

Diss. ETH Nr. 10292

**PHASENKONTROLLIERTE HOLOGRAPHIE IN
FREQUENZSELEKTIVEN MATERIALIEN**

ABHANDLUNG

zur Erlangung des Titels

DOKTOR DER NATURWISSENSCHAFTEN

der

EIDGENÖSSISCHEN TECHNISCHEN HOCHSCHULE ZÜRICH

vorgelegt von

Stefan Herbert Bernet

Dipl. Phys., Universität Würzburg

geboren am 26. August 1963

von der

Bundesrepublik Deutschland

Angenommen auf Antrag von

Prof. Dr. Urs P. Wild, Referent

Prof. Dr. Richard R. Ernst, Korreferent

Zürich 1993

7: Zusammenfassung

Mit der vorliegenden Arbeit soll die Technik des spektralen Lochbrennens näher an ihre vielversprechenden Anwendungsmöglichkeiten im Bereich der hochkomprimierten optischen Datenspeicherung herangeführt werden.

Als Modell wurde ein bereits recht gut bekanntes Probensystem, das frequenzselektive Farbstoff/Polymersystem Chlorin in Polyvinylbutyral, gewählt. Im ersten Teil der Arbeit werden seine Lochbrenn-Eigenschaften mit Hilfe zeitaufgelöster Absorptionsmessungen mit schmalbandigem Laserlicht untersucht.

Als einer der entscheidenden Parameter für den Lochbrennprozeß konnte bei der Temperatur 1.7 K der Debye-Waller Faktor 0.65 ermittelt werden. Dieser recht kleine Wert ließ vermuten, daß die maximal erzielbare Hologrammeffizienz stark von der gewählten Frequenz innerhalb der inhomogen verbreiterten Absorptionsbande abhängig ist, was sich bei weiteren Untersuchungen bestätigte.

Als weitere wichtige Parameter für die Dynamik des Lochbrennens wurden die kinetischen Konstanten der Photoreaktion innerhalb eines 4-Niveau Modells ermittelt. Dabei stellte sich insbesondere heraus, daß der Triplettzustand durch seine lange Lebenszeit von etwa 1.6-2.2 ms (abhängig von der Frequenz innerhalb der inhomogenen Absorptionsbande) einen "Flaschenhals" bildet, der die für praktische Anwendungen sinnvolle Brennintensität auf etwa $400 \mu\text{W cm}^{-2}$ begrenzt. Wegen der geringen Quantenausbeute der Photoreaktion wird hierdurch die minimale Zeitkonstante der Absorptionslochsbildung auf etwa 4 s beschränkt.

In anderen Arbeiten hat sich bereits gezeigt, daß die Technik der holographischen Datenspeicherung mit CW-Laserlicht besonders gut geeignet ist, um einen hohen Kontrast und optimale Signal/Rausch-Verhältnisse zu erhalten. Gleichzeitig erhält man mit der Hologrammphase einen wichtigen beeinflussbaren Parameter, der sich als Schlüssel zu wesentlich verbesserten Speichereigenschaften und neuartigen Anwendungen herausstellt. Im Verlaufe der Arbeit gelang es, einen neuen Hologrammtyp zu entwickeln, der nur in frequenzselektive Materialien realisierbar ist, die sogenannten FPS-Holo-

gramme ("frequency and phase swept holograms"). Hierbei wird das zur Hologrammaufnahme verwendete schmalbandige Laserlicht über einen Frequenzbereich, der typischerweise einigen homogenen Linienbreiten des Lochbrennsystems entspricht, gescannt. Gleichzeitig wird die Hologrammphase als Funktion der Brennfrequenz - als sogenannte "Phasensweep-Funktion" - kontrolliert. Im folgenden zeigte sich, daß FPS-Hologramme im Vergleich zu diskret gespeicherter Hologrammen die Daten- und Bildspeicherungseigenschaften von Lochbrennsystemen derartig verbessern, daß sie in den nahen Bereich einer technischen Verwirklichungen rücken.

Als praktisches Beispiel hierzu konnte mit linearen FPS-Hologrammen die permanente Speicherung eines aus 2000 unterschiedlichen Grauwertbildern bestehenden Films in überraschend guter Qualität demonstriert werden - ein Ergebnis, das bei Verwendung "normaler" Hologramme wegen der starken Wechselwirkungen bisher nicht möglich war.

Weiterhin wurde eine Phasensweep-Funktion mit einem Arcustangens-förmigen Phasenverlauf gefunden, die die holographische Beugungseffizienz maximiert. Hiermit konnten Hologramme mit einer absoluten Beugungseffizienz von 4.5% aufgenommen werden. Dieser Wert ist höher, als das theoretische Limit von 3.7%, das für "dicke" Transmissionshologramme in "gewöhnlichen" absorptiven Materialien angegeben wird.

Die Verwendung einer π -Sprung Phasensweep-Funktion löst ein weiteres Problem der permanenten Datenspeicherung. Es bilden sich Brechungsindexhologramme, die im Vergleich zu "normalen" Hologrammen weitaus resistenter gegen unerwünschtes Ausbleichen beim Lesen sind. Zudem können sie mit so hoher Intensität rekonstruiert werden, daß sie mit bloßem Auge sichtbar sind.

Bei zusätzlicher Einbeziehung der Feldstärkeselektivität unseres Probensystems konnten sogenannte EPS-Hologramme ("electric field and phase swept holograms") aufgenommen werden, die eine neuartige Beugungseffizienzverteilung innerhalb der (Feldstärke, Frequenz)-Ebene zeigen. Dies führt zu einer interessanten Erweiterung der Möglichkeiten des sogenannten "Molekularen Computers"[15-21].

Ein anderes interessantes Ergebnis ist das Auftreten asymmetrischer Beugung "dünnere" FPS-Hologramme in konjugierte Beugungsordnungen. Ein derartiges Verhalten ist beim Verwenden monochromatischen, linear polarisierten Lichts bislang einzigartig. Damit stellen solche Hologramme neuartige optische Elemente dar.

Zur quantitativen theoretischen Beschreibung der FPS- und EPS-Hologramme wurde die von Meixner [10] entwickelte Theorie angepaßt. Sie beschreibt alle bislang beobachteten Eigenschaften dieses Hologrammtyps. Ein zweiter Weg geht direkt von den Kausalitätseigenschaften spektraler Amplituden- und Phasenfilter aus und führt zu denselben Resultaten. Hieraus konnten allgemeine Aussagen über die Beugungseffizienzverteilung von FPS-Hologrammen, z.B. in Abhängigkeit von den Symmetrieeigenschaften der Phasensweep-Funktion, gewonnen werden.

Die dargestellten Ergebnisse sind weitgehend unabhängig vom gewählten Probensystem, insofern die Möglichkeiten der spektralen Selektivität mit denen der Holographie kombiniert werden können. Hierdurch können spektrale Amplituden- und Phasenfilter programmiert werden, deren Eigenschaften durch das Kausalitätsprinzip bestimmt und daher materialunabhängig sind. Maßgeschneiderte Phasensweep-Funktionen können die Beschränkungen durch das Kausalitätsprinzip sogar ausnützen.

In Zukunft könnten FPS-Hologramme die Lücke zwischen Zeitbereichs-Experimenten und CW-Anwendungen schließen. Da sie als Phasen- und Amplitudenfilter dienen, können damit prinzipiell sämtliche Anwendungen, die in der Hochfrequenztechnik durch Hintereinanderschalten passiver elektronischer Komponenten erreichbar sind, direkt programmiert werden. Die Analogie zwischen Anwendungen in der Hochfrequenztechnik und den hier vorgestellten optischen Anwendungen ist bis auf die Größenordnung der Frequenz perfekt. In der Hochfrequenztechnik werden spektral selektive Amplituden- und Phasenfilter durch Kombinationen von Spulen, Kondensatoren und Widerständen konstruiert. Kompliziertere Schaltungen bestehen aus einer Vielzahl einzelner Komponenten. Wegen der Linearität solcher Anordnungen wäre es allerdings ausreichend, ein einziges Bauelement mit einer spektral programmierbaren Amplituden-

Zusammenfassung

und Phasenfiltercharakteristik zu benutzen - derartige Bauelemente gibt es in der Elektronik jedoch nicht. Für den optischen Bereich stellt unsere Probe allerdings ein solches Bauelement dar. Durch direktes Programmieren mit einer vorher berechneten Sweep-Funktion (die außer der Phase eventuell auch die Amplitude moduliert) werden vielfältige Signalmanipulationen ermöglicht. Dies betrifft z.B. Bandpässe, Spektralanalysatoren, Pulsformer und Echtzeittransformer zwischen amplituden- und frequenzmodulierten Signalen. Zu diesen Möglichkeiten tritt die Feldstärkeselektivität der Lochbrennmaterialien und ihre räumliche Auflösung, die optische Parallelverarbeitung ermöglicht, hinzu, wodurch sich ein weites Feld neuartiger Anwendungen eröffnet.

Summary

The goal of this work is to bring the techniques of spectral hole-burning closer to their promising applications in the fields of high density optical data storage.

As a model, an already well-known sample system, chlorin in polyvinylbutyral, was used. In the first part of the work, its hole-burning properties were investigated using time resolved absorption measurements with narrow band laser light.

One of the most important parameters for the hole-burning is the Debye-Waller factor, which has been measured to be 0.65 at a temperature of 1.7 K. This quite small value leads to the assumption - being verified by further investigations - that the maximum achievable hologram efficiency depends strongly on the frequency within the inhomogeneously broadened absorption band.

Other important parameters for the dynamics of the hole-burning are the kinetic constants of the photoreaction. They were determined within a 4-level model, which yields the main result, that the triplet state with its long lifetime, in the range of 1.6-2.2 ms (depending on the frequency within the absorption band), forms a 'bottleneck' which reduces the reasonable burning intensity for practical applications to about $400 \mu\text{W cm}^{-2}$. Because of the low quantum yield of the photoreaction, this limits the minimum time constant for the forming of an absorption hole to about 4 s.

In other works it has been already shown that the technique of holographic data storage with continuous wave laser light is especially well suited for achieving a high contrast and optimal signal to noise ratio. Using holography one also obtains an important, controllable parameter - the hologram phase -, which was shown to be the key to considerably improved storage properties and novel applications. In this work, a new type of holograms in frequency selective materials has been developed, the so-called frequency and phase swept holograms (FPS-holograms). During recording of this hologram type, narrow band laser light is scanned over a frequency range of typically a few homogeneous linewidths of the hole-burning sample. Simultaneously the hologram phase is controlled as a function of the burning frequency, - the so-called 'phase sweep function'.

Summary

The further investigations showed, that FPS-holograms improve the data and image storage possibilities of hole-burning systems with respect to discretely stored holograms such, that they come close to a technical realisability.

As a practical example of this, the permanent, spectrally-multiplexed storage of 2000 different gray-level pictures was demonstrated with surprisingly high quality, using linear FPS-holograms. Because of the strong crosstalk, this result was impossible using "normal" holograms.

Furthermore, an arctangent shaped phase sweep function was found, which maximizes the holographic diffraction efficiency. Using this sweep function, holograms with an absolute diffraction efficiency of 4.5% were stored. This efficiency is already higher, than theoretically predicted for 'thick' transmission holograms in absorptive materials.

The use of a π -jump phase sweep function solves one more of the problems of permanent data storage. This sweep function produces refractive index holograms with considerably enhanced stability against bleaching during readout, as compared to normal holograms. Furthermore they can be read with such high intensity, that they are visible easily without any amplification.

Using also the electric field sensitivity of our sample, electric field and phase swept holograms (EPS-holograms) have been recorded, which show a novel diffraction efficiency distribution within the (frequency, electric field)-plane. This leads to interesting extensions of the possibilities of the so-called 'molecular computer'¹.

A further interesting result is the appearance of asymmetric diffraction of 'thin' linear FPS-holograms into conjugated diffraction orders. This behavior, when using monochromatic, linear polarized light, is a unique property of frequency selective materials. Therefore these holograms represent novel optical elements.

For a quantitative description of the FPS- and EPS-holograms the theory developed by Meixner² has been adapted. It describes all features of this hologram type observed to

1. U. P. Wild, S. Bernet, B. Kohler, A. Renn, *Pure & Appl. Chem.* **64** (9), 1335 (1992).

2. A. J. R. Meixner, Dissertation ETH Zürich Nr. 8726, 1988.

Summary

date. A second method for describing FPS- and EPS-holograms starts directly with the causality properties of spectral amplitude and phase filters and leads to the same results. Using this, general properties of the diffraction efficiency distribution of swept holograms, i.e. with respect to symmetry properties of the phase sweep function, have been obtained.

The demonstrated results are independent of the sample system used, as far as the possibilities of spectral selectivity can be combined with those of holography. These features allow for the programming of spectral amplitude and phase filters, whose properties are determined by the causality principle and therefore material-independent. Specially tailored phase sweep functions even make use of the limitations, brought by the causality principle.

In future, the spectral filtering properties of holography in frequency selective materials could allow for similar applications in optics, as electronic filtering does in electro-engineering. The combination of these features with the electric field sensitivity of hole burning materials and their spatial resolution opens a wide field of novel applications in parallel optical signal and information processing.