Wellenlängenmultiplexing mit thermisch fixierten Volumenphasenhologrammen in photorefraktiven Lithiumniobat-Kristallen

Dissertation zur Erlangung des Grades
eines Doktors der Naturwissenschaften

von

Stefan Breer

genehmigt vom Fachbereich Physik der

UNIVERSITÄT OSNABRÜCK

Osnabrück, im November 1998

Hauptberichterstatter:	Prof. Dr. S. Kapphan
Berichterstatter:	Priv.-Doz. Dr. K. Buse

Tag der Einreichung:	09. September 1998
Tag der mündlichen Prüfung:	06. November 1998

Inhaltsverzeichnis

Kapitel 1

Einleitung

Bestehende Lichtwellenleiternetze gelangen zunehmend an ihre Kapazitätsgrenzen. Ausgelegt für den reinen Telefonverkehr, werden diese Netze durch das Internet schon heute lokal stark überlastet. Wachsende kommerzielle Nutzung des Internets sowie neue Datendienste wie Common Access Television (CATV) oder interaktive Dienste lassen sich mit der bestehenden Netztechnologie nicht realisieren, da weit höhere Übertragungskapazitäten benötigt werden.

Die Erhöhung dieser Kapazitäten läßt sich durch verschiedene sogenannte Multiplexing-Verfahren realisieren. Statt der kostenintensiven Installation zusätzlicher Leitungen sind in den vergangenen Jahren die Taktfrequenzen der Sende- und Empfangsmodule (Bitraten) erhöht worden. Systeme mit Bitraten von bis zu 40 Gbit/s sind in Feldversuchen erprobt worden [1]. Wenn die Dauer der einzelnen Datenpulse eines Datenstroms klein gegenüber der Taktzeit ist, können weitere Kanäle eingefügt werden. Bei diesem Zeitmultiplexing wird jedem Kanal ein festgelegter Zeitbereich zum Senden der Daten innerhalb eines Taktes zur Verfügung gestellt [2]. Die Übertragungskapazität wird allerdings durch die chromatische Dispersion der im Einsatz befindlichen Monomodefasern beschränkt. Diese bedingt ein Auseinanderlaufen der Signalpulse, so daß bei zu großer Faserlänge die Signalpulse verschiedener Kanäle überlappen. Da der Einfluß der Dispersion mit der Faserlänge proportional ansteigt, führt die Erhöhung der Bitrate zu einer Verringerung der Übertragungslänge. Zusätzliche Signalregeneratoren, die aus dem optischen das elektronische Signal rückgewinnen, um es dann mit ursprünglicher Qualität erneut auszusenden, sind nötig und widersprechen dem Ziel, ein rein optisches Netz ohne optoelektronische Zwischenbearbeitung [3] zu verwirklichen. Zudem sind solche Regeneratoren für eine bestimmte Bitrate und ein vorgegebenes Übertragungsprotokoll ausgelegt, so daß Veränderungen des Protokolls sowie eine Erhöhung der Bitrate ein Austauschen aller im Netz verwendeten Regeneratoren unter hohen Kosten erforderlich macht. Als Alternative zur aufwendigen optoelektronischen Regeneration könnten dispersionskompensierende Fasern [4] genutzt werden, wenn sich die bislang zu große Dämpfung verringern läßt.

Die Signalübertragung mit Trägerwellen unterschiedlicher Wellenlänge durch eine Faser wird Wellenlängenmultiplexing (WDM, <u>w</u>avelength <u>d</u>ivision <u>m</u>ultiplexing) genannt und stellt eine vielversprechende Alternative zum Zeitmultiplexing dar [5]. Dabei werden die einzelnen Signalwellen unterschiedlicher Wellenlänge über optische Multiplexer in eine

Übertragungsfaser gespeist. Klassisches Wellenlängenmultiplexing nutzt eine Trägerwelle im zweiten optischen Fenster der Faser bei der Wellenlänge $1.3\,\mu$m sowie eine weitere im dritten optischen Fenster bei $1.55\,\mu$m. Dadurch kann die Übertragungskapazität bereits verdoppelt werden. In dichtgepackten WDM-Systemen (D-WDM, dense WDM) liegen alle Trägerwellen im dritten optischen Fenster [2]. Dort ist die chromatische Dispersion zwar größer als im zweiten optischen Fenster, allerdings ist die Dämpfung geringer [6]. Wenn Kanalabstände von wenigen Nanometern bzw. einigen hundert Picometern erreicht werden, läßt sich im dritten optischen Fenster bei Wellenlängen zwischen 1530 nm und 1565 nm ein Vielzahl von Kanälen überlagern. Lediglich durch den Austausch der Sende- und Empfangseinheiten läßt sich somit die Übertragungskapazität bereits bestehender Netze entscheidend vergrößern. Auf der Übertragungsstrecke sorgen erbiumdotierte Faserverstärker [7, 8] für den Ausgleich der Dämpfungsverluste, bevor der optische Demultiplexer die Kanäle am Empfängerort wieder trennt. Signalregeneratoren sind nicht erforderlich, was die Umstellung auf veränderte Übertragungsprotokolle sowie die kosteneffektive Erweiterung der Übertragungskapazität erlaubt. Die Verbindungslänge zwischen Sendern und Empfängern ist wiederum durch die chromatische Dispersion begrenzt.

Entscheidend für die fehlerfreie Funktion eines dichtgepackten WDM-Systems mit geringen Kanalabständen von wenigen hundert Picometern ist die spektrale Stabilität der einzelnen Sender sowie der optischen Multiplexer und Demultiplexer, da es ansonsten zu einem Übersprechen zwischen benachbarten Kanälen kommt. Aus diesem Grund werden derzeit durch eine Arbeitsgruppe der International Telecommunication Union (ITU) Standards für WDM-Systeme erarbeitet [9]. Als Referenzwellenlänge dient die Kryptonlinie der Frequenz 193.10 THz, die mit der Wellenlänge 1552.52 nm korrespondiert. Um bis zu 40 Kanäle im dritten optischen Fenster der Übertragungsfasern nutzen zu können, wird von der ITU ein Kanalabstand von 100 GHz empfohlen [9]. Das entspricht einer Wellenlängendifferenz von 0.8 nm. Als Toleranz für Abweichungen von diesem Raster ist derzeit 0.16 nm vorgesehen. Hohe Bitraten über 10 Gbit/s verursachen allerdings schon so große Wellenlängenvariationen, daß auch geringere Toleranzen diskutiert werden. Somit sind extrem hohe Anforderungen an die optischen Multiplexer gestellt.

Verschiedene Konzepte zum Bau von Multiplexern sind bereits untersucht worden. Die Kanaltrennung mit Hilfe von Fabry-Perot-Interferometern [10, 11, 12] besitzt neben einer mangelnden Langzeitstabilität ohne aktive Kontrolle der Interferometerspiegel mittels aufwendiger Piezostelltechnik den entscheidenden Nachteil, daß für jeden Kanal ein Interferometer installiert werden müßte. Dagegen wird simultanes Multiplexing durch monolithische Vielkanalfilter ermöglicht. Das sind integriert-optische Komponenten, in denen das ankommende Licht in Wellenleiter unterschiedlicher Länge aufgeteilt und die anschließende Interferenz der Teilwellen genutzt werden, um die Kanäle zu trennen (AWG, arrayed–waveguide gratings) [13]. Hohe Anforderungen an die Herstellung der einzelnen Wellenleiter, deren Längen auf Bruchteile der Wellenlänge genau eingestellt werden müssen, sowie Stabilitätsprobleme aufgrund einer starken Temperaturabhängigkeit lassen diese Methode für den praktischen Einsatz ungeeignet erscheinen. Ein weiteres WDM-Konzept stellt der Einsatz von Bragg-Fasergittern (FBG, fiber Bragg gratings) dar [14, 15]. Große Wellenlängenselektivität bei ausreichender mechanischer Stabilität sowie äußerst geringer Temperaturabhängigkeit machen diese Technik interessant. So sind seit kurzem

Bragg-Fasergitter kommerziell erhältlich, die einen Kanalabstand von 50 GHz ermöglichen [16, 17]. Allerdings erfordert der Aufbau eines WDM-Netzes mit Bragg-Fasergittern den Einsatz von zur Zeit aufwendigen polarisationsunabhängigen optischen Zirkulatoren. Will man das vom Gitter reflektierte Signal mit einem 3dB-Koppler separieren, so hat die Trennung mehrerer Kanäle aufgrund der notwendigen Kaskadierung der Bragg-Fasergitter und 3dB-Koppler hohe Einfügeverluste zur Folge.

Bragg-Gitter in Fasern demonstrieren, daß Volumenphasenhologramme [18], bei deren Aufzeichnung der Brechungsindex des Aufzeichnungsmaterials verändert wird, einen vielversprechenden Ansatz zum Wellenlängenmultiplexing darstellen. Um die Stabilitätsprobleme interferometrischer Verfahren sowie die Notwendigkeit optischer Zirkulatoren zu vermeiden, soll die bei Volumenphasenhologrammen zu erfüllende Bragg-Bedingung, die bei Bragg-Fasergittern nur zur 180°-Reflexion genutzt wird, zur simultanen Trennung zahlreicher Kanäle verwendet werden. Dabei soll die große Wellenlängenselektivität von Reflexions-Volumenphasenhologrammen ausgenutzt werden, um Trägerwellen unterschiedlicher Wellenlänge in verschiedene Raumrichtungen zu beugen [18, 19]. Interferometrische Filter [20, 21] und schmalbandige Wellenlängenstandards für WDM-Anwendungen [22, 23] sind bereits mit Reflexions-Volumenphasenhologrammen realisiert worden.

Als holographisches Aufzeichnungsmaterial bietet sich mit eisendotiertem Lithiumniobat ($LiNbO_3$) ein im dritten optischen Fenster der Fasern vollständig transparentes Medium an, mit dem durch holographische Aufzeichnungstechniken unter Verwendung sichtbaren Lichts ausreichend große Beugungswirkungsgrade erzielt werden können [24]. Zudem sind die optische Homogenität, die mechanische Belastbarkeit und die Langzeitstabilität von Lithiumniobatkristallen hervorragend im Vergleich zu anderen photorefraktiven Medien. Um Reflexionsgitter in Lithiumniobat permanent zu speichern, kann die Technik des sogenannten Thermischen Fixierens genutzt werden [25], bei der durch Erhitzen des Kristalls während des Aufzeichnungsprozesses oder danach Brechungsindexänderungen erzeugt werden, die gegenüber anschließender Beleuchtung stabil sind.

Als Ziel der vorliegenden Arbeit soll ein Zweikanal-Demultiplexer auf der Basis thermisch fixierter Reflexions-Volumenphasenhologramme in einem $LiNbO_3$-Kristall hergestellt und untersucht werden.

Dazu wird zunächst der Mechanismus des Thermischen Fixierens näher betrachtet. Erst das genaue Verständnis der dabei stattfindenden Prozesse ermöglicht eine Aussage über den Einsatz dieses Verfahrens zur Erzeugung von Reflexionshologrammen mit permanenten Brechungsindexänderungen. Insbesondere soll die durch eine Vielzahl von Untersuchungen aufgeworfene Frage beantwortet werden, welchen Einfluß Protonen auf das Thermische Fixieren in $LiNbO_3$ haben. Hierzu werden sowohl der Schreibprozeß des Thermischen Fixierens als auch die anschließend benötigte Entwicklung durch homogene Beleuchtung anhand von Experimenten mit makroskopischen Lichtmustern untersucht. Ergebnisse von Simulationsrechnungen auf der Grundlage einer Modellvorstellung des Thermischen Fixierens werden mit den experimentellen Ergebnissen verglichen.

Der Beugungswirkungsgrad von Volumenphasenhologrammen, die bei Raumtemperatur in $LiNbO_3$-Kristallen aufgezeichnet werden, läßt sich durch die Verwendung von Schreiblicht hoher Intensität ($> 10^5\ \mathrm{W/m^2}$) signifikant erhöhen [26, 27]. Um zu klären, ob dieser

Effekt auch bei thermisch fixierten Hologrammen genutzt werden kann, werden Untersuchungen zur Steigerung des Beugungswirkungsgrads durch Entwicklung thermisch fixierter Hologramme mit Pulslaserlicht vorgestellt.

Die Aufzeichnung von Reflexions-Volumenphasenhologrammen erfolgt mit Hilfe eines speziell für die Überlagerung thermisch fixierter Hologramme in $LiNbO_3$-Kristallen realisierten Holographieaufbaus. Die Leistungsdaten der aufgezeichneten Reflexionshologramme sowie verschiedene Einflüsse, die zu einer Hologrammdegradation führen, werden präsentiert. Abschließend wird über Experimente zur Herstellung eines Zweikanaldemultiplexers durch Superposition zweier thermisch fixierter Reflexions-Volumenphasenhologramme in einem $LiNbO_3$-Kristall sowie über dessen Funktionstüchtigkeit berichtet.

Kapitel 2

Grundlagen

Der photorefraktive Effekt in $LiNbO_3$ ist in den vergangenen 25 Jahren intensiv untersucht worden. Im ersten Abschnitt dieses Kapitels wird die Entstehung lichtinduzierter Brechungsindexänderungen in $LiNbO_3$ bei Raumtemperatur dargestellt, auf die bei der Beschreibung der Experimente zur Natur des Thermischen Fixieren zurückgegriffen wird.

An kosinusförmigen Brechungsindexänderungen können Lichtwellen mit hoher Effizienz gebeugt werden. Die theoretischen Grundlagen zur Beschreibung der wellenlängen- und winkelabhängigen Beugung ebener Wellen an Volumenphasenhologrammen werden deshalb im zweiten Abschnitt entwickelt. Zudem werden die Grundlagen einer aktiven Phasenstabilisierung während des Aufzeichnungsprozesses von Volumenphasenhologrammen in $LiNbO_3$ zusammengefaßt.

2.1 Photorefraktiver Effekt in $LiNbO_3$

Inhomogene Beleuchtung bewirkt in photorefraktiven Kristallen eine Umverteilung von Ladungsträgern [28, 29]. Die Anhäufung dieser Ladungsträger in den dunklen sowie deren Verarmung in den hellen Bereichen führt zur Ausbildung eines Raumladungsfelds, das über den elektrooptischen Effekt den Brechungsindex des Materials moduliert. Dieses Zusammenwirken des lichtinduzierten Ladungstransports mit dem elektrooptischen Effekt ist als photorefraktiver Effekt bekannt [28, 29].

2.1.1 Ladungsantriebe

Photorefraktive Kristalle können intrinsische und extrinsische Störstellen enthalten, deren Energieniveaus in der Bandlücke zwischen dem gefüllten Valenz- und dem leeren Leitungsband liegen und die in mindestens zwei verschiedenen Valenzzuständen vorkommen. Diese photorefraktiven Zentren stellen Ladungsträger zur Verfügung, die durch Beleuchtung in das Valenzband (Löcherleitung) oder in das Leitungsband (Elektronenleitung) angeregt werden. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wird ausschließlich eisen- und kupferdotiertes $LiNbO_3$ untersucht. $LiNbO_3$-Kristalle sind optisch einachsig. Die optische Achse fällt mit der Richtung der Spontanpolarisierung zusammen und wird auch als c-Achse bezeichnet. Von diesem Material ist bekannt, daß es bei Beleuchtung mit sichtbarem Licht hauptsächlich Elektronenleitung zeigt [30, 31]. Deshalb wird im weiteren Verlauf ein auf Elektronenleitung basierendes Ladungstransportmodell beschrieben.

Verschiedene Mechanismen führen zu einer Umverteilung der Elektronen im Leitungsband, bis diese nach einer gewissen Zeit mit den Störstellen rekombinieren. Dabei ist die Anregungsrate in den hellen Bereichen des Kristalls höher als in den dunklen. Daraus resultiert eine Stromdichteverteilung, die sich aus mehreren den einzelnen Antriebsmechanismen entsprechenden Beiträgen zu

$$\mathbf{j} = \mathbf{j}_{\text{drift}} + \mathbf{j}_{\text{diff}} + \mathbf{j}_{\text{phv}} \tag{2.1}$$

zusammensetzt [28]. Die Coulombkraft erzeugt eine Driftstromdichte $\mathbf{j}_{\text{drift}}$, die für $LiNbO_3$ dem Ohmschen Gesetz $\mathbf{j}_{\text{drift}} = (\hat{\sigma}_{\text{ph}} + \hat{\sigma}_{\text{D}})\mathbf{E}$ mit $\hat{\sigma}_{\text{ph}}$ und $\hat{\sigma}_{\text{D}}$ als Tensoren der Photoleitfähigkeit bzw. der Dunkelleitfähigkeit sowie $\mathbf{E}$ als elektrischem Feld gehorcht.

Das Feld $\mathbf{E}$ setzt sich additiv aus dem Raumladungsfeld $\mathbf{E}_{\text{sc}}$ (<u>s</u>pace <u>c</u>harge field), das sich aufgrund der umverteilten Elektronen aufbaut, einem zusätzlich am Kristall angelegten äußeren elektrischen Feld $\mathbf{E}_{\text{ext}}$ und dem pyroelektrischen Feld $\mathbf{E}_{\text{pyro}}$ zusammen. Der pyroelektrische Beitrag $\mathbf{E}_{\text{pyro}} = -(\epsilon\epsilon_0)^{-1}(\partial P_{\text{s}}/\partial T)\Delta T \mathbf{e}_{\text{s}}$ entsteht durch die Änderung der Spontanpolarisierung $\partial P_{\text{s}}/\partial T$ bei der Temperaturänderung ΔT aufgrund der Absorption von Licht. Hierbei bezeichnen ϵ und ϵ_0 die relative Dielektrizitätskonstante bzw. die Dielektrizitätskonstante des Vakuums, und $\mathbf{e}_{\text{s}}$ kennzeichnet den Einheitsvektor entlang der Achse der spontanen Polarisierung. Bei allen im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimenten mit $LiNbO_3$-Kristallen werden keine äußeren Felder angelegt. Weiterhin ist der Einfluß des pyroelektrischen Felds in $LiNbO_3$ gegenüber dem volumenphotovoltaischen Effekt vernachlässigbar [32, 33]. Damit ergibt sich für die Driftstromdichte

$$\mathbf{j}_{\text{drift}} = (\hat{\sigma}_{\text{ph}} + \hat{\sigma}_{\text{D}})\mathbf{E}_{\text{sc}}. \tag{2.2}$$

Die räumlich modulierte Konzentration der Elektronen im Leitungsband ist die Ursache für die Diffusionsstromdichte

$$\mathbf{j}_{\text{diff}} = e\hat{D}\,\text{grad}\,n_{\text{e}} = k_{\text{B}}T\hat{\mu}_{\text{e}}\,\text{grad}\,n_{\text{e}} \tag{2.3}$$

mit e als Elementarladung, $\hat{D}$ als Diffusionstensor und n_{e} als Konzentration der Elektronen im Leitungsband sowie $\hat{\mu}_{\text{e}}$ als deren Beweglichkeitstensor. Die Boltzmannkonstante ist mit k_{B} bezeichnet.

In $LiNbO_3$ tritt – typisch für nicht-zentrosymmetrische Kristalle – der volumenphotovoltaische Effekt auf [34]. Elektronen aus nicht-zentrosymmetrischen Positionen werden durch Anregung in Richtung der c-Achse bewegt, wodurch ein zusätzlicher von der Lichtpolarisation abhängiger Stromdichtebeitrag $\mathbf{j}_{\text{phv}}$ entsteht [35, 36]. Die volumenphotovoltaische Stromdichte ist mit den Lichtfeldamplituden A_j und A_k über den dreistufigen volumenphotovoltaischen Tensor β_{ijk} gemäß

$$(\mathbf{j}_{\text{phv}})_i = \frac{1}{2}(\beta_{ijk}A_j^\star A_k + c.c.) \tag{2.4}$$

verknüpft. Hierbei bezeichnen * die komplexe Konjugation und *c.c.* den komplex konjugierten Term. Im Rahmen dieser Arbeit wird die Polarisation der Lichtfelder zur Erzeugung volumenphotovoltaischer Stromdichten in holographischen Experimenten immer parallel zur kristallographischen x-Richtung eingestellt. Zudem wird die experimentelle Konfiguration so gewählt, daß nur die volumenphotovoltaische Stromdichte entlang der z-Richtung berücksichtigt werden muß (vgl. Kap. 3.2.2). Damit vereinfacht sich Gl. (2.4) zu

$$j_{\mathrm{phv}} = \frac{\beta_{31}}{c\epsilon_0} I \qquad (2.5)$$

mit c als Lichtgeschwindigkeit und I als Gesamtintensität. Die Vertauschbarkeit der letzten beiden Indizes des volumenphotovoltaischen Tensors erlaubt die Einführung der kontrahierten Schreibweise β_{mk} (Werte für k: $1 \hat{=} 11$, $2 \hat{=} 22$, $3 \hat{=} 33$, $4 \hat{=} 23 \hat{=} 32$, $5 \hat{=} 13 \hat{=} 31$, $6 \hat{=} 12 \hat{=} 21$).

2.1.2 Ladungstransport in $LiNbO_3$

Zum tieferen Verständnis des lichtinduzierten Ladungstransports ist es notwendig, die beteiligten Störstellen, die freie Ladungsträger zur Verfügung stellen, und deren Valenzzustände zu identifizieren. Setzt man als inhomogene Beleuchtung ein kosinusförmiges Intensitätsmuster gemäß

$$I(z) = I_0[1 + m\cos(Kz)] \qquad (2.6)$$

an, das durch Interferenz zweier zueinander kohärenter ebener Lichtwellen experimentell realisiert werden kann, so lassen sich mit Hilfe verschiedener Ladungstransportmodelle viele experimentell zugängliche Größen wie z. B. die zeitliche Entwicklung des Raumladungsfelds sowie dessen Sättigungswert analytisch berechnen. Hierbei beschreiben I_0 die Summe der Intensitäten der beiden Schreibwellen, z die räumliche Koordinate, m den Modulationsgrad und K die Raumfrequenz des Intensitätsmusters.

Das *Ein-Zentren-Modell* geht von einer einzelnen am Ladungstransport beteiligten Störstelle aus, die in zwei Valenzzuständen vorkommt [37]. Einige Phänomene wie z. B. die Abhängigkeit des Sättigungsraumladungsfelds von der Intensität können jedoch nur mit einem Modell erklärt werden, das mehr als ein Zentrum in zwei unterschiedlichen Valenzzuständen erlaubt. Beim *Zwei-Zentren-Modell* werden zwei Störstellen - ein flaches Zentrum nahe der Bandkante und ein tiefes Zentrum - in jeweils zwei Valenzzuständen berücksichtigt [38]. Das *Drei-Valenzen-Modell* geht von einer in drei verschiedenen Valenzzuständen auftretenden Störstelle aus [39]. Eine genaue Beschreibung der verschiedenen Ladungstransportmodelle gibt z. B. Buse [28].

Der Ladungstransport in eisen- und kupferdotiertem $LiNbO_3$ ist sowohl bei geringen als auch bei hohen Lichtintensitäten ($> 10^5\ \mathrm{W/m^2}$) experimentell detailliert untersucht worden und im Rahmen der oben genannten Ladungstransportmodelle gut verstanden.

Bei geringen Intensitäten genügt das Ein-Zentren-Modell, um eine sehr gute Übereinstimmung der Modellvorhersagen mit den experimentellen Ergebnissen zu erzielen. Aus optischen, Mössbauer- und Elektronenspinresonanz-Messungen (ESR) resultiert, daß Eisen und Kupfer in $LiNbO_3$ nur in den Valenzzuständen Fe^{2+}/Fe^{3+} bzw. Cu^{+}/Cu^{2+} vorkommen [40]. Aus den Fe^{2+}- bzw. Cu^{+}-Störstellen werden Elektronen ins Leitungsband angeregt, um nach einiger Zeit von Fe^{3+}- bzw. Cu^{2+}-Ionen wieder eingefangen zu werden. Die Photoleitfähigkeit σ_{ph} wächst linear mit der Intensität [34, 41, 42]. Der Ladungsantrieb wird hauptsächlich durch den volumenphotovoltaischen Effekt bestimmt [34, 41]. In $LiNbO_3$:Fe verläuft die volumenphotovoltaische Stromdichte j_{phv} proportional zur Lichtintensität und zur Fe^{2+}-Konzentration $c_{\mathrm{Fe}^{2+}}$, wie es das Ein-Zentren-Modell vorhersagt [43].

Beim Schreiben elementarer Hologramme in $LiNbO_3$ (siehe Abschnitt 2.2.1) zeigt sich, daß der Aufbau sowie der Zerfall des entstehenden Raumladungsfelds E_{sc} bei Beleuchtung monoexponentiell mit der Zeitkonstanten τ_{sc} verlaufen. Die Photoleitfähigkeit σ_{ph} verhält sich wie ${\tau_{\mathrm{sc}}}^{-1}$ proportional zum Konzentrationsverhältnis $c_{\mathrm{Fe}^{2+}}/c_{\mathrm{Fe}^{3+}}$ [41, 44]. Der Sättigungswert des Raumladungsfelds entspricht dem volumenphotovoltaischen Feld $E_{\mathrm{phv}} = -j_{\mathrm{phv}}/\sigma_{\mathrm{ph}}$, das proportional mit der Konzentration $c_{\mathrm{Fe}^{3+}}$ wächst [44, 45]. Dagegen verläuft der Aufbau des Raumladungsfelds $\partial E_{\mathrm{sc}}/\partial t$, gemessen zu Beginn des Aufzeichnungsprozesses, proportional zu $E_{\mathrm{phv}}/\tau_{\mathrm{sc}}$, also zu $c_{\mathrm{Fe}^{2+}}$ [40, 44]. In $LiNbO_3$:Cu verhalten sich die Abhängigkeiten analog, wenn statt der Fe^{2+}/Fe^{3+}- die Cu^{+}/Cu^{2+}-Valenzen berücksichtigt werden [43, 46, 47].

Bei Intensitäten über 10^5 Wm^{-2}, wie sie z. B. in Pulslaserexperimenten oder Experimenten mit fokussierten Dauerstrichlaserstrahlen vorkommen, wird in $LiNbO_3$ eine Abhängigkeit des Sättigungsraumladungsfelds von der Intensität beobachtet [27]. In diesen Fällen reicht das Ein-Zentren-Modell nicht zur Beschreibung des Ladungstransports aus. Mit einem Zwei-Zentren-Modell, in dem direkte Übergänge zwischen dem energetisch tiefen und dem energetisch flacheren Zentrum erlaubt sind, kann erklärt werden, warum bei Pulslaserintensitäten das Sättigungsraumladungsfeld größer als bei Dauerstrichlaserintensitäten ausfällt [27, 48]. Auch die superlineare Intensitätsabhängigkeit der Photoleitung σ_{ph} und der volumenphotovoltaischen Stromdiche j_{phv} lassen sich mit diesem Modell erklären [27]. Als tiefes Zentrum tritt Fe^{2+}/Fe^{3+} auf, als flaches Zentrum ist ein intrinsischer Defekt identifiziert worden [49]: Kleine $\mathrm{Nb}_{\mathrm{Li}}^{3\bullet}$-Polaronen, Nb^{4+}-Ionen auf Li^{+}-Gitterplätzen, kommen in $LiNbO_3$, das aus der kongruenten Schmelze gezogen wird, in einer Konzentration von mindestens 1 mol % vor [50, 51, 52], da kongruentes $LiNbO_3$ nur 48.3 mol % Li enthält [53]. Direkte Anregung von Elektronen aus dem Fe^{2+} in das $\mathrm{Nb}_{\mathrm{Li}}^{5+}$ ist möglich, es entsteht dadurch Nb^{4+}. Die Generierung von Nb^{4+}-Ionen durch Pulslaserbeleuchtung ist in ESR-Messungen nachgewiesen worden [54].

2.1.3 Elektrooptischer Effekt

Als linearen elektrooptischen Effekt bezeichnet man die Änderung des inversen Dielektrizitätstensors

$$(\Delta\epsilon_{ij})^{-1} = r_{ijk}(\mathbf{E}_{\mathrm{sc}})_k \tag{2.7}$$

aufgrund eines elektrischen Felds $\mathbf{E}_{\mathrm{sc}}$ mit r_{ijk} als dem linearen elektrooptischen Tensor. Die Vertauschbarkeit der ersten beiden Indizes des elektrooptischen Tensors führt auch hier zur kontrahierten Schreibweise r_{mk}.

$LiNbO_3$ gehört der Punktsymmetriegruppe 3m an, weshalb nur einige der Tensorelemente von Null verschieden sind: $r_{22} = -r_{61} = -r_{21}$, $r_{13} = r_{23}$, $r_{42} = r_{51}$ und r_{33} [55]. Bei allen im Rahmen dieser Arbeit verwendeten experimentellen Konfigurationen verläuft das Raumladungsfeld $\mathbf{E}_{\mathrm{sc}}$ annähernd parallel zur c-Achse der untersuchten Kristalle, so daß im folgenden $E_{\mathrm{sc}} = |\mathbf{E}_{\mathrm{sc}}| \approx (\mathbf{E}_{\mathrm{sc}})_3$ gilt und nur die Tensorelemente r_{13} und r_{33} berücksichtigt werden. Dieses Feld führt aufgrund des elektrooptischen Effekts zu einer Änderung des ordentlichen (o) bzw. außerordentlichen (e) Brechungsindexes n gemäß

$$\Delta n_{\mathrm{o,e}} = -\frac{1}{2} n_{\mathrm{o,e}}^3 r_{13,33} E_{\mathrm{sc}} \,. \tag{2.8}$$

Je nach Richtung des Polarisationsvektors liegt die effektive Brechungsindexänderung zwischen Δn_{o} (Polarisation senkrecht zur c-Achse) und Δn_{e} (Polarisation parallel zur c-Achse und somit Ausbreitung des Lichts senkrecht zur c-Achse).

2.2 Volumenphasenholographie

2.2.1 Elementare Volumenphasenhologramme

Die Holographie erlaubt es, sowohl die Amplituden- als auch die Phaseninformation einer Lichtwelle (Signalwelle) zu speichern [56]. Dazu wird die Signalwelle mit einer zweiten Lichtwelle (Referenzwelle) zur Interferenz gebracht. Wird das dadurch entstehende Intensitätsmuster in ein Brechungsindexmuster umgesetzt, spricht man von einem Phasenhologramm. Wenn als Signal- wie auch als Referenzwelle ebene Wellen verwendet werden und das Aufzeichnungsmaterial linear auf Intensitätsänderungen antwortet, dann erzeugt die kosinusförmige Intensitätsmodulation gemäß Gl. (2.6) eine kosinusförmige Brechungsindexvariation

$$\Delta n_m(z) = \Delta n \left[1 + m \cos(Kz + \phi)\right] \,. \tag{2.9}$$

Der Brechungsindex n ist mit derselben Raumfrequenz K wie das Lichtmuster entlang der räumlichen Koordinate z im Aufzeichnungsmedium moduliert. Einer Phasenverschiebung zwischen Licht- und Brechungsindexmuster wird durch ϕ Rechnung getragen, und Δn kennzeichnet die Brechungsindexamplitude. Ist die Dicke der Hologramme d groß gegenüber der Gitterkonstanten $\Lambda = 2\pi/K$, dann spricht man von dicken Phasenhologrammen oder Volumenphasenhologrammen. Volumenphasenhologramme, für die Gl. (2.9) gilt, werden auch als Volumenphasengitter oder elementare Volumenphasenhologramme bezeichnet. Die Richtung des Gittervektors $\mathbf{K}$ und sein Betrag K sind mit den Wellenvektoren $\mathbf{k}_{\mathrm{R,S}}$ der beiden interferierenden Lichtwellen über die Bragg-Bedingung

$$\mathbf{K} = \mathbf{k}_{\mathrm{S}} - \mathbf{k}_{\mathrm{R}} \tag{2.10}$$

verknüpft. Dabei gilt $|\mathbf{k}_{\mathrm{R,S}}| = k = 2\pi n/\lambda$ mit λ als Vakuumlichtwellenlänge. Im Gegensatz zu dünnen Phasenhologrammen muß bei Volumenphasenhologrammen die Bragg-Bedingung erfüllt sein, damit die im Hologramm gespeicherte Information rekonstruiert werden kann.

Man unterscheidet Reflexions- und Transmissionshologramme (vgl. Abb. 2.1): Die Reflexionsgeometrie zeichnet sich dadurch aus, daß beide Wellen durch gegenüberliegende Oberflächen in das Aufzeichnungsmedium eintreten. Wenn dagegen beide Wellen dieselbe Eintrittsfläche nutzen, spricht man von einem Transmissionshologramm.

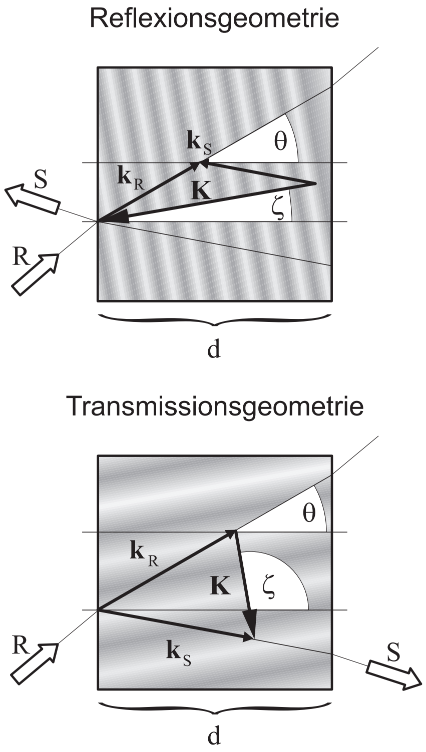


Abbildung 2.1: *Schematische Darstellung der Beugung einer unter dem Winkel θ verlaufenden Lichtwelle R (Wellenvektor $\mathbf{k}_\mathrm{R}$) an einem Volumenphasenhologramm der Dicke d für die Reflexionsgeometrie (oben) sowie für die Transmissionsgeometrie (unten). Die räumliche Modulation des Brechungsindexes ist durch die Streifenmuster angedeutet. Der Gittervektor $\mathbf{K}$ verläuft jeweils unter dem Neigungswinkel ζ bezüglich der Eintrittsfläche. Die abgebeugte Lichtwelle S mit dem Wellenvektor $\mathbf{k}_\mathrm{S}$ verläßt das Hologramm im Reflexionsfall durch die Eintrittsoberfläche und im Transmissionsfall durch die der Eintrittsfläche gegenüberliegenden Fläche. Alle Winkel gelten im Medium.*

Der Beugungswirkungsgrad η läßt sich experimentell aus den Intensitäten der abgebeugten Signalwelle I_S sowie der Referenzwelle nach Transmission des Hologramms I_R zu

$$\eta = \frac{I_\mathrm{S}}{I_\mathrm{S} + I_\mathrm{R}} \tag{2.11}$$

ermitteln.

2.2.2 Theorie gekoppelter Wellen

Die von Kogelnik entwickelte Theorie gekoppelter Wellen [18] beschreibt die Beugung ebener Wellen an Volumenhologrammen. Darin werden sowohl Phasen- als auch Absorptionsgitter für verschiedene Geometrien behandelt. An dieser Stelle sollen nur die für das Verständnis der vorliegenden Arbeit wichtigen Gleichungen zur theoretischen Beschreibung von Volumenphasenhologrammen vorgestellt werden. Dabei wird zwischen Reflexions- und Transmissionshologrammen unterschieden. Es werden zunächst einige für beide Hologrammarten gültige Überlegungen präsentiert, um anschließend die von der Geometrie abhängigen Ergebnisse zusammenzufassen.

Die Kopplung der Lichtwellen wird durch die Lösung der elektrodynamischen Wellengleichung analytisch beschrieben [18]. Folgende Bedingungen sollen gelten:

Das Volumenphasenhologramm sei durch eine ortsabhängige kosinusförmige Brechungsindexmodulation analog zu Gl. (2.9) und seine geometrische Ausdehnung charakterisiert (vgl. Abb. 2.1). Die Brechungsindexamplitude Δn soll dabei klein gegenüber dem Brechungsindex des Volumenmaterials n sein. Zudem soll die Dicke d des Hologramms der Bedingung $2\pi\lambda d/n\Lambda^2 \gg 1$ mit λ als Vakuumwellenlänge genügen. Aufgrund dieser Bedingung wird die Annahme getroffen, daß sich nur zwei Wellen, die senkrecht zur Einfallsebene polarisiert sind, im Hologramm ausbreiten: Die Referenzwelle R wird durch die Beugung am Gitter teilweise abgeschwächt, die Signalwelle S entsteht durch Beugung am Gitter und muß die Bragg-Bedingung erfüllen. Höhere Beugungsordnungen werden vernachlässigt. Weiterhin soll die Energiekopplung zwischen den beiden Wellen so schwach sein, daß sich auf der Strecke λ die Amplituden der Wellen nur wenig ändern. Die zweiten Ortsableitungen der Amplituden dürfen dann in der analytischen Rechnung vernachlässigt werden. Alle auftretenden Winkel gelten im Medium. Beim Übergang in ein anderes Medium muß die Brechung berücksichtigt werden.

Die Energiekopplung der beiden Wellen wird durch die gekoppelten Wellengleichungen [18]

$$c_{\mathrm{R}} \frac{\mathrm{d}R}{\mathrm{d}x} + \alpha R = -i\kappa S \tag{2.12}$$

$$c_{\mathrm{S}} \frac{\mathrm{d}S}{\mathrm{d}x} + (\alpha + i\vartheta) S = -i\kappa R \tag{2.13}$$

deutlich: Die Amplitude einer Welle (R, S) ändert sich aufgrund der Kopplung mit der anderen Welle $(\kappa S, \kappa R)$ oder aufgrund der Absorption $(\alpha R, \alpha S)$. Für ein reines Phasengitter geht als Materialparameter ausschließlich die Brechungsindexamplitude in den Kopplungsparameter κ gemäß

$$\kappa = \pi \Delta n / \lambda \tag{2.14}$$

ein. Wird die Bragg-Bedingung verletzt, so wächst der Verstimmungsparameter

$$\vartheta = K \left[\cos(\zeta - \theta) - \frac{K}{2k} \right] \tag{2.15}$$

an, und die Wechselwirkung zwischen den Wellen nimmt ab (ϑS). Über den Einfallswinkel der Referenzwelle R zur Oberflächennormalen θ und den Neigungswinkel des Hologramms ζ hängt ϑ von der geometrischen Konstellation (vgl. Abb. 2.1) als auch über $k = 2\pi n/\lambda$ von der Lichtwellenlänge λ ab. Weiterhin werden die geometrischen Parameter

$$c_{\mathrm{R}} = \cos\theta \quad \text{und} \quad c_{\mathrm{S}} = \cos\theta - \frac{K}{k} \cos\zeta \tag{2.16}$$

verwendet. Der als Bragg-Winkel bezeichnete Einfallswinkel der Referenzwelle θ_{B} erfüllt die zu Gl. (2.10) äquivalente Bragg-Bedingung

$$\cos(\zeta - \theta_{\mathrm{B}}) = \frac{K}{2k}\,, \tag{2.17}$$

denn für diesen Einfallswinkel verschwindet der Verstimmungsparameter ϑ.

Die Lösung der Kopplungsgleichungen hängt davon ab, ob ein Reflexions- oder ein Transmissionshologramm betrachtet wird. Es ergeben sich unterschiedliche Ausdrücke für die Amplitude S der Signalwelle nach Verlassen des Hologramms. Wird die Amplitude der Referenzwelle beim Eintritt in das Hologramm auf eins normiert, so läßt sich der Beugungswirkungsgrad mittels $\eta = SS^\star|c_S|/c_R$ bestimmen [18]. Dabei bezeichnet * wieder das komplex Konjugierte.

Reflexionshologramme

Der Beugungswirkungsgrad für geneigte Reflexions-Volumenphasengitter berechnet sich zu [18]

$$\eta = \left(1 + \frac{1 - \xi^2/\nu^2}{\sinh^2 \sqrt{(\nu^2 - \xi^2)}}\right)^{-1} \tag{2.18}$$

mit den Parametern

$$\xi = -\frac{\vartheta d}{2c_\mathrm{S}} \quad \text{und} \quad \nu = i\frac{\kappa d}{\sqrt{(c_\mathrm{R} c_\mathrm{S})}}\,. \tag{2.19}$$

Man betrachte ein annähernd ungeneigtes Reflexionshologramm ($\zeta \approx 0$). Solche Hologramme werden im Rahmen der vorliegenden Arbeit auch als symmetrische Hologramme bezeichnet. Es werden die kleinen Winkel- bzw. Wellenlängenabweichungen $\Delta\theta = \theta_\mathrm{B} - \theta$ und $\Delta\lambda = \lambda_\mathrm{B} - \lambda$ eingeführt. Für Reflexionshologramme darf der Kosinusterm im Verstimmungsparameter ϑ (Gl. (2.15)) nicht direkt nach $\Delta\theta$ oder $\Delta\lambda$ entwickelt werden, falls auch der Grenzfall $\theta = \zeta$ einbezogen bleiben soll, d. h. falls $\mathbf{K}$ und $\mathbf{k}$ kollinear sind. In dieser Situation kann θ kleiner als $\Delta\theta$ sein, wofür die in [18] verwendete Entwicklung nicht mehr gilt. Bei Reflexionshologrammen ist jedoch insbesondere der Fall $\theta \ll 1$ wichtig. Hier wird daher anders vorgegangen: Nach Anwendung des Additionstheorems für den Kosinusterm in Gl. (2.15) werden die Terme $\cos\Delta\theta$ und $\sin\Delta\theta$ bis zur ersten Ordnung entwickelt. Unter Verwendung von $\theta_\mathrm{B} \ll 1$ erhält man dann

$$\xi = -\frac{Kd}{2}\left[\frac{\Delta\lambda}{\lambda_\mathrm{B}} + \frac{\Delta\theta}{2}(2\theta_\mathrm{B} + \Delta\theta)\right] \tag{2.20}$$

sowie

$$\nu = \frac{\pi d \Delta n}{\lambda \cos\theta}\,. \tag{2.21}$$

Transmissionshologramme

Für Transmissionshologramme kann der Beugungswirkungsgrad η ebenfalls in Abhängigkeit des Kopplungsparameters κ sowie des Verstimmungsparameters ϑ berechnet werden. Im Rahmen dieser Arbeit werden ausschließlich annähernd ungeneigte Transmissionshologramme behandelt ($\zeta \approx 90\,°$), die stets unter Erfüllung der Bragg-Bedingung

(2.17) ausgelesen werden. Somit verschwindet der Verstimmungsparameter ϑ. Der Beugungswirkungsgrad η läßt sich für diesen Sonderfall der Kogelnik-Theorie durch

$$\eta = \sin^2 \nu \tag{2.22}$$

beschreiben [18], wobei der Parameter ν durch

$$\nu = \frac{\pi d \Delta n}{\lambda \cos \theta_{\mathrm{B}}} \tag{2.23}$$

mit dem Kopplungsparameter κ (Gl. (2.14)) verknüpft ist.

Es sei an dieser Stelle nochmals darauf hingewiesen, daß alle verwendeten Winkel θ und $\Delta\theta$ im holographischen Medium gelten. Dagegen sind die verwendeten Wellenlängen und Wellenlängenänderungen auf den freien Raum bezogen.

2.2.3 Phasenstabilisierung während des holographischen Schreibprozesses

Zum Schreiben elementarer Volumenphasenhologramme wird ein kosinusförmiges Intensitätsmuster gemäß Gl. (2.6) durch die Überlagerung zweier zueinander kohärenter ebener Wellen R und S erzeugt. Instabilitäten des experimentellen Aufbaus und Brechungsindexfluktuationen aufgrund Luftkonvektion beeinflussen die optische Weglängendifferenz und damit die relative Phase zwischen den interferierenden Wellen, so daß sich das Interferenzmuster entlang des Gittervektors verschiebt und der holographische Schreibprozeß gestört wird. Dos Santos *et al.* [57] haben erstmals eine auf Strahlkopplung [31] basierende Stabilisierungstechnik für holographisches Schreiben in Sillenitkristallen verwendet, die von Garcia *et al.* [58] auf $LiNbO_3$ übertragen wurde. Die Grundlagen dieser Stabilisierungstechnik werden im folgenden beschrieben. Dabei wird der Fall symmetrischer Transmissions-Volumenphasengitter betrachtet.

Die Welle S wird mit der Amplitude ψ und der Kreisfrequenz ω phasenmoduliert. Wenn sich eine Brechungsindexänderung Δn gemäß Gl. (2.9) einstellt, wird jede der beiden Wellen in die Richtung der anderen Welle abgebeugt, da die Bragg-Bedingung für beide Schreibwellen erfüllt ist. Der transmittierte Anteil einer Welle interferiert jeweils mit dem abgebeugten Anteil der anderen Welle, so daß aus einer periodischen Phasenänderung eine periodische Intensitätsänderung der Schreibwellen hinter dem Kristall resultiert. Die Intensität der Welle S hinter dem Kristall läßt sich also zu [58]

$$I_{\mathrm{S}} = c\epsilon_0 \left| S_0 \cos(\nu) e^{i\psi \sin(\omega t)} + i e^{i\phi} R_0 \sin(\nu) \right|^2 \tag{2.24}$$

berechnen. Dabei bezeichnen R_0 und S_0 die Amplituden der Wellen R und S vor dem Kristall und ν die Kopplung des durch diese Wellen erzeugten Gitters gemäß Gl. (2.23) mit θ als Einfallswinkel der Wellen im Kristall. Die Phasenverschiebung zwischen Licht- und Brechungsindexmuster wird durch ϕ berücksichtigt. Eine Entwicklung von Gl. (2.24) für $\psi \ll 1$ ergibt die Amplituden der ersten und der zweiten Harmonischen bezüglich ω zu

$$I^{\omega} = \frac{m I_0}{2} \psi \sin(2\nu) \cos(\phi) \tag{2.25}$$

und

$$I^{2\omega} = \frac{mI_0}{2}\left(\frac{\psi}{2}\right)^2 \sin(2\nu)\sin(\phi) \tag{2.26}$$

mit der mittleren Intensität $I_0 = c\epsilon_0(R_0^2 + S_0^2)$ und dem Modulationsgrad $m = 2R_0S_0/(R_0^2 + S_0^2)$. In $LiNbO_3$ ist der volumenphotovoltaische Effekt der maßgebliche Effekt für den Ladungstransport (vgl. Kap. 2.1), und Intensitäts- und Brechungsindexmuster sind um $\phi \approx \pi$ phasenverschoben [30]. Für den ungestörten Schreibprozeß verschwindet also die zweite Harmonische. Damit ergibt sich die Möglichkeit, die Amplitude der zweiten Harmonischen $I^{2\omega}$ als Fehlersignal in einer aktiven Phasenstabilisierung zu nutzen: Wenn Störungen einen von π verschiedenen Wert für die Phase ϕ ergeben, nimmt $I^{2\omega}$ zu. Dann muß die Phase einer der beiden Schreibwellen z. B. durch Veränderung der Weglänge solange variiert werden, bis wieder $I^{2\omega} = 0$ erfüllt ist. Gleichzeitig ergibt sich mit $I^{\omega} = I^{\omega}(\nu)$ die Möglichkeit, die Brechungsindexamplitude zu bestimmen, da Δn proportional zu ν ist (Gl. (2.23)).

Kapitel 3

Untersuchungen zum Thermischen Fixieren in Lithiumniobat

Die holographischen Aufzeichnungsprozesse in photorefraktiven Kristallen sind reversibel. Homogene Beleuchtung verteilt die beim Schreiben kumulierten Ladungen zurück und löscht die Raumladungsfelder und Brechungsindexänderungen. Um $LiNbO_3$-Kristalle für das Wellenlängenmultiplexing einzusetzen, ist daher eine Technik erforderlich, die die aufgezeichneten Hologramme gegenüber weiterer Beleuchtung resistent macht. Das Thermische Fixieren [25, 59] ist dazu im Vergleich mit anderen Verfahren wie dem Elektrischen Fixieren [60, 61] oder dem holographischen Schreiben mit Licht kurzer Wellenlänge bei anschließendem Lesen mit Licht längerer Wellenlänge [62, 63, 64, 65, 66] besonders vielversprechend. Die hohe Curie-Temperatur von $LiNbO_3$ macht elektrisches Fixieren von Hologrammen in diesem Material unpraktikabel, da hohe externe elektrische Felder angelegt werden müssen. Die Hologramme sollen zwar mit infrarotem Licht gelesen werden, müssen aber auch z. B. gegenüber dem Tageslicht stabil sein, so daß unterschiedliche Schreib- und Lesewellenlängen das Problem der Fixierung ebenfalls nicht lösen können. Um das Thermische Fixieren für die Anwendung des Wellenlängenmultiplexings zu optimieren, müssen die dabei ablaufenden Prozesse genau verstanden werden. Daher werden in diesem Kapitel Untersuchungen zur Natur des Thermischen Fixierens in eisensowie in kupferdotierten $LiNbO_3$-Kristallen vorgestellt. Nach einem Überblick über bisher veröffentlichte Arbeiten werden im zweiten Abschnitt experimentelle Methoden zum Thermischen Fixieren makroskopischer Lichtmuster sowie verschiedene Verfahren ortsaufgelöster Absorptions- und Brechungsindexmessungen vorgestellt. Die Ergebnisse der Messungen werden mit Ergebnissen von Simulationsrechnungen verglichen, die auf der Grundlage einer Modellvorstellung des Thermischen Fixierens durchgeführt werden. Mit den in der vorliegenden Arbeit entwickelten Methoden und durchgeführten Untersuchungen wird ein umfassendes quantitatives Verständnis des Thermischen Fixierens gewonnen. Im dritten Abschnitt wird mit Untersuchungen zur Entwicklung thermisch fixierter Hologramme durch Pulslaserbeleuchtung eine neue Methode vorgestellt, die Beugungseffizienz thermisch fixierter Hologramme weiter zu steigern.

3.1 Überblick über bisherige Arbeiten

Beim Thermischen Fixieren wird der photorefraktive Kristall während des holographischen Schreibprozesses oder danach auf Temperaturen zwischen etwa 120 °C und 180 °C erhitzt. Im Vergleich zur Raumtemperatur werden Temperaturen aus diesem Intervall im folgenden als „erhöhte Temperaturen“ bezeichnet. Nach dem Schreib- und Fixierprozeß wird der Kristall auf Raumtemperatur abgekühlt und homogen beleuchtet. Dabei bildet sich ein Brechungsindexgitter aus.

Das Thermische Fixieren gelang erstmals mit $LiNbO_3$-Kristallen und wurde in diesem Kristallsystem bereits intensiv untersucht. Mittlerweile wurden in vielen anderen photorefraktiven Kristallen Hologramme thermisch fixiert, u. a. in $LiTaO_3$ [67], $Bi_{12}SiO_{20}$ [68], $KNbO_3$ [69, 70] und $BaTiO_3$ [71, 72].

3.1.1 Kompensation des Raumladungsfelds

Die während des Schreibens von Hologrammen bei erhöhten Temperaturen meßbaren Beugungswirkungsgrade fallen deutlich kleiner aus als bei Raumtemperatur. Dieses Phänomen wird darauf zurückgeführt, daß das durch lichtinduzierte Umverteilung von Elektronen generierte Raumladungsfeld teilweise kompensiert wird. Als Kompensationsmechanismen werden neben der Wanderung von Ionen oder von beweglichen Kristalldefekten auch Orientierungseffekte oder partielles Umklappen von lokalen Domänen genannt [73, 74, 75]. Zur Identifikation des Kompensationsmechanismus wurden zahlreiche Untersuchungen durchgeführt.

Staebler und Amodei führten Relaxationsmessungen des Raumladungsfelds bei Temperaturen zwischen 80 °C und 130 °C durch. Eine Arrhenius-Auftragung ergibt die thermische Aktivierungsenergie zu 1.1 eV [76]. Aus den Zeitkonstanten der Relaxation lassen sich Werte für die Leitfähigkeit berechnen, die mit direkt gemessenen Werten hervorragend übereinstimmen. Bei Temperaturen um 1000 °C weist $LiNbO_3$ eine auf bewegliche Ionen zurückzuführende Leitfähigkeit auf [77, 78]. Extrapoliert man die von Staebler und Amodei erzielten Werte für die Leitfähigkeit zu höheren Temperaturen, so ergibt sich eine erstaunlich gute Übereinstimmung mit den Literaturwerten [77, 78]. Dies läßt den Schluß zu, daß die ionische Leitfähigkeit einen entscheidenden Beitrag zum Kompensationsmechanismus beim Thermischen Fixieren leistet. Allerdings werden für 1000 °C deutlich höhere Werte für die Aktivierungsenergie zwischen 1.5 eV und 1.9 eV ermittelt, die Zweifel an dieser Aussage wecken [77, 78].

Die Existenz von Protonen in $LiNbO_3$ wurde durch eine von OH^--Streckschwingungen hervorgerufene Absorptionsbande bei 2870 nm von Smith *et al.* nachgewiesen [79]. Bollmann und Stöhr identifizierten Wasserstoff als Ursache für die Leitfähigkeit bei Temperaturen zwischen 400 °C und 1000 °C und bestimmten die Aktivierungsenergie in hervorragender Übereinstimmung mit dem Resultat von Staebler und Amodei zu 1.11 eV [80]. Eine detaillierte Untersuchung der Leitfähigkeit von $LiNbO_3$-Kristallen durch Klauer *et al.* bestätigt, daß diese durch bewegliche Protonen hervorgerufen wird. Die thermischen Aktivierungsenergien werden dabei mit (1.23 ± 0.04) eV für nominell reines bzw. (1.17 ± 0.01) eV für eisendotiertes $LiNbO_3$ angegeben [81].

Dennoch lassen sich auch andere Ursachen als die Migration von Protonen für die Kompensation des Raumladungsfelds vermuten. Williams *et al.* berichteten über eine Korrelation zwischen der Beleuchtung und der Bewegung von Siliziumionen in $LiNbO_3$-Kristallen [74]. Daraufhin wurden von Meyer *et al.* theoretische sowie experimentelle Untersuchungen an eisen- und siliziumkodotiertem $LiNbO_3$ durchgeführt [82]. Die theoretische Beschreibung ergab die Konzentration der am Prozeß des Thermischen Fixierens beteiligten Ionen, die mit den in den untersuchten Kristallen enthaltenen Silizium- bzw. Wasserstoffkonzentrationen verglichen wurden. Gravierende Abweichungen veranlaßten Meyer *et al.* zu dem Schluß, daß weder Silizium noch Wasserstoff am Fixierprozeß beteiligt sein können. Bei der theoretischen Betrachtung wurde allerdings vernachlässigt, daß die volumenphotovoltaische Stromdichte räumlich moduliert ist, wenn die Konzentration der mit Elektronen gefüllten Störstellen vom Ort abhängt, wodurch die von Meyer *et al.* gezogene Schlußfolgerung fragwürdig wird. Zudem wurde die Protonenkonzentration mit sehr großer Ungenauigkeit bestimmt [81]. Meyer *et al.* wiesen schließlich darauf hin, daß eine Ladungskompensation auch durch bewegliche Gitterfehlstellen erzielt werden kann [82].

Ein anderer Erklärungsansatz wurde durch Kovalevich *et al.* verfolgt: Lichtinduzierte Raumladungsfelder können in $LiNbO_3$ so groß werden, daß bei Temperaturen über 100 °C ein lokales Umklappen von Domänen möglich wird [75]. Die Beobachtung zunehmender plötzlicher Änderungen des Beugungswirkungsgrads am Ende des holographischen Schreibens bei erhöhten Temperaturen [82] scheint diese Vermutung zu stützen.

Vormann *et al.* zeigten, daß eine Verringerung des Protonengehalts in eisendotiertem $LiNbO_3$ das Fixieren von Hologrammen erschwert. Zudem konnten durch Fixieren eines makroskopischen Lichtmusters geringfügige Änderungen der Protonenkonzentration erzielt werden [83]. Allerdings war der Effekt zu klein für einen quantitativen Vergleich zwischen den gemessenen und den erwarteten Konzentrationsänderungen. Im Gegensatz dazu ergaben Untersuchungen an kupferdotiertem $LiNbO_3$ keine Abhängigkeit des Thermischen Fixierens vom Protonengehalt [47].

Es deutet also einiges darauf hin, daß Protonen eine entscheidende Rolle beim Thermischen Fixieren spielen. Allerdings steht ein eindeutiger Beweis für diese These gerade vor dem Hintergrund der erwähnten alternativen Kompensationsprozesse noch aus.

3.1.2 Entwickeln durch homogenes Beleuchten

Die ersten Erklärungen des Entwicklungsprozesses beim Thermischen Fixieren durch Amodei *et al.* vermitteln eine nur sehr oberflächliche Einsicht: Nach dem Thermischen Fixieren ist das ursprüngliche Elektronengitter durch ein bei Raumtemperatur „eingefrorenes“ Gitter von Kompensationsladungen neutralisiert; homogene Entwicklungsbeleuchtung verteilt die Elektronen zurück, und ein Raumladungsfeld entsteht aufgrund der modulierten Kompensationsladungsdichte. Diese erste Erklärung der Entwicklung [73] kann nicht vollständig richtig sein, da es für die Elektronen ohne elektrisches Feld und bei homogener Beleuchtung anscheinend keinen Grund gibt, sich wieder homogen zu verteilen. Im Gegenteil, jedes erzeugte Raumladungsfeld sollte durch die generierte homogene Elektronenleitfähigkeit gelöscht werden.

Im Modell von Kulikov und Stepanov [84] wird erstmals der volumenphotovoltaische Effekt als Entwicklungsmechanismus beim homogenen Beleuchten thermisch fixierter Gitter berücksichtigt: Bei Raumtemperaturhologrammen erreicht die Ladungsträgerumverteilung rasch einen stationären Zustand, da die Drift im Raumladungsfeld dem volumenphotovoltaischen Effekt und der Diffusion entgegenwirkt. Bei höheren Temperaturen wird das Raumladungsfeld jedoch kompensiert. Somit wird der Ladungstransport solange fortgesetzt, bis der Kompensationsmechanismus abbricht oder ein Mangel an leeren oder gefüllten Elektronenfängern auftritt. Folglich kann eine beträchtlich modulierte Konzentration gefüllter bzw. leerer Störstellen erzeugt werden. Selbst bei homogener Beleuchtung entsteht nun aufgrund der modulierten Störstellenkonzentration durch den volumenphotovoltaischen Effekt eine modulierte Stromdichte, die den Aufbau eines Raumladungsfelds bewirkt. Eine detailliertere Untersuchung des Entwicklungsprozesses wurde von Meyer *et al.* durchgeführt [82]. Allerdings wurde dabei nicht berücksichtigt, daß die volumenphotovoltaische Stromdichte sich ändert, wenn die Konzentration gefüllter Störstellen während des Schreibprozesses moduliert wird. Die erste umfassende theoretische Beschreibung des Thermischen Fixierens wurde von Hertel *et al.* präsentiert [85]. Auf der Grundlage eines vollständigen Satzes von Transportgleichungen konnten analytische Lösungen für die zeitliche Entwicklung des Gitters und dessen Phasenlage gewonnen werden, die von Rupp und Matull experimentell bestätigt wurden [86]. Die von Hertel *et al.* vernachlässigte thermische Anregung der Elektronen wurde von Carrascosa und Agulló-López in die Theorie aufgenommen [87]. Allerdings gibt es Hinweise, daß diese Beiträge erst bei Temperaturen über 200 °C berücksichtigt werden müssen [88]. Damit kann erklärt werden, weshalb bei Temperaturen oberhalb von 180 °C die erzielbaren Beugungswirkungsgrade thermisch fixierter Gitter abnehmen. Analytische Lösungen für die zeitliche Entwicklung der Gitter während des Schreib- sowie während des Entwicklungsprozesses für verschiedene experimentelle Konfigurationen wurden von Montemezzani *et al.* vorgestellt [69].

Obwohl durch diese theoretischen Modelle ein großer Teil der experimentellen Ergebnisse beschrieben wird, können zusätzliche, nicht berücksichtigte Effekte zu permanenten Brechungsindexänderungen beitragen. Kapphan und Breitkopf haben beispielsweise gezeigt, daß Brechungsindexänderungen bis zu einer Größe von 10^{-4} in Volumenkristallen durch Variation der Protonenkonzentration erzielt werden können [89]. Die direkte Bestätigung bleibt zu erbringen, daß die Brechungsindexänderungen thermisch fixierter Hologramme tatsächlich auf eine räumlich modulierte Störstellenkonzentration, modulierte photovoltaische Stromdichten, das daraus resultierende Raumladungsfeld und den elektrooptischen Effekt zurückzuführen sind.

3.2 Thermisches Fixieren makroskopischer Lichtmuster

3.2.1 Kristalle

Für die Untersuchungen zur Natur des Thermischen Fixierens mittels makroskopischer Lichtmuster werden eisen- sowie kupferdotierte $LiNbO_3$-Kristalle verwendet. In Tab. 3.1 sind die Abmessungen, die Gesamtkonzentration an Eisen c_{Fe} bzw. Kupfer c_{Cu} sowie der Quotient der Konzentrationen gefüllter und leerer Störstellen $c_{Fe^{2+}}/c_{Fe^{3+}}$ bzw. $c_{Cu^{+}}/c_{Cu^{2+}}$ und die Protonenkonzentration $c_{H^{+}}$ der untersuchten Kristalle zusammengestellt. Die

Bez.	Maße [mm]			c_{Fe}	c_{Cu}	$c_{Fe^{2+}}/c_{Fe^{3+}}$	$c_{Cu^{+}}/c_{Cu^{2+}}$	$c_{H^{+}}$
	a	b	c	$[10^{24}\,\mathrm{m}^{-3}]$				$[10^{24}\,\mathrm{m}^{-3}]$
666-20	4.09	0.99	5.12	71	–	0.04	–	0.6
666-21	4.14	0.99	5.10	71	–	0.04	–	0.6
T02-109	3.99	1.07	5.02	7	–	0.33	–	0.09
728-30	4.08	1.14	5.12	–	12	–	0.77	2.8
728-8	4.03	1.13	5.06	–	12	–	0 bis 0.9	–

Tabelle 3.1: *Bezeichnung, Maße, Gesamtkonzentration an Eisen c_{Fe} bzw. Kupfer c_{Cu}, der Quotient der Konzentrationen gefüllter und leerer Störstellen $c_{Fe^{2+}}/c_{Fe^{3+}}$ bzw. $c_{Cu^{+}}/c_{Cu^{2+}}$ sowie die Protonenkonzentration $c_{H^{+}}$ der mittels makroskopischer Lichtmuster untersuchten Kristalle. Der Reduktionszustand des Kristalls 728-8 wird durch Temperbehandlungen verändert, so daß sich verschiedene $c_{Cu^{+}}/c_{Cu^{2+}}$-Verhältnisse ergeben.*

Gesamtkonzentration c_{Fe} ist aus Röntgenfluoreszenz- und ESR-Untersuchungen bekannt [40, 90]. Mittels Absorptionsmessungen, die mit einem CARY 17D Spektrometer durchgeführt werden, lassen sich die Konzentrationen gefüllter Störstellen $c_{Fe^{2+}}$ und $c_{Cu^{+}}$ ermitteln. Die Konzentration $c_{Fe^{2+}}$ wird aus der Absorptionskonstanten $\alpha_{477\,\mathrm{nm}}$ für ordentlich polarisiertes Licht der Wellenlänge 477 nm bestimmt [40]. Damit ergeben sich die Konzentration $c_{Fe^{3+}} = c_{Fe} - c_{Fe^{2+}}$ sowie das Konzentrationsverhältnis $c_{Fe^{2+}}/c_{Fe^{3+}}$.

Bei kupferdotiertem $LiNbO_3$ können die Konzentrationen $c_{Cu^{+}}$ und $c_{Cu^{2+}}$ der Cu^{+}- bzw. Cu^{2+}-Ionen ebenfalls aus Absorptionsmessungen bestimmt werden. Der Übergang von Elektronen aus den Cu^{+}-Störstellen ins Leitungsband verursacht eine Absorptionsbande bei 365 nm, während die Anregung von Elektronen aus dem Cu^{2+}-Grundzustand in einen durch Kristallfeldaufspaltung entstehenden angeregten Zustand innerhalb der Bandlücke zu einer Absorptionsbande bei etwa 1040 nm führt [46]. Daraus resultieren die Gesamtkonzentration $c_{Cu} = c_{Cu^{+}} + c_{Cu^{2+}}$ sowie das Konzentrationsverhältnis $c_{Cu^{+}}/c_{Cu^{2+}}$. Dieses Verfahren zur Bestimmung der absoluten Konzentrationen wurde mit Hilfe von Röntgenfluoreszenz-Untersuchungen und Atomabsorptionsspektroskopie kalibriert [46].

3.2.2 Experimentelle Methoden

Zur Untersuchung des Thermischen Fixierens werden die Kristalle mit makroskopischen Lichtmustern beleuchtet. Als makroskopische Intensitätsverteilung sei ein Lichtmuster bezeichnet, dessen feinste Strukturen in der Größenordnung von Millimetern liegen. Die Verwendung solcher Lichtmuster ermöglicht die direkte ortsaufgelöste Detektion der Absorption im Sichtbaren bzw. im Infraroten zur Ermittlung der Konzentrationen der gefüllten Störstellen bzw. der Protonen sowie die ortsaufgelöste Messung der Brechungsindexänderungen. Zudem lassen sich makroskopische Intensitätsmuster durch abbildende Systeme mit Linsen erzeugen, so daß keine Stabilitätsprobleme wie bei der Erzeugung von Intensitätverteilungen durch Interferenz auftreten.

Schreiben mit makroskopischen Lichtmustern

Als makroskopisches Lichtmuster wird zum einen der unaufgeweitete, ordentlich polarisierte TEM_{00}-Strahl eines Ar^{+}-Lasers der Wellenlänge 514.5 nm auf den Kristall gelenkt. Das zweidimensional gaußförmige Intensitätsprofil besitzt einen Durchmesser von 2.1 mm, bezogen auf den Abstand der Punkte, an denen die Maximalintensität von $580\,\mathrm{kWm}^{-2}$ auf den Anteil $1/e^2$ abgefallen ist.

Desweiteren wird eine eindimensionale Intensitätsverteilung verwendet. Dazu wird der auf einen $1/e^2$-Durchmesser von etwa 30 mm aufgeweitete Laserstrahl mittels einer Zylinderlinse mit der Brennweite 300 mm in einer Dimension fokussiert. Eine schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus zeigt Abb. 3.1. Der Kristall wird in der Nähe der Brennebene der Zylinderlinse positioniert, so daß die Intensitätsverteilung senkrecht zur optischen Achse mit Abweichungen von weniger als 2 % annähernd homogen und parallel zur optischen Achse gaußförmig mit einer $1/e^2$-Breite w_0 zwischen 1.0 mm und 1.1 mm verläuft. Die Maximalintensität liegt zwischen $360\,\mathrm{kWm}^{-2}$ und $400\,\mathrm{kWm}^{-2}$.

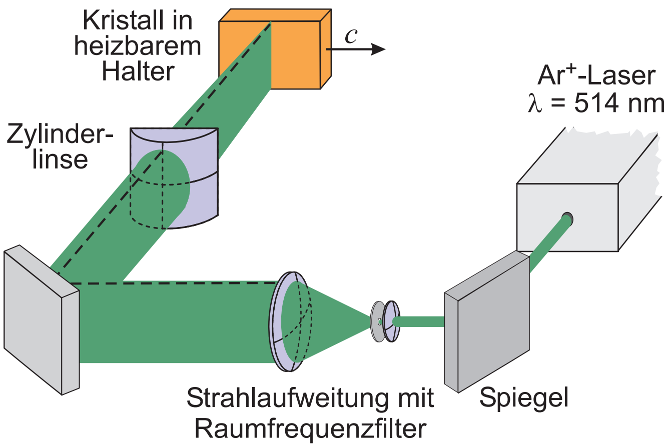


Abbildung 3.1: *Schematische Darstellung des Aufbaus zum Thermischen Fixieren mit eindimensional gaußförmigen makroskopischen Lichtmustern.*

Die Temperatur des Kristalls kann während der Beleuchtung mit dem makroskopischen Lichtmuster mittels eines elektrisch beheizten Halters auf 163 °C bei einer absoluten Genauigkeit von ± 3 °C und einer relativen Temperaturstabilität von ± 0.1 °C gehalten werden. Nach Beendigung der Beleuchtung wird der Kristall innerhalb von 30 min auf Raumtemperatur abgekühlt und anschließend mit weißem Licht einer Halogenlampe beleuchtet, bis die auftretenden Brechungsindexmuster den Sättigungszustand annehmen.

Absorptionstopographie im Sichtbaren

In eisendotiertem $LiNbO_3$ gilt zwischen der Absorptionskonstanten $\alpha_{477\,\mathrm{nm}}$ und der Konzentration $c_{\mathrm{Fe}^{2+}}$ die Proportionalität [40]

$$c_{\mathrm{Fe}^{2+}} = 2.2 \times 10^{21}\,\mathrm{m}^{-2}\,\alpha_{477\,\mathrm{nm}}\,. \tag{3.1}$$

Um sowohl für eisen- als auch für kupferdotierte $LiNbO_3$-Kristalle die Konzentration der mit Elektronen gefüllten Störstellen durch Absorptionsmessungen bei 477 nm durchführen zu können, ist eine Kalibrierung der Absorptionskonstanten kupferdotierter Kristalle bei 477 nm und bei 1040 nm nötig. Deshalb werden der Reduktionszustand des Kristalls 728-8 durch Temperbehandlungen, die die Valenzzustände der Störstellen in $LiNbO_3$ beeinflussen [59, 91], variiert und jeweils die Absorptionskonstante $\alpha_{477\,\mathrm{nm}}$ bzw. $\alpha_{1040\,\mathrm{nm}}$ gemessen. Mit $c_{\mathrm{Cu}^{2+}} = 6.8 \times 10^{22}\,\mathrm{m}^{-2}\,\alpha_{1040\,\mathrm{nm}}$ [46] läßt sich die Konzentration $c_{\mathrm{Cu}^{+}} = c_{\mathrm{Cu}} - c_{\mathrm{Cu}^{2+}}$ berechnen. Der ermittelte lineare Zusammenhang zwischen der Konzentration $c_{\mathrm{Cu}^{+}}$ und der Absorptionskonstanten $\alpha_{477\,\mathrm{nm}}$ gehorcht der Gleichung

$$c_{\mathrm{Cu}^{+}} = 2.0 \times 10^{21}\,\mathrm{m}^{-2}\,\alpha_{477\,\mathrm{nm}}\,. \tag{3.2}$$

Der so gewonnene Proportionalitätsfaktor läßt sich auch aus den durch Krätzig und Orlowski gemessenen Absorptionsspektren [46] mit einem Abweichung von 20 % herleiten.

Die ortsaufgelösten Messungen der Absorption bei 477 nm werden mit dem in Abb. 3.2 schematisch dargestellten Aufbau durchgeführt. Der raumfrequenzgefilterte, ordentlich polarisierte Strahl eines Ar^{+}-Lasers der Wellenlänge 477 nm wird auf eine Gesamtleistung von ca. 3 μW abgeschwächt und mittels einer Linse der Brennweite 300 mm auf einen Durchmesser von ca. 70 μm fokussiert. Durch den Fokus wird der Kristall entlang

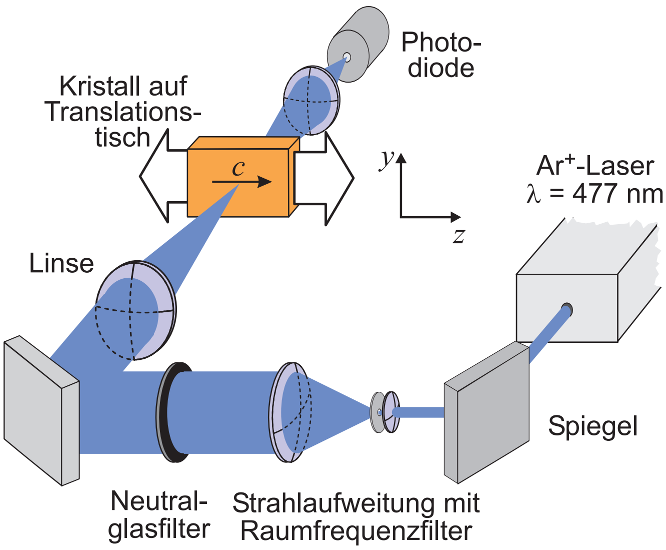


Abbildung 3.2: *Schematische Darstellung des Aufbaus zur Absorptionstopographie thermisch fixierter makroskopischer Absorptionsmuster im Sichtbaren.*

der zur optischen Achse parallel verlaufenden z-Richtung verschoben. Aus der mit einer Si-Photodiode gemessenen transmittierten Leistung wird die Absorptionskonstante $\alpha_{477\,\mathrm{nm}}(z)$ unter Berücksichtigung der Reflexionsverluste an den Kristalloberflächen berechnet. Die Ortsauflösung dieses Verfahrens ist besser als $70\,\mu$m bei einer Meßgenauigkeit von $\pm\,3\,\mathrm{m}^{-1}$.

Absorptionstopographie im Infraroten

In $LiNbO_3$-Kristallen enthaltener Wasserstoff verursacht aufgrund von OH^--Streckschwingungen eine ausgeprägte Absorptionsbande bei 2870 nm [79]. Eine Kalibrierung der Absorption im Infraroten zur Berechnung der Protonenkonzentration $c_{\mathrm{H}^+} = c_{\mathrm{OH}^-}$ läßt sich mittels der sehr genau bekannten Protonenkonzentration in protonenausgetauschten $LiNbO_3$-Wellenleitern vornehmen. Zwar verschiebt sich die Absorptionsbande im Vergleich zu protonenausgetauschten Wellenleitern um etwa 20 nm, aber die spektrale Breite und die Höhe der Absorptionsbande bleiben erhalten, so daß der für die Wellenleiter ermittelte Proportionalitätsfaktor auch für Volumenkristalle gültig ist [89] und die Protonenkonzentration c_{H^+} in Volumenkristallen aus der Absorptionskonstanten $\alpha_{2870\,\mathrm{nm}}$ gemäß

$$c_{\mathrm{H}^+} = 1.67 \times 10^{22}\,\mathrm{m}^{-2}\;\alpha_{2870\,\mathrm{nm}} \tag{3.3}$$

ermittelt werden kann.

Für die Absorptionsmessungen im Infraroten kommt ein Fourierspektrometer (Bruker HR120) zum Einsatz. Der Kristall wird hinter einer quadratischen Blende der Apertur $300 \times 300\,\mu\mathrm{m}^2$ oder einem Schlitz der Breite $110\,\mu$m entlang der z-Richtung parallel zur optischen Achse verschoben. Reflexionsverluste werden dadurch berücksichtigt, daß die Höhe der Absorptionsbande bei 2870 nm im Vergleich zum Untergrund ermittelt wird. Mit diesem Verfahren läßt sich die Absorptionskonstante $\alpha_{2870\,\mathrm{nm}}(z)$ mit einer Ortsauflösung von $110\,\mu$m bei einer Meßgenauigkeit von $\pm\,0.5\,\mathrm{m}^{-1}$ messen. Alle Absorptionsuntersuchungen im Infraroten werden an der Universität Osnabrück in der Arbeitgruppe *Optische Spektroskopie* unter der Leitung von Prof. Dr. S. Kapphan durchgeführt.

Brechungsindextopographie

Die ortsaufgelösten Messungen der Brechungsindexänderung werden mit einem Mach-Zehnder-Interferometer durchgeführt. Eine schematische Darstellung des verwendeten Aufbaus gibt Abb. 3.3 wieder. Der Strahl eines He-Ne-Lasers der Wellenlänge 633 nm passiert eine Halbwellenplatte zur Einstellung der Polarisation, wird aufgeweitet sowie raumfrequenzgefiltert und gelangt über den separierenden Strahlteilerwürfel in das Mach-Zehnder-Interferometer. In einem Arm des Interferometers ist die Probe positioniert. Die Rückseite der Probe wird mit einer Linse in die beiden Bildebenen hinter dem kombinierenden Strahlteilerwürfel abgebildet. Eine zweite Linse im anderen Arm des Interferometers erzeugt die passende Referenzwelle, so daß die Interferenz der beiden Wellen homogene Intensitätsverteilungen in den Bildebenen ergibt, falls die Brechungsindexverteilung in der

Probe homogen ist. Interferenzstreifen in den Bildebenen aufgrund keilförmiger Proben lassen sich durch Nachjustage der Linsen kompensieren. Einer der Spiegel des Interferometers ist auf einem Piezotranslationstisch montiert, so daß die Interferometerphase ϕ_0 variiert werden kann.

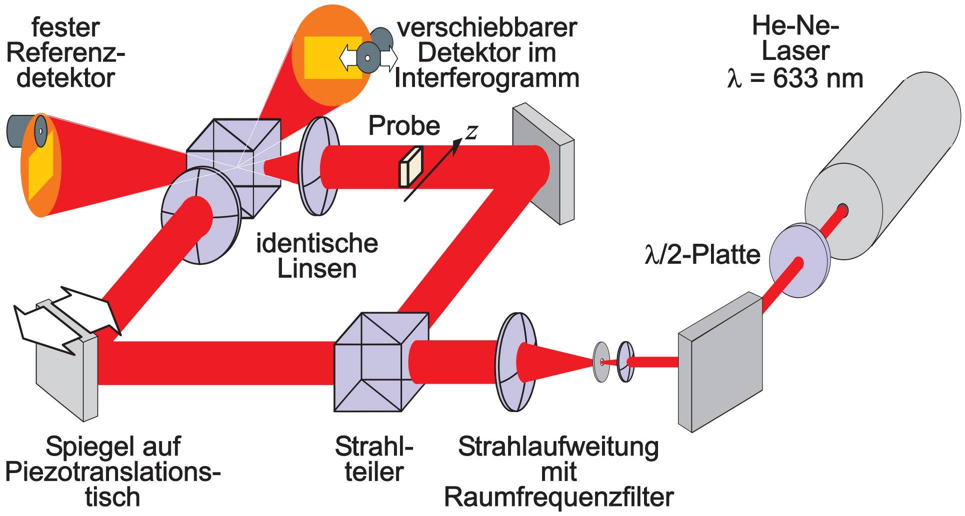


Abbildung 3.3: *Schematische Darstellung des Aufbaus zur ortsaufgelösten Messung der Brechungsindexänderungen, die in $LiNbO_3$-Kristallen durch Beleuchtung mit makroskopischen Lichtmustern bei erhöhten Temperaturen erzeugt werden.*

Brechungsindexinhomogenitäten in der Probe erzeugen eine lateral modulierte Phasendifferenz zwischen Proben- und Referenzwelle, die räumlich inhomogene Intensitätsverteilungen in den Bildebenen zur Folge hat. Zwei Si-Photodioden mit Aperturen zwischen 30 μm und 200 μm nehmen die Intensitäten in den beiden Bildebenen auf: Die Referenzintensität I_r wird mit einem ortsfesten Detektor in einer Bildebene außerhalb des Probenbilds aufgenommen. Ein durch einen Translationstisch verschiebbarer Detektor rastert die Intensitätverteilung $I_s(Z)$ entlang der Ortskoordinate Z in der anderen Bildebene ab. Während die Interferometerphase ϕ_0 per Piezotranslation in 50 Schritten von jeweils 0.25 rad geschoben wird, wird an jedem Ort Z die Intensität $I_s(\phi_0, Z)$ sowie gleichzeitig die Referenzintensität $I_r(\phi_0)$ aufgenommen. Die aufgenommenen Intensitäten sind sinusförmig moduliert. Anpassungen der Gleichungen $I_s(\phi_0, Z) = \hat{I}_s \sin[\phi_0 + \phi_s(Z)]$ und $I_r(\phi_0) = \hat{I}_r \sin[\phi_0 + \phi_r]$ liefern die durch die Probe hervorgerufene Phasenverteilung $\Delta\phi(Z) = \phi_s(Z) - \phi_r$. Aufgrund der Periodizität der Intensitäten $I_s(\phi_0, Z)$ und $I_r(\phi_0)$ können Sprünge im Verlauf von $\Delta\phi(z)$ auftreten, die durch geeignete Addition von Vielfachen von $\pm 2\pi$ korrigiert werden. Mit dem Vergrößerungsfaktor Z/z der Linsen wird die Phasenverteilung $\Delta\phi(z)$ in Abhängigkeit der Ortskoordinate z auf der Rückseite der Probe berechnet.

Der Einsatz des Referenzdetektors und die Bestimmung der Phasendifferenz bewirken, daß die Messung der Phasenänderung $\Delta\phi(z)$ unabhängig von der Interferometerphase ϕ_0 ist und deshalb Störungen wie das langsame mechanische Kriechen optischer Komponenten keinen Einfluß haben. Damit sind auch große Meßzeiten von 30 min bis 8 h – je nach verwendeter räumlicher Auflösung – für die Aufnahme eines Phasenprofils möglich.

Aus der Phasenverteilung $\Delta\phi(z)$ läßt sich das Brechungsindexprofil $\Delta n(z)$ unter Verwendung der Probendicke d und der Wellenlänge λ zu

$$\Delta n(z) = \frac{\lambda}{2\pi d}\Delta\phi(z) \tag{3.4}$$

berechnen.

Die detektierbare minimale Phasenänderung, die maximalen Phasengradienten und die räumliche Auflösung begrenzen die Einsatzfähigkeit dieser interferometrischen Brechungsindextopographie. Ohne Brechungsindexänderungen ist die Variation der gemessenen Phasenwerte kleiner als 0.03 rad. Dies entspricht einer minimal detektierbaren Brechungsindexänderung von 3×10^{-6} bei einer 1 mm dicken Probe. Die detektierbaren Phasengradienten besitzen eine obere Schranke. Die Phasendifferenz zwischen zwei benachbarten Positionen z muß kleiner als 2π sein, da sonst keine eindeutige Verstetigung des Phasenmusters mehr möglich ist. Unter Berücksichtigung der Vergrößerung durch die Linsen wird ein detektierbarer maximaler Gradient von $1\,\mathrm{rad}\,\mu\mathrm{m}^{-1}$, entsprechend einem Brechungsindexgradienten von $10^{-4}\,\mu\mathrm{m}^{-1}$ für $d = 1\,\mathrm{mm}$, erreicht. Aufgrund der Abbildung durch die Linsen und der Apertur des Signaldetektors liegt die räumliche Auflösung des Meßsystems zwischen $4\,\mu$m und $25\,\mu$m.

3.2.3 Experimentelle Ergebnisse

In Tab. 3.2 sind die Temperatur T_w, die $1/e^2$-Breite der Lichtmuster w_0, die Maximalintensität I_0 und die Beleuchtungsdauer t_w für die mit ein- bzw. zweidimensional gaußförmigen Intensitätsverteilungen beleuchteten Kristalle zusammengestellt. Alle Kristalle werden jeweils so positioniert, daß sie durch die Lichtmuster annähernd symmetrisch ausgeleuchtet werden. Der Kristall 666-20 wird während der Beleuchtung nicht beheizt, seine Temperatur steigt allerdings aufgrund der Lichtabsorption auf etwa 40 °C an.

Bez.	T_w [°C]	w_0 [mm] 1-dim.	w_0 [mm] 2-dim.	I_0 [kW m^{-2}]	t_w [h]
666-20	40	–	2.1	580	315
666-21	163	–	2.1	580	311
T02-109	163	1.0	–	400	89
728-30	163	1.1	–	360	47

Tabelle 3.2: *Bezeichnung, Temperatur T_w, $1/e^2$-Breite der Lichtmuster w_0, Maximalintensität I_0 und Beleuchtungsdauer t_w der mit ein- bzw. zweidimensional gaußförmigen Intensitätsverteilungen beleuchteten Kristalle.*

Während der Beleuchtung der eisendotierten Kristalle 666-20 und 666-21 mit dem unaufgeweiteten Laserstrahl zeigt sich eine periodisch wiederholende Variation des Streulichts hinter der Probe: Einer langsamen Bewegung des Speckle-Musters in eine Richtung folgt ein abruptes Zurückspringen in den Ausgangszustand. Während die Frequenz dieser

Speckle-Bewegung beim unbeheizten Kristall 666-20 während der gesamten Beleuchtungszeit etwa 4 Hz beträgt, ist dieser Effekt beim auf 163 °C temperierten Kristall 666-21 nur in den ersten Minuten mit einer Frequenz von etwa 1 Hz zu beobachten.

Absorptionstopographie

Ein Photo des Kristalls 666-21 nach dem Beleuchten zeigt Abb. 3.4. Die darin eingezeichnete Richtung der c-Achse ist mittels des pyroelektrischen Effekts bestimmt worden. Bei Erwärmung der Probe sammeln sich aufgrund der Änderung der Spontanpolarisierung auf den Flächen senkrecht zur c-Achse Ladungen an. Die c-Achse weist dann von der positiv zur negativ geladenen Fläche [92]. Der vor der Beleuchtung homogen gefärbte Kristall zeigt eine deutliche Verfärbung. Im beleuchteten Bereich ist die Probe stark ausgebleicht, während auf der Seite der $+c$-Richtung ein sichelförmiger dunkler Bereich entstanden ist. Dagegen weist der in Abb. 3.5 dargestellte Kristall 666-20 nach der Beleuchtung statt einer Verfärbung eine Vielzahl von Sprüngen auf.

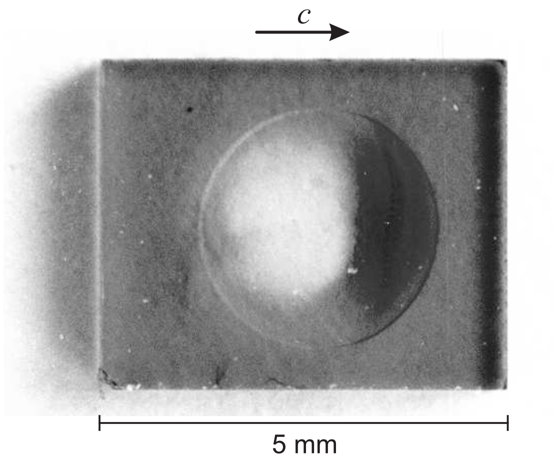


Abbildung 3.4: *$LiNbO_3$-Kristall 666-21 nach 311 h Beleuchtung mit einem unaufgeweiteten Laserstrahl (Maximalintensität 580 kWm^{-2}, 1/e^2-Durchmesser 2.1 mm) bei der Temperatur 163 °C. Die c-Achse des Kristalls verläuft von links nach rechts.*

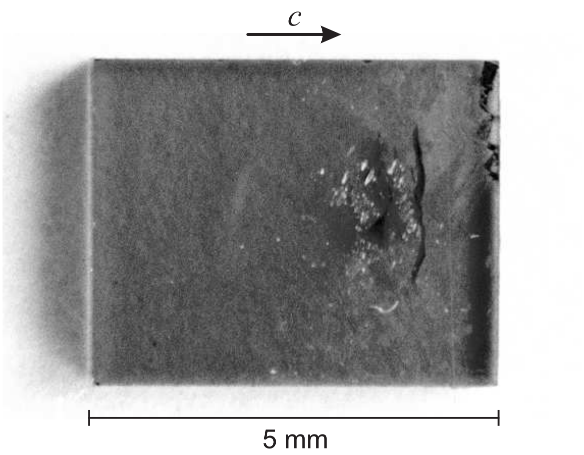


Abbildung 3.5: *$LiNbO_3$-Kristall 666-20 nach 315 h Beleuchtung mit einem unaufgeweiteten Laserstrahl (Maximalintensität 580 kWm^{-2}, 1/e^2-Durchmesser 2.1 mm) bei der Temperatur 40 °C. Die c-Achse des Kristalls verläuft von links nach rechts.*

Mittels der im vorigen Abschnitt vorgestellten Absorptionstopographie werden Absorptionsprofile des verfärbten Kristalls 666-21 entlang der Symmetrieachse des Farbmusters parallel zur optischen Achse bei den Wellenlängen 477 nm und 2870 nm gemessen. Der Ursprung der Ortskoordinate z wird in die Kristallmitte gelegt.

Die Absorptionskonstante im Sichtbaren, $\alpha_{477\,\mathrm{nm}}$, ist in Abb. 3.6 über dem Ort z aufgetragen. Das breite Minimum korrespondiert mit der ausgebleichten Region (vgl. Abb. 3.4), während der Bereich ausgeprägter Maxima die dunkle Verfärbung widerspiegelt. Das Absorptionsprofil im Infraroten $\alpha_{2870\,\mathrm{nm}}$ wird mit der quadratischen Blende (Apertur $300 \times 300\,\mu\mathrm{m}^2$) aufgenommen und ist in Abb. 3.7 dargestellt.

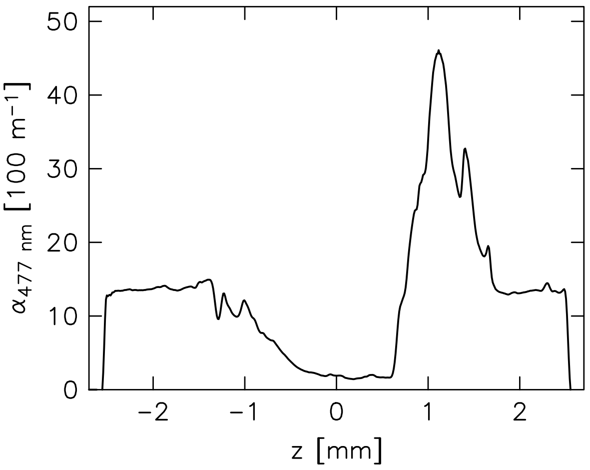


Abbildung 3.6: *Absorptionskonstante im Sichtbaren, $\alpha_{477\,\mathrm{nm}}$, in Abhängigkeit vom Ort z entlang der optischen Achse für den eisendotierten Kristall 666-21 nach dem Thermischen Fixieren.*

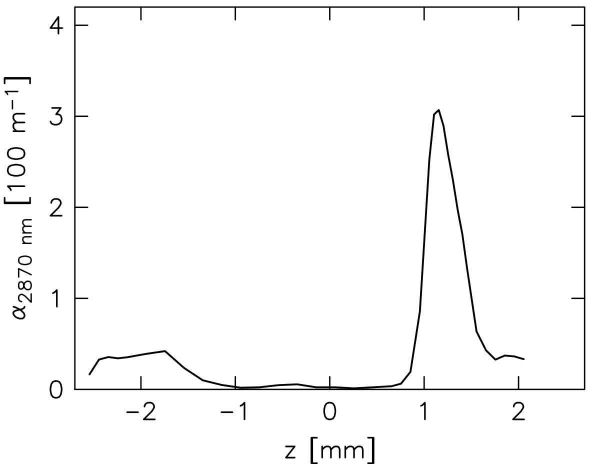


Abbildung 3.7: *Absorptionskonstante im Infraroten, $\alpha_{2870\,\mathrm{nm}}$, in Abhängigkeit vom Ort z entlang der optischen Achse für den eisendotierten Kristall 666-21 nach dem Thermischen Fixieren.*

Die eisen- bzw. kupferdotierten Kristalle T02-109 und 728-30 werden mit eindimensionalen Intensitätsmustern beleuchtet. Die Abb. 3.8 und 3.9 zeigen Photos der Kristalle nach dem Beleuchten. Beide Kristalle weisen ähnliche Verfärbungen auf: Es tritt jeweils ein senkrecht zur c-Achse orientierter homogen heller Streifen auf der linken Seite ($-c$-Richtung) und ein dazu paralleler dunkler Streifen auf der rechten Seite ($+c$-Richtung) auf.

Die Absorptionsprofile im Sichtbaren wie im Infraroten sind bei diesen Kristallen nicht mehr von der Ortskoordinate senkrecht zur optischen Achse abhängig. Sie sind für den eisendotierten Kristall T02-109 in den Abb. 3.10 und 3.12 sowie für den kupferdotierten Kristall 728-30 in den Abb. 3.11 und 3.13 dargestellt.

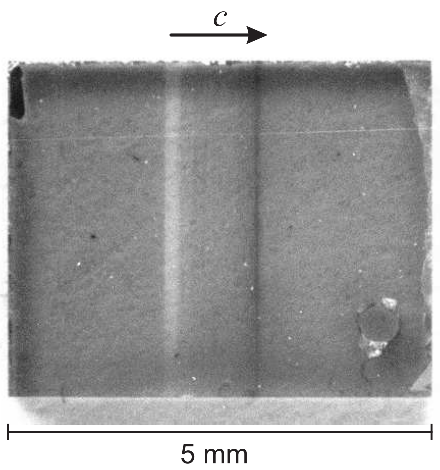


Abbildung 3.8: *$LiNbO_3$-Kristall T02-109 nach 89 h Beleuchtung mit einem eindimensional gaußförmigen Lichtmuster (Maximalintensität 400 kWm^{-2}, 1/e^2-Breite 1.0 mm) bei einer Temperatur von 163 °C. Die c-Achse des Kristalls verläuft von links nach rechts. Der Kristall besitzt in der unteren rechten Ecke ein Loch.*

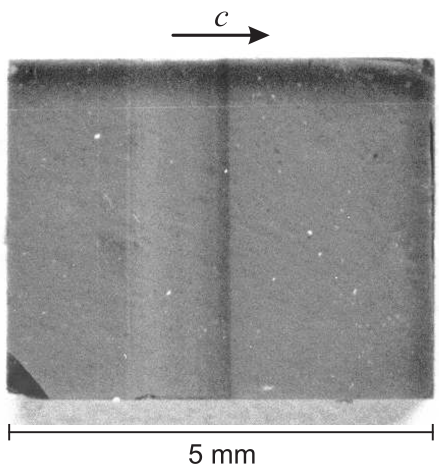


Abbildung 3.9: *$LiNbO_3$-Kristall 728-30 nach 47 h Beleuchtung mit einem eindimensional gaußförmigen Lichtmuster (Maximalintensität 360 kWm^{-2}, 1/e^2-Breite 1.1 mm) bei einer Temperatur von 163 °C. Die c-Achse des Kristalls verläuft von links nach rechts.*

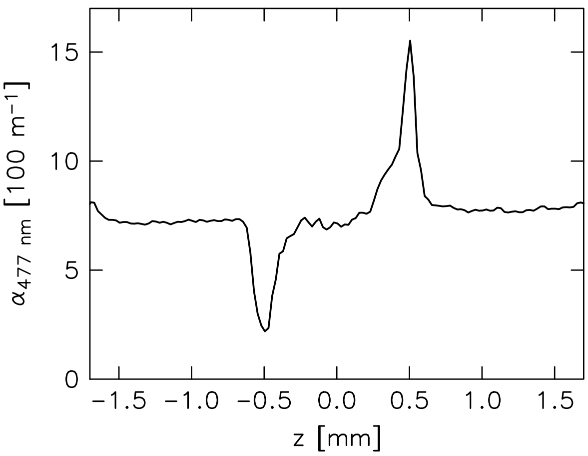


Abbildung 3.10: *Absorptionskonstante im Sichtbaren, $\alpha_{477\,\mathrm{nm}}$, in Abhängigkeit vom Ort z entlang der optischen Achse für den eisendotierten Kristall T02-109 nach dem Thermischen Fixieren.*

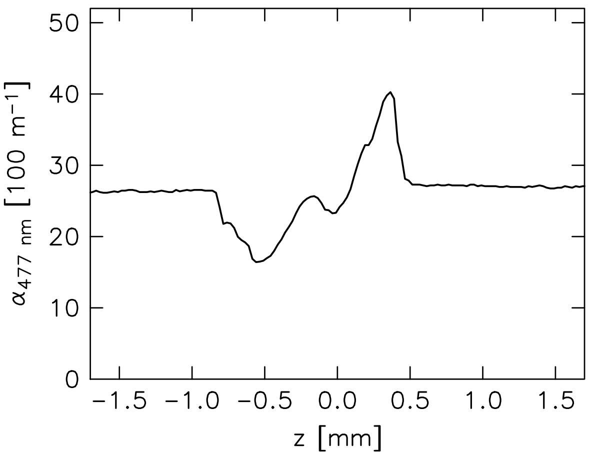


Abbildung 3.11: *Absorptionskonstante im Sichtbaren, $\alpha_{477\,\mathrm{nm}}$, in Abhängigkeit vom Ort z entlang der optischen Achse für den kupferdotierten Kristall 728-30 nach dem Thermischen Fixieren.*

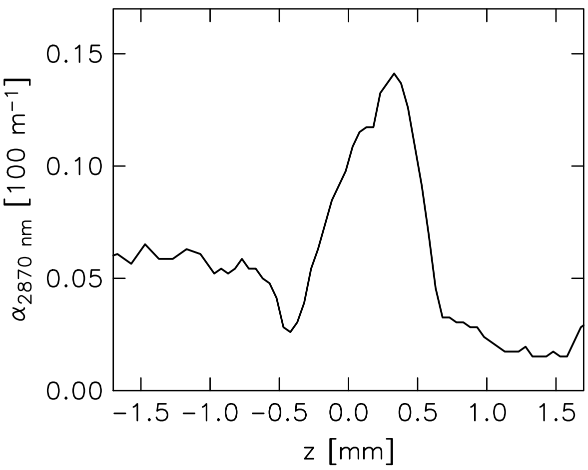


Abbildung 3.12: *Absorptionskonstante im Infraroten, $\alpha_{2870\,\mathrm{nm}}$, in Abhängigkeit vom Ort z entlang der optischen Achse für den eisendotierten Kristall T02-109 nach dem Thermischen Fixieren, gemessen mit einer 110 μm breiten Schlitzblende.*

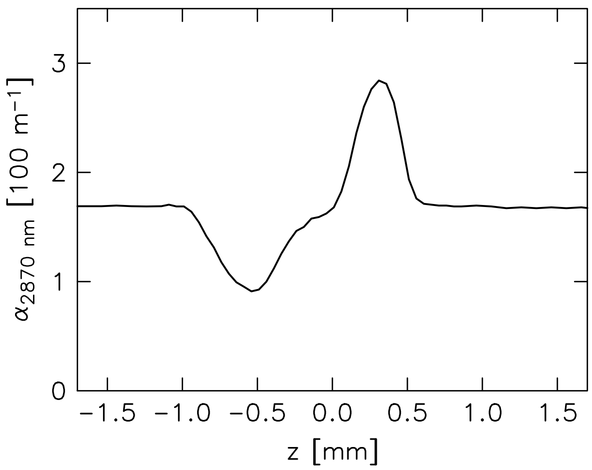


Abbildung 3.13: *Absorptionskonstante im Infraroten, $\alpha_{2870\,\mathrm{nm}}$, in Abhängigkeit vom Ort z entlang der optischen Achse für den kupferdotierten Kristall 728-30 nach dem Thermischen Fixieren, gemessen mit einer 110 μm breiten Schlitzblende.*

Brechungsindextopographie

Jeweils vor und nach dem Entwickeln mit homogenem Weißlicht bis zur Sättigung werden Brechungsindextopogramme der Kristalle entlang der c-Achse aufgenommen. Eine Subtraktion liefert die durch das Entwickeln auftretenden Brechungsindexänderungen, so daß Einflüsse gekrümmter Oberflächen und andere stationäre Störungen wie Kratzer etc. eliminiert werden.

Für den eisendotierten Kristall 666-21 ist das mit außerordentlich polarisiertem Licht aufgenommene Profil der Brechungsindexänderung in Abb. 3.14 dargestellt. Es werden Brechungsindexänderungen bis zu 10^{-4} detektiert, allerdings ist die Messung selbst in den Randbereichen des Kristalls, die während des Thermischen Fixierens unbeleuchtet geblieben sind, stark verrauscht. Mit ordentlich polarisiertem Testlicht gemessene Profile weisen keine makroskopische Struktur oberhalb des Rauschens auf.

Die ortsaufgelöste Brechungsindexänderung des kupferdotierten Kristalls 728-30 nach der Entwicklung, gemessen mit ordentlich polarisiertem Licht, zeigt Abb. 3.15. Die Messung mit außerordentlich polarisiertem Licht läßt sich wegen zu großer Gradienten der Brechungsindexänderung nicht mehr eindeutig verstetigen.

Die Profile der Brechungsindexänderungen des eisendotierten Kristalls T02-109 für ordentlich wie für außerordentlich polarisiertes Licht sind in den Abb. 3.16 und 3.17 dargestellt und zeigen ausgeprägtere Verläufe mit lokalen Maxima der Halbwertsbreite von etwa 0.1 mm, die im Bereich des ausgebleichten Streifens liegen.

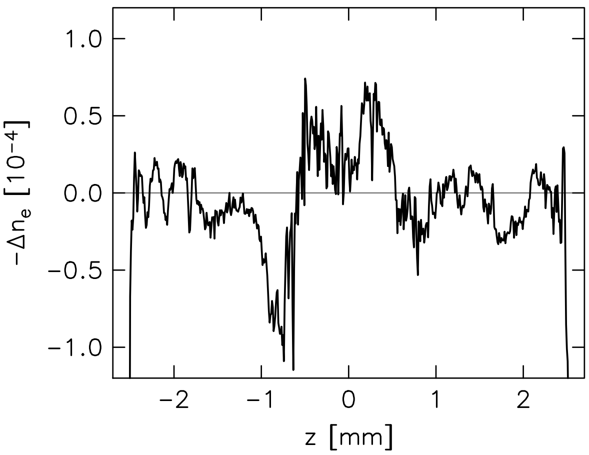


Abbildung 3.14: *Änderung des Brechungsindexes Δn_e in Abhängigkeit vom Ort z durch Entwicklung des thermisch fixierten Musters im Kristall 666-21 für außerordentlich polarisiertes Licht.*

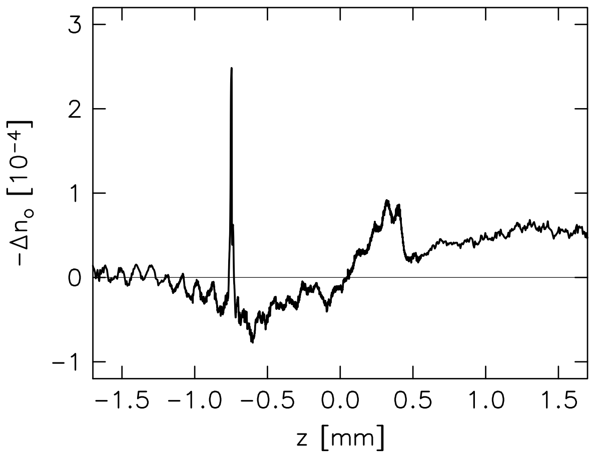


Abbildung 3.15: *Änderung des Brechungsindexes Δn_o in Abhängigkeit vom Ort z durch Entwicklung des thermisch fixierten Musters im Kristall 728-30 für ordentlich polarisiertes Licht.*

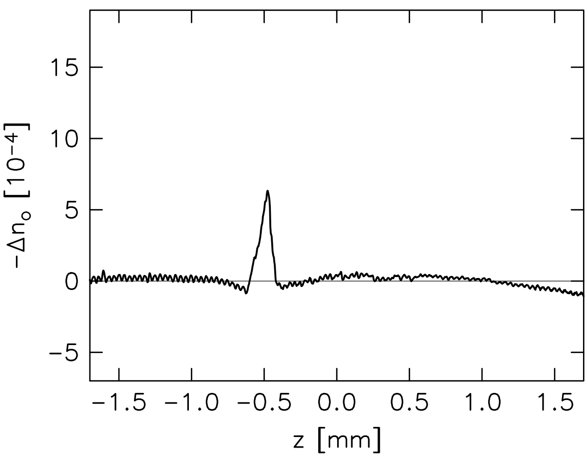


Abbildung 3.16: *Änderung des Brechungsindexes Δn_o in Abhängigkeit vom Ort z durch Entwicklung des thermisch fixierten Musters im Kristall T02-109 für ordentlich polarisiertes Licht.*

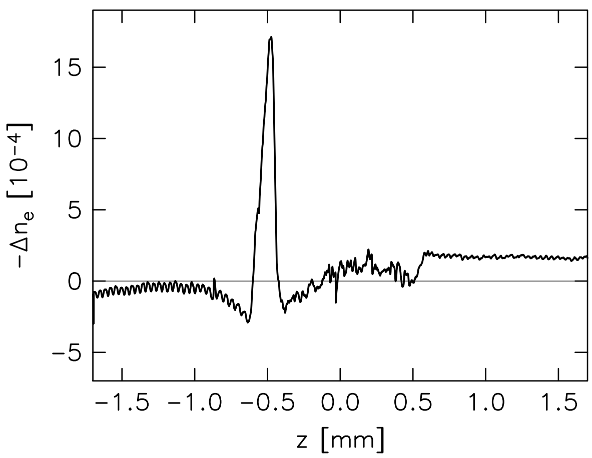


Abbildung 3.17: *Änderung des Brechungsindexes Δn_e in Abhängigkeit vom Ort z durch Entwicklung des thermisch fixierten Musters im Kristall T02-109 für außerordentlich polarisiertes Licht.*

3.2.4 Simulationsrechnungen

Das im ersten Abschnitt dieses Kapitels aufgeführte Modell der ionischen Raumladungsfeldkompensation während des Schreibens bei erhöhten Temperaturen sowie der Entwicklung der Brechungsindexänderungen durch homogene Beleuchtung aufgrund einer modulierten Konzentration der mit Elektronen gefüllten Störstellen soll überprüft werden. Dazu werden Simulationsrechnungen für den Schreib- sowie den Entwicklungsprozeß durchgeführt. Die Grundlagen der Simulationsrechnungen sowie der verwendete Algorithmus und die benutzten Materialparameter werden im folgenden zusammengestellt, während die Ergebnisse der Rechnungen im Zusammenhang mit der Diskussion der experimentell erzielten Ergebnisse im Abschnitt 3.2.5 präsentiert werden.

Theoretische Grundlagen

Alle Gleichungen werden eindimensional angesetzt, da nur Variationen der betrachteten physikalischen Größen entlang der z-Richtung parallel zur optischen Achse des Kristalls von Interesse sind. Bei vektoriellen Größen wird daher nur die z-Komponente berücksichtigt, während bei tensoriellen Größen die entsprechenden Tensorelemente Verwendung finden.

Die Ratengleichung für die Dichte der Elektronen im Leitungsband aufgrund von Absorption und Rekombination lautet

$$\frac{\mathrm{d}c_{\mathrm{D}^-}}{\mathrm{d}t} = -qSIc_{\mathrm{D}^-} + r(c_{\mathrm{D}} - c_{\mathrm{D}^-})n_{\mathrm{e}} \,. \tag{3.5}$$

Dabei bezeichnen c_{D} die Gesamtkonzentration der am Ladungstransport beteiligten Störstellen, z. B. c_{Fe} oder c_{Cu}, und c_{D^-} die Konzentration mit Elektronen gefüllter Störstellen, z. B. $c_{\mathrm{Fe}^{2+}}$ oder c_{Cu^+}. Der Quantenwirkungsgrad für die Anregung eines Elektrons aus einer gefüllten Störstelle ins Leitungsband q sowie der Absorptionswirkungsquerschnitt S verursachen bei Beleuchtung mit Licht der Intensität I eine Abnahme der Konzentration gefüllter Störstellen c_{D^-}, während die Zunahme proportional zum Rekombinationskoeffizienten r und zur Dichte der Elektronen im Leitungsband n_{e} verläuft. Thermische Anregung wird nicht berücksichtigt [88]. Die durch Migration von Elektronen verursachte Stromdichte j_{e} wurde bereits im Kap. 2.1.1 eingeführt. In eindimensionaler Beschreibung lautet sie unter Berücksichtigung von Drift, Diffusion und volumenphotovoltaischem Effekt

$$j_{\mathrm{e}} = e\mu_{\mathrm{e}}n_{\mathrm{e}}E_{\mathrm{sc}} + c_{\mathrm{D}^-}\beta^\star I + k_{\mathrm{B}}T\mu_{\mathrm{e}}\frac{\partial n_{\mathrm{e}}}{\partial z} \,. \tag{3.6}$$

Da die volumenphotovoltaische Stromdichte in $\mathrm{LiNbO_3}$ proportional zur Konzentration gefüllter Störstellen ist [43], wird der volumenphotovoltaische Koeffizient $\beta^\star = \beta_{31}/(c\epsilon_0 c_{\mathrm{D}^-})$ eingeführt. Analog zu Gl. (3.6) berechnet sich die durch die Bewegung von Ionen hervorgerufene Stromdichte j_{i} zu

$$j_{\mathrm{i}} = e\mu_{\mathrm{i}}c_{\mathrm{i}}E_{\mathrm{sc}} - k_{\mathrm{B}}T\mu_{\mathrm{i}}\frac{\partial c_{\mathrm{i}}}{\partial z} \,. \tag{3.7}$$

Der volumenphotovoltaische Effekt tritt bei den Ionen nicht auf. Die Beweglichkeit und die Konzentration der Ionen im Kristall werden mit μ_i bzw. c_i bezeichnet. Es gelten sowohl das Prinzip der Ladungserhaltung als auch die Kontinuitätsgleichung für die Elektronen gemäß

$$\rho_e = -e(n_e + c_{D^-} - c_{D^-,0}) \quad \text{und} \quad \frac{\mathrm{d}j_e}{\mathrm{d}z} + \frac{\mathrm{d}\rho_e}{\mathrm{d}t} = 0 \tag{3.8}$$

sowie für die Ionen gemäß

$$\rho_i = +e(c_i - c_{i,0}) \quad \text{und} \quad \frac{\mathrm{d}j_i}{\mathrm{d}z} + \frac{\mathrm{d}\rho_i}{\mathrm{d}t} = 0 \tag{3.9}$$

mit den Ladungsdichten ρ_e und ρ_i. Diese enthalten die mittlere Konzentration der gefüllten Störstellen $c_{D^-,0}$ bzw. die mittlere Ionendichte $c_{i,0}$, damit ohne Ladungsumverteilung die Ladungsneutralität im Kristall gewährleistet ist. Schließlich gilt die Poissongleichung

$$\frac{\mathrm{d}E_{sc}}{\mathrm{d}z} = (\rho_e + \rho_i)(\epsilon\epsilon_0)^{-1}\,. \tag{3.10}$$

Mit der adiabatischen Näherung $\mathrm{d}n_e/\mathrm{d}t \approx 0$ [93] läßt sich die Dichte der Elektronen mittels der Gleichungen (3.5) und (3.8) zu

$$n_e = \frac{1}{er(c_D - c_{D^-})}\frac{\mathrm{d}j_e}{\mathrm{d}z} + \frac{qSI}{r}\frac{c_{D^-}}{c_D - c_{D^-}} \tag{3.11}$$

berechnen.

Algorithmus und Materialparameter

Zur Lösung der im vorhergehenden Abschnitt vorgestellten Gleichungen im Ortsraum wird der Kristall in 1024 Sektionen entlang der z-Koordinate eingeteilt. Diese Unterteilung gilt für alle ortsabhängigen Größen, d. h. für $c_{D^-}(z)$, $c_i(z)$, $I(z)$, $n_e(z)$, $j_e(z)$, $j_i(z)$ und $E_{sc}(z)$. Für die numerische Berechnung werden zunächst die Startwerte festgelegt.
Zur *Simulation des Schreibprozesses* werden im stationären Zustand vor der Beleuchtung homogene Elektronen- und Ionendichten angesetzt, d. h. $c_{D^-}(z) = c_{D^-,0}$ und $c_i(z) = c_{i,0}$. Anschließend wird mit einer vorgegebenen Intensitätsverteilung $I(z)$ gerechnet.
Dagegen werden bei der *Simulation des Entwicklungsprozesses* die experimentell ermittelten Konzentrationsverteilungen $c_{D^-}(z)$ und $c_i(z)$ sowie eine homogene Intensitätsverteilung genutzt. Dabei wird die vollständige Kompensation der Elektronenverteilung durch das Ionenmuster, also $\Delta c_{D^-}(z) = c_{D^-}(z) - c_{D^-,0} = \Delta c_i(z) = c_i(z) - c_{i,0}$ vorausgesetzt.
Für beide Prozesse wird der folgende Algorithmus bei vorher festgelegtem Zeitintervall $\mathrm{d}t$ verwendet:

1. Mittels der Gleichungen (3.6), (3.7) und (3.11) werden die Stromdichten $j_e(z)$ und $j_i(z)$ berechnet.

2. Die während der Zeit dt fließenden Ströme ändern die Elektronen- und Ionenladungsdichten $c_{\mathrm{D}^-}(z)$ und $c_{\mathrm{i}}(z)$, die mittels der Gleichungen (3.8) und (3.9) berechnet werden.

3. Das sich aus der Ladungsumverteilung ergebende Raumladungsfeld E_{sc} wird mittels Gl. (3.10) berechnet.

Anschließend wird der Algorithmus wiederholt. Das Zeitintervall dt muß so klein gewählt werden, daß die Ergebnisse der Simulationsrechnungen unabhängig von einer weiteren Verkleinerung werden.
Ein Pentium-PC benötigt für die Simulation eines 50-stündigen Schreibexperiments mit einem makroskopischen Lichtmuster etwa 8 h Rechenzeit. Bei Raumtemperatur sind die Ionen annähernd unbeweglich, so daß der Sättigungszustand beim Entwicklungsprozeß nach der dielektrischen Relaxationszeit $\tau_{\mathrm{sc}} = \epsilon\epsilon_0/\sigma_{\mathrm{ph}}$ mit der Photoleitfähigkeit σ_{ph} erreicht wird. Da τ_{sc} klein gegenüber den Schreibzeiten ist, kann die Entwicklung innerhalb weniger Minuten simuliert werden.

Für $LiNbO_3$ ist eine Vielzahl der für die Simulation benötigten Materialparameter hinreichend genau bekannt. Die Werte der Gesamtstörstellenkonzentration c_{D} für die Kristalle T02-109 (c_{Fe}) und 728-30 (c_{Cu}) sind in Tab. 3.1 angegeben. Mit den ebenfalls darin enthaltenen Konzentrationsquotienten $c_{\mathrm{Fe}^{2+}}/c_{\mathrm{Fe}^{3+}}$ und $c_{\mathrm{Cu}^{+}}/c_{\mathrm{Cu}^{2+}}$ läßt sich die räumlich gemittelte Konzentration der mit Elektronen gefüllten Störstellen c_{D^-}, d. h. $c_{\mathrm{Fe}^{2+}}$ bzw. $c_{\mathrm{Cu}^{+}}$, ermitteln. Die Werte dieser Konzentrationen sind für die Kristalle T02-109 und 728-30 in Tab. 3.3 angegeben.

Da die Werte für die Konzentration c_{D^-} in beiden Fällen sehr groß ist, wird der erste Term der rechten Seite von Gl. (3.11) gegenüber dem zweiten vernachlässigbar klein. Zwar wird Gl. (3.11) vollständig in den Simulationsrechnungen berücksichtigt, aber lediglich die elektronische Leitfähigkeit $\sigma_{\mathrm{ph}} = e\mu_{\mathrm{e}}n_{\mathrm{e}}$ bestimmt über ihren Einfluß auf das volumenphotovoltaische Feld $E_{\mathrm{phv}} = -j_{\mathrm{phv}}/\sigma_{\mathrm{ph}} = -c_{\mathrm{D}^-}\beta^\star I/\sigma_{\mathrm{ph}}$ und auf die dielektrische Relaxationszeit $\epsilon\epsilon_0/\sigma_{\mathrm{ph}}$ die Prozesse beim Thermischen Fixieren. Daher hat nur der gesamte Quotient $\mu_{\mathrm{e}}qS/r$ Einfluß auf die Resultate der Simulationsrechnungen. Eine Variation der Werte der in diesen Quotienten eingehenden Parameter bewirkt keine Änderung des Simulationsergebnisses, solange der Quotient selbst konstant bleibt. Bei homogener Beleuchtung liefert Gl. (3.11) den Zusammenhang

$$\sigma_{\mathrm{ph}} = e\,\frac{\mu_{\mathrm{e}}qS}{r}\,I\,\frac{c_{\mathrm{D}^-}}{c_{\mathrm{D}} - c_{\mathrm{D}^-}} \tag{3.12}$$

zwischen diesem Quotienten und der Photoleitfähigkeit σ_{ph}. Unter Verwendung publizierter Werte für die Photoleitfähigkeit in eisen- bzw. kupferdotierten $LiNbO_3$-Kristallen [47, 98] können die Werte für $\mu_{\mathrm{e}}qS/r$ aufgrund der Bestätigung der proportionalen Abhängigkeiten $\sigma_{\mathrm{ph}} \propto I$ und $\sigma_{\mathrm{ph}} \propto c_{\mathrm{D}^-}/(c_{\mathrm{D}} - c_{\mathrm{D}^-})$ bestimmt werden. Die Ergebnisse dieser Bestimmung des Quotienten $\mu_{\mathrm{e}}qS/r$ für eisen- bzw. kupferdotiertes $LiNbO_3$ sind in Tab. 3.3 verzeichnet. Für $LiNbO_3$:Cu bezieht sich das Ergebnis auf Photoleitfähigkeitsmessungen bei der Wellenlänge 488 nm, während für $LiNbO_3$:Fe die Photoleitfähigkeit bei 514.5 nm bestimmt worden ist.

Parameter	T02-109	728-30	Quelle
c_D [$\mathrm{m^{-3}}$]	7.0×10^{24}	1.2×10^{25}	diese Arbeit
$c_{\mathrm{D^-},0}$ [$\mathrm{m^{-3}}$]	1.7×10^{24}	5.2×10^{24}	diese Arbeit
$c_{\mathrm{i},0}$ [$\mathrm{m^{-3}}$]	9.0×10^{22}	2.8×10^{24}	diese Arbeit
$\mu_\mathrm{e} q S r^{-1}$ [$\mathrm{mV^{-1}}$]	2.0×10^{-14}	1.0×10^{-15}	diese Arbeit
$\beta^\star$ [$\mathrm{Asm^{-3}}$]	1.8×10^{-51}	1.0×10^{-52}	[24] bzw. [47]
$\mu_\mathrm{i}(20\,^\circ\mathrm{C})$ [$\mathrm{m^2V^{-1}s^{-1}}$]	8.3×10^{-23}		[81]
$\mu_\mathrm{i}(163\,^\circ\mathrm{C})$ [$\mathrm{m^2V^{-1}s^{-1}}$]	2.2×10^{-16}		[81]
ϵ_{33}	28		[94, 95]
n_o	2.2864		[96]
n_e	2.2025		[96]
r_{13} [$\mathrm{mV^{-1}}$]	10.9×10^{-12}		[97]
r_{33} [$\mathrm{mV^{-1}}$]	34×10^{-12}		[97]

Tabelle 3.3: *Parameter für die Simulation des Entwicklungsprozesses thermisch fixierter Brechungsindexmuster im $LiNbO_3$:Fe-Kristall T02-109 bzw. des Schreibprozesses im $LiNbO_3$:Cu-Kristall 728-30 sowie Quellenangaben. Dabei bezeichnen c_D die Gesamtkonzentration der Störstellen Fe oder Cu, $c_{\mathrm{D^-},0}$ die mittlere Konzentration mit Elektronen gefüllter Störstellen Fe^{2+} oder Cu^+ und $c_{\mathrm{i},0}$ die mittlere Protonendichte. Der Quotient $\mu_\mathrm{e} q S r^{-1}$ berechnet sich aus der Elektronenbeweglichkeit μ_e, dem Quantenwirkungsgrad q, dem Absorptionswirkungsquerschnitt S und dem Rekombinationskoeffizienten r. Ferner bezeichnet $\beta^\star$ den volumenphotovoltaischen Koeffizienten. Die Parameter $\mu_\mathrm{i}(20\,^\circ\mathrm{C})$ und $\mu_\mathrm{i}(163\,^\circ\mathrm{C})$ stellen die Protonenbeweglichkeit in $LiNbO_3$ bei einer Temperatur von 20°C bzw. 163°C dar. Ferner sind die Dielektrizitätskonstante ϵ_{33}, die Brechungsindizes für ordentlich bzw. außerordentlich polarisiertes Licht der Wellenlänge 633 nm n_o und n_e sowie die entsprechenden linearen elektrooptischen Koeffizienten r_{13} und r_{33} angegeben.*

Der volumenphotovoltaische Koeffizient $\beta^\star$ für eisendotiertes $LiNbO_3$ beträgt $1.8 \times 10^{-51}\,\mathrm{Asm^{-3}}$ bei 514.5 nm [24]. Für kupferdotiertes $LiNbO_3$ wird $\beta^\star$ ermittelt, indem die in [47] publizierten Werte für die Sättigungsbrechungsindexamplitude $|\Delta n_\mathrm{o}|$ herangezogen werden. Verwendet man Gl. (2.8) zusammen mit $E_\mathrm{sc} = j_\mathrm{phv}/\sigma_\mathrm{ph}$ und $j_\mathrm{phv} = \beta^\star c_{\mathrm{Cu^+}} I$, so erhält man unter Berücksichtigung von $n_\mathrm{o} = 2.3486$ [96] für den Brechungsindex und $r_{13} = 12 \times 10^{-12}\,\mathrm{mV^{-1}}$ [97, 99] für den linearen elektrooptischen Koeffizienten den Wert $j_\mathrm{phv}(c_{\mathrm{Cu^+}} I)^{-1} = \beta^\star = 1.0 \times 10^{-52}\,\mathrm{Asm^{-3}}$ für Licht der Wellenlänge 488 nm. Dieser wird durch eine direkte Messung der volumenphotovoltaischen Stromdichte in Abhängigkeit von der Lichtintensität überprüft und mit einer Genauigkeit von $\pm\,30\,\%$ bestätigt.

Die Protonenbeweglichkeit in $LiNbO_3$-Kristallen variiert mit der Konzentration von Übergangsmetallen [81]. In [81] wurde die Ionenbeweglichkeit für einen $LiNbO_3$-Kristall mit derselben Störstellendichte wie der im Rahmen dieser Arbeit untersuchte Kristall

728-30 gemessen, so daß entsprechend [81] die ionische Beweglichkeit durch $\mu_\mathrm{i}(T) = eD_0(k_\mathrm{B}T)^{-1}\exp[-E_\mathrm{A}(k_\mathrm{B}T)^{-1}]$ mit $eD_0(k_\mathrm{B}T)^{-1} = 3.31\,\mathrm{m^2V^{-1}s^{-1}}$ und $E_\mathrm{A} = 1.17\,\mathrm{eV}$ zu $\mu_\mathrm{i}(20\,°\mathrm{C}) = 8.3\times10^{-23}\,\mathrm{m^2V^{-1}s^{-1}}$ für $T = 20\,°\mathrm{C}$ und $\mu_\mathrm{i}(163\,°\mathrm{C}) = 2.2\times10^{-16}\,\mathrm{m^2V^{-1}s^{-1}}$ für $T = 163\,°\mathrm{C}$ berechnet werden kann.

Weiterhin werden bei den Simulationsrechnungen als statische Dielektrizitätskonstante $\epsilon_{33} = 28$ [94, 95], als Brechungsindizes für ordentlich bzw. außerordentlich polarisiertes Licht $n_\mathrm{o} = 2.2864$ bzw. $n_\mathrm{e} = 2.2025$ [96] sowie $r_{13} = 10.9\times10^{-12}\,\mathrm{mV^{-1}}$ und $r_{13} = 34\times10^{-12}\,\mathrm{mV^{-1}}$ als entsprechende lineare elektrooptische Koeffizienten [97] verwendet. Die Werte für $\beta^\star$, μ_i, ϵ_{33}, n_o, n_e, r_{13} sowie r_{33} sind der Übersicht halber ebenfalls in Tab. 3.3 aufgeführt.

3.2.5 Diskussion

Raumladungskompensation

Alle bei erhöhten Temperaturen mit makroskopischen Lichtmustern beleuchteten Kristalle weisen starke Verfärbungen auf, die auf die Umverteilung einer großen Anzahl von Elektronen zurückzuführen sind, da die Absorption im Sichtbaren durch die gefüllten Störstellen (Fe^{2+} und Cu^+) verursacht wird. Dabei ist jeweils der ausgebleichte Bereich auf der $-c$-Seite und der dunkle Bereich auf der $+c$-Seite des Kristalls zu finden (vgl. Abb. 3.4, 3.8 und 3.9).

Dagegen zeigt der bei Raumtemperatur beleuchtete eisendotierte Kristall 666-20 keine Verfärbung. Zwar erzeugt die Beleuchtung mit dem makroskopischen Intensitätsmuster selbst bei Raumtemperatur eine räumliche Modulation der $c_{\mathrm{Fe}^{2+}}$-Konzentration, deren Amplitude allerdings im Vergleich zur Gesamtkonzentration an Fe^{2+} verschwindend gering ist. Dies läßt sich durch die folgende Abschätzung belegen:
Die größten in $LiNbO_3$ beobachteten Raumladungsfelder betragen etwa $10^7\,\mathrm{Vm^{-1}}$ [100]. Nutzt man das Modell eines Plattenkondensators mit der Flächenladungsdichte $\epsilon\epsilon_0 E$, so ist die für diese Feldstärke erforderliche Konzentration umverteilter Ladungsträger $\epsilon\epsilon_0 E(we)^{-1}$ durch die Breite w der Bereiche festgelegt, in denen die Ladungsträger angehäuft sind. Bei Beleuchtung mit einer 2.1 mm breiten Intensitätsverteilung liegt w in der Größenordnung von 0.1 mm, da die Ladungen aus den Randbereichen des Lichtmusters stammen bzw. dort angehäuft werden. Damit ergibt sich mit $\epsilon = 28$ eine Ladungsträgerkonzentration von etwa $10^{20}\,\mathrm{m^{-3}}$, die laut Gl. (3.1) einer Absorptionsänderung von nur $0.05\,\mathrm{m^{-1}}$ entspricht.

Um Absorptionsänderungen im Sichtbaren in der Größenordnung von $1000\,\mathrm{m^{-1}}$ zu erzeugen, muß das Raumladungsfeld während der Beleuchtung kompensiert werden. Der Prozeß der Ladungsumverteilung endet erst, wenn keine mit Elektronen gefüllten oder leeren Störstellen oder keine Kompensatoren mehr vorhanden sind.

Die bei den mit relativ viel Eisen dotierten Kristallen 666-20 und 666-21 auftretende periodische Bewegung des Speckle-Musters hinter dem Kristall paßt in dieses Bild: Der Aufbau eines Raumladungsfelds bewirkt eine kontinuierliche Bewegung des Speckle-Musters, bis das Feld so groß wird, daß es durchschlägt und das Muster deshalb abrupt in seine Ausgangsposition zurückspringt. Wegen der erhöhten Temperatur ist die Frequenz dieser

Speckle-Bewegung beim Kristall 666-21 verringert, da der Aufbau des Raumladungsfelds aufgrund der Ladungskompensation verlangsamt wird. Offensichtlich sind die nach dem Beleuchten bei Raumtemperatur vorhandenen Risse im Kristall 666-20 auf die große Anzahl der Felddurchschläge im Kristallvolumen zurückzuführen.

Wie Abb. 3.18 zeigt, wird im Kristall 666-21 das Raumladungsfeld während der Beleuchtung im wesentlichen durch eine Umverteilung von Protonen kompensiert. Die über dem Ort aufgetragenen Konzentrationsänderungen der Fe^{2+}-Ionen bzw. Protonen werden aus den Absorptionstopogrammen (Abb. 3.6 und 3.7) gemäß Gl. (3.1) bzw. Gl. (3.3) ermittelt. In den Bereichen hoher Fe^{2+}-Konzentration ist eine Kumulation von Elektronen erfolgt. Da sich die Maxima der Konzentrationsänderungen $\Delta c_{\mathrm{Fe}^{2+}}$ und Δc_{H^+} annähernd überlagern, läßt sich zweifelsfrei schließen, daß in $LiNbO_3$ Protonen und nicht etwa OH^--Ionen bei erhöhten Temperaturen wandern, auch wenn die Konzentration der Protonen durch die Absorption der OH^--Streckschwingungen im Infraroten nachgewiesen wird.

Der genaue Vergleich der Konzentrationsänderungen $\Delta c_{\mathrm{Fe}^{2+}}$ und Δc_{H^+} in Abb. 3.18 offenbart jedoch besonders im Bereich zwischen $z = -1.0\,\mathrm{mm}$ und $z = 1.0\,\mathrm{mm}$ Diskrepanzen, die nicht mehr durch die unterschiedliche Ortsauflösung der beiden Absorptionstopographieverfahren im Sichtbaren bzw. im Infraroten sowie die Fehler bei der Bestimmung der Konzentrationsänderungen aus den Absorptionskonstanten von etwa 20 % (vgl. Kap. 3.2.2) zu erklären sind. Auch Ungenauigkeiten aufgrund unterschiedlicher Abstände y zur Kristallkante (Abb. 3.2) bei den beiden ortsaufgelösten Messungen der in diesem Fall zweidimensionalen Absorptionsmuster können die Abweichungen nicht rechtfertigen. Die Protonenkonzentration ist in dem oben genannten Ortsintervall annähernd erschöpft ($|\Delta c_{\mathrm{H}^+}| \approx c_{\mathrm{H}^+} = 0.6 \times 10^{24}\,\mathrm{m}^{-3}$, vgl. auch Abb. 3.7). Somit tritt im Kristall 666-21 neben der Drift von Protonen wahrscheinlich ein weiterer Kompensationsmechanismus auf.

Die aus den Absorptionstopogrammen Abb. 3.10 und 3.12 ermittelten ortsaufgelösten Konzentrationsänderungen für den eisendotierten Kristall T02-109 nach dem Thermischen Fixieren eines eindimensional gaußförmigen Intensitätsmusters sind in Abb. 3.19 dargestellt. Die sehr großen Konzentrationsänderungen $\Delta c_{\mathrm{Fe}^{2+}}$ müssen wiederum aus der Umverteilung sehr großer Ladungsmengen aufgrund der Kompensation des Raumladungsfelds während der Beleuchtung resultieren. Allerdings wird an diesem Kristall zweifelsfrei deutlich, daß Protonen nicht allein für die Kompensation verantwortlich sind. Zwar sind die in einer relativ kleinen Konzentration im Kristall enthaltenen Protonen (vgl. Tab. 3.1) durchaus umverteilt worden, und die Maxima und Minima der Fe^{2+}- und H^+-Konzentrationsänderungen liegen annähernd übereinander. Offensichtlich reicht die Protonenkonzentration aber nicht aus, um die Umverteilung der Elektronen zu erklären. Ein anderer Kompensationsmechanismus muß dafür verantwortlich sein. Unter erneuter Verwendung des Plattenkondensatormodells läßt sich abschätzen, ob eine in [75] und [86] in Betracht gezogene Änderung der spontanen Polarisierung als Mechanismus der Ladungskompensation in Frage kommt. Die Flächenladungsdichte Q/A eines Plattenkondensators hängt mit der dielektrischen Verschiebung D über die Spontanpolarisierung ΔP_s gemäß $\epsilon\epsilon_0 E = D = Q/A - \Delta P_\mathrm{s}$ zusammen. Durch Integration von $e\Delta c_{\mathrm{Fe}^{2+}}$ im Bereich der Anhäufung der Elektronen bei $z = 0.5\,\mathrm{mm}$ läßt sich die Flächenladungsdichte zu $e \times 2 \times 10^{24}\,\mathrm{m}^{-3} \times 10^{-4}\,\mathrm{m} \approx 30\,\mathrm{Asm}^{-2}$ abschätzen. Damit das elektrische Feld E verschwin-

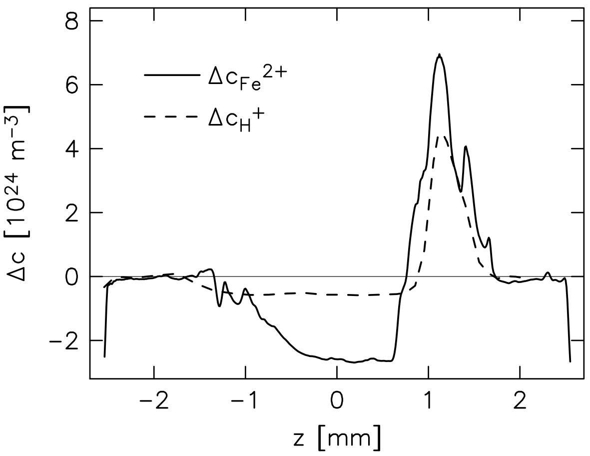


Abbildung 3.18: *Änderung der Fe^{2+}- und der H^+-Konzentration, $\Delta c_{\mathrm{Fe}^{2+}}$ und Δc_{H^+}, in Abhängigkeit vom Ort z für den Kristall 666-21 nach dem Thermischen Fixieren eines gaußförmigen Intensitätsmusters, ermittelt aus den Absorptionstopogrammen bei 477 nm bzw. bei 2870 nm.*

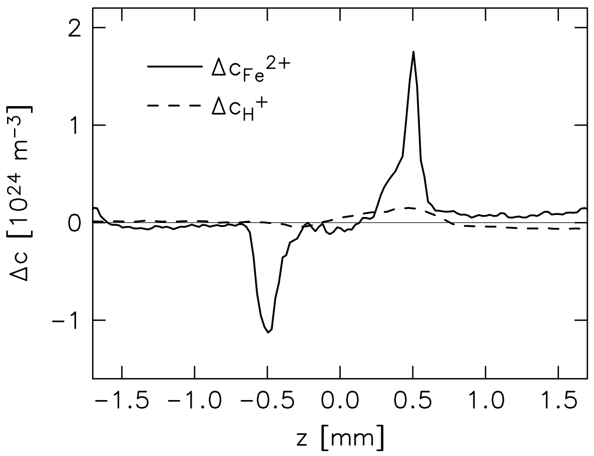


Abbildung 3.19: *Änderung der Fe^{2+}- und der H^+-Konzentration, $\Delta c_{\mathrm{Fe}^{2+}}$ und Δc_{H^+}, in Abhängigkeit vom Ort z für den Kristall T02-109 nach dem Thermischen Fixieren eines gaußförmigen Intensitätsmusters, ermittelt aus den Absorptionstopogrammen bei 477 nm bzw. bei 2870 nm.*

det, muß ΔP_{s} diesen Wert erreichen, doch die gesamte Spontanpolarisierung P_{s} beträgt in $LiNbO_3$ nur 0.7 Asm^{-2} [100]. Daher kann ausgeschlossen werden, daß Änderungen der spontanen Polarisierung die Ladungskompensation beim Thermischen Fixieren in $LiNbO_3$ bewirken.

Für den kupferdotierten Kristall 728-30 wird die Konzentrationsänderung der Cu^+-Ionen in Abhängigkeit vom Ort z nach Gl. (3.2) aus dem Absorptionsprofil im Sichtbaren ermittelt. Zusammen mit der Änderung der Protonenkonzentration Δc_{H^+} ist Δc_{Cu^+} in Abb. 3.20 dargestellt. Es ergibt sich eine sehr gute Übereinstimmung der Konzentrationsänderungen Δc_{Cu^+} und Δc_{H^+}, wenn die aus den Umrechnungsfaktoren zwischen Absorptionskoeffizienten und Konzentrationen hervorgehenden Fehler berücksichtigt werden.

Dieser Kristall weist eine vergleichsweise hohe Protonenkonzentration (Tab. 3.1) auf. Sind also genügend Protonen vorhanden, so bewirken diese die Kompensation des Raumladungsfelds während des Thermischen Fixierens. Zusätzlich zu den experimentell ermittelten Konzentrationsänderungen ist in Abb. 3.20 das Ergebnis der Simulation des Schreibprozesses eingezeichnet. Für die Berechnung wird als vorgegebenes Intensitätsmuster eine Gaußverteilung gemäß $I(z) = I_0 \exp[-2(z/z_0)^2]$ mit $2z_0 = 1.1$ mm als $1/e^2$-Breite w_0 und der Intensität $I_0 = 9.3 \times 10^{23}$ Photonen $\mathrm{m}^{-2}\mathrm{s}^{-1}$ verwendet. Diese Werte für z_0 und I_0 entsprechen den im Schreibexperiment eingestellten Größen (vgl. Tab. 3.2). Unter Verwendung der im Kap. 3.2.4 aufgeführten Parameter ergibt sich ein Konzentrationsprofil mit demselben Verlauf wie die experimentell ermittelten Profile von Δc_{H^+} und Δc_{Cu^+}. Allerdings ist die so errechnete Kompensation durch Protonen unvollständig (gepunktete Kurve in Abb. 3.20). Es muß jedoch betont werden, daß es sich bei dem berechneten

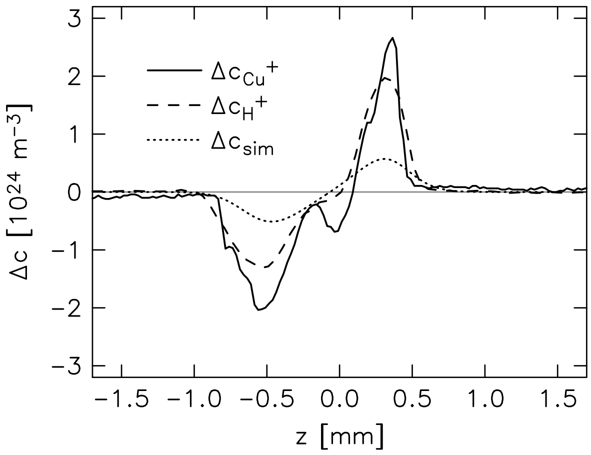


Abbildung 3.20: *Aus den Absorptionstopogrammen bei 477 nm bzw. bei 2870 nm ermittelte Konzentrationsänderungen* Δc_{Cu^+} *und* Δc_{H^+} *sowie berechnete Konzentrationsänderung* Δc_{sim} *in Abhängigkeit vom Ort* z *für den Kristall 728-30 nach dem Thermischen Fixieren eines gaußförmigen Intensitätsmusters.*

Profil nicht um Anpassungen freier Parameter handelt, sondern daß alle in die Simulationsrechnungen einfließenden Parameter experimentell bestimmt worden sind. Insbesondere der Quotient $\mu_e q S r^{-1}$ und der volumenphotovoltaische Koeffizient $\beta^\star$ sind aus Raumtemperaturexperimenten bestimmt worden und können bei der Schreibtemperatur von 163 °C von den in den Rechnungen benutzten Werten abweichen. Eine Verdopplung von $\beta^\star$ bei gleichzeitiger Halbierung von $\mu_e q S r^{-1}$ ergibt bereits eine signifikante Verbesserung der Übereinstimmung. Weiterhin scheint der Wert für die Protonenmobilität von $2.2 \times 10^{-16}\,\mathrm{m^2V^{-1}s^{-1}}$ zu stimmen, da eine Vervierfachung dieses Werts schon eine deutliche Verringerung des Abstands der Extrema im Konzentrationsprofil zur Folge hat und deshalb unrealistisch erscheint.

Über den beim Thermischen Fixieren in $LiNbO_3$ auftretenden Kompensationsmechanismus läßt sich abschließend zusammenfassen, daß bei erhöhten Temperaturen ($T_w \approx 160$ °C) tatsächlich bewegliche Protonen das elektronische Raumladungsfeld kompensieren, wenn die Protonenkonzentration vergleichbar mit der Konzentration mit Elektronen gefüllter Störstellen ist. Sind dagegen nicht genügend Protonen in Kristall enthalten, übernimmt ein anderer Mechanismus, dessen Natur und Ursache unklar ist, die Kompensation. Vermutet werden kann der Einfluß von Lithiumfehlstellen aufgrund des Niobüberschusses in kongruentem $LiNbO_3$. Relaxationsmessungen an thermisch fixierten Hologrammen ergeben allerdings sowohl für dehydrierte kongruente als auch für nahezu stöchiometrische $LiNbO_3$-Kristalle, die ein Li/Nb-Konzentrationsverhältnis von 0.98 aufweisen, dieselbe Aktivierungsenergie von 1.4 eV für die Leitfähigkeit [101]. Das kann als Indiz dafür gewertet werden, daß eine Kompensation durch Li-Fehlstellen keine Rolle spielt. Weiterhin ist eine Wanderung anderer in größeren Konzentrationen in den Kristallen vorkommenden Ionen denkbar. Silizium und Alkalimetallionen kommen beispielsweise in Frage.

Brechungsindexänderungen

Durch Entwicklung der mit den makroskopischen Intensitätsmustern beleuchteten Kristalle bis zur Sättigung entstehen Brechungsindexmuster, die für die untersuchten Kristalle im Kap. 3.2.3 vorgestellt wurden. Das für den eisendotierten Kristall 666-21 ermittelte Brechungsindexprofil für außerordentlich polarisiertes Licht Δn_e (Abb. 3.14) ist wahrscheinlich auf den elektrooptischen Effekt zurückzuführen. Permanente Brechungsindexänderungen in diesem Kristall durch die räumliche Modulation der Protonenkonzentration, die nach [89] aufgrund der Beziehung $\Delta n_e = 2.9 \times 10^{-29}\,\mathrm{m}^3\ \Delta c_{\mathrm{H}^+}$ mit dem in Abb. 3.18 präsentierten Δc_{H^+}-Profil Werte von bis zu 2×10^{-4} erreichen können, sind bereits durch die Differenzbildung der Brechungsindexprofile vor und nach dem Entwickeln eliminiert. Allerdings sind aufgrund des hohen Eisengehaltes des Kristalls 666-21 sehr viel größere durch den elektrooptischen Effekt hervorgerufene Brechungsindexänderungen zu erwarten als gemessen werden. Wahrscheinlich treten beim Entwickeln Felddurchschläge auf, die den Entwicklungsprozeß stören. Diese Vermutung wird dadurch untermauert, daß das experimentell ermittelte Brechungsindexprofil bei ordentlich polarisiertem Licht für den kupferdotierten Kristall 728-30 (Abb. 3.21, durchgezogene Kurve) sehr große Abweichungen vom Ergebnis der Simulation des Entwicklungsprozesses (Abb. 3.21, gepunktete Kurve) in diesem Kristall unter Verwendung des gemessenen c_{Cu^+}-Profils aufweist. Alle errechneten Brechungsindexänderungen werden mittels Gl. (2.8) aus dem simulierten Sättigungsraumladungsfeld unter Verwendung der in Tab. 3.3 angegebenen Brechungsindizes und elektrooptischen Koeffizienten gewonnen. Auch in diesem Kristall treten offensichtlich so große Raumladungsfelder auf, daß der Kristall diese nicht mehr isolieren kann. Die berechneten maximalen Feldstärken liegen bei $2.3 \times 10^7\,\mathrm{Vm}^{-1}$ und damit um etwa einen Faktor zwei über der Durchschlagsfeldstärke in $\mathrm{LiNbO_3}$.

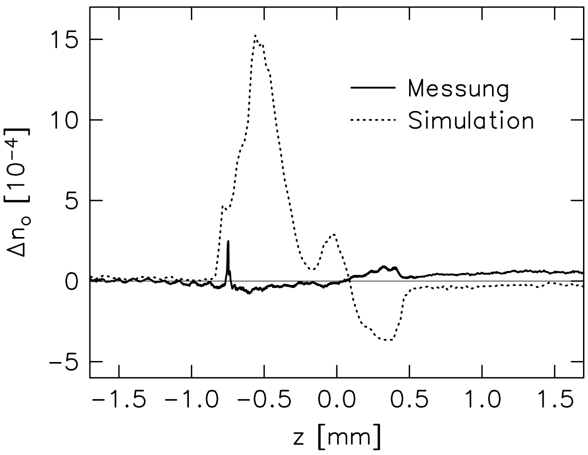


Abbildung 3.21: *Gemessene und berechnete Änderung des Brechungsindexes Δn_o in Abhängigkeit vom Ort z nach Entwicklung des thermisch fixierten Musters im Kristall 728-30 für ordentlich polarisiertes Licht.*

Der Kristall T02-109 enthält im Vergleich mit der Probe 666-21 eine moderate Eisenkonzentration. Für diesen Kristall lassen sich die experimentell ermittelten Brechungsindexprofile sowohl für ordentlich als auch für außerordentlich polarisiertes Licht (durchgezogene Kurven in Abb. 3.22 und 3.23) durch die Ergebnisse der Simulationsrechnungen (gepunktete Kurven) mit hervorragender Übereinstimmung beschreiben. Dabei ist wiederum das gemessene $c_{\mathrm{Fe}^{2+}}$-Profil in die Rechnungen eingeflossen. Beide von der Polarisation abhängigen Brechungsindexprofile ergeben sich aus demselben simulierten Raumladungsfeld $E_{\mathrm{sc}}(z)$, das in diesem Kristall im Gegensatz zu den Proben 666-21 und 728-30 mit $9 \times 10^6\,\mathrm{Vm}^{-1}$ knapp unterhalb der Durchschlagsfeldstärke liegt. Damit sind die nach der Entwicklung beobachteten Brechungsindexänderungen auf den elektrooptischen Effekt zurückzuführen. Andere Beiträge sind offensichtlich zu vernachlässigen. Insbesondere kann eine lokale Entpolarisierung des Kristalls ausgeschlossen werden, da konsequenterweise die gemessenen Brechungsindexänderungen deutlich kleiner als die berechneten ausfallen müßten.

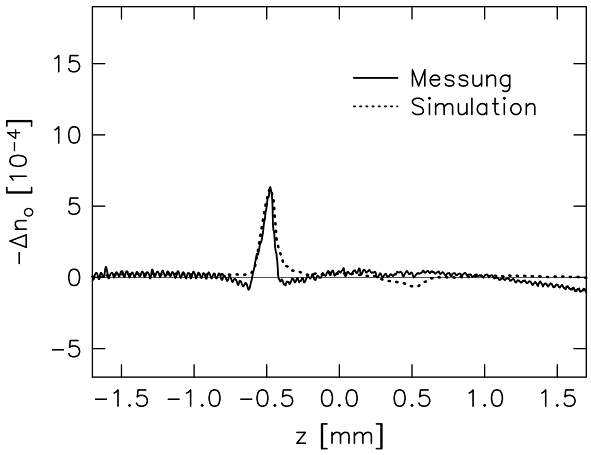


Abbildung 3.22: *Gemessene und berechnete Änderung des Brechungsindexes Δn_o in Abhängigkeit vom Ort z nach Entwicklung des thermisch fixierten Musters im Kristall T02-109 für ordentlich polarisiertes Licht.*

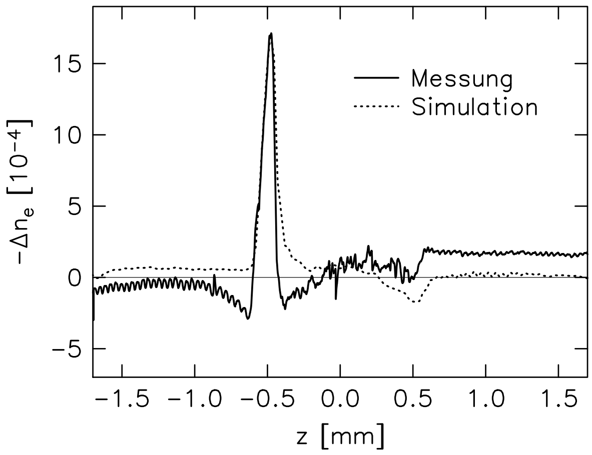


Abbildung 3.23: *Gemessene und berechnete Änderung des Brechungsindexes Δn_e in Abhängigkeit vom Ort z nach Entwicklung des thermisch fixierten Musters im Kristall T02-109 für außerordentlich polarisiertes Licht.*

Die räumlich modulierte Absorption $\alpha_{477\,\mathrm{nm}}$ (Abb. 3.10) führt aufgrund der Kramers-Kronig-Relationen ebenfalls zu einer permanenten Brechungsindexänderung, die allerdings bei Absorptionsänderungen von $\alpha_{477\,\mathrm{nm}} = 1000\,\mathrm{m}^{-1}$ nur etwa 10^{-5} bei einer Wellenlänge von 633 nm beträgt (siehe dazu Anhang A.1).

Die der Simulation zugrundeliegende Modellvorstellung des Entwicklungsprozesses beim Thermischen Fixieren durch homogene Beleuchtung deckt sich hervorragend mit den experimentellen Ergebnissen. Durch die bekannten Ladungsantriebe, deren Effizienz von der modulierten Konzentration mit Elektronen gefüllter Störstellen abhängt, werden beim Entwickeln mit homogener Intensität Elektronen umverteilt, so daß sich ein Raumladungsfeld aufbaut, das über den elektrooptischen Effekt den Brechungsindex moduliert.

Langzeitstabilität thermisch fixierter Hologramme

Die Simulation des Schreibprozesses für den Kristall 728-30 bestätigt die Protonenbeweglichkeit von $\mu_\mathrm{i}(163\,°\mathrm{C}) = 2.2 \times 10^{-16}\,\mathrm{m^2V^{-1}s^{-1}}$ für $T = 163\,°\mathrm{C}$, die der Quelle [81] entnommen ist. Die zur Berechnung von μ_i verwendete Formel mit der Aktivierungsenergie $E_\mathrm{A} = 1.17\,\mathrm{eV}$ (vgl. Kap. 3.2.4) erscheint sehr vernünftig. Insbesondere wird E_A in [101] bestätigt. Demzufolge ist die Protonenbeweglichkeit bei Raumtemperatur $\mu_\mathrm{i}(20\,°\mathrm{C})$ um den Faktor 2.6×10^6 kleiner als bei $163\,°\mathrm{C}$. Die Kenntnis dieses Faktors ermöglicht eine grobe, aber in der Tendenz sicherlich zutreffende Abschätzung der Lebensdauer eines thermisch fixierten elementaren Hologramms.

Für die Erzeugung des Brechungsindexmusters im Kristall 728-30 war eine Beleuchtungsdauer von 47 h nötig. Unter der Annahme einer Proportionalität zwischen der Beleuchtungsdauer und der aus den hellen in die dunklen Bereiche umverteilten Ladungsmenge sollte die Beleuchtungsdauer linear mit abnehmender Breite bzw. Gitterkonstante des Intensitätsmusters sinken. Damit ergibt sich bei einer Verringerung der Breite von etwa 1 mm, die der Breite des Lichtmusters bei der Beleuchtung des Kristalls 728-30 entspricht, auf eine Gitterperiode von 1 μm eine Schreibdauer von nur 3 min. Daraus folgt die Lebensdauer eines solchen Hologramms bei kontinuierlicher Beleuchtung zu $3\,\mathrm{min} \times 2.6 \times 10^6 \approx 15\,\mathrm{a}$. Wird der Kristall im Dunkeln gelagert, so baut sich das Raumladungsfeld auch bei geringer Dunkelleitfähigkeit σ_D ab, so daß eine weitere Rückverteilung der Protonen abgebremst stattfindet. Dadurch wird sich die Lebensdauer vergrößern. Diese Ergebnisse werden von Arizmendi *et al.* qualitativ bestätigt [102]: Für einen relativ hochdotierten $LiNbO_3$:Fe-Kristall ($c_\mathrm{Fe} \approx 2 \times 10^{25}\,\mathrm{m}^{-3}$, $c_\mathrm{H+} \approx 2 \times 10^{24}\,\mathrm{m}^{-3}$) ergeben Relaxationsmessungen ständig beleuchteter Gitter, durchgeführt bei Temperaturen zwischen 80 °C und 115 °C, bei ständiger Beleuchtung eine extrapolierte Lebensdauer von 5.2 a für ein Gitter mit der Gitterkonstanten 1 μm.

Wenn die Kompensation des Raumladungsfelds statt durch die Wanderung von Protonen durch einen anderen Mechanismus erreicht wird, läuft sie zudem langsamer ab, wie die längere Beleuchtungsdauer bei der Beleuchtung des Kristalls T02-109 andeutet. Damit steigt die Lebensdauer thermisch fixierter Hologramme in dehydrierten Kristallen weiter an. Diese Tendenz wird in [101] und [102] bestätigt, wenn auch die in [101] abgeschätzten Lebensdauern für thermisch fixierte Hologramme deutlich geringer ausfallen.

3.3 Entwicklung thermisch fixierter Hologramme durch Pulslaserbeleuchtung

Das im Kap. 2.1.2 beschriebene Ein-Zentren-Modell sagt proportionale Abhängigkeiten der volumenphotovoltaischen Stromdichte j_{phv} sowie der Photoleitfähigkeit σ_{ph} von der Lichtintensität voraus. Diese werden in holographischen Untersuchungen von $LiNbO_3$ bei Raumtemperatur mit großer Genauigkeit bestätigt, wenn typische Dauerstrichlaserintensitäten von bis zu $10^5\,\mathrm{Wm^{-2}}$ verwendet werden. Als Konsequenz ist die Amplitude des Sättigungsraumladungsfelds E_{sc} in diesen Experimenten von der Intensität unabhängig. Werden dagegen höhere Intensitäten durch die Verwendung von fokussierten Strahlen oder von Pulslasern genutzt, so treten neben anderen Effekten auch mit der Intensität wachsende Sättigungsraumladungsfelder auf [26, 27]. Das kann auf eine Zwei-Zentren-Situation zurückgeführt werden, wobei direkte Übergänge zwischen dem tiefen und dem flacheren Zentrum erlaubt sind [49]. Als zweites, flaches Zentrum ist Nb^{4+}/Nb^{5+} auf einer Li-Fehlstelle identifiziert worden [49] (vgl. Kap. 2.1.2). Bei hohen Intensitäten werden diese flachen Zentren mit Elektronen gefüllt und beteiligen sich am Ladungstransport. Die volumenphotovoltaische Stromdichte j_{phv} zeigt eine superlineare Abhängigkeit von der Intensität, da die Anregung aus den flachen Zentren ins Leitungsband stärkere photovoltaische Stromdichten hervorruft als jene aus den tiefer in der Bandlücke liegenden Fe^{2+}/Fe^{3+}-Störstellen. Demzufolge steigt das Sättigungsraumladungsfeld mit zunehmender Intensität an. Die im Kap. 3.2 vorgestellten Untersuchungen zur Entwicklung thermisch fixierter Hologramme haben gezeigt, daß die dabei ablaufenden Prozesse analog zum Schreiben bei Raumtemperatur sind. Anstelle einer modulierten Intensität und einer homogenen Störstellenkonzentration liegen beim Thermischen Fixieren homogene Beleuchtung und eine modulierte Elektronenkonzentration vor. Daher ist zu erwarten, daß bei der Entwicklung thermisch fixierter Hologramme ebenfalls eine Intensitätsabhängigkeit des Raumladungsfelds bei hohen Intensitäten auftritt. Dem wird in diesem Abschnitt nachgegangen.

3.3.1 Experimentelle Methoden

Zur Klärung der Frage, ob die beim Entwickeln thermisch fixierter Hologramme auftretenden Raumladungsfelder von der Intensität des entwickelnden Lichts abhängen, werden Beugungswirkungsgradmessungen an eisendotierten $LiNbO_3$-Kristallen durchgeführt. Eine Übersicht über die verwendeten Kristalle, deren Gesamteisenkonzentration c_{Fe}, das Fe^{2+}/Fe^{3+}-Konzentrationsverhältnis $c_{\mathrm{Fe^{2+}}}/c_{\mathrm{Fe^{3+}}}$ sowie die Dicke der Kristalle d gibt Tab. 3.4.

Schreibprozeß

Zur Erzeugung thermisch fixierter elementarer Hologramme werden die Kristalle bei einer Temperatur von $T_{\mathrm{w}} = 180\,^\circ\mathrm{C}$ mit dem Interferenzmuster zweier ordentlich polarisierter, aufgeweiteter Laserstrahlen der Wellenlänge 514.5 nm beleuchtet. Bei symmetrischer Inzidenz der beiden ebenen Schreibwellen auf die b-Fläche des Kristalls wird ein Gitter

Bezeichnung	Maße [mm]			c_{Fe}	$c_{\mathrm{Fe}^{2+}}/c_{\mathrm{Fe}^{3+}}$
	a	$b=d$	c	$[10^{24}\,\mathrm{m}^{-3}]$	
T02-23-3	3.83	0.85	4.51	7	0.1
713-15	4.04	1.20	5.02	21	0.33

Tabelle 3.4: *Bezeichnung, Abmessungen, Gesamteisenkonzentration c_{Fe} sowie Fe^{2+}/Fe^{3+}-Konzentrationsverhältnis $c_{\mathrm{Fe}^{2+}}/c_{\mathrm{Fe}^{3+}}$ der hinsichtlich der Intensitätsabhängigkeit des Entwicklungsprozesses untersuchten $LiNbO_3$-Kristalle.*

der Gitterkonstanten $\Lambda \approx 1\,\mu m$ mit parallel zur c-Achse orientiertem Gittervektor erzeugt. Um Phasenfluktuationen aufgrund der von der Kristallheizung hervorgerufenen Luftkonvektion sowie aufgrund mechanischer Instabilität der optischen Komponenten zu verhindern, wird eine aktive Phasenstabilisierung benutzt: Ein Teil eines Schreibstahls wird durch eine polierte, zum Gittervektor senkrechte Kristallseitenfläche in den transmittierten anderen Schreibstrahl abgelenkt (vgl. Abb. 3.24). Beide Strahlen erzeugen im Fernfeld hinter dem Kristall ein Interferenzmuster, dessen Streifenabstand bei geeigneter Justage größer als die Blende eines darin positionierten Si-Photodetektors ist. Ungewollte Phasenänderungen der interferierenden Schreibstrahlen verschieben das Interferenzmuster und ändern damit die mit dem Detektor aufgenommene Intensität. Die Phasenänderungen werden aktiv durch Translation eines piezoangetriebenen Spiegels im Interferenzaufbau so lange ausgeglichen, bis diese Intensität wieder einen voreingestellten ursprünglichen Wert einnimmt. Dieser muß möglichst in der Mitte zwischen der Maximal- und der Minimalintensität liegen, damit die größtmögliche Empfindlichkeit der Stabilisierungsmethode genutzt wird.

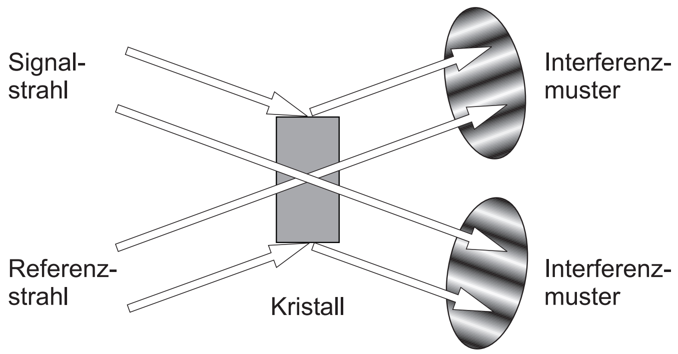


Abbildung 3.24: *Schematische Darstellung der Entstehung des Fernfeldinterferenzmusters, das zur Stabilisierung der Phasenlage der interferierenden Strahlen beim Schreiben thermisch fixierter Gitter genutzt wird.*

Unter Verwendung dieses Stabilisierungsverfahrens werden der Kristall T02-23-3 90 min sowie der Kristall 713-15 15 min bei einer Gesamtintensität auf dem Kristall von $I_0 \approx 2.2\,\mathrm{kWm}^{-2}$ und einem Modulationsgrad von $m \approx 0.95$ beleuchtet. Nach dem Ende der Beleuchtung werden beide Kristalle kurzzeitig auf 200 °C geheizt, um dann innerhalb von 15 min auf Raumtemperatur abgekühlt zu werden.

Entwicklungsprozeß und Auslesen der Hologramme

Die thermisch fixierten Gitter werden durch homogene Beleuchtung mit ordentlich polarisierten frequenzverdoppelten Lichtpulsen eines gütegeschalteten Nd:YAG-Lasers der Wellenlänge 532 nm bei verschiedenen Intensitäten entwickelt. Bei einer Pulsdauer von 3 ns variiert die Einzelpulsintensität I_D zwischen $1.7\,\mathrm{GWm^{-2}}$ und $170\,\mathrm{GWm^{-2}}$. Es werden unterschiedliche Wiederholraten zwischen 10 Hz und 100 Hz verwendet, so daß die zeitlich gemittelte Intensität des Pulslichts zwischen $0.05\,\mathrm{kWm^{-2}}$ und $5\,\mathrm{kWm^{-2}}$ liegt. Der Beugungswirkungsgrad η wird während der Entwicklung mittels eines ordentlich polarisierten, aufgeweiteten He-Ne-Laserstrahls der Wellenlänge 633 nm ermittelt. Dazu trifft der Strahl der Intensität $1\,\mathrm{Wm^{-2}}$ den Kristall unter dem Bragg-Winkel. Die mittels Photodioden aufgenommenen Intensitäten des transmittierten Strahls I_R sowie des abgebeugten Strahls I_S ergeben η gemäß Gl. (2.11).

Die thermisch fixierten Hologramme werden jeweils bis zur Sättigung des Beugungswirkungsgrads mit Pulslicht konstanter Einzelpulsintensität I_D entwickelt. Anschließend wird der Sättigungsbeugungswirkungsgrad $\eta_\mathrm{o}^\mathrm{sat}$ aufgenommen. Dazu wird nach jeder Entwicklung darauf geachtet, daß das Leselicht unter dem Bragg-Winkel auf die Probe fällt.

Desweiteren werden die thermisch fixierten Hologramme unter Verwendung eines frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers (532 nm) sowie eines $\mathrm{Ar^+}$-Lasers (458 nm, 477 nm, 488 nm und 514.5 nm) mit ordentlich polarisiertem Dauerstrichlaserlicht bei verschiedenen Wellenlängen λ_D bis zur Sättigung entwickelt und jeweils $\eta_\mathrm{o}^\mathrm{sat}$ aufgenommen. Die Intensität I_D der aufgeweiteten Strahlen liegt zwischen $0.3\,\mathrm{kWm^{-2}}$ bei $\lambda_\mathrm{D} = 458\,\mathrm{nm}$ und $2.5\,\mathrm{kWm^{-2}}$ bei $\lambda_\mathrm{D} = 514.5\,\mathrm{nm}$.

Vor der Entwicklung bei einer anderen Einzelpulsintensität bzw. einer anderen Wellenlänge wird der Kristall jeweils für einige Minuten auf etwa 200 °C geheizt, so daß anschließend keine abgebeugte Intensität detektierbar ist.

3.3.2 Experimentelle Ergebnisse

Aus den experimentell ermittelten Werten des Sättigungsbeugungswirkungsgrads $\eta_\mathrm{o}^\mathrm{sat}$ wird mit Hilfe der Gl. (2.22) und (2.23) die Sättigungsbrechungsindexamplitude $\Delta n_\mathrm{o}^\mathrm{sat}$ bestimmt. Dabei wird aufgrund des kleinen Bragg-Winkels im Medium ($\theta \approx 8\,°$) der Term $\cos\theta$ durch eins genähert. Die Dicke d der Kristalle ist in Tab. 3.4 angegeben, die Wellenlänge λ des Leselichts beträgt 633 nm.

In Abhängigkeit von der Einzelpulsintensität I_D sind die so ermittelten Werte der Sättigungsbrechungsindexamplitude $\Delta n_\mathrm{o}^\mathrm{sat}$ für die in den Kristallen T02-23-3 und 713-15 thermisch fixierten Gitter in den Abb. 3.25 und 3.26 dargestellt. Zusätzlich ist jeweils der mit dem Nd:YAG-Dauerstrichlaser ermittelte Meßpunkt für $\Delta n_\mathrm{o}^\mathrm{sat}$ bei $I_\mathrm{D} \approx 0.7\,\mathrm{kWm^{-2}} = 7 \times 10^{-7}\,\mathrm{GWm^{-2}}$ eingezeichnet. In Abb. 3.27 ist $\Delta n_\mathrm{o}^\mathrm{sat}$ über der Wellenlänge des Entwicklungslichts λ_D für das im Kristall T02-23-3 thermisch fixierte Gitter aufgetragen. Die Sättigungsbrechungsindexamplitude ist annähernd unabhängig von λ_D.

Die Variation der Wiederholrate ergibt keine Änderung der Sättigungsbrechungsindexamplitude. Die Fehlerbalken illustrieren die Reproduzierbarkeit der Meßwerte, die für verschiedene Pulsintensitäten I_D und Wellenlängen λ_D nach mehreren Entwicklungsprozessen mit jeweiligem thermischen Löschen bei 200 °C mehrfach bestätigt werden.

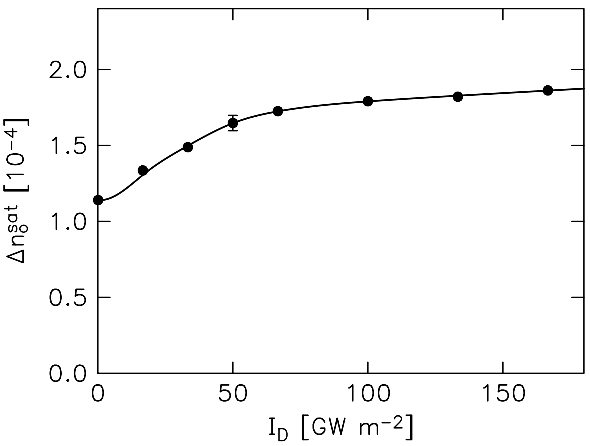


Abbildung 3.25: *Sättigungswerte der Brechungsindexamplitude Δn_o^{sat} des im Kristall T02-23-3 thermisch fixierten Gitters in Abhängigkeit von der Einzelpulsintensität I_D der homogenen Entwicklungsbeleuchtung (Wellenlänge 532 nm). Die Brechungsindexänderungen werden mit ordentlich polarisiertem Licht der Wellenlänge 633 nm gemessen. Die durchgezogene Linie dient der Augenführung.*

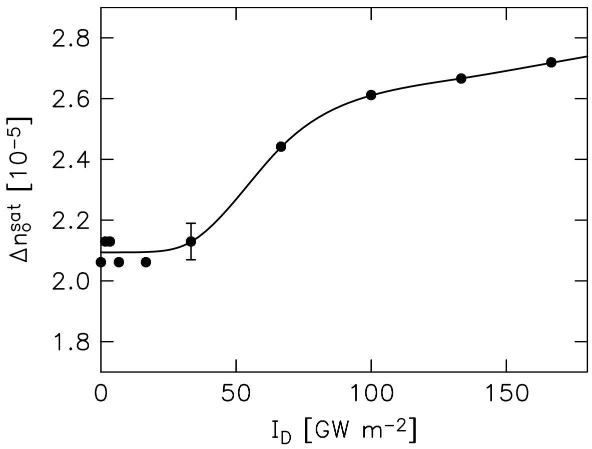


Abbildung 3.26: *Sättigungswerte der Brechungsindexamplitude Δn_o^{sat} des im Kristall 713-15 thermisch fixierten Gitters in Abhängigkeit von der Einzelpulsintensität I_D der homogenen Entwicklungsbeleuchtung (Wellenlänge 532 nm). Die Brechungsindexänderungen werden mit ordentlich polarisiertem Licht der Wellenlänge 633 nm gemessen. Die durchgezogene Linie dient der Augenführung.*

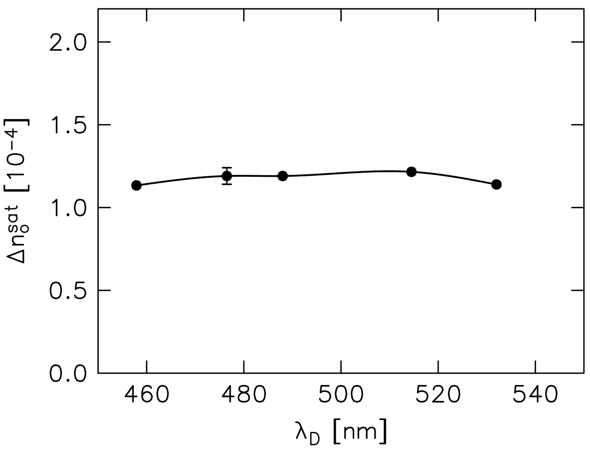


Abbildung 3.27: *Sättigungswerte der Brechungsindexamplitude Δn_o^{sat} des im Kristall T02-23-3 thermisch fixierten Gitters in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ_D der homogenen Entwicklungsbeleuchtung bei Intensitäten unter 2.5 kWm^{-2}. Die Brechungsindexänderungen werden mit ordentlich polarisiertem Licht der Wellenlänge 633 nm gemessen. Die durchgezogene Linie dient der Augenführung.*

3.3.3 Diskussion

Die räumliche Modulation der Fe^{2+}-Konzentration, die nach dem Schreiben der thermisch fixierten Gitter vorhanden ist, stellt ein Absorptionsgitter dar, das dem Brechungsindexgitter nach dem Entwickeln überlagert ist. Dennoch ist der Einfluß dieses Gitters auf die Lichtbeugung zu vernachlässigen, da die Absorptionskonstante für Licht der Wellenlänge 633 nm klein ist und nach kurzem Aufheizen der Kristalle auf etwa 200 °C kein abgebeugtes Licht mehr detektiert werden kann. Dieser Löschprozeß wird im folgenden „temporäres Löschen“ genannt. Da nach dem temporären Löschen der Beugungswirkungsgrad verschwindet, ist es zulässig, bei den untersuchten Hologrammen von reinen Brechungsindexgittern auszugehen, so daß die Umrechnung des Sättigungsbeugungswirkungsgrads η_o^{sat} in die Sättigungsbrechungsindexamplitude Δn_o^{sat}, die gemäß Gl. (2.8) proportional zum Sättigungsraumladungsfeld E_{sc} ist, vorgenommen werden darf.

Beim temporären Löschen bei Temperaturen um 200 °C kommt es zu einer Kompensation des vorhandenen Raumladungsfelds durch thermische Anregung von Elektronen bzw. durch Migration von Ionen und damit zum Löschen der durch den elektrooptischen Effekt hervorgerufenen Brechungsindexänderungen. Der Modulationsgrad der Fe^{2+}-Konzentration wird durch temporäres Löschen und anschließendes erneutes Entwickeln zwar leicht gesenkt, allerdings ist die damit einhergehende Umverteilung von Elektronen im Vergleich zur Amplitude der durch den Schreibprozeß des Thermischen Fixierens hervorgerufenen $c_{Fe^{2+}}$-Modulation zu vernachlässigen. Dies wird durch die reproduzierbaren Werte des Beugungswirkungsgrads nach einer Vielzahl von Zyklen temporären Löschens mit anschließendem Entwickeln bestätigt.

Jermann und Krätzig haben in Untersuchungen von Raumtemperaturhologrammen in eisendotierten $LiNbO_3$-Kristallen mit frequenzverdoppelten gütegeschalteten Laserpulsen der Wellenlänge 532 nm (Pulsdauer 20 ns) mit steigender Pulsintensität eine Anhebung der Sättigungsbrechungsindexamplitude von etwa 50 % erzielt [27]. Dieses Anwachsen wird auch bei der Entwicklung der thermisch fixierten Gitter beobachtet (Abb. 3.25 und 3.26). Dabei liegen die hier erreichten Steigerungsraten bei etwa 60 % für das Gitter im Kristall T02-23-3 bzw. bei etwa 30 % für den Kristall 713-15.

Die Intensitätsabhängigkeit des Sättigungsraumladungsfelds E_{sc} von Raumtemperaturhologrammen stimmt mit der thermisch fixierter Hologramme quantitativ überein. Dies bestätigt das im Abschnitt 3.1 vorgestellte Modell einer modulierten Konzentration der Fe^{2+}-Störstellen bei thermisch fixierten Hologrammen, die durch den Schreibprozeß bei erhöhten Temperaturen entsteht. Beleuchtung mit Lichtpulsen hoher Intensität führt zur Anregung von Elektronen aus den tiefen Fe^{2+}-Zentren in flache Störstellen (Nb^{4+} auf einer Li-Fehlstelle). Dann werden die Elektronen thermisch oder durch Beleuchtung aus den flachen Zentren ins Leitungsband angeregt, oder sie rekombinieren direkt mit tiefen Fe^{3+}-Störstellen. Aufgrund der räumlichen Modulation der tiefen Fe^{2+}-Störstellen, die einen Modulationsgrad von eins erreichen kann, ist die Anregungsrate für Übergänge aus den tiefen in die flachen Nb^{4+}-Störstellen ebenfalls räumlich moduliert. Als Konsequenz führt die räumliche Modulation der gefüllten flachen Nb^{4+}-Störstellen zu einer modulierten volumenphotovoltaischen Stromdichte, deren Amplitude gegenüber der durch direkte Anregung aus den tiefen Zentren hervorgerufenen Stromdichte anwächst [27, 49, 103].

Diese erhöhte volumenphotovoltaische Stromdichte ist die Ursache für das Ansteigen des Sättigungsraumladungsfelds bei hohen Lichtintensitäten.

Der Sättigungswert des Raumladungsfelds $E_{\rm sc} = -j_{\rm phv}/\sigma_{\rm ph}$ des im Kristall T02-23-3 thermisch fixierten Gitters zeigt im untersuchten Wellenlängenintervall im Rahmen der Meßgenauigkeit keine Abhängigkeit von der Wellenlänge des Entwicklungslichts (Abb. 3.27). In [104] werden die spezifische Photoleitfähigkeit $\sigma_{\rm ph} I^{-1}$ sowie der volumenphotovoltaische Koeffiezient β_{31} bei verschiedenen Wellenlängen zwischen 440 nm und 514.5 nm für einen eisendotierten $LiNbO_3$-Kristall mit gleicher Gesamteisenkonzentration und identischem $c_{\rm Fe^{2+}}/c_{\rm Fe^{3+}}$-Verhältnis wie beim untersuchten Kristall T02-23-3 ermittelt. Zwar sinkt $\sigma_{\rm ph} I^{-1}$ zwischen 457 nm und 514.5 nm etwa um den Faktor zwei ab, allerdings verringert sich in diesem Intervall auch β_{31} um denselben Faktor [104, Tab. A.3]. Gemäß Gl. (2.5) ist das Sättigungsraumladungsfeld in diesem Wellenlängenintervall somit unabhängig von der Wellenlänge.

Es läßt sich abschließend zusammenfassen, daß sowohl die Intensitäts- als auch die Wellenlängenabhängigkeit des Sättigungsraumladungsfelds bei Raumtemperaturhologrammen wie bei thermisch fixierten Hologrammen quantitativ identisch sind. Zudem bleibt zu betonen, daß die Entwicklung thermisch fixierter Gitter durch Pulslaserlicht eine neue Methode darstellt, die es erlaubt, die Brechungsindexamplitude um mehr als 50 % zu erhöhen. Dieser Wert könnte eventuell weiter gesteigert werden. Zwar sind Pulsintensitäten über 200 $\mathrm{GWm^{-2}}$ nicht mehr verwendbar, da die Kristalle aufgrund der Absorption Schaden nehmen. Für Pulsdauern unterhalb von 100 μs ist jedoch statt der Pulsintensität die Pulsenergiedichte der entscheidende Parameter [105]. Die Entwicklung thermisch fixierter Hologramme mit Laserpulsen, die Pulsdauern im Bereich von μs statt ns haben, könnte bei Intensitäten unterhalb der Zerstörgrenze von $LiNbO_3$ eine weitere Anhebung der Sättigungsbrechungsindexamplitude bewirken, da die Pulsenergiedichte sich damit um bis zu drei Größenordnungen anheben läßt. Zudem darf erwartet werden, daß durch Optimierung des Fe^{2+}/Fe^{3+}-Konzentrationsverhältnisses sowie des Li/Nb-Verhältnisses der $LiNbO_3$-Kristalle die Erhöhung des Sättigungsraumladungsfelds noch verstärkt werden kann.

Kapitel 4

Wellenlängenmultiplexing mit Reflexionshologrammen in $LiNbO_3$-Kristallen

Im ersten Abschnitt dieses Kapitels werden, aufbauend auf den Grundlagen der Volumenphasenholographie (Kap. 2.2.2), ideale Reflexionshologramme in $LiNbO_3$–Kristallen hinsichtlich der erreichbaren Wellenlängen- und Winkelselektivität betrachtet. Abschätzungen zur Dynamik der Überlagerung von Reflexionshologrammen ergeben die optimalen Beleuchtungsdauern. Es folgen Überlegungen zur Geometrie der Aufzeichnung und Rekonstruktion von Reflexionshologrammen für infrarotes Licht. Im Abschnitt 4.2 werden die verwendeten Kristalle und die experimentellen Methoden zur Aufzeichnung und Überlagerung von Reflexionshologrammen sowie zur Messung ihrer Beugungswirkungsgrade vorgestellt. Der anschließende Abschnitt 4.3 beinhaltet die Ergebnisse der Beugungswirkungsgradmessungen an einzelnen unfixierten und an thermisch fixierten Reflexionshologrammen sowie das Demultiplexing zweier Kanäle durch Überlagerung von Reflexionshologrammen. Die Bewertung des Aufzeichnungsverfahrens sowie der erzielten Ergebnisse findet zum Abschluß dieses Kapitels im Abschnitt 4.4 statt.

4.1 Reflexionshologramme für infrarotes Leselicht in $LiNbO_3$

4.1.1 Leistungsdaten idealer Reflexionshologramme

Das Wellenvektordiagramm in Abb. 4.1 veranschaulicht die Funktionsweise eines Zweikanal-Wellenlängendemultiplexers. Es finden die im Kap. 2.2.2 eingeführten Bezeichnungen für den Einfallswinkel θ und den Neigungswinkel des Gittervektors ζ Verwendung (vgl. Abb. 2.1). Alle Winkel gelten wiederum im Medium und beziehen sich auf die Normale der Oberfläche, durch die zwei Lichtwellen mit den Wellenvektoren $\mathbf{k}_{1,\mathrm{in}}$ und $\mathbf{k}_{2,\mathrm{in}}$ kollinear unter dem Winkel $\theta = \theta_{\mathrm{in}}$ einfallen. Sie werden an den beiden Gittern mit den Gittervektoren $\mathbf{K}_1$ und $\mathbf{K}_2$ und den Neigungswinkeln ζ_1 und ζ_2 in Richtung der Wellenvektoren $\mathbf{k}_{1,\mathrm{out}}$ und $\mathbf{k}_{2,\mathrm{out}}$ gebeugt. Diese Wellenvektoren schließen mit der Oberflächennormalen die unterschiedlichen Winkel $\theta_{1,\mathrm{out}}$ und $\theta_{2,\mathrm{out}}$ ein.

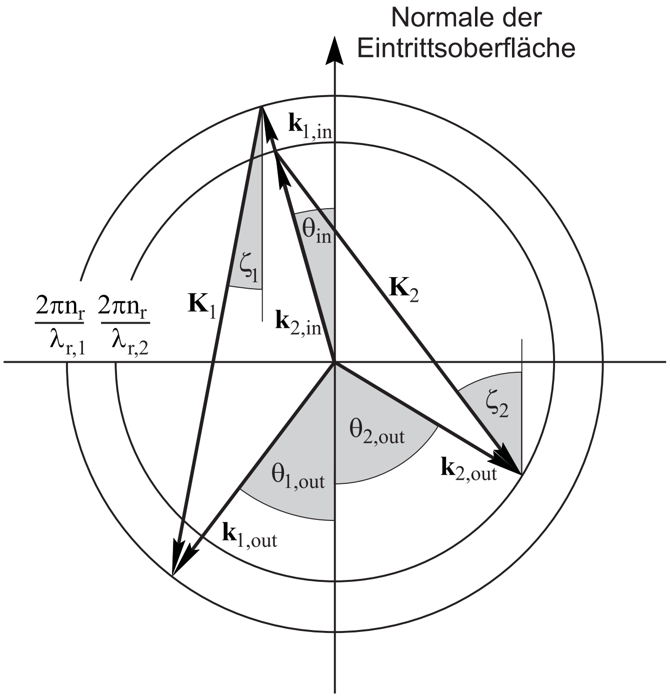


Abbildung 4.1: *Wellenvektordiagramm zur Veranschaulichung des Wellenlängendemultiplexings von zwei Kanälen. Die unter dem Winkel θ_{in} einfallenden Lichtwellen mit den Wellenvektoren $\mathbf{k}_{1,\mathrm{in}}$ und $\mathbf{k}_{2,\mathrm{in}}$ werden an zwei Gittern (Gittervektoren $\mathbf{K}_1$ und $\mathbf{K}_2$ mit den Neigungswinkeln ζ_1 und ζ_2) in Richtung der Wellenvektoren $\mathbf{k}_{1,\mathrm{out}}$ und $\mathbf{k}_{2,\mathrm{out}}$ (Ausfallswinkel $\theta_{1,\mathrm{out}}$ und $\theta_{2,\mathrm{out}}$) gebeugt. Alle Winkel gelten im Medium.*

Reflexionshologramme zeichnen sich durch eine hohe Wellenlängenselektivität aus. In Abb. 4.2 ist der Beugungswirkungsgrad η in Abhängigkeit von der Wellenlänge für zwei überlagerte elementare Reflexionshologramme mit den Bragg-Wellenlängen $\lambda_1 = 1557.6\,\mathrm{nm}$ und $\lambda_2 = 1558.4\,\mathrm{nm}$ logarithmisch aufgetragen. Die Berechnung der Kurven erfolgt unter Verwendung der Gl. (2.18), (2.20) und (2.21) für annähernd ungeneigte Reflexionsgitter ($\zeta \ll 1$) mit der Dicke $d = 10\,\mathrm{mm}$, der Raumfrequenz $K = 4\pi n_{\mathrm{r}}/\lambda_{\mathrm{r}}$ und dem Brechungsindex im Infraroten von $n_{\mathrm{r}} = 2.2110$ [106] für 180°-Reflexion und $\Delta\theta = 0°$. Mit $\Delta n = 7.1 \times 10^{-5}$ erhält man einen Beugungswirkungsgrad von etwa 0.8, der einem Verlust von weniger als 1 dB entspricht. Für den gewählten Kanalabstand von 0.8 nm (entsprechend 100 GHz Frequenzabstand) ergibt die Theorie gekoppelter Wellen also eine Übersprechdämpfung zwischen den beiden Kanälen von etwa 30 dB.

Desweiteren ist die Winkelselektivität der Reflexionsgitter von Interesse. Dazu wird ein symmetrisches Gitter ($\zeta = 0$) betrachtet. Die Abweichung $\Delta\theta$ vom Bragg-Winkel θ_{B} im Medium läßt sich für eine konstante Verletzung der Bragg-Bedingung von $\xi = 1$ für verschiedene Bragg-Winkel unter Verwendung von Gl. (2.20) mit $\Delta\lambda = 0$ und den o. g. Werten für d und K berechnen. In diesem Fall sinkt der Beugungswirkungsgrad für ein Reflexionsgitter mit der Brechungsindexamplitude $\Delta n = 7.1 \times 10^{-5}$ von etwa 0.8 auf 0.74 ab. Nach Umrechnung der Winkel θ und $\Delta\theta$ auf die Winkel α und $\Delta\alpha$ außerhalb des Kristalls ergibt sich der in Abb. 4.3 dargestellte Verlauf des Sichtfeldes $2\Delta\alpha$ in Abhängigkeit vom Einfallswinkel α. Das Sichtfeld ist also selbst bei großen Lesewinkeln von bis zu 10° noch ausreichend, um Infrarotstrahlen mit einer Divergenz von 0.03° mit einem einzigen Reflexionsgitter vollständig abzubeugen. Kommerziell erhältliche faseroptische Komponenten ermöglichen die Auskopplung und Kollimation der Lichtwellen, so daß die Strahldivergenz diesen Wert unterschreitet. Dabei kommen als kompakte Bauelemente sogenannte Gradientenbrechungsindexlinsen (GRIN-Linsen) zum Einsatz.

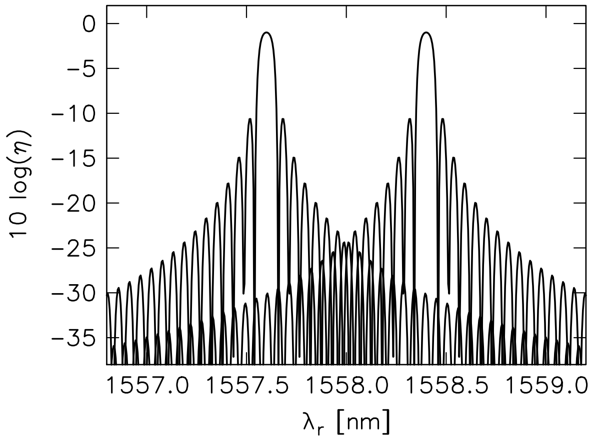


Abbildung 4.2: *Berechneter Beugungswirkungsgrad η in dB in Abhängigkeit von der Lesewellenlänge λ_r für zwei überlagerte Reflexionshologramme mit den Bragg-Wellenlängen $\lambda_1 = 1557.6\,nm$ und $\lambda_2 = 1558.4\,nm$.*

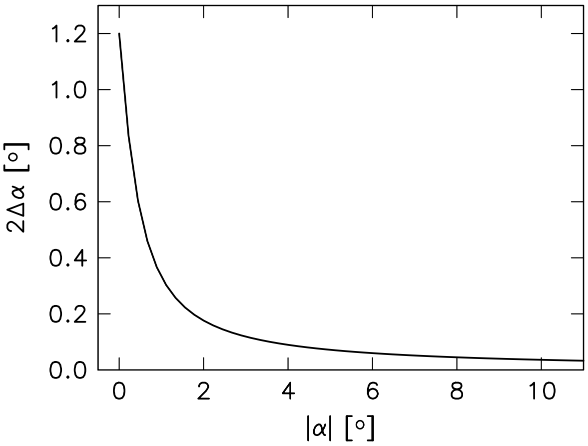


Abbildung 4.3: *Berechnetes Sichtfeld $2\Delta\alpha$ eines Reflexionshologramms, das unter verschiedenen Lesewinkeln α ausgelesen wird. Die Verstimmung der Braggbedingung durch $\Delta\alpha$ wird bei der Berechnung mit $\xi = 1$ konstant gehalten.*

4.1.2 Dynamik der Überlagerung von Reflexionshologrammen

In $LiNbO_3$-Kristallen lassen sich Raumladungsfelder bis zur Durchschlagsfeldstärke von etwa $10^7\,Vm^{-1}$ erzeugen (vgl. Kap. 3.2.3). Dies entspricht nach Gl. (2.8) einer maximal erreichbaren Brechungsindexänderung von $\Delta n_{BD} \approx 4.9 \times 10^{-4}$ für ordentlich polarisiertes Licht der Wellenlänge $\lambda_r = 1.55\,\mu m$, wenn als elektrooptischer Koeffizient ein Wert von $r_{13} = 9 \times 10^{-12}\,mV^{-1}$ angenommen wird. Dieser folgt aus dem mit steigender Wellenlänge absinkenden Wert des elektrooptischen Koeffizienten von $LiNbO_3$ für sichtbares [107] und infrarotes Licht [108] durch lineare Extrapolation.

Beim sequentiellen Schreiben mehrerer Hologramme muß berücksichtigt werden, daß ein bereits geschriebenes Gitter durch die Aufzeichnung eines weiteren Hologramms teilweise wieder gelöscht wird. Sollen alle holographischen Gitter denselben Beugungswirkungsgrad erreichen, so müssen die Bedingungen

$$\Delta n_l = \Delta n_s \,(1 - e^{-t_l/\tau}) \tag{4.1}$$

und

$$\Delta n_{l+1} = \Delta n_s \,(1 - e^{-t_{l+1}/\tau}) = \Delta n_l \, e^{-t_{l+1}/\tau} \tag{4.2}$$

für den exponentiell verlaufenden Aufbau des l-ten sowie des $(l+1)$-ten Gitters mit Δn_s als Sättigungswert der Brechungsindexänderung, den Schreibzeiten t_l und t_{l+1} sowie der Maxwell-Zeit τ erfüllt werden. Die größten Brechungsindexänderungen werden erzielt, wenn das zuerst erzeugte Gitter bis in Sättigung geschrieben wird. Dann ergeben sich für die Brechungsindexänderung des l-ten Gitters Δn_l sowie für dessen Schreibzeit t_l die Bedingungen [109]

$$\Delta n_l = \frac{\Delta n_\mathrm{s}}{l} \quad \text{und} \quad t_l = \tau \ln\left(\frac{l}{l-1}\right) . \tag{4.3}$$

Für einen Beugungswirkungsgrad von etwa 0.8 ist eine Brechungsindexänderung von $\Delta n_l = 7.1 \times 10^{-5}$ erforderlich (siehe oben). Demnach können nur sieben solcher Raumtemperaturhologramme auf diese Art überlagert werden, da die Brechungsindexamplitude des ersten Gitters vor dem Schreiben weiterer Hologramme die durch die Durchschlagsfeldstärke begrenzte elektrooptische Brechungsindexänderung nicht überschreiten kann ($\Delta n_\mathrm{s} \leq \Delta n_\mathrm{BD}$).

Beim Thermischen Fixieren stellt sich die Situation allerdings anders da: Weil das Raumladungsfeld E_sc während des Schreibprozesses kompensiert wird (vgl. Kap. 3.2.5), gibt es keine Probleme mit elektrischen Durchschlägen. Die Gleichung 4.3 gilt auch beim Thermischen Fixieren, wobei Δn_l die Brechungsindexamplitude jedes einzelnen Gitters nach Abkühlung und Entwicklung bis zur Sättigung bezeichnet. Für die Herleitung der Gl. (4.3) werden exponentielles Schreiben und Löschen der Gitter vorausgesetzt (Gl. (4.1) und (4.2)). Dies ist beim Schreiben bei hohen Temperaturen erfüllt, wobei hier allerdings zunächst *Konzentrationsgitter* gefüllter und leerer Elektronenspender (Fe^{2+} und Fe^{3+}) anstelle von *Brechungsindexgittern* geschrieben werden. Es lassen sich mit dem Thermischen Fixieren l Gitter gleicher Brechungsindexamplitude $\Delta n_l = \Delta n_\mathrm{s}/l$ aufzeichnen, auch wenn Δn_s über der Durchschlagsgrenze Δn_BD liegt, sofern jedes einzelne darunter bleibt ($\Delta n_l < \Delta n_\mathrm{BD}$).

Bis zu einem Eisengehalt von $10^{25}\,\mathrm{m}^{-3}$ wurde die in der Fe^{2+}/Fe^{3+}-Ein-Zentren-Situation in $LiNbO_3$ zu erwartende Proportionalität $\Delta n_\mathrm{s} \propto c_{Fe^{3+}}$ experimentell überprüft und bestätigt [24]. Gilt dieser Zusammenhang auch für sehr hohe $c_{Fe^{3+}}$-Werte, so läßt sich mit einer Eisenkonzentration von bis zu $10^{26}\,\mathrm{m}^{-3}$ der Sättigungswert der Brechungsindexänderung Δn_s zu etwa 3×10^{-3} berechnen. Demzufolge können etwa $l = 40$ Hologramme mit einem jeweiligen Beugungswirkungsgrad von 0.8 überlagert werden, wenn die Hologramme durch Erhitzen des $LiNbO_3$-Kristalls *während des Schreibens* thermisch fixiert werden. Zudem ist eine Steigerung der Brechungsindexamplitude Δn_s um den Faktor 1.5 durch die im Kap. 3.3 vorgestellte Methode der Entwicklung thermisch fixierter Gitter mit Pulslaserlicht möglich, so daß gegebenenfalls bis zu 60 Hologramme mit 80 % Beugungseffizienz überlagert werden könnten.

Neben dem beschriebenen sequentiellen Schreiben von Hologrammen kann bei Raumtemperatur inkrementelles Schreiben eingesetzt werden [110], um Durchschläge zu vermeiden. Dabei werden alle Hologramme kurzzeitig, aber mehrfach hintereinander geschrieben. Die Brechungsindexamplituden der Hologramme wachsen gleichmäßig, jede bleibt dabei aber unterhalb der Durchschlagsgrenze. Das Thermische Fixieren bei hohen Temperaturen hat neben der permanenten Speicherung und der Vermeidung von Durchschlägen noch einen weiteren Vorteil, der allen Raumtemperaturtechniken fehlt und der bei der Überlagerung von Hologrammen eine große Rolle spielt: Während des Schreibens bei erhöhten Temperaturen entstehen nur sehr schwache Raumladungsfelder und Brechungsindexänderungen, so daß es zu keiner effizienten Beugung des Lichts an dem schon geschriebenen Brechungsindexmuster kommt. Dieser Effekt tritt aber bei Raumtemperaturhologrammen sehr viel stärker in Erscheinung und führt zur Krümmung oder Neigung von Interferenzebenen, was eine erhebliche Reduzierung der Qualität der Hologramme zur Folge hat [111].

4.1.3 Berechnung der Schreibwinkel

Die Reflexionshologramme sollen mit Licht im dritten optischen Fenster bei $1.55\,\mu$m gelesen werden. Photorefraktives Schreiben ist in $LiNbO_3$ mit infrarotem Licht standardmäßig nicht möglich, da die Photonenenergie nicht ausreicht, um Elektronen aus den Fe^{2+}-Zentren in das Leitungsband anzuregen. Daher sollen die benötigten Hologramme mit grünem Licht der Wellenlänge 514.5 nm aufgezeichnet werden. Generell lassen sich elementare Hologramme mit Licht einer von der Schreiblichtwellenlänge λ_w abweichenden Wellenlänge λ_r auslesen, sofern durch Anpassung des Einfallswinkels des Leselichts die Bragg-Bedingung (2.10) erfüllt wird. Allerdings schränkt die Brechung die Variation des Bragg-Winkels im Kristall ein. Holographische Gitter in $LiNbO_3$-Kristallen, die infrarotes Licht mit Wellenlängen um $1.55\,\mu$m in der Reflexionsanordnung beugen sollen, erfordern deshalb die Verwendung der Transmissionsgeometrie beim Aufzeichnungsprozeß. Die Gitter müssen demnach durch zueinander senkrecht stehende Kristallflächen geschrieben bzw. ausgelesen werden. Einen Überblick über die verwendete Schreib-Lese-Geometrie für ein Reflexionsgitter für infrarotes Leselicht in $LiNbO_3$ gibt Abb. 4.4. Die darin verzeichneten Winkel gelten außerhalb des Kristalls und beziehen sich jeweils auf die Flächennormale derjenigen Kristallfläche, durch die die Lichtwellen eintreten. Die Schreibwinkel werden im folgenden mit γ_r für den Einfallswinkel des rechten und mit γ_l für den des linken Schreibstrahls bezeichnet. Für das Leselicht werden der Einfallswinkel mit α sowie der Ausfallswinkel mit β benannt.

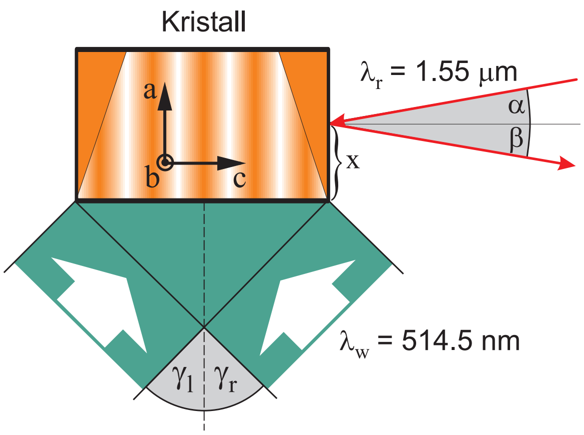


Abbildung 4.4: *Geometrie der Aufzeichnung eines holographischen Gitters mit Licht der Wellenlänge $\lambda_\mathrm{w} = 514.5$ nm (rechter und linker Schreibwinkel γ_r und γ_l) und des Lesens mit infrarotem Licht der Wellenlänge $\lambda_\mathrm{r} = 1.55\,\mu$m (Einfallswinkel α, Ausfallswinkel β). Aufgrund der Brechung nimmt die effektive Dicke des Reflexionsgitters (Länge entlang der c-Achse) entlang der a-Achse des Kristalls (zunehmendes x) ab.*

Beim Thermischen Fixieren wird der $LiNbO_3$-Kristall während des Schreibprozesses auf eine Temperatur T_w von etwa 180 °C erhitzt. Ein bei dieser Temperatur erzeugtes Gitter soll später bei der in der Nähe der Raumtemperatur liegenden Betriebstemperatur

T_r als Demultiplexer genutzt werden. Der Kristall dehnt sich bei Erwärmung aus, und außerdem kann der Brechungsindex von der Temperatur abhängen. Die Wellenlänge λ_r, der Einfallswinkel α und der Ausfallswinkel β sind durch die Anwendung vorgegeben. Die Schreibwinkel γ_r und γ_l sind dann so zu wählen, daß die thermischen Effekte ausgeglichen werden. Die Gleichungen zur geeigneten Berechnung der Schreibwinkel unter Berücksichtigung der Temperaturdifferenz ΔT zwischen Aufzeichnung und Auslesen eines Reflexionshologramms sind im Anhang A.2 aufgeführt.

4.2 Experimentelle Methoden

4.2.1 Kristalle

Für die Aufzeichnung von Reflexionshologrammen wird eisendotiertes $LiNbO_3$ der kongruenten Zusammensetzung verwendet, das von der Deltronic Crystal Industries, Inc. (Dover NJ, U.S.A.) gezüchtet wurde. Es steht Material aus zwei Zuchtversuchen (DT1 und DT2) zur Verfügung. Rohabschnitte der gezogenen Kristalle mit je 75 mm Durchmesser wurden in der Kristallzuchtabteilung der Universität Osnabrück zugeschnitten und poliert. Bei den Kristallen DT1-02, DT1-03 und DT2-03 wurden zusätzliche Polituren einer a- sowie einer c-Fläche durch das Forschungsinstitut für mineralische und metallische Werkstoffe, Edelsteine/Edelmetalle GmbH (FEE), Idar-Oberstein, ausgeführt. Die Abmessungen der verwendeten Kristalle sind aus Tab. 4.1 ersichtlich.

Abbildung 4.5 zeigt die mit einem Fizeau-Interferometer aufgenommenen Interferogramme ($\lambda = 633\,\mathrm{nm}$) einer a-Fläche des Kristalls DT1-02 vor bzw. nach der Politur durch das FEE. Die daraus ersichtliche deutliche Verbesserung der Oberflächenqualität ist repräsentativ für alle nachpolierten Kristalloberflächen, deren Ebenheit besser als $\lambda/5$ auf mehr als 80 % der Fläche ist. Der Kristall DT1-02 wird sowohl vor als auch nach der Politur durch das FEE zur Aufzeichnung von Reflexionshologrammen verwendet. Um anzuzeigen, ob die im folgenden vorgestellten Ergebnisse vor bzw. nach der Nachpolitur des Kristalls DT1-02 erzielt werden, wird für alle bei verbesserter Oberflächenebenheit durchgeführten Experimente die Kristallbezeichnung DT1-02(P) benutzt. Es sei darauf hingewiesen, daß bei allen Schreib- und Leseexperimenten das Licht durch die nachpolierten Flächen in die Kristalle eintritt.

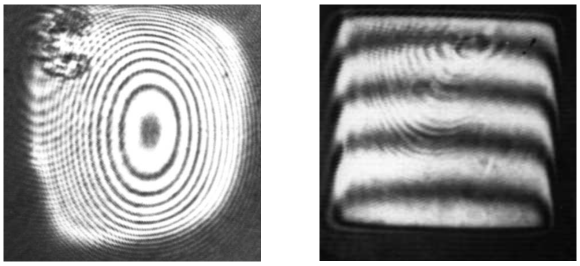


Abbildung 4.5: *Interferogramme einer a-Fläche des Kristalls DT1-02 vor (links) bzw. nach der Politur (rechts) durch das FEE Idar-Oberstein, aufgenommen mit einem Fizeau-Interferometer ($\lambda = 633\,\mathrm{nm}$). Die rückseitige Fläche scheint in beiden Fällen durch.*

Die in Tab. 4.1 verzeichneten Werte der Gesamteisenkonzentration c_{Fe} werden aus den Angaben des Kristallherstellers über den Zusatz an Fe_2O_3 zur $LiNbO_3$-Schmelze errechnet.

Die Kristalle geringerer Gesamteisenkonzentration (DT1-Serie) befinden sich im *as grown*-Zustand. Dagegen wird der Reduktionszustand des Kristalls DT2-03 durch Oxidation bei 1030 °C für 30 h in feuchter Sauerstoffatmosphäre und anschließende Reduktion bei 800 °C für 1.5 h in feuchter Argonatmosphäre eingestellt. Durch Absorptionsmessungen bei 477 nm bzw. bei 2870 nm lassen sich die ebenfalls in Tab. 4.1 eingetragenen Werte des Konzentrationsverhältnisses $c_{Fe^{2+}}/c_{Fe^{3+}}$ bzw. der Protonenkonzentration c_{H^+} ermitteln (vgl. Kap. 3.2.2).

Bezeichnung	Maße [mm]			c_{Fe}	$c_{Fe^{2+}}/c_{Fe^{3+}}$	c_{H^+}
	a	b	c	$[10^{24}\,m^{-3}]$		$[10^{24}\,m^{-3}]$
DT1-01	4.9	10.3	9.8	5	0.12	–
DT1-02	9.8	10.2	9.9	5	0.12	2
DT1-03	9.7	10.1	10.0	5	0.12	–
DT2-03	5.4	10.1	10.1	50	0.02	5

Tabelle 4.1: *Bezeichnung, Abmessungen, Gesamteisenkonzentration c_{Fe} laut Angaben des Herstellers Deltronic Crystal Industries, Inc. (Dover NJ, U.S.A.), Fe^{2+}/Fe^{3+}-Konzentrationsverhältnis $c_{Fe^{2+}}/c_{Fe^{3+}}$ sowie Protonengehalt c_{H^+} der zur Aufzeichnung von Reflexionshologrammen verwendeten $LiNbO_3$-Kristalle.*

4.2.2 Schreiben von Reflexionshologrammen

Zweistrahlinterferenzaufbau

Zur Erzeugung der elementaren Hologramme dient ein Zweistrahlinterferenzaufbau, der in Abb. 4.6 schematisch dargestellt ist. Das Licht eines Ar^+-Lasers der Wellenlänge $\lambda_w = 514.5$ nm wird durch einen Strahlteiler in zwei Strahlen gleicher Intensität aufgeteilt. Die c- und die a-Achse des Kristalls, in dem ein Hologramm aufgezeichnet werden soll, liegen in der durch die beiden Schreibstrahlen festgelegten Einfallsebene.

Um mehrere Gitter mit unterschiedlichen Gitterkonstanten Λ sowie unterschiedlichen Orientierungen des Gittervektors $\mathbf{K}$ überlagern zu können, müssen die Einfallswinkel der Schreibstrahlen γ_r und γ_l (vgl. Abb. 4.4) unabhängig voneinander einstellbar sein. Der Öffnungswinkel $\gamma_r + \gamma_l$ läßt sich variieren, indem der linke der beiden Schreibstrahlen – im folgenden als drehbarer Strahl bezeichnet – durch eine polarisationserhaltende Monomodefaser geführt wird. Eine Halbwellenplatte (HWP1, siehe Abb. 4.6) sorgt für die optimale Anpassung der Polarisationsrichtung des Lichts an eine der optischen Achsen der Faser bei der Einkopplung durch den Faserkoppler FK1. Bei der Auskopplung (FK2) liegt linear polarisiertes Licht mit einem Polarisationsgrad von mehr als 100:1 vor, das nach Passage der Halbwellenplatte HWP2 senkrecht zur Einfallsebene und damit in bezug auf die optische Achse des Kristalls ordentlich polarisiert ist. Der verbleibende fehlpolarisierte Anteil wird über den polarisierenden Strahlteiler ST4 auf einen Photodetektor (PD4) gelenkt. Dessen Signal wird durch Drehung der schrittmotorangetriebenen Halbwellenplatten minimiert,

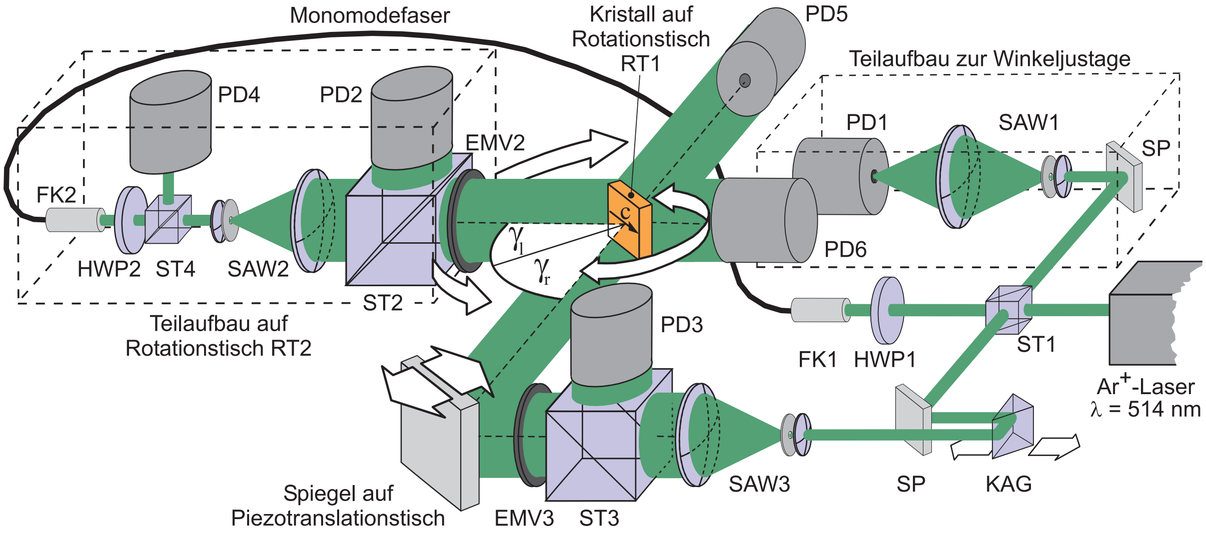


Abbildung 4.6: *Schematische Darstellung des Zweistrahlinterferenzaufbaus zur Überlagerung mehrerer holographischer Gitter mit unterschiedlichen Gitterkonstanten und -orientierungen bei erhöhten Schreibtemperaturen. Der im rechten gestrichelten Kasten dargestellte Teilaufbau dient der exakten Justage des Öffnungswinkels* $\gamma_r + \gamma_l$ *zwischen den Schreibstrahlen unter Verwendung eines 90°-Prismas anstelle des Kristalls (siehe Text). Zur Änderung des Öffnungswinkels lassen sich alle im linken gestrichelten Kasten dargestellten Komponenten mittels eines Rotationstisches um den Kristall drehen. Ein zweiter Rotationstisch unter dem Kristall ermöglicht die Variation der Einfallswinkel* γ_r *bzw.* γ_l *zwischen den Schreibstrahlen und der a-Flächennormalen des Kristalls. Bis auf den Laser befindet sich der gesamte Aufbau in einem Vakuumrezipienten. Folgende Bezeichnungen werden benutzt:* EMV, *elektromagnetischer Verschluß;* FK, *Faserkoppler;* HWP, *Halbwellenplatte;* KAG, *Kohärenzabgleich;* PD, *Photodetektor;* RT, *Rotationstisch;* SAW, *Strahlaufweitung mit Raumfrequenzfilter;* SP, *Spiegel;* ST, *Strahlteiler.*

um den Polarisationsgrad sowie die Richtung der Polarisation des ausgekoppelten Lichts zu optimieren, falls die Lage der optischen Achse der Monomodefaser durch Bewegung oder Druckänderung variiert. Die Transmission der polarisationserhaltenden Monomodefaser liegt bei den verwendeten Lichtleistungen am Fasereingang von bis zu etwa 500 mW bei etwa 60 %.

Der drehbare Schreibstrahl wird raumfrequenzgefiltert und auf einen $1/e^2$-Durchmesser von etwa 30 mm aufgeweitet (SAW2), bevor er einen Monitorstrahlteiler (ST2) passiert. Zur Intensitätsprotokollierung lenkt dieser etwa ein Prozent der Intensität I_l auf den Photodetektor PD2. Ein elektromagnetischer Verschluß (EMV2) hinter dem Monitorstrahlteiler ermöglicht die exakte Kontrolle der Beleuchtungszeit. Der Faserkoppler FK2 und alle nachfolgenden Komponenten des drehbaren Strahls sind auf einer optischen Bank montiert und lassen sich mittels eines Rotationstisches (RT2) in der Ausbreitungsebene der Schreibstrahlen um den Kristall drehen (siehe Abb. 4.6, linker gestrichelter Kasten), so daß der Öffnungswinkel zwischen den beiden Schreibstrahlen variiert werden kann.

Der ordentlich polarisierte raumfeste Strahl wird analog zum beweglichen Strahl raumfrequenzgefiltert und aufgeweitet (SAW3). Seine Intensität I_r wird durch den Monitorstrahlteiler ST3 und den Photodetektor PD3, die vor dem elektromagnetischen Verschluß EMV3 angeordnet sind, ermittelt. Mit einem auf einem Piezotranslator montierten Spiegel wird der aufgeweitete Strahl auf den Kristall gelenkt wird. Durch Translation des Spiegels kann die Phase des Schreibstrahls beeinflußt werden.

Der Kristall befindet sich in einem elektrisch heizbaren Halter, dessen obere Spannbacke federnd gelagert ist, um eine Ausdehnung des Kristalls während der Erwärmung zu ermöglichen. Mit der mikroprozessorgesteuerten Heizung lassen sich Kristalltemperaturen bis zu 200 °C mit einer absoluten Genauigkeit von $\pm$ 3 °C und einer Temperaturstabilität von $\pm$ 0.1 °C erreichen. Ein unter dem Kristallhalter montierter Drehtisch (RT1) ermöglicht die Rotation des Kristalls in der Ausbreitungsebene und damit die Variation der Lage des Gittervektors im Kristall. Somit lassen sich durch die Rotation des drehbaren Strahls mittels des Drehtisches RT2 und durch Drehung des Kristalls mit dem Drehtisch RT1 frei wählbare Schreibwinkel γ_r und γ_l einstellen. Die Photodetektoren PD5 und PD6 nehmen die transmittierten Intensitäten des drehbaren Strahls $I_{l,T}$ bzw. des raumfesten Strahls $I_{r,T}$ auf.

Mit Hilfe eines auf einem Translationstisch montierten Retroprismas läßt sich die optische Weglänge des raumfesten Strahls variieren, um einen Kohärenzabgleich vorzunehmen (Abb. 4.6, KAG). Sie wird so eingestellt, daß der Modulationsgrad der am Kristallort erzeugten Interferenz ein Maximum annimmt. Der Abgleich bewirkt, daß die optischen Weglängen der beiden Schreibstrahlen sich genau um die zweifache Resonatorlänge $2\,l_{\mathrm{Res}}$ des Ar^+-Lasers unterscheiden. Dabei wird ausgenutzt, daß die Kohärenzfunktion periodisch in $2\,l_{\mathrm{Res}}$ verläuft. Auf diese Art kann der durch die Glasfaser bedingte lange optische Weg des drehbaren Schreibstrahls ausgeglichen werden, ohne daß der raumfeste Schreibstrahl über eine lange Verzögerungsstrecke geführt wird, wodurch ansonsten Instabilitäten erzeugt werden könnten.

Das lokale Aufheizen des Kristalls hat eine Temperaturänderung der umgebenden Luft zur Folge. Die resultierende Konvektion führt zu Brechungsindexfluktuationen, die die ebenen Wellenfronten der Schreibwellen beeinflussen und die Qualität der erzeugten Gitter herabsetzen [88]. Aus diesem Grund wird der gesamte Zweistrahlinterferenzaufbau evakuiert. Nur der Ar^+-Laser befindet sich außerhalb des Vakuumrezipienten. Durch die Evakuierung des Aufbaus wird der Einfluß von Temperaturschwankungen auf die optische Weglänge der Monomodefaser, die bei Raumtemperatur zu Phasenfluktuationen führen, ebenfalls verringert, wenn sich die Faser nach einiger Zeit an den neuen Umgebungsdruck angepaßt hat. Ein Restdruck unterhalb von 1 mbar bleibt auch nach Abschalten der Vakuumpumpe über einen Zeitraum von mehreren Stunden erhalten. Bei der Evakuierung des Rezipienten darf der holographische Aufbau nicht dejustiert werden. Insbesondere die im Rezipienten befindliche Einkopplung in die Monomodefaser (Kerndurchmesser 3.4 μm) sowie die Raumfrequenzfilter mit einem Durchmesser von 10 μm stellen sehr hohe Anforderungen an die mechanische Stabilität des Rezipienten. Dieser wurde deshalb aus 10 mm starken Stahlklöppelböden mit einem Durchmesser von 1 m, wie sie normalerweise zum Bau von Flüssiggastanks Verwendung finden, hergestellt. Eine kardanische Aufhängung der den holographischen Aufbau tragenden optischen Bank soll die Übertragung der mechanischen Deformation des Rezipienten auf den Aufbau während des Abpumpens verringern.

Beim Evakuieren des Rezipienten ändert sich die Lage der optischen Achse der polarisationserhaltenden Monomodefaser erheblich. Demzufolge müssen die schrittmotorangetriebenen Halbwellenplatten HWP1 und HWP2 im Vakuum nachgestellt werden, damit die Intensität des drehbaren Strahls I_l nicht sinkt. Die optimale Repositionierung der Halbwellenplatten erfolgt mit Hilfe eines Personal-Computers, der auch den gesamten Ablauf eines Schreibexperiments steuert, innerhalb weniger Sekunden. Als Regelsignal wird die Intensität am Photodetektor PD4 verwendet. Der Testbetrieb eines Michelson-Interferometers vor und nach dem Abpumpen ergibt dann nur geringfügige Änderungen der Intensitäten I_r und I_l von wenigen Prozent sowie Änderungen des Öffnungswinkels $\gamma_r+\gamma_l$, die kleiner als $2\times10^{-3}\,°$ bleiben. Damit ist gewährleistet, daß die exakte Justage der Spiegel und der Strahlaufweitungen, die bei geöffnetem Rezipienten unter Normaldruck stattfindet, durch das Evakuieren auf etwa 1 mbar nur geringfügig beeinflußt wird.

Abbildung 4.7 zeigt schematisch die Draufsicht auf den holographischen Schreibaufbau, um zu verdeutlichen, daß die Drehung eines Schreibstrahls und die Drehung des Kristalls die Variation der Raumfrequenz und der Orientierung des erzeugten Gitters ermöglichen. Die Drehwinkel des Kristalls und des beweglichen Schreibstrahls werden dabei mit γ_{RT1} und γ_{RT2} bezeichnet.

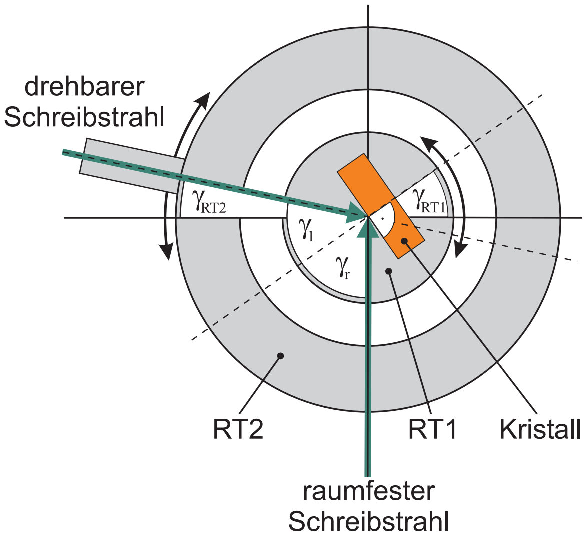


Abbildung 4.7: *Schematische Darstellung der Draufsicht auf den holographischen Schreibaufbau. Durch Drehung des Kristalls mit dem Drehtisch* RT1 *(Drehwinkel γ_{RT1}) und Drehung eines Schreibstrahls mit dem Drehtisch* RT2 *(Drehwinkel γ_{RT2}) lassen sich die Schreibwinkel γ_r und γ_l und damit die Raumfrequenz und die Orientierung des im Kristall erzeugten Gitters variieren. Raumfeste Achsen sind durchgezogen, drehbare dagegen gestrichelt gezeichnet.*

Schreibwinkeljustage

Die Justage der Schreibwinkel γ_r und γ_l zur Erzeugung von Reflexionshologrammen für infrarotes Licht der Wellenlänge λ_r um $1.55\,\mu$m durch Schreiblicht der Wellenlänge $\lambda_w = 514.5$ nm erfordert ein hohes Maß an Präzision, wenn die Winkel, unter denen das infrarote Licht einfallen und abgebeugt werden soll, vorgegeben sind. Für symmetrische Schreibwinkel ($\gamma_r = \gamma_l$) und 180°-Bragg-Reflexion des infraroten Lichts (vgl. Abb. 4.4, $\alpha = \beta = 0$) wird beispielsweise eine Verschiebung der Bragg-Wellenlänge um $\Delta\lambda_\mathrm{r} = 0.1\,\mathrm{nm}$ schon durch einen Fehlwinkel von $\Delta\gamma_\mathrm{r} \approx 4 \times 10^{-3}\,^\circ$ erreicht. Aus diesem Grund ist neben einer ausreichenden Winkelauflösung der Rotationstische RT1 und RT2, die jeweils $1 \times 10^{-5}\,^\circ$ beträgt, ein geeignetes Verfahren nötig, um diese Winkel mit der geforderten Präzision einzustellen.

Da die Schreibwinkel γ_r und γ_l durch die Ausbreitungsrichtungen der Schreibstrahlen sowie die Oberflächennormale der a-Fläche des Kristalls definiert sind, wird ein Autokollimationsverfahren zur exakten Schreibwinkelbestimmung verwendet. Ein hochwertiges Eichprisma (Ebenheit $\lambda/20$, Kathetenwinkel $(90 \pm 1 \times 10^{-3})\,^\circ$) wird anstelle des Kristalls auf dem Rotationstisch RT1 positioniert, so daß die Kathetenfächen parallel zur Drehachse verlaufen. Die $180\,^\circ$-Reflexion der einfallenden Schreibstrahlen an den aluminiumverspiegelten Kathetenflächen wird zur Justage genutzt. Bei exakter Retroreflexion passieren die reflektierten Strahlen jeweils die raumfrequenzfilternde Strahlaufweitung in umgekehrter Richtung und werden mittels des Strahlteilers ST1 in ein weiteres Raumfrequenzfilter gelenkt (siehe Abb. 4.6, rechter gestrichelter Kasten). Die Gesamtintensität I_AK hinter der Srahlaufweitung SAW1 wird durch einen Photodetektor (PD1) aufgenommen.

Zunächst wird I_AK für den raumfesten Strahl maximiert. Dazu wird das Prisma mittels des Rotationstisches RT1 gedreht sowie senkrecht zur RT1-Drehachse verkippt. Zusätzlich ist der Abstand zwischen dem Raumfrequenzfilter und der größeren der beiden Linsen der Strahlaufweitung SAW3 zu optimieren, um die Divergenz des raumfesten Schreibstrahls zu minimieren. Dadurch werden die Beugungsphänomene, die bei der Passage des Raumfrequenzfilters SAW1 entstehen, deutlich verringert. Mittels dieses Justageverfahrens kann eine der beiden Kathetenflächen des Prismas mit einer Genauigkeit von etwa $\pm 1 \times 10^{-3}\,^\circ$ senkrecht zum raumfesten Strahl positioniert werden. In Abb. 4.8 ist das typische Ergebnis der Messung der Intensität I_AK aufgrund der Retroreflexion des raumfesten Schreibstrahls an einer der Kathetenflächen des Prismas in Abhängigkeit vom Winkel γ_RT1 des Rotationstisches RT1 dargestellt.

Anschließend wird der drehbare Strahl durch analoge Justage der Strahlaufweitung SAW2 bzw. des Rotationstisches RT2 senkrecht zur anderen Kathetenfläche des Prismas eingestellt. Die Justage des drehbaren Schreibstrahls erweist sich im Vergleich zum raumfesten Strahl als schwieriger, da das reflektierte Licht zusätzlich zum Raumfrequenzfilter der Strahlaufweitung SAW2 auch die Monomodefaser durchlaufen muß. Es entstehen keine Beugungsbilder hinter der Strahlaufweitung SAW1, die im Fall des raumfesten Strahls die Justage erleichtern, und die Intensität I_AK ist für diesen Strahl um den Faktor 10 kleiner. Dennoch ist auch der drehbare Strahl mit einer Genauigkeit von $\pm 1 \times 10^{-3}\,^\circ$ senkrecht zur zweiten Kathetenfläche des Prismas einstellbar, wie aus Abb. 4.9, in der eine typische Messung von I_AK bei Drehung des Rotationstisches RT2 dargestellt ist, ersichtlich wird. Mit Hilfe des Prismas läßt sich somit der Öffnungswinkel der beiden Schreibstrahlen auf $\gamma_\mathrm{r} + \gamma_\mathrm{l} = 90\,^\circ$ mit einem Größtfehler von $3 \times 10^{-3}\,^\circ$ einstellen.

Nach dem Austausch des Prismas gegen den Kristall wird dieser in die symmetrische Position gebracht. Beide elektromagnetischen Verschlüsse sind geöffnet, so daß der raumfeste Strahl über die Kristalloberfläche in den drehbaren Strahl und der drehbare analog dazu in den raumfesten Strahl reflektiert werden. Die Intensität I_AK wird optimiert, indem der Rotationstisch RT1 gedreht bzw. der Kristall senkrecht zur RT1-Drehachse

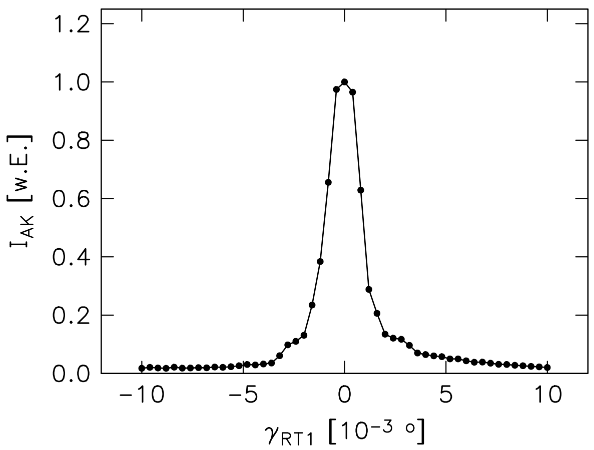


Abbildung 4.8: *Durch Retroreflexion des raumfesten Strahls am Eichprisma gemessene Intensität I_{AK} am Photodetektor* PD1 *für verschiedene Winkel γ_{RT1} des Rotationstisches* RT1*. Die durchgezogene Linie dient der Augenführung.*

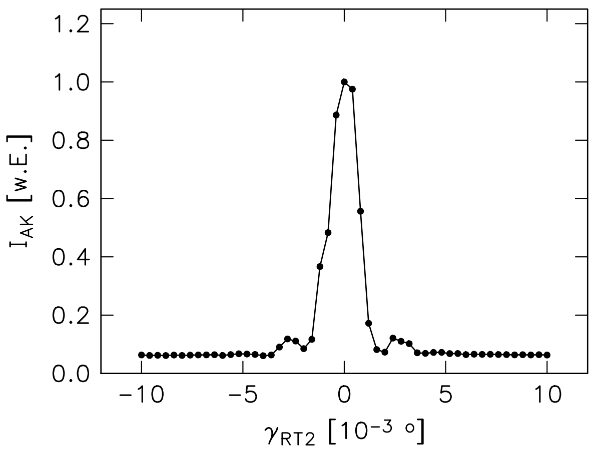


Abbildung 4.9: *Durch Retroreflexion des drehbaren Strahls am Eichprisma gemessene Intensität I_{AK} am Photodetektor* PD1 *für verschiedene Winkel γ_{RT2} des Rotationstisches* RT2*. Die durchgezogene Linie dient der Augenführung.*

verkippt werden. In Abb. 4.10 ist ein typisches Ergebnis der I_{AK}-Messung des Kristalls in Abhängigkeit vom Drehwinkel des Rotationstisches RT1 aufgetragen. Im Maximum gilt $\gamma_r = \gamma_l = 45\,°$. Die symmetrische Kristallposition kann für diese Schreibwinkel somit mit einer Genauigkeit von $|\gamma_r - \gamma_l| \leq 2 \times 10^{-3}\,°$ eingestellt werden. Dieser Wert ist allerdings nur mit Kristallen zu erreichen, die eine Ebenheit der a-Fläche von $\lambda/5$ oder besser aufweisen. Bei einer gekrümmten Oberfläche, wie sie beispielsweise in Abb. 4.5 (links) dokumentiert ist, tritt starke Lichtbeugung an den Raumfrequenzfiltern auf, die eine exakte Winkelpositionierung erschwert.

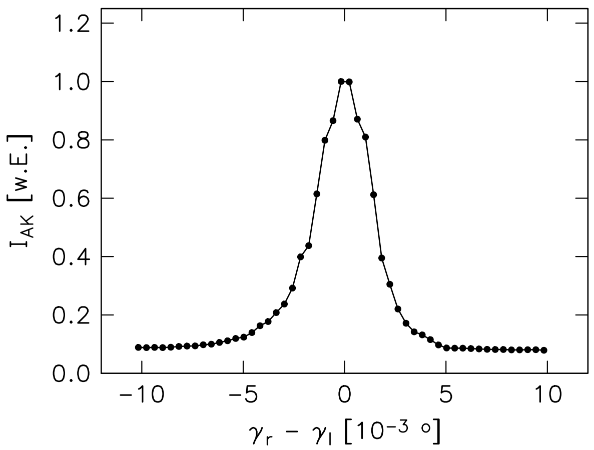


Abbildung 4.10: *Durch Reflexion beider Schreibstrahlen am Kristall gemessene Intensität I_{AK} am Photodetektor* PD1 *für verschiedene Winkel $\gamma_r - \gamma_l$, wobei der Rotationstisch* RT1 *um die symmetrische Position gedreht wird. Die reflektierende Kristalloberfläche besitzt eine Ebenheit von $\lambda/5$. Die durchgezogene Linie dient der Augenführung.*

Die mit dem Autokollimationsverfahren kalibrierten Schreibwinkel mit $\gamma_\mathrm{r} + \gamma_\mathrm{l} = (90 \pm 3 \times 10^{-3})\,^\circ$ und $|\gamma_\mathrm{r} - \gamma_\mathrm{l}| \leq 2 \times 10^{-3}\,^\circ$ dienen als Ausgangsposition zur abschließenden Einstellung der in den Schreibexperimenten verwendeten Schreibwinkel γ_r bzw. γ_l zwischen $43\,^\circ$ und $50\,^\circ$. In einem Winkelbereich von $3.5\,^\circ$ wird der größte Winkelfehler bei einer Relativbewegung der verwendeten Drehtische vom Hersteller mit $1 \times 10^{-3}\,^\circ$ für den Rotationstisch RT1 sowie $3 \times 10^{-3}\,^\circ$ für den Rotationstisch RT2 angegeben [112]. Damit läßt sich der Öffnungswinkel $\gamma_\mathrm{r} + \gamma_\mathrm{l}$ mit Hilfe des Autokollimationsverfahrens unter Berücksichtigung der relativen Fehler bei der abschließenden Positionierung mit einer Genauigkeit von $4 \times 10^{-3}\,^\circ$ einstellen. Der daraus folgende Größtfehler bei der Einstellung der einzelnen Schreibwinkel γ_r bzw. γ_l liegt für Kristalle mit einer $\lambda/5$-Oberfläche bei $9 \times 10^{-3}\,^\circ$. Im folgenden gilt dieser Fehler für alle Schreibwinkel, die mit einer Präzision von drei Dezimalstellen angegeben werden. Bei Kristallen mit ungenügend ebenen a-Flächen wird der Größtfehler bei der Einstellung der Schreibwinkel mit 5×10^{-2} abgeschätzt, in diesem Fall werden nur zwei Dezimalstellen genannt.

Phasenstabilisierung

Um Hologramme auch bei großer Schreibdauer reproduzierbar aufzeichnen zu können, ist eine aktive Phasenstabilisierung des Interferenzmusters erforderlich. Die Grundlagen des auf der Kopplung der Schreibstrahlen basierenden Phasenstabilisierungsverfahrens sind bereits im Kap. 2.2.3 vorgestellt worden. Dieses Verfahren ist nicht nur auf Raumtemperaturhologramme anwendbar, sondern funktioniert auf bei erhöhten Temperaturen [113]. Es muß lediglich die Voraussetzung erfüllt sein, daß sich während des Schreibprozesses eine ausreichend starke Brechungsindexamplitude aufbaut, damit es zur Lichtbeugung und somit zur Strahlkopplung kommen kann. Selbst bei einem $LiNbO_3$-Kristall mit der moderaten Gesamteisenkonzentration von $c_\mathrm{Fe} = 7 \times 10^{24}\,\mathrm{m}^{-3}$, einem $c_{\mathrm{Fe}^{2+}}/c_{\mathrm{Fe}^{3+}}$-Verhältnis von 0.07, der verhältnismäßig großen Protonenkonzentration von $c_{\mathrm{H}^+} = 3.3 \times 10^{24}\,\mathrm{m}^{-3}$ und einer Schreiblichtintensität von $800\,\mathrm{Wm}^{-2}$ stellt sich bei einer Temperatur von $160\,^\circ\mathrm{C}$ noch eine Brechungsindexamplitude von $\Delta n_\mathrm{o} \approx 1.5 \times 10^{-6}$ für ordentlich polarisiertes Licht der Wellenlänge 633 nm ein [113], obwohl die große Protonenkonzentration für eine vergleichsweise schnelle und annähernd vollständige Kompensation des Raumladungsfelds sorgt. Ist die Kristalldicke d groß genug, so nimmt der Kopplungsparameter ν (Gl. (2.23)) auch bei hohen Temperaturen einen ausreichend großen Wert an. Die Phase eines der beiden Schreibstrahlen wird mit der Kreisfrequenz ω moduliert. Die Amplituden der ersten und der zweiten Harmonischen bezüglich ω lassen sich mit Lock-In-Verstärkern messen. Die Amplitude der zweiten Harmonischen $I^{2\omega}$ wird zur Phasenstabilisierung genutzt, während I^{ω} zu Messung der Brechungsindexänderung $\Delta n \propto \nu$ und damit zur Kontrolle der fehlerfreien Funktion der Phasenstabilisierung aufgezeichnet wird (Gl. (2.25) und (2.26)).

Zur Realisierung der Phasenstabilisierung werden der auf einem Piezotranslator montierte Spiegel des raumfesten Schreibstrahls (vgl. Abb. 4.6) mit einer Kreisfrequenz von $\omega = 989\,\mathrm{Hz}$ harmonisch bewegt und die Intensität des transmittierten raumfesten Strahls $I_\mathrm{r,T}$ detektiert. Die durch die periodische optische Weglängenänderung hervorgerufene Phasenmodulation besitzt eine Amplitude von etwa 0.5 rad. Die Amplitude $I^{2\omega}$ der zweiten Harmonischen der Intensität $I_\mathrm{r,T}$ wird mit einem Lock-In-Verstärker bei einer Integrationszeit von 30 ms gemessen, proportional verstärkt und mittels eines Integrators auf den

Steuereingang des Piezospiegels gegeben. Durch Anpassung des Proportionalitätsfaktors wird bei jedem Schreibexperiment die Ansprechzeit der Stabilisierung optimiert, so daß Störungen der Phasenlage des Interferenzmusters, das die beiden Schreibstrahlen erzeugen, schnellstmöglich durch ein Nachschieben des Piezospiegels kompensiert werden. Bei zu großer Verstärkung kann es jedoch zu einem Übersteuern der Stabilisierung kommen, und der Piezospiegel fährt über die optimale Position hinaus. Tritt dieser Fall ein, so ist der Proportionalitätsfaktor auf Kosten der Antwortzeit zu reduzieren.

Die Amplitude der ersten Harmonischen I^{ω} wird mit einem zweiten Lock-In-Verstärker (Integrationszeit 30 ms) während des gesamten, teilweise mehrere Stunden dauernden Schreibexperiments gemessen. Der Verlauf von I^{ω} gibt Aufschluß über das Fortschreiten des Schreibvorgangs und die Funktion der Stabilisierung: Störungen der Phasenlage ϕ führen zu einer Änderung der Amplitude der ersten Harmonischen I^{ω} (Gl. (2.25)); bei einer Phasenstörung um $\Delta\phi = \pi$ wechselt I^{ω} sogar das Vorzeichen. Somit gibt die Protokollierung von I^{ω} die Möglichkeit, die Phasenstabilität der Interferenzmusterposition auf dem Kristall während des gesamten Aufzeichnungsprozesses zu bewerten. Zudem werden die Intensitäten der beiden Schreibstrahlen vor dem Kristall, I_{r} und I_{l}, während des Schreibexperiments mittels der Monitorphotodioden aufgenommen. In Abb. 4.11 sind diese Intensitäten sowie die Amplitude der ersten Harmonischen I^{ω} in Abhängigkeit von der Schreibdauer für ein typisches Schreibexperiment im Kristall DT2-03 bei einer Temperatur von 180 °C dargestellt. Die Pfeile in Abb. 4.11 kennzeichnen den Einfluß der automatisierten Justage der Halbwellenplatten zur Polarisationsoptimierung, die die Intensität I_{l} maximiert, jedoch gelegentlich eine Störung des Schreibprozesses hervorruft. Das I^{ω}-Signal bricht dann kurzzeitig ein, bis die Phasenstabilisierung die Störung kompensiert.

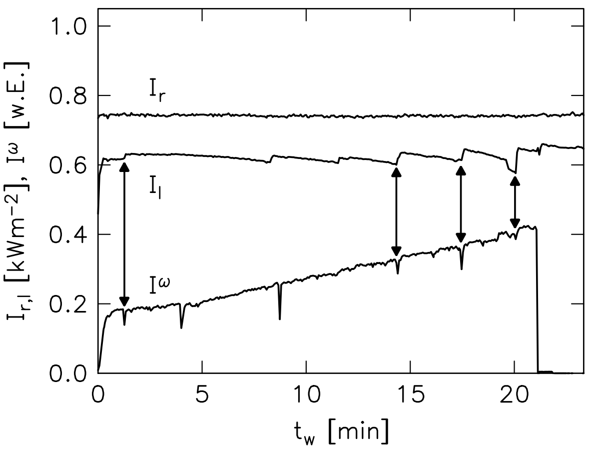


Abbildung 4.11: *Schreiblichtintensitäten I_{r} und I_{l} sowie erste Harmonische I^{ω} eines typischen Aufzeichnungsprozesses im Kristall DT2-03 bei einer Kristalltemperatur von $T_{\mathrm{w}} = 180$ °C. Die Pfeile kennzeichnen den Einfluß der automatisierten Polarisationsoptimierung, die die Intensität I_{l} maximiert und gelegentlich eine Störung des Schreibprozesses hervorruft, so daß das I^{ω}-Signal kurzzeitig einbricht, bis die Phasenstabilisierung die Störung kompensiert.*

Die Phasenstabilisierung funktioniert allerdings nicht mehr, sobald die Brechungsindexamplitude so groß ist, daß das gesamte Licht eines Schreibstrahls in den anderen abgebeugt wird [58]. Bei der Aufzeichnung von Hologrammen bei erhöhter Temperatur tritt dieser Fall nicht ein, wohl aber bei Raumtemperatur. Um dies zu vermeiden, wird beim phasenstabilisierten Schreiben von Raumtemperatur-Reflexionshologrammen ein Neutralglasfilter vor dem Kristall plaziert, das die Intensität im oberen Drittel des Kristalls um 90 % vermindert. Das Strahlkopplungssignal dieses dunkleren Kristallbereichs wird dann zur Phasenstabilisierung genutzt. Aufgrund einer geringeren Lichtintensität wächst die Brechungsindexamplitude in dem für die Stabilisierung genutzten kleinen Kristallausschnitt zehnfach langsamer. Durch diese Verfahrensweise arbeitet die Phasenstabilisierung bei der Aufzeichnung von Raumtemperaturhologrammen zehnfach länger und ermöglicht so die Erzeugung erheblich stärkerer Brechungsindexänderungen.

Ablauf eines Schreibexperiments

Der Ablauf eines Schreibexperiments zur Erzeugung thermisch fixierter Hologramme soll nach der Vorstellung des experimentellen Aufbaus und der Schreibwinkeljustage sowie der Erläuterung der aktiven Phasenstabilisierung an dieser Stelle zusammengefaßt werden:
Nach der Kalibrierung des Öffnungswinkels $\gamma_{\mathrm{r}} + \gamma_{\mathrm{l}}$ mit dem Eichprisma wird der Kristall symmetrisch einjustiert, so daß beide Schreibwinkel $45\,°$ betragen. Anschließend werden die gewünschten Winkelpositionen für γ_{r} und γ_{l} angefahren. Für die Aufzeichnung bei erhöhten Temperaturen wird der Rezipient auf etwa 1 mbar evakuiert und die Kristalltemperatur mittels des heizbaren Kristallhalters und des Regelkreises auf den vorgesehenen Wert eingestellt. Anschließend übernimmt ein Personal-Computer die Steuerung des Beleuchtungsprozesses. Für die vorgewählte Beleuchtungsdauer werden die elektromagnetischen Verschlüsse geöffnet und der Kristall beleuchtet, während die aktive Phasenstabilisierung betrieben und die Werte der Intensitäten I_{r} und I_{l} sowie der Amplitude der ersten Harmonischen I^{ω} aufgenommen werden. Während des Aufzeichnungsprozesses sorgt die automatisierte Justage der Halbwellenplatten für eine annähernd konstante Intensität I_{l} (Polarisationsoptimierung). Nach Ablauf der Beleuchtungsdauer werden die elektromagnetischen Verschlüsse geschlossen. Ein weiteres Gitter kann überlagert werden, indem innerhalb von etwa 1 min neue Schreibwinkel angefahren und die computergesteuerte Beleuchtung erneut gestartet werden. Nach dem Schreiben des letzten Gitters wird die Kristallheizung abgestellt. Der Kristall kühlt innerhalb von 3 min von 180 °C auf 120 °C und innerhalb weiterer 15 min auf Raumtemperatur ab.

4.2.3 Lesen der Reflexionshologramme mit infrarotem Licht

Nach dem Schreiben eines Reflexionsgitters bei erhöhter Temperatur und dem Abkühlen auf Raumtemperatur wird der Kristall mit dem Licht einer Halogenlampe beleuchtet. Anschließend wird das thermisch fixierte Reflexionsgitter mit dem in Abb. 4.12 schematisch dargestellten Aufbau ausgelesen. Als Infrarotlichtquelle dient ein durchstimmbarer DFB-Laser (distributed feedback) mit einer maximalen Ausgangsleistung von 2 mW. Dessen Bandbreite beträgt 30 MHz entsprechend einer Wellenlängenvariation von etwa 0.25 pm. Mit einer absoluten Genauigkeit von $\pm\,20$ pm läßt sich die Wellenlänge im Intervall zwischen 1556.90 nm und 1560.90 nm mit einer Auflösung von bis zu 1 pm ohne Modensprünge variieren. Das infrarote Licht wird über konfektionierte Monomode-Glasfaserkabel zum Leseaufbau geführt. Über einen 3dB-Koppler wird zusätzlich zur laserinternen Intensitätskontrolle die Ausgangsleistung des DFB-Lasers mit einem Ge-Detektor überwacht.

Ein konfektionierter GRIN-Kollimator erzeugt einen freien, unpolarisierten Strahl mit einem $1/e^2$-Durchmesser von etwa 1 mm und einer Strahldivergenz von $0.14\,°$, der auf einen

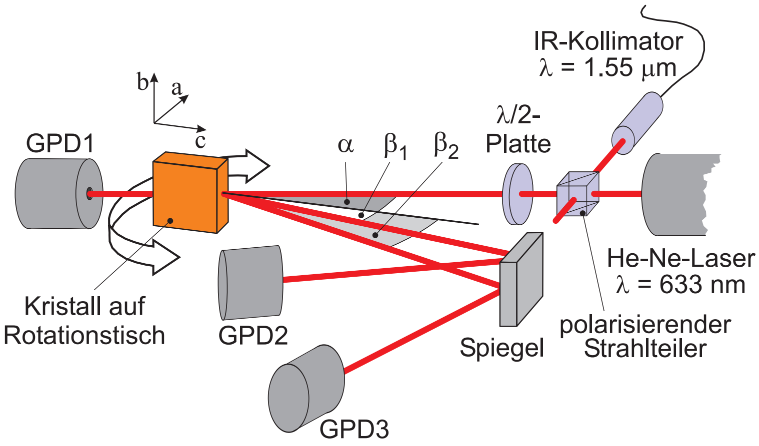


Abbildung 4.12: *Schematische Darstellung des Aufbaus zum Auslesen von Reflexionshologrammen. Das infrarote Leselicht wird über eine Monomodefaser und einen GRIN-Kollimator auf den Kristall gelenkt. Dem Lesestrahl wird zu Justagezwecken der sichtbare Strahl eines He-Ne-Lasers kollinear überlagert. Die Ge-Photodetektoren* GPD1 *und* GPD2 *bzw.* GPD3 *nehmen die Intensitäten des transmittierten und der reflektierten infraroten Laserstrahlen auf.*

polarisierenden Strahlteiler gelenkt wird. Mittels einer nachfolgenden Halbwellenplatte läßt sich die Polarisationsrichtung des Lesestrahls einstellen. Das Leselicht ist linear mit einem Grad von etwa 100:1 polarisiert. Zu Justagezwecken wird dem infraroten Lesestrahl der unaufgeweitete Strahl eines He-Ne-Lasers der Wellenlänge 633 nm mit Hilfe des polarisierenden Strahlteilers kollinear überlagert. Damit lassen sich der Einfallsort des infraroten Lesestrahl auf der c-Fläche des Kristalls sowie die Position der Ge-Photodiode GPD1 (Abb. 4.12), die die Intensität I_{trans} des transmittierten Anteils des Lesestrahls aufnimmt, sehr genau einstellen. Die Position des einfallenden Lichts bezüglich der a-Achse wird mit x bezeichnet (vgl. Abb. 4.4), entlang der b-Achse wird bei allen Leseexperimenten die Mitte des Kristalls gewählt. Zudem kann der Einfallswinkel α zwischen dem Lesestrahl und der c-Flächennormalen mit Hilfe des Justagestrahls durch Autokollimation mit einer Genauigkeit von etwa $0.1\,^\circ$ kalibriert werden. Durch Drehung des Kristalls mittels eines schrittmotorangetriebenen Rotationstisches (Winkelauflösung $5 \times 10^{-3}\,^\circ$) um die parallel zur b-Achse in der vorderen c-Fläche des Kristalls liegende Drehachse kann α variiert werden (vgl. Abb. 4.12). Mit zwei weiteren Ge-Detektoren (GPD2 und GPD3) lassen sich die Intensitäten der an holographischen Gittern im Kristall abgebeugten Strahlen $I_{\mathrm{diff},1}$ und $I_{\mathrm{diff},2}$ aufnehmen, die unter den Winkeln β_1 und β_2 den Kristall verlassen und zur besseren Strahltrennung durch einen Spiegel umgelenkt werden. Alle Ge-Detektoren sind mit identischen Konvexlinsen ausgestattet, um Fehler bei der Detektion divergenter Strahlen sowie bei geringfügiger lateraler Fehljustage zu vermeiden.

Da das am Reflexionsgitter abgebeugte infrarote Licht bei geringen Beugungswirkungsgraden ($\eta < 0.2$) selbst bei maximaler Ausgangsleistung des DFB-Lasers mit einer Sensorkarte nicht mehr lokalisiert werden kann, ist die Positionierung des Ge-Detektors zur Aufnahme der Intensität des abgebeugten Strahls äußerst schwierig. Deshalb wird bei der Ermittlung der Bragg-Winkel zunächst nur die Intensität des transmittierten Strahls I_{trans} ausgewertet. Diese wird mittels der über den 3dB-Koppler erhaltenen Monitorintensität normiert, um eventuelle Schwankungen der Ausgangsleistung des DFB-Lasers zu berücksichtigen. Die normierte Intensität I_{norm} des transmittierten Strahls läßt sich bei konstanter Wellenlänge λ_{r} des Leselichts in Abhängigkeit vom Einfallswinkel α durch Rotation des Kristalls sowie bei konstantem Einfallswinkel α in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ_{r} durch Verstimmung des DFB-Lasers messen. In Abb. 4.13 ist ein typisches Ergebnis der Messung von I_{norm} bei konstanter Wellenlänge ($\lambda_{\mathrm{r}} = 1560.80\,\mathrm{nm}$) für verschiedene Einfallswinkel α dargestellt.

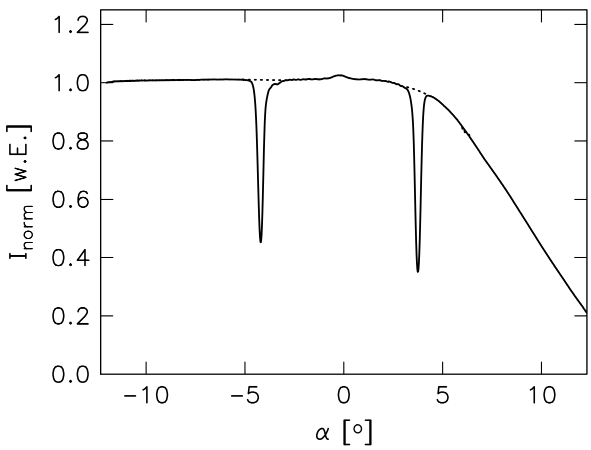


Abbildung 4.13: *Typisches Resultat der Messung der normierten Intensität I_{norm} des transmittierten Lesestrahls in Abhängigkeit vom Einfallswinkel α, gemessen an einem Raumtemperaturhologramm im Kristall DT1-03 mit ordentlich polarisiertem Leselicht der Wellenlänge $\lambda_{\mathrm{r}} = 1560.80\,\mathrm{nm}$ (durchgezogene/gepunktete Kurve: Kristall mit/ohne Beugungsgitter).*

Unter dem linken ($\alpha < 0$) bzw. rechten Einfallswinkel ($\alpha > 0$) treten lokale Minima auf. Für diese Einfallswinkel wird die transmittierte Intensität geringer, da ein Teil des einfallenden Lichts vom holographischen Gitter abgebeugt wird. Dennoch ist I_{norm} außerhalb der Bragg-Winkel nicht konstant, denn durch die Drehung des Kristalls aufgrund der Brechung entsteht ein lateraler Strahlversatz, oder eine Kristallkante wird durch den transmittierten Strahl gedreht. Diese Variation der Intensität I_{norm} ist nicht auf das holographische Gitter zurückzuführen. Deshalb wird eine weitere Normierung mit einer Kalibrationskurve durchgeführt. Diese Kalibrationskurve kann durch die erneute Ausführung der Messung nach dem thermischen Löschen der holographischen Gitter erhalten werden. Es ergeben sich aber keine erheblichen Differenzen, wenn nur die I_{norm}-Messung des Reflexionsgitters herangezogen wird, indem die Bereiche der Minima von I_{norm} durch an den restlichen Verlauf der I_{norm}-Messung angepaßte Parabelabschnitte ersetzt werden (gepunktete Kurve in Abb. 4.13). Nach der Normierung mit dieser Kurve ergibt sich aus der transmittierten Intensität $I_{\mathrm{norm}}(\alpha)$ die Transmission $\mathcal{T}(\alpha)$. Dieses Verfahren läßt sich analog bei wellenlängenabhängigen Messungen von I_{norm} anwenden und ergibt die Transmission $\mathcal{T}(\lambda_{\mathrm{r}})$.

Die Verluste durch Reflexion an den Oberflächen bei kleinen Änderungen des Einfallswinkels und bei kleinen Wellenlängenänderungen bleiben annähernd konstant. Außerdem ist die Absorption von $LiNbO_3$ bei Wellenlängen um $1.55\,\mu$m vernachlässigbar. Daher sollte die Bragg-Reflektivität $\mathcal{R} = 1 - \mathcal{T}$ mit dem Beugungswirkungsgrad eines Reflexionsgitters $\eta = I_{\mathrm{diff}}/(I_{\mathrm{diff}} + I_{\mathrm{trans}})$ in etwa identisch sein. Hierbei bezeichnet I_{diff} die Intensität des abgebeugten Lichts. Gelegentlich erhaltene geringfügig negative Bragg-Reflektivitäten $\mathcal{R}$ sind auf Normierungsfehler zurückzuführen. Die Messung von $\mathcal{R}$ ist ungenauer als die direkte Bestimmung von η durch gleichzeitige Messung der Intensitäten I_{diff} und I_{trans}. Ein direkter Vergleich der durch die Normierungen aus I_{trans} gewonnenen Bragg-Reflektivität $\mathcal{R}$ mit dem aus I_{trans} und I_{diff} erhaltenen Beugungswirkungsgrad η findet im Kap. 4.3.1 statt.

4.3 Ergebnisse

Die Voruntersuchungen zur Wellenlängen- und Winkelselektivität von Reflexionshologrammen in $LiNbO_3$-Kristallen sowie die Optimierung des Justage- und Schreibprozesses werden bei Raumtemperatur durchführt. Dabei kann im Gegensatz zur Aufzeichnung thermisch fixierter Gitter auf die Evakuierung des Rezipienten verzichtet werden. In einem zweiten Schritt werden dann thermisch fixierte Reflexionshologramme im Vakuum erzeugt und anschließend charakterisiert.

4.3.1 Raumtemperatur-Reflexionshologramme

Das vom verstimmbaren DFB-Laser vorgegebene Wellenlängenintervall des infraroten Leselichts zwischen 1556.90 nm und 1560.90 nm ergibt ein sehr kleines erlaubtes Intervall für die Schreibwinkel $\gamma = \gamma_{\mathrm{r}} = \gamma_{\mathrm{l}}$ bei der Aufzeichnung von symmetrischen Raumtemperaturhologrammen ($\zeta = 0$), die in 180°-Reflexion ausgelesen werden sollen ($\alpha = 0$). Der Schreibwinkel γ, der für die minimale Wellenlänge des DFB-Lasers von $\lambda_{\mathrm{r}} = 1556.90\,\mathrm{nm}$ bei 46.941° liegt, darf nur um etwa 0.16° auf 46.781° verringert werden, um die Bragg-Bedingung mit Leselicht der maximalen Wellenlänge von $\lambda_{\mathrm{r}} = 1560.90\,\mathrm{nm}$ noch erfüllen zu können ($n_{\mathrm{r}} = 2.2110$ [106], $\lambda_{\mathrm{w}} = 514.5\,\mathrm{nm}$). Wenn man allerdings berücksichtigt, daß im Gegensatz zur Bragg-Reflexion in Fasergittern auch von null verschiedene Einfallswinkel α beim Auslesen des Hologramms erlaubt sind, so ist das Reflexionshologramm noch bei $\lambda_{\mathrm{r}} = 1560.9\,\mathrm{nm}$ unter dem Einfallswinkel $\alpha = 10°$ auslesbar, wenn der Schreibwinkel γ den Wert von 46.555° nicht unterschreitet. Somit ist die Beugung infraroten Lichts an Reflexionshologrammen aufgrund der nur eingeschränkt durchstimmbaren Wellenlänge des DFB-Lasers nur bei korrekter Einstellung des Schreibwinkels innerhalb eines kleinen Intervalls ($46.555° < \gamma < 46.941°$) möglich.

Wegen der mäßigen Oberflächenebenheit der zunächst verwendeten Kristalle DT1-01 und DT1-02 ist es nicht möglich, die Schreibwinkel γ_{r} und γ_{l} mit hoher absoluter Präzision einzustellen. Für zu große Schreibwinkel kann die Bragg-Bedingung beim Auslesen der Hologramme nicht mehr erfüllt werden. Um dies zu vermeiden, werden im Kristall DT1-01 symmetrisch angeordnete Reflexionshologramme bei Raumtemperatur ($T_w \approx 25\,°C$) für verschiedene Schreibwinkel γ aufgezeichnet. Die Schreibzeit und die Intensitäten des raumfesten sowie des drehbaren Schreibstrahls betragen jeweils $t_w = 15\,\mathrm{min}$, $I_r = 340\,\mathrm{Wm^{-2}}$ und $I_l = 170\,\mathrm{Wm^{-2}}$. Nach einmaliger Justage des Öffnungswinkels auf $2\gamma = (93.55 \pm 0.1)\,°$ und symmetrischer Winkelpositionierung des Kristalls wird ein Hologramm aufgezeichnet, das anschließend im Schreibaufbau mit unpolarisiertem infrarotem Leselicht der Wellenlänge $\lambda_r = 1559.70\,\mathrm{nm}$ in Abhängigkeit des Lesewinkels α ausgelesen wird. Nach halbstündigem Löschen des Gitters durch Beleuchtung mit Halogenlicht werden die Schreibwinkel γ_r und γ_l um jeweils $5 \times 10^{-3}\,°$ vergrößert, bevor ein neues Gitter aufgezeichnet und ausgelesen wird.

In Abb. 4.14 ist die aus der Transmission ermittelte Bragg-Reflektivität $\mathcal{R}$ von sechs verschiedenen Reflexionshologrammen mit sukzessiv vergrößertem Schreibwinkel γ im Kristall DT1-01 in Abhängigkeit vom Einfallswinkel α dargestellt. Alle sechs Hologramme werden an derselben Position auf dem Kristall ausgelesen ($x = 1\,\mathrm{mm}$, vgl. Abb. 4.4). Bei genügend kleinen Schreibwinkeln ($\gamma \leq 46.780\,°$) treten zwei lokale Maxima in den $\mathcal{R}(\alpha)$-Kurven auf, und das Reflexionsgitter kann von links ($\alpha < 2.5\,°$) sowie von rechts ($\alpha > 2.5\,°$) ausgelesen werden. Beim Auslesen des Gitters in $180\,°$-Reflexion ist nur noch ein einziges Maximum vorhanden ($\gamma = 46.785\,°$), das bei weiterer Vergrößerung der Schreibwinkel verschwindet. Für $\gamma > 46.800\,°$ ist keine Beugung des Leselichts der Wellenlänge $\lambda_r = 1559.70\,\mathrm{nm}$ mehr detektierbar.

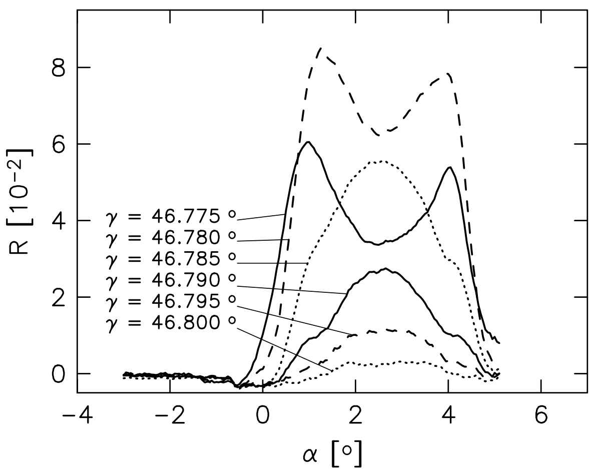


Abbildung 4.14: *Bragg-Reflektitvität $\mathcal{R}$ von Raumtemperatur-Reflexionshologrammen im Kristall DT1-01 ($I_r = 340\,Wm^{-2}$, $I_l = 170\,Wm^{-2}$, $t_w = 15\,min$) in Abhängigkeit vom Einfallswinkel α für verschiedene Schreibwinkel $\gamma = \gamma_r = \gamma_l$, gemessen mit unpolarisiertem Licht der Wellenlänge $\lambda_r = 1559.70\,nm$.*

Die Bragg-Reflektivität $\mathcal{R}$ eines weiteren im Kristall DT1-01 aufgezeichneten Reflexionsgitters ist in Abb. 4.15 in Abhhängigkeit von der Wellenlänge λ_r des ordentlich polarisierten Leselichts dargestellt. Die Reflektivität ist größer als bei den in Abb. 4.14 gezeigten Messungen, da das Gitter länger geschrieben worden ist. Das Maximum der Bragg-Reflektivität von $\mathcal{R}_{max} \approx 0.16$ befindet sich bei $\lambda_r = 1559.64\,\mathrm{nm}$, die spektrale Halbwertsbreite $\Delta\lambda_{FWHM}$ beträgt etwa $0.2\,\mathrm{nm}$. Es treten in Abb. 4.15 geringfügig negative Werte für die Bragg-Reflektivität auf, die aus der Normierung der transmittierten Intensität entstehen. Es sei an dieser Stelle darauf hingewiesen, daß in allen Darstellungen von $\mathcal{R}(\lambda_r)$ oder $\eta(\lambda_r)$ ein Wellenlängenintervall von $2.4\,\mathrm{nm}$ gezeigt wird (Ausnahmen: Abb. 4.26 und 4.34).

Die Aufzeichnung eines Reflexionshologramms im Kristall DT1-02 bei Raumtemperatur ergibt die in Abb. 4.16 dargestellte spektrale Bragg-Reflektivität $\mathcal{R}(\lambda_r)$. Die Halbwertsbreite dieser asymmetrisch um $\lambda_r = 1559.20\,\mathrm{nm}$ verlaufenden Kurve mit $\mathcal{R}_{max} \approx 0.26$ beträgt $\Delta\lambda_{FWHM} \approx 0.3\,\mathrm{nm}$.

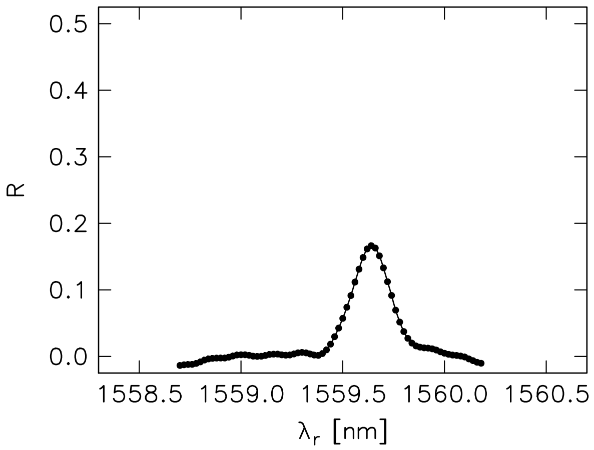


Abbildung 4.15: *Bragg-Reflektitvität $\mathcal{R}$ eines im Kristall DT1-01 bei Raumtemperatur aufgezeichneten Reflexionshologramms ($\gamma_r = 49.76\,°$, $\gamma_l = 43.98\,°$, $I_r = 340\,Wm^{-2}$, $I_l = 170\,Wm^{-2}$, $t_w = 75\,min$) in Abhängigkeit von der Lesewellenlänge λ_r, gemessen mit ordentlich polarisiertem Licht ($\alpha \approx 2.5\,°$, $x = 1\,mm$). Die durchgezogene Linie dient der Augenführung.*

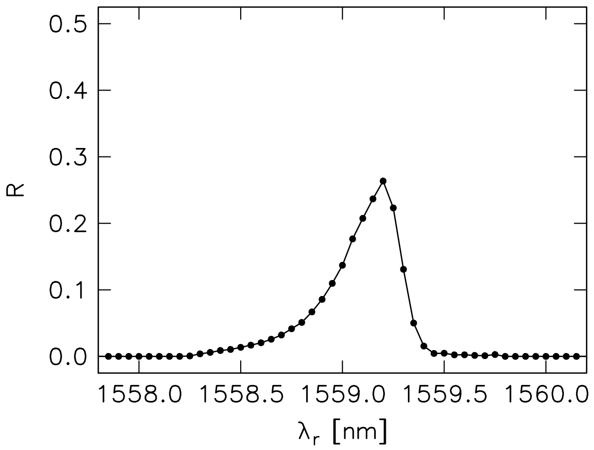
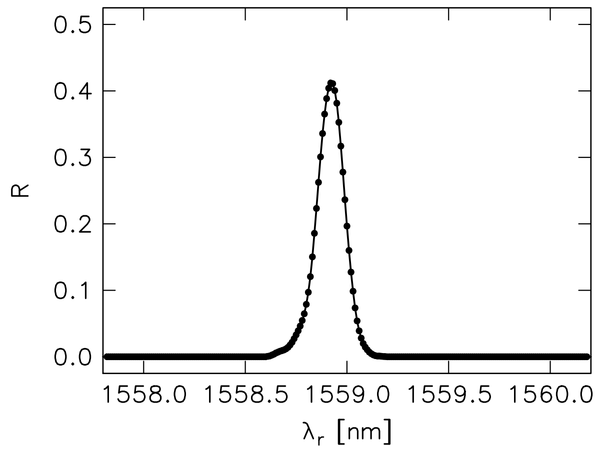


Abbildung 4.16: *Bragg-Reflektitvität $\mathcal{R}$ eines im Kristall DT1-02 bei Raumtemperatur aufgezeichneten Reflexionshologramms ($\gamma_r = 49.01\,°$, $\gamma_l = 44.62\,°$, $I_r = 370\,Wm^{-2}$, $I_l = 240\,Wm^{-2}$, $t_w = 75\,min$) in Abhängigkeit von der Lesewellenlänge λ_r, gemessen mit ordentlich polarisiertem Licht (Einfallswinkel $\alpha \approx -5\,°$). Die durchgezogene Linie dient der Augenführung.*

In Abb. 4.17 ist die spektrale Bragg-Reflektivität eines Gitters im Kristall DT1-03 für ordentlich polarisiertes Leselicht dargestellt. Es wird ein Maximalwert von $\mathcal{R}_{max} \approx 0.41$ für $\lambda_r = 1558.92\,\mathrm{nm}$ bei einer Halbwertsbreite von $\Delta\lambda_{FWHM} \approx 0.15\,\mathrm{nm}$ erreicht.

Da dieses Reflexionsgitter eine deutlich größere Bragg-Reflektivität als die Gitter in den Kristallen DT1-01 und DT1-02 aufweist, kann das abgebeugte Licht mit einer Infrarot-Sensorkarte detektiert und eine Ge-Photodiode (GPD2, vgl. Abb. 4.12) zur Messung der Intensität des abgebeugten Strahls I_{diff} positioniert werden. Der aus den Intensitäten I_{trans} und I_{diff} berechnete Beugungswirkungsgrad η ist in Abb. 4.18 über der Wellenlänge λ_r des ordentlich polarisierten Leselichts aufgetragen (rechte Kurve). Einfallswinkel α und Leseposition x sind gegenüber der Bestimmung der Bragg-Reflektivität in Abb. 4.17 unverändert. Der Beugungswirkungsgrad erreicht einen Maximalwert von $\eta_{max} \approx 0.40$ für $\lambda_r = 1558.92\,\mathrm{nm}$ bei einer Halbwertsbreite von $\Delta\lambda_{FWHM} \approx 0.15\,\mathrm{nm}$. Zusätzlich ist in Abb. 4.18 das Ergebnis der Beugungswirkungsgradmessung mit außerordentlich polarisiertem Leselicht dargestellt (linke Kurve, $\eta_{max} \approx 0.39$ bei $\lambda_r = 1558.73\,\mathrm{nm}$, $\Delta\lambda_{FWHM} \approx 0.15\,\mathrm{nm}$).



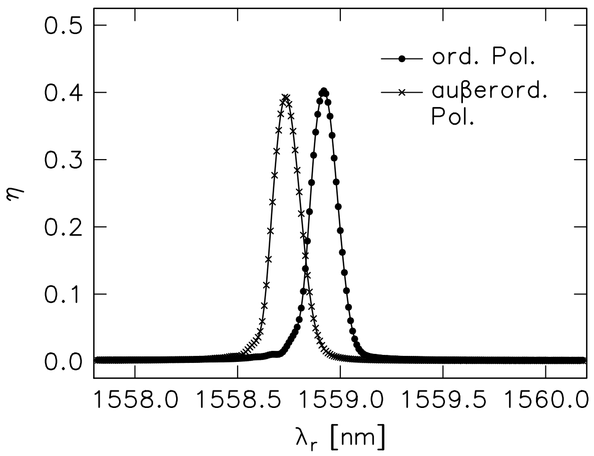


Abbildung 4.17: *Bragg-Reflektitvität $\mathcal{R}$ eines Raumtemperatur-Reflexionshologramms im Kristall DT1-03 ($\gamma = 46.781$ °, $I_r = 530\,\mathrm{Wm}^{-2}$, $I_l = 330\,\mathrm{Wm}^{-2}$, $t_w = 30\,\mathrm{min}$) in Abhängigkeit von der Lesewellenlänge λ_r, gemessen mit ordentlich polarisiertem Licht (Einfallswinkel $\alpha = 7.2$ °, Leseposition $x = 1.5\,\mathrm{mm}$). Die durchgezogene Linie dient der Augenführung.*

Abbildung 4.18: *Aus den Intensitäten I_{trans} und I_{diff} des transmittierten bzw. abgebeugten Leselichts ermittelter Beugungswirkungsgrad η des in Abb. 4.17 vorgestellten Raumtemperatur-Reflexionshologramms im Kristall DT1-03 in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ_r für ordentlich polarisiertes sowie außerordentlich polarisiertes Leselicht. Die durchgezogenen Linien dienen der Augenführung.*

Anstelle der Variation der Leselichtwellenlänge λ_r bei konstantem Lesewinkel α kann umgekehrt bei konstantem λ_r die Bragg-Reflektivität in Abhängigkeit vom Einfallswinkel α gemessen werden. Solche Meßkurven werden als Rockingkurven bezeichnet. Die Rockingkurve $\mathcal{R}(\alpha)$ des bereits vorgestellten Reflexionsgitters im Kristall DT1-03 für $\lambda_r = 1558.90\,\mathrm{nm}$, gemessen mit ordentlich polarisiertem Leselicht an der Position $x = 0.75\,\mathrm{mm}$, zeigt Abb. 4.19.

Wird $\mathcal{R}(\lambda_r, \alpha)$ als Höhenprofil veranschaulicht, so stellt diese Rockingkurve einen Schnitt durch die Fläche $\mathcal{R}(\lambda_r, \alpha)$ entlang der Konstanten $\lambda_r = 1558.90\,\mathrm{nm}$ dar. Die gesamten $\mathcal{R}(\lambda_r, \alpha)$-Resultate für das Reflexionsgitter im Kristall DT1-03 sind in Abb. 4.20 gezeigt. Darin gehen Messungen der Rockingkurven im Wellenlängenbereich zwischen 1557.00 nm und 1560.70 nm und im Winkelbereich zwischen zwischen -12 ° und $+12$ ° ein.

Die Messungen der Bragg-Reflektivität $\mathcal{R}$ oder des Beugungswirkungsgrads η werden innerhalb einiger Tage nach der Aufzeichnung der Raumtemperaturhologramme durchgeführt. Während dieses Zeitraums ist keine Verringerung der Maximalwerte $\mathcal{R}_{\max}$ oder $\eta_{\max}$ meßbar.

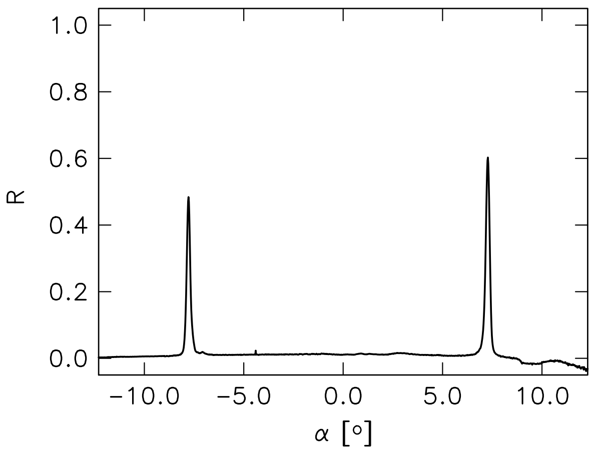


Abbildung 4.19: *Rockingkurve $\mathcal{R}(\alpha)$ des Raumtemperatur-Reflexionshologramms im Kristall DT1-03, gemessen mit ordentlich polarisiertem Licht der Wellenlänge $\lambda_r = 1558.90$ nm an der Leseposition $x = 0.75$ mm.*

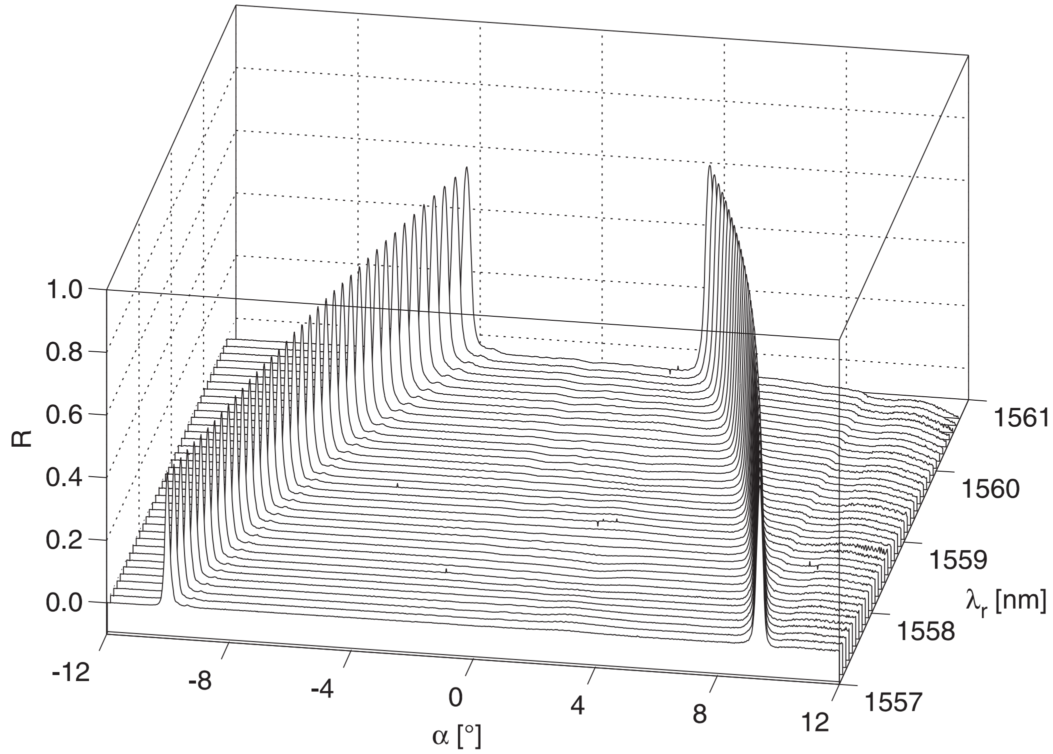


Abbildung 4.20: *Bragg-Reflektivität $\mathcal{R}(\lambda_r, \alpha)$ des Raumtemperatur-Reflexionshologramms im Kristall DT1-03, gemessen mit ordentlich polarisiertem Licht an der Leseposition $x = 0.75$ mm durch Aufnahme einer Rockingkurvenschar (Messungen der Bragg-Reflektivität in Abhängigkeit vom Lesewinkel α) mit der Leselichtwellenlänge λ_r als Scharparameter.*

4.3.2 Thermisch fixierte Reflexionshologramme

Da im Kristall DT1-03 bei der Politur ein etwa 1 mm langer Sprung aufgetreten ist, wird dieser aufgrund der Gefahr einer Zerstörung durch Heizen oder Kühlen nicht für die

Aufzeichnung thermisch fixierter Reflexionsgitter genutzt. Stattdessen wird der Kristall DT1-02 nachpoliert (P), so daß mit den Proben DT1-02(P) und DT2-03 zwei Kristalle unterschiedlicher Gesamteisenkonzentration c_{Fe} zur Verfügung stehen (vgl. Tab. 4.1), die eine Oberflächenebenheit einer a-Fläche von $\lambda/5$ oder besser aufweisen.

Im Kristall DT1-02(P) wird bei einer Kristalltemperatur von $T_{\mathrm{w}} = 180\,^{\circ}\mathrm{C}$ mit dem im Kap. 4.2.2 beschriebenen Aufzeichnungsverfahren ein Reflexionsgitter geschrieben. Nach dem Abkühlen auf Raumtemperatur wird der Kristall für die Dauer von 1 h mit Halogenlicht beleuchtet. Allerdings kann sowohl in winkel- als auch in wellenlängenabhängigen Transmissionsmessungen mit infrarotem Leselicht kein über dem Meßrauschen befindliches Bragg-Reflexionssignal detektiert werden.

Nach der Wiederholung des Schreibversuchs bei verdoppelter Intensität der Schreibstrahlen unter Beibehaltung der Schreibzeit sowie geringfügiger Verringerung der Schreibwinkel kann durch die Aufnahme von Rockingkurven bei verschiedenen Wellenlängen ein thermisch fixiertes Reflexionsgitter mit einer maximalen Bragg-Reflektivität von nur $\mathcal{R}_{\max} \approx 2 \times 10^{-3}$ identifiziert werden. Die bei den Wellenlängen $\lambda_{\mathrm{r}} = 1558.50\,\mathrm{nm}$ und $\lambda_{\mathrm{r}} = 1560.00\,\mathrm{nm}$ an der Position $x = 1\,\mathrm{mm}$ gemessenen und in Abb. 4.21 dargestellten Rockingkurven dokumentieren die Verschiebung des linken und rechten Beugungsmaximums zu kleineren Einfallswinkeln $|\alpha_{\mathrm{B}}|$ bei Erhöhung der Wellenlänge λ_{r}. Eine Erhöhung der Maximalwerte von $\mathcal{R}$ durch weiteres Entwickeln mit Halogenlicht ist nicht möglich.

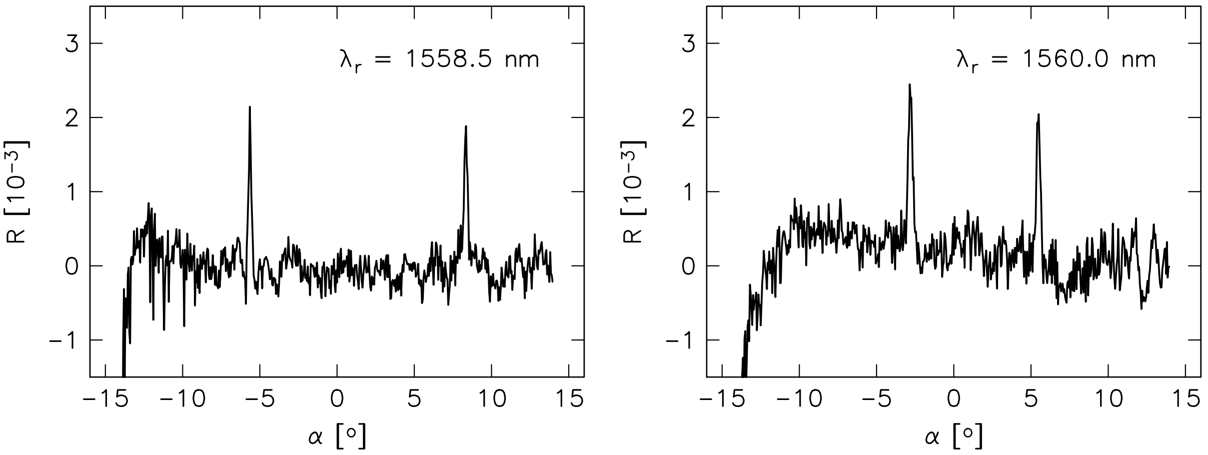


Abbildung 4.21: *Rockingkurven $\mathcal{R}(\alpha)$ eines im Kristall DT1-02(P) thermisch fixierten Gitters ($\gamma_{\mathrm{r}} = \gamma_{\mathrm{l}} = 46.795\,^{\circ}$, $I_{\mathrm{r}} = 650\,\mathrm{Wm}^{-2}$, $I_{\mathrm{l}} = 450\,\mathrm{Wm}^{-2}$, $t_{\mathrm{w}} = 90\,\mathrm{min}$), ausgelesen mit ordentlich polarisiertem Licht der Wellenlänge $\lambda_{\mathrm{r}} = 1558.50\,\mathrm{nm}$ (links) bzw. $\lambda_{\mathrm{r}} = 1560.00\,\mathrm{nm}$ (rechts) bei $x = 1\,\mathrm{mm}$.*

Demgegenüber läßt sich im Kristall DT2-03 bei vergleichbaren Schreiblichtintensitäten und halber Schreibdauer bei $T_{\mathrm{w}} = 180\,^{\circ}\mathrm{C}$ ein thermisch fixiertes Reflexionsgitter mit hoher Bragg-Reflektivität aufzeichnen. In Abb. 4.22 ist eine mit ordentlich polarisiertem Leselicht der Wellenlänge $\lambda_{\mathrm{r}} = 1557.00\,\mathrm{nm}$ bei $x = 1\,\mathrm{mm}$ gemessene Rockingkurve dargestellt. Die maximale Bragg-Reflektivität $\mathcal{R}_{\max}$ beträgt 0.6. Auch für dieses Reflexionshologramm wird eine Rockingkurvenschar für konstante Wellenlängen zwischen

$\lambda_r = 1557.00\,\mathrm{nm}$ und $\lambda_r = 1560.80\,\mathrm{nm}$ aufgenommen, die in Abb. 4.23 dargestellt ist. Dabei wird allerdings jeweils zwischen den Messungen von $\mathcal{R}(\alpha)$ das Hologramm für einige Minuten entwickelt, da ein Absinken der Bragg-Reflektivität im Dunkeln zu beobachten ist.

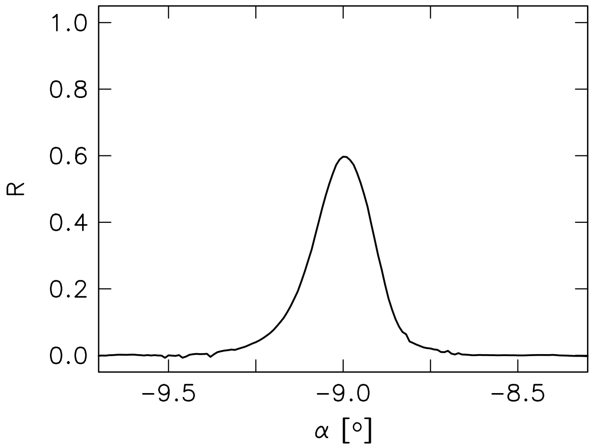


Abbildung 4.22: *Rockingkurve $\mathcal{R}(\alpha)$ eines thermisch fixierten Gitters im Kristall DT2-03 ($\gamma_r = \gamma_l = 46.794\,°$, $I_r = 650\,Wm^{-2}$, $I_l = 450\,Wm^{-2}$, $t_w = 45\,min$, $T_w = 180\,°C$), gemessen mit ordentlich polarisiertem Licht der Wellenlänge $\lambda_r = 1557.00\,nm$ an der Leseposition $x = 1\,mm$.*

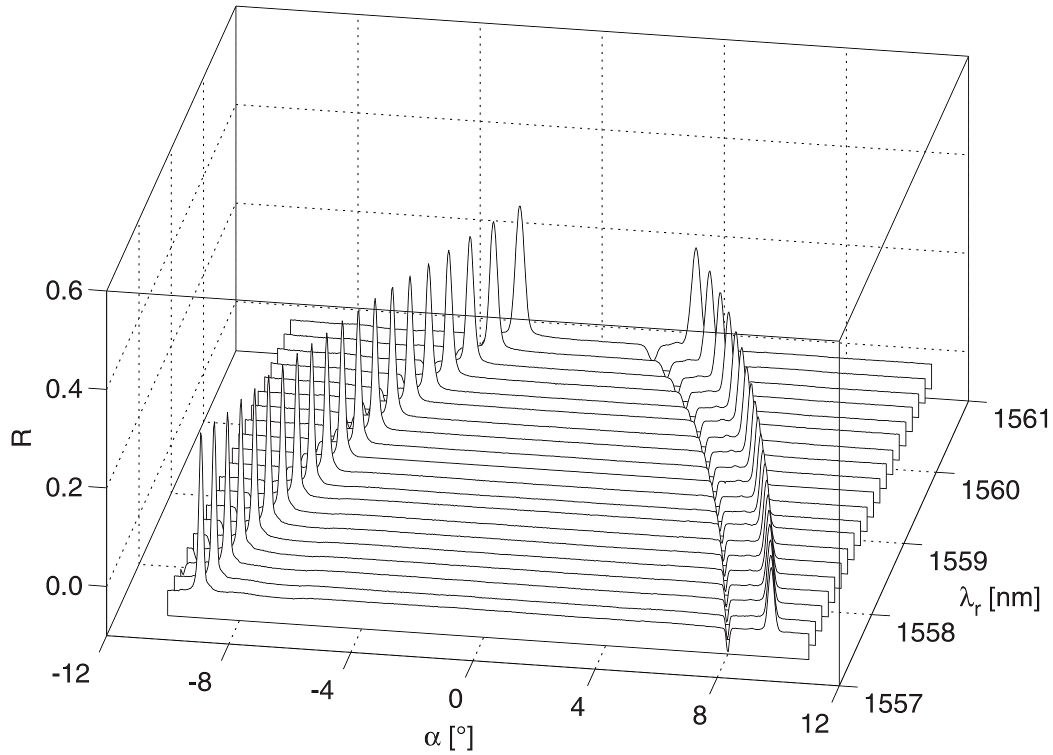


Abbildung 4.23: *Bragg-Reflektivität $\mathcal{R}(\lambda_r, \alpha)$ des thermisch fixierten Reflexionshologramms im Kristall DT2-03, gemessen mit ordentlich polarisiertem Licht an der Leseposition $x = 1\,mm$ durch Aufnahme einer Rockingkurvenschar (Messungen von $\mathcal{R}$ in Abhängigkeit des Lesewinkels α) mit der Leselichtwellenlänge λ_r als Scharparameter. Der Kristall wird jeweils zwischen den Messungen von $\mathcal{R}(\alpha)$ für einige Minuten beleuchtet.*

4.3.3 Dunkelrelaxation thermisch fixierter Hologramme

Der Abfall der Bragg-Reflektivität des im vorigen Abschnitt vorgestellten Reflexionsgitters im Kristall DT2-03 wird näher untersucht. Dazu wird der Kristall bis zur Sättigung entwickelt. Anschließend werden in Abhängigkeit von der Zeit Rockingkurven des rechten Bragg-Reflexes mit ordentlich polarisiertem Licht der Wellenlänge $\lambda_{\rm r} = 1560.0\,\rm nm$ bei $x = 1\,\rm mm$ aufgenommen. Dabei trifft nur infrarotes Leselicht auf den Kristall, der sich im abgedunkelten Raum befindet. Der Zerfall des Gitters ist in Abb. 4.24 als Rockingkurvenschar mit der Zeit $t_{\rm D}$ als Scharparameter aufgetragen. Der Zeitpunkt des Meßbeginns liegt etwa 45 min nach Beendigung der Entwicklung. Nach der Dunkelrelaxation kann durch Beleuchten mit Halogenlicht bis zur Sättigung die maximale Bragg-Reflektivität regeneriert werden.

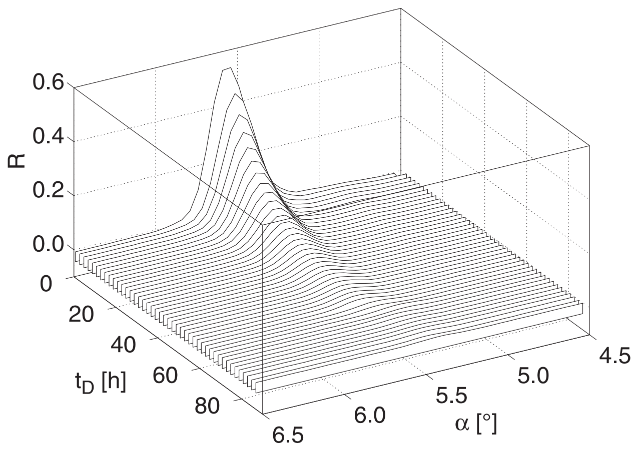


Abbildung 4.24: *Rockingkurven $\mathcal{R}(\alpha)$ des rechten Bragg-Reflexes eines thermisch fixierten Reflexionshologramms im Kristall DT2-03 in Abhängigkeit von der Zeit $t_{\rm D}$, aufgenommen mit ordentlich polarisiertem Licht der Wellenlänge $\lambda_{\rm r} = 1560.00\,\rm nm$ bei $x = 1\,\rm mm$.*

4.3.4 Temperaturabhängige Reflektivitätsmessungen

Unter Verwendung des schon bei der Aufzeichnung eingesetzten heizbaren Halters kann das bereits vorgestellte Reflexionshologramm im Kristall DT2-03 bei konstant gehaltenen Temperaturen zwischen $T_{\rm r} = 30\,°\rm C$ und $110\,°\rm C$ ausgelesen werden. Dazu werden jeweils eine Rockingkurve $\mathcal{R}(\alpha)$ bei $\lambda_{\rm r} = 1558.90\,\rm nm$ und $x \approx 1\,\rm mm$ aufgenommen und der Bragg-Winkel $|\alpha_{\rm B}|$ der maximalen Bragg-Reflektivität für den rechten sowie den linken Bragg-Reflex ermittelt. In Abb. 4.25 ist der Betrag der Bragg-Winkel über der Temperatur $T_{\rm r}$ aufgetragen. Man erkennt eine linear verlaufende Zunahme beider Bragg-Winkel $|\alpha_{\rm B}|$ mit steigender Temperatur. Der Mittelwert der durch lineare Regression erhaltenen Steigungen des linken und des rechten Bragg-Winkels beträgt $|{\rm d}\alpha_{\rm B}/{\rm d}T_{\rm r}| \approx 7.7 \times 10^{-3}\,°\rm K^{-1}$. Zu erwähnen ist der Abfall des Maximalwerts der Bragg-Reflektivität im Verlauf der etwa vierstündigen Messung von $\mathcal{R}_{\rm max,30°\,C} \approx 0.55$ auf $\mathcal{R}_{\rm max,110°\,C} \approx 0.06$.

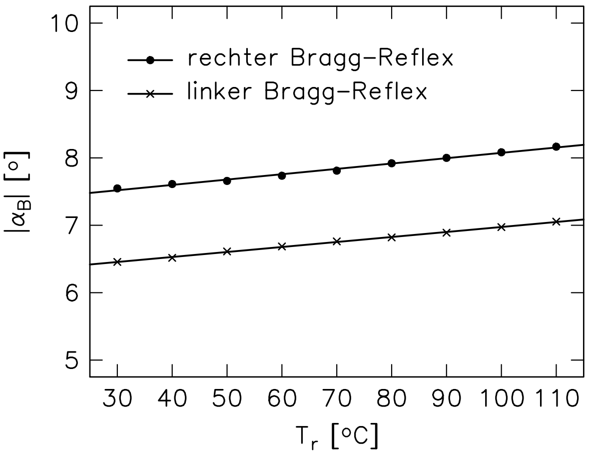


Abbildung 4.25: *Betrag des Bragg-Winkels* $|\alpha_{\mathrm{B}}|$ *des rechten sowie des linken Bragg-Reflexes eines thermisch fixierten Reflexionshologramms im Kristall DT2-03 in Abhängigkeit von der Kristalltemperatur* T_{r}*, ermittelt aus den Maxima von Rockingkurven* $\mathcal{R}(\alpha)$*, die mit ordentlich polarisiertem Licht der Wellenlänge* $\lambda_{\mathrm{r}} = 1558.90\,\mathrm{nm}$ *bei* $x \approx 1\,\mathrm{mm}$ *aufgenommen werden. Die durchgezogenen Linien sind Ergebnisse linearer Regressionen mit* $|\mathrm{d}\alpha_{\mathrm{B}}/\mathrm{d}T_{\mathrm{r}}| \approx 7.7 \times 10^{-3}\,{}^{\circ}K^{-1}$.

4.3.5 Wellenlängenmultiplexing mit Reflexionshologrammen

Nach den vorgestellten Voruntersuchungen zur Winkel- und Wellenlängenselektivität der Reflexionsgitter und in Kenntnis der auftretenden Einflüsse der Oberflächenbeschaffenheit, der Dotierung, der Temperatur und der Dunkelrelaxation kann die Überlagerung und Fixierung zweier Reflexionshologramme zur Realisierung eines möglichst leistungsfähigen Zweikanaldemultiplexers gezielt angegangen werden.

Aufgrund der Bragg-Reflektivität von $\mathcal{R} \approx 0.6$ ist dem Kristall DT2-03 der Vorzug für die Überlagerung von Hologrammen vor dem Kristall DT1-02(P) zu geben. Um zwei Reflexionshologramme mit gleicher Bragg-Reflektivität zu überlagern, muß zunächst die Dynamik des Aufzeichnungsprozesses bei erhöhter Temperatur untersucht werden. Dazu werden im Kristall DT2-03 drei Reflexionsgitter mit unterschiedlichen Schreibdauern ($t_{\mathrm{w}} = 6\,\mathrm{min}; 30\,\mathrm{min}; 55\,\mathrm{min}$) thermisch fixiert, nachdem im Kristall vorhandene fixierte Gitter jeweils durch etwa einstündiges Heizen des Kristalls bei etwa 400 °C gelöscht worden sind. Die Schreibwinkel, die Schreiblichtintensitäten sowie die Aufzeichnungstemperatur sind für die drei Aufzeichnungsprozesse annähernd identisch. Die Reflexionshologramme werden nach Abkühlung auf Raumtemperatur jeweils mit Halogenlicht bis zur Sättigung entwickelt. In Abb. 4.26 ist die Bragg-Reflektivität $\mathcal{R}$ der drei Reflexionshologramme im Kristall DT2-03 in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ_{r} des ordentlich polarisierten Leselichts aufgetragen. Alle drei Hologramme werden bei senkrechter Inzidenz ($\alpha = 0\,°$) des Leselichts an der Position $x \approx 0.5\,\mathrm{mm}$ ausgelesen.

Nach der Schreibdauer von $t_{\mathrm{w}} = 6\,\mathrm{min}$ wird eine maximale Bragg-Reflektivität von $\mathcal{R}_{\max} \approx 0.11$ gemessen. Nach $t_{\mathrm{w}} = 30\,\mathrm{min}$ sowie nach $t_{\mathrm{w}} = 55\,\mathrm{min}$ wird ein Wert von $\mathcal{R}_{\max} \approx 0.78$ erreicht. Die Halbwertsbreite wächst von $\Delta\lambda_{\mathrm{FWHM}} \approx 0.07\,\mathrm{nm}$ für $t_{\mathrm{w}} = 6\,\mathrm{min}$ auf $\Delta\lambda_{\mathrm{FWHM}} \approx 0.16\,\mathrm{nm}$ für $t_{\mathrm{w}} = 30\,\mathrm{min}$ und $t_{\mathrm{w}} = 55\,\mathrm{min}$. Offensichtlich läßt sich $\mathcal{R}_{\max}$ durch länger als 30 min dauerndes Schreiben nicht mehr steigern, allerdings nimmt das Integral $\int \mathcal{R}(\lambda_{\mathrm{r}})\mathrm{d}\lambda_{\mathrm{r}}$ noch um einige Prozent zu, wenn die Schreibdauer von 30 min auf 55 min erhöht wird.

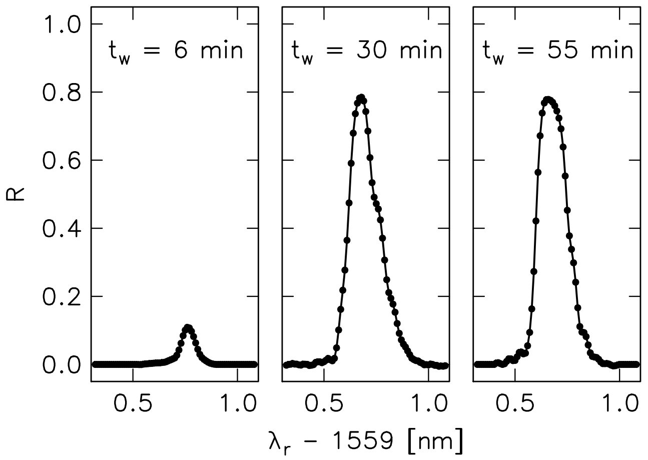


Abbildung 4.26: *Spektrale Bragg-Reflektivität $\mathcal{R}$ von drei thermisch fixierten Reflexionsgittern ($T_w = 180\,°\,C$) unterschiedlicher Schreibdauer t_w bei annähernd gleichen Schreiblichtintensitäten und Schreibwinkeln ($I_r \approx 800\,Wm^{-2}$, $I_l \approx 600\,Wm^{-2}$, $\gamma_r = \gamma_l = (46.86 \pm 0.05)\,°$), jeweils einzeln im Kristall DT2-03 aufgezeichnet und vor dem erneuten Schreiben gelöscht. Es wird mit ordentlich polarisiertem Leselicht (Einfallswinkel $\alpha = 0\,°$, Leseposition $x \approx 0.5\,mm$) gemessen. Die durchgezogenen Linien dienen der Augenführung.*

Nach dem Löschen vorhandener thermisch fixierter Hologramme durch Aufheizen auf etwa 400 °C werden im Kristall DT2-03 zwei thermisch fixierte Reflexionshologramme überlagert. Dazu müssen zunächst die Schreibwinkel zur Aufzeichnung des ersten Reflexionsgitters, im folgenden mit G1 bezeichnet, bei Normaldruck eingestellt werden ($\gamma_{r,1} = 47.663\,°$, $\gamma_{l,1} = 46.192\,°$). Nach dem Evakuieren des Rezipienten wird das Reflexionsgitter G1 bei einer Kristalltemperatur von $T_w = 180\,°\mathrm{C}$ thermisch fixiert, die Schreibdauer und die Schreibintensitäten betragen $t_{w,1} = 55\,\mathrm{min}$ und $I_r = 740\,\mathrm{Wm}^{-2}$ bzw. $I_l = 620\,\mathrm{Wm}^{-2}$. Im Vakuum lassen sich bei erhöhter Temperatur, ausgehend von den Schreibwinkeln $\gamma_{r,1}$ und $\gamma_{l,1}$, die Schreibwinkel für das zweite Reflexionshologramm G2 innerhalb von etwa 1 min einstellen ($\gamma_{r,2} = 46.15\,°$, $\gamma_{l,2} = 47.62\,°$). Die Schreibdauer des Reflexionshologramms G2 bei unveränderten Schreiblichtintensitäten beträgt $t_{w,2} = 21\,\mathrm{min}$. Nach dem Abkühlen wird der Kristall mit Halogenlicht etwa 1 h beleuchtet.

Das Ergebnis der Aufnahme einer Schar von Rockingkurven $\mathcal{R}(\alpha)$ mit der Leselichtwellenlänge λ_r als Scharparameter (ordentliche Lichtpolarisation, $x = 1\,\mathrm{mm}$) ist in Abb. 4.27 dargestellt. Zwischen den $\mathcal{R}(\alpha)$-Messungen wird der Kristall jeweils für etwa 30 min mit Halogenlicht beleuchtet. Durch den Ausfall der Halogenlampe während der automatisierten Messung fällt allerdings die maximale Reflektivität $\mathcal{R}_{\max}$ für die bei $\lambda_r > 1558.68\,\mathrm{nm}$ aufgenommenen Rockingkurven aufgrund der Dunkelrelaxation bis zum Ende der Messung auf etwa 0.25 ab.

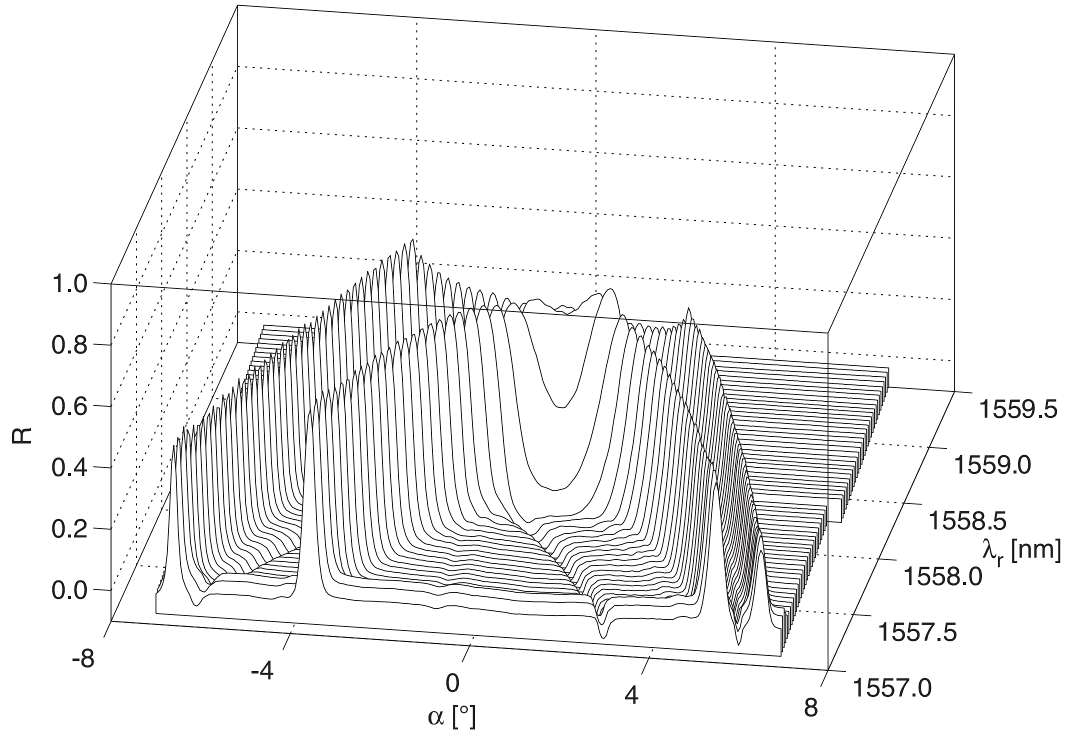


Abbildung 4.27: *Bragg-Reflektivität $\mathcal{R}(\lambda_\mathrm{r}, \alpha)$ der beiden im Kristall DT2-03 überlagerten thermisch fixierten Reflexionshologramme G1 und G2, gemessen mit ordentlich polarisiertem Licht an der Leseposition $x = 1\,\mathrm{mm}$ durch Aufnahme einer Schar von Rockingkurven (Messungen von $\mathcal{R}$ in Abhängigkeit vom Lesewinkel α) mit der Leselichtwellenlänge λ_r als Scharparameter.*

Direkte Messungen der Intensitäten des an den Reflexionsgittern G1 und G2 abgebeugten Lichts bei $x = 1\,\mathrm{mm}$ und $\alpha = 3.4\,°$ ergeben die in Abb. 4.28 über der Leselichtwellenlänge λ_r aufgetragenen Beugungswirkungsgradkurven für ordentlich polarisiertes sowie für außerordentlich polarisiertes Leselicht. Die Maximalwerte des Beugungswirkungsgrads für das Reflexionshologramm G1 betragen 0.59 für ordentlich polarisiertes Leselicht der Wellenlänge $\lambda_r = 1557.71\,\mathrm{nm}$ bzw. 0.56 für außerordentlich polarisiertes Leselicht der Wellenlänge $\lambda_r = 1557.69\,\mathrm{nm}$. Für das Reflexionsgitter G2 lauten die Werte 0.47 bei $\lambda_r = 1558.51\,\mathrm{nm}$ für ordentliche Polarisation bzw. 0.44 bei $\lambda_r = 1558.48\,\mathrm{nm}$ für außerordentliche Polarisation.

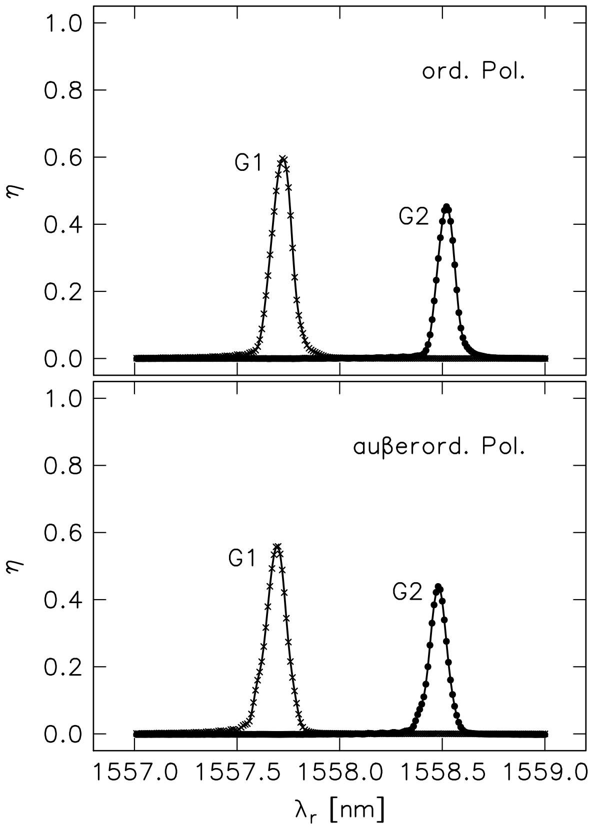


Abbildung 4.28: *Beugungswirkungsgrad η der beiden im Kristall DT2-03 überlagerten thermisch fixierten Reflexionsgitter G1 und G2 in Abhängigkeit von der Leselichtwellenlänge λ_r, gemessen bei $x = 1\,mm$ unter dem Einfallswinkel $\alpha = 3.4\,°$ mit ordentlich polarisiertem (oben) bzw. außerordentlich polarisiertem Leselicht (unten).*

4.4 Diskussion

4.4.1 Experimentelle Verfahren

Variation der Schreibwinkel

Die Überlagerung elementarer Hologramme mit unterschiedlichen Gitterkonstanten und Neigungswinkeln erfordert die Möglichkeit, die Schreibwinkel des holographischen Zweistrahlinterferenzaufbaus verstellen zu können. Mit dem im Rahmen der vorliegenden Arbeit realisierten holographischen Aufbau wird die Variation der Schreibwinkel in einem großen Winkelbereich von bis zu $\pm 20\,°$ möglich. Allerdings bringt der Einsatz einer polarisationserhaltenden Monomodefaser, die zusammen mit den verwendeten Drehtischen die Basis für die Schreibwinkelvariation bildet, einige Nachteile mit sich. So ist der Justageaufwand trotz fest mit den Faserenden verbundener Koppellinsen erheblich. Zudem ist der Änderung der Lage der optischen Achse der Faser durch z. B. deren Bewegung beim Verstellen der Schreibwinkel oder durch Druckänderung Rechnung zu tragen. Dieser Nachteil wird allerdings durch den Betrieb der automatisierten Justage der Halbwellenplatten vor bzw. hinter der Faser aufgehoben, so daß während des Schreibexperiments annähernd konstante Schreiblichtintensitäten am Kristallort vorliegen (Abb. 4.11). Allerdings sind die Intensitätsverluste von bis zu 40 % bei der Transmission durch die Faser sehr groß. Sie werden bei höheren Eingangsleistungen noch steigen, da dann thermische Effekte die Einkoppeleffizienzen und die Lichtleitung beeinflussen. Die Monomodefaser ist für Lichtleistungen bis zu 2 W spezifiziert, bei einer weiteren Leistungssteigerung, die den Schreibprozeß beschleunigen und stärker aufgeweitete Schreibstrahlen ermöglichen würde, wird die Zerstörungsschwelle der Faser überschritten. Schnelle Phasenänderungen des beweglichen Schreibstrahls mit geringer Amplitude ($< 1\,\mathrm{rad}$), die durch statistische Temperaturfluktuationen der Glasfaser entstehen, wirken sich bei der Aufzeichnung von Hologrammen in $LiNbO_3$ aufgrund der relativ großen Antwortzeiten nicht aus. Bei schnelleren Aufzeichnungsmaterialien wird dieser Effekt sicherlich nicht zu vernachlässigen sein. Im Vakuum werden diese Fluktuationen allerdings erheblich reduziert.

Das im Kap. 4.2.2 beschriebene Justageverfahren nutzt die a-Fläche des Kristalls, um mit Hilfe eines Autokollimationsverfahrens die Schreibwinkel γ_l und γ_r mit hoher Genauigkeit ($\Delta\gamma_{\mathrm{r/l}} \approx 9 \times 10^{-3}\,°$) einzustellen. Dennoch weichen die aus den Einfallswinkeln berechneten Gitterkonstanten Λ und Neigungswinkel ζ von den beim Auslesen der Reflexionshologramme ermittelten Werten ab. Aus den Maxima der Rockingkurvenscharen $\mathcal{R}(\lambda_\mathrm{r}, \alpha)$ der Reflexionsgitter in den Kristallen DT1-03 und DT2-03 (Abb. 4.20, 4.23 und 4.27) läßt sich die Bragg-Wellenlänge in Abhängigkeit des Bragg-Winkels, $\lambda_\mathrm{B}(\alpha_\mathrm{B})$, ermitteln. Die Abb. 4.29 und 4.30 zeigen die experimentell gewonnenen $\lambda_\mathrm{B}(\alpha_\mathrm{B})$-Kurven (Meßpunkte) sowie die Ergebnisse jeweiliger Anpassungen der Bragg-Bedingung (2.17) (durchgezogene Kurven). Dabei werden der Brechungsindex $n_\mathrm{r} = 2.2110$ [106] vorgegeben und unter Berücksichtigung der Brechung jeweils die Gitterkonstante Λ und der Neigungswinkel ζ, definiert in der Reflexionsgeometrie ($\zeta \approx 0\,°$), als freie Parameter angepaßt.

Die Anpassungsparameter Λ_f und ζ_f sind in Tab. 4.2 für die vier Hologramme eingetragen. Die Fehlergrenze von Λ_f resultiert aus dem mit 2×10^{-4} angegebenen Fehler des Brechungsindexes $n_\mathrm{r} = 2.2110$ [106] und beträgt etwa 30 pm.

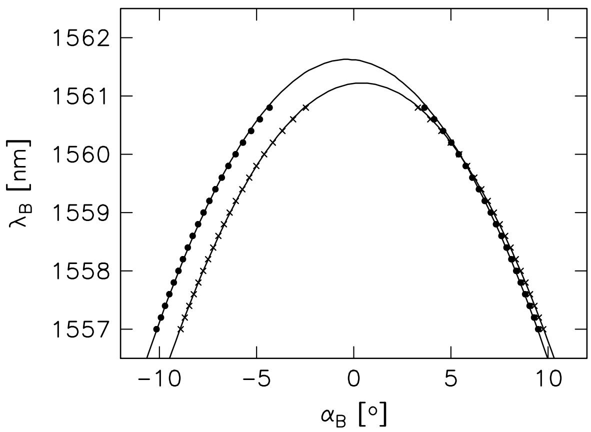


Abbildung 4.29: *Aus den Maxima der Rockingkurvenscharen $\mathcal{R}(\lambda_r, \alpha)$ (Abb. 4.20 und Abb. 4.23) erhaltene Abhängigkeit der Bragg-Wellenlänge λ_B vom Bragg-Winkel α_B für zwei Reflexionshologramme in den Kristallen DT1-03 (•) und DT2-03 (×). Die durchgezogenen Linien stellen die Ergebnisse von Anpassungen der Bragg-Bedingung (2.17) mit der Gitterkonstanten Λ und dem Neigungswinkel ζ als freie Parameter dar.*

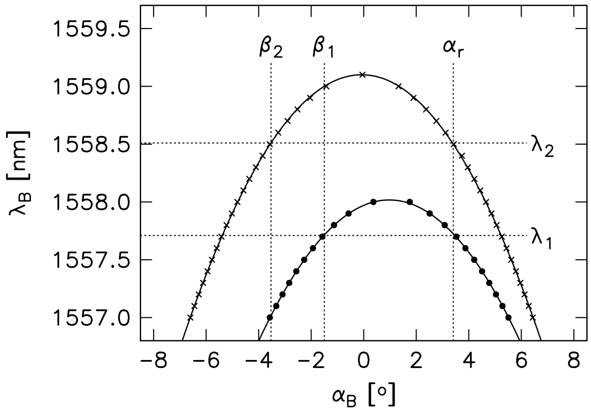


Abbildung 4.30: *Aus den Maxima der Rockingkurvenschar $\mathcal{R}(\lambda_r, \alpha)$ (Abb. 4.27) erhaltene Abhängigkeit der Bragg-Wellenlänge λ_B vom Bragg-Winkel α_B für die beiden überlagerten thermisch fixierten Gitter im Kristall DT2-03 (•: G1; ×: G2). Die durchgezogenen Linien stellen die Ergebnisse von Anpassungen der Bragg-Bedingung (2.17) mit der Gitterkonstanten Λ und dem Neigungswinkel ζ als freie Parameter dar. Unter dem gemeinsamen Einfallswinkel α_r werden die Bragg-Bedingungen der beiden Gitter mit unterschiedlichen Lesewellenlängen λ_1 bzw. λ_2 und unterschiedlichen Ausfallswinkeln β_1 bzw. β_2 erfüllt.*

Unter Berücksichtigung der thermischen Ausdehnung aufgrund der Temperaturdifferenz ΔT zwischen der Schreib– und der Lesetemperatur lassen sich aus den experimentell eingestellten Schreibwinkeln γ_r und γ_l die Werte der Gitterkonstanten Λ_{soll} und und des Neigungswinkels ζ_{soll} berechnen (vgl. Anhang A.2). Dabei werden als Ausdehnungskoeffizienten $\alpha_a = 1.52 \times 10^{-5}$ und $\alpha_c = 4.8 \times 10^{-6}$ [114] sowie als Brechungsindex $n_w = 2.3325$ [115] bei der Schreibwellenlänge $\lambda_w = 514.5\,\mathrm{nm}$ verwendet. Der Fehler von Λ_{soll} beträgt etwa 50 pm und resultiert aus dem Fehler bei der Justage der Schreibwinkel von $9 \times 10^{-3}\,°$.

Im Rahmen der Ungenauigkeit der Winkel zwischen den a- und den c-Flächen der verwendeten Kristalle sind die Neigungswinkel ζ aus der Berechnung mit denen der Anpassung identisch. Aufschlußreicher ist der Vergleich der aus den Schreibwinkeln berechneten Gitterkonstanten Λ_{soll} mit den an die Messung von $\lambda_B(\alpha_B)$ angepaßten Gitterkonstanten Λ_f. Während bei dem bei Raumtemperatur im Kristall DT1-03 aufgezeichneten Reflexionshologramm die Werte für Λ_{soll} und Λ_f annähernd übereinstimmen, ist dies bei den thermisch fixierten Hologrammen im Kristall DT2-03 nicht mehr der Fall. Hier treten stärkere Ab-

Bez.	γ_{r} [°]	γ_{l} [°]	ΔT [K]	Λ_{soll} [nm]	ζ_{soll} [°]	Λ_{f} [nm]	ζ_{f} [°]
DT1-03	46.781	46.781	0	353.03	0.0	353.15	−0.15
DT2-03	46.794	46.794	160	352.73	0.0	352.06	0.19
DT2-03	47.663	46.192	160	351.98	0.46	352.33	0.44
DT2-03	46.15	47.62	160	352.23	−0.46	352.57	−0.04

Tabelle 4.2: *Kristallbezeichnung, experimentell eingestellte Schreibwinkel γ_{r} und γ_{l}, aus den Schreibwinkeln unter Berücksichtigung der Temperaturdifferenz zwischen Schreib- und Leseexperiment, $\Delta T = T_{\mathrm{w}} - T_{\mathrm{r}}$, berechnete Werte der Gitterkonstanten Λ_{soll} und des Neigungswinkels ζ_{soll} sowie aus den Anpassungen der Bragg-Bedingung an die experimentell bestimmten $\lambda_{\mathrm{B}}(\alpha_{\mathrm{B}})$-Kurven erhaltene Gitterkonstanten Λ_{f} und Neigungswinkel ζ_{f}.*

weichungen auf. Zu große Gitterkonstanten $\Lambda_{\mathrm{f}} > \Lambda_{\mathrm{soll}}$ können damit erklärt werden, daß beim Auslesen der Hologramme nur der Winkel α (Rotation um die b-Achse) variiert wird. Ist der Kristall etwas geneigt (Winkel zwischen Gittervektor und Drehachse ungleich 90 °), so fallen die gemessenen Gitterkonstanten zu groß aus. Für das symmetrische Hologramm im Kristall DT2-03 ($\zeta_{\mathrm{soll}} = 0$ °) ist aber Λ_{f} kleiner als Λ_{soll}. Als Ursache dafür können zusätzliche Effekte aufgrund der Temperaturdifferenz ΔT zwischen Schreib- und Leseexperiment verantwortlich gemacht werden. So wird bei der Berechnung der Schreibwinkel keine Temperaturabhängigkeit des Brechungsindexes n_{w} berücksichtigt. Zudem ist eine Dejustage der Schreibwinkel aufgrund einer Drehung des Kristalls während des Aufheizens durchaus denkbar, auch wenn die bei Raumtemperatur erfolgte Winkeljustage exakt durchgeführt worden ist. Der Wert des Brechungsindexes des ordentlich polarisierten Leselichts n_{r} ist ein ebenso kritischer Parameter, da eine Korrektur um 1×10^{-4} schon Änderungen der Gitterkonstanten von etwa 20 pm erfordern.

Aus diesen Untersuchungen folgt: Eine exakte Einstellung der $\lambda_{\mathrm{B}}(\alpha_{\mathrm{B}})$-Abhängigkeit eines Demultiplexers auf die von der International Telecommunication Union (ITU) festgelegten Frequenzen ist aufgrund der aufgeführten Ungenauigkeiten mit erheblichem Aufwand verbunden. Die Genauigkeit der Schreibwinkeljustage ist dazu weiter zu verbessern, und eine vorhergehende genaue Charakterisierung der Temperaturabhängigkeit der Brechungsindizes n_{w} und n_{r} ist erforderlich.

Evakuierung des Holographieaufbaus

Durch das Aufheizen der Kristalle auf Temperaturen von 180 °C wird die Evakuierung der Probenumgebung nötig [88]. Einen vollständigen Holographieaufbau im Vakuum zu betreiben bedeutet allerdings einen großen experimentellen Aufwand. Einige der optischen Komponenten wie z. B. die Halbwellenplatten zur Polarisationsoptimierung bei der Ein- und Auskopplung der Monomodefaser müssen auch im Vakuum manipulierbar sein, und die Handhabung des Rezipienten ist aufwendig. Aber die Unterbringung des gesamten Aufbaus im Rezipienten im Vergleich zu einer lediglich auf die direkte Umgebung des erhitzten Kristalls beschränkten Evakuierung, die häufiger Verwendung findet [23, 88], bietet den Vorteil größerer Flexibilität bei der Realisierung verschiedener Schreibgeometrien. Zudem wird dadurch eine vollständige Eliminierung der auch bei Normaldruck und Raumtemperatur störenden Phasenfluktuationen durch Konvektion erreicht. Dem Einfluß mechanischer Deformation des Aufbaus beim Abpumpen wird, wie interferometrische Messungen beweisen, durch die Verwendung einer sehr soliden Stahlkonstruktion ausreichend entgegengewirkt. Von Nachteil ist das eingeschränkte Raumangebot im Rezipienten.

Aktive Phasenstabilisierung

Die Phasenstabilisierungstechnik stellt einen zentralen Bestandteil des Verfahrens zur Aufzeichnung von Raumtemperaturhologrammen sowie von thermisch fixierten Hologrammen dar. Gerade die langsame Drift der Phasenbeziehung zwischen den beiden Schreibwellen bei Schreibdauern in der Größenordnung von Stunden macht diese Technik unentbehrlich. Zudem bietet die Aufzeichnung der Amplitude der ersten Harmonischen I^{ω} die Möglichkeit, schon während des Schreibprozesses ohne Beugung eines zusätzlichen Monitorstrahls den Aufbau des Hologramms zu überprüfen und auftretende Störungen des Experiments direkt wahrzunehmen. Anhand des I^{ω}-Protokolls kann auch beim Thermischen Fixieren, bei dem eine Kontrolle durch einen zusätzlichen Monitorstrahl aufgrund der verschwindenden Beugungswirkungsgrade annähernd unmöglich ist, direkt entschieden werden, ob der Aufzeichnungsprozeß Störungen unterlegen ist (vgl. Abb. 4.11).

Auslesen der Hologramme

Durch eine geeignete Normierung der Transmission $\mathcal{T}$ eines Reflexionshologramms für infrarotes Leselicht lassen sich Einflüsse auf $\mathcal{T}$ eleminieren, die nicht auf Beugung, sondern z. B. auf Abschattung des transmittierten Strahls durch eine Kristallkante beim Drehen des Hologramms zurückzuführen sind. Wie aus dem direkten Vergleich der Bragg-Reflektivität $\mathcal{R} = 1 - \mathcal{T}$ mit dem Beugungswirkungsgrad η des Reflexionsgitters im Kristall DT1-03 ersichtlich ist, sind $\mathcal{R}$ und η im Rahmen der Meßgenauigkeit identisch (vgl. Abb. 4.17 und 4.18, rechte Kurve). Das Maximum wird von $\mathcal{R}$ wie auch von η bei $\lambda_{\mathrm{r}} = 1558.92\,\mathrm{nm}$ erreicht, und auch die Halbwertsbreiten der Kurven sind mit $\Delta\lambda_{\mathrm{FWHM}} \approx 0.15\,\mathrm{nm}$ gleich groß. Lediglich der Maximalwert unterscheidet sich um weniger als 3 %. Allerdings kann es bei der Ermittlung der Bragg-Reflektivität $\mathcal{R}$ zu größeren Fehlern kommen, wie die teilweise erhaltenen negativen Werte für $\mathcal{R}$ dokumentieren. In diesen Fällen ist die Transmission $\mathcal{T}$ über eins gestiegen. Fabry-Pérot-Reflexionen innerhalb des Kristalls oder aber Beugung des an der Kristallrückseite reflektierten Lichts in Richtung des transmittierten Strahls sind für $\mathcal{R} < 0$ verantwortlich. Diese Effekte können in der zweidimensionalen Darstellung der Bragg-Reflektivität $\mathcal{R}(\lambda_{\mathrm{r}}, \alpha)$ aber als Störungen identifiziert werden, da sie von der Wellenlänge λ_{r} oder vom Einfallswinkel α abhängen (Abb. 4.23, $\mathcal{R} < 0$ aufgrund der Beugung des an der Kristallrückseite reflektierten Lichts). Unter Berücksichtigung dieser Einschränkung gilt also für alle präsentierten Ergebnisse $\eta \approx \mathcal{R}$, auch wenn im folgenden die Unterscheidung der beiden Größen, η und $\mathcal{R}$, beibehalten wird, um den Bezug zur jeweiligen Meßmethode zu verdeutlichen.

Die Verwendung eines konfektionierten GRIN-Kollimators mit einer Strahldivergenz von etwa 0.14 ° für das Auslesen der Reflexionshologramme hat nur geringen Einfluß auf die erzielten Ergebnisse. Die dreidimensionalen Darstellungen der Bragg-Reflektivität $\mathcal{R}(\lambda_r, \alpha)$ zeigen, daß die Maximalwerte von $\mathcal{R}$ für steigende Lesewinkel $|\alpha|$ leicht abnehmen (Abb. 4.20). Hier könnte das Sichtfeld der holographischen Reflexionsgitter bei großen Lesewinkeln α (Abb. 4.3) kleiner als die Strahldivergenz des GRIN-Kollimators werden. Für die geringe Variation von $\mathcal{R}_{\max}$ kann allerdings auch das Auslesen verschiedener Gebiete des Hologramms bei der Drehung verantwortlich sein. Die effektive Gitterdicke d sinkt mit zunehmender Position x (vgl. Abb. 4.4). Zudem kann die Brechungsindexamplitude des Gitters mit steigendem x abnehmen, da die Schreiblichtintensität aufgrund der Absorption der Kristalle ebenfalls mit steigendem x sinkt. Beim Drehen des Hologramms wird das Leselicht also von unterschiedlich dicken Gittern mit variierender Brechungsindexamplitude gebeugt. Desweiteren bewirken die im nächsten Abschnitt diskutierten Abweichungen der Reflexionshologramme vom idealen Zustand eine Vergrößerung des berechneten Sichtfelds (Abb. 4.3), das für eine Strahldivergenz von 0.14 ° Einfallswinkel bis zu etwa 2.5 ° erlaubt.

4.4.2 Reflexionshologramme in $LiNbO_3$

Die Aufzeichnung von Reflexionshologrammen bei Raumtemperatur ist mit geringerem Aufwand als bei erhöhter Temperatur verbunden. Der Schreibprozeß ist besser manipulierbar und schneller durchzuführen als das Thermische Fixieren im Vakuum. Zudem können bereits aufgezeichnete Hologramme schnell durch Beleuchten gelöscht werden, wodurch der Kristall für weitere Experimente zur Verfügung steht, während bei thermisch fixierten Hologrammen die Probe zum Löschen auf etwa 400 °C aufgeheizt werden muß. Es hat sich als sehr sinnvoll erwiesen, erste Voruntersuchungen bei Raumtemperatur durchzuführen, da zunächst die Gefahr besteht, ein Hologramm mit genügend großer Brechungsindexamplitude nicht detektieren zu können, nur weil die Bragg-Bedingung mit dem Leselicht des nur eingeschränkt durchstimmbaren DFB-Lasers nicht erfüllt werden kann.

Die obere Grenze des Schreibwinkels γ für das im Kristall DT1-01 bei Raumtemperatur aufgezeichnete symmetrische Reflexionsgitter, für das die Bragg-Bedingung gemäß Gl. (2.10) beim Auslesen mit Licht der Wellenlänge $\lambda_r = 1559.70\,\text{nm}$ erfüllt werden kann, beträgt $\gamma = 46.785\,°$ (Abb. 4.14). In diesem Fall gilt $\Lambda = \lambda_w/(2 \sin \gamma) = \lambda_r/(2n_r)$, so daß mit der Wellenlänge des Schreiblichts $\lambda_w = 514.5\,\text{nm}$ der Brechungsindex für infrarotes Leselicht bei Raumtemperatur zu $n_r = 2.209 \pm 0.002$ bestimmt werden kann. Dieser Wert liegt nahe an dem der Quelle [106] entnommenen Wert von 2.2110. Der Fehler von n_r resultiert maßgeblich aus der Ungenauigkeit der Schreibwinkeljustage von $\Delta\gamma = 0.05\,°$, die durch die gewölbte a-Fläche des verwendeten Kristalls entsteht. Die Fehler aufgrund der Bandbreiten des Schreib- und des Leselichts sind mehr als eine Größenordnung kleiner.

Einfluß der Oberflächen

Die Steigerung der Schreibzeit von 15 min auf 75 min bei gleichbleibender Gesamtintensität von $I_r + I_l \approx 510\,\mathrm{Wm^{-2}}$ erhöht die maximale Bragg-Reflektivität der im Kristall DT1-01 aufgezeichneten Hologramme von etwa 0.08 auf 0.16 (vgl. Abb. 4.14 und 4.15). Bei nur geringfügig höheren Schreiblichtintensitäten ($I_r + I_l \approx 610\,\mathrm{Wm^{-2}}$) und gleicher Schreibdauer erreicht die Bragg-Reflektivität des im Kristall DT1-02 vor der Nachpolitur aufgezeichneten Hologramms einen Maximalwert von etwa 0.26 (Abb. 4.16). Die Maxwellzeit $\tau_{sc} = \epsilon\epsilon_0/\sigma_{ph}$ für den exponentiell verlaufenden Aufbau der Raumtemperaturhologramme läßt sich aufgrund der proportionalen Abhängigkeit der Photoleitfähigkeit $\sigma_{ph} = 8.2 \times 10^{-15}\,\mathrm{mV^{-2}}\,(I_r + I_l)\,c_{Fe^{2+}}/c_{Fe^{3+}}$ [98] aus der Gesamtintensität $I_r + I_l$, dem Konzentrationsverhältnis $c_{Fe^{2+}}/c_{Fe^{3+}}$ und der Dielektrizitätskonstanten $\epsilon = 28$ [95] berechnen. Das Konzentrationsverhältnis $c_{Fe^{2+}}/c_{Fe^{3+}}$ beträgt für alle Kristalle der DT1-Serie 0.12. Unter Berücksichtigung der Intensitätsverluste der Gesamtintensität von etwa 28 % aufgrund der Fresnelreflexion an der Kristalloberfläche läßt sich die Maxwellzeit für die Hologramme in den Kristallen DT1-01 und DT1-02 zu $\tau_{sc} \approx 11$ min bzw. $\tau_{sc} \approx 9$ min berechnen. Demnach sollte nach einer Schreibdauer von $t_w = 75$ min der Sättigungswert der Brechungsindexamplitude annähernd erreicht sein. Dieser ist in eisendotiertem $LiNbO_3$ nach dem Ein-Zentren-Modell proportional zur Fe^{3+}-Konzentration [44, 45]. Für ordentlich polarisiertes Licht der Wellenlänge $\lambda_r = 514.5$ nm beträgt die Proportionalitätskonstante $\Delta n_s/c_{Fe^{3+}} = 3.4 \times 10^{-29}\,\mathrm{m^3}$ [98]. Sie läßt sich unter Verwendung der Brechungsindizes $n_{514\,\mathrm{nm}} = 2.3325$ und $n_{1.55\,\mu\mathrm{m}} = 2.2110$ sowie der elektrooptischen Koeffizienten $r_{13,514\,\mathrm{nm}} = 10.9\,\mathrm{pmV^{-1}}$ und $r_{13,1.55\,\mu\mathrm{m}} \approx 9\,\mathrm{pmV^{-1}}$ gemäß Gl. (2.8) für infrarotes ordentlich polarisiertes Leselicht umrechnen und beträgt etwa $2.4 \times 10^{-29}\,\mathrm{m^3}$. Mit der Fe^{3+}-Konzentration von $c_{Fe^{3+}} \approx 4.5 \times 10^{24}\,\mathrm{m^{-3}}$ ergibt sich somit für die Kristalle der DT1-Serie eine Sättigungsbrechungsindexamplitude von $\Delta n \approx 1 \times 10^{-4}$. Unter der Voraussetzung einer korrekt angegebenen Gesamteisenkonzentration durch den Hersteller sollten also die in den Kristallen DT1-01 und DT1-02 über eine Dauer von 75 min geschriebenen Hologramme nach Gl. (2.18) mit $d = 10$ mm einen maximalen Beugungswirkungsgrad von $\eta_{id,max} \approx 0.93$ erreichen. Der Grund für die starke Abweichung der experimentellen Ergebnisse von diesem Wert liegt in der Qualität der Reflexionsgitter. Im Gegensatz zu einem idealen Reflexionsgitter lassen sich reale Gitter durch ein Spektrum von Gittervektoren beschreiben. Wellenfrontverzerrungen der Schreibwellen und gekrümmte Oberflächen des Aufzeichnungsmediums führen zu einem solchen Gittervektorspektrum. Daß der letztere Grund als Ursache für die Absenkung der Bragg-Reflektivität $\mathcal{R}_{max}$ der Hologramme in den Kristallen DT1-01 und DT1-02 auf 0.16 bzw. 0.26 in Frage kommt, wird durch die erheblich größere maximale Bragg-Reflektivität von $\mathcal{R}_{max} \approx 0.41$ des im Kristall DT1-03 aufgezeichneten Reflexionsgitters bei gleichzeitig erheblich geringerer Halbwertsbreite deutlich (vgl. Abb. 4.15, 4.16 und 4.17). Dieser Kristall besitzt eine Ebenheit der a-Fläche von $\lambda/5$, während die Kristalle DT1-01 und DT1-02 starke Oberflächenkrümmungen aufweisen. Trotz der geringeren Schreibdauer von $t_w = 30$ min sollte die Brechungsindexamplitude Δn den Sättigungswert annähernd erreicht haben, da sich aufgrund der höheren Schreiblichtintensitäten eine Maxwellzeit von $\tau_{sc} \approx 8$ min errechnen läßt. Beim Vergleich zwischen den experimentellen Ergebnissen von $\mathcal{R}_{max}$ mit dem Beugungswirkungsgrad eines idealen Gitters $\eta_{id,max}$ muß allerdings berücksichtigt werden, daß $\mathcal{R}$ in der Regel an der Position $x = 1\,\text{mm}$ gemessen wird. Aufgrund der für steigende Werte von x geringer werdenden Gitterdicke (vgl. Abb. 4.4) sind dort aber schon geringere Beugungswirkungsgrade zu erwarten als direkt an der a-Fläche ($x = 0\,\text{mm}$) . Dies zeigt sich auch am Hologramm im Kristall DT1-03, das den Wert von $\eta_{\text{id, max}} \approx 0.93$ zwar nicht erreicht, aber für $x \approx 0.75\,\text{mm}$ mit $\mathcal{R}_{\text{max}} \approx 0.6$ (Abb. 4.19) schon recht nahe heranreicht.

Der Einfluß gekrümmter Oberflächen auf die für WDM-Anwendungen entscheidende Wellenlängenselektivität soll in einer Modellbetrachtung erläutert werden. Das Interferogramm der a-Fläche des Kristalls DT1-02 (Abb. 4.5, links) kann in guter Näherung von einem Kristall mit der in Abb. 4.31 (unten) dargestellten Geometrie herrühren. Neben einem mittleren Bereich II mit 4 mm Breite sollen die beiden jeweils 3 mm breiten Randbereiche der a-Fläche angeschrägt sein. Treten wie im Interferogramm des Kristalls DT1-02 etwa 10 Streifen auf einer Länge von 3 mm in den Randbereichen auf (Abb. 4.31, oben), so ergibt sich der Winkel $\Delta\gamma$ zu etwa $0.06\,°$. Somit wird in einem Kristall der beschriebenen Form nicht ein einzelnes Reflexionsgitter der Dicke $d = 10\,\text{mm}$ aufgezeichnet, sondern es entstehen drei Hologramme geringerer Dicken ($d_{\text{I/III}} = 3\,\text{mm}, d_{\text{II}} = 4\,\text{mm}$) mit unterschiedlich orientierten Gittervektoren. Deren Beträge K und Neigungswinkel ζ lassen sich mit den im Anhang A.2 zusammengefaßten Gleichungen berechnen. Anschließend kann mit Hilfe der Gl. (2.18) der Beugungswirkungsgrad η in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ_{r} berechnet werden.

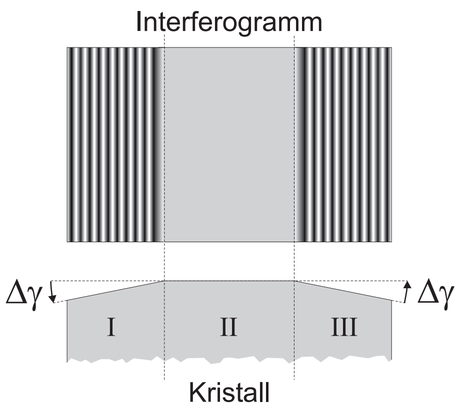


Abbildung 4.31: *Modellkristall mit einer aus drei Teilflächen bestehenden Oberfläche (unten). Der Winkel zwischen der mittleren Fläche (II) und den Seitenflächen (I und III) beträgt $\Delta\gamma$ und läßt sich aus der Anzahl der Streifen des entsprechenden Fizeau-Interferogramms (oben) berechnen.*

Im oberen Graphen der Abb. 4.32 sind die Ergebnisse dieser Rechnungen unter Verwendung von $\Delta n = 1 \times 10^{-4}$ und der Parameter $\gamma_{\text{r}} = 49.0\,°$, $\gamma_{\text{l}} = 44.6\,°$ und $d_{\text{II}} = 4\,\text{mm}$ (η_{II}) sowie der veränderten Parametersätze I ($48.94\,°$; $44.66\,°$; 3 mm: η_{I}) und II ($49.06\,°$; $44.54\,°$; 3 mm: η_{III}) dargestellt. Diese Werte entsprechen in etwa denen des Schreibexperiments im Kristall DT1-02. Weiterhin werden $n_{\text{w}} = 2.3325$, $n_{\text{r}} = 2.2110$, $\Delta T = 0\,°\text{C}$ und $\alpha = -5\,°$ bei der Berechnung genutzt. Deutlich erkennbar ist die Verschiebung der Kurven $\eta_{\text{I}}(\lambda_{\text{r}})$ und $\eta_{\text{III}}(\lambda_{\text{r}})$ um $+0.03\,\text{nm}$ bzw. $-0.03\,\text{nm}$ gegenüber der Kurve $\eta_{\text{II}}(\lambda_{\text{r}})$ mit der Bragg-Wellenlänge bei $\lambda_{\text{r}} = 1559.59\,\text{nm}$. Der Beugungswirkungsgrad η_{st} dieser Anordnung von drei Gittern kann nicht die Summe der einzelnen Beugungswirkungsgrade η_{I}, η_{II} und η_{III} sein, da dadurch $\eta > 1$ erreicht werden könnte. Berücksichtigt man, daß nach dem Einfall des Leselichts auf den Bereich I nur der Bruchteil $(1 - \eta_{\text{I}})$ auf das Gitter II trifft, so wird vom Gitter II der Bruchteil $\eta_{\text{II}}(1 - \eta_{\text{I}})$ und entsprechend der Bruchteil $\eta_{\text{III}}(1 - \eta_{\text{II}})(1 - \eta_{\text{I}})$ vom Gitter III reflektiert. Der erneuten Beugung dieser reflektierten Anteile an den Gittern I und II wird ebenfalls Rechnung getragen, so daß sich der Beugungswirkungsgrad zu $\eta_{\rm st} = \eta_{\rm I} + \eta_{\rm II}(1-\eta_{\rm I})^2 + \eta_{\rm III}(1-\eta_{\rm II})^2(1-\eta_{\rm I})^2$ ergibt. Diese Betrachtung ist eine erste Abschätzung. Bei einer genaueren Analyse wären die gekoppelten Wellengleichungen für drei hintereinandergeschaltete Gitter mit unterschiedlichen Gitterkonstanten und Neigungswinkeln zu lösen. Im unteren Graphen der Abb. 4.32 ist der Beugungswirkungsgrad $\eta_{\rm st}$, berechnet aus den darüber dargestellen Beugungswirkungsgradkurven der Gitter I, II und III, über der Wellenlänge $\lambda_{\rm r}$ aufgetragen. Weiterhin ist der Verlauf des Beugungswirkungsgrads, der sich ergibt, wenn der Bereich II auf den gesamten Kristall ausgedehnt wird, in Abb. 4.32 eingezeichnet. Danach bewirkt die Modelloberfläche eine erhebliche Absenkung des Maximalwerts auf $\eta_{\rm st,max} = 0.55$ im Vergleich zu $\eta_{\rm id,max} \approx 0.93$ bei gleichzeitiger Erhöhung der Halbwertsbreite von 0.1 nm auf 0.2 nm. Gekrümmte Oberflächen rufen nach dieser Modellbetrachtung also eine Absenkung des maximalen Beugungswirkungsgrad bei einer Zunahme der Halbwertsbreite im Vergleich zum idealen Reflexionsgitter hervor. Denselben Effekt erwartet man in Kristallen mit annähernd ungekrümmten Oberflächen, wenn statt ebener Wellen einlaufende Kugelwellen zur Aufzeichnung des Hologramms verwendet werden. Damit läßt sich der verringerte und verbreiterte spektrale Beugungswirkungsgrad $\eta(\lambda_{\rm r})$ des Gitters im Kristall DT1-03 im Vergleich mit einem idealen Gitter erklären.

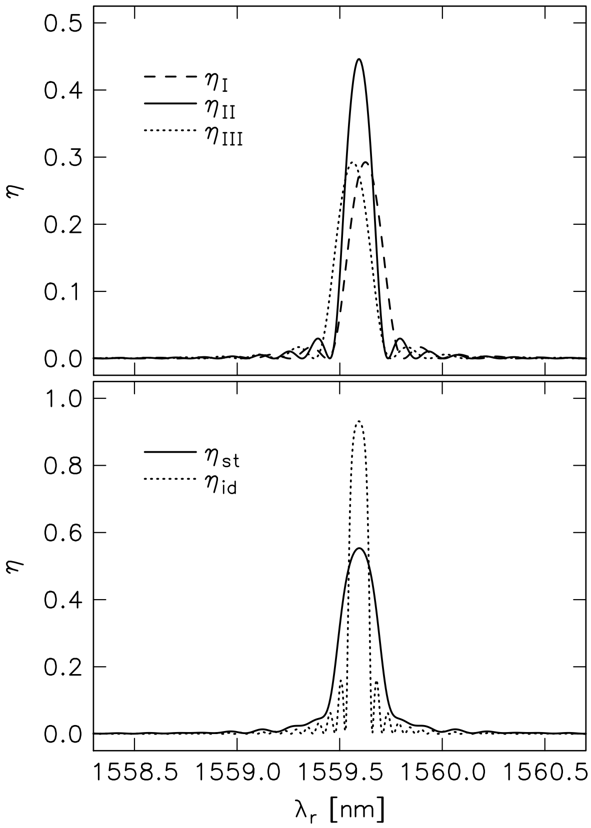


Abbildung 4.32: *Oben: Berechneter Beugungswirkungsgrad η in Abhängigkeit von der Wellenlänge $\lambda_{\rm r}$ für einzeln betrachtete, in den Bereichen I, II und III des in Abb. 4.31 dargestellten Modellkristalls aufgezeichnete Hologramme (Parameter der Rechnung: siehe Text).*
Unten: Mit $\eta_{\rm st} = \eta_{\rm I} + \eta_{\rm II}(1-\eta_{\rm I})^2 + \eta_{\rm III}(1-\eta_{\rm II})^2(1-\eta_{\rm I})^2$ berechneter Gesamtbeugungswirkungsgrad des aus den drei unabhängig beugenden Teilgittern bestehenden Reflexionshologramms gemäß Abb. 4.31 im Vergleich mit dem Beugungswirkungsgrad $\eta_{\rm id}$ eines entsprechenden idealen Reflexionshologramms.

Polarisationsabhängigkeit

Die Aufspaltung des Leselichts in eine ordentlich und in eine außerordentlich polarisierte Eigenwelle führt bei von Null verschiedenen Winkeln θ zwischen dem Wellenvektor im Kristall und der optischen Achse zu einem polarisationsabhängigen Beugungswirkungsgrad. Zwar wird für beide Polarisationsrichtungen annähernd derselbe maximale Beugungswirkungsgrad erzielt, da sich sowohl der effektive elektrooptische Koeffizient $r_{\mathrm{eff}} = r_{13}\cos\theta + r_{33}\sin\theta$ als auch der Brechungsindex $n_{\mathrm{r}} = [(n_{\mathrm{o}}{}^{-1}\cos\theta)^2 + (n_{\mathrm{e}}{}^{-1}\sin\theta)^2]^{-1/2}$ für kleine Winkel $\theta < 5\,°$ nur sehr geringfügig ändern. Allerdings hat selbst die geringfügige Änderung des Brechungsindexes einen signifikanten Einfluß auf die Bragg-Bedingung (2.17). Somit verschiebt sich bei konstantem Einfallswinkel $\theta = \theta_{\mathrm{B}}$ die Bragg-Wellenlänge $\lambda_{\mathrm{r}} = \lambda_{\mathrm{B}}$ beim Wechsel der Lichtpolarisation, wenn θ anwächst. Dieser Zusammenhang wird durch die polarisationsabhängige Messung des spektralen Beugungswirkungsgrads $\eta(\lambda_{\mathrm{r}})$ bei konstantem Einfallswinkel außerhalb des Kristalls am Reflexionshologramm im Kristall DT1-03 bestätigt (Abb. 4.18). Um für einen so großen konstanten Einfallswinkel ($\alpha \approx 7.2\,°$) das Leselicht unabhängig von der Polarisationsrichtung in dieselbe Raumrichtung abzubeugen, müssen zwei Gitter überlagert werden. Die Differenz der effektiven Brechungsindizes $n_{\mathrm{o}} - n_{\mathrm{r}}$ führt zu einer Wellenlängenverstimmung von $\Delta\lambda_{\mathrm{r}} \approx -\lambda_{\mathrm{r}}(n_{\mathrm{o}} - n_{\mathrm{r}})n_{\mathrm{o}}{}^{-1}$. Läßt man als Verstimmung ein Zehntel der experimentell erhaltenen Halbwertsbreite des Hologramms im Kristall DT1-03 zu, also $\Delta\lambda_{\mathrm{FWHM}}/10 \approx 0.015\,\mathrm{nm}$, so wird diese bereits bei einem Einfallswinkel von $\alpha_{\max} \approx 2.2\,°$ erreicht ($n_{\mathrm{e}} = 2.1380$ [106], $\lambda_{\mathrm{r}} = 1558.90\,\mathrm{nm}$). Unter größeren Lesewinkeln fällt der Beugungswirkungsgrad für außerordentlich polarisiertes Licht gegenüber dem für ordentlich polarisiertes Licht erheblich ab.

Eisenabhängigkeit und dynamischer Bereich

Während das im Kristall DT1-02(P) thermisch fixierte Gitter eine maximale Bragg-Reflektivität von nur 2×10^{-3} aufweist, sind die $\mathcal{R}_{\max}$-Werte der im Kristall DT2-03 thermisch fixierten Gitter bei vergleichbaren Schreiblichtintensitäten und teilweise erheblich geringeren Schreibzeiten um etwa einen Faktor 300 größer (vgl. Abb. 4.21 und 4.22). Der Kristall DT2-03 enthält die zehnfache Menge an Eisen ($c_{\mathrm{Fe}} \approx 5 \times 10^{25}\,\mathrm{m}^{-3}$) bei einem $c_{\mathrm{Fe}^{2+}}/c_{\mathrm{Fe}^{3+}}$-Verhältnis von 0.02, das im Kristall DT1-02(P) 0.12 beträgt. Der Einfluß des Eisengehalts auf die Brechungsindexamplitude thermisch fixierter Gitter läßt sich leicht abschätzen. Die nach dem Thermischen Fixieren und dem Entwickeln der Hologramme erhaltene Brechungsindexänderung Δn ist gleich $m_{\mathrm{Fe}^{2+}}\Delta n_{\mathrm{s,RT}}$, wobei $\Delta n_{\mathrm{s,RT}}$ den Sättigungswert der Brechungsindexamplitude bezeichnet, der beim Schreiben mit einem vollständig durchmodulierten Intensitätsmuster bei Raumtemperatur erzielt wird. Hier ist $m_{\mathrm{Fe}^{2+}}$ der Modulationsgrad der Fe^{2+}-Konzentration ($0 < m_{\mathrm{Fe}^{2+}} < 1$). Gelingt es durch genügend langes Schreiben, $m_{\mathrm{Fe}^{2+}} = 1$ zu erzielen, so sollte das thermisch fixierte Hologramm dieselbe Brechungsindexamplitude wie ein bei Raumtemperatur mit vollständig durchmoduliertem Lichtmuster bis zur Sättigung geschriebenes Hologramm aufweisen. Somit gilt der von den Raumtemperaturhologrammen bekannte Zusammenhang $\Delta n \propto c_{\mathrm{Fe}^{3+}}$ also auch für die Brechungsindexamplitude thermisch fixierter Gitter.

Im Kristall DT1-02 kann bei Raumtemperatur – selbst bei stark gekrümmten Oberflächen – ein Reflexionsgitter mit einer maximalen Bragg-Reflektivität von 0.26 aufgezeichnet werden. Zur Erklärung der kleinen Bragg-Reflektivität des thermisch fixierten Hologramms in diesem Kristall muß ein sehr geringer Modulationsgrad $m_{\mathrm{Fe}^{2+}}$ angenommen werden. Der Wert von $\mathcal{R}_{\max} = 2 \times 10^{-3}$ erfordert für ein ideales Reflexionsgitter mit $d = 10\,\mathrm{mm}$ bei einer Wellenlänge von 1558 nm eine Brechungsindexamplitude von $\Delta n = \lambda_{\mathrm{r}}(\pi d)^{-1}\mathrm{arctanh}\sqrt{\mathcal{R}_{\max}} \approx 2 \times 10^{-6}$ (Gl. (2.18) und (2.21)). Der Vergleich mit der im Kristall DT1-02(P) bei Raumtemperatur theoretisch erreichbaren Brechungsindexamplitude von 1×10^{-4} ergibt einen Fe^{2+}-Modulationsgrad von nur $m_{\mathrm{Fe}^{2+}} \approx 0.02$. Die Fe^{2+}-Konzentration kann nur dann vollständig durchmoduliert sein, wenn auch genügend Kompensatoren im Kristall zur Verfügung stehen. Da der Kristall etwa $2 \times 10^{24}\,\mathrm{m}^{-3}$ Protonen enthält, scheidet ein Protonenmangel als Ursache für den niedrigen Fe^{2+}-Modulationsgrad aus. Erst wenn $m_{\mathrm{Fe}^{2+}}$ den Wert des $c_{\mathrm{H}^+}/c_{\mathrm{Fe}^{2+}}$-Verhältnisses erreicht, muß ein anderer, langsamerer Kompensationsmechanismus an die Stelle der Protonenmigration treten. Obwohl das zur Protokollierung des Schreibexperiments aufgenommene I^{ω}-Signal keinen Anlaß zu Zweifeln an der korrekten Funktion der Phasenstabilisierung gibt, kann bislang nur ein fehlerhaftes Stabilisieren während des Schreibpozesses die geringe Bragg-Reflektivität von 2×10^{-3} erklären.

Das bei einer Schreibdauer von 55 min thermisch fixierte Hologramm im Kristall DT2-03 zeigt direkt nach dem Entwickeln eine maximale Bragg-Reflektivität von $\mathcal{R}_{\max} \approx 0.8$ (Abb. 4.26). Dieser Wert wird von einem idealen Hologramm erreicht, wenn die Brechungsindexamplitude etwa 7×10^{-5} beträgt. Aufgrund der Fe^{3+}-Konzentration von $c_{\mathrm{Fe}^{3+}} \approx 4.9 \times 10^{25}\,\mathrm{m}^{-3}$ sollte die Sättigungsbrechungsamplitude von Raumtemperaturhologrammen in diesem Kristall bei etwa 1×10^{-3} liegen, so daß in diesem Fall ein Fe^{2+}-Modulationsgrad von $m_{\mathrm{Fe}^{2+}} \approx 0.07$ errechnet wird. Wahrscheinlich ist $m_{\mathrm{Fe}^{2+}}$ bei diesem Hologramm sogar um den Faktor 2 größer, da die aus einer Anpassung der Gl. (2.18) an die spektrale Bragg-Reflektivität erhaltene Brechungsindexamplitude des thermisch fixierten Gitters etwa doppelt so groß ist, wie die im Abschnitt 4.4.3 präsentierten Anpassungen zeigen (Abb. 4.34 und 4.35).

Aus diesen Anpassungen folgt zudem ein Sättigungswert der Brechungsindexamplitude im Kristall DT2-03 von $\Delta n_{\mathrm{s}} = 1.7 \times 10^{-4}$. Aufgrund der Bestimmung dieses Sättigungswerts durch das unten beschriebene Anpassungsverfahren wird keine hohe Genauigkeit erreicht und deshalb auf die Angabe von Fehlergrenzen verzichtet. Dennoch sind die Meßwerte in jedem Fall erheblich kleiner als $\Delta n_{\mathrm{s}} = 1 \times 10^{-3}$. Dies hätte zur Folge, daß die im Kap. 4.1.2 berechnete Anzahl l der in einem $\mathrm{LiNbO_3}$-Kristall mittels des Thermischen Fixierens überlagerbaren Hologramme wegen $l \propto \Delta n_{\mathrm{s}}$ nach unten korrigiert werden müßte. Das vorgestellte Konzept des Wellenlängenmultiplexings mit thermisch fixierten Reflexionshologrammen hängt aber entscheidend vom Vorteil der Parallelverarbeitung möglichst vieler Kanäle ab, so daß der dynamische Bereich eine besonders wichtige Größe darstellt.

Dunkelrelaxation

Im Unterschied zu den Kristallen der DT1-Serie ist die Bragg-Reflektivität eines im Kristall DT2-03 thermisch fixierten Reflexionsgitters über einen Zeitraum von einigen Tagen nicht konstant (Abb. 4.24). Der Zerfall des Hologramms läßt sich nicht durch eine monoexponentielle Funktion gemäß $\Delta n(t_\mathrm{D}) \propto \exp(-t_\mathrm{D}/\tau_\mathrm{D})$ mit der Zerfallszeit t_D und der Relaxationszeitkonstanten τ_D beschreiben, wenn analog zu den oben ausgeführten Rechnungen aus der maximalen Bragg-Reflektivität $\mathcal{R}_\mathrm{max}(t_\mathrm{D})$ die Brechungsindexänderung $\Delta n(t_\mathrm{D})$ bestimmt wird (Abb. 4.33). Das kann mehrere Ursachen haben: Einerseits kann ein nichtideales Gitter vorliegen, das sich aus leicht unterschiedlichen Teilgittern zusammensetzt. Auch wenn jedes Teilgitter monoexponentiell relaxiert, kann der Gesamtbeugungswirkungsgrad nichtexponentiell abfallen. Andererseits können die Brechungsindexänderungen an sich eine nichtexponentielle Relaxation zeigen. Folgeuntersuchungen zur Dunkelrelaxation von Raumtemperatur-Transmissionshologrammen in Kristallen der DT2-Serie stützen die letztere Deutung [116]. Erstaunlich ist das schnelle Absinken der Bragg-Reflektivität: Bei Raumtemperatur fällt $\mathcal{R}_\mathrm{max}$ innerhalb von etwa 10 h auf etwa die Häfte des Sättigungswerts ab. Für den Abfall zu Beginn der Messung, die etwa 45 min nach der Beendigung der Entwicklung durch Halogenlicht gestartet worden ist, ergibt eine monoexponentielle Anpassung an $\Delta n(t_\mathrm{D})$ eine Dunkelrelaxationszeitkonstante von $\tau_\mathrm{D} \approx 16\,\mathrm{h}$. Dieser Zeitkonstante entspricht eine Dunkelleitfähigkeit von $\sigma_\mathrm{D} = \epsilon\epsilon_0/\tau_\mathrm{D} \approx 4 \times 10^{-15}\,\Omega^{-1}\mathrm{m}^{-1}$, die etwa zwei bis drei Größenordnungen über den in $\mathrm{LiNbO_3}$-Kristallen geringerer Eisenkonzentrationen üblicherweise gemessenen Werten liegt [117]. Auch die Kristalle der Serie DT1 mit einer zehnfach geringeren Eisenkonzentration zeigen einen im Vergleich zum Kristall DT2-03 deutlich langsamer verlaufenden Zerfall der Hologramme.

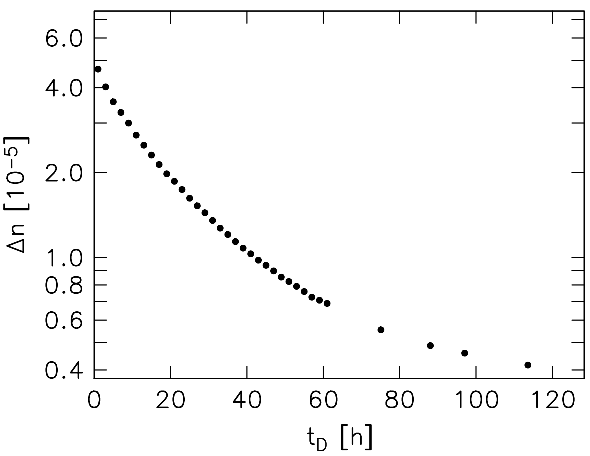


Abbildung 4.33: *Aus den Maximalwerten der Bragg-Reflektivität $\mathcal{R}_\mathrm{max}$ des Hologramms im Kristall DT2-03 berechnete Brechungsindexänderung $\Delta n = \lambda_\mathrm{r}(\pi d)^{-1}\mathrm{arctanh}\sqrt{\mathcal{R}_\mathrm{max}}$ in Abhängigkeit von der Zerfallszeit t_D (vgl. Abb. 4.24).*

Der Maximalwert der Bragg-Reflektivität des im Kristall DT2-03 aufgezeichneten Hologramms wird durch erneutes Entwickeln nach der Dunkelrelaxation wieder erreicht. Aufgrund der Protonenkonzentration $c_\mathrm{H+} = 5 \times 10^{24}\,\mathrm{m}^{-3}$ (Tab. 4.1) und der Protonenbeweglichkeit $\mu_\mathrm{i} = 8.3 \times 10^{-23}\,\mathrm{m^2V^{-1}s^{-1}}$ (Tab. 3.3) sollte die Protonenleitfähigkeit zu einer Dunkelrelaxation mit der Zeitkonstanten $\tau_\mathrm{H+} = \epsilon\epsilon_0/(e\,\mu_\mathrm{i}\,c_\mathrm{H+}) \approx 1000\,\mathrm{h}$ führen. Daher ist die erhöhte Dunkelleitfähigkeit in diesem Kristall nicht auf bewegliche Protonen zurückzuführen, sondern hat wahrscheinlich elektronischen Charakter.

Über die Ursache für die im Kristall DT2-03 auftretende hohe Dunkelleitfähigkeit kann im Rahmen dieser Arbeit keine Aussage getroffen werden. Der schnelle Zerfall der Hologramme in $LiNbO_3$-Kristallen hoher Eisenkonzentration sollte jedoch näher untersucht werden, da thermisch fixierte Hologramme in Kristallen mit solch großer Dunkelleitfähigkeit ständig beleuchtet werden müssen, um den maximalen Beugungswirkungsgrad nutzen zu können. Dies macht den Einsatz einer Lichtquelle, z. B. einer blauen Leuchtdiode, in einem Multiplexer erforderlich.

Temperaturabhängigkeit der Bragg-Bedingung

Der Bragg-Winkel α_B des im Kristall DT2-03 thermisch fixierten Reflexionshologramms ändert sich im Temperaturintervall zwischen 30 °C und 110 °C mit einer Rate von $|\mathrm{d}\alpha_\mathrm{B}/\mathrm{d}T_\mathrm{r}| \approx 7.7 \times 10^{-3}\,{}^\circ\mathrm{K}^{-1}$ (Abb. 4.25). Durch Differentiation der Bragg-Bedingung (2.17) folgt für die Änderung der Gitterkonstanten $\mathrm{d}\Lambda/\mathrm{d}T_\mathrm{r}$ ein Wert von etwa 1.2 pm/K. Damit verschiebt sich die Bragg-Wellenlänge $\lambda_\mathrm{B} \approx 1558.90\,\mathrm{nm}$ mit einer Rate von $\mathrm{d}\lambda_\mathrm{B}/\mathrm{d}T_\mathrm{r} \approx -2n_\mathrm{r}\mathrm{d}\Lambda/\mathrm{d}T_\mathrm{r} \approx 5.4\,\mathrm{pm\,K^{-1}}$. Dieses Ergebnis stimmt mit dem in [22] für ein Reflexionshologramm in $LiNbO_3$ für $\lambda_\mathrm{B} \approx 1548\,\mathrm{nm}$ angegebenen Wert von $\mathrm{d}\lambda_\mathrm{B}/\mathrm{d}T_\mathrm{r} = (5.89 \pm 0.15)\,\mathrm{pm\,K^{-1}}$ annähernd überein. Der ordentliche Brechungsindex von $LiNbO_3$ hängt nur sehr schwach von der Temperatur ab [32]. Vernachlässigt man den thermooptischen Effekt, so ergibt sich der lineare Ausdehnungskoeffizient entlang der c-Achse zu $\alpha_c \approx \mathrm{d}\Lambda/(\Lambda \mathrm{d}T_\mathrm{r}) \approx 3.5 \times 10^{-6}$, der geringfügig unter dem in [114] veröffentlichten Wert von 4.8×10^{-6} liegt. Eine andere Quelle nennt dagegen den Wert von 7.5×10^{-6} [118].

Mit Hilfe einer aktiven Temperaturkontrolle der Genauigkeit ± 0.5 K kann also eine Wellenlängenstabilität von etwa 5 pm für ein thermisch fixiertes Reflexionshologramm in $LiNbO_3$ erreicht werden.

4.4.3 Wellenlängenmultiplexing mit Reflexionshologrammen in $LiNbO_3$

Multiplexing zweier Kanäle

Zur Überlagerung zweier thermisch fixierter Hologramme gleicher Effizienz ist es nötig, die Zeitkonstante τ_w für den Aufbau der Hologramme zu kennen, damit gemäß Gl. (4.3) die notwendigen Schreibzeiten bestimmt werden können. Da keine idealen Reflexionshologramme vorliegen, wird die Brechungsindexänderung nicht aus dem Maximalwert der Bragg-Reflektivität $\mathcal{R}_\mathrm{max}$ der für verschiedene Schreibzeiten t_w thermisch fixierten Gitter bestimmt (Abb. 4.34). Stattdessen wird eine Anpassung der Gl. (2.18) an die Meßkurven $\mathcal{R}(\lambda_\mathrm{r})$ vorgenommen, bei der neben der Brechungsindexänderung Δn nur die Bragg-Wellenlänge λ_B als freier Parameter verwendet wird. Die Dicke der Hologramme verringert sich an der Leseposition $x \approx 0.5\,\mathrm{mm}$ von der Kristallänge $b = 10.1\,\mathrm{mm}$ auf $d = 9.7\,\mathrm{mm}$ (Abb. 4.4) und wird bei den Anpassungen vorgegeben.

Die Ergebnisse der Anpassungen sowie die experimentellen Kurven der drei thermisch fixierten Hologramme sind in Abb. 4.34 dargestellt. Für $t_\mathrm{w} = 6\,\mathrm{min}$ ist eine fünffache

Vergrößerung gewählt. Man erkennt, daß in allen drei Fällen die Maximalwerte der Anpassungskurven zum Teil erheblich über denen der experimentellen Ergebnisse liegen.

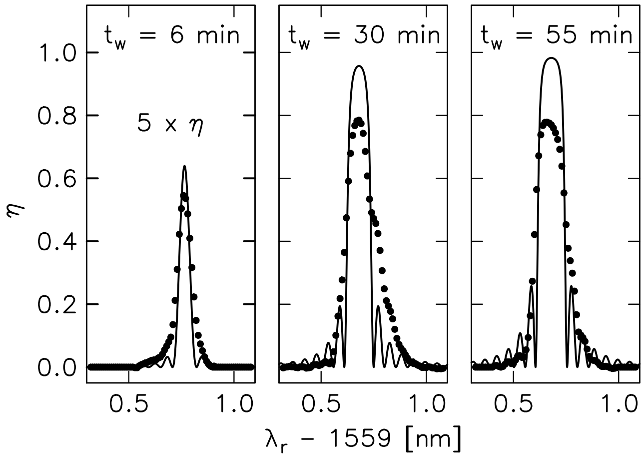


Abbildung 4.34: *Spektraler Beugungswirkungsgrad η der drei thermisch fixierten Reflexionshologramme im Kristall DT2-03 bei unterschiedlicher Schreibdauer t_w für annähernd gleiche Schreiblichtintensitäten und Schreibwinkel. Die durchgezogenen Kurven zeigen Anpassungen von $\eta(\lambda_\mathrm{r})$ an die Meßwerte gemäß Gl. (2.18) mit λ_r und Δn als freie Parameter. Zur besseren Auflösung ist η für $t_\mathrm{w} = 6\,\mathrm{min}$ um den Faktor 5 vergrößert dargestellt.*

Die aus den Anpassungen erhaltenen Werte für die Brechungsindexänderung Δn sind in Abb. 4.35 über der Schreibdauer t_w aufgetragen. Zum Vergleich sind die aus den Maximalwerten $\mathcal{R}_\mathrm{max}$ bestimmten Werte für Δn ebenfalls verzeichnet. Ein Sättigungswert der Brechungsindexamplitude von etwa 7×10^{-5}, der sich aus den Maximalwerten $\mathcal{R}_\mathrm{max}$ ergibt, sollte schon in Kristallen mit einer mehr als zehnfach niedrigeren $c_{\mathrm{Fe}^{3+}}$-Konzentration erzielbar sein. Die aus den Anpassungen erhaltenen Werte für Δn zeigen, daß nach einer Schreibzeit von $t_\mathrm{w} = 55\,\mathrm{min}$ der Sättigungszustand noch nicht erreicht ist. Das Ergebnis der Anpassung eines monoexponentiellen Aufbaus der Brechungsindexänderung analog zu Gl. (4.1) ist ebenfalls in Abb. 4.35 dargestellt (durchgezogene Kurve) und liefert eine Zeitkonstante von $\tau_\mathrm{w} = 30\,\mathrm{min}$ sowie einen Sättigungswert von $\Delta n_\mathrm{s} = 1.7 \times 10^{-4}$.

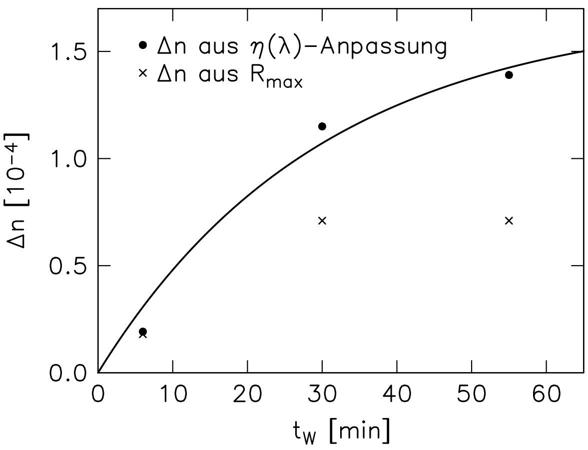


Abbildung 4.35: *Aus den Anpassungen der in Abb. 4.34 dargestellten spektralen Beugungswirkungsgrade erhaltene Brechungsindexänderung Δn der thermisch fixierten Gitter im Kristall DT2-03 für verschiedene Schreibzeiten t_w ($\bullet$) sowie das Ergebnis der Anpassung einer monoexponentiellen Zeitabhängigkeit von Δn gemäß Gl. (4.1) (durchgezogene Linie). Zum Vergleich sind die aus den Maximalwerten der Bragg-Reflektivität berechneten Werte für Δn ebenfalls eingetragen ($\times$).*

Die Überlagerung der beiden thermisch fixierten Reflexionshologramme G1 und G2 im Kristall DT2-03 zeigt, daß der Wert von etwa 30 min für τ_w annähernd korrekt ist. Bei der gewählten Schreibdauer für das Hologramm G1 von $t_{\mathrm{w},1} = 55\,\mathrm{min}$ wird zwar der Sättigungszustand für diese Zeitkonstante noch nicht erreicht, allerdings stellt diese

Schreibzeit einen guten Kompromiß dar, wenn man betrachtet, daß das gesamte Experiment zur Überlagerung der beiden Hologramme einschließlich der Justage an einem Tag durchgeführt werden muß und deshalb die Schreibzeiten nicht zu groß werden dürfen. Mit $\tau_{\mathrm{w}} = 30\,\mathrm{min}$ ergibt sich nach Gl. (4.1) und (4.2) eine Schreibzeit für das zweite Gitter von etwa 18 min. Tatsächlich wird das Gitter G2 mit einer etwas größeren Schreibdauer von $t_{\mathrm{w},2} = 21\,\mathrm{min}$ aufgezeichnet. Als Ergebnis erhält man zwei überlagerte thermisch fixierte Gitter, deren maximale Beugungswirkungsgrade für ordentlich polarisiertes Licht sich lediglich um 20 % unterscheiden.

Die Aufnahme von Rockingkurven $\mathcal{R}(\alpha)$ für verschiedene Wellenlängen λ_{r} ermöglicht die Darstellung der Bragg-Bedingung $\lambda_{\mathrm{B}}(\alpha_{\mathrm{B}})$ für die beiden überlagerten Hologramme (siehe oben, Abb. 4.30). Daraus können für einen vorgegebenen Kanalabstand von $\lambda_2 - \lambda_1 = 0.8\,\mathrm{nm}$ die Einfallsrichtung des Leselichts ($\alpha_1 = \alpha_2 = \alpha_{\mathrm{r}}$), die Leselichtwellenlängen λ_1 und λ_2 und die entsprechenden unterschiedlichen Ausfallswinkel β_1 und β_2 der abgebeugten Wellen abgelesen werden. Für die im Kristall überlagerten Hologramme ergeben sich für ordentlich polarisiertes Leselicht bei $\alpha_{\mathrm{r}} = 3.4\,°$ die Ausfallswinkel $\beta_1 = -1.5\,°$ für $\lambda_1 = 1557.71\,\mathrm{nm}$ und $\beta_2 = -3.5\,°$ für $\lambda_2 = 1558.51\,\mathrm{nm}$.

Die unter diesen Winkeln aufgenommenen Beugungswirkungsgrade η_1 und η_2 der Gitter G1 und G2 wurden schon in Abb. 4.28 gezeigt. Um Informationen über das Kanalübersprechen zu erhalten, zeigt Abb. 4.36 die Daten in logarithmischer Aufragung für ordentlich polarisiertes (oben) bzw. außerordentlich polarisiertes Leselicht (unten).

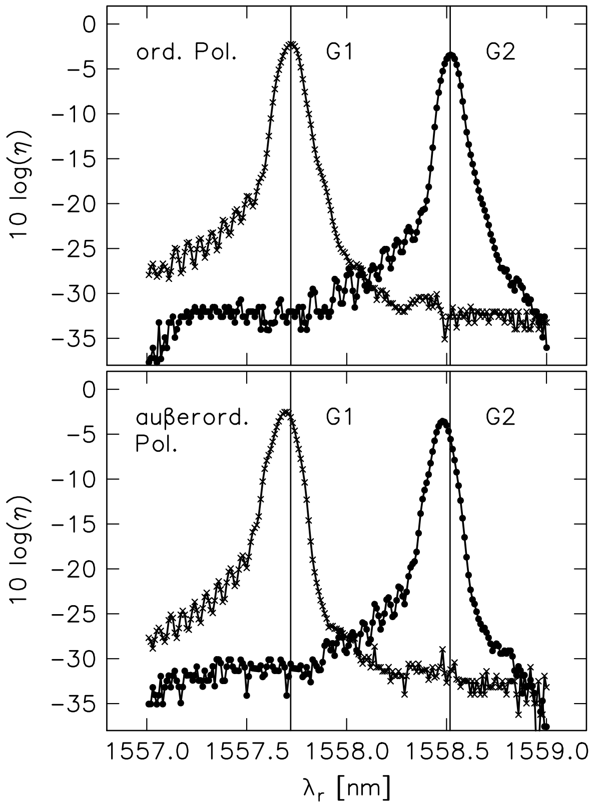


Abbildung 4.36: *Beugungswirkungsgrad η in dB für die beiden im Kristall DT2-03 überlagerten thermisch fixierten Reflexionsgitter G1 und G2 in Abhängigkeit von der Leselichtwellenlänge λ_{r}, gemessen mit ordentlich polarisiertem (oben) und außerordentlich polarisiertem Leselicht (unten). Die durchgezogenen Linien dienen der Augenführung.*

Die Intensitätsverluste beim Demultiplexing betragen für ordentlich polarisiertes Leselicht für die beiden Kanäle 2.3 dB bzw. 3.4 dB. Für den geforderten Kanalabstand von 0.8 nm erhält man eine Übersprechdämpfung von mehr als 28 dB. Die Werte für außerordentlich polarisiertes Licht sind mit 3.2 dB (λ_1) und 5.2 dB (λ_2) für die Intensitätsverluste und 25 dB für die Übersprechdämpfung etwas schlechter. Allerdings bleibt zu betonen, daß diese Werte nur für die vollständig entwickelten Hologramme gelten und somit eine ständige Beleuchtung für den Dauerbetrieb notwendig ist.

Die Resultate zeigen: Mittels der Überlagerung zweier thermisch fixierter Reflexionshologramme in einem $LiNbO_3$-Kristall wird ein nahezu polarisationsunabhängiger Zweikanaldemultiplexer realisiert, dessen Leistungsdaten sehr nahe an die theoretischen Grenzen (Kanalabstand von 0.8 nm, Übersprechdämpfung 30 dB, Intensitätsverlust jeweils 1 dB) heranreichen (Abschnitt 4.1.1).

Vergleich mit anderen Multiplexingverfahren

Die erzielten Leistungsdaten des durch Überlagerung von zwei thermisch fixierten Reflexionshologrammen in $LiNbO_3$ hergestellten Wellenlängendemultiplexers – im folgenden kurz als VPH-Multiplexer (Volumenphasenhologramm) bezeichnet – sind abschließend im Vergleich mit denen der zur Zeit favorisierten WDM-Techniken zu bewerten. Um möglichst viele Kanäle im dritten optischen Fenster der Übertragungsfasern (1530 nm bis 1565 nm) überlagern zu können, sollten Kanalabstände von 0.8 nm oder weniger erreicht werden. Diese Anforderung erfüllen außer dem vorgestellten VPH-Multiplexer derzeit nur monolithische Vielkanalfilter (AWG, arrayed–waveguide gratings) [119] und Multiplexer, die Bragg-Fasergitter (FBG, fiber Bragg gratings) einsetzen [16]. Daher werden diese Techniken im folgenden im Hinblick auf den Kanalabstand, die Übersprechdämpfung, die Intensitätsverluste und die Polarisationsabhängigkeit verglichen.

Kanalabstand und *Übersprechdämfung* sind eng miteinander verknüpfte Parameter: Je kleiner der spektrale Kanalabstand, um so schwieriger ist es, eine gute Kanaltrennung und damit große Übersprechdämpfung zu erzielen. Mit dem im Rahmen der vorliegenden Arbeit erstellten Zweikanal-VPH-Multiplexer werden bei einem Kanalabstand von 0.8 nm Übersprechdämpfungen von mehr als 25 dB erreicht. Dagegen ist bereits ein AWG-Multiplexer mit 128 Kanälen und einem Kanalabstand von 0.2 nm hergestellt worden [120], allerdings sind die dabei erzielten Übersprechdämpfungen von etwa 16 dB unzureichend für den praktischen Einsatz. AWG-Systeme mit 16 bzw. 32 Kanälen mit 0.8 nm Kanalabstand [119, 121] erreichen Übersprechdämpfungen von mehr als 25 dB. Mit einem Achtkanal-FBG-Multiplexer ist bei einem Kanalabstand von 0.4 nm eine Übersprechdämpfung von mehr als 25 dB realisiert worden [16].

Die *Intensitätsverluste* des vorgestellten VPH-Multiplexers sind für die beiden Kanäle und für verschiedene Lichtpolarisationen unterschiedlich und liegen zwischen 2.3 dB und 5.2 dB. Sie werden noch um etwa ein bis zwei dB steigen, wenn das abgebeugte Licht der beiden Kanäle mittels GRIN-Linsen wieder in Fasern eingekoppelt wird. Im Vergleich dazu erreichen die Intensitätsverluste von AWG-Multiplexern Werte zwischen 3.9 dB [121] und 9 dB [119]. FBG-Multiplexer weisen große Einfügeverluste auf, wenn 3dB-Koppler zur Kanaltrennung der von den Bragg-Fasergittern reflektierten Signale genutzt werden. Durch eine geschickte Kombination von optischen Zirkulatoren und 3dB-Kopplern ist ein für FBG-Multiplexer relativ geringer Intensitätsverlust von 7.5 dB erzielt worden [16].

In der optischen Nachrichtentechnik wird unpolarisiertes Licht verwendet. Beide Kanäle des VPH-Multiplexers weisen jedoch eine *Polarisationsabhängigkeit* des Intensitätsverlusts auf. Die Änderung des Intensitätsverlusts für ordentlich bzw. außerordenlich polarisiertes Licht beträgt etwa 0.9 dB (G1) bzw. 1.8 dB (G2). Die Bragg-Wellenlänge verschiebt sich um 0.02 nm bzw. 0.03 nm. Die vormals große Polarisationsabhängigkeit von AWG-Multiplexern mit Verschiebungen der Filterwellenlänge um 0.2 nm wird durch integrierte Halbwellenplatten [121] oder geeignete Wahl der Deckschichtmaterialien für die überwiegend verwendeten Siliziumsubstrate auf Werte unterhalb von 0.03 nm gesenkt [122]. Bragg-Fasergitter besitzen von der Polarisation unabhängige Filtereigenschaften. Somit wird die Polarisationsabhängigkeit eines FBG-Multiplexers durch die verwendeten 3dB-Koppler und optischen Zirkulatoren bestimmt. Durch aufwendige Verfahren gelingt es, diese Komponenten mit vernachlässigbarer Polarisationsabhängigkeit herzustellen [123].

In der abschließenden Gesamtbewertung erscheint der im Rahmen der vorliegenden Arbeit erstellte VPH-Multiplexer durchaus konkurrenzfähig: Die erzielten Übersprechdämpfungen liegen zwischen denen von AWG- und von FBG-Multiplexern. Dabei muß berücksichtigt werden, daß lediglich Hologramme mit einer Dicke von weniger als 10 mm zur Kanaltrennung Verwendung finden. Werden dickere Hologramme eingesetzt, so sollte es möglich sein, den Kanalabstand bei Übersprechdämpfungen von mehr als 25 dB auf 0.4 nm zu reduzieren. Die Anzahl der Kanäle eines VPH-Multiplexers ist durch den dynamischen Bereich des Aufzeichnungsmaterials beschränkt, so daß die Herstellung von 16- oder 32-Kanal-VPH-Multiplexern in $LiNbO_3$ bei Verwendung verbesserter Aufzeichnungsverfahren durchaus realistisch erscheint. Die Intensitätsverluste des VPH-Multiplexers sind schon nach der ersten experimentellen Realisation mit denen der AWG-Multiplexer vergleichbar und deutlich geringer als die von FBG-Multiplexern. Nach einer Optimierung des Aufzeichnungsverfahrens sollte sich eine Verminderung der Intensitätsverluste erzielen lassen, so daß hier VPH-Multiplexer gegenüber den anderen Techniken im Vorteil sind. Dagegen benötigt ein in $LiNbO_3$ erzeugter VPH-Multiplexer wie die AWG-Multiplexer eine aktive Temperaturkontrolle, um Variationen der Wellenlänge der einzelnen Kanäle zu vermeiden, während Bragg-Fasergitter durch den geschickten Einsatz verschiedener Materialien bei der Faserummantelung annähernd temperaturunabhängig hergestellt werden können [124]. Ein weiterer Nachteil des VPH-Multiplexers entsteht durch die Polarisationsabhängigkeit der Intensitätsverluste, also des Beugungswirkungsgrads der einzelnen Reflexionshologramme. Diese resultiert aus der Doppelbrechung des verwendeten $LiNbO_3$-Kristalls, die bei größeren Einfallswinkeln die Überlagerung von zwei Hologrammen je Kanal erfordert (vgl. Kap. 4.4.2). Abschließend bleibt zu betonen, daß VPH-Multiplexer wie auch FBG-Multiplexer nicht integriert-optisch hergestellt werden können. AWG-Multiplexer ermöglichen jedoch als integriert-optische Technik die Integration z. B. von Modulatoren und Empfängern – ein je nach Anwendung möglicherweise entscheidendes Argument für dieses Multiplexingverfahren.

Kapitel 5

Ausblick

Aus den erzielten Ergebnissen ergeben sich zahlreiche Anknüpfungspunkte für weitere Experimente, die sich sowohl auf die weiterführende Untersuchung des Thermischen Fixierens in $LiNbO_3$ als auch auf das Wellenlängenmultiplexing mit Reflexionshologrammen sowie einige neue Anwendungsmöglichkeiten thermisch fixierter Hologramme beziehen.

Der dem Thermischen Fixieren in $LiNbO_3$-Kristallen zugrundeliegende Mechanismus wird in der vorliegenden Arbeit aufgeklärt: Sofern genügend Wasserstoff in den Kristallen enthalten ist, sind Protonen für die Kompensation des Raumladungsfelds während des Aufzeichnungsprozesses verantwortlich. Thermisches Fixieren ist jedoch auch in protonenarmen Kristallen möglich. Nicht bekannt ist, welche Ionen in dehydrierten Kristallen die Rolle der Ladungskompensatoren übernehmen. Da die Lebensdauer thermisch fixierter Hologramme von der Beweglichkeit der Kompensatoren bei Raumtemperatur abhängt, kommt der Frage nach der Identität dieser bislang unbekannten Kompensatoren eine große Rolle zu. Sowohl extrinsische Defekte wie Alkalimetalle, Halogenide und Silizium als auch intrinsische Defekte wie Li-Fehlstellen kommen in $LiNbO_3$ in Betracht. Sollten extrinsische Defekte als Kompensatoren wirken, so könnte durch eine Verringerung der Konzentration dieser Defekte die Lebensdauer thermisch fixierter Hologramme in $LiNbO_3$ erheblich gesteigert werden. Sind dagegen intrinsische Ionen für die Kompensation verantwortlich, so ist eine Steigerung der Lebensdauer davon abhängig, ob die Beweglichkeit der Ionen überhaupt verringert werden kann.

Li-Fehlstellen treten in $LiNbO_3$ in großer Konzentration auf [53], wodurch eine Art Löcherleitung von Li-Ionen ermöglicht werden könnte. Um zu klären, ob das der Fall ist, sind direkte Nachweismethoden wie z. B. die Röntgen-Photoelektronen-Spektroskopie oder die Röntgen-Mikrosonden-Analyse nicht anwendbar, da schon etwa 10^{-5} der in $LiNbO_3$ enthaltenen Li-Atome zur Raumladungsfeldkompensation beim Thermischen Fixieren ausreichen. Deshalb sollten Untersuchungen an $LiNbO_3$-Kristallen mit unterschiedlichem Li-Nb-Verhältnis durchgeführt werden: Für nahezu stöchiometrische Kristalle sollte die Migration von Li-Ionen erschwert sein. Ist die Wanderung von Li-Ionen über Fehlstellen der dominante Kompensationsmechanismus in protonenfreien Kristallen, so müßten Schreib- und Lebensdauer der thermisch fixierten Hologramme deutlich ansteigen.

Ein weiterer Ansatz zur Identifizierung der Kompensatoren in dehydrierten $LiNbO_3$-Kristallen kann die Beugung kalter Neutronen an den Dichtegittern sein, die durch die Modulation der Kompensatoren entstehen. Der Beugungswirkungsgrad für Neutronen hängt von der elementspezifischen kohärenten Streulänge b_c der Kompensatoren und von deren Dichteamplidude ab [125]. Gelingt es, die Ladungsdichteamplitude thermisch fixierter Hologramme in dehydrierten Kristallen aus Beugungswirkungsgradmessungen mit Licht zu bestimmen sowie den Neutronenbeugungswirkungsgrad der Hologramme, der in der Größenordnung von 10^{-5} oder kleiner liegen dürfte, mit genügend großer Genauigkeit zu messen, so kann die Streulänge b_c ermittelt werden. Die Werte von b_c sind für sämtliche Nuklide bekannt [126]. Somit kann eine Bestimmung von b_c Aufschluß über die Identität der Kompensatoren liefern. Erste Messungen des Neutronenbeugungswirkungsgrads an thermisch fixierten Hologrammen in dehydrierten $LiNbO_3$-Kristallen sollen in Kürze am Institut Laue-Langevin in Grenoble durchgeführt werden.

Die in der vorliegenden Arbeit vorgestellte Anhebung der Sättigungsbrechungsindexamplitude thermisch fixierter Hologramme durch Pulslaserbeleuchtung ist bei Pulsdauern von einigen ns erzielt worden. Für Pulsdauern unterhalb von etwa $100\,\mu$s ist jedoch statt der Pulsintensität die Pulsenergiedichte der entscheidende Parameter [105]. Die Entwicklung thermisch fixierter Hologramme in $LiNbO_3$ durch Laserpulse mit Pulsdauern im Bereich von μs statt mit ns-Pulsen könnte bei Intensitäten unterhalb der Zerstörschwelle von $LiNbO_3$ eine weitere Steigerung der Sättigungsbrechungsindexamplitude bewirken, da sich die Pulsenergiedichte dadurch um etwa drei Größenordnungen anheben läßt. Auch dieser Effekt sollte in Abhängigkeit von der Stöchiometrie der Kristalle untersucht werden.

Die etwa zwei Größenordnungen höhere Dunkelleitfähigkeit bei dem hochdotierten $LiNbO_3$-Kristall (Eisenkonzentration $5 \times 10^{25}\,\mathrm{m}^{-3}$) im Vergleich mit den Werten der geringer dotierten Proben führt zu einer raschen Relaxation thermisch fixierter Hologramme im Dunkeln und erfordert ständiges Entwickeln der Hologramme beim praktischen Einsatz in einem Wellenlängenmultiplexer. Die Ursache dieser ungewöhnlich hohen Dunkelleitfähigkeit ist bislang ungeklärt. Daher sollte die Dunkelleitung in $LiNbO_3$-Kristallen mit Eisenkonzentrationen über $1 \times 10^{25}\,\mathrm{m}^{-3}$ systematisch untersucht werden, um gegebenenfalls die Dunkelrelaxationszeiten thermisch fixierter Gitter zu optimieren. Ein Teil der Brechungsindexänderung erweist sich als resistent gegenüber der Dunkelrelaxation, der Ursache ist nachzugehen. Neben der direkten, nicht-elektrooptischen Brechungsindexmodulation allein aufgrund der modulierten Dichte der Kompensatoren ist ein elektrooptischer Beitrag möglich, wenn aufgrund einer erhöhten Dunkelleitung sowie einer stark modulierten Fe^{2+}-Konzentration Elektronen mit einer räumlichen Verteilung ins Leitungsband angehoben und durch Diffusion umverteilt werden [116]. Dann könnte selbst bei großer Dunkelleitfähigkeit in einem unbeleuchteten Kristall ein Raumladungsfeld entstehen, das den Brechungsindex moduliert.

Ein wichtiger Aspekt bei der Überlagerung einer großen Anzahl thermisch fixierter Hologramme zur Realisation eines Vielkanalmultiplexers in $LiNbO_3$ ist der dynamische Bereich der Sättigungsbrechungsindexamplitude, die für moderate Eisenkonzentrationen bis zu etwa $1 \times 10^{25}\,\mathrm{m}^{-3}$ proportional mit der Fe^{3+}-Konzentration ansteigt [24]. Die vorgestellten Ergebnisse der Aufzeichnung thermisch fixierter Reflexionsgitter in einem Kristall mit fünffach höherer Eisenkonzentration deuten allerdings erheblich geringere Sättigungswerte an, als nach dem proportionalen Zusammenhang bei linearer Extrapolation zu erwarten wäre. Die Überprüfung der Proportionalität für hohe Eisenkonzentrationen ($> 10^{25}\,\mathrm{m}^{-3}$) ist daher von großem Interesse für das Konzept überlagerter thermisch fixierter Reflexionshologramme in $LiNbO_3$ zum Wellenlängenmultiplexing. Die Ermittlung und – falls möglich – die Beseitigung der Ursache reduzierter Brechungsindexänderungen stellen lohnende Ziele dar.

Unabhängig von der Wahl des Aufzeichnungsmaterials bieten Reflexionshologramme die Möglichkeit des Wellenlängenmultiplexings vieler Kanäle aufgrund ihrer hohen Wellenlängenselektivität. Allerdings sind dazu annähernd ideale Gitter erforderlich. Die Verbesserung der Wellenlängenselektivität durch den Einsatz von Kristallen hoher Oberflächenplanität deutet an, daß auf die Ebenheit der Schreibwellen im Aufzeichnungsmaterial bei der Steigerung der Qualität der Gitter besonderes Augenmerk gelegt werden muß. Zudem ist zu überprüfen, inwieweit kleine Schreibwinkelvariationen während des Aufzeichnungsprozesses, induziert durch den piezoangetriebenen Spiegel der Phasenstabilisierung, ein Spektrum von Hologrammen mit geringfügig unterschiedlich orientierten Gittervektoren erzeugen. Auch ein Entspiegeln der Oberflächen, das Intensitätsverluste und störendes reflektiertes Licht im Kristall vermeidet, wird die Qualität der Hologramme weiter steigern.

Mit diesen Verbesserungen ist ein polarisationsunabhängiges Multiplexing mit Reflexionsgittern in $LiNbO_3$ auch bei größeren Einfallswinkeln des infraroten Leselichts möglich, indem für jeden Kanal zwei Hologramme überlagert werden, je eines für die ordentliche und die außerordentliche Welle. Nach der Aufspaltung des einfallenden Lichts in die beiden unter verschiedenen Winkeln im Kristall laufenden Eigenwellen werden diese an den beiden Hologrammen so abgebeugt, daß sie außerhalb des Kristalls wieder kollinear verlaufen. Damit ist dann eine Steigerung der Anzahl der Kanäle realisierbar. Ein als nächster Schritt anvisierter polarisationsunabhängiger 4-Kanal-Multiplexer sollte mit dem vorhandenen Schreibaufbau realisierbar sein. Bei einer weiteren Steigerung der Anzahl der Kanäle werden sicherlich exaktere Systeme zur Winkeljustage und genaueste Kenntnisse der Temperaturabhängigkeit der Brechungsindizes der verwendeten $LiNbO_3$-Kristalle benötigt. Weniger hohe Anforderungen an die Justage der Schreibwinkel würden gestellt werden, wenn zur Aufzeichnung der Reflexionshologramme statt der Transmissionsgeometrie die Reflexionsgeometrie benutzt werden könnte. Dazu müßte allerdings infrarotes Schreiblicht verwendet werden. Photorefraktive Effekte in $BaTiO_3$ und $KNbO_3$ bei Schreibwellenlängen um $1.5\,\mu\mathrm{m}$ [127, 128] geben Anlaß zu Bemühungen, die photorefraktive Empfindlichkeit von $LiNbO_3$ in diesem Wellenlängenbereich zu steigern.

Parallel zur Aufzeichnung in $LiNbO_3$ sollten andere photorefraktive Materialien hinsichtlich ihrer Eignung für die Überlagerung von Reflexionshologrammen zum Wellenlängenmultiplexing untersucht werden. Lichtempfindliche Polymere mit einem großen dynamischen Bereich der Brechungsindexänderung von bis zu 10^{-2} scheinen sehr attraktiv [129, 130]. Besonders interessant sind dabei die sogenannten Azo-Verbindungen, bei denen mit Licht reversibel zwischen Cis- und Trans-Isomeren hin- und hergeschaltet werden kann, wodurch große Brechungsindexänderungen entstehen [131, 132]. Offen ist jedoch, ob sich Polymere in den benötigten Dicken mit ausreichender Homogenität herstellen lassen.

Außer zur Realisation eines Wellenlängenmultiplexers bieten sich thermisch fixierte Hologramme in $LiNbO_3$ auch für weitere Anwendungen an. Eine dieser Möglichkeiten besteht in der Erzeugung vieler schmalbandiger Lichtquellen, indem ein einfallender breitbandiger Lichtstrahl durch überlagerte thermisch fixierte Reflexionshologramme in mehrere schmalbandige Strahlen unterschiedlicher Ausbreitungsrichtungen aufgeteilt wird. Ein weiteres Einsatzfeld könnten thermisch fixierte Hologramme erschließen, indem sie zur Verbesserung des Strahlprofils von Diodenlasern benutzt werden. Dazu müßte das Licht des Diodenlasers zur Aufzeichnung verwendet werden: Das durch Überlagerung eines raumfrequenzgefilterten Teilstrahls mit einem ungefilterten Teilstrahl erzeugte Hologramm wird thermisch fixiert. Durch Beugung an diesem Hologramm wird das Licht des Diodenlasers nun gefiltert, es wird eine Welle mit bereinigtem Strahlprofil abgebeugt. Eine anscheinend ausreichende photorefraktive Infrarot-Empfindlichkeit von $LiNbO_3$ scheint diese Technik auch bei Wellenlängen im Bereich von 800 nm zu erlauben, da aufgrund der aktiven Phasenstabilisierung lange Schreibzeiten kein Problem darstellen [133]. Zuguterletzt sei erwähnt, daß die Modulation der Fe^{2+}-Konzentration nach dem Thermischen Fixieren zur Herstellung von optischen Richtungsfiltern verwendet werden könnte, da die im $LiNbO_3$-Kristall entstehenden Absorptionsgitter bei senkrecht zum Gittervektor einfallendem sichtbaren Licht eine deutlich höhere Transmission aufweisen als unter anderen Einfallswinkeln.

Das Thermische Fixieren bietet also ein reiches wissenschaftliches Arbeitsfeld. Realistische Weiterentwicklungen des Wellenlängenmultiplexings mit Volumenphasenhologrammen können zu einem praktischen und weit verbreiteten Einsatz dieses Verfahrens in der optischen Nachrichtentechnik führen. Darüber hinaus sind weitere interessante Anwendungen thermisch fixierter Hologramme als passive Komponenten in der technischen Optik denkbar.

Kapitel 6

Zusammenfassung

Eine Schlüsselkomponente optischer Kommunikationsnetze sind Wellenlängenmultiplexer, die eine gleichzeitige Übertragung mehrerer Kanäle unterschiedlicher Wellenlänge in einer Glasfaser ermöglichen. In der vorliegenden Arbeit wird untersucht, ob thermisch fixierte Volumenphasenhologramme in Lithiumniobatkristallen ($LiNbO_3$) zum Wellenlängenmultiplexing, also beispielsweise zur Kanaltrennung beim Empfänger, geeignet sind. Licht unterschiedlicher Wellenlänge soll dabei die Bragg-Bedingungen verschiedener überlagerter Hologramme erfüllen und in unterschiedliche Richtungen abgebeugt werden.

Die Phasenhologramme werden über den photorefraktiven Effekt erzeugt. Inhomogene Beleuchtung verteilt in $LiNbO_3$-Kristallen Elektronen um, so daß sich elektrische Raumladungsfelder aufbauen, die den Brechungsindex über den elektrooptischen Effekt ändern. Anschließende homogene Beleuchtung löscht diese Brechungsindexänderungen jedoch. Beim Thermischen Fixieren werden dagegen permanente Brechungsindexänderungen erzielt, indem die Kristalle während der inhomogenen Beleuchtung oder danach erwärmt und nach der Abkühlung homogen beleuchtet werden.

Räumlich aufgelöste Absorptions- und Brechungsindexmessungen an thermisch fixierten makroskopischen Lichtmustern in eisen- und kupferdotierten $LiNbO_3$-Kristallen werden mit den Ergebnissen von Simulationsrechnungen verglichen und führen zu einem umfassenden Verständnis der beim Thermischen Fixieren ablaufenden physikalischen Prozesse: Beim Schreiben bei erhöhter Temperatur (160 °C bis 180 °C) werden die Raumladungsfelder kompensiert. Die Elektronenumverteilung setzt sich deshalb solange fort, bis keine Elektronenspender oder -fänger mehr vorhanden sind oder der Kompensationsmechanismus erschöpft ist. In Kristallen mit einer Wasserstoffkonzentration, die mit der Konzentration umverteilter Elektronen vergleichbar ist, sind bewegliche Protonen für die Kompensation bei erhöhter Temperatur verantwortlich. Thermisches Fixieren ist allerdings auch in Kristallen mit geringem Wasserstoffgehalt möglich. Ein bislang nicht identifizierter Kompensationsmechanismus springt ein, wobei das Umklappen ferroelektrischer Domänen nicht die Ursache ist. Bei der Entwicklung thermisch fixierter Hologramme durch homogene Beleuchtung treten aufgrund der räumlich modulierten Konzentrationen mit Elektronen gefüllter und leerer photorefraktiver Zentren räumlich entsprechend modulierte Ströme auf. Die erhaltenen Brechungsindexänderungen sind vollständig auf den elektrooptischen Effekt zurückzuführen. Die Lebensdauer thermisch fixierter Hologramme in protonenreichen Kristallen wird mit etwa 15 Jahren abgeschätzt, in dehydrierten Kristallen werden erheblich größere Lebensdauern erwartet. Ferner wird experimentell gezeigt, daß sich mit Licht hoher Intensität die Sättigungsbrechungsindexänderungen um den Faktor 1.5 im Vergleich zur Entwicklung mit Dauerstrichlaserintensitäten anheben lassen.

Auf der Basis dieser weitreichenden Erkenntnisse läßt sich ein Wellenlängenmultiplexer durch die Überlagerung thermisch fixierter Reflexions-Volumenphasenhologramme für infrarotes Leselicht mit Wellenlängen im Telekommunikationsbereich um $1.55\,\mu$m realisieren. Dazu wird ein im Vakuum betriebener Zweistrahlinterferenzaufbau für frei einstellbare Gitterkonstanten und –orientierungen erstellt (Schreiblichtwellenlänge 514 nm), mit dem mehrere Hologramme in einem Kristall durch sukzessive Beleuchtung mit sinusförmig modulierten Interferenzmustern überlagert und thermisch fixiert werden können. Als unabdingbar erweist sich die Installation einer auf Strahlkopplung basierenden, aktiven Interferenzmusterstabilisierung, mit der ungewollte Phasenverschiebungen zwischen den Schreibstrahlen aufgrund externer Störungen auch bei mehrstündiger Aufzeichnung kompensiert werden.

Voruntersuchungen zur Winkel– und Wellenlängenselektivität von Reflexionshologrammen verdeutlichen den Einfluß gekrümmter Kristalloberflächen. Erst durch die Verwendung von Kristallen mit sehr ebenen Oberflächen gelingt die Aufzeichnung annähernd idealer Reflexionshologramme mit ausreichender Wellenlängenselektivität (spektrale Halbwertsbreite 0.16 nm). Experimente zur Abhängigkeit des Beugungswirkungsgrads thermisch fixierter Hologramme von der Gesamteisenkonzentration führen zur Verwendung von $LiNbO_3$ mit hoher Eisendotierung ($c_{\mathrm{Fe}} = 5 \times 10^{25}\,\mathrm{m}^{-3}$). Damit werden Beugungswirkungsgrade für das infrarote Licht von bis zu 80 % erzielt. Eine ungewöhnlich hohe Dunkelleitfähigkeit macht aber selbst bei Raumtemperatur eine permanente homogene Entwicklungsbeleuchtung nötig. Als Ursache der hohen Dunkelleitfähigkeit läßt sich die Migration von Protonen ausschließen. Temperaturabhängige Messungen verdeutlichen, daß mit einer Temperaturkontrolle der Genauigkeit $\pm\,0.5\,^{\circ}$C eine Wellenlängenstabilität von 0.005 nm für ein thermisch fixiertes Reflexionshologramm in $LiNbO_3$ erreicht wird. Wenn das Leselicht nicht parallel zur optischen Achse der Kristalle verläuft, führt die Aufspaltung in die beiden Polarisationseigenzustände des Lichts im Kristall zur polarisationsabhängigen Beugung. Bei größeren Winkeln zwischen der Einfallsrichtung des Leselichts und der optischen Achse ($> 2.2\,^{\circ}$) muß für jede Eigenwelle jeder Wellenlänge ein Hologramm aufgezeichnet werden, um die Verluste gering zu halten.

Nach der Superposition zweier thermisch fixierter Reflexionshologramme in einem $LiNbO_3$-Kristall werden die Leistungsdaten des erstellten Zweikanalmultiplexers ermittelt. Der Kanalabstand beträgt 0.8 nm. Geringe Intensitätsverluste zwischen 2.3 dB und 5.2 dB und Übersprechdämpfungen von mehr als 25 dB sowie eine annähernde Polarisationsunabhängigkeit zeigen, daß der entwickelte Wellenlängendemultiplexer konkurrenzfähig im Vergleich mit derzeit untersuchten bzw. schon im Einsatz befindlichen Verfahren ist. Das motiviert weitergehende Untersuchungen zum Wellenlängenmultiplexing in photorefraktiven Materialien.

Literaturverzeichnis

[1] C. D. Chen, I. Kim, O. Mizuhara, T. V. Nguyen, K. Ogawa, R. E. Tench, L. D. Tzeng, P. D. Yeates. *1.2Tbit/s (30 Ch $\times$ 40Gbit/s) WDM Transmission over 85 km Fiber.* Electron. Lett. **34**, 1002 (1998).

[2] E. Herter, W. Lörcher. *Nachrichtentechnik: Übertragung, Vermittlung und Verarbeitung.* 7. Aufl. Hanser, München, 1994.

[3] V. W. S. Chan. *All–Optical Networks.* Scientific American, 56 (September 1995).

[4] A. M. Vengsarkar, W. A. Reed. *Dispersion-Compensating Single-Mode Fibers: Efficient Designs for First- and Second-Order Compensation.* Opt. Lett. **18**, 924 (1993).

[5] C. A. Bracket. *Foreword: Is There an Emerging Consensus on WDM Networking?* J. Lightwave Technol. **14**, 936 (1996).

[6] V. Barabas. *Optische Signalübertragung.* R. Oldenbourg, München, Wien, 1993.

[7] E. Desurvire, J. R. Simpson, P. C. Becker. *High-Gain Erbium-Doped Traveling-Wave Fiber Amplifier.* Opt. Lett. **12**, 888 (1987).

[8] J. L. Zyskind, J. A. Nagel, H. D. Kidorf. Erbium-Doped Fiber Amplifiers – *Optical Fiber Telecommunication IIIB, I. P. Kaminov und T. L. Koch (Hrsg.).* Academic Press (San Diego), 1997.

[9] International Telecommunication Union, Genf (Schweiz). *ITU-T Recommendation G.692* (1998).

[10] S. R. Mallinson. *Wavelength-Selective Filters for Single-Mode Fiber WDM Systems Using Fabry-Perot Interferometers.* Appl. Opt. **26**, 430 (1987).

[11] J. Stone, L. W. Stulz. *Pigtailed High-Finesse Tunable Fibre Fabry-Perot Interferometers with Large, Medium and Small Free Spectral Ranges.* Electron. Lett. **23**, 781 (1987).

[12] J. Stone, L. W. Stulz. *Passively Temperature-Compensated Nontunable Fibre Fabry-Perot Etalons.* Electron. Lett. **29**, 1608 (1993).

[13] M. K. Smit. *New Focusing and Dispersive Planar Component Based on an Optical Phased Array.* Electron. Lett. **24**, 385 (1988).

[14] K. O. Hill, Y. Fujii, D. C. Johnson, B. S. Kawasaki. *Photosensitivity in Optical Fiber Waveguides: Application to Reflection Filter Fabrication.* Appl. Phys. Lett. **32**, 647 (1978).

[15] K. O. Hill, G. Meltz. *Fiber Bragg Grating Technology Fundamentals and Overview.* J. Lightwave Technol. **15**, 1263 (1997).

[16] J. J. Pan, Y. Shi. *Dense WDM Multiplexer and Demultiplexer with 0.4 nm Channel Spacing.* Electron. Lett. **34**, 74 (1998).

[17] JDS Fitel Inc., Nepean (Kanada). *Produkt-Katalog* (1998).

[18] H. Kogelnik. *Coupled Wave Theory for Thick Hologram Gratings.* Bell Syst. Tech. J. **48**, 2909 (1969).

[19] W. J. Tomlinson. *Wavelength Multiplexing in Multimode Optical Fibers.* Appl. Opt. **16**, 2180 (1977).

[20] K. Nakamura, Y. Kurosawa, K. Ishikawa. *Tunable Optical Filters using a $LiNbO_3$ Torsional Actuator with a Fabry–Perot Etalon.* Appl. Phys. Lett. **68**, 2799 (1996).

[21] Xiaoli Fu, J. M. Xu. *A Novel Grating–in–Etalon WDM Device and a Proof–of–Concept Demonstration of a 1×40 Polarization Insensitive WDM.* IEEE Photon. Technol. Lett. **9**, 779 (1997).

[22] V. Leyva, G. A. Rakuljic, B. O'Conner. *Narrow Bandwidth Volume Holographic Optical Filter Operating at the Kr Transition at 1547.82 nm.* Appl. Phys. Lett. **65**, 1079 (1994).

[23] R. Müller, M. T. Santos, L. Arizmendi, J. M. Cabrera. *A Narrow–Band Interference Filter with Photorefractive $LiNbO_3$.* J. Phys. D: Appl. Phys. **27**, 241 (1994).

[24] R. Sommerfeldt, L. Holtmann, E. Krätzig, B. C. Grabmaier. *Influence of Mg Doping and Composition on the Light–Induced Charge Transport in $LiNbO_3$.* phys. stat. sol. (a) **106**, 89 (1988).

[25] J. J. Amodei, D. L. Staebler. *Holographic Pattern Fixing in Electro–Optic Crystals.* Appl. Phys. Lett. **18**, 540 (1971).

[26] O. Althoff, E. Krätzig. *Strong Light–Induced Refractive Index Changes in $LiNbO_3$.* SPIE **1273**, 12 (1990).

[27] F. Jermann, E. Krätzig. *Charge Transport Processes in $LiNbO_3$ at High Intensity Laser Pulses.* Appl. Phys. A **55**, 114 (1992).

[28] K. Buse. *Light–Induced Charge Transport Processes in Photorefractive Crystals I: Models and Experimental Methods.* Appl. Phys. B **64**, 273 (1997).

[29] K. Buse. *Light–Induced Charge Transport Processes in Photorefractive Crystals II: Materials.* Appl. Phys. B **64**, 391 (1997).

[30] R. Orlowski, E. Krätzig. *Holographic Method for the Determination of Photo–Induced Electron and Hole Transport in Electro–Optic Crystals.* Solid State Commun. **27**, 1351 (1978).

[31] D. L. Staebler, J. J. Amodei. *Coupled–Wave Analysis of Holographic Storage in $LiNbO_3$.* J. Appl. Phys. **43**, 1042 (1972).

[32] F. Jermann, K. Buse. *Light–Induced Thermal Gratings in $LiNbO_3$:Fe.* Appl. Phys. B **59**, 437 (1994).

[33] F. Jermann, K. Buse, M. Simon, E. Krätzig. *Laser–Induced Transient Gratings in $LiNbO_3$:Fe.* Optical Materials **4**, 318 (1995).

[34] A. M. Glass, D. von der Linde, T. J. Negran. *High–Voltage Bulk Photovoltaic Effect and the Photorefractive Process in $LiNbO_3$.* Appl. Phys. Lett. **25**, 233 (1974).

[35] V. I. Belinicher, V. K. Malinovskiĭ, B. I. Sturman. *Photogalvanic Effect in a Crystal with Polar Axis.* Sov. Phys.: JETP **46**, 362 (1977).

[36] V. I. Belinicher, B. I. Sturman. *The Photogalvanic Effect in Media Lacking a Center of Symmetry.* Sov. Phys.: Uspekhy **23**, 199 (1980).

[37] V. L. Vinetskii, N. V. Kukhtarev. *Theory of the Conductivity Induced by Recording Holographic Gratings in Nonmetallic Crystals.* Sov. Phys. Solid State **16**, 2414 (1975).

[38] G. A. Brost, R. A. Motes, J. R. Rotgé. *Intensity–Dependent Absorption and Photorefractive Effects in Barium Titanate.* J. Opt. Soc. Am. B **5**, 1879 (1988).

[39] K. Buse, E. Krätzig. *Three–Valence Charge–Transport Model for Explanation of the Photorefractive Effect.* Appl. Phys. B **61**, 27 (1995).

[40] H. Kurz, E. Krätzig, W. Keune, H. Engelmann, U. Gonser, B. Dischler, A. Räuber. *Photorefractive Centers in $LiNbO_3$, studied by Optical–, Mössbauer– and EPR–Methods.* Appl. Phys. **12**, 355 (1977).

[41] E. Krätzig. *Photorefractive Effects and Photoconductivity in $LiNbO_3$:Fe.* Ferroelectrics **21**, 635 (1978).

[42] E. Krätzig, H. Kurz. *Photo–Induced Currents and Voltages in $LiNbO_3$.* Ferroelectrics **13**, 295 (1976).

[43] E. Krätzig, R. Orlowski. *Reduction of Optical Damage Effects in $LiNbO_3$ and $LiTaO_3$.* Opt. Quant. Electron. **12**, 495 (1980).

[44] E. Krätzig, R. Sommerfeldt. *Influence of Dopants on Photorefractive Properties of $LiNbO_3$ Crystals.* SPIE **1273**, 2 (1990).

[45] E. Krätzig, H. Kurz. *Photorefractive and Photovoltaic Effects in Doped $LiNbO_3$.* Optica Acta **24**, 475 (1977).

[46] E. Krätzig, R. Orlowski. *Light–Induced Charge Transport in Doped $LiNbO_3$ and $LiTaO_3$.* Ferroelectrics **27**, 241 (1980).

[47] R. Sommerfeldt, R. A. Rupp, H. Vormann, E. Krätzig. *Thermal Fixing of Volume Phase Holograms in $LiNbO_3$:Cu.* phys. stat. sol. (a) **99**, K15 (1987).

[48] C.-T. Chen, D. M. Kim, D. von der Linde. *Efficient Hologram Recording in $LiNbO_3$:Fe Using Optical Pulses.* Appl. Phys. Lett. **34**, 321 (1979).

[49] F. Jermann, J. Otten. *The Light–Induced Charge Transport in $LiNbO_3$:Fe at High Light Intensities.* J. Opt. Soc. Am. B **10**, 2085 (1993).

[50] S. C. Abrahams, P. Marsh. *Defect Structure Dependence on Composition in Lithium Niobate.* Acta Crystallogr. Sect. B **42**, 61 (1986).

[51] N. Iyi, K. Kitamura, F. Izumi, J. K. Yamamoto, T. Hayashi, H. Asano, S. Kimura. *Comparative Study of Defect Structures in Lithium Niobate with Different Compositions.* J. Solid State Chem. **101**, 340 (1992).

[52] N. Zotov, H. Boysen, J. Schneider, F. Frey. *Application of Combined Neutron and X–Ray Powder Diffraction Refinements to the Structure of Congruent Lithium Niobate.* Materials Science Forums **166–169**, 631 (1994).

[53] B. C. Grabmaier, W. Wersing, W. Koestler. *Properties of Undoped and MgO–Doped $LiNbO_3$; Correlation to the Defect Structure.* J. Cryst. Growth **110**, 339 (1991).

[54] O. F. Schirmer, D. von der Linde. *Two–Photon and X–Ray–Induced Nb^{4+} and O^- Small Polarons in $LiNbO_3$.* Appl. Phys. Lett. **33**, 35 (1978).

[55] J. F. Nye. *Physical Properties of Crystals.* Oxford University Press (London), 1979.

[56] D. Gabor. *A New Microscopic Principle.* Nature **161**, 777 (1948).

[57] P. A. M. Dos Santos, L. Cescato, J. Frejlich. *Interference–Term Real–Time Measurement for Self–Stabilized Two–Wave Mixing in Photorefractive Crystals.* Opt. Lett. **13**, 1014 (1988).

[58] P. M. Garcia, K. Buse, D. Kip, J. Frejlich. *Self–Stabilized Holographic Recording in $LiNbO_3$:Fe Crystals.* Opt. Commun. **117**, 235 (1995).

[59] J. J. Amodei, W. Phillips, D. L. Staebler. *Improved Electrooptic Materials and Fixing Techniques for Holographic Recording.* Appl. Opt. **11**, 390 (1972).

[60] F. Micheron, G. Bismuth. *Electrical Control of Fixation and Erasure of Holographic Patterns in Ferroelectric Materials.* Appl. Phys. Lett. **20**, 79 (1972).

[61] F. Micheron, G. Bismuth. *Field and Time Thresholds for the Electrical Fixation of Holograms Recorded in $(Sr_{0.75}Ba_{0.25})Nb_2O_6$ Crystals.* Appl. Phys. Lett. **23**, 71 (1973).

[62] D. von der Linde, A. M. Glass, K. F. Rodgers. *Multiphoton Photorefractive Processes for Optical Storage in $LiNbO_3$.* Appl. Phys. Lett. **25**, 155 (1974).

[63] H. Vormann, E. Krätzig. *Two Step Excitation in $LiTaO_3$:Fe for Optical Data Storage.* Solid State Commun. **49**, 843 (1984).

[64] K. Buse, L. Holtmann, E. Krätzig. *Activation of $BaTiO_3$ for Infrared Holographic Recording.* Opt. Commun. **85**, 183 (1991).

[65] K. Buse, F. Jermann, E. Krätzig. *Infrared Holographic Recording in $LiNbO_3$:Cu.* Appl. Phys. A **58**, 191 (1994).

[66] K. Buse, A. Adibi, D. Psaltis. *Nonvolatile Holographic Storage in Doubly Doped Lithium Niobate Crystals.* Nature **393**, 665 (1998).

[67] E. Krätzig, R. Orlowski. *$LiTaO_3$ as Holographic Storage Material.* Appl. Phys. **15**, 133 (1978).

[68] L. Arizmendi. *Thermal Fixing of Holographic Gratings in $Bi_{12}SiO_{20}$.* J. Appl. Phys. **65**, 423 (1989).

[69] G. Montemezzani, P. Günter. *Thermal Hologram Fixing in Pure and Doped $KNbO_3$ Crystals.* J. Opt. Soc. Am. B **7**, 2323 (1990).

[70] G. Montemezzani, M. Zgonik, P. Günter. *Photorefractive Charge Compensation at Elevated Temperatures and Application to $KNbO_3$.* J. Opt. Soc. Am. B **10**, 171 (1993).

[71] D. Kirillov, J. Feinberg. *Fixable Complementary Gratings in Photorefractive $BaTiO_3$.* Opt. Lett. **16**, 1520 (1991).

[72] D. Zhang, Y. Zhang, C. Li, Y. Chen, Y. Zhu. *Thermal Fixing of Holographic Gratings in $BaTiO_3$.* Appl. Opt. **34**, 5241 (1995).

[73] J. J. Amodei, W. Phillips, D. L. Staebler. *Improved Electrooptic Materials for Holographic Storage Applications.* IEEE J. Quant. Electron. **7**, 321 (1971).

[74] B. F. Williams, W. J. Burke, D. L. Staebler. *Mobile Si Ions in Fe–Doped $LiNbO_3$ Crystals.* Appl. Phys. Lett. **28**, 224 (1976).

[75] V. I. Kovalevich, L. A. Shuvalov, T. R. Volk. *Spontaneous Polarization Reversal and Photorefractive Effect in Single–Domain Iron–Doped Lithium Niobate Crystals.* phys. stat. sol. (a) **45**, 249 (1978).

[76] D. L. Staebler, J. J. Amodei. *Thermally Fixed Holograms in $LiNbO_3$.* Ferroelectrics **3**, 107 (1972).

[77] G. Bergmann. *The Electrical Conductivity of $LiNbO_3$.* Solid State Commun. **6**, 77 (1968).

[78] P. J. Jorgensen, R. W. Bartlett. *High Temperature Transport Processes in Lithium Niobate.* J. Phys. Chem. Sol. **30**, 2639 (1969).

[79] R. G. Smith, D. B. Fraser, R. T. Denton, T. C. Rich. *Correlation of Reduction in Optically Induced Refractive–Index Inhomogeneity with OH Content in $LiTaO_3$ and $LiNbO_3$.* J. Appl. Phys. **39**, 4600 (1968).

[80] W. Bollmann, H.-J. Stöhr. *Incorporation and Mobility of OH^- Ions in $LiNbO_3$ Crystals.* phys. stat. sol. (a) **39**, 477 (1977).

[81] S. Klauer, M. Wöhlecke, S. Kapphan. *Influence of H–D Isotopic Substitution on the Protonic Conductivity of $LiNbO_3$.* Phys. Rev. B **45**, 2786 (1992).

[82] W. Meyer, P. Würfel, R. Munser, G. Müller-Vogt. *Kinetics of Fixation of Phase Holograms in $LiNbO_3$.* phys. stat. sol. (a) **53**, 171 (1979).

[83] H. Vormann, G. Weber, S. Kapphan, E. Krätzig. *Hydrogen as Origin of Thermal Fixing in $LiNbO_3$:Fe.* Solid State Commun. **40**, 543 (1981).

[84] V. V. Kulikov, S. I. Stepanov. *Mechanisms of Holographic Recording and Thermal Fixing in Photorefractive $LiNbO_3$:Fe.* Sov. Phys. Solid State **21**, 1849 (1979).

[85] P. Hertel, K. H. Ringhofer, R. Sommerfeldt. *Theory of Thermal Hologram Fixing and Application to $LiNbO_3$:Cu.* phys. stat. sol. (a) **104**, 855 (1987).

[86] R. Matull, R. A. Rupp. *Microphotometric Investigation of Fixed Holograms.* J. Phys. D: Appl. Phys. **21**, 1556 (1988).

[87] M. Carrascosa, F. Agulló-López. *Theoretical Modeling of the Fixing and Developing of Holographic Gratings in $LiNbO_3$.* J. Opt. Soc. Am. B **7**, 2317 (1990).

[88] L. Arizmendi, P. D. Townsend, M. Carrascosa, J. Baquedano, J. M. Cabrera. *Photorefractive Fixing and Related Thermal Effets in $LiNbO_3$.* J. Phys.: Condens. Matter **3**, 5399 (1991).

[89] S. Kapphan, A. Breitkopf. *PE–Layers and Proton Diffusion Profiles in $LiNbO_3$ Investigated with Fourier–IR and Second Harmonic Generation.* phys. stat. sol. (a) **133**, 159 (1992).

[90] J. B. Herrington, B. Dischler, J. Schneider. *An EPR investigation of Fe^{3+} and Me^{2+} in $LiNbO_3$.* Solid State Commun. **10**, 509 (1972).

[91] G. E. Peterson, A. M. Glass, T. J. Negran. *Control of the Susceptibility of Lithium Niobate to Laser–Induced Refractive Index Change.* Appl. Phys. Lett. **19**, 130 (1971).

[92] Institute of Electrical and Electronic Engineers, Inc., New York (U.S.A.). *IEEE Standard on Piezoelectricity Std 176-1987* (1987). ISSN 1-55937-860-3.

[93] N. V. Kukhtarev. *Kinetics of Hologram Recording and Erasure in Electrooptic Crystals.* Sov. Tech. Phys. Lett. **2**, 438 (1976).

[94] R. T. Smith, F. S. Welsh. *Temperature Dependence of the Elastic, Piezoelectric, and Dielectric Constants of Lithium Tantalate and Lithium Niobate.* J. Appl. Phys. **42**, 2219 (1971).

[95] A. Mansingh, A. Dhar. *The AC Conductivity and Dielectric Constant of Lithium Niobate Single Crystals.* J. Phys. D: Appl. Phys. **18**, 2059 (1985).

[96] G. J. Edwards, M. Lawrence. *A Temperature-Dependent Dispersion Equation for Congruently Grown Lithium Niobate.* Opt. Quant. Electron. **16**, 373 (1984).

[97] K. Onuki, N. Uchida, T. Saku. *Interferometric Method for Measuring Electro–Optic Coefficients in Crystals.* J. Opt. Soc. Am. **62**, 1030 (1972).

[98] R. Sommerfeldt, L. Holtmann, E. Krätzig, B. C. Grabmaier. *The Light–Induced Charge Transport in* $LiNbO_3$*:Mg,Fe Crystals.* Ferroelectrics **92**, 219 (1989).

[99] S. Fries, S. Bauschulte, E. Krätzig, K. Ringhofer, Y. Yacoby. *Spatial Frequency Mixing in Lithium Niobate.* Opt. Commun. **84**, 251 (1991).

[100] S. H. Wemple, M. DiDomenico, Jr., I. Camlibel. *Relationship between Linear and Quadratic Electro–Optic Coefficients in* $LiNbO_3$*,* $LiTaO_3$ *and other Oxygen–Octahedra Ferroelectrics based on Direct Measurement of Spontaneous Polarization.* Appl. Phys. Lett. **12**, 209 (1968).

[101] A. Yariv, S. S. Orlov, G. A. Rakuljic. *Holographic Storage Dynamics in Lithium Niobate: Theory and Experiment.* J. Opt. Soc. Am. B **13**, 2513 (1996).

[102] L. Arizmendi, E. M. de Miguel-Sanz, M. Carrascosa. *Lifetimes of Thermally Fixed Holograms in* $LiNbO_3$*:Fe Crystals.* Opt. Lett. **23**, 960 (1998).

[103] M. Simon, St. Wevering, K. Buse, E. Krätzig. *The Bulk Photovoltaic Effect of Photorefractive* $LiNbO_3$ *Crystals at High Light Intensities.* J. Phys. D: Appl. Phys. **30**, 144 (1997).

[104] R. Sommerfeldt. *Der Einfluß weiterer Verunreinigungen auf das photorefraktive Verhalten Fe–dotierter* $LiNbO_3$*–Kristalle.* Universität Osnabrück, 1989. Dissertation.

[105] D. von der Linde, O. F. Schirmer, H. Kurz. *Intrinsic Photorefractive Effect of* $LiNbO_3$. Appl. Phys. **15**, 153 (1978).

[106] D. F. Nelson, R. M. Mikulyak. *Refractive Indices of Congruently Melting Lithium Niobate.* J. Appl. Phys. **45**, 3688 (1974).

[107] S. Fries, S. Bauschulte. *Wavelength Dependence of the Electrooptic Coefficients in* $LiNbO_3$*:Fe.* phys. stat. sol. (a) **125**, 369 (1991).

[108] R. J. Holmes, Y. S. Kim, C. D. Brandle, D. M. Smyth. *Evaluation of Crystals of* $LiNbO_3$ *Doped with MgO or* TiO_2 *for Electrooptic Devices.* Ferroelectrics **51**, 41 (1983).

[109] D. Psaltis, D. Brady, K. Wagner. *Adaptive Optical Networks Using Photorefractive Crystals.* Appl. Opt. **27**, 1752 (1988).

[110] Y. Taketomi, J. E. Ford, H. Sasaki, J. Ma, Y. Fainman, S. H. Lee. *Incremental Recording for Photorefractive Hologram Multiplexing.* Opt. Lett. **16**, 1774 (1991).

[111] S. Tao, Z. H. Song, D. R. Selviah. *Bragg–Shift of Holographic Gratings in Photorefractive $LiNbO_3$:Fe Crystals.* Opt. Commun. **108**, 144 (1994).

[112] Newport GmbH, 64295 Darmstadt. *Prüfprotokoll C500035* (1996). Private Mitteilung.

[113] S. Breer, K. Buse, K. Peithmann, H. Vogt, E. Krätzig. *Stabilized Recording and Thermal Fixing of Holograms in Photorefractive Lithium Niobate Crystals.* Rev. Sci. Instr. **69**, 1591 (1998).

[114] P. K. Gallagher, H. M. O'Bryan jr., E. M. Gyorgy, J. T. Krause. *Thermal Expansion and Transitions of Single-Crystal Lithium Niobate from $-60°C$ to $250°C$.* Ferroelectrics **75**, 71 (1987).

[115] K.-H. Hellwege (Hrsg.). *Landolt Börnstein — Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology, New Series.* Springer Verlag (Berlin, Heidelberg, NewYork) **III/16**, 1981.

[116] I. Nee. Fachbereich Physik der Universität Osnabrück, private Mitteilung (1998).

[117] R. A. Rupp, R. Sommerfeldt, K. H. Ringhofer, E. Krätzig. *Space Charge Field Limitations in Photorefractive $LiNbO_3$:Fe crystals.* Appl. Phys. B **51**, 364 (1990).

[118] Y. S. Kim, R. T. Smith. *Thermal Expansion of Lithium Tantalate and Lithium Niobate Single Crystals.* J. Appl. Phys. **40**, 4637 (1969).

[119] K. Okamoto, T. Hasegawa, O. Ishida, A. Himeno, Y. Ohmori. *32×32 Arrayed-Waveguide Grating Multiplexer with Uniform Loss and Cyclic Frequency Characteristics.* Electron. Lett. **33**, 1865 (1997).

[120] K. Okamoto, K. Syuto, H. Takahashi, Y. Ohmori. *Fabrication of 128-Channel Arrayed-Waveguide Grating Multiplexer with 25GHz Channel Spacing.* Electron. Lett. **32**, 1474 (1996).

[121] Y. Tachikawa, Y. Inoue, M. Ishii, T. Nozawa. *Arrayed-Waveguide Grating Multiplexer with Loop-Back Optical Paths and Its Applications.* J. Lightwave Technol. **14**, 977 (1996).

[122] S. M. Ojha, C. Cureton, T. Bricheno, S. Day, D. Moule, A. J. Bell, J. Taylor. *Simple Method of Fabricating Polarization-Insensitive and Very Low Crosstalk AWG Grating Devices.* Electron. Lett. **34**, 78 (1998).

[123] Y. Fujii. *High-Isolation Polarization-Insensitive N-Port Optical Circulator.* Appl. Opt. **36**, 1573 (1997).

[124] G. W. Yoffe, P. A. Krug, F. Ouellette, D. A. Thorncraft. *Passive Temperature-Compensating Package for Optical Fiber Gratings.* Appl. Opt. **34**, 6859 (1995).

[125] H. Dachs. *Topics in Current Physics – Neutron Diffraction.* Springer Verlag (Berlin), 1978.

[126] V. F. Sears. *Neutron Scattering Length and Cross Sections.* Neutron News **3**, 29 (1992).

[127] M. Horowitz, B. Fischer, Y. Barad, Y. Silberberg. *Photorefractive Effect in a $BaTiO_3$ Crystal at the 1.5 μm Wavelength Regime by Two–Photon Absorption.* Opt. Lett. **21**, 1120 (1996).

[128] S. Brülisauer, D. Fluck, P. Günter, L. Beckers, C. Buchal. *Photorefractive Effect in Proton–Implanted Fe–doped $KNbO_3$ Waveguides at Telecommunication Wavelengths.* J. Opt. Soc. Am. B **13**, November (1996).

[129] K. Meerholz, B. L. Volodin, Sandalphon, B. Kippelen, N. Peyghambarian. *A Photorefractive Polymer with High Optical Gain and Diffraction Efficiency Near 100%.* Nature **371**, 497 (1994).

[130] W. E. Moerner, A. Grunnetjepson, C. L. Thompson. *Photorefractive Polymers.* Ann. Rev. Mat. Sci. **27**, 585 (1997).

[131] S. Xie, A. Natansohn, P. Rochon. *Recent Developments in Aromatic Azo Polymers Research.* Chem. Mater. **5**, 403 (1993).

[132] V. P. Pham, T. Galstyan, A. Granger, R. A. Lessard. *Novel Azo Dye-Doped Poly(Methyl Methacrylate) Films as Optical Data Storage Media.* Jpn. J. Appl. Phys. **36**, 429 (1997).

[133] K. Peithmann, K. Buse, A. Wiebrock, E. Krätzig. *Incremental Holographic Recording in Lithium Niobate with Active Phase Locking.* Opt. Lett. (eingereicht 1998).

[134] Ch. Kittel. *Einführung in die Festkörperphysik.* 11. Aufl., R. Oldenbourg, München, Wien, 1996.

Folgende Veröffentlichungen sind im Rahmen dieser Arbeit entstanden oder in Vorbereitung:

1. K. Buse, S. Breer, K. Peithmann, S. Kapphan, M. Gao, E. Krätzig. *Origin of Thermal Fixing in Photorefractive Lithium Niobate Crystals.* Phys. Rev. B **56**, 1225 (1997).

2. F. Rickermann, S. Riehemann, G. von Bally, S. Breer, K. Buse. *A High Resolution Real-Time Temporal Heterodyne Interferometer for Refractive Index Topography.* Opt. Comm. **144**, 173 (1997).

3. S. Breer, K. Peithmann, K. Buse, S. Kapphan, M. Gao, E. Krätzig. *Origin of Thermal Fixing in Photorefractive Lithium Niobate Crystals.* OSA Technical Digest Series: Conference on Lasers and Electro-Optics **11**, 9 (1997).

4. S. Breer, K. Buse, F. Rickermann. *Improved Development of Thermally Fixed Holograms in Photorefractive $LiNbO_3$ Crystals with High-Intensity Laser Pulses.* Opt. Lett. **23**, 73 (1998).

5. S. Breer, K. Buse. *Wavelength Demultiplexing with Volume Phase Holograms in Photorefractive Lithium Niobate.* Appl. Phys. B **66**, 339 (1998).

6. S. Breer, K. Buse, K. Peithmann, H. Vogt, E. Krätzig. *Stabilized Recording and Thermal Fixing of Holograms in Photorefractive Lithium Niobate Crystals.* Rev. Sci. Instr. **69**, 1591 (1998).

7. S. Breer, H. Vogt, I. Nee, K. Buse. *Low-Crosstalk WDM by Bragg Diffraction from Thermally Fixed Reflection Holograms in Lithium Niobate.* Eingereicht bei Electron. Lett.

Anhang

A.1 Brechungsindexänderungen durch Absorption

Brechkraft und Absorption eines dielektrischen Mediums sind über dessen Dielektrizitätskonstante ϵ miteinander verknüpft. Beim Thermischen Fixieren in eisendotiertem $LiNbO_3$ tritt aufgrund starker Konzentrationsänderungen der Fe^{2+}-Störstellen eine ausgeprägte Absorptionsbande bei $\lambda = 477\,\mathrm{nm}$ auf. Diese führt nach den Kramers-Kronig-Relationen zu einer permanenten, entsprechend der Absorption räumlich modulierten Brechungsindexänderung $\Delta n(\alpha)$ (siehe z. B. [134]), die im folgenden mit Hilfe numerischer Integrationsverfahren ermittelt wird.

In einem dielektrischen Medium verlaufe eine Lichtwelle $\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \mathbf{E}(\mathbf{r})\, e^{i(\mathbf{kr}-\omega t)}$ mit $\mathbf{E}$ als elektrischem Feld, $\mathbf{k}$ als Wellenvektor und $\mathbf{r}$ als Ort sowie ω und t als Kreisfrequenz bzw. Zeit mit der Ausbreitungskonstanten $|\mathbf{k}| = \omega\sqrt{\epsilon}/c$ entlang der Ortskoordinate x. Dabei bezeichnet c die Vakuumlichtgeschwindigkeit. Der Ansatz eines komplexen Brechungsindexes $\sqrt{\epsilon} = \kappa = \kappa_1 + i\kappa_2$ ergibt für das elektrische Feld

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \mathbf{E}(\mathbf{r}) \times e^{i\omega\kappa_1 x/c} \times e^{-\omega\kappa_2 x/c} \times e^{-i\omega t}\,. \tag{A.1}$$

Der Realteil von κ entspricht dem Brechungsindex $\kappa_1 = n$, während der Imaginärteil κ_2 für einen exponentiellen Abfall des elektrischen Feldes sorgt und deshalb über $\alpha = \omega\kappa_2/c$ mit dem Absorptionskoeffizienten α verknüpft ist. Der komplexe Brechungsindex $\kappa(\omega)$ ist von der Kreisfrequenz ω der Lichtwelle abhängig. Er erfüllt die Kramers-Kronig-Relationen

$$\kappa_1(\omega) = \frac{2}{\pi}\,\mathcal{P}\int_0^\infty \frac{s\kappa_2(s)}{s^2-\omega^2}\mathrm{d}s\,, \tag{A.2}$$

$$\kappa_2(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi}\,\mathcal{P}\int_0^\infty \frac{\kappa_1(s)}{s^2-\omega^2}\mathrm{d}s\,. \tag{A.3}$$

Hier steht $\mathcal{P}$ für den Hauptwert des Integrals, d. h. das Spektrum des Brechungsindexes $n(\omega) = \kappa_1(\omega)$ läßt sich durch Grenzwertbildung an der Polstelle $\omega = s$ zu

$$n(\omega) = \frac{2c}{\pi}\lim_{\varepsilon\to 0}\left[\int_0^{\omega-\varepsilon} \frac{\alpha(s)}{s^2-\omega^2}\mathrm{d}s \;+ \int_{\omega+\varepsilon}^{\infty} \frac{\alpha(s)}{s^2-\omega^2}\mathrm{d}s\right] \tag{A.4}$$

berechnen. Spaltet man die Integrale in Gl. (A.4) in einen unkritischen Bereich außerhalb des Pols und einen den Pol enthaltenden kritischen Bereich auf, so folgt

$$n(\omega) = \frac{2c}{\pi}\left[\int_0^{\omega-\Delta\omega}\frac{\alpha(s)}{s^2-\omega^2}\mathrm{d}s + \int_{\omega+\Delta\omega}^{\infty}\frac{\alpha(s)}{s^2-\omega^2}\mathrm{d}s\right] \tag{A.5}$$

$$+\frac{2c}{\pi}\lim_{\varepsilon\to 0}\left[\int_{\omega-\Delta\omega}^{\omega-\varepsilon}\frac{\alpha(s)}{s^2-\omega^2}\mathrm{d}s + \int_{\omega+\varepsilon}^{\omega+\Delta\omega}\frac{\alpha(s)}{s^2-\omega^2}\mathrm{d}s\right]. \tag{A.6}$$

In jedem gegenüber ω kleinen Intervall $\mathcal{I} = [\omega - \Delta\omega, \omega + \Delta\omega]$ wird $\alpha(s) = \alpha(\omega)$ als annähernd konstant angenommen und darf folglich aus den beiden Integralen des Terms (A.6) herausgezogen werden. Mit der Substitution $\tilde{s} = s - \omega$ läßt sich $s^2 - \omega^2$ durch $2\tilde{s}\omega$ nähern, so daß der Term (A.6) verschwindet. Damit läßt sich der Brechungsindex $n(\omega)$ aus der Absorption $\alpha(\omega)$ zu

$$n(\omega) = \frac{2c}{\pi}\left[\int_0^{\omega-\Delta\omega}\frac{\alpha(s)}{s^2-\omega^2}\mathrm{d}s + \int_{\omega+\Delta\omega}^{\infty}\frac{\alpha(s)}{s^2-\omega^2}\mathrm{d}s\right] \tag{A.7}$$

berechnen.

Für ein gaußförmiges Absorptionsspektrum $\alpha(\omega)$ mit einem Maximum von $1000\,\mathrm{m}^{-1}$ bei $\omega = 4 \times 10^{15}$ Hz ($\lambda \approx 477$ nm) und einer $1/e$-Breite von 1×10^{15} Hz (≈ 120 nm) variiert α für alle Intervalle $\mathcal{I}$ mit $\Delta\omega = 1 \times 10^{13}$ Hz weniger als 6 %, so daß die Vernachlässigung des Terms (A.6) erlaubt ist. Die Integration in Gl. (A.7) läßt sich numerisch durchführen und $n(\omega)$ somit berechnen. Das für die Berechnung verwendete Absorptionsspektrum $\alpha(\omega)$ und die daraus errechnete Brechungsindexänderung $\Delta n(\omega)$ sind in Abb. A.1 in Abhängigkeit von der Kreisfrequenz ω (untere Abzisse) bzw. der Wellenlänge λ (obere Abzisse) dargestellt. Selbst für ein Absorptionsmaximum von $1000\,\mathrm{m}^{-1}$ liegt die resultierende Brechungsindexänderung für $\lambda = 633$ nm noch unter 3×10^{-5}.

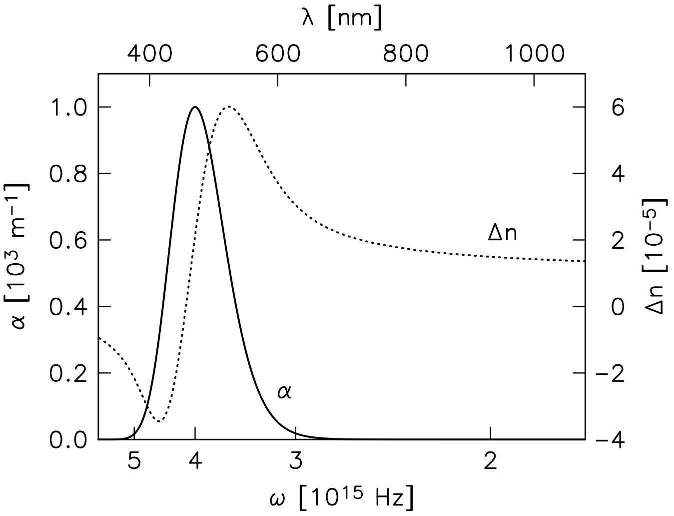


Abbildung A.1: *Gaußförmiges Absorptionsspektrum $\alpha(\omega)$ (durchgezogene Kurve) und die daraus mittels Gl. (A.7) numerisch berechnete Brechungsindexänderung $n(\omega)$ (gepunktete Kurve).*

A.2 Berechnung der Schreibwinkel von Reflexionshologrammen

Beim Thermischen Fixieren wird der $LiNbO_3$-Kristall während des Schreibprozesses auf Temperaturen T_w von etwa 180 °C geheizt. Da ein bei dieser Temperatur erzeugtes Gitter bei der in der Nähe der Raumtemperatur liegenden Betriebstemperatur T_r als Demultiplexer genutzt werden soll, muß die thermische Ausdehnung des Kristalls berücksichtigt werden, wenn sowohl die Wellenlänge des Leselichts λ_r als auch dessen Einfallswinkel α und Ausfallswinkel β festgelegt sind.

Zur Berechnung der erforderlichen Schreibwinkel bei erhöhter Temperatur werden zunächst die Winkel im Kristall θ_in und θ_out sowie der Neigungswinkel ζ und die Raumfrequenz K bei der Betriebstemperatur T_r berechnet. Mit dem Brechungsindex n_r für die Lesewellenlänge λ_r bei T_r ergeben sich

$$\theta_\mathrm{in} = \arcsin\left(\frac{\sin\alpha}{n_\mathrm{r}}\right) \quad \text{und} \quad \theta_\mathrm{out} = \arcsin\left(\frac{\sin\beta}{n_\mathrm{r}}\right) , \tag{A.8}$$

$$\zeta = \frac{\theta_\mathrm{in} - \theta_\mathrm{out}}{2} \tag{A.9}$$

und

$$K = \frac{4\pi n_\mathrm{r}}{\lambda_\mathrm{r}} \cos\left(\frac{\theta_\mathrm{in} + \theta_\mathrm{out}}{2}\right) . \tag{A.10}$$

Der Neigungswinkel ζ_w sowie die Raumfrequenz K_w berechnen sich mit der Temperaturdifferenz $\Delta T = T_\mathrm{w} - T_\mathrm{r}$ und den linearen Ausdehnungskoeffizienten α_a und α_c zu

$$\zeta_\mathrm{w} = \arctan\left[\left(\frac{1 + \Delta T \alpha_a}{1 + \Delta T \alpha_c}\right) \tan\zeta\right] , \tag{A.11}$$

und

$$K_\mathrm{w} = K \left[1 + 2\Delta T(\alpha_a \sin^2\zeta + \alpha_c \cos^2\zeta)\right]^{\frac{1}{2}} . \tag{A.12}$$

Mit ζ_w und K_w sowie dem Brechungsindex n_w für die Schreiblichtwellenlänge λ_w bei erhöhter Temperatur T_w folgen die Schreibwinkel γ_r und γ_l zu

$$\gamma_\mathrm{r/l} = \arcsin\left(n_\mathrm{w} \sin\left[\arcsin\left(\frac{K_\mathrm{w}\lambda_\mathrm{w}}{4\pi n_\mathrm{w}}\right) \pm \zeta_\mathrm{w}\right]\right) . \tag{A.13}$$

Danksagung

Mein Dank gilt Herrn Prof. Dr. E. Krätzig für die freundliche Aufnahme in die Arbeitsgruppe *Angewandte Physik*, die Bereitstellung eines gut ausgestatteten Labors sowie seine ständige Unterstützung.

Besonderer Dank gebührt Herrn Priv.-Doz. Dr. K. Buse, der die Durchführung dieser Arbeit betreut hat. Neben der uneingeschränkt anzuerkennenden wissenschaftlichen Kompetenz haben seine ständige Diskussionsbereitschaft, sein ausgeprägtes Vermögen, komplexe Zusammenhänge auf Wesentliches zu reduzieren und zu vermitteln, und hilfreiche Anregungen bei der Projektorganisation und der Durchführung der Experimente sehr zum Gelingen der vorliegenden Arbeit beigetragen.

Herrn Prof. Dr. S. Kapphan sowie Herrn Dipl.-Phys. M. Gao bin ich zu großem Dank für die Durchführung der IR-Absorptionsmessungen verpflichtet. Herrn Dr. F. Rickermann aus Münster danke ich für die gelungene Zusammenarbeit bei den Pulslaserexperimenten.

Herrn Dipl.-Phys. J. Hukriede und Herrn Dipl.-Phys. I. Nee gebührt mein Dank für viele Diskussionen zum Thermischen Fixieren. Herrn Dipl.-Phys. K. Peithmann und Herrn cand. phys. H. Vogt danke ich besonders für die Ausführung der experimentellen Arbeiten im Rahmen ihrer Diplomarbeiten und die gute Zusammenarbeit. Als Bürokollege hat Herr K. Peithmann zusammen mit Herrn Dipl.-Phys. U. v. Stevendaal neben der wissenschaftlichen Diskussion großen Anteil am freundlichen Arbeitsklima, das sehr zum Erhalt der Motivation bei den oft schwierigen Experimenten beigetragen hat. Dafür sei ihnen, aber auch den anderen ungenannten Mitgliedern der Arbeitsgruppe *Angewandte Physik* herzlich gedankt.

Für seine Einsatzbereitschaft bei der Unterstützung in technischen Fragen danke ich Herrn Dipl. Ing. J. Selinger. Den Mitarbeitern der Elektronikwerkstatt und der feinmechanischen Werkstatt danke ich für die Beratung bei experimentellen Problemen und die anerkennenswerten Leistungen bei der Entwicklung und beim Bau von Spezialgeräten. Ebenso wird die vielfache schnelle Hilfe bei der Präparation der Proben durch die Mitarbeiter der Abteilung *Kristallzüchtung* dankend anerkannt.

Der Volkswagenstiftung danke ich für die finanzielle Unterstützung.

Der größte Dank gilt meiner Frau Maria und meiner jungen Familie.