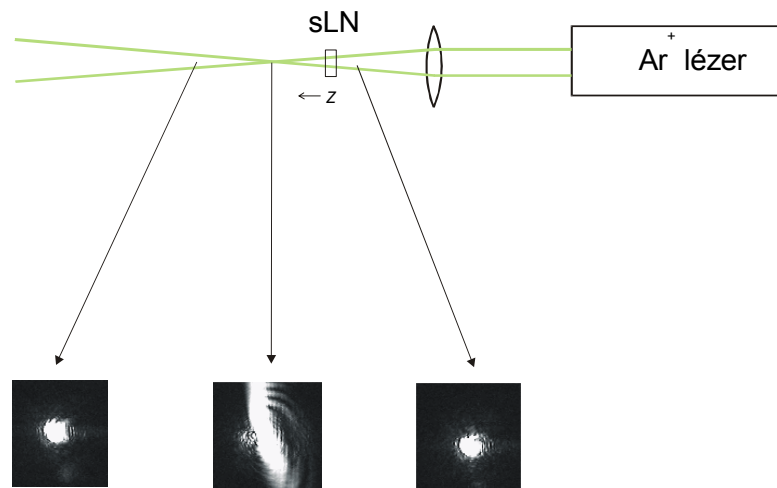
A mérések során az Ar-ion lézert a legkülönbözőbb teljesítményeken működtettem, a tized mW-tól a 2W-ig terjedő tartományban. Mivel a LN törésmutatója nagy, ezért merőleges beesés esetén a párhuzamos felületeken a teljesítmény kb. 15-15%-a reflektálódik. A nemlineáris effektusokat a mintában lévő intenzitás határozza meg, amit nem tudunk mérni. Megállapodás szerint valamennyi esetben a teljesítmény alatt a nyaláb mintába való belépés előtti összteljesítményét értem, melyet minden esetben meghatároztam. A grafikonokon, táblázatokban is ezt az értéket tüntetem fel.

A mérések megkezdése előtt a minták felületeit gondosan megtisztítottam, ehhez szerves oldószereket (metanol, aceton) használtam. A mérések első lépése a detektorok linearitásának ellenőrzése volt. A minták rögzítése X - Y - Z eltolóra helyezett mintatartóban történt. A szkennelés a fény terjedésének irányában (optikai tengely) történt, a minta felülete a legtöbb esetben merőleges volt az optikai tengelyre. Az Y -metszetű minták úgy voltak elhelyezve, hogy a kristályoptikai Z -tengely a lézer polarizációjával párhuzamos, a Z -metsztű pedig úgy, hogy arra merőleges legyen.

4.2. A fotorefraktív LiNbO₃ minták

Az általam vizsgált minták a bennük fényintenzitás hatására bekövetkező változások jellege alapján két típusba sorolhatók. Ebben fejezetben az #1, #2, #3, #4 és #5 jelzésű mintákról szólok.

Néhány mW teljesítmény mellett, $f = 80$ mm-es lencsét használva (kW/cm^2 -es intenzitás) az #1, #2, #3 és #4 mintákat szkennelve vizsgáltam a mintán átmenő nyalábnak a képét távoli zónában elhelyezett ernyőn. Mind a négy minta esetén a nyalábnak az optikai tengely irányában történő jelentős megnyúlását tapasztaltam. Az #1 minta esetén 10 mW teljesítményt ($1,5 \text{ kW}/\text{cm}^2$ intenzitást) használva CCD felvételt készítettem. A mintán átmenő nyaláb adott síkbeli foltját lencsével a kamera érzékelőjére képeztem le. A 4.1. ábrán láthatók a fókusz sík környezetéhez illetve a szkennelési tartomány széleihez tartozó mintapozíciók nyalábképei.

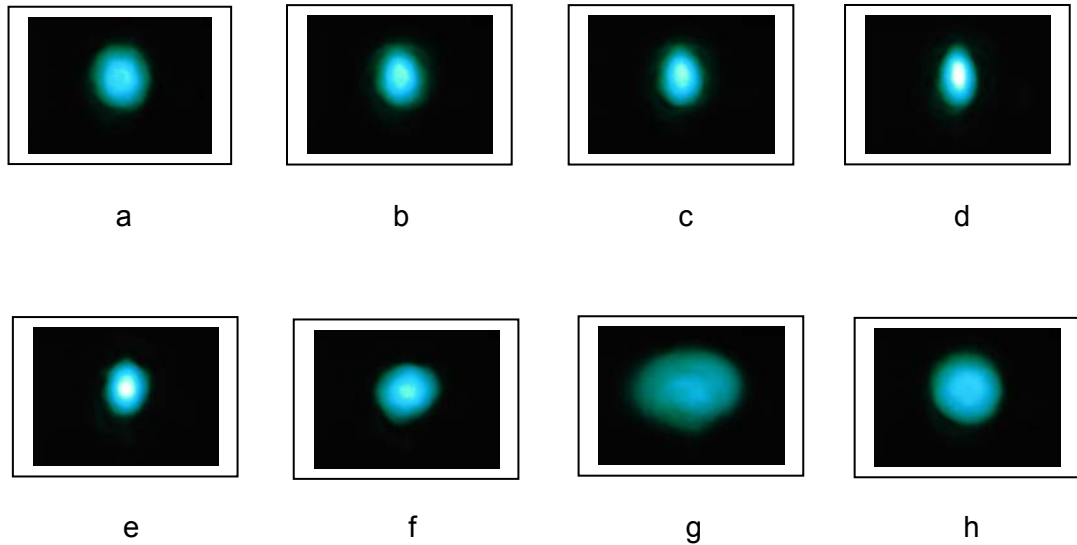


4.1. ábra. Sztöchiometrikus LN nevezetes mintapozíciókhoz tartozó nyalábkérszmettszete látható távoli zónában megfigyelve 10 mW teljesítmény ($1,5 \text{ kW}/\text{cm}^2$ intenzitás) mellett

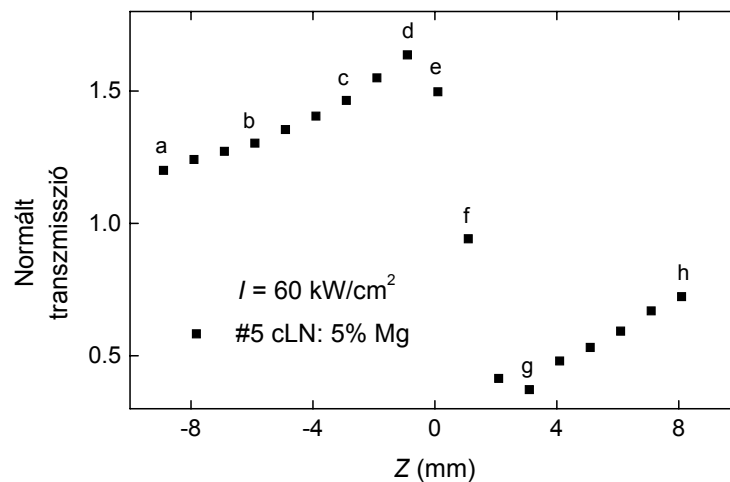
A tartomány jelentős részén a nyalábkérszmettszete megnyúlása volt látható, mely a fókusz közelébe helyezett minta esetén a legjelentősebb. Az ilyen anizotrop jellegű szórás, amit a 4.1. ábra is mutat jól ismert jelenség a LN esetén [31, 32]. A Z-scan mérés, mint kvantitatív módszer ez esetben nem alkalmazható, hisz a standard Z-scan elméletek hengersizmetrikus effektusokat feltételeznek.

Az 5,0 mol% Mg-mal adalékolt #5 mintában viszont ekkora teljesítményszint és ilyen fókuszálás esetén nem figyeltem meg nyalábtorzulást, viszont 400 mW

teljesítmény (60 kW/cm^2 intenzitás) hatására már igen. A 4.2. ábra mutatja ezen minta nyalábkeresztmetszetének a torzulását a szkennelés alatt (a,..h), mely során a fókusz előtti pozíciókból haladtam a fókusz mögöttiek felé (lásd 4.3. ábra). A felvételt ez esetben NIKON-885 típusú digitális fényképezőgéppel készítettem. A direkt nyaláb detektálása helyett egy távoli zónában elhelyezett fehér ernyőn létrejövő, adott mintapozícióhoz tartozó foltot rögzítettem.



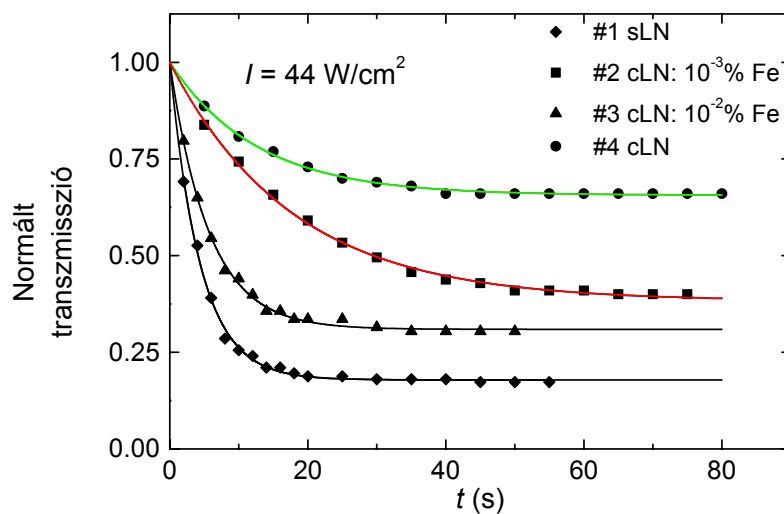
4.2. ábra. 5,0 mol% Mg-mal dopolt kongruens LN nyalábkeresztmetszete látható távoli zónában megfigyelve a szkennelés során, 400 mW teljesítmény (60 kW/cm^2 intenzitás) mellett



4.3. ábra. 5,0 mol% Mg-mal dopolt kongruens LN 400 mW teljesítmény mellett felvett Z-scan görbéje

A 4.2. ábrán látható anizotrop viselkedés ellenére a *Z*-scan görbét felvettem, viszont az elméleti görbével történő illesztést nem tettem meg, hisz az félrevezető eredményt adna. Igaz, az [55] publikációban megtettem az illesztést, ugyanis akkor még a nyalábkeresztmetszet vizsgálata nem történt meg ennél a mintánál. Így az [55]-ben közölt n_2 érték egy becslése a nemlineáris törésmutatónak az #5 minta esetén. A minta 400 mW teljesítmény mellett felvett *Z*-scan görbéje a 4.3. ábrán látható.

Az #1 – #5 minták jellegzetes nyalábkeresztmetszet-változása (4.1. és 4.2. ábrák) és az #5 minta *Z*-scan görbéjének előjele (fókusz előtti hegy, fókusz utáni völgy) fotorefrakció jelenlétére utal [30–33]. Annak érdekében, hogy a mintákat (#1 – #5) a fotorefrakció mértéke alapján összehasonlíthassuk, megvizsgáltam a fotorefrakciónak az időbeli felépülését. Erre a célra szintén a *Z*-scan elrendezést használtam. Ezúttal a minták szkennelése helyett kiválasztottam egy állandó pozíciót, konkrétan olyan fókusz mögötti helyet, ahol a változás (csökkenés) mértéke jelentős. Valamennyi mintát ebben a pozícióban rögzítettem és azonos megvilágítást használva mértem a D₁ fotodetektorral az elé helyezett kis apertúrán átmenő teljesítményt. Mivel az #1 – #4 minták esetén a nyaláb időbeli tágulása a lézerből kijövő 10 mW körüli minimális stabilizálható teljesítmény esetén is gyors volt, ezért a lézer fényét egy felületen reflektáltam. Így 0,3 mW mellett tudtam mérni a változást a másodperces időskálán. A működési hullámhossz a 3.4. ábrának megfelelően 488 nm volt. A mért eredmények a 4.4. ábrán láthatók.



4.4. ábra. A fotorefrakció időbeli felépülése látható tiszta és vassal dopolt LN minták esetén 0,3 mW teljesítmény mellett

A 4.4. ábra mérési adatait a $T(t) = A_1 + (1 - A_1) \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right)$ formulával illeszttem. A tranziens fotorefrakciós folyamat időállandóit (τ) és a stacionárius állapotbeli transzmisszió értékeit (A_1) a 4.2. táblázatban foglaltam össze.

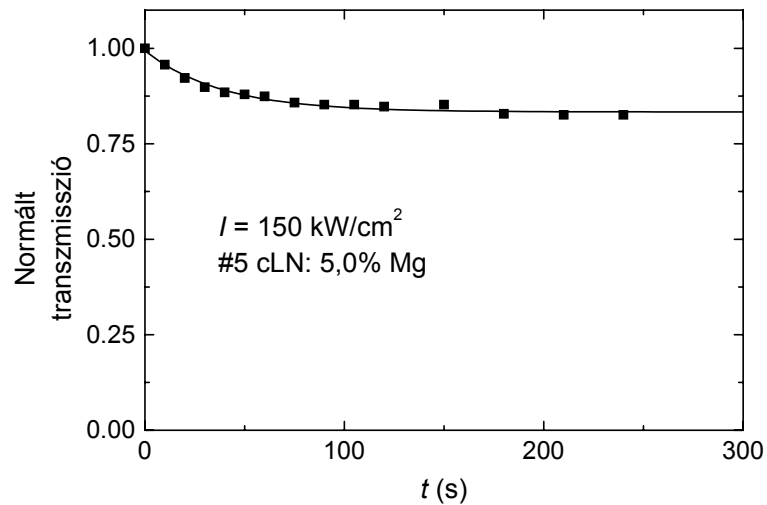
Minta	τ (s)	A_1	I (W/cm ²)
#1	4,3	0,18	44
#2	17,8	0,38	44
#3	5,6	0,31	44
#4	12,6	0,66	44
#5	38	0,83	$1,5 \cdot 10^5$

4.2. táblázat. A mért időállandók és a transzmissziók stacionárius értékei tiszta és vassal dopolt minták, valamint magnéziummal dopolt kongruens LN esetén

Összehasonlítva az időállandókat azt állíthatjuk, hogy a tiszta sztöchiometrikus LN (#1) jóval érzékenyebb a tiszta kongruensnél (#4). A stacionárius állapotbeli transzmisszióérték szintén jóval kisebb #1 esetében, mint #4-nél. Ezen eredmények jó összhangban vannak [22]-vel, ahol a fotorefrakció roncsolási küszöbét vizsgálták. Viszont ellentmondásban vannak [26]-tal, ahol a kettős törés változását vizsgálták. Ezzel a módszerrel vizsgálva ugyanis a tiszta kongruens minta érzékenyebbnek bizonyult a tiszta sztöchiometrikusnál.

[19] megfelelő képlete azt állítja, hogy a τ időállandó, amit Maxwell-féle relaxációs időnek nevez fordítottan arányos a lézerintenzitással, valamint függ a donor- és akceptorionok koncentrációjától. Eredményeim azt mutatták, hogy a vassal dopolt minták közül az a minta az érzékenyebb (#3), melyben a vas koncentrációja nagyobb.

A Mg-mal dopolt kongruens (#5) minta 0,3 mW teljesítmény hatására nem mutatott semmiféle nyalábtorzulást, ekkora teljesítmény mellett a transzmisszió időben állandó. Csak lényegesen intenzívebb megvilágítást használva lesz kimutatható az effektus. A 4.5 grafikon pontjai 1 W teljesítmény mellett lettek felvéve. Az illesztési paraméterek (4.2. táblázat) azt mutatják, hogy ezen minta esetén a legnagyobb mind a tranziens folyamat időállandója, mind pedig a stacionárius transzmisszió érték, annak ellenére, hogy csaknem négy nagyságrenddel nagyobb intenzitást alkalmaztam.



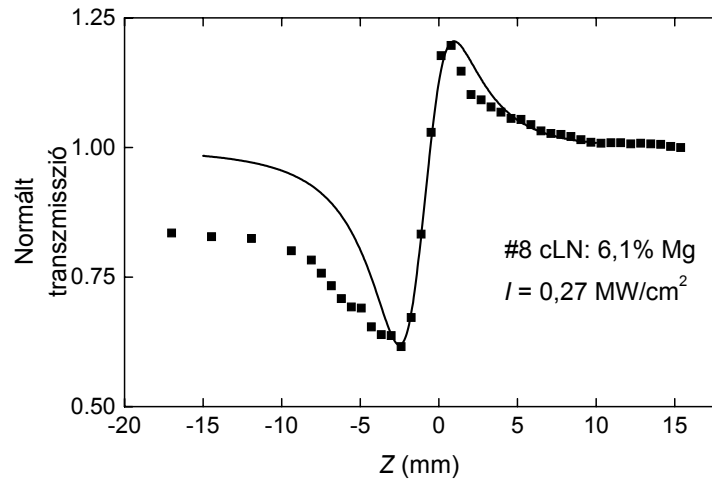
4.5. ábra. A fotorefrakció időbeli felépülése látható az 5,0 mol% Mg-mal dopolt LN minta esetén 1 W teljesítmény mellett

A nyálábkeresztmetszetről készült digitális felvételek is ezt mutatják, hisz a lényegesen nagyobb intenzitás szinten sincs olyan mértékű nyálábtorzulás az #5 minta esetén, mint a többi fotorefraktív mintánál. A Mg-mal történő dopolás tehát a fotorefrakciót jelentősen csökkentette.

4.3. A nem fotorefraktív minták

A Mg-mal dopolt sztöchiometrikus (#6, #7) és az erősen dopolt kongruens (#8) minták esetén a transzmisszió vizsgálata során a másodperces időskálán nem tapasztaltam változást. A félreértés elkerülése végett megjegyzem, hogy az [56,57]-es közleményeinkben szerepel ugyan egy SZ + Mg-vel (illetve s + 4,5Mg + 10^{-4} Fe - vel) jelzett Mg tartalmú sztöchiometrikus minta, mely esetén a transzmisszió időbeli fejlődése mérhető volt ezen az időskálán, de ez a minta némi vasat is tartalmazott. Ez a minta nem szerepel a 4.1. táblázatban.

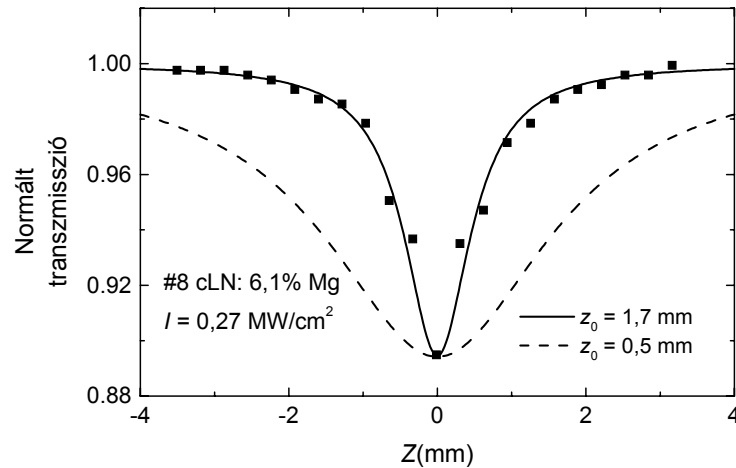
A #8 minta abban különbözik #5-től, hogy a beépült Mg adalék-koncentráció nem 5,0% hanem 6,1%. Ezen minta Z-scan görbáját 1850 mW teljesítmény mellett vettem fel ugyancsak $f = 80$ mm-es lencsét használva. A kísérlet eredménye a 4.6. ábrán látható.



4.6. ábra. 6,1 mol% Mg-mal dopolt kongruens LN 1850 mW teljesítmény mellett felvett Z-scan görbéje

A 4.6. ábra görbéjének menetéből azonnal szembetűnő, hogy a hegy és a völgy sorrendje fordított, mint a kisebb mértékben dopolt (#5) minta esetén (4.3. ábra). Ez annyit jelent, hogy a nemlinearitás előjele ellentétes; az 5,0 mol% Mg-mal dopolt kongruens LN (#5) esetén negatív, míg a 6,1 mol% Mg-mal dopolt minta (#8) esetén pozitív. A 4.6. ábra pontjainak a [38] cikk nemlineáris abszorpciót is figyelembe vevő formulájával történő illesztéssel $n_2 = 1,4 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^2/\text{W}$ értéket kapunk a nemlineáris törésmutatóra és $\beta = 2,8 \cdot 10^3 \text{ cm/GW}$ értéket a nemlineáris abszorpció együtthatóra.

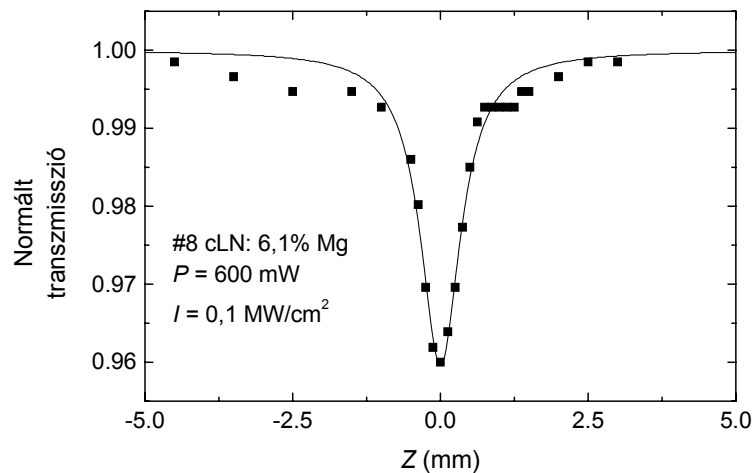
A #8 mintán nyitott apertúrás Z-scan mérést is végeztem a nemlineáris abszorpciónak az előzőtől független módszerrel történő meghatározása céljából. A mérés körülményei azonosak voltak, mint a kis apertúrás Z-scan mérések esetén. A mérés eredménye a 4.7. ábrán látható.



4.7. ábra. 6,1 mol% Mg-mal dopolt kongruens LN 1850 mW teljesítmény mellett felvett nyitott apertúrás Z-scan görbéje. A folytonos, ill. a szaggatott görbék az elméleti görbék

Az ábrán látszik, hogy a nemlineáris abszorpció hatása nem elhanyagolható. A fókuszbeli pozícióban a fény 10%-a abszorbeálódik. A [1] cikk megad egy képletet (dolgozatomban a 2.28 egyenlet) a nyitott apertúrás mérések illesztéséhez. A formulába ugyanakkora Rayleigh-hosszat helyettesítve, mint amekkorát a zárt apertúrás mérések során az illesztő formulába helyettesítettem, szemmel láthatóan nem sikeres az illesztés (szaggatott görbe). A (2.28) képlet ugyanis csak vékony mintákra érvényes. Ennek ellenére voltak, akik vastag mintákra is alkalmazták [58]. Méréseik során pedig azt az érdekességet tapasztalták, hogy a lézerteljesítményt duplájára növelve alig tapasztaltak változást a görbe amplitúdójában, inkább a görbe szélessége változott. A vékony mintás (2.28) képlet pedig nem ezt jósolja. A tapasztalt jelenség magyarázata, hogy vastag minta esetén, amennyiben számottevő a nemlineáris törésmutató, annak hatását nem szabad figyelmen kívül hagyni a mintában történő terjedés leírása során. Ezen effektus miatt ugyanis lényegesen más nyalábméretetek alakulhatnak ki a mintán belül, mint lineáris közegben. Így a szkennelés során mérhető maximális abszorpció nem lesz arányos a teljesítménnyel. Emiatt a vékonymintás formulával történő illesztés során z_0 értékét változtatni kell a különböző teljesítmények esetén. Természetesen így sem egzakt az eredmény, mert nem olyan képletet használtam, ami figyelembe venné azt, hogy pontosan miként terjed a nyaláb a mintában. A kis apertúrás Z-scan görbe illesztésekor (4.6. ábra) $z_0 = 1,7$ mm esetén volt a legsikeresebb az illesztés. A nyitott apertúrás esetben az illesztő formulába ugyanakkora z_0 -t helyettesítve (4.7. ábra, szaggatott görbe) $\beta = 2,8 \cdot 10^3$ cm/GW adódik, de az illesztés szemmel láthatóan nem

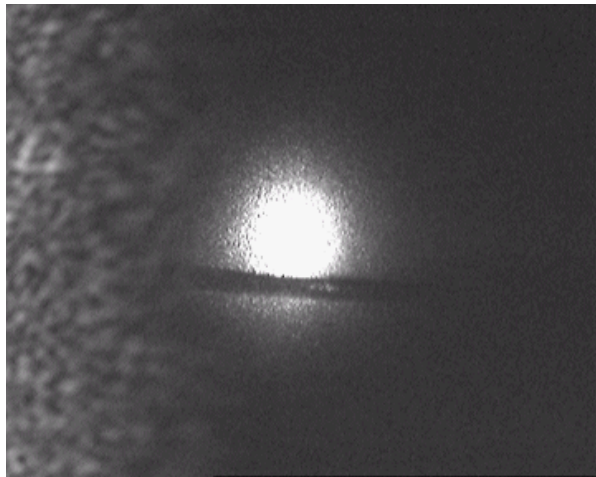
sikeres. Az illesztés $z_0 = 0,5$ mm választásával lesz a legsikeresebb (4.7. ábra, folytonos görbe), ekkor $\beta = 0,85 \cdot 10^3$ cm/GW adódik. Ez természetesen nem azt jelenti, hogy a $z_0 = 0,5$ mm a helyes érték, csupán azt mutatja, hogy a vékonymintás formulában milyen korrekciót kell megtenni. Ugyanezzel a mérési elrendezéssel a nyitott apertúras mérést elvégeztem 600 mW teljesítmény esetén is. Az eredmény a 4.8. ábrán látható, a folytonos vonal az elméleti görbe. Az illesztés során meghatározott nemlineáris abszorpciós együttható szintén $\beta = 0,85 \cdot 10^3$ cm/GW-nek adódik, viszont a jó illesztés $z_0 = 0,4$ mm-t kíván meg. Nyilvánvalóan nagyobb n_2 paraméterrel rendelkező anyag esetén még jelentősebb nyalábméretbeli változások alakulnak ki, azaz z_0 -ban nagyobb korrekciót kell megtenni.



4.8. ábra. 6,1 mol% Mg-mal dopolt kongruens LN 600 mW teljesítmény mellett felvett nyitott apertúras Z-scan görbéje. A folytonos vonal az elméleti görbe.

Az általam mért β értékek három-négy nagyságrenddel kisebbnek adódtak, mint az [58]-ban megadott érték. Igaz, [58]-ban dopolatlan LN minta Z-metszetét vizsgálták mW nagyságrendű teljesítmények mellett, de szintén Ar-ion lézert és ugyanakkora nyalábnyakat használtak, mint én. Az általam használt watt nagyságrendű teljesítményszint mellett az általuk mért β érték csaknem a teljes fénymennyiség abszorpcióját jelentené. Mivel az általuk használt tiszta kongruens mintában a nyalábtorzulások a nagyobb nemlineáris effektusok miatt jóval nagyobbak ([58] 2. ábrája), mint az én esetemben használt Mg-mal dopolt (#8) minta esetén, feltehetőleg az általuk használt mintában nem ez történne.

Láthattuk, hogy a különböző teljesítmények (intenzitások) esetén az illesztésekben z_0 -t különbözőnek kellett venni ahhoz, hogy a nyitott apertúras görbék illesztése sikeres legyen. Arról, hogy a lézerből kijövő nyaláb Rayleigh-hossza valójában a teljesítménytől függ, vagy pedig a nemlineáris törésmutató hatására változik meg a mintában a nyalábméret, az alábbi kísérlettel győződtem meg. A lézerből kijövő fényt egy $f = 50$ mm fókusztávolságú akromát lencsével lefókuszáltam. Ettől a lencsétől 17 cm-re elhelyeztem egy $f = 100$ mm-es fókusztávolságú kvarc lencsét, mellyel az akromát által létrehozott fókuszfoltot ernyőre leképeztem. A nyalábnyak (illetve Rayleigh-hossz) meghatározásához egy $140 \mu\text{m}$ átmérőjű drótdarabot használtam referenciaként, melyet az akromát lencse fókuszába helyeztem (4.9. ábra). Az ernyőn keletkező kép digitális felvételének kiértékeléséből a nyalábnyak, azaz z_0 meghatározható. Az ábrán látható kép esetén a detektor éppen telítésben van, az ábra csupán illusztrációként szolgál, melyen a kontúrok jól láthatók. A lézerteljesítményt széles tartományon változtatva vizsgáltam a nyalábnyaknak az esetleges teljesítményfüggését.



4.9. ábra. A lézer nyalábnyakának a teljesítménytől való függésének vizsgálata

A nyalábkeresztmetszet radiális intenzitáseloszlását az

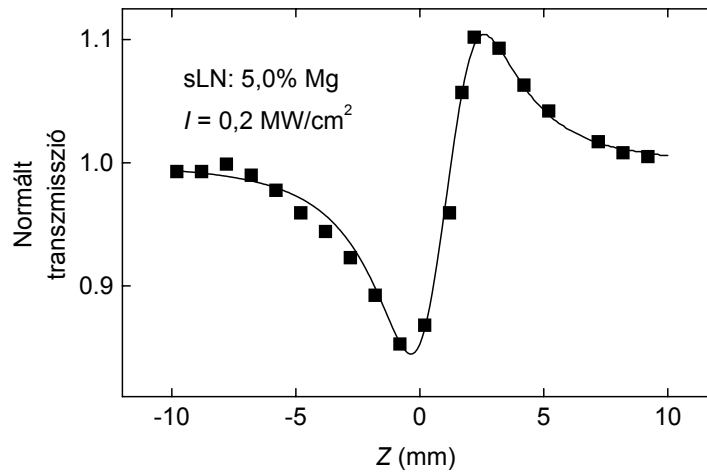
$$I(r) = A + B \cdot e^{-\frac{(r-c)^2}{w^2}} \quad (4.1)$$

formulával illesztettem az ORIGIN 5.1 segítségével. A felvételeken a w nyalábméret és a drót vastagságának az arányából pedig a nyalábnyakra tudunk következtetni egyszerű arányosság alapján. A 4.3. táblázat mutatja a különböző teljesítmények esetén meghatározott nyalábnyakból számolt z_0 -akat. Monotonitás nem fedezhető fel a teljesítmény és a nyalábnyak között, a szórás a mérés véletlen hibájából adódhat. Méréseim során (ugyanúgy, mint [58]-ban) a z_0 -beli korrekciókat a nemlinearitás okozta nyalábtorzulás miatt kell tehát megtenni, nem pedig a lézer nyalábnyakjának a megváltozása miatt.

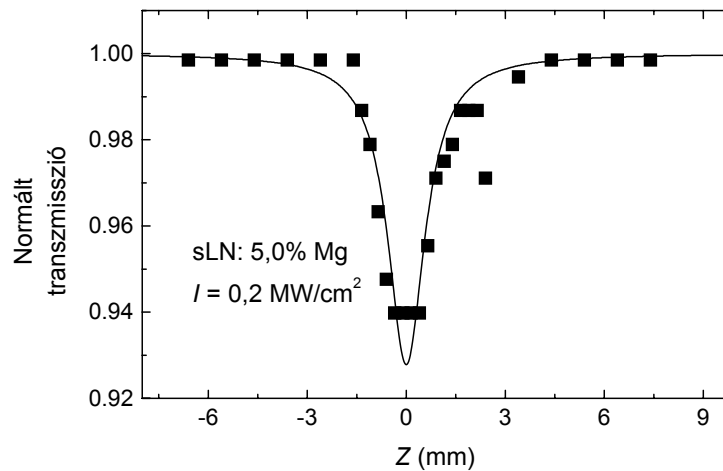
P (mW)	z_0 (mm)
10	0,9
100	0,97
400	0,85
800	1,05

4.3. táblázat. A különböző teljesítményeken mért nyalábnyakakból számolt Rayleigh-hossz a teljesítmény függvényében

Mint az előzőekben láttuk, a 6,1 mol% Mg-mal dopolt kongruens (#8) minta Z -scan görbéje ellentétes menetű, mint az 5,0 mol% Mg-mal dopolt ugyancsak kongruens minta (#5) esetén. Érdekesnek tűnik összehasonlítani azonos Mg koncentrációjú, de különböző sztöchiometriájú mintákat is. Szintén az $f = 80$ mm-es fókusztávolságú lencsét használva felvettem az 5,0 mol% Mg-mal dopolt sztöchiometrikus (#7) minta kis apertúrás (4.10a. ábra) és nyitott apertúrás (4.10b. ábra) Z -scan görbéit $P = 1380$ mW teljesítmény mellett.



4.10a. ábra. Az 5,0 mol% Mg-mal dopolt sztöchiometrikus minta kis apertúráz Z-scan görbéje 1380 mW teljesítmény mellett

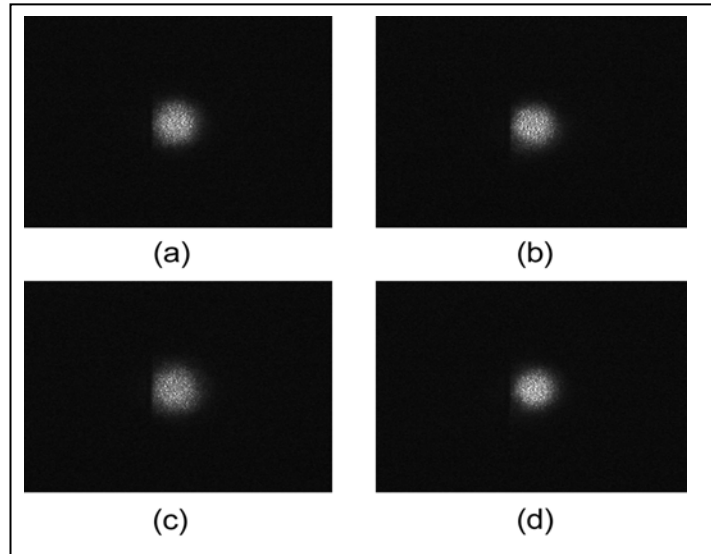


4.10b. ábra. Az 5,0 mol% Mg-mal dopolt sztöchiometrikus minta nyitott apertúráz Z-scan görbéje 1380 mW teljesítmény mellett

A 4.10a. grafikon mérési pontjainak illesztése (folytonos vonal) a [38] cikk nemlineáris abszorpciót is figyelembe vevő formulájával történt. Az illesztés majdnem tökéletes, melyből az $n_2 = 6,6 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^2/\text{W}$, illetve $\beta = 1,7 \cdot 10^3 \text{ cm/GW}$ értékeket kapjuk [55]. A 4.10b pontjainak illesztésekor dolgozatomban (2.28) összefüggését használom, mellyel $\beta = 2,3 \cdot 10^3 \text{ cm/GW}$ adódik a becslésre, noha ehhez a Rayleigh-hosszt $z_0 = 0,65 \text{ mm}$ -nek

kellett választani. Ez irreálisan kicsi, hisz ugyanennél a lencsepozíciónál 50 mm-es fókuszáló lencse esetén mértem 1 mm körüli értéket.

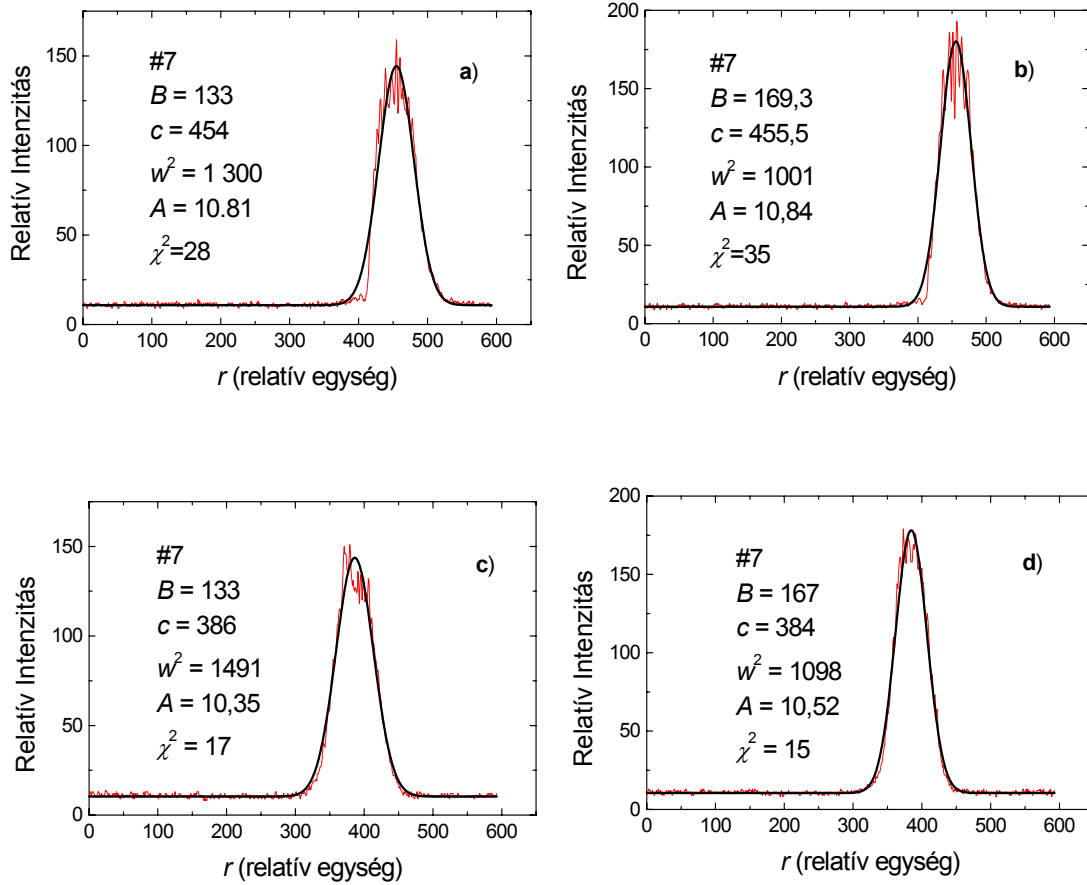
A Z-scan görbék felvétele során CCD kamerával figyeltem a nyaláb keresztmetszetét. Ez esetben a mintán (#7) átmenő direkt nyalábot vezettem a kamerára szürke szűrőn történő áteresztés után. A nyalábkeresztmetszet szemmel láthatóan a szkennelés során mindvégig kör alakú volt. A 4.11. grafikonon a nevezetes mintapozíciókhoz tartozó nyalábkeresztmetszeteket láthatjuk.



4.11 ábra. A szkennelési tartomány nevezetes mintapozícióihoz tartozó nyalábkeresztmetszetek felvételei az 5,0 mol% Mg tartalmú LN esetén

A 4.11a. ábra a szkennelési tartomány szélső pozíciójába, b) ábra a fókuszba, c) a Z-scan görbe minimumába, d) pedig annak maximumába helyezett minta által létrehozott nyalábfoltról készült. A lézer teljesítménye és intenzitása ugyancsak 1380 mW, illetve $0,2 \text{ MW/cm}^2$ volt. A nyaláb alakváltozásának vizsgálatát a CCD felvételek részletes feldolgozásával tettem meg. A nevezetes pozíciókban az intenzitás-eloszlást megvizsgáltam a kristályoptikai tengely, illetve az arra merőleges irány mentén is. Az illesztést a már korábban használt (4.1) formulával tettem meg. Példaként a 4.12. ábrákon a Z-scan görbe maximum, illetve minimum helyéhez tartozó, kristályoptikai tengely menti, illetve arra merőleges intenzitás-eloszlásokat mutatok be. Az illesztésekre szintén az ORIGIN-t használtam. A 4.12a. ábra a Z-scan görbe minimumhelyéhez, a b) ábra pedig a maximumhelyéhez tartozik, melyek a kristályoptikai tengely irányában vizsgált intenzitás-eloszlást mutatják. A 4.12c., ill. d)

ábra pedig ugyanezen pozíciókhoz tartozó felvételeknek az előző irányra merőleges irányban történő feldolgozását mutatja.



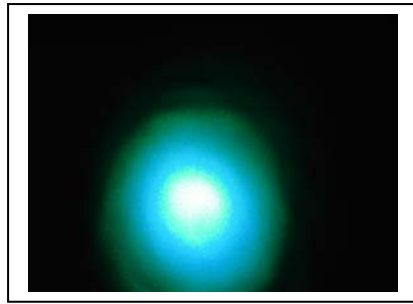
4.12 ábra. Az 5,0 mol% Mg-mal adalékolt sztöchiometrikus mintán áthaladó nyaláb intenzitás-eloszlása a kristályoptikai tengely (a,b) ill. az arra merőleges irányban (c,d)

Az illesztés során kapott w^2 értékekből a kristályoptikai tengely irányában történő vizsgálat során $w_{\min}^2 / w_{\max}^2 = 1,3$, míg az erre merőleges irányba $w_{\min}^2 / w_{\max}^2 = 1,35$ adódik. A Z-scan görbe (4.10a. ábra) maximális és minimális transzmisszió értékeinek (T_{\max} / T_{\min}) hányadosa pedig 1,3. A körszimmetrikus nyalábkeresztmetszet-változás azt kíváná meg, hogy ezen három mennyiség megegyezzen. Ez látható, hogy igen jó közelítéssel teljesül is, amiből arra következtethetünk, hogy a szkennelés során a mintában a fényindukált törésmutató-változás hengerszimmetrikus. Mivel a Z-scan görbe illesztése is sikeres (4.10a. ábra), ezért azon kívül, hogy hengerszimmetrikus a törésmutató-változás az a feltételezés is igazolódik, miszerint arányos az intenzitással, ahogy azt a (2.12) egyenlet kifejezi.

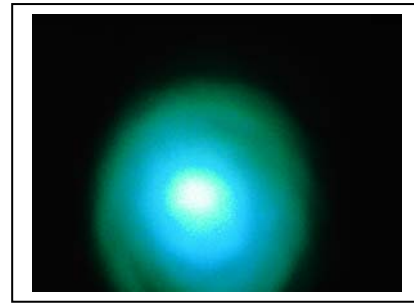
A Z-scan elrendezés maximumában, illetve minimumában megvizsgáltam a #7 mintán átmenő nyaláb transzmissziójának időbeli alakulását kis apertúrán keresztül. Erre a célra fotodiódát használtam, és az időbeli leolvasás pontossága másodperces volt. Különböző teljesítményeket is használtam, de ezen az időskálán nem figyeltem meg változást.

A #8 és #7 minták Z-scan görbájének menete ellentétes az #5 mintáéval. A nyalábkeresztmetszet változása (#7 esetén részletesen megvizsgáltam) körszimmetrikus az #1-#5 mintákkal ellentétben, ahol elliptikus megnyúlást tapasztaltam. Továbbá a #7 mintán megmutattam, hogy a $\text{kW/cm}^2 - \text{MW/cm}^2$ intenzitás tartományban nem látható a szekundumos időskálán változás, ami a kis apertúrás, változatlan mintapozícióhoz tartozó időbeli vizsgálatokat illeti. Ezen tények azt sugallják, hogy a #8 és #7 minták esetében más eredete van a fényindukált törésmutató-változásnak. Az #1-#5 mintákat fotorefraktív mintáknak hívtuk, a fejezetnek is ez a címe, melyben ezekkel a mintákkal foglalkoztam. Több cikkel összhangban én is azt tapasztaltam, hogy a Mg-mal történő dopolás a fotorefrakciót csökkenti. Az cLN: 5,0%Mg (#5) minta esetén például jóval kisebb mértékűnek találtam azt, mint a tiszta kongruens (#4) minta esetén. A #8 esetén viszont olyannyira lecsökkent a fotorefrakció, hogy azt más effektus túlkompenzálta. A sztöchiometrikus összetétel esetén pedig már az 5,0% Mg koncentráció (#7) elég volt ahhoz, hogy a fotorefrakció teljesen megszűnjön. A MW/cm^2 -es intenzitás szinten a fotorefrakció megszüntetéséhez szükséges küszöb Mg koncentráció tehát valahol 5,0% és 6,1% között van a kongruens összetétel esetén, a sztöchiometrikus összetétel esetén pedig 5,0% alatt.

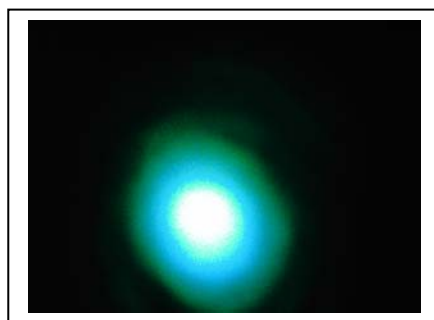
A nem fotorefraktív minták (#7 és #8) viselkedésének mélyebb megértése, valamint a fotorefrakció küszöbének további vizsgálata érdekében további méréseket végeztem. Ehhez a sztöchiometrikus összetételű (#6) mintát választottam, mely annyiban különbözik #7 től, hogy a beépült Mg koncentráció nem 5,0% hanem csak 0,67 mol%, illetve kis sztöchiometriabeli különbség van. Mindenek előtt digitális kamerával megvizsgáltam a nyaláb viselkedését a szkennelés során, melyet a 4.13. ábrán láthatunk. Ehhez $f = 80$ mm-es lencsét és 1850 mW lézerteljesítményt használtam. Az a) és d) ábrák mutatják a szkennelési tartomány széleihez tartozó kristálypozíciókhoz tartozó felvételeket, a b), illetve a c) ábrák pedig a minimum, illetve maximumhelyekhez tartozót mutatja.



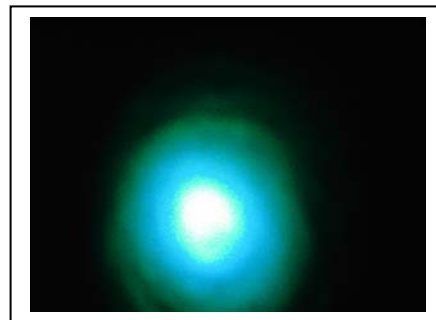
4.13a. ábra



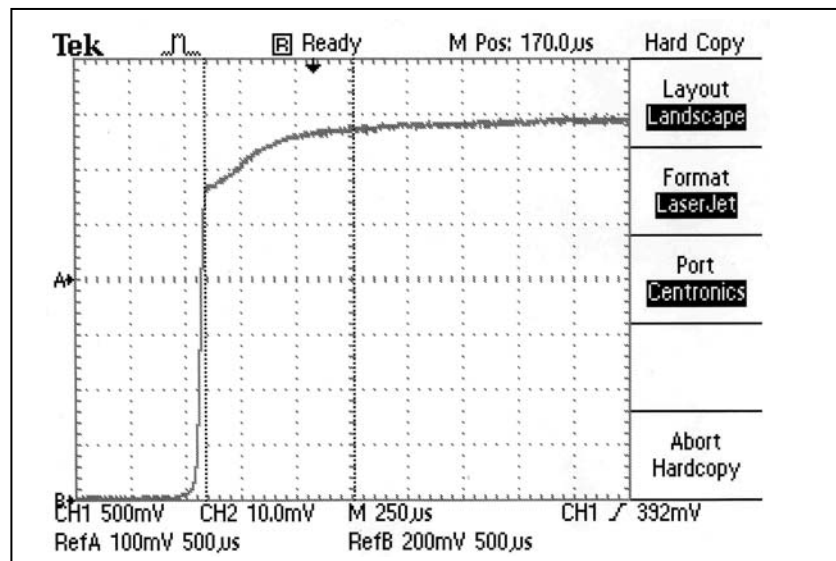
4.13b. ábra



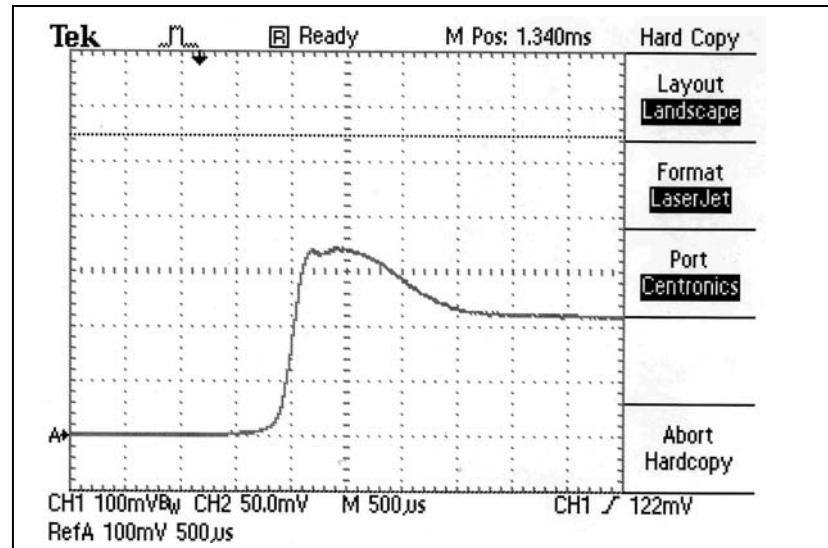
4.13c. ábra



4.13d. ábra



4.14a. ábra. A transzmisszió időbeli fejlődése 0,67 mol% Mg-ot tartalmazó sztöchiometrikus minta esetén fókusz mögötti mintapozícióban



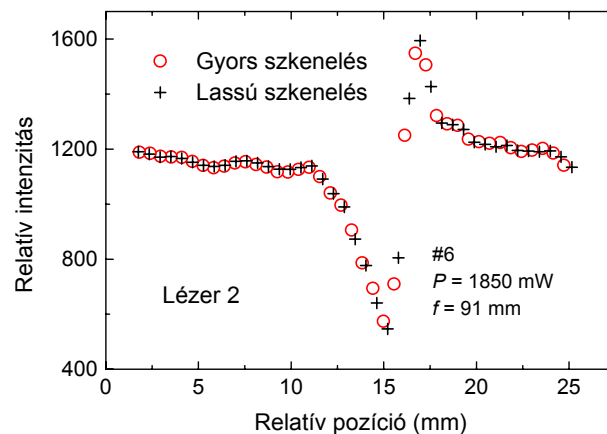
4.14b. ábra. A transzmisszió időbeli fejlődése 0,67 mol% Mg-ot tartalmazó sztöchiometrikus minta esetén fókusz előtti mintapozícióban

Szemmel is jól látható, hogy a nyaláb megtartja köralakját a szkennelés során. A fellépő nyalábméret-változás időbeliségének vizsgálata céljából a korábban már alkalmazott típusú méréseket hajtottam végre, azaz adott mintapozícióban megvizsgáltam a mintán áthaladó fény kis apertúrával kiválasztott középső része teljesítményének az időbeli fejlődését. Erre fotodiódát használtam, melyet oszcilloszkópra kapcsoltam. Az eredmények a 4.14a.) illetve b) ábrákon láthatók.

A 4.10a. ábrán látható Z-scan görbének megfelelően a fókusz mögötti kristálypozícióban a transzmisszió növekedése (4.14a. ábra), a fókusz előtti pozícióban pedig a transzmisszió csökkenése (4.14b. ábra) figyelhető meg 2W teljesítmény mellett. A folyamat a μs időskálán játszódik le, az ábrák alapján az időállandó valamivel 1 ms alattinak adódik. A meredek felfutó él időbeli hosszát a fénykitakarás megszüntetésének gyorsasága határozza meg, ami mindkét esetben egy gyors kézmozdulattal történt. További érdekesség, hogy lényegesen kisebb teljesítményeket alkalmazva, az időállandóban nem tapasztalunk változást.

Annak érdekében, hogy meggyőződjünk arról, hogy a #6-8 minták valóban fotorefrakció-mentesek, végrehajtottam egy gyors és egy lassú szkennelést. Erre a célra a #6 mintát választottam ki, ugyanis ez tartalmazza a legkisebb koncentrációban a Mg-t. A mérést az SZFKI laboratóriumában végeztem. Ez esetben a fókuszáló lencse 91 mm-es volt, szintén összvonalon működő Ar-ion lézert (Lézer 2) használtam. A minta szkennelése számítógép által vezérelt piezoelektromos eltolóval történt. Az adatok

rögzítése szintén PC segítségével történt. A detektálás során mind a D_1 , mind pedig a D_2 detektor fotodióda volt. Valamennyi mintapozícióban a jelek 1000 AD konverzió átlagolásából lettek meghatározva. A diódák által mért jelek háttérlevonása után számított P_1/P_2 aránya van a 4.15. ábrán feltüntetve relatív egységekben. Az egyik szkennelés során (gyors) minden egyes mintapozícióban 2 s-os várakozás volt beállítva, a másik során (lassú) minden egyes pozícióban 60 s volt a várakozási idő. Mint az a 4.15. ábrán látszik is, a két szkennelés során a piezoeltoló nem pontosan ugyanazokban a mintapozíciókban állt meg. Ezt leszámítva, a két görbe közt nincs szignifikáns eltérés, a körök és a keresztek ugyanarra a görbére illeszkednek. Ez azt mutatja, hogy a minta mentes a fotorefrakciótól. A fotorefraktívak közül a legkevésbé érzékeny #5 minta esetén ugyanis a várakozási idő skáláján (s – min) játszódtott le a fotorefrakció okozta effektus (ráadásul kb. fele ekkora intenzitásszinten)



4.15. ábra. Két különböző sebességű szkennelés eredménye

Az eddigi vizsgálatok eredményeiből egyértelműen látszik az, hogy a fotorefraktív minták (#1-5) és a #6-8 minták viselkedése lényegesen különbözik. A fotorefraktív minták esetében a nyálábkeresztmetszet elliptikus torzulása volt megfigyelhető a szkennelés során. Ez a tiszta, illetve a vassal dopolt minták esetén már kis intenzitás ($\sim W/cm^2$) esetén is jelentős volt, míg a Mg-mal dopolt kongruens LN esetén csak a MW/cm^2 intenzitás szinten vált számottevővé. A 6,1 mol% Mg-mal dopolt kongruens minta (#8), valamint a Mg-mal dopolt sztöchiometrikus minták esetén (#6, #7) a szkennelés során körszimmetrikus változást mutatott a mintán átmenő nyáláb

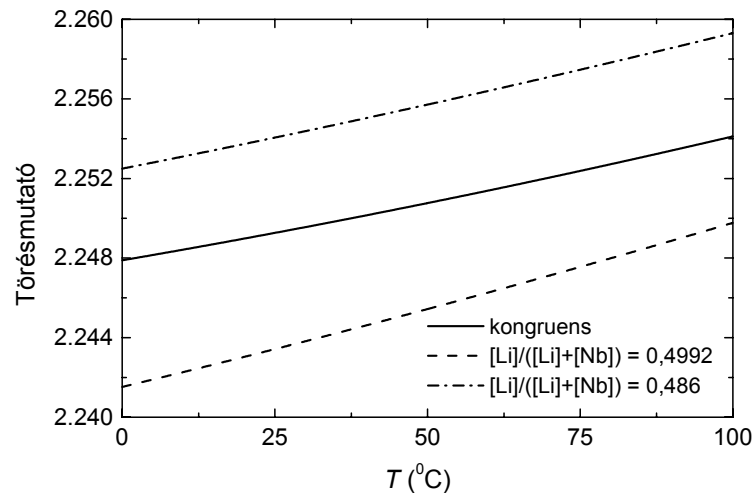
keresztmetszete. A fotorefraktív minták esetén a transzmisszió időbeli fejlődésének iránya adott mintapozícióban pont ellentétes volt, mint a #6-8 mintáknál. Továbbá a fotorefraktív minták esetén a tranziens folyamat időállandója függött a lézerefény intenzitásától, míg a #6-8 minták esetén nem. Az időállandók a fotorefraktív minták esetén a másodperces skálán voltak mérhetőek, míg a #6-8 minták esetén a ms-os skálán. Ezen lényeges különbségek egyöntetűen azt mutatják, hogy a #6-8 minták esetén más effektus felelős a fényindukált törésmutató-változásért.

Az #5 és #8 minta esetén a beépült Mg koncentráció (lásd 4.1. táblázat) a [24] cikkben ismertetett 4,6 mol% küszöbértéknél nagyobb. Ezt úgy értelmezzük, hogy a Mg koncentrációval a 4,6 mol%-ot túllépve a fotorefrakció gyakorlatilag megszűnik. A küszöbérték viszont szoros kapcsolatban van a Mg beépülésének módjával. Küszöb alatti dopolás esetén a Mg a Li helyeken ülő Nb ionokat helyettesíti (Nb antisite). A küszöböt átlépve a saját helyeken ülő Li ionokat üti ki a Mg. A küszöb átlépése néhány fizikai tulajdonság ugrásszerű megváltozásához vezet [20,21]. Az OH⁻ nyújtási módusának infravörös abszorpciós vizsgálatai egyértelműen azt mutatták, hogy az #5 minta küszöb alatti (noha a beépült Mg koncentráció 4,6 mol% nál nagyobb), míg a #8 minta küszöb feletti. A 0,67, illetve 5,0 mol%-os Mg koncentrációjú sztöchiometrikus minták (#6-7) szintén küszöb feletti ezen vizsgálatok alapján. Az előző bekezdésekben összefoglalt, a #6-8 mintáknak a fotorefraktív mintáktól eltérő viselkedései jó összhangban vannak az OH⁻ abszorpciós vizsgálatok eredményeivel, miszerint ezek a minták küszöb feletti. A továbbiakban a küszöb feletti mintákban kialakuló törésmutató-változás eredetét vizsgáljuk.

A LN $\chi^{(3)}$ harmadrendű (Kerr) nemlinearitással kapcsolatos nemlineáris törésmutatója $n_2 = 5,3 \cdot 10^{-19} \text{ m}^2/\text{W}$ [17]. A Kerr-effektus az általunk használt maximális intenzitás esetén is csak néhány tized-ezrelékes amplitúdót okozna a zárt apertúras Z-scan számítások alapján. Ilyen kicsi változás pedig módszerünkkel nem érzékelhető, a Kerr-nemlinearitást tehát ki kell zárunk, mint az általunk tapasztalt effektus eredetét.

4.4. A termooptikai effektus

Az anyagok törésmutatója általában függ a hőmérséklettől. Vannak olyan anyagok, melyek törésmutatója a hőmérséklet növekedésével csökken ($dn/dT < 0$), és vannak anyagok, melyeké nő ($dn/dT > 0$). A LN az utóbbi típusba tartozik. A LN törésmutatójának hőmérsékletfüggését a 4.16. ábra mutatja. A folytonos görbe az [59], a szaggatott és a pontokból álló pedig a [12] cikk formulája alapján készült. Az [59] közlemény képlete kongruens LN-ra vonatkozik, míg a [12] publikáció figyelembe veszi a pontos sztöchiometriát is. A [12]-beli törésmutató-kifejezésben a sztöchiometrikus #7 minta (szaggatott görbe), illetve a kongruens minták (pontvonal görbe) 4.1. táblázatban feltüntetett sztöchiometriáit vettük figyelembe.



4.16. ábra. Kongruens (folytonos és pontvonal) és sztöchiometrikus (szaggatott) LN törésmutatójának hőmérsékletfüggése.

A fényt abszorbeáló anyag felmelegszik, ami a törésmutató megváltozásához vezethet. Ha az anyagot érő fényintenzitás pillanatszerű (a hővezetési folyamatoktól eltekinthetünk), a minta adott helyén a hőmérséklet-változást a lokálisan elnyelt energia határozza meg. Amennyiben a mintát folyamatos, időben állandó intenzitás-eloszlás éri, kialakul a stacionárius állapot. A mintában a hőmérséklet-eloszlást a hővezetési egyenlet határozza meg. A törésmutató hőmérséklet-függése miatt kialakul az anyagban egy helyfüggő törésmutató. Ezt a jelenséget termooptikai effektusnak hívják.

A [35] publikáció azt vizsgálja, hogy a mintán átmenő Gauss-nyaláb abszorpciója miatt kialakuló hőmérséklet-eloszlás milyen törésmutató-változást eredményez. Belátható, hogy ha a törésmutató-változásnak termális eredete van, akkor az optikai tengelytől kis távolságban ($r \ll w_0$) a (2.12) alakú egyenlettel adható meg a törésmutató. A [35]-ös cikk (4.3) képlete szerint

$$n_2 = 0.03\alpha(dn/dT)w_0^2 n_0/\eta_0\kappa, \quad (4.2)$$

ahol α a lineáris abszorpciós együttható, κ a hővezetési együttható, w_0 a nyalábsugár, $\eta_0 = 377 \Omega$ a vákuum impedanciája, n_0 pedig a lineáris törésmutató. A (4.2) összefüggéshez vezető utat külön fogom tárgyalni az alábbiakban, melynek célja ellenőrzés jellegű. Ismét megjegyzem, amit már korábban tettem, hogy a [35] publikáció n_2 -t nem úgy definiálja, ahogy mi (és ahogy szokásos), ui. nem az intenzitással, hanem az elektromos térerősség amplitúdójával hozza összefüggésbe, ezért szerepel a (4.2) egyenletben η_0 és n_0 .

Mindenekelőtt vizsgáljuk meg, hogy milyen hőmérséklet-eloszlás alakul ki a mintában, ha benne Gauss-nyaláb abszorbeálódik! Stacionárius állapotot vizsgáljunk! Tegyük fel, hogy a mintában történő terjedés során a nyaláb végig megtartja a Gauss-intenzitás profilt! A minta Δz vastagságú szeletéhez érve legyen a nyaláb közepének az intenzitása $I_0 = 2P/w^2 \pi$, ahol w a nyalábsugár. Az optikai tengely irányában történő hővezetéstől, valamint a rétegen belüli diffrakciótól tekintsünk el, továbbá tegyük fel, hogy az abszorpció lineáris. A hővezetés egyenlete a következő:

$$\int_0^r I_0 e^{-\frac{2x^2}{w^2}} \alpha \Delta z 2x \pi dx = -\kappa \frac{dT}{dr} 2r \pi \Delta z \quad (4.3)$$

Az integrálást elvégezve

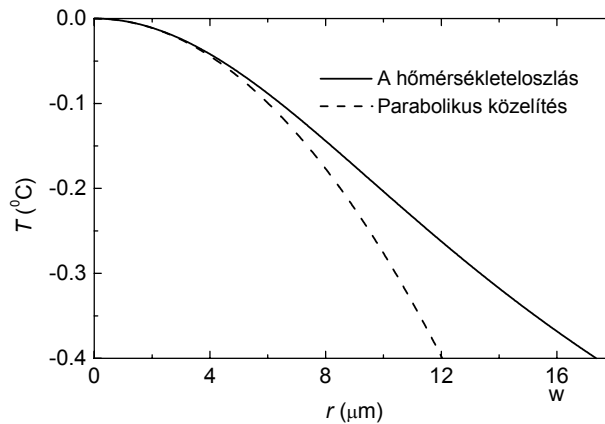
$$\frac{dT}{dr} = \frac{I_0 \alpha w^2}{4\kappa} \frac{1}{r} \left(e^{-\frac{2r^2}{w^2}} - 1 \right) \quad (4.4)$$

adódik. A $T(r)$ hőmérsékleteloszlás pedig innen a

$$T(r) = T_0 + \frac{I_0 \alpha w^2}{4\kappa} \int_0^r \frac{1}{x} \left(e^{-\frac{2x^2}{w^2}} - 1 \right) dx \quad (4.5)$$

integrál kiszámításával adható meg, ahol T_0 a nyaláb közepének hőmérséklete. A (4.5) egyenlet megoldása azonban annak a tapasztalatok által elvárt követelménynek nem tesz eleget, hogy $T(r)$ -nek a végtelenben vett határértéke véges. Az egyenlet szerint végtelen távol végtelen kicsi lenne a hőmérséklet. Ezt az ellentmondást feloldhatjuk azonban azzal, hogy a nyalábsugárnál jóval nagyobb r -ek esetén a hővezetési folyamat bonyolultabb lesz és a (4.4) egyenlet érvényét veszti.

A (4.5) egyenlet megoldása a 4.17. ábrán látható (folytonos vonal). $r \ll w$ esetén $T(r)$ parabolikusan közelíthető (4.17. ábra szaggatott vonal), ami a homogén megvilágításnak felelne meg, azaz olyan, mintha a (4.3) egyenletben $I_0 \exp\left(-\frac{2x^2}{w^2}\right)$ helyett I_0 -t vennénk. Esetünkben ez a parabolikus közelítés helytálló, hisz a kis apertúrák Z-scan mérések a nyaláb közepéről hordoznak információt.



4.17. ábra. A radiális hőmérséklet-eloszlás LN-ban

A parabolikus közelítés

$$T(r) = T_0 - \frac{I_0 \alpha}{4\kappa} r^2 \quad (4.6)$$

hőmérséklet-eloszlást eredményez. A 4.17. ábrán illusztrált esetben a mérési körülményeknek megfelelően választottam a teljesítményt és a nyalábméretet ($P = 2 \text{ W}$, $w = 15 \cdot \sqrt{2} \text{ } \mu\text{m}$). A $\kappa = 4,6 \text{ W}/(\text{m} \cdot ^\circ\text{C})$ és $\alpha = 2,5 \text{ 1/m}$ értékeket pedig az [5] hivatkozásból vettem. A grafikonon történő ábrázolásnál az egyszerűség kedvéért $T_0 = 0$ -t választottam. Az optikai tengelyhez közeli pontban az optikai tengely pontjához viszonyított hőmérsékletkülönbség $\Delta T(r) = T(r) - T_0 = -\frac{I_0 \alpha}{4\kappa} r^2$. $\Delta T(r)$ -t [35]-nek a (4.1) összefüggésébe beírva (feltételezve, hogy az adott hőmérséklet tartományon dn/dT állandó)

$$n(r) = n_0 + \frac{dn}{dT} \Delta T(r) = n_0 - \frac{\alpha I_0}{4\kappa} \frac{dn}{dT} r^2 \quad (4.7)$$

adódik. A Gauss-nyaláb intenzitás-eloszlásának parabolikus közelítését alkalmazva:

$$n(r) = n_0 + n_2 I(r) = n_0 + n_2 I_0 \left(1 - \frac{2r^2}{w^2}\right). \text{ Ennek } r\text{-függő tagját a (4.7) egyenletbeli } r\text{-}$$

függő taggal egyenlővé téve

$$n_2 = \frac{\alpha}{8\kappa} \frac{dn}{dT} w^2 \quad (4.8)$$

adódik. Ez az összefüggés (4.2)-től konstansokban különbözik, melynek egyik okát már említettem, másik oka pedig mértékegységbeli (joule/cal) okokból ered [60]. Ez utóbbi korrekció a [61, 62] publikációinkban még nem szerepel.

Mivel n_2 előjelét dn/dT előjele szabja meg, az általunk mért pozitív n_2 értékek (#6, #7, #8) összhangban vannak a LN törésmutató hőmérséklet-függésével (4.16. ábra), ami a fényindukált törésmutató-változás termikus eredete mellett szól.

A (4.8) egyenletből egy nagyon fontos további tény is látszik. Mégpedig az, hogy a képlet az anyagi állandók mellett tartalmazza az aktuális w nyalábsugarat, ami a szkennelés során változik. Ez pedig annyit jelent, hogy a termikus eredetű nemlinearitás nem jellemezhető egy konstans n_2 értékkel. Legalábbis, tegyük hozzá, hogy abban az esetben nem, ha az abszorpció lineáris. Az n_2 paraméternek a szkennelés során jóvolt mintapozíció függése pedig azt eredményezi, hogy az elméleti illesztések nem tehetők meg, hiszen valamennyi irodalmi módszer állandó n_2 -t tételez fel. A (4.8) egyenletnek

megfelelően változó n_2 -t figyelembe vevő Z-scan görbéket egy következő fejezetben fogok tárgyalni.

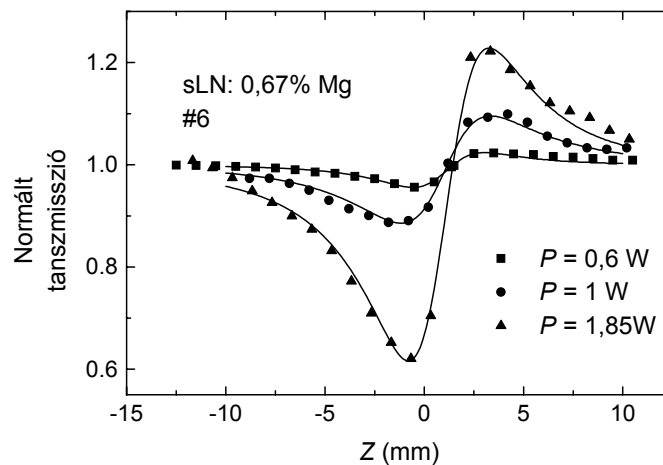
Esetünkben viszont a #7 minta görbéjének illesztése (4.10a. ábra) tökéletes volt, ami konstans n_2 -re utal. Érdekes összehasonlítani a (4.8) egyenlet által jóslott összefüggés által kiszámolható (átlagos) és a #7 mintán végett Z-scan mérés (4.10a. ábra) illesztéséből kapott n_2 értékeket. A lineáris abszorpció mérésére nem volt lehetőségünk a megfelelő vastagságú minta hiányában, ezért továbbra is csak az [5] hivatkozásból vett $\alpha = 2,5$ 1/m érték áll rendelkezésünkre, mely 514 nm-en lett meghatározva kongruens LN-ra. A $\kappa = 4,6$ W/(m \cdot °C) értéket szintén [5]-ből vettem. Mint azt a 4.16. ábra mutatja, a 0–100 °C hőmérséklet-tartományban dn/dT közel állandó, és bármelyik görbéből számolva közel azonosnak adódik. A pontos sztöchiometriát is figyelembe vevő formulába [12] a #7 minta sztöchiometriáját behelyettesítve 25 °C hőmérsékleten $dn/dT = 7,8 \cdot 10^{-5}$ °C $^{-1}$ adódik (4.16. ábra). A fenti értékekkel, és a mérés során használt tipikusan 15 μ m nyalábmérettel számolva $n_2 = 10^{-11}$ cm 2 /W adódik, ami majdnem egy nagyságrenddel kisebb a Z-scan görbének (4.10a. ábra) az illesztésből meghatározott n_2 értékénél. Természetesen esetünkben α az irodalmi értéktől lényegesen különböző is lehet, hisz az abszorpciót a sztöchiometria és a szennyezés jelentősen befolyásolhatja. Ráadásul mi nem 514 nm-en végeztük a méréseket, hanem összvonalon. Az általunk mért n_2 értékek tehát tisztán lineáris abszorpcióval nem magyarázhatóak.

Az illesztések során tapasztaltam, hogy a Z-scan görbékre a nemlineáris abszorpció jelentős hatással volt. A nyitott apertúras mérések is azt mutatják (4.7., 4.8., 4.10b. ábrák), hogy ezen effektus számottevő. Feltételezve azt, hogy a termooptikai effektusért döntően a nemlineáris abszorpció a felelős, nem követünk el nagy hibát, ha a (4.8) egyenletben α -t $I\beta = \frac{2P}{w^2\pi}\beta$ -val helyettesítjük. Ekkor a termális nemlinearitás együtthatójára

$$n_2 = \frac{\beta P}{4\kappa\pi} \frac{dn}{dT} \quad (4.9)$$

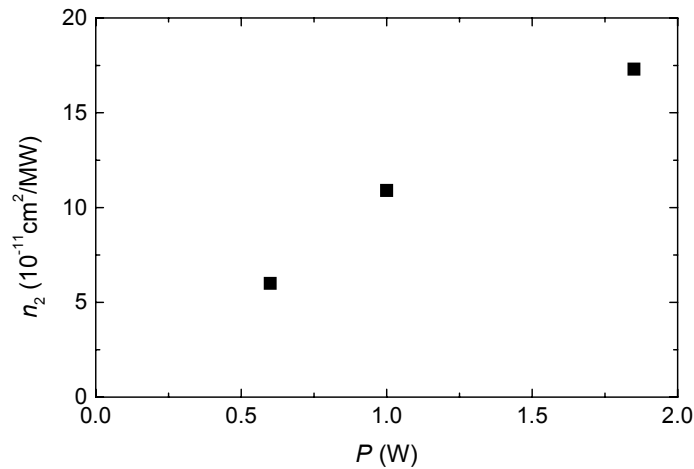
adódik. A teljesség kedvéért megjegyzem, hogy a nemlineáris abszorpció miatt a (4.9)-ben szereplő teljesítmény a mintában nem állandó. Az általunk használt minták és teljesítmények esetén viszont láttuk (pl. nyitott apertúras mérésekkel), hogy a

szkenelés során a maximális abszorpció 5-10% volt, ami annyit jelent, hogy a (4.9) egyenlet által meghatározott n_2 -t jó közelítéssel vehetjük állandónak. Ez pedig annyit jelent, hogy az illesztések megtehetőek a standard Z-scan elmélet alapján. A (4.9) alapján is meghatároztam n_2 -t, mégpedig azt a $\beta = 1,7 \cdot 10^3$ cm/GW értéket felhasználva, amit a #7 mintán $P = 1380$ mW mellett kis apertúras mérésekből (4.10a. ábra) az illesztés során kaptam. Ily módon $n_2 = 3 \cdot 10^{-10}$ cm²/W adódik, ami ugyan négyszer nagyobb, mint az illesztésből kapott érték, viszont a lineáris abszorpcióval kiszámolt értéknél harmincszor nagyobb. Reálisnak tűnik tehát az a feltevés, miszerint a termikus eredetű törésmutató-változásért döntően a nemlineáris abszorpció a felelős.



4.18. ábra. A 0,67 mol% Mg tartalmú sztöchiometrikus LN minta különböző teljesítmények mellett felvett Z-scan görbéi

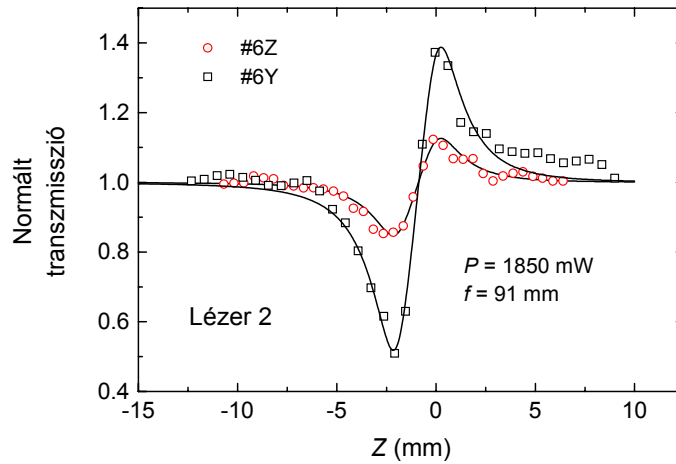
Mivel a (4.9) összefüggés szerint a termális nemlinearitás függ a teljesítménytől, ésszerűnek tűnik a kis apertúras Z-scan mérések elvégzése különböző teljesítményeken. Ezen mérésekhez a #6 mintát választottam, és fókuszáló lencseként a 100 mm-es fókusztávolságút használtam. A három különböző teljesítményen (600 mW, 1 W, 1,85 W) történő mérés eredményeit a 4.18. ábrán láthatjuk. A 4.18. grafikonon látszik, hogy az elméleti görbék majdnem tökéletesen illeszkednek a mért pontokra. Az illesztésekből meghatározott n_2 értékek a 4.19. grafikonon láthatók.



4.19. ábra. A 4.18 ábra görbéinek illesztéseiből meghatározott nemlineáris törésmutatók a teljesítmény függvényében

Mint azt a (4.9) jelezte, az n_2 paraméterek valóban függenek a lézerteljesítménytől, amit kísérletileg is sikerült igazolni, hisz a 4.19. ábrán láthatóan ez a lineáris függés elég jól teljesül.

A nemlineáris abszorpció és a nemlineáris törésmutató (4.9) egyenlettel megadott kapcsolatát igazolandó, további méréseket végeztem. Nevezetesen, adott teljesítmény mellett és ugyanolyan körülmények között felvettem Z-scan görbéket két különböző mintán. A különböző mintákat a #6 mintának az Y és a Z metszete jelentette. Ezeket a továbbiakban a #6 Y és a #6 Z kódokkal jelölöm. Ilyen mintaválasztás mellett arra is választ kapunk, hogy az anyagban a nemlineáris abszorpció függ-e a kristályoptikai tengely és a lézer polarizációjának relatív orientációjától. A #6 Y minta esetén ugyanis a polarizáció párhuzamos volt a kristályoptikai tengellyel (mint ahogyan valamennyi korábbi minta esetén), a #6 Z esetén pedig merőleges volt arra. A minta pozicionálása piezoelektromos eltolóval történt. A jelek detektálása a fotodiódák számítógép AD konverterére vezetésével történt, pozícióként 1000 AD konverziót végrehajtva. A fókuszáláshoz $f = 91$ mm-es lencsét használtam, az alkalmazott lézerteljesítmény pedig 1850 mW volt. A mérések végzése az SZFKI-ban történt Lézer 2-vel. A 4.20. ábra mutatja a kis apertúrás Z-scan görbéket.



4.20. ábra. A 0,67 mol% Mg tartalmú sztöchiometrikus LN minta Y és Z metszetének Z-scan görbéi (Lézer 2)

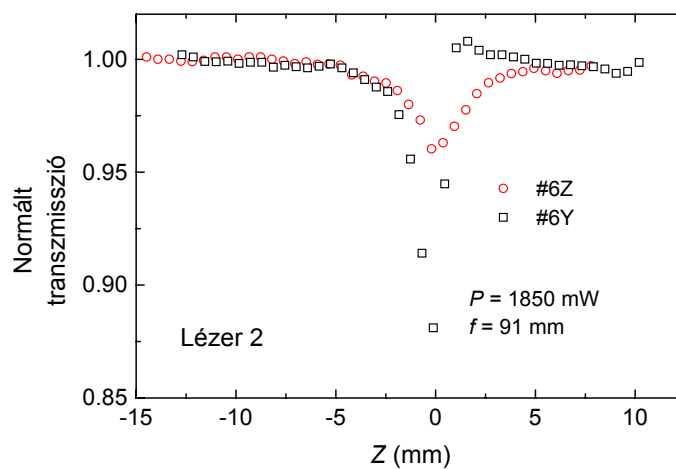
A 4.20. ábra görbéinek illesztéseiből meghatározott n_2 és β paraméterek a 4.4. táblázatban láthatók. A két különböző metszetű minta esetén a táblázat adataiból láthatóan az n_2 hányadosok pontosan megegyeznek a β -k hányadosaival, mint ahogy a (4.9) egyenlet szerint azt elvárjuk.

#6	n_2 (10^{-11} cm ² /W)	β (10^3 cm/GW)	max. abszorpció
Y	13,4	1,7	39,7%
Z	4,3	0,55	11,9%
arány (Y/Z)	3,1	3,1	3,3

4.4. táblázat. A 0,67 mol% Mg tartalmú LN kristály Y és Z metszetein végzett kis- és nyitott apertúrás Z-scan görbéinek illesztéséből meghatározott paraméterek (Lézer 2)

Ez tovább erősíti a feltételezést, miszerint a termális hatásnak a fő oka a nemlineáris abszorpció. Ellenőrzés céljából ugyanezzel a mérési elrendezéssel felvettem a nyitott apertúrás mérések Z-scan görbéit is, ami a 4.21. ábrán látható. Ezek eredményei is alátámasztják a feltevésemet, hiszen az Y metszet esetén szintén kb. háromszor nagyobb a görbe amplitúdója. Megjegyzem azonban, hogy az Y metszet esetén (négyzetek) a

véges apertúraméret hatása látható (hasonló [1] 4. ábrájához). Noha a mérési elrendezés mindkét metszet esetén ugyanaz volt, mégis csak #6Y esetén érződik a hatás, hisz ebben az esetben volt nagyobb a nyalábtorzulás a nagyobb abszorpció miatt. A (2.28)-as vékonymintás formulával történő illesztés ebben az esetben félrevezető értéket adna. Viszont a maximálisan abszorbeálódó teljesítményeket összehasonlíthatjuk a két esetben. Ezen értékeket a 4.21. ábráról leolvastva, a 4.4. táblázat utolsó oszlopában tüntettem fel. Azon kívül, hogy a #6Y és #6Z mintákkal történő mérések határozottan megerősítették a nemlineáris abszorpció és a termális lencse kapcsolatát, önmagukban is érdekes információt adtak, miszerint a nemlineáris abszorpció anizotrop.



4.21. ábra. A 0,67 mol% Mg tartalmú sztöchiometrikus LN minta Y és Z metszetének nyitott apertúrás Z-scan görbéi (Lézer 2)

Megjegyzem, hogy a #6-os minta Y metszetének vizsgálata során kapott $\beta = 1,7 \cdot 10^3$ cm/GW érték (4.4. táblázat) nem egyezik meg az ugyanezen minta 4.18. ábrán látható görbéinek illesztéseiből kapott értékkel. Abban az esetben ugyanis $\beta = 2,6 \cdot 10^3$ cm/GW adódik a három mérés átlagolásával. Ennek magyarázata az, hogy annak ellenére, hogy a teljesítmények azonosak voltak (1,85 W) a mérések során, a lézerek különböztek. A 4.18. ábrán látható mérések során a vonalak teljesítmény aránya a 3.4. illetve 3.5. ábrákon látható. A 4.20. ábrán látható – Lézer 2-vel végzett – mérések során pedig a domináns vonal 514 nm-es volt, a 488 nm-es pedig ennél hatszor gyengébb. Mivel a nemlineáris abszorpció függhet a hullámhossztól, ez reális magyarázatnak tűnik a β és n_2 értékek különbözőségére. A (4.9) egyenlet szerint az $n_2/\beta P$ mennyiségnek valamennyi küszöb feletti LN mintában állandónak kell lennie,

amennyiben a nemlineáris abszorpció okozza a termooptikai effektust, és a dn/dT , κ mennyiségeket összetételtől függetlennek tekintjük. A különböző körülmények között végzett mérések (4.18. és 4.20. ábra) eredményeiből kiszámoltam az $n_2/\beta P$ értékeket, melyek jó közelítéssel azonosnak adódtak, biztosítva a mérések közötti koherenciát.

Ismervén a mintában kialakuló termális lencse okát, térjünk vissza a hőmérséklet-eloszlás vizsgálatához! Tisztán nemlineáris abszorpció hatását figyelembe véve a (4.3) egyenlet a következőképp módosul:

$$\int_0^r \left(I_0 e^{-\frac{2x^2}{w^2}} \right)^2 \beta \Delta z 2x \pi dx = -\kappa \frac{dT}{dr} 2r \pi \Delta z, \quad (4.10)$$

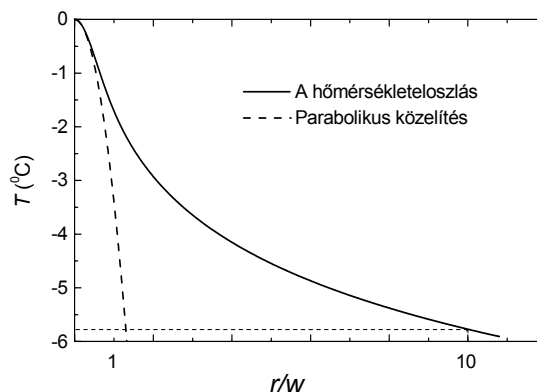
melyből a hőmérséklet-gradiensre

$$\frac{dT}{dr} = \frac{I_0^2 \beta w^2}{8\kappa} \frac{1}{r} \left(e^{-\frac{4r^2}{w^2}} - 1 \right) \quad (4.11)$$

adódik. A hőmérséklet-eloszlásra pedig

$$T(r) = T_0 + \frac{I_0^2 \beta w^2}{8\kappa} \int_0^r \frac{1}{x} \left(e^{-\frac{4x^2}{w^2}} - 1 \right) dx \quad (4.12)$$

összefüggést kapunk, amit a 4.22. ábra mutat. A görbe számításához az I_0 , w paramétereket a 4.14. ábrákon bemutatott méréseknek megfelelően választottam, κ értékét az [5] hivatkozásból vettem, β értékét pedig a megfelelő Z-scan görbék illesztéséből határoztam meg. A 4.14. ábrákon azt láttuk, hogy a felmelegedési folyamat időállandója ms. A hőmérséklet-eloszlás ismeretében ezt érdemes ellenőrizni.



4.22. ábra. A radiális hőmérséklet-eloszlás LN-ban

Problémát az okoz, hogy a $T(r)$ függvény, – mint azt korábban említettem – egyszerre nem tesz eleget a $T(0) = T_0$ és a $T(\infty) = T_{szoba}$ feltételnek. Így olyan közelítéssel élek, miszerint a minta egyes pontjainak a felmelegedését az optikai tengelytől viszonylag távol ($a = 10w$) lévő ponthoz viszonyítom (lásd 4.22. ábra), feltételezve, hogy ott már gyakorlatilag szobahőmérsékletű az anyag. Továbbá a $T(r)$ függvény azt mutatja, hogy a tengelyhez közeli, $0,1w$ tartományon belül a hőmérséklet közel állandó, azaz a felmelegedés mértéke azonos. Nekünk elegendő ezen a tartományon belül vizsgálgódnia, hisz a 4.14. ábrához tartozó mérések kis apertúrák mérések voltak. Az optikai tengelyhez közeli ($r < 0,1w$) pontok felmelegedésére a (4.12) egyenletet használva $\Delta T = T(0) - T(10w) = 5,8$ K adódik, mely a 4.22. grafikonról is leolvasható. A melegedési folyamat időállandójának becslése során a tranziens folyamat alatti hővezetést hanyagoljuk el az egyszerűség kedvéért! Ekkor az r sugarú, Δz magasságú henger ΔT -vel történő felmelegedéséhez szükséges hőt az abszorbeálódó fény okozza, azaz

$$cr^2 \pi \Delta z \rho \Delta T = I_0^2 \beta \Delta z r^2 \pi \tau, \quad (4.13)$$

ahonnan

$$\tau = \frac{c\rho \Delta T}{I_0^2 \beta} = \frac{c\rho w^2}{8\kappa} \int_0^a \frac{1}{r} \left(1 - e^{-\frac{4r^2}{w^2}} \right) dr \quad (4.14)$$

adódik. τ független lesz I_0 -tól és β -tól, hiszen $\Delta T \propto I_0^2 \beta$ (hasonlóképpen, ha lineáris lenne az abszorpció, τ ugyanúgy független lenne I_0 -tól és α -tól, hisz ekkor $\Delta T \propto I_0 \alpha$). A (4.14)-be a $c = 684$ J/(kg·°C) [5] és $\rho = 4600$ kg/m³ [17] értékeket behelyettesítve $\tau = 0,2$ ms adódik. Ez egy alulról becsült érték, hisz a tranziens szakaszbeli hővezetés figyelembevétele nagyobb τ -t eredményezne. A mért és becsült időállandók azonos nagyságrendje a nyalábtorzulás termikus eredetének a bizonyítéka.

A küszöb feletti (#6, #7 és #8) minták Z-scan görbéinek pozitív előjele, a hengersizmetrikus törésmutatóváltozásra utaló izotrop nyalábkeresztmetszet változás, valamint a tranziens folyamat időállandója egyértelműen termikus eredetre utal. A különböző sebességű szkennelések eredményei (4.15. ábra) pedig azt mutatták, hogy a

fotorefrakció gyakorlatilag zérus. Adott minta esetén több különböző teljesítmény mellett végrehajtott kis apertúrás Z -scan mérésekkel, valamint adott teljesítmény mellett két különböző metszeten elvégzett Z -scan mérésekkel (kis- és nyitott apertúrás) megmutattam, hogy a nemlineáris abszorpciónak döntő szerepe van a termooptikai effektusban. A görbék jó illeszthetősége (4.10a. és 4.18. ábrák) szintén ezt támasztja alá. Természetesen a termális effektus a fotorefraktív minták esetén is fellép, csak a fotorefrakció ellentétes irányú hatása túlkompenzálja azt. Az #5 minta esetén a termális effektussal azonos nagyságrendű a fotorefrakció hatása, de mégis néhányszor nagyobb, míg az #1–4 minták esetén a fotorefrakció hatása sok nagyságrenddel nagyobb.

4.5. A termooptikai effektus vizsgálatára alkalmas számítások és azok eredményei

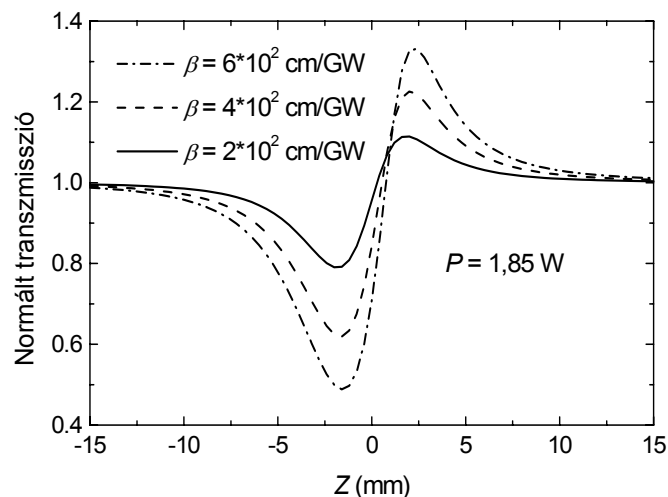
A kis apertúrás Z -scan görbék illesztését [38] megfelelő formulájával tettük meg, mely két egymástól független (n_2 és β) illesztési paramétert tartalmaz. Amennyiben az abszorpció kizárólag nemlineáris, és az effektus tisztán termikus eredetű, n_2 és β (4.9) egyenletbeli kapcsolatának köszönhetően egyparaméteres illesztéssel állunk szemben. Ekkor egyetlen β (vagy n_2) illesztési paraméter jelenik meg a [38] formulájában. Ha viszont a termális effektusban a lineáris és a nemlineáris abszorpció egyaránt szerepet játszik, annyiban n_2 két tagból fog állni (4.8 és 4.9), mely α -t és β -t tartalmazza:

$$n_2 = \frac{1}{4\kappa} \frac{dn}{dT} \left(\frac{\alpha}{2} w^2 + \frac{\beta P}{\pi} \right). \quad (4.15)$$

Ha tehát tisztán termikus eredetű az effektus, akkor ismert teljesítmény és fókuszálás mellett az α és β abszorpciós együtthatók lesznek az illesztés paraméterei. Valamennyi eddig ismert közleményben olyan analitikus formulát vagy numerikus számítási módot adnak meg, mellyel n_2 (és esetleg β) meghatározható. Ezek olyan esetekben alkalmazhatók, amikor az anyag konstans nemlineáris törésmutatóval rendelkezik. Az illesztés során én is jól tudtam alkalmazni pl. a [38] cikk megfelelő formuláját, ugyanis esetünkben a nemlineáris abszorpció (bizonyítottan) konstans n_2 értéket szolgáltatott. A

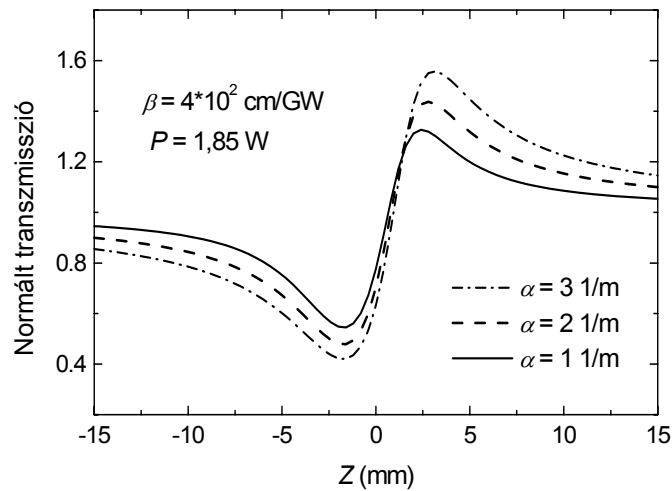
publikációkban ismertetett konstans n_2 -t feltételező illesztési módszerek viszont alkalmatlanná válnak az olyan esetekben, ahol a termooptikai effektusért a lineáris abszorpció, vagy a lineáris és nemlineáris együttesen felelős (4.15 szerint). A numerikus számításokon alapuló modellekben a (4.15)-nek megfelelő változtatás megtehető.

Ilyen jellegű a 4.2. fejezetben ismertetett saját ötleten alapuló modell is, melybe a (4.15)-beli n_2 könnyen beépíthető. Nem kell mást tenni, mint a (3.6) egyenletben szereplő $l(z)$ kifejezésben a konstans n_2 helyére beírni (4.15)-t. Az $l(z)$ eddig is a nyalábméretnek volt a függvénye, most annyi változott, hogy az n_2 -n keresztül is függni fog tőle. A további gondolatmenet pedig ugyanaz, mint az ismertetett modellben: a mintát vékony rétegekre bontjuk, melyben a nyalábméret állandónak tekinthető, a nyalábméretet a q paraméter segítségével kifejezzük, majd a (3.10) egyenlet alapján elvégezzük sorba a transzformációkat. Természetesen az abszorpciót a (3.16) egyenlet szerint figyelembe vesszük oly módon, ahogy azt abban a részben (40. oldalon) leírtam. Az abszorpcióknak tehát kettős jelentőségük van: egyrészt az intenzitás csökkenését okozzák, másrészt pedig magában a nemlineáris törésmutatóban van szerepük. Érdeemes néhány elméleti görbét kiszámítani. A 4.23. ábrán bemutatott görbék esetén a lineáris abszorpció zérus, a β értékeket változtattam. A számításoknál figyelembe vett teljesítmény, kristályhossz, anyagi állandók a mérési körülményekkel és az irodalmi értékekkel összhangban voltak.



4.23. ábra. Elméleti Z-scan görbék olyan esetre, amikor a termooptikai effektust tisztán a nemlineáris abszorpció okozza

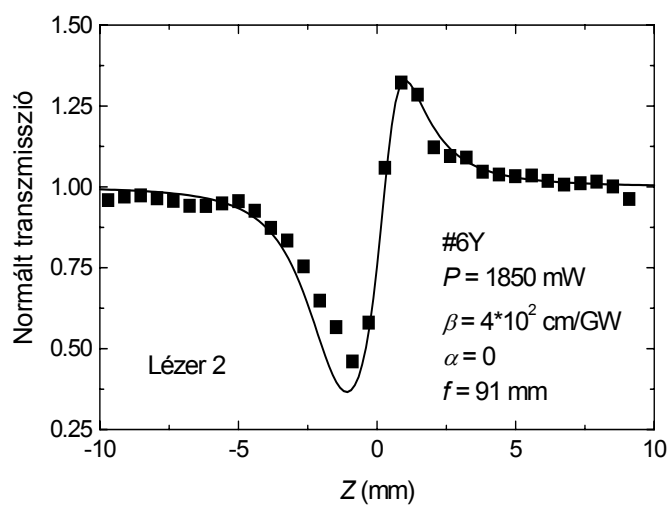
A 4.24. ábra a lineáris abszorpció jellegzetes hatását mutatja $\beta = 4 \cdot 10^2$ cm/GW mellett



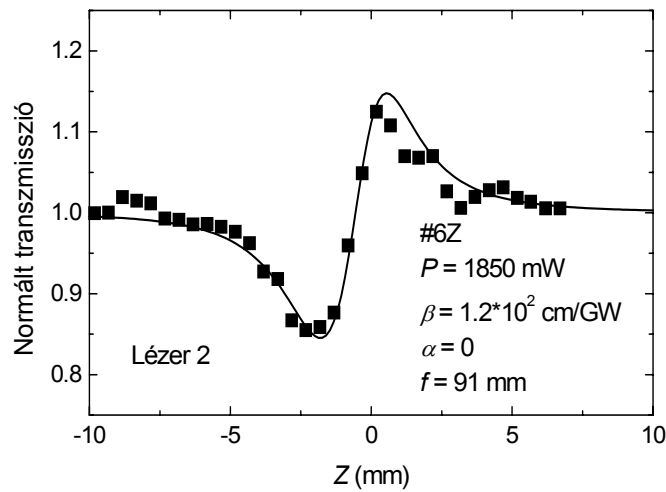
4.24. ábra. Elméleti Z-scan görbék olyan esetre, amikor a termooptikai effektust a lineáris és a nemlineáris abszorpció együttes hatása okozza

Láthatjuk, hogy ha mindkét típusú abszorpció jelen van olyan értékekkel figyelembe véve, ami a valóságnak megfelelő, akkor a görbék a tartomány szélein annál jobban eltérnek az 1-től, minél nagyobb a lineáris abszorpció.

A #6Y és #6Z minták kísérleti görbéinek illesztését elvégeztem ezen elmélet alapján is, melyek a 4.25. és 4.26. ábrán láthatóak. Az illesztési paraméterek a grafikonon vannak feltüntetve.

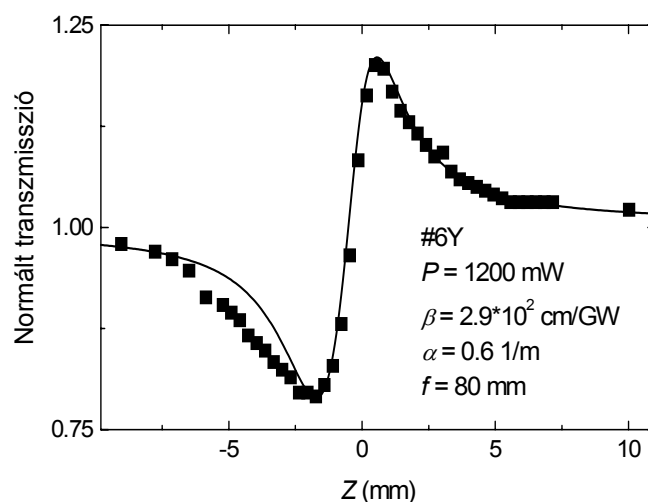


4.25. ábra. A 0,67 mol% Mg tartalmú, Y metszetű sztöchiometrikus minta Z-scan görbéjének saját elméleti megfontolásokkal történő illesztése (Lézer 2)



4.26. ábra. A 0,67 mol% Mg tartalmú, Z metszetű sztöchiometrikus minta Z-scan görbéjének saját elméleti megfontolásokkal történő illesztése (Lézer 2)

A kapott β értékek kisebbek, mint amiket a [38] publikáció alapján történő illesztésekkel kaptam. Ez nem váratlan, ugyanis korábban már szoltam arról, hogy a két elmélet Z-scan görbéinek érzékenysége különböző. A β értékek arányára viszont 3-at kapunk, ami a korábbi illesztések eredményei során kapott arányokkal (4.4. táblázat) igen jól egyezik.



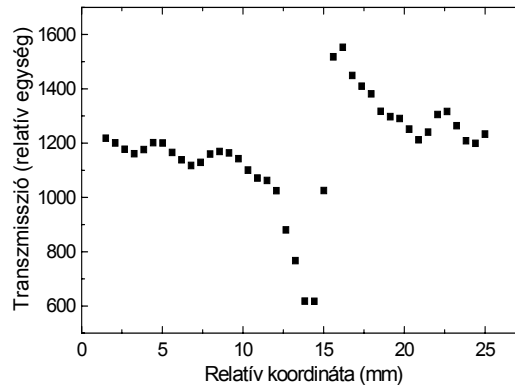
4.27. ábra. A 0,67 mol% Mg tartalmú, Y metszetű sztöchiometrikus minta Z-scan görbéjének saját elméleti megfontolásokkal történő illesztése

A 4.27. ábrán ugyancsak a #6Y minta Z-scan görbéje látható, de ez esetben $f=80$ mm-es lencsét használtam, míg a 4.25. és 4.26. ábrákhoz tartozó mérésekhez 91 mm-eset. Továbbá két különböző Ar^+ lézerrel történtek a 4.25., 4.26. ábrákhoz (Lézer 2) és a 4.27. ábrához (Lézer 1) tartozó mérések. A #6Y minta 4.25. ábrán látható Z-scan görbéjének illesztése $\alpha = 0$ választás mellett a legsikeresebb. Viszont ugyanezen mintánál a 4.27. ábrán látható görbe esetén nem zérus α esetén sikerül legjobban az illesztés. Az illesztés paramétereit a grafikonon feltüntettem. $I_0\beta/\alpha = 7$, ami azt jelenti, hogy a nemlineáris abszorpció a domináns, ahogy azt az eddigi eredményeim alapján elvártam.

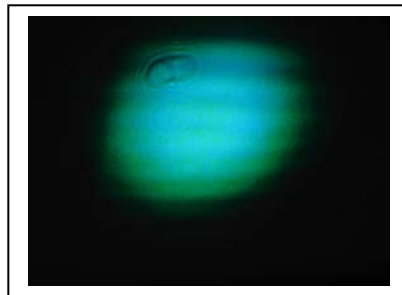
A 4.24. ábrán megmutattam, hogy a lineáris abszorpciónak olyan hatása van, hogy a görbék a fókuszról távol sem tartanak 1-hez. A 4.25. és 4.27. illesztéseinek ellentmondásos eredményeinek a magyarázata az, hogy jelenlegi méréseimmel, az interferencia okozta pontatlanságok miatt – lásd következő fejezet – nem lehet egyértelműen eldönteni, hogy van-e jelentősebb lineáris abszorpció.

4.6. A mérés során felmerülő nehézségek

A kísérletek során a legnagyobb problémát az interferenciajelenségek okozták. Gyakorta tapasztaltam azt, hogy a szkennelés során az apertúrán interferenciacsíkok haladtak végig, melyek a jelet modulálták. A magyarázat abban rejlik, hogy LN esetén a reflexiók nem elhanyagolhatók a nagy lineáris törésmutató miatt. A minta kimeneti síkjáról reflektálódó fény interferál a beeső fényvel, ami a mintában inhomogén intenzitás-eloszlást hoz létre. A nemlineáris effektus(ok) miatt a mintában inhomogén törésmutató eloszlás alakul ki. A beeső fény pedig ezen a törésmutató rácson diffraktálódik. A 4.28. ábra tipikus olyan Z-scan görbét mutat, melyen az interferencia zavaró hatása látszik, a 4.29. ábrán pedig az ehhez tartozó nyalábkeresztmetszet látható. Számos esetben viszont az interferenciahatás még ennél is zavaróbb volt, ami miatt az eredmények teljesen kiértékelhetetlenné váltak. A hatás a 4.25. és a 4.26. ábrán bemutatott „szép” görbék esetén is valamelyest szembetűnő.



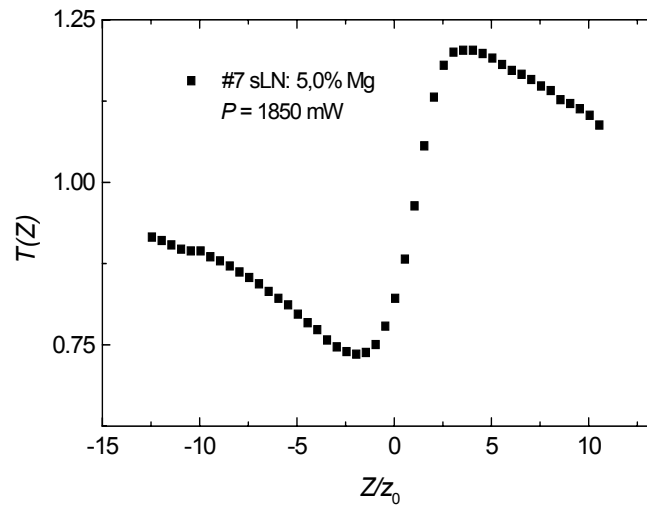
4.28. ábra. Interferencia jelenségek zavaró hatása teszi nehezen kiértékelhetővé a méréseket



4.29. ábra. Interferencia-jelenségek zavaró hatása az apertúrasíkban.

Az interferencia csökkentésére egy lehetséges módszer az antireflexiós bevonat. Én azonban nem ezzel a lehetőséggel éltem. A mintának a fényterjedésre merőleges pozíciójából történő néhány fokokos kiforgatásával (hosszas próbálgatással) el lehet érni az interferencia jelentős mérséklődését. A kiforgatás a legjobb pozíció nehézkes megtalálása miatt kényelmetlen megoldás, ezért a minták fényterjedésre merőleges felületeit enyhén ékesre csiszoltattam.

A mérések során volt egy másik nehézség is. Bizonyos esetekben a szkennelési tartomány elején és végén mért transzmisszióérték megegyezett [4.10a ábra., 4.20. ábra (körök)], volt olyan eset, ahol jó közelítéssel egyezett meg (4.18., 4.27. ábrák) és volt, hogy jelentősen eltért (4.6., 4.30. ábrák).



4.30. ábra. Az 5,0 mol% Mg-mal adalékolt minta Z-scan görbéje

A 4.30. ábra a #7 minta 1850 mW mellett felvett Z-scan görbét mutatja $f = 100$ mm-es lencsét használva. A transzmisszió végeken való eltérésének több oka is lehet. Az egyik magyarázat lehet a lineáris abszorpció, melynek, – mint az elméleti görbéken (4.24. ábra) és a 4.27. ábra görbéjén láttuk – pont ilyen jellegű hatása van. Ezt azért nem tartom kizárólagos magyarázatnak, mert ugyanezzel a mintával sikerült olyan görbét is felvenni (4.10a. ábra), ahol a transzmisszió nagyon jó közelítéssel megegyezett a végpontokon.

A másik oka a jelenségnek az ékesség, mely a szkennelés során a nyalábnak az apertúra síkjában történő elmozdulását okozza. Ezt le is ellenőriztem, a tartomány végén az apertúra újra pozicionálása volt szükséges ahhoz, hogy az apertúra közepe és a nyaláb közepe a tartomány végén is egybeessék. Esetünkben nehéz megkülönböztetni a két hatást. A nemlineáris abszorpciók együttható mérése hiányzik, amit a megfelelő vastagságú minták hiányában nem tudtam megmérni.

A minták optikai homogenitásának vizsgálata céljából azonos körülmények között többször is elvégeztem a szkenneléseket, a mintákat különböző pontokban megvilágítva. Tapasztalataim alapján az 5,0 mol% Mg-mal adalékolt (#7) minta esetén voltak a mérések legjobban reprodukálhatóak. A másik két küszöb feletti minták esetén (#6, #8) a minták különböző pontjaihoz tartozó görbék közt volt kis eltérés.

További nehézséget okozott, hogy a lézerünk többször is meghibásodott. A javítások hosszú időt vettek igénybe. Ezekben az időszakokban az SZFKI-ban végeztem

a méréseket egy másik lézerrel. Az eredmények könnyebb összehasonlíthatósága szempontjából természetesen jobb lett volna, ha valamennyi mérést ugyanazzal a lézerrel, illetve lencsével tudtam volna végezni. Viszont az egyes mérési sorozatokon belül, melyekből a következtetéseket levontam, ügyeltem az azonos körülményekre.

5. Az eredmények hasznosítása

A mérések célja az volt, hogy a LN-ban a fényindukált törésmutató-változás eredetét tisztázzam, illetve a lehetséges esetekben azt kvantitatíve jellemezzem. A távlati motiváció viszont a legmegfelelőbb összetételű LN kiválasztása a periodikus polarizáláshoz, majd a frekvencia-átalakítóban történő alkalmazáshoz. Átfogó méréseim eredményei alapján mindenképp a küszöb feletti (fotorefrakciótól mentes) minták tűnnek alkalmasnak erre a célra. Érdekesnek tartottam a három (#6,7,8) küszöb feletti minta *Z*-scan méréseinek elvégzését azonos körülmények között ($P = 1850$ mW, $f = 80$ mm). A többször elvégzett mérések megerősítettek abban, hogy a 6,1 mol% Mg koncentrációjú kongruens minta a legérzékenyebb a három közül $n_2 = 1,4 \times 10^{-10}$ cm²/W és $\beta = 2,8 \times 10^3$ cm/GW értékekkel. A 0,67 mol% Mg koncentrációjú sztöchiometrikus jelentéktelen mértékben ugyan, de egy kicsit kevésbé érzékeny: $n_2 = 1,3 \times 10^{-10}$ cm²/W, $\beta = 2,4 \times 10^3$ cm/GW. Az 5,0 mol% Mg koncentrációjú sztöchiometrikus kristály érzékenysége pedig mintegy 30%-kal kisebb a másik kettőnél: $n_2 = 9,7 \times 10^{-11}$ cm²/W és $\beta = 1,7 \times 10^3$ cm/GW. A megfelelő minta kiválasztásának szempontjai a koercitív erő nagysága, illetve a nyalábtorzulás mértéke. Mindkét szempont szerint a 6,1 mol% Mg-t tartalmazó kongruens minta a legkevésbé alkalmas erre a célra, ugyanis a kongruens összetétel esetén lényegesen nagyobb a koercitív erő is. Az eredmények alapján az általam vizsgált minták közül az 5,0 mol%-os sztöchiometrikus minta tűnik a legperspektivikusabbnak az általunk kitűzött célra.

IV. Az eredmények összefoglalása

1. Megmutattam, hogy a Z-scan módszer kvantitatív alkalmazhatóságának eldöntése érdekében kiegészítő méréseket kell végezni, főként olyan esetekben, amikor a törésmutató-változás eredete tisztázatlan. Az egyik ilyen mérés a mintán áthaladó nyaláb keresztmetszetének részletes analízise. A LiNbO_3 (LN) kristállyal kapcsolatos Z-scan mérések során a mintán áthaladó nyaláb keresztmetszetét digitális felvételekkel vizsgáltam. Kis mértékű nyalábtorzulás esetén a felvételek intenzitás-eloszlásának részletes számítógépes feldolgozásából következtettem a torzulás jellegére. Az 5,0 mol% Mg-mal adalékolt sztöchiometrikus LN esetében a nyalábkeresztmetszet-változás izotrop, az ugyanilyen Mg-koncentrációjú kongruens minta esetén anizotrop volt, a nyaláb a kristályoptikai tengely irányában erősen megnyúlt. A Z-scan görbék alapján sztöchiometrikus kristály esetén pozitív, kongruens esetén pedig negatív előjelű nemlinearitásra következtettem. A kongruens mintánál a nemlinearitás nagysága kb. egy nagyságrenddel nagyobb volt a sztöchiometrikusénál. [55]
2. Míg az 5,0 mol% Mg-mal adalékolt kongruens LN esetén csak az 1 kW/cm^2 értéket lényegesen meghaladó intenzitás alkalmazásakor válik számottevővé a nyalábtorzulás, addig az adalékolatlan és a vassal adalékolt LN mintákban ez már az 1 W/cm^2 -es intenzitás esetén bekövetkezik. A szkennelési tartomány változatlan pozíciójába elhelyezett mintán áthaladó Gauss-nyaláb közepe intenzitásának az időbeli fejlődését távoli zónában vizsgálva összehasonlítottam a fotorefraktív LN minták fotorefraktív érzékenységét. A tranziens folyamat időállandójából, illetve a stacionárius állapotbeli relatív transzmisszió értékéből megállapítottam, hogy a tiszta sztöchiometrikus minta érzékenyebb a tiszta kongruensnél, sőt még a vassal adalékolt kongruensnél is. Megállapítottam továbbá, hogy a vassal adalékolt kongruens minták esetén a vaskoncentráció növelése a minták fotorefraktív érzékenységét növeli. [62]

3. A 0,67, és az 5,0 mol% Mg-mal adalékolt sztöchiometrikus, illetve a 6,1 mol% Mg-mal adalékolt kongruens LN minták Z-scan görbéinek menetéből, a szkennelés során mutatott körszimmetrikus nyalábkeresztmetszet-változásból, valamint a különböző sebességű szkennelések azonos eredményeiből arra következtettem, hogy ezen anyagok esetén a fotorefrakció más effektusokhoz képest elhanyagolható. A transzmisszió időfüggésének vizsgálatára vonatkozó mérések a fókusz előtti pozícióban a transzmisszió csökkenését, a fókusz utáni pozícióban pedig annak növekedését mutatták ms-os időskálán. Az izotrop nyalábtorzulásokból, a Z-scan görbékből illesztéssel meghatározott n_2 nemlineáris törésmutató pozitív előjeléből, valamint a tranziens folyamatok τ időállandójának elméleti úton történő meghatározásának az eredményéből az effektus termikus eredetére következtettem. A rendelkezésemre álló mintákon végrehajtott átfogó mérésekkel megmutattam, hogy Mg-mal történő adalékolás során a fotorefrakció küszöbe a kongruens összetétel esetén 5,0 és 6,1 mol% között van, szemben a szakirodalom által megadott 4,6 mol% értékkel. A sztöchiometrikus összetétel esetén pedig 0,67 mol% alatt van a küszöb. [61][62]
4. A nem fotorefraktív mintákon méréseket végeztem a termooptikai effektus eredetére vonatkozóan. A különböző teljesítményeken felvett Z-scan görbék illesztéséből meghatározott n_2 nemlineáris törésmutató és β nemlineáris abszorpciós együttható, valamint a lézerteljesítmény kapcsolatából igazoltam, hogy a termo-optikai effektusban a nemlineáris abszorpciónak döntő szerepe van. Ezt n_2 elméleti úton történő meghatározásával is alátámasztottam. A görbék jó illeszthetősége szintén erre utal. Feltevésemet tovább igazolandó, a szkennelést adott teljesítmény mellett elvégeztem a kristályoptikai tengelyirányú, illetve arra merőleges polarizációt használva. A Z-scan görbék illesztéséből meghatározott n_2 értékek a kristályoptikai tengellyel párhuzamos polarizáció esetén mintegy háromszor nagyobbak adódtak, mint az arra merőleges polarizáció esetén. Az adott polarizációhoz tartozó β értékek arányát az n_2 értékek arányával egyezőnek találtam. Ezen eredmények meggyőzően alátámasztották a nemlineáris abszorpció meghatározó jelentőségét a nemlineáris törésmutató kialakulásában. A nemlineáris abszorpciót nyitott apertúras mérésekkel is vizsgáltam, melyek eredményei összhangban voltak a zárt apertúrasokéval. Ezen

mérésekkel azt is megmutattam, hogy a LN-ban a nemlineáris abszorpció anizotrop.[61][62]

5. Rámutattam, hogy amennyiben termikus eredetű a törésmutató-változás, és az abszorpció nemlineáris, a közleményekben ismertetett elméletek alkalmasak az n_2 és β anyagi paraméterek meghatározására a Z-scan görbék illesztésével. Amennyiben viszont az abszorpció tisztán lineáris vagy a lineáris és a nemlineáris abszorpció együttesen van jelen, a termooptikai nemlineáris törésmutató az aktuális nyaláb mérettől is függ a szkennelés során. Emiatt a standard Z-scan modellek nem alkalmasak a mért görbék illesztésére. Olyan numerikus számításokon alapuló modellt dolgoztam ki, ami termooptikai eredetű törésmutató-változás során alkalmas a lineáris, illetve nemlineáris abszorpciós együttható meghatározására.

Summary of the results

1. I demonstrated that in order to decide the applicability of the *Z*-scan technique as a qualitative method some accessory measurements have to be performed, mainly in those cases, when the origin of the light-induced change of refraction was not clarified. One of these measurements is the detailed examination of the cross section of the beam passing through the sample. Concerning to the LiNbO₃ (LN) crystal, the beam cross-section was examined by digital recordings. In the case of not significant distortions the characteristics of the variation was clarified by the detailed analysis of the intensity-distribution. In case of the 5.0 mol% of Mg doped stoichiometric LN the beam cross-section was isotropic, while in case of the congruent composition doped on the same Mg level it was found to be elongated into the direction of the crystal-optic axis. From the *Z*-scan curves in the case of 5.0 mol% Mg doped congruent crystal I concluded for positive, and in the case of 5.0 mol% Mg doped congruent for negative, but with one order of magnitude larger nonlinearity than the stoichiometric. [55]
2. While in case of the 5.0 mol% Mg doped congruent LN the beam distortion became significant only at intensities significantly larger than 1 kW/cm², in case of the undoped and Fe-doped samples, this was observed even for the 1 W/cm² intensity as well. I compared the photorefractive sensitivities of the photorefractive LN samples by examination of the temporal evolution of the on-axis intensity in the far field. From the time constants of the transient and from the steady-state normalised transmittance values, I concluded that the undoped stoichiometric sample was more sensitive than the undoped, and even more sensitive than the Fe-doped congruent LN. Furthermore it was diagnosed, that the photorefractive sensitivity of the Fe-doped samples is increasing with the Fe concentration. [62]
3. From the peak-valley configuration of the *Z*-scan traces, from the circular symmetric beam variations, and from the identical results of the scanning with different velocities it was concluded, that in case of the 0.67 and 5.0 mol% Mg doped stoichiometric, and in case of the 6.1 mol% Mg doped congruent LN photorefractive was negligible compared to other effects. These samples showed the

decrease of the transmittance in prefocal, and the increase in postfocal positions on the ms time-scale. From the isotropic distortions, from the positive sign of the n_2 nonlinear refraction determined from the Z -scan fittings and from the result of the theoretical calculation of the τ time constant of the transient I concluded to the thermo-optical origin of the effect. By complex measurements I showed that for the congruent composition the photorefractive threshold was between 5.0 and 6.1 mol% Mg concentration in contrast with the 4.6 mol% value given in the references. For the stoichiometric composition the threshold was below 0.67 mol%. [61][62]

4. In order to clarify the origin of the thermo-optical effect for the non-photorefractive samples I performed measurements at different powers. It was shown from the relation of the beam-power, the n_2 nonlinear refraction, the β nonlinear absorption coefficient, that in the thermo-optical effect the nonlinear absorption has dominant role. I supported it by the theoretical calculation of n_2 as well. The adequate fitting of the traces also refer to this. For further improvements I performed scannings at a given power, applying polarisation to be parallel, and perpendicular to the crystal-optic axis of the given sample. For the extraordinary polarisation the n_2 value obtained from the fitting was found to be about three times larger than the n_2 which belongs to the ordinary polarisation. The ratio of the β values belonging to the different polarisation was found to be identical with the n_2 ratio. These measurements strongly proved the significance of the nonlinear absorption in the formation of the nonlinear refraction. I examined the nonlinear absorption by open-aperture measurements as well, whose results were harmonious with the closed-aperture measurements. These measurements also demonstrated that the nonlinear absorption in LN was anisotrope. [61][62]
5. I showed, that if the light-induced change of refraction had thermal origin, and the absorption was purely nonlinear, the standard Z -scan theories were valid to determine the n_2 and β material parameters. But if the absorption is purely linear, or both the linear and nonlinear is presented, the thermo-optical nonlinear refraction depends on the actual beam size as well. This makes the standard theory impossible for the fitting. A model based on numerical calculations was elaborated which is

suitable to determine the coefficients of linear and nonlinear absorption for thermal effects.

Irodalomjegyzék

- [1] M. Sheik-Bahae, A. A. Said, T. H. Wei, D. J. Hagan, E. W. Van Stryland:
Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam
IEEE J. Quantum Electr. **26** 760 (1990)
- [2] Nagy Károly:
Elektrodinamika
Tankönyvkiadó, Budapest (1968)
- [3] Guenther, Robert D.:
Modern Optics
John Wiley and Sons (1990)
- [4] B.E.A Saleh, M.C. Teich:
Fundamentals of photonics
Wiley-Interscience (1991)
- [5] SNLO nonlinear optics code available from A. V. Smith, Sandia National
Laboratories, Albuquerque, NM 87185-1423
- [6] R. L. Byer:
Parametric oscillators and nonlinear materials
Ed.: P.G. Harper and B. S. Wherrett. Academic press, Nonlinear optics (1977)
- [7] Frist Zernike, John E. Midwinter:
Applied nonlinear Optics
John Wiley and Sons New York/Sydney/Toronto/London (1973)
- [8] L.E. Myers, R.C. Eckardt, M.M. Fejer, R.L. Byer, W.R. Bosenberg, and J.W. Pierce:
J. Opt. Soc. Am. B **12**, 2102 (1995)
- [9] Pálfalvi L., Hebling J:
Femtosekundumos PPLN optikai parametrikus oszcillátor
IV. Szimpózium a Hazai Kvantumelektronikai Kutatásokról. Kvantumelektronika
(2000)
- [10] X. Zhang, J. Hebling, J. Kuhl, W.W. Rühle, L. Pálfalvi, H. Giessen:
*Femtosecond near-IR optical parametric oscillator with efficient intracavity
generation of visible light*
J. Opt. Soc. Am. B **19**, 2479 (2002)
- [11] K. Polgár, Á.Péter, I.Földvári, Zs. Szaller:
Structural defects in flux-grown stoichiometric LiNbO₃ single crystals
J. Crystal Growth **218** 327 (2000)

- [12] U. Schlarb and K. Betzler:
Refractive indices of lithium niobate as a function of temperature, wavelength, and composition: A generalized fit
Phys. Rev. B **48** 15613 (1993)
- [13] T. Fujiwara, M. Takahashi, M. Ohama, A. J. Ikushima, Y. Furukawa, J. Kitamura:
Comparison of electro-optic effect between stoichiometric and congruent LiNbO₃
Electronic Letters **35** 499 (1999)
- [14] A. Grisard, E. Lallier, K. Polgár, Á. Péter.
Low field periodic poling of thick stoichiometric lithium niobate
Electronic Letters **36** 1043 (2000)
- [15] Gopalan V., Mitchell T.E., Furukawa Y., Kitamura K:
The role of nonstoichiometry in 180° domain switching of LiNbO₃ crystals
Appl. Phys. Lett. **72** 1981 (1988)
- [16] F. S. Chen:
Optically induced change of refractive indices in LiNbO₃ and LiTaO₃
J. of Appl. Phys. **40** 3389 (1969)
- [17] Heping Li, Feng Zhou, Xejun Zhang, Wei Ji:
Picosecond Z-scan study of bound electronic Kerr effect in LiNbO₃ crystal associated with two-photon absorption
Appl. Phys. B **64** 659 (1997)
- [18] P. Günther, J.P. Huibhard:
Photorefractive materials and their applications
Springer, Heidelberg pp. 63, 137-140 (1988)
- [19] S. Bian, J. Frejlich, and H. H. Ringhofer:
Photorefractive Saturable Kerr-Type Nonlinearity in Photorefractive Crystals
Phys. Rev. Lett. **78** 4035 (1997)
- [20] K. Polgár, L. Kovács, I. Földvári, I. Cravero:
Spectroscopic and electrical conductivity investigation of Mg doped LiNbO₃ single crystals
Solid State Comm. **59** 375 (1986)
- [21] T. Volk, N. Rubinina, M. Woehlecke:
Optical-damage-resistant impurities in lithium niobate
J. Opt. Soc. Am. B **11** 1681. (1994)
- [22] Y. Furukawa, K. Kitamura, S. Takekawa, A. Miyamoto, M. Terao, N. Suda:
Photorefraction in LiNbO₃ as a function of [Li]/[Nb] and MgO concentrations
Appl. Phys. Lett. **77** 2494 (2000)

- [23] Y. Furukawa, K. Kitamura, S. Takekawa, K. Niwa, H. Hatano:
Stoichiometric Mg: LiNbO₃ as an effective material for nonlinear optics
Optics Lett. **23** 1892 (1998)
- [24] D.A. Bryan, R. Gerson, H.E. Tomaschke:
Increased optical damage resistance in lithium niobate
Appl. Phys. Lett. **44** 847 (1984)
- [25] J. Xu, G. Zhang, F. Li, X. Zhang, Q. Sun, S. Liu, F. Song:
Enhancement of ultraviolet photorefraction in highly magnesium-doped lithium niobate crystals
Optics Lett. **25** 129 (2000)
- [26] M. Fontana, K. Chah, M. Aillerie, R. Mouras:
Optical damage resistance in undoped LiNbO₃ crystals
Opt. Mat. **16** 111 (2001)
- [27] S. Bian:
Estimation of photovoltaic field in LiNbO₃ crystal by Z-scan
Opt. Com. **141** 292 (1997)
- [28] N. Kamber, G. Zhang, S. Liu, S.M. Mikha, W. Haidong:
Study of the self-defocusing in LiNbO₃: Fe, Mg crystals
Opt. Com. **475** 184 (2000)
- [29] R. Ryf, A. Lötscher, C. Bosshard, M. Zgonik, P. Günter:
Z-scan based investigations of photorefractive self-focusing in KNbO₃ crystals
J. Opt. Soc. Am. B **15** 989 (1998)
- [30] Q. Wang Song, Chun-ping Zhang, and Pierre J. Talbot:
Anisotropic light-induced scattering and "position dispersion" in KNbO₃: Fe crystal
Opt. Com. **98** 269 (1993)
- [31] Q. Wang Song, Chun-ping Zhang, and Pierre J. Talbot:
Self-defocusing, self focusing, and speckle in LiNbO₃ and LiNbO₃: Fe crystals
Appl. Opt. **32** 7266 (1993)
- [32] G. Zhang, Q.X. Li, P. Ho, S. Liu, Z.K. Wu, R.R. Alfano:
Dependence of speckle size on the laser beam size via photo-induced light scattering in LiNbO₃: Fe
Appl. Opt. **25** 1955 (1986)
- [33] R.A Rupp, F.W Dress:
Light-induced scattering in photorefractive crystals
Appl. Phys. B **39** 223 (1986)
- [34] Joseph T. Verdeyen:
Laser Electronics
New Jersey

- [35] P.P. Banerjee, R.M. Mirsa, M. Maghraoui:
Theoretical and experimental studies of propagation of beams through a finite sample of a cubically nonlinear material
J. Opt. Soc. Am. B **8** 1072 (1991)
- [36] G. Tsigaridas, M. Fakis, I. Polyzos, P. Persephonis, V. Giannetas:
Z-scan measurements through radius measurements
Appl. Phys. B **76** 83 (2003)
- [37] M. Sheik-Bahae, A. A. Said, D. J. Hagan, M.J. Solileasu, E. W. Van Stryland:
Nonlinear refraction and optical limiting in thick media
Opt. Eng. **30** 1228 (1991)
- [38] J. A. Hermann, R. G. McDuff:
Analysis of spatial scanning with thick optically nonlinear media
J. Opt. Soc. Am B **10** 2056 (1993)
- [39] C.H. Kwak, Y.L. Lee, S.G. Kym:
Analysis of asymmetric Z-scan measurement for large optical nonlinearities in amorphous As₂S₃ thin film
J. Opt. Soc. Am B **16** 600 (1999)
- [40] H.A. Haus, J.G. Fujimoto, E.P. Ippen:
Analytic theory of additive pulse and Kerr Lens Mode Locking
IEEE J. of Q. Electr. **28** 2091 (1992)
- [41] K.H. Lin, W.F. Hsieh:
Analytical design of symmetrical Kerr-lens mode-locking laser cavities:
J. Opt. Soc. Am B **11** 737 (1994)
- [42] K.H. Lin, Y. Lai, W.F. Hsieh:
Simple analytical method of cavity design for astigmatism-compensated Kerr-lens mode-locked ring lasers and its applications
J. Opt. Soc. Am B **12** 468 (1994)
- [43] R.Q.-Torres, L. Zambrano-Valencia, R.M.Bermudez-Cruz, M. Thakur:
Z-scan like results produced by linear optical approximation of a nonlinear material
Revista Mexicana de Física **46** 586 (2000)
- [44] G. Toci, M. Vannini, R. Salimbeni, M.Q. Dubinskii, E. Giorgetti:
First Z-scan n₂ measurements on crystal hosts for ultraviolet laser systems
Appl. Phys. B **71** 907 (2000)
- [45] B.K. Rhee, J.S. Byun, E.W. Van Stryland:
Z-scan using circularly symmetric beams
J. Opt. Soc. Am. B **13** 2720 (1996)

- [46] H.P. Li, C.H. Kam, Y.L. Lam, W. Ji:
Femtosecond Z-scan measurements of nonlinear refraction in nonlinear optical crystals
Opt. Mat. **15** 237 (2001)
- [47] R.A. Ganeev, A.I. Ryasnyansky, M.K. Kodirov, T. Usmanov:
Nonlinear optical characteristics of C₆₀ and C₇₀ films and solutions
Opt. Com. **185** 473 (2000)
- [48] S.X. Wang, L.D. Zhang, H. Su, Z.P. Zhang, G.H. Li, G.W. Meng, J. Zhang, Y.W. Wang, J.C. Fan, T. Gao:
Two-photon absorption and optical limiting in poly (styrene maleic anhydride) / TiO₂ nonocomposites
Phys. Lett. A **281** 59 (2001)
- [49] F. Smektala, C. Quemard, V. Couderc, A. Barthelmeny:
Non-linear optical properties of chalcogenide glasses measured by Z-scan
Journal of Non-Crystalline solids **274** 232 (2000)
- [50] H.P. Li, C.H. Kam, Y.L. Lam, W. Ji:
Optical nonlinearities and photo-excited carrier lifetime in CdS at 532 nm
Opt. Comm. **190** 351 (2001)
- [51] J. Wang, M. Sheik-Bahae, D.J. Hagan, E.W. Stryland:
Time-resolved Z-scan measurements of optical nonlinearities
J. Opt. Soc. Am. B **11** 1009 (1994)
- [52] K.Y. Tseng, K.S. Wong, G.K.L. Wong:
Femtosecond time-resolved Z-scan investigations of optical nonlinearities in ZnSe
Opt. Lett. **21** 180 (1996)
- [53] D.V. Petrov, A.S.L. Gomes, C.B. Araujo:
Reflection Z-scan technique for measurements of optical properties of surfaces
Appl. Phys. Lett. **65** 1067 (1994)
- [54] M. Martinelli, S. Bian, J.R. Leite, R.J. Horowitz:
Sensitivity-enhanced reflection Z-scan by oblique incidence of a polarized beam
Appl. Phys. Lett. **72** 1427 (1998)
- [55] L. Pálfalvi, G. Almási, J. Hebling, Á. Péter, and K. Polgár:
Measurement of laser-induced refractive index changes of Mg-doped congruent and stoichiometric LiNbO₃
Appl. Phys. Lett. **80** 2245 (2002)
- [56] Pálfalvi L., Péter Á., Polgár K., Hebling J.:
LiNbO₃ kristályok fotorefrakciójának vizsgálata
IV. Szimpózium a Hazai Kvantumelektronikai Kutatásokról. Kvantumelektronika (2000)

- [57] L. Pálfalvi, J. Hebling, Á. Péter, K. Polgár:
New method for the characterisation of photorefractive damage in LiNbO₃ crystals
Fourth Annual Meeting of the COST Action P2 Applications of Nonlinear of
Nonlinear Optical Phenomena and Workshop in LiNbO₃ (2001)
- [58] F.Z. Henary, K.Cazzani, F. E. Akkari, W. J. Blau:
Beam waist changes in lithium niobate during Z-scan measurement
J. Appl. Phys. **78** 1373 (1995)
- [59] D. H. Jundt :
*Temperature-dependent Sellmeier equation for the index of refraction, n_e , in
congruent lithium niobate*
Opt. Lett. **22** 1555 (1997)
- [60] J.P. Gordon, R.C.C. Leite, R.S. Moore, S.P. Porto, J.R. Whinnery:
Long-transient effects in lasers with inserted liquid samples
J. Appl. Phys. **36** 3 (1965)
- [61] L. Pálfalvi, J. Hebling, G. Almási, Á. Péter, K. Polgár:
*Refractive index changes in Mg doped LiNbO₃ caused by photorefraction and
thermal effect*
Journal of Optics A (2003, közlésre elfogadva)
- [62] L. Pálfalvi, J. Hebling, G. Almási, Á. Péter, K. Polgár, K. Lengyel, R. Szipőcs:
*Nonlinear refraction and absorption of Mg doped stoichiometric and congruent
LiNbO₃*
Journal of Appl. Phys. (beküldve, 2003)

Köszönetnyilvánítás

Ezúton szeretnék köszönetet mondani témavezetőmnek, *dr. Hebling János* egyetemi docensnek, a PTE Kísérleti Fizika Tanszékének vezetőjének, aki hasznos tanácsaival, és a munkához szükséges feltételek megteremtésével igen nagy mértékben segítette doktori munkámat.

Köszönetet mondok *dr. Janszky József* akadémikusnak, a PTE Fizikai Intézetének vezetőjének, és *dr. Sánta Imre* egyetemi docensnek a DDKKK igazgatójának, akik a kutatómunka végzésében támogattak, és biztosították a munkához szükséges feltételeket.

Köszönet illeti mindazokat, akik a publikációkban társzerzők, különös tekintettel *dr. Almási Gábort* és *dr. Szipőcs Róbertet*, akik a kísérletek végzése során nyújtottak segítséget.

Megköszönöm *dr. Kotek László* és *dr. Ádám Péter* kollégáimnak, hogy baráti segítségükre mindig számíthattam.

Köszönettel tartozom *dr. Litz Józsefnek* a kézirat gondos átolvasásáért, és a hasznos megjegyzésekért.

Hálával tartozom *Szüleimnek*, akik e néhány év alatt áldozatkészen támogattak mindenben.