

PÉCSI TUDOMÁNYEGYETEM

Fizika Doktori Iskola

Nemlineáris optika és spektroszkópia program

**Oxidkristályok lineáris terahertzes
spektroszkópai vizsgálata**

PhD értekezés



Unferdorben Márta

Témavezető:

Dr. Pálfalvi László

egyetemi docens

PÉCS, 2016

1. ELŐZMÉNYEK ÉS CÉLKITŰZÉSEK

Az elmúlt évtizedekben az oxidkristályokat ígéretes alkalmazási lehetőségeik miatt széles körben vizsgálták. Korábbi kísérletek megmutatták, hogy a lítium-niobát (LN) és a paratellurit (α -TeO₂) kristály alkalmazható THz-es impulzusok keltésére is [1, 2].

A LN nemlineáris optikai anyag, amely kiemelkedően nagy d_{33} nemlineáris optikai együtthatójának köszönhetően használható a THz-es frekvencia-tartományon [3]. A nagy energiájú THz-es impulzusok keltésén kívül [1] alkalmazható a nemlineáris THz-es spektroszkópia és nemlineáris THz-es optika területén [4]. Ezen kísérletek megtervezéséhez elengedhetetlen a LN THz-es tartománybeli törésmutatójának és abszorpciós együtthatójának ismerete.

A LN magnéziummal történő adalékolásának az abszorpciós együtthatóra és a törésmutatóra gyakorolt hatásának vizsgálata érdekében egy évtizeddel ezelőtt távoli infravörös Fourier-transzformációs (FIR FT) spektroszkópiai méréseket végeztek adalékolatlan és magnéziummal adalékolt (1,2; 6,1 és 8,4 mol% Mg koncentrációjú) kongruens LN (cLN) és (0,7; 1,5 és 4,2 mol% Mg koncentrációjú) sztöchiometrikus LN (sLN) kristályokon a 0.9 - 4.6 THz frekvenciatartományon extraordinárius polarizációval [5]. A meghatározott abszorpciós együttható és a törésmutató értékek azonban a vizsgált minták felületének görbülete miatt fellépő lencsehatás következtében bizonytalanok voltak.

Céлом volt az adalékolatlan és magnéziummal az adalékolt cLN és sLN kristályok FIR FT mérésekkel meghatározott abszorpciós együttható és a törésmutató

értékeinek pontosítása extraordinárius polarizáció esetén, és az abszorpciós együttható és a törésmutató spektrumainak meghatározása ordinárius polarizáció esetén időtartománybeli terahertzes spektroszkópiával (THz-TDS) a 0,25 – 2,5 THz frekvenciatartományon.

Az α -TeO₂ kristály a tudományos életben főként akusztó- [6] és elektrooptikai tulajdonságai [7] miatt jelentős. Az α -TeO₂ a tellúr-dioxid D_4 kristályformája tetragonális szimmetriával. A kristály színtelen és a 0.33-6.5 μm tartományon átlátszó [8]. Pozitív egytengelyű anyag, amely optikai aktivitást mutat az optikai tengelye mentén terjedő sugárzásra [8] és nagy nemlineáris optikai együtthatóval rendelkezik ($d_{14} = 0,59 \text{ pm/V}$ 1064 nm hullámhosszú sugárzás esetén) [9].

Sotome és munkatársai nemrégiben 800 nm hullámhosszú femtoszekundumos lézerimpulzusokkal

megvilágított α -TeO₂ kristályban történő THz-keltésről számoltak be [10]. Ezenkívül FIR FT és THz-TDS méréseket is végeztek a kristály optikai tulajdonságainak meghatározására. Az α -TeO₂ kristály törésmutató és abszorpciós együttható függvényeit a komplex dielektromos állandó N Lorentz oszcillátorral történő közelítésével határozták meg. Az N értéke 8 ordinárius, 4 extraordinárius polarizáció esetén. A Lorentz függvényt a FIR FT mérések eredményeként kapott reflektancia adatokhoz illesztették mind ordinárius mind extraordinárius polarizáció esetén.

A THz-TDS transzmissziós mérések eredményei és a Lorentz modellből származtatott spektrumok között azonban jelentős az eltérés a 0.25 – 2 THz frekvencia-tartományon. Annak érdekében, hogy a THz-TDS mérések eredményeihez illeszkedő, és a FIR FT

eredményekkel is összhangban lévő törésmutató és abszorpciós együttható függvényeket kapjunk, a Lorentz paraméterek megváltoztatására van szükség.

Céлом volt a korábban mért törésmutató és abszorpciós együttható spektrumok ellenőrzése THz-TDS mérésekkel, ezenkívül mind a THz-TDS mind a FIR FT mérési eredmények figyelembevételével új Lorentz paraméterek meghatározása, amelyekből pontosabb törésmutató és abszorpciós együttható spektrumok számíthatók.

2. MÓDSZEREK

A LN és az α -TeO₂ $n(\nu)$ törésmutató és $\alpha(\nu)$ abszorpciós együttható spektrumait időtartománybeli terahertzes spektroszkópiával határoztam meg a 0.25 –

2.5 THz és a 0.25 – 2 THz frekvenciatartományon. A vizsgálatokhoz a Menlo Systems által gyártott TERA K8 terahertzes spektrométert használtam. A spektrométer belsejében lévő vízgőz THz-es abszorpciójának kiküszöbölésére a relatív páratartalmat 7 % alatt tartottam nitrogén gáz befújásával [11].

A mérések során a mintán és a minta nélküli téren áthaladó THz-es impulzusok elektromos terének időfüggését figyeltem meg. A térerősség-idő függvények Fourier transzformáltjából frekvenciafüggő komplex átviteli függvényt számítottam, amelyből meghatároztam a minta törésmutatóját és abszorpció együtthatóját a frekvencia függvényében. Az anyagi paraméterek meghatározását az időbeli jelekből a Menlo Systems által gyártott TeraMat szoftverrel határoztam meg. Mivel ez a szoftver nem veszi figyelembe a Fabry-Perot effektust, a

mérés időablakát olyan méretűre csökkentettem, hogy a 34 ps után a detektorba érkező első reflektált impulzus kikerüljön az időablakból. A TeraMat szoftverrel számított adatok ellenőrzésére csoportunk egy optimalizációs algoritmust [12-14] alkalmazó kiértékelési eljárást fejlesztett.

A LN és α -TeO₂ minták vastagságát mikrométercsavarral mértem meg 10 μ m pontossággal. A vizsgált kristályok közismert kettőtörése [15, 16] miatt a méréseket ordinárius és extraordinárius polarizáció esetén egyaránt elvégeztem. Mivel a spektrométer THz-es forrásának polarizációja nem tökéletesen lineáris, egy lebegés-szerű jelenség [17, 18] volt megfigyelhető a mért spektrumokban. Ennek a hatásnak az elkerülés érdekében egy wire grid polarizátort alkalmaztam.

3. ÚJ TUDOMÁNYOS EREDMÉNYEK

I. Időtartománybeli THz-es spektroszkópia módszerével meghatároztam az adalékotlan és a 0,7; 1,5 illetve 4,2 mol% magnéziummal adalékolt sztöchiometrikus LiNbO_3 kristályok törésmutató és abszorpciós együttható spektrumait a 0,25 - 2,5 THz frekvenciatartományon ordinárius és extraordinárius polarizáció esetén. Az értekezés [10] hivatkozása szerinti távoli infravörös Fourier-transzformációs spektroszkópiával meghatározott extraordinárius törésmutató és a $\sim 20 \text{ cm}^{-1}$ bizonytalansággal rendelkező abszorpciós együttható értékek pontosítására eljárást dolgoztam ki az időtartománybeli THz-es spektroszkópia módszerével mért eredményeim alapján [S1, S2].

II. Időtartománybeli THz-es spektroszkópia módszerével meghatároztam az adalékotlan és az 1,2;

6,1 illetve 8,4 mol% magnéziummal adalékolt kongruens LiNbO₃ kristályok törésmutató és abszorpciós együttható spektrumait a 0,25 - 2,5 THz frekvenciatartományon ordinárius és extraordinárius polarizáció esetén. Az értekezés [10] hivatkozása szerinti távoli infravörös Fourier-transzformációs spektroszkópiával meghatározott extraordinárius törésmutató és a $\sim 20 \text{ cm}^{-1}$ bizonytalansággal rendelkező abszorpciós együttható értékek pontosítására eljárást dolgoztam ki az időtartománybeli THz-es spektroszkópia módszerével mért eredményeim alapján [S2].

III. Időtartománybeli THz-es spektroszkópia módszerével meghatároztam az α -TeO₂ kristály törésmutató és abszorpciós együttható értékeit a frekvencia függvényében a 0,25 - 2 THz

frekvenciatartományon ordinárius és extraordinárius polarizáció esetén [S3].

IV. Az α -TeO₂ kristály komplex dielektromos állandóját Lorentz-oszcillátor tagok megfelelő számú összegével modelleztem ordinárius és extraordinárius polarizáció esetén. Az értekezés [43] hivatkozásával ellentétben a modell sikeresen illeszkedik az időtartománybeli THz-es spektroszkópia mérések eredményeire. Az illesztési paraméterek értéke összhangban van korábbi Raman-, és távoli infravörös Fourier-transzformációs spektroszkópiai mérések eredményeivel [S3].

4. AZ ÉRTEKEZÉS KÖRÉBEN MEGJELENT PUBLIKÁCIÓK

[S1] K. Lengyel, Á. Péter, L. Kovács, G. Corradi, L. Pálfalvi, J. Hebling, **M. Unferdorben**, G. Dravecz, I. Hajdara, Zs. Szaller, K. Polgár, „Growth, defect structure, and THz application of stoichiometric lithium niobate”, *Appl. Phys. Rev.* **2**, 040601 (2015)

[S2] **M. Unferdorben**, Zs. Szaller, I. Hajdara, J. Hebling and L. Pálfalvi, „Measurement of refractive index and absorption coefficient of congruent and stoichiometric lithium niobate in the terahertz range”, *J. Infrared Milli. Terahz. Waves* **36**, 1203 (2015)

[S3] **M. Unferdorben**, A. Buzády, J. Hebling, K. Kiss, I. Hajdara, L. Kovács, Á. Péter, L. Pálfalvi, „Index of refraction and absorption coefficient spectra of

paratellurite in the terahertz region”, *J. Infrared Milli.*

Terahz. Waves (2016) DOI: 10.1007/s10762-016-0261-1

5. HIVATKOZÁSOK

- [1] J. A. Fülöp, Z. Ollmann, Cs. Lombosi, C. Skrobol, S. Klingebiel, L. Pálfalvi, F. Krausz, S. Karsch, J. Hebling, *Opt. Express* **22**, 20155 (2014)
- [2] M. Sotome, N. Kida, R. Takeda, H. Okamoto, *Phys. Rev. A* **90**, 033842 (2014)
- [3] J. Hebling, K.-L. Yeh, M. C. Hoffmann, B. Bartal, K. A. Nelson, *J. Opt. Soc. Am. B* **25**, B6 (2008)
- [4] K.-E. Peiponen, A. Zeitler, M. Kuwata-Gonokami (eds.), *Terahertz Spectroscopy and Imaging*, Springer Series in Optical Sciences **171** (Springer, Berlin Heidelberg 2013)
- [5] L. Pálfalvi, J. Hebling, J. Kuhl, Á. Péter, K. Polgár, *J. Appl. Phys.* **97**, 123505 (2005)

- [6] N. Uchida, Y. Ohmachi, J. Appl. Phys. **40**, 4692 (1969)
- [7] M. D. Ewbank, P. R. Newman, J. Appl. Phys. **53**, 1150 (1982)
- [8] J. Liebertz, Krist. Tech. **4**, 221 (1969)
- [9] D. S. Chemla, J. Jerphagnon, Appl. Phys. Lett. **20** 222 (1972)
- [10] M. Sotome, N. Kida, R. Takeda, H. Okamoto, Phys. Rev. A **90**, 033842 (2014)
- [11] M. van Exter, C. Fattinger, D. Grischkowsky, Opt. Lett. **14**, 1128 (1989)
- [12] X. Li, Z. Hong, J. He, Y. Chen, Opt. Commun. **283**, 4701 (2010)

- [13] I. Pupeza, R. Wilk, M. Koch, *Opt. Express* **15**, 4335 (2007)
- [14] M. Scheller, *J. Infrared Milli. Terahz. Waves* **35**, 638 (2014)
- [15] M. Schall, H. Helm, S. R. Keiding, *Int. J. Infrared Milli.* **20**, 595 (1999)
- [16] N. Uchida, *Phys. Rev. B* **4**, 3736 (1971)
- [17] K. Wiesauer, C. Jördens, *J. Infrared Milli. Terahz. Waves* **34**, 663 (2013)
- [18] S. Wang, Q. Liang, X. Tao, T. Dekorsy, *Opt. Mat. Express.* **4**, 575 (2014)