

Elektronforrásként lézerplazma-gyorsítót használva, az általunk javasolt berendezés annyiban módosul az 1. ábrán bemutatott elrendezéshez képest, hogy a moduláló undulátor elé egy chicane-t kell betenni. Előzetes számításaink alapján elmondható, hogy egy átlagos lézerplazma-gyorsítóval előállított relativisztikus elektronsomag esetén a chicane-nal csökkentett szeletenergia-bizonytalanság után is elegendő töltés marad ahhoz, hogy előállíthassunk akár 20 nJ-os, attoszekundumos impulzusokat. Ez a megoldás pedig lehetővé teszi egy kompakt, vívő-burkoló fázis kontrollált, nagy energiájú, attoszekundumos impulzusforrás létrehozását, amely viszonylag alacsony költséggel válik megépíthetővé akár a szegedi ELI ALPS-ban is.

Irodalom

1. C. Spielmann, N. H. Burnett, S. Sartania, R. Koppitsch, M. Schnürer, C. Kan, M. Lenzner, P. Wobrauschek, F. Krausz, *Science* 278 (1997) 661.
2. M. Schnürer és társai, *Physical Review Letters* 80 (1998) 3236.
3. G. Sansone és munkatársai, *Science* 314 (2006) 443.
4. L. Y. Peng, A. F. Starace, *Physical Review A* 76 (2007) 043401.
5. A. A. Zholents, *Physical Review Special Topics – Accelerators and Beams* 8 (2005) 040701.
6. Z. Tibai, G. Toth, M. I. Mechler, J. A. Fulop, G. Almási, J. Hebling, *Physical Review Letters* 113 (2014) 104801.
7. W. D. Kimura és munkatársai, *Physical Review Special Topics – Accelerators and Beams* 7 (2004) 091301.
8. G. Tóth, Z. Tibai, Z. Nagy-Csiha, Z. Márton, G. Almási, J. Hebling, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 369 (2016) 2.
9. G. Tóth, Z. Tibai, Z. Nagy-Csiha, Z. Márton, G. Almási, J. Hebling, *Optics Letters* 40 (2015) 4317.

DIELEKTROMOS JELLEMZŐK MEGHATÁROZÁSA A THZ-ES FREKVENCIATARTOMÁNYBAN

Buzády A.,¹ Tóth Gy.,² Unferdorben M.,¹ Hebling J.,^{1,2,3} Oláh L.,⁴ Hajdara I.,⁴ Kovács L.,⁴ Mező E.,⁵ Lemli B.,^{3,5} Kunsági-Máté S.,^{3,5} Pálfalvi L.¹

¹Pécsi Tudományegyetem, Fizikai Intézet

²MTA–PTE Nagy Intenzitású Terahertzes Kutatócsoport

³Pécsi Tudományegyetem, Szentágotthai János Kutatóközpont

⁴MTA, Wigner Fizikai Kutatóközpont

⁵Pécsi Tudományegyetem, Kémiai Intézet

Jelen közleményt a szerzők a Pécsi Tudományegyetem alapításának 650. évfordulója emlékének szentelik.

Az elektromágneses spektrumon belül az infravörös és a mikrohullámú sugárzás közé eső 0,1–10 THz-es frek-

A cikk az Eötvös Loránd Fizikai Társulat szegedi Vándorgyűlésén (2016. augusztus 24–27.) bemutatott poszter alapján készült.

A szerzők három szellemi műhely tudományos kutatói, illetve PhD hallgatói. A cikk a PTE Fizikai Intézete, Fizikai Kémiai Tanszéke és az MTA Wigner Fizikai Kutatóközpont együttműködésében született eredményekből mutat be ízelítőt. A Fizikai Intézetben a 2000-es évek elején kezdődtek a nagyintenzitású THz-es források tervezésével kapcsolatos kutatások. Néhány évvel később pedig ezen túlmenően a THz-es spektroszkópia alkalmazási lehetőségei felé fordult az érdeklődés. Az Intézetben kialakuló, az időtérbeli terahertzes spektroszkópiával foglalkozó csoport a már meglévő munkakapcsolatok mentén kezdte el a vizsgálatokat. Elsőként a terahertzes sugárzás keltésében szerepet játszó nemlineáris kristályok előállításában és tanulmányozásában járatos budapesti kollégákkal való együttműködésben foglalkoztak kristályok terahertzes frekvenciájú törésmutatójának és abszorpciók együtthatójának meghatározásával. A lítium-niobáttal, a lítium-tantaláttal és az ebben a cikkben nem részletezett tellúr-dioxid-dal kapcsolatos tanulmányok az MTA Wigner FK munkatársaival készültek. A tömbi anyagokra jól kidolgozott mérési és kiértékelés módszert továbbfejlesztve lehetségessé vált folyadékos minták vizsgálata is. A PTE Kémiai Intézetében a Fizikai Kémia Tanszék munkatársai korábban szerkezeti szempontból már tanulmányoztak ionfolyadékokat. A velük való együttműködés tette lehetővé az imidazolium ionfolyadékok többféle anionos és kationos formáinak és az oldatokban a metanol, mint oldószer szerepének a tanulmányozását a terahertzes tartományú dielektromos jellemzők mérésén keresztül.

enciartományt nevezzük THz-es sávnak (1. ábra). Ez a 3–0,03 mm közötti hullámhossznak felel meg, az elektromos térerősség oszcillációjának periódusideje pedig 10–0,1 ps közé esik. Az effektív hőmérsékletet a $hf = kT_{\text{eff}}$ összefüggéssel bevezetve, a kapcsolódó hőmérséklet-tartomány 4,8–480 K között van. Mivel egy THz-es foton energiája 0,41–41 meV között lehet, a terahertzes sugárzás kis energiájú, nem ionizáló hatású sugárzás, nem veszélyes az élő szervezetekre.

Az utóbbi 20-30 évben megjelenő és gyorsan fejlődő terahertzes tudományterületen mára többféle spektroszkópiai elrendezés és képalkotási módszer is kialakult. Alább az időtartománybeli terahertzes spektroszkópia (time domain terahertz spectroscopy, TDTS) módszerét, és néhány – szilárd, illetve folyadék – mintára vonatkozó eredményünket mutatjuk be. A módszer a frekvenciafüggő dielektromos jellemzők (törésmutató, abszorpciók együttható, illetve komplex dielektromos állandó) meghatározására alkalmas [1].

Időtartománybeli terahertzes spektroszkópia

A femtoszekundumos lézer fénye a fotovezető kapcsolóban THz-es sugárzást kelt. A mérés során ez a széles spektrumú (~5 THz) sub-ps vagy ps-os időtartamú impulzus éri a referenciát, illetve a mintát. A mintán átmenő jel időbeli alakja a referenciajelhez

képest megváltozik, ebből a változásból következtetünk a minta tulajdonságaira. A térerősség $e(t)$ időbeli lefutását mindkét esetben mintavételező méréssel (2. ábra) határozzuk meg. A detektorként alkalmazott fotovezető antenában a kicsatolt lézernyaláb hatására keletkezett töltéshordozók a THz-es jel elektromos terében gyorsulnak, a térerősséggel arányos nagyságú áram keletkezik. A THz-es jel időbeli alakja – a detektort kapcsoló femtoszekundumos impulzust az útjában elhelyezett mechanikus egység-egység időben késleltetve – letapogatható.

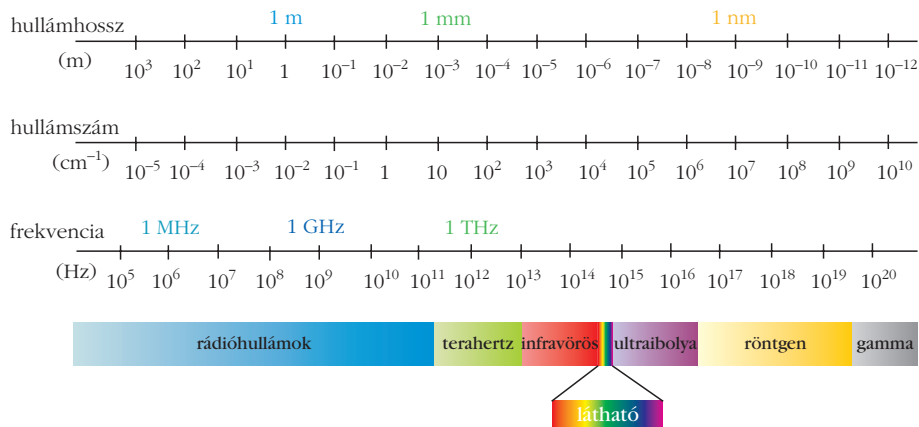
A módszer lehetőséget ad az elektromos térerősség amplitúdójának és fázisának egyidejű mérésére, a frekvenciafüggő spektrumot $e(t) \rightarrow E(\omega)$ Fourier-transzformációval lehet meghatározni.

A mért jel időbeli alakját befolyásoló hatások figyelembevétele

Bár a TDTS-módszer alkalmazása során nem éri nagy intenzitású sugárzás a mintát, és így elegendő a lineáris hatásokkal számolni, a jel időbeli alakja nem csak a mintában való elnyelődés és fáziskésés miatt változik meg, hanem a közeghatárokon bekövetkező reflexiók, és a többszöri áthaladás miatt is. Az adott időablakban mért jelben a főimpulzus után megjelennek a „Fabry-Perot-reflexiók”. Ennek figyelembevétele a különböző típusú minták esetén más-más megoldást kíván.

Tömbi anyag esetén az időablak szűkítése

Tömbi anyagoknál sokszor elegendő azt az egyszerű modellt alkalmazni, amely a minta frekvenciafüggő

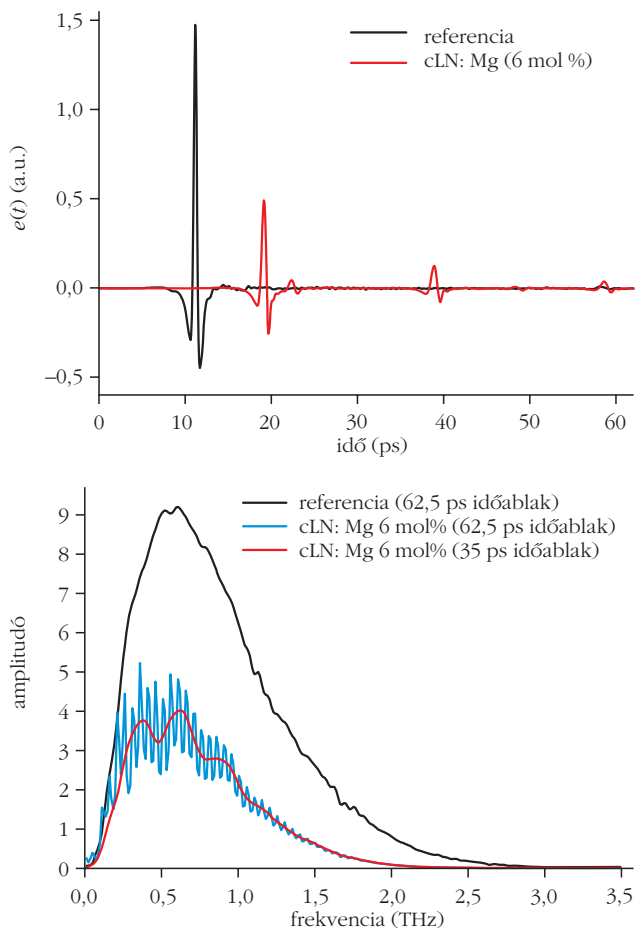


1. ábra. A terahertzes sáv elhelyezkedése a teljes elektromágneses spektrumban.

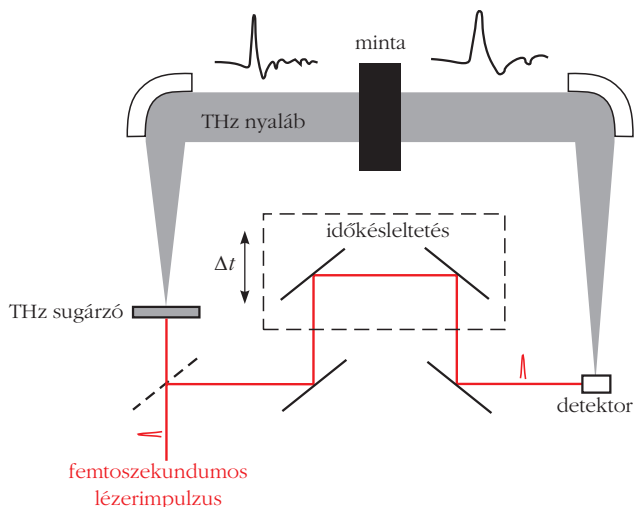
abszorpcióját és a törésmutató által meghatározott fáziskésést veszi figyelembe.

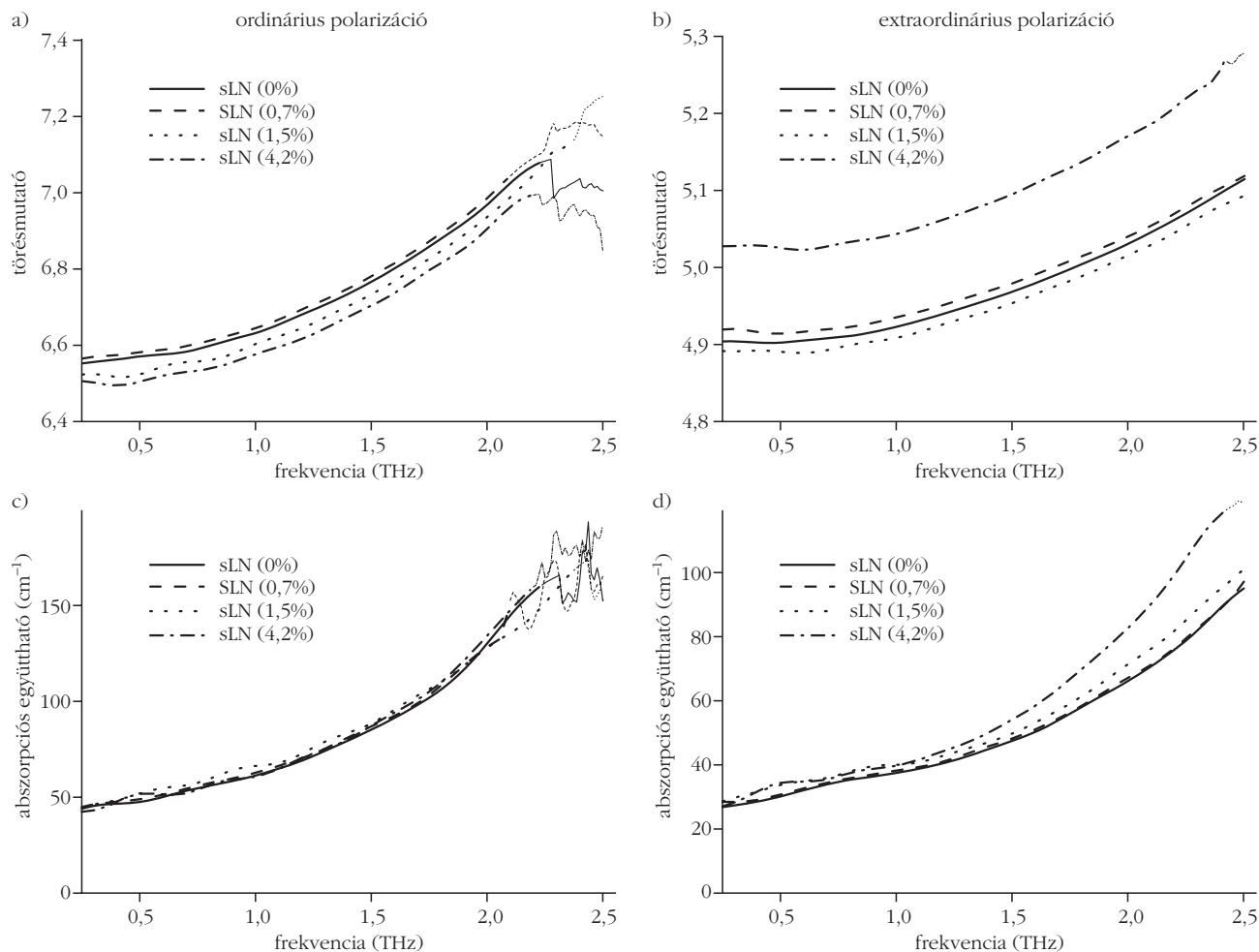
A lítium-niobát (LiNbO₃, LN) kristályok a Magyar Tudományos Akadémia Wigner Fizikai Kutatóközpontjának Alkalmazott és Nemlineáris Optikai Osztályán készültek. Ezen nemlineáris kristályok terahertzes tulajdonságainak meghatározásához a mért adatokat a spektrométer saját szoftverével értékeltük ki

3. ábra. 6 mol% Mg-mal adalékolt kongruens lítium-niobát kristályon áthaladó THz-es impulzusok és a minta nélküli téren áthaladó referenciaimpulzus térerősség-idő függvénye (fölül). A referenciajel és a minta jelének 62,5 ps és 35 ps szélességű időablakokra vett Fourier-transzformáltjai (alul).



2. ábra. Időtartománybeli THz spektrométer elvi felépítése.





4. ábra. Különböző mol%-ban megadott koncentrációjú Mg-mal adagolt sztöchiometrikus LN kristályok törésmutatója és abszorpciós együtthatója ordinárius és extraordiárius esetben.

[2, 3]. A LiNbO_3 kristály viszonylag nagy törésmutatójának és mintavastagságoknak köszönhetően a közeget határolóan bekövetkező többszöri reflexiókból származó jel – ahogy a 3. ábrán látható – időben jól elkülönül az egyszerű áthaladás folytán megjelenő jeltől. A mérés kezdete után ~ 20 ps-mal beérkező impulzus egyszer, a ~ 40 ps-mal beérkező háromszor, a 60 ps-mal beérkező ötször haladt át a mintán. A Fourier-transzformációval számolható spektrumban emiatt megjelenő Fabry–Perot-oszcillációk az időablak megfelelő szűkítésével – azaz a reflexiókból származó jel már ne legyen benne – megszüntethetők (3. ábra).

A lítium-niobát a terahertzes sugárzás keltésében gyakran alkalmazott negatív kettőtörő kristály. A sztöchiometrikus összetételű (sLN) kristály dielektromos tulajdonságait befolyásolja a Mg-mal való adalékolás. A terahertz generálás szempontjából minél kedvezőbb összetétel megállapításához megmértük a különböző koncentrációjú Mg-mal adagolt LN kristályok törésmutatóját és abszorpciós együtthatóját (4. ábra) [2].

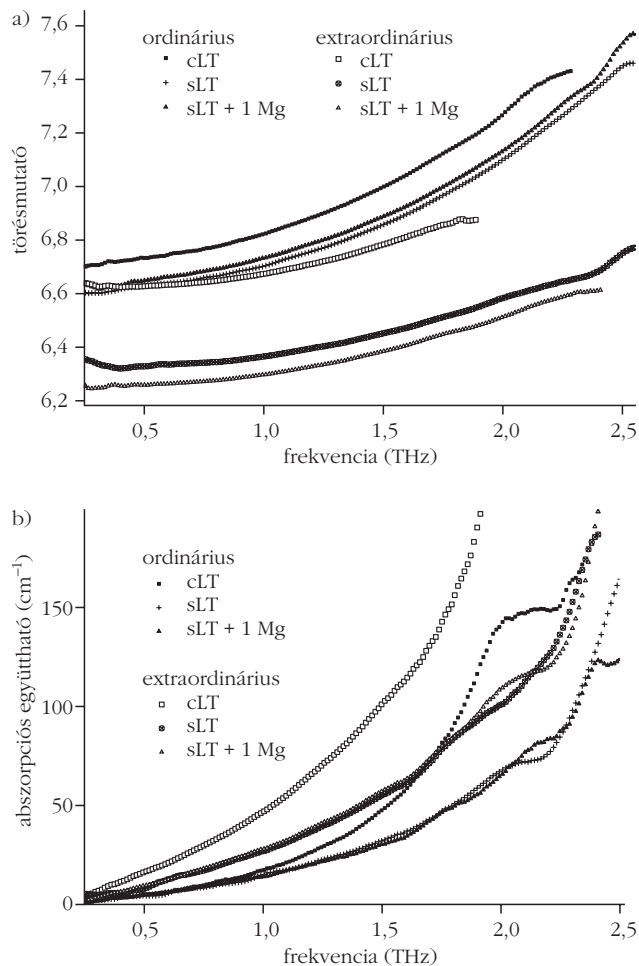
Az impulzus terjedésének modellezése

Precízebb képet kaphatunk az anyagi jellemzőkről, ha figyelembe vesszük a Fabry–Perot-reflexiókat. Ez fo-

lyadékmintáknál a mintát tartó küvettafalakon bekövetkező reflexiók miatt semmiképpen nem kikerülhető, és adott esetben a falakban megjelenő abszorpcióval is számolni kell. Az összetett hatásokat is számba vevő bonyolultabb leírások között jól bevált módszer az impulzus terjedését követő modell [3, 4]. Ennek során a mintára érkező jelből (referencia) – a figyelembe veendő hatásokat leíró matematikai összefüggéssel – lépésről lépésre építjük fel a detektorra érkező jelet. A mért adatok és az elméleti alapon felépített függvényből számoltak minél jobb egyezését frekvenciatérbeli optimalizációval lehet elérni. Az alkalmazott globális illesztési módszer esetében nem csak a törésmutató és az abszorpciós együttható, hanem a minta vastagsága is változó paraméter. Ezzel a megoldással kikerülhető a fenti egyszerűbb modell gyenge pontja, nevezetesen, hogy a nem jól megválasztott mintavastagságból félrevezető törésmutató és abszorpciós együttható-adatok származnak [4]. Az impulzus terjedését követő modell alapján saját kiértékelő szoftvert fejlesztettünk ki, és a méréseink kiértékelésére ezt használtuk.

A mérések során közvetlenül kapott – referencián és mintán átmenő – időtérbeli jelekből

$$e_{\text{minta}}(t), e_{\text{ref}}(t) \text{ FFT} \Rightarrow E_{\text{minta}}(\nu), E_{\text{ref}}(\nu)$$



5. ábra. Adalékolatlan kongruens (cLT) és sztöchiometrikus (sLT), illetve 1 mol% Mg adalékolású sztöchiometrikus LT (sLT + 1 Mg) ordinárius és extraordinárius irányú frekvenciafüggő dielektromos jellemzői (főleg törésmutató, alul az abszorpciós együttható).

Fourier-transzformációval származnak a komplex spektrumok. A terahertzes emitterből származó $E_{ref}(v)$ jelből felépített jel:

$$E_{felépített}(v) = E_{ref}(v) P(\tilde{n}_0, -d) T_{01} P(\tilde{n}_1, d) T_{10} \sum_{i=0}^m \left(R_{10}^2 P(\tilde{n}_1, d) \right)^i$$

Ahol a közegbeli terjedéshez (fáziskésés, abszorpció) tartozó együttható:

$$P(\tilde{n}, L) = \exp\left(-\frac{j2\pi v \tilde{n} L}{c_0}\right),$$

a reflexiót és a transzmissziót figyelembe vevő Fresnel-együtthatók:

$$R_{10} = \frac{\tilde{n}_0 - \tilde{n}_1}{\tilde{n}_0 + \tilde{n}_1},$$

$$T_{10} = \frac{2\tilde{n}_1}{\tilde{n}_0 + \tilde{n}_1}.$$

A frekvenciatérbeli optimalizáció során a mért és az –

egy adott mintavastagsághoz tartozó – elméleti úton származtatott görbékhez tartozó átviteli függvényeket közelítjük:

$$H_{mért}(v) = \frac{E_{minta}(v)}{E_{ref}(v)},$$

$$H_{elméleti}(v) = \frac{E_{épített}(v)}{E_{ref}(v)}.$$

A valóstól eltérő úthossz esetén is meg lehet találni – egy kiválasztott frekvenciatartományra nézve – a mért és az elméleti átviteli függvények közötti legkisebb eltérést, ekkor azonban olyan oszcillációk jelennek meg a törésmutató és az abszorpciós együttható frekvenciafüggvényében, amik nem köthetők a minta anyagi tulajdonságaihoz. Ebben az esetben hamis törésmutató- és abszorpciós együttható-értékekhez jutunk. A mintavastagság adott tartományon való változtatásával ezek az oszcillációk csökkenthetők. A teljes variációk módszerével (TV) mérhető eltérések minimalizálása után kapható meg az a vastagság, aminél az anyagi paraméterek spektrumai a legsimábbak. Az ehhez a vastagsághoz tartozó törésmutató-, abszorpciós együttható-függvényeket fogadjuk el végeredményül, azzal a megszorítással, hogy tekintettel kell még lennünk a spektrométer dinamikus tartományára is. Ez azt jelenti, hogy a releváns frekvenciatartományt – az adott mintavastagsághoz tartozóan – az a maximális abszorpció határozza meg, amely esetén a mintán átmenő jel nagysága a spektrométer zajával egyezik meg. Tömbi anyag esetén ez a maximális abszorpciós együttható a következő összefüggéssel adható meg:

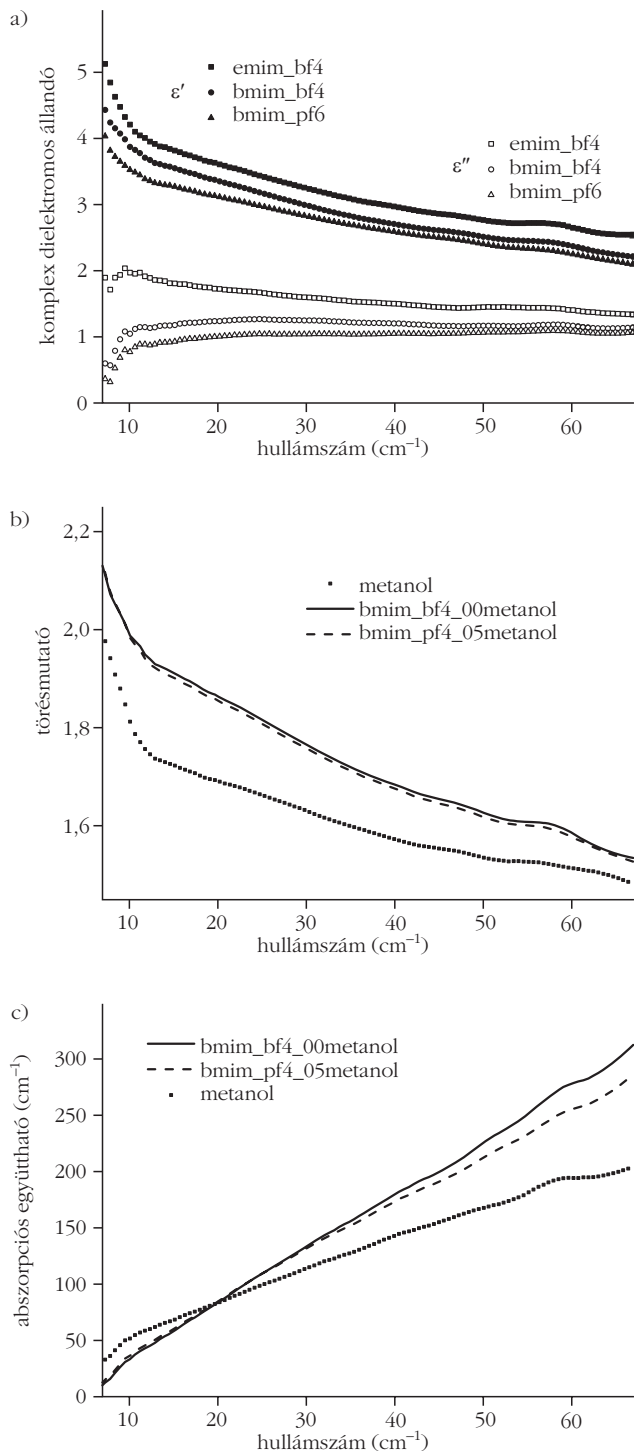
$$\alpha_{max}(v) = -\frac{2}{d} \ln \left[A(v) \frac{(n(v) + 1)^2}{4 n(v)} \right],$$

ahol

$$A(v) = \frac{E_{zaj}(v)}{E_{ref}(v)}.$$

A mérések kiértékelésénél a lítium-tantalát (LiTaO₃, LT) frekvenciafüggő törésmutatójának és abszorpciós együtthatójának meghatározásához ezt, a saját fejlesztésű szoftvert használtuk. A LT a LN-hoz hasonlóan ígéretes jelölt a terahertzes sugárzás keltésére alkalmazott elrendezésekben. Ebben a vonatkozásban a negatív kettőtörő kristály esetén különösen az extraordinárius dielektromos jellemzők az érdekesek. A 5. ábrán a kongruens és a sztöchiometrikus összetételű, illetve Mg-mal adalékolat kristályok esetén kapott eredményekből mutatunk be néhányat.

Folyadékminták méréséhez mintaoldatoknak – a korábban szerkezeti szempontból tanulmányozott – ionfolyadékokat választottuk [5–7], amelyeket kvarcküvetében mértünk. Ebben az esetben – a több rétegen áthaladó terahertzes nyaláb közeghatárokon bekövetkező reflexiói és az ionfolyadék-minták na-



6. ábra. Ionfolyadékok dielektromos jellemzői (a: komplex dielektromos állandó, b: törésmutató, c: abszorpciós állandó). emim_bf₄: etil-metil-imidazolium-tetrafluoro-borát, bmim_bf₄: butil-metil-imidazolium-tetrafluoro-borát, bmim_pf₆: butil-metil-imidazolium-hexafluoro-foszfát.

gyobb abszorpciója miatt alkalmazott kisebb mintavastagságok következtében – a mért jelben mindenképpen megjelenik a reflexiók és a többszöri áthaladás közbeni abszorpció hatása, nincs lehetőség az időbeli szétválasztásra, az egyszerűbb modell alkalmazására [8, 9]. A 6. ábrán etil-metil-imidazolium-tetrafluoro-borát (emim_bf₄), butil-metil-imidazolium-tetrafluoro-borát (bmim_bf₄), butil-metil-imidazolium-hexafluoro-foszfát (bmim_pf₆) és metanololdatokon végzett TDTS-es mérések eredményeiből mutatunk példákat. Folyadékos mintáknál a szokásoknak megfelelően a komplex dielektromos állandó ϵ' valós és ϵ'' képzetes részét, illetve a törésmutatót és az abszorpciós együtthatót a hullámszám függvényében adtuk meg.

Az impulzus terjedésének modellezésén alapuló saját fejlesztésű szoftver az időtérbeli mérések adatainak kiértékelése során a többszöri reflexiókat és áthaladásokat is figyelembe veszi, és ez – ahogy a fentebb bemutatott néhány eredmény alapján látszik – a törésmutató és az abszorpciós együttható pontos meghatározását teszi lehetővé.

A PTE TTK Fizikai Intézetében működő THz-TDS spektrométerrel (Menlo System Tera K8) lehetőségünk van a terahertzes frekvenciatartományon kristályok, félvezetők, egyéb szilárd, de akár folyadékmin-ták dielektromos jellemzőinek meghatározására is.

Irodalom

1. S. L. Dexheimer: *Terahertz Spectroscopy Principles and Applications*. 2007.
2. M. Unferdorben, Zs. Szaller, I. Hajdara, J. Hebling, L. Pálfalvi, *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves* 36 (2015) 1203.
3. M. Unferdorben, A. Buzády, J. Hebling, K. Kiss, I. Hajdara, L. Kovács, Á. Péter, L. Pálfalvi, *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves* 37 (2016) 703–709., DOI: 10.1007/s10762-016-0261-1
4. M. Scheller: Data extraction from terahertz time domain spectroscopy measurements. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves* 35 (2014) 638.
5. X. Li, Z. Hong, J. He, Y. Chen: Precisely optical material parameter determination by time domain waveform rebuilding with THz time-domain spectroscopy. *Opt. Commun.* 283 (2010) 4701.
6. S. Kunsági-Máté, B. Lemli G. Nagy G, L. Kollar: Conformational change of the cation-anion pair of an ionic liquid related to its low-temperature solid-state phase transitions. *J. Phys. Chem. B* 108 (2004) 9246.
7. B. Lemli, L. Kollár, G. Nagy, G. Molnár, S. Kunsági-Máté: The Predictive Behavior of the Phase Transition Temperatures of Imidazolium Based Ionic Liquids. *Lect. Ser. Computer. Co.* 4A (2005) 315.
8. K. Yamamoto, M. Tani, M. Hangyo: Terahertz Time-Domain Spectroscopy of Imidazolium Ionic Liquids. *J. Phys. Chem B* 111 (2007) 4854.
9. T. Yamada, Y. Tominar, S. Tanaka, M. Mizuno, K. Fukunaga: Vibration Modes at Terahertz and Infrared Frequencies of Ionic Liquids Consisting of an Imidazolium Cation and a Halogen Anion. *Materials* 7 (2014) 7409–7422., DOI: 10.3390/ma7117409

VAN ÚJ A FÖLD FELETT

Keressd a fizikaiszemle.hu mellékletek menüpontjában!

Nézz meg!
Töltsd le!
Mutasd meg másoknak!
Tanítsd meg diákjaidnak!