PHD ÉRTEKEZÉS TÉZISEI

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

2003

I. TUDOMÁNYOS ELŐZMÉNYEK, CÉLKITŰZÉSEK

A $LiNbO_3$ (LN), mint nemlineáris optikai anyag az utóbbi években ismét az érdeklődés központjába került. Ennek egyik oka, hogy megmutatták, hogy az anyag periodikusan polarizálható, ami annyit jelent, hogy a kristályban a mikrométer tartományba eső periódushosszú domén szerkezet alakítható ki növesztéssel, vagy utólagos polarizálással. Az így előállított kristályt periodikusan polarizált (PPLN) kristálynak hívjuk. A LN kristályt igen széles körben alkalmazzák, az egyik terület az optikai frekvencia-átalakítókban történő felhasználás. A frekvencia-átalakítás hatásfokát többek között az anyag nemlineáris optikai tenzorának effektív értéke határozza meg. A PPLN kristállyal úgynevezett kvázi-fázisillesztést valósíthatunk meg, melynek hatalmas előnye a hagyományos geometriai fázisillesztéssel szemben, hogy lehetővé teszi a kimagaslóan nagy értékű d_{33} tenzorelem kihasználását.

Az érdeklődés fellendülésének másik oka, hogy az utóbbi időben sikerült jó minőségű sztöchiometrikus kristályokat előállítani. Ennek előnye a hagyományosan növesztett kongruens kristályokkal szemben, hogy a koercitív erő két nagyságrenddel kisebb. 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.

A LN-nak van egy frekvencia-átalakítás szempontjából hátrányos tulajdonsága, nevezetesen a fotorefrakció. Adalékolatlan LN-ban viszonylag kis fényintenzitás hatására is a nyaláb jelentős torzulása figyelhető meg. A frekvencia-átalakítókban történő alkalmazás során pedig bármilyen effektus, ami nyalábtorzuláshoz vezet elkerülendő. A szakirodalomból ismert, hogy Mg adalékolása a fotorefraktivitást jelentősen csökkenti.

Távlati célunk PPLN kristályok hazai előállítása az optikai frekvencia-átalakítókban történő alkalmazáshoz. Ehhez szükséges a fényindukált

törésmutató változások vizsgálata a LN-ban. Doktori munkám során olyan projektben vettem részt, melyben adalékolatlan, vassal és magnéziummal adalékolt mind sztöchiometrikus, mind pedig kongruens LN mintákban vizsgáltam a fény-indukált törésmutató változást, illetve annak okait.

Az értekezés kísérleti jellegű eredményeit a Pécsi Tudományegyetem Kísérleti Fizika Tanszékén, illetve az MTA Szilárdtestfizikai és Optikai Kutatóintézetében értük el.

II. A VIZSGÁLATOK MÓDSZEREI

M. SHEIK-BAHAE és szerzőtársai 1990-ben mérési eljárást fejlesztettek ki azzal a céllal, hogy vékony minták nemlineáris törésmutatóját meghatározzák. A vizsgálati módszer a *Z*-scan nevet viseli, ugyanis a minta szkenneléséről van szó, ami fókuszált Gauss-nyaláb fókuszsíkjának a környezetében történik. A nyaláb közepének intenzitását távoli zónában a mintapozíció függvényében mérve a nemlineáris törésmutatóra következtethetünk. A mérésekhez a Gauss-nyalábot összvonalon működő Ar-ion lézer szolgáltatta, melyet maximum 2W teljesítményen működtettünk. A távoli zónába helyezett detektor, mellyel a nyaláb közepét vizsgáltam fotodióda volt, a lézernyaláb összteljesítményét pedig termikus detektorral mértem. A minta pozicionálása manuálisan vezérelt, illetve piezoelektromos transzlátorral történt.

A *Z*-scan méréseket kiegészítettem a LN mintákon áthaladó nyaláb keresztmetszetének digitális felvételeinek vizsgálatával. Erre a célra CCD kamerát, illetve digitális fényképezőgépet használtam. A mintákon áthaladó nyaláb torzulásának időbeli lefolyását is megfigyeltem, erre a célra – az időállandóktól függően – oszcilloszkópot használtam.

Az elméleti számításokat, illetve az illesztéseket a MathCad számítógépes program segítségével végeztem

III. ÚJ TUDOMÁNYOS EREDMÉNYEK

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. [1]

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 értékből 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. [3]

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. [2][3]

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 nagyobbnak 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 apertúrás mérésekkel is vizsgáltam, melyek eredményei összhangban voltak a zárt apertúrásokéval. Ezen mérésekkel azt is megmutattam, hogy a LN-ban a nemlineáris abszorpció anizotrop.[2][3]

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.

IV. AZ EREDMÉNYEK HASZNOSÍTÁSA

Méréseim távlati célja a legperspektivikusabb összetételű LN kiválasztása a periodikus polarizáláshoz, majd az optikai frekvencia-átalakítókban történő alkalmazáshoz. Egy közelebbi cél – amit sikerült megvalósítani – a LN-ban a fény indukált törésmutató változás eredetének tisztázása, illetve a lehetséges esetekben annak kvantitatív jellemezése. Átfogó méréseim eredményei alapján mindenképp a küszöb feletti – fotorefrakciótól mentes – minták a legalkalmasabbak erre a célra. Ezek közül is a Mg-mal adalékolt sztöchiometrikus minták a legperspektivikusabbak ugyanis azonos körülmények között kisebb nemlineáris nyalábtorzulást mutatnak, és a koercitív erő is kiesebb, mint a kongruens kristály esetén. A sztöchiometrikus minták érzékenysége a Mg adalék koncentrációjának növelésével csökken, azonban a túlzott mértékű adalékolás az anyag fizikai tulajdonságainak kedvezőtlen irányú megváltozásához vezethet. Az általam vizsgált minták közül az 5,0 mol% Mg-mal adalékolt sztöchiometrikus LN tűnik a legalkalmasabbnak az általunk kitűzött célra.

Az 5. tézispontban a *Z*-scan elméletnek a termooptikai effektusra történő kiterjesztésével foglalkozom. Ezen tézisponthoz még nem tartozik publikáció. Célom, hogy ezen eredményeimet a közeljövőben publikáljam.

V. AZ ÉRTEKEZÉS TÉMÁJÁHOZ KAPCSOLÓDÓ TUDOMÁNYOS KÖZLEMÉNYEK

Publikációk nemzetközi, referált folyóiratban

1. **L. Pálfalvi**, G. Almási, J. Hebling, Á. Péter, and K. Polgár:
Measurement of laser-induced refractive index changes of Mg-doped congruent and stoichiometric $LiNbO_3$
Appl. Phys. Lett. **80** 2245 (2002)

2. **L. Pálfalvi**, J. Hebling, G. Almási, Á. Péter, K. Polgár:
Refractive index changes in Mg doped $LiNbO_3$ caused by photorefraction and thermal effect
Journal of Optics A (2003, közlésre elfogadva)

3. **L. Pálfalvi**, J. Hebling, G. Almási, Á. Péter, K. Polgár, K. Lengyel, R. Szipőcs:
Nonlinear refraction and absorption of Mg doped stoichiometric and congruent $LiNbO_3$
Journal of Appl. Phys. (beküldve, 2003)

4. 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)

Konferencia előadások

5. **L. Pálfalvi**, G. Almási, J. Hebling, Á. Péter, and K. Polgár:
Quantitative determination of photorefraction in Mg-doped congruent and stoichiometric $LiNbO_3$
CLEO 2002, Long Beach, California, USA, May 19-24, 2002, CThD1, 447

6. **L. Pálfalvi**, G. Almási, J. Hebling, Á. Péter, and K. Polgár:
Quantitative determination of photorefraction in Mg-doped congruent and stoichiometric $LiNbO_3$
19th Congress ICO, Optics for the Quality of Life, Florance, Italy, August 25-30, 2002, 907

Konferencián bemutatott poszterek

7. **L. Pálfalvi**, J. Hebling, Á. Péter, K. Polgár:
New method for the characterisation of photorefractive damage in $LiNbO_3$ crystals
Fourth Annual Meeting of the COST Action P2 Applications of Nonlinear of Nonlinear Optical Phenomena and Workshop in $LiNbO_3$ (2001)

8. **Pálfalvi L**., Péter Á., Polgár K., Hebling J.:
$LiNbO_3$ kristályok fotorefrakciójának vizsgálata
IV. Szimpózium a Hazai Kvantumelektronikai Kutatásokról.
Kvantumelektronika (2000)

9. **Pálfalvi L**., Hebling J:
Femtoszekundumos PPLN optikai parametrikus osszcillátor
IV. Szimpózium a Hazai Kvantumelektronikai Kutatásokról.
Kvantumelektronika (2000)

További publikációk

10. **Pálfalvi László**:
Érdekes módszer a tehetetlenségi nyomaték meghatározására
Fizikai Szemle, 2003/4 143-145

11. **Pálfalvi László**:
1994/2 FGY.2787, 1994/5 FN.2758, 1994/10 FF.2798, 1996/8 FF.3017, 2002/3 P.3516, 2002/4 P.3526, 2002/9 P.3574, 2003/1 P.3585, 2003/2 P.3595, 2003/3 P.3604, 2003/4 P.3620, 2003/5 P.3623
Középiskolai Matematikai és Fizikai Lapok (feladat kitűzések és megoldások)