

MAGNÉZIUMMAL ADALÉKOLT SZTÖCHIOMETRIKUS LÍTIUM-NIOBÁT HŐMÉRÉSKLETFÜGGŐ DIELEKTROMOS PARAMÉTEREI A TERAHERTZES TARTOMÁNYON

Buzády Andrea¹, Gálos Réka¹, Makkai Géza¹, Xiaojun Wu², Tóth György¹, Kovács László³, Almási Gábor¹, Hebling János^{1,4} és Pálfalvi László¹

¹Fizika Intézet, Pécsi Tudományegyetem, 7624 Pécs, Ifjúság útja 6., Magyarország

²School of Electronic and Information Engineering, Beihang University, Beijing, 100191, China

³Wigner Fizikai Kutatóközpont, 1121 Budapest, Komkoly Thege Miklós út 29-33., Magyarország

⁴MTA-PTE, Nagyintenzitású Kutatócsoport, 7624 Pécs, Ifjúság útja 6., Magyarország

DOI: <https://doi.org/10.14232/kvantumelektronika.9.5>

1. Bevezetés

A nemlineáris optikai kristályokban létrehozott optikai egyenirányítás az egyik leggyakrabban alkalmazott módszer a terahertzes impulzusok előállítására. Sok alkalmazásnál extrém nagy energiájú és elektromos térerősségű terahertzes jelre van szükség. Az optikai tartományból a terahertzes tartományba való konverzió hatásfoka jelentősen függ az úgynevezett sebességillesztés feltételének teljesülésétől. Ez azt jelenti, hogy az optikai impulzus csoportsebessége és a keltett terahertzes impulzus fázissebessége meg kell egyezzen a kristályban. Ezt a feltételt a döntött impulzusfrontú gerjesztéssel lehet kielégíteni, még akár olyan kristályokban is, amelyekben nem egyezik meg a terahertzes és az optikai törésmutató [1]. A döntött impulzusfrontú gerjesztés esetén a sebességillesztés feltétele: $v_{opt}^{cs} \cos \gamma = v_{THz}^f$, eszerint az optikai pumpáló impulzus csoportsebességének a THz-es impulzus terjedési irányára vett vetülete kell megegyezzen a THz-es impulzus fázissebességével. Az impulzusfront γ szögű megdöntése szögdiszperzióval rendelkező optikai elemek alkalmazásával érhető el hangolhatóan.

A THz keltésben gyakran használt kristály a lítium-niobát (LiNbO_3 , LN). A döntött impulzusfrontú elrendezés paramétereinek tervezésénél ismerni kell a nemlineáris kristály terahertzes tartományú abszorpciós együtthatójának és a törésmutatójának frekvenciafüggvényét. Korábbi tanulmányokból ismert, hogy a kristály sztöchiometriája és magnéziummal való adalékolása befolyásolja a dielektromos paramétereket [2,3]. Ezen tulajdonságok optimalizálásán túlmenően a hőmérséklet csökkentésével is kedvezőbbé lehet tenni a terahertzkeltés hatásfokát, ahogy azt 6 mol% Mg-adalékolású kongruens lítium-niobát (cLN:6.0%Mg) esetén már vizsgálták [4]. Munkánkban a 0,7 mol% Mg-adalékolású sztöchiometrikus lítium-niobát hőmérsékletfüggő dielektromos paramétereinek terahertzes tartományú meghatározását tűztük ki célul, mert a szobahőmérsékletű mérések alapján a terahertzes sugárzás generálásához ez még kedvezőbbnek tűnik, mint a kongruens kristály.

Az eredmények felhasználásával megadtunk egy kompakt formulát is a törésmutató és az abszorpciós együttható frekvenciafüggvényének a rekonstruálásához. Bár a függvény nem valós fizikai kölcsönhatásokat leíró modelltől [5] származik, jól használható nagy energiájú terahertzes források tervezésénél a hőmérsékletfüggő sebességillesztési szög meghatározásához [6,7].

2. Mérés és adatfeldolgozás

A 0,7%-ban magnéziummal adalékolott 600 μm -vastagságú sztöchiometrikus LN kristály (0,7%Mg:sLN) vizsgálatához szükséges időtérbeli jelek mérését Tong Lin és Xiaojun Wu (School

of Electronic and Information Engineering, Beihang University, Beijing, 100191, China) végezték egy THz-TDS berendezéssel 4-460 K hőmérsékleten ordinárius és extraordinárius polarizációs irányban is.

A szélessávú lineárisan polarizált THz-es impulzus keltése gallium-arszenid (GaAs) fotovezető antennával történt. Ehhez 70 fs-os lézerpulzusokat alkalmaztak, melyek forrása egy 80 MHz ismétlési frekvenciájú titán-zafír lézer volt. A THz-es jelet parabolikus tükrök fókuszálták a mintára, majd a detektorra. A detektálás elektrooptikai mintavételezéssel történt.

A minta, az emitter és a detektor is egy vákuumkamrában volt elhelyezve, amelyben körülbelül 10^{-5} mbar nyomás volt biztosított a hűtés és a mérés során. A kriogenikus hőmérsékletre való hűtéshez folyékony héliumot alkalmaztak. A mintát a THz-es nyaláb fókuszsíkjába helyezve megmérték a rajta átmenő jelet ordinárius polarizációs irányban, majd 90° -al elforgatva extraordinárius polarizációs irányban is. Mindkét irányban több különböző – ordinárius irányban: 4 K, 20 K, 40 K, 60 K, 100 K, 140 K, 180 K, 220 K, 260 K, 300 K, 340 K, 380 K, 420 K, 460 K; extraordinárius irányban: 4 K, 20 K, 40 K, 60 K, 80 K, 100 K, 120 K, 140 K, 160 K, 180 K, 220 K, 240 K, 260 K, 280 K, 300 K, 320 K, 340 K, 360 K, 380 K, 420 K, 460 K – hőmérsékleten történtek mérések. Referenciajelet (üres téren átmenő jel) a minta ordinárius irányban történő mérése közben több hőmérsékleten (100 K, 180 K, 300 K, 420 K) is mértek. Ezen jelek között nem tapasztalható jelentős változás, így a továbbiakban csak 300 K hőmérsékleten készült referenciajel.

A minta anyagi paramétereinek meghatározásához a mintán átmenő és üres téren átmenő (referencia) THz-es jel elektromos térerősségének időbeli lefutására van szükség. Az időtérbeli jel Fourier-transzformáltja adja a komplex spektrumot, azaz a térerősség amplitúdóját és fázisát. A mintára és a referenciára jellemző spektrumok ($E_{sample}(\nu)$; $E_{ref}(\nu)$) összehasonlításával a következőképpen határozható meg az anyagra jellemző frekvenciafüggő abszorpciós együttható és törésmutató. A Fourier-transzformáltakból számított átviteli függvény:

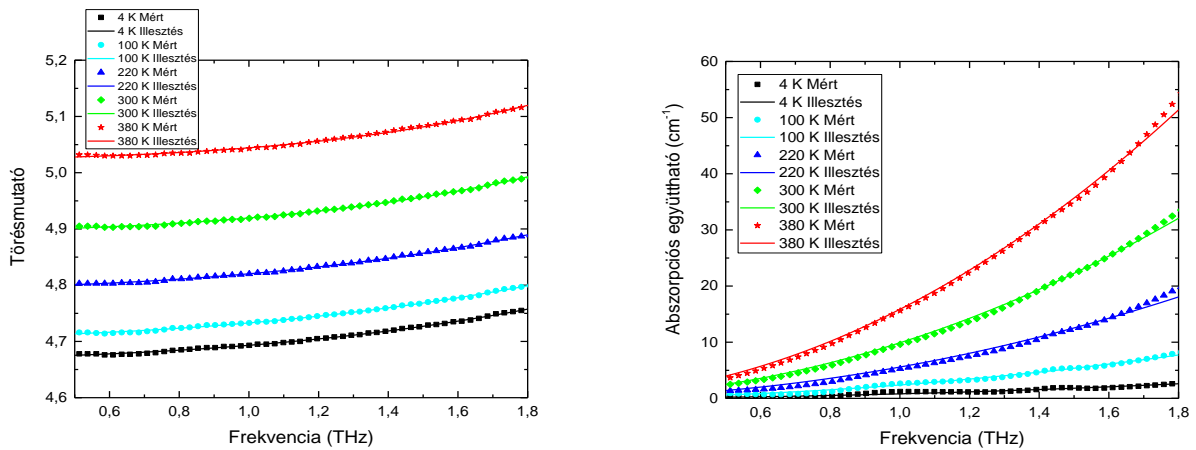
$$H(\nu) = \frac{E_{sample}(\nu)}{E_{ref}(\nu)}$$

Ezt felhasználva adódik a d vastagságú mintára az $n(\nu)$ törésmutató, annak ismeretében pedig az $\alpha(\nu)$ abszorpciós együttható:

$$n(\nu) = \arg(H(\nu)) \cdot \frac{c}{2\pi\nu d} + 1 \quad \alpha(\nu) = \frac{4\pi\nu\kappa(\nu)}{c} = \frac{2}{d} \ln \left(\frac{1}{|H(\nu)|} \frac{4n(\nu)}{(n(\nu) + 1)^2} \right)$$

3. Eredmények

Az 1. ábrán a terahertzeltetés szempontjából fontosabb extraordinárius polarizációjú törésmutató és abszorpciós együttható frekvenciafüggvénye látható néhány kiválasztott hőmérsékleten. Az időtérbeli mérésekből meghatározható adatokat polinom függvényekkel illesztettük.



1. ábra

0,7%Mg:sLN extraordinárius törésmutató és abszorpciós együttható frekvenciafüggése és polinomos illesztése

Tapasztalataink alapján az abszorpciós együttható frekvenciafüggését másodfokú függvénnyel lehet jól leírni:

$$\alpha(\nu, T) = B(T)\nu^2$$

ahol a $B(T)$ illesztési paraméter a hőmérséklet másodfokú függvénye:

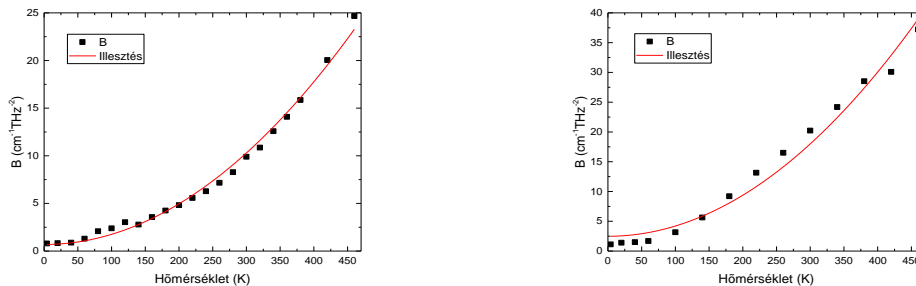
$$B(T) = a_0 + b_0 T^2$$

Így az $\alpha(\nu, T) = (a_0 + b_0 T^2)\nu^2$ összefüggéssel az adott polarizációs irányban bármely hőmérsékleten széles frekvenciatartományon megadható az abszorpciós együttható mindössze két konstans segítségével, melyek az 1. táblázatban és a 2. ábrán láthatóak.

	a_0 ($\text{cm}^{-1} \text{THz}^{-2}$)	b_0 ($10^{-4} \text{cm}^{-1} \text{K}^{-2} \text{THz}^{-2}$)
Extraordinárius	0,69	1,07
Ordinárius	2,48	1,72

1. táblázat

Az abszorpciós együttható frekvencia- és hőmérsékletfüggését egyszerre jellemző konstansok extraordinárius és ordinárius polarizációs irányban

2. ábra 0,7%Mg:sLN $B(T)$ függvénye extraordinárius és ordinárius polarizációirányra

A frekvenciafüggő törésmutató adatok jól közelíthetők bármely hőmérsékleten a következő negyedrendű polinommal:

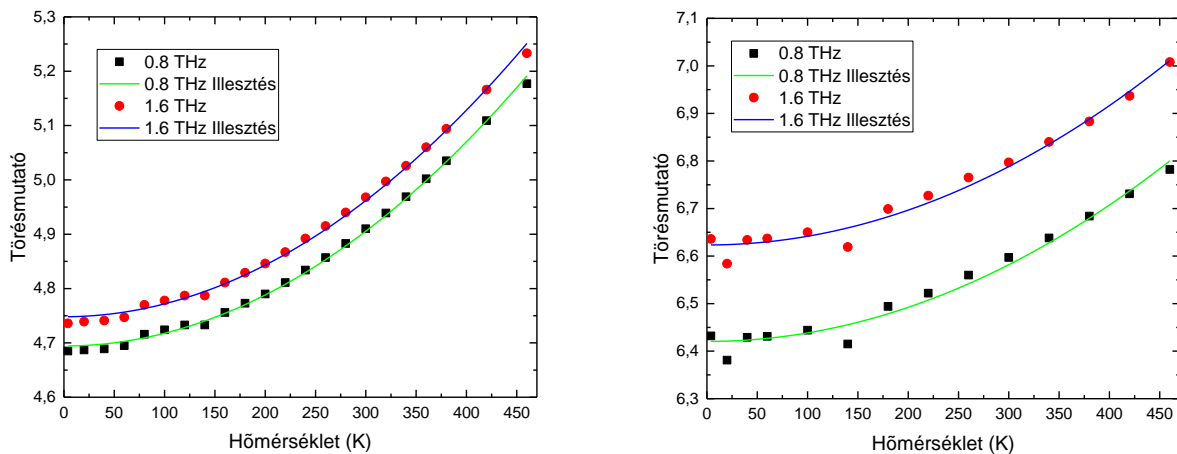
$$n(\nu) = A + B\nu^2 + C\nu^4$$

A törésmutató frekvencia- és hőmérsékletfüggése – az abszorpciós együtthatóéval ellentétben – nem jellemezhető az összes frekvenciára egyszerre érvényes egyszerű formulával. Két kiválasztott (0,8 THz és 1,6 THz) frekvencián azonban a hőmérsékletfüggés megadható egy másodfokú függvényvel. A 2. táblázatban és a 2 ábrán az $n(T) = A + BT^2$ polinommal történt illesztés eredményei láthatóak.

	0,8 THz		1,6 THz	
	A	B (10^{-6} K^{-2})	A	B (10^{-6} K^{-2})
Extraordinárius	4,69	2,35	4,75	2,38
Ordinárius	6,42	1,79	6,62	1,83

2. táblázat

A hőmérséklettől függő törésmutató illesztési paraméterei mindkét polarizációs irányban két kiválasztott frekvencián



3. ábra

0,7%Mg:sLN extraordinárius és ordinárius törésmutató hőmérsékletfüggése

A döntött impulzusfrontú THz-keltés megvalósításához szükséges nemcsak az impulzusfront dőlésszögének, hanem a diffrakciós szög és a rácsra való beesési szög ismerete is.

Az optimális elrendezés tervezéséhez az impulzusfont dőlésszögét (fázisillesztési szög) (4. ábra) az $v_{opt}^{CS} \cos \gamma = v_{THz}^f$ egyenlet alapján határoztuk meg, amelyhez a THz-es fázissebességet a 0,8 és 1,6 THz frekvencián mért törésmutató-adatokból számoltuk az összes hőmérsékleten. Az optikai impulzus csoportsebességének meghatározásához Gayer korábbi eredményeit [8] használtuk. Ezen paraméterek ismeretében a diffrakciós szög és az optikai rácsra való beesés szöge (5. ábra) 0,8 és 1,6 THz frekvencián több hőmérsékleten a következő összefüggésekkel határozható meg.

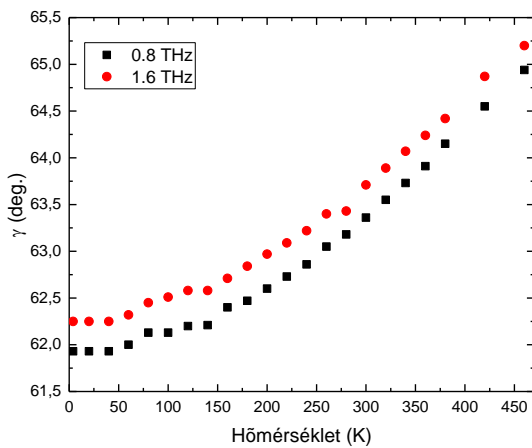
$$\sin \theta_d = \frac{\lambda_0}{n(\lambda_0)n_g(\lambda_0)p} a$$

$$\sin \theta_i = \frac{\lambda_0}{p} - \sin \theta_d$$

ahol θ_d a diffrakciós szög, θ_i a beesési szög, p a rácskarcolatok távolsága, λ_0 a pumpálási hullámhossz, $n(\lambda_0)$ a fázistörésmutató a pumpálási hullámhosszon, $n_g(\lambda_0)$ a csoporttörésmutató a pumpálási hullámhosszon, amely a fázistörésmutató ismeretében $n_g = n - \lambda \frac{dn}{d\lambda}$ módon számolható, az a paraméter pedig a következő [6,7]:

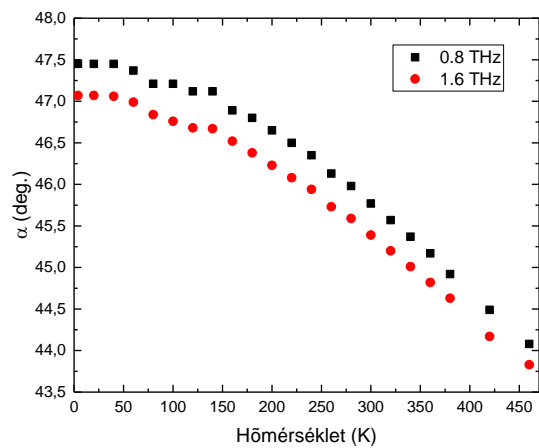
$$a = \frac{n^2(\lambda_0)n_g(\lambda_0)p}{2\lambda_0} \sqrt{\frac{\lambda_0^2}{n_g^2(\lambda_0)p^2 \tan^4 \gamma} + \frac{4}{n^2(\lambda_0)}} - \frac{n^2(\lambda_0)}{2 \tan^2 \gamma}$$

A számolás során 1030 nm pumpálási hullámhosszat és a rácskarcolatok sűrűségének 1500 karcolat/mm-t feltételeztünk [8].



4. ábra

0,7%Mg:sLN kristályban az impulzusfront dőlésszögének hőmérsékletfüggése



5. ábra

0,7%Mg:sLN kristályban a rácsra való beesési szög hőmérsékletfüggése

4. Összefoglalás

0,7%-ban magnéziummal adalékolt sLN kristály dielektromos jellemzőinek frekvencia- és hőmérsékletfüggését 0,5-1,8 THz frekvenciatartományon ordinárius és extraordinárius polarizációs irányban vizsgálva megállapítható, hogy THz-es jel keltése szempontjából előnyösebb lehet cLN kristály helyett sLN kristályt alkalmazni, mivel a törésmutató és az abszorpciós együttható értékei is kisebbek mindkét polarizációs irányban. Az abszorpciós együttható nemcsak a kristály sztöchiometriájával és magnéziummal való adalékolással csökkenthető, hanem kriogenikus hőmérsékletre való hűtéssel is. A hőmérséklet csökkenésével a minta törésmutatója és abszorpciós együtthatója is csökken a teljes megbízható frekvenciatartományon. 100 K hőmérséklet alatt azonban nem tapasztalható jelentős változás a hőmérséklet csökkenésével sem a törésmutatóban, sem az abszorpciós együtthatóban egyik polarizációs irány esetén sem. Tehát a további alkalmazásokhoz nem szükséges 100 K hőmérséklet alá hűteni a mintát.

Továbbá, tapasztalataink alapján az abszorpciós együttható frekvencia- és hőmérsékletfüggése egyszerre leírható egy kompakt formulával, amely matematikailag is alátámasztható. Így adott minta adott polarizációs irányában bármely hőmérsékleten széles frekvenciatartományon megadható az abszorpciós együttható két illesztési konstans segítségével.

A törésmutató frekvenciafüggése negyedfokú polinommal közelíthető, míg a hőmérsékletfüggése – adott frekvencián kiszemelve értékeket – másodfokú polinommal írható le.

A fázisillesztési szög és a rácsra való beesési szög hőmérsékletfüggése azt mutatja, hogy döntött impulzusfrontú THz-keltés elrendezésének optimalizálásakor figyelembe kell venni a hőmérséklet hatását is.

Köszönetnyilvánítás

A munkát az EFOP-3.6.2-16-2017-00005 azonosító számú, Ultragyors fizikai folyamatok atomokban, molekulákban, nanoszerkezetekben és biológiai rendszerekben című projekt támogatta.

Irodalom

- [1] J. Hebling, J. G. Almási, I. Z. Kozma, and J. Kuhl, “Velocity matching by pulse front tilting for large-area THz-pulse generation,” *Opt. Express* **10**, 1161–1166 (2002)
<https://doi.org/10.1364/OE.10.001161>
- [2] L. Pálfalvi, J. Hebling, J. Kuhl, A. Péter, and K. Polgár, “Temperature dependence of the absorption and refraction of Mg-doped congruent and stoichiometric LiNbO₃ in the THz range,” *J. Appl. Phys.* **97**, 123505 (2005)
<https://doi.org/10.1063/1.1929859>
- [3] M. Unferdorben, Z. 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. Inf. Millim. TE* **36**, 1203–1209 (2015)
<https://doi.org/10.1007/s10762-015-0165-5>
- [4] X. Wu, C. Zhou, W. R. Huang, F. Ahr, and F. X. Kärtner, “Temperature dependent refractive index and absorption coefficient of congruent lithium niobate crystals in the terahertz range,” *Opt. Express* **23**, 29729–29737 (2015)
<https://doi.org/10.1364/OE.23.029729>
- [5] M. Schall, H. Helmand, and S. R. Keiding, “Far infrared properties of electro-optic crystals measured by THz time-domain spectroscopy,” *J. Infrared Millim. Terahertz Waves* **20**, 595–604 (1999)
<https://doi.org/10.1023/A:1022636421426>
- [6] J. A. Fülöp, L. Pálfalvi, G. Almási, and J. Hebling, “Design of high-energy terahertz sources based on optical rectification,” *Opt. Express* **18**, 12311–12327 (2010)
<https://doi.org/10.1364/OE.18.012311>
- [7] J. A. Fülöp, L. Pálfalvi, G. Almási, and J. Hebling, “Design of high-energy terahertz sources based on optical rectification: erratum,” *Opt. Express* **19**, 22950 (2011)
<https://doi.org/10.1364/OE.19.022950>

[8] O. Gayer, Z. Sacks, E. Galun, and A. Arie, „Temperature and wavelength dependent refractive index equations for MgO-doped congruent and stoichiometric LiNbO₃,” *Appl. Phys. B* **91**, 343–348, (2008)

<https://doi.org/10.1007/s00340-008-2998-2>