

Photonechos mit spektral modulierten, ultrakurzen Laserpulsen

ABHANDLUNG

zur Erlangung des Titels

DOKTOR DER NATURWISSENSCHAFTEN

der

EIDGENÖSSISCHEN TECHNISCHEN HOCHSCHULE ZÜRICH

vorgelegt von

Daniel Gregor Erni

Dipl. Phys. ETH

geboren am 21. Juni 1966

von

Volketswil ZH



Ca1E

Angenommen auf Antrag von

Prof. Dr. Urs P. Wild, Referent

Prof. Dr. Arthur Schweiger, Korreferent

Prof. Dr. Alexander Rebane, Korreferent

Zürich 1997

Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit optischer Informationsverarbeitung basierend auf kohärenter Wechselwirkung von Laserpulsen mit einem breitbandigen, frequenzselektiven Medium. Es werden zwei Experimente (I und II) mit Photonechos diskutiert, bei denen die Frequenzachse die informationstragende Koordinate darstellt. Das Arbeitsmedium besteht aus einem auf 2 K (flüssiges ^4He) abgekühlten Polymerfilm mit eingebetteten organischen Farbstoffmolekülen, welche mit spektral geformten, ultrakurzen Laserpulsen angeregt werden.

Im Experiment I wird eine neue Art von Interferenz im Frequenzraum untersucht und zur simultanen Addition und Subtraktion zweier Bilder verwendet. Die Interferenz findet zwischen den Signalen von zwei permanent gespeicherten Zeitbereichshologrammen beim gemeinsamen Auslesen statt. Als Speicherprozess wird spektrales Lochbrennen in der inhomogen verbreiterten Absorptionsbande des $S_1 \leftarrow S_0$ -Übergangs von Octaethylporphyrin-Molekülen in einer Polystyrolmatrix ausgenutzt. Es wird gezeigt, dass gleichzeitig konstruktive und destruktive Interferenz der Hologrammsignale in zwei getrennten Raumrichtungen auftritt. Die Spektren der Pikosekunden-Pulse, mit denen die einzelnen Hologramme gespeichert werden, stellen ein Paar von komplementären Funktionen dar. Die Überlagerung solcher Hologramme im Speichermedium führt zu einem räumlich-spektralen Gitter, welches asymmetrische Beugungseigenschaften besitzt wie konventionelle Zeitbereichshologramme, die mit unmodulierten Schreibpulsen gespeichert werden. Unter zusätzlicher Ausnutzung der transversalen räumlichen Freiheitsgrade resultiert die gewünschte Bildoperation. Das Experiment I stellt somit eine neue Methode dar, durch ein stimuliertes Echo an einer durch spektral geformte Laserpulse erzeugten, permanenten Gitterstruktur Bildinformation zu verarbeiten.

Im Experiment II wird die Erzeugung von lichtinduzierten, transienten Gittern mit Spektralkomponenten, welche ausserhalb des Anregungsspektrums liegen, sowie deren Wechselwirkungen mit dem anregenden Feld untersucht. Durch Laserpulse, deren Spektren sich nicht überlappen, werden Zweipuls-Photonechos angeregt und spektral sowie zeitlich aufgelöst untersucht. Als resonantes Medium wird ein Polyvinylbutyral-Film, in den Zink-substituierte Naphthalocyanin-Moleküle eingebettet sind, verwendet.

Es wird erstmals gezeigt, dass Photonechos durch Laserpulse mit nicht-überlappenden Spektren angeregt und experimentell detektiert werden kön-

nen. Die maximale Energie der beobachteten Echos beträgt 0.02 nJ, was bei einer Anregungsenergie von 30 μJ pro Puls einer Effizienz von $\sim 10^{-6}$ entspricht. Die Echopulse erscheinen zu einem Zeitpunkt und in einer Richtung, wie sie für ein konventionelles Photonecho bei Anregung mit überlappenden Pulsspektren beobachtet werden. Das Intensitätsspektrum des Echos ist dabei stark durch den zweiten Anregungspuls geprägt und weist dieselben strukturellen Kenngrößen auf (Stufenform, Verteilung der Spektralkomponenten). Man beobachtet eine zusätzliche spektrale Modulation, deren Periode dem Inversen des Zeitabstandes zum zweiten Anregungspuls entspricht.

Die experimentellen Resultate können durch Vergleich mit numerischen Berechnungen der Echostruktur interpretiert werden. Der erste Puls regt eine transiente Polarisation mit Frequenzkomponenten ausserhalb seines Spektrums an, welche mit Komponenten später eintreffender Pulse wechselwirkt. Zum Zeitpunkt $t_e \approx 2t_2 - t_1$ wird in Richtung $\mathbf{k}_e \approx 2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ die Emission eines Echos beobachtet. Die zusätzliche Modulation des Echospektrums resultiert durch eine Wechselwirkung mit einem zur früheren Zeit t_2 existenten Polarisationsgitter, welches einen Anteil des zweiten Anregungspulses ebenfalls in Richtung \mathbf{k}_e beugt (Selbstbeugung).

Für die Simulation der Experimente wurden die Bloch-Gleichungen numerisch gelöst, wobei die inhomogene Bande durch eine Gauß-förmige Verteilung mit 5.2 THz Halbwertsbreite approximiert wurde. Unter Einbezug der transversalen Raumkoordinaten wurde die räumliche und zeitliche Struktur der transienten Polarisationsgitter explizit berechnet, wodurch die zeitliche Amplitude und das Spektrum der Emission in der Beugungsrichtung des Echos getrennt von den Beiträgen der Anregung und des freien Induktionszerfalls mit hoher Auflösung bestimmt werden konnten.

Für moderate Anregungsamplituden wurde eine gute Übereinstimmung zwischen berechneten und experimentell gemessenen Echospektren erzielt. Die im Experiment beobachteten zeitlichen Echostrukturen wurden hauptsächlich durch die Rechnung bestätigt, wenn auch teilweise nur für höhere Anregungsamplituden, welche aber experimentell kaum realisiert wurden.

Photonechos, welche durch spektral nichtüberlappende Pulse angeregt werden, können nicht mit einem linearen Ansatz für die Störungsrechnung beschrieben werden. Der Prozess kann in Zusammenhang mit optischer Datenverarbeitung basierend auf nichtlinearen Wechselwirkungen von Bedeutung sein. Das Echospektrum enthält Information über die zeitliche Abfolge der Anregungspulse, was für die Umsetzung nicht-kommutativer logischer Operationen ausgenützt werden könnte.

Abstract

Coherent optical response from broadband, resonant media with high spectral selectivity can be used for information storage and data treatment. In this work, two experiments (I and II) about photon echoes are presented where the information is coded in the spectral domain. The resonant medium consists of a polymer film doped with organic molecules at 2 K (liquid ^4He) which is excited by spectrally modulated, ultrashort laser pulses.

Experiment I demonstrates a simultaneous addition and subtraction of two-dimensional images, based on a new kind of interference in the frequency domain. The interference takes place between the signals from two different time-domain holograms which both are stored in the medium and read out simultaneously. The storage mechanism is spectral hole burning in the inhomogeneously broadened band of the $S_1 \leftarrow S_0$ transition of octaethylporphyrin molecules in a polystyrene matrix. We show that it is possible to obtain simultaneously constructive and destructive interference of the hologram signals depending in which of the two complementary diffraction directions the signal is detected. The spectral envelopes of the writing pulses used to store the individual holograms are chosen to form a set of complementary functions. The superposition of the two holograms in the medium results in a spatial and spectral structure with asymmetric diffraction properties like conventional time-domain holograms stored with spectrally unmodulated pulses. The image processing operation is achieved by exploiting the transversal spatial dimensions. Therefore, experiment I demonstrates a new method to operate on image information by exciting a stimulated response from an accumulated grating formed by spectrally modulated laser pulses.

Experiment II focuses on the generation of transient gratings with spectral components outside the excitation spectrum and their interaction with the excitation fields. Two-pulse photon echoes are excited by two laser pulses with non-overlapping spectra. The temporal and spectral structure of the echoes are investigated experimentally and by numerical simulations based on the solution of the optical Bloch equations. The resonant medium consists of Zn:naphthalocyanine molecules embedded in a polyvinylbutyral film.

We demonstrate experimentally, for the first time to our knowledge, the excitation of a photon echo in an inhomogeneously broadened absorption band by pulses which do not overlap in the spectrum. The maximum energy of the echoes is 0.02 nJ which yields an efficiency of $\sim 10^{-6}$ with respect to the excitation pulse energy of 30 μJ . The echo is observed at a time and in a

spatial direction which corresponds to those for an ordinary photon echo excited by spectrally overlapping pulses. The structure of the intensity spectrum of the echo is essentially determined by the second excitation pulse and contains the same spectral components. An additional spectral modulation is observed with a period corresponding to the inverse of the time difference between echo and second excitation pulse.

We interpret the experimental observations by comparing with results from numerical calculations of the structure of the coherent emission under corresponding excitation conditions. We conclude that the formation of the coherent transient signal is based on the generation of transient polarization with spectral components outside the spectrum of the first pulse which overlap partially with frequency components of the second pulse. This leads to a transient polarization grating at time $t_e \approx 2t_2 - t_1$ which emits a coherent echo signal in the direction $\mathbf{k}_e \approx 2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$. The additional modulation of the echo spectrum results from the interaction with another transient polarization grating at time t_2 (arrival of the second excitation pulse), which also diffracts a portion of the excitation pulse in the direction \mathbf{k}_e (self diffraction).

In order to simulate the experiments and to investigate the structure of the transient polarization on a theoretical basis the optical Bloch equations are solved numerically. The inhomogeneous band is approximated by a Gaussian of 5.2 THz FWHM. The spatial and temporal structure of the transient polarization is calculated explicitly by taking into account the transversal spatial coordinate of the excitation fields. This allows to extract the temporal shape and the spectrum of the emission in the echo direction separated from other contributions as excitation amplitude and free induction decay.

The numerical results are in good agreement with the measured echo spectra, at least for moderate excitation intensities. The observed temporal shape of the echo is mainly confirmed by the calculations, although in some cases for a strong excitation regime only which was not achieved in the experiment.

Photon echo excitation by spectrally non-overlapping pulses can not be described using a linear perturbational approach for the interaction of resonant systems with the excitation fields. The process may be of interest with respect to optical data treatment based on nonlinear interactions. The echo spectrum contains information about the temporal order of the excitation pulses which may be used to implement non-commutative logic operations. On the other hand, transient polarization gratings with off-resonant spectral components are important whenever information is coded into the frequency domain. At high excitation intensities they may disturb the proper data operation.