

Kurzzusammenfassung

In der vorliegenden Doktorarbeit werden polymere, photorefractive (PR) Kompositmaterialien auf organischer Basis als potentielle dynamische Aufzeichnungsmedien beim kurz-kohärenten holographischen Abbilden (engl.: *holographic optical coherence imaging*, kurz: HOCI) biologischer Gewebeproben untersucht. Bei der Bestrahlung mit einer uneinheitlichen Intensitätsverteilung, erzeugt durch interferierende Strahlen, wird bei PR Materialien diese Verteilung durch Entstehen eines Raumladungsfelds, und durch elektrooptische Nichtlinearität, in eine Brechungsindexmodulation überführt. Die resultierende Modulation stellt ein Phasengitter bzw. Hologramm dar, in dem Phase sowie Amplitude optischer Strahlen gespeichert werden. Der Aufzeichnungsvorgang der Hologramme ist in PR Medien dynamisch. Das bedeutet, dass das Hologramm durch gleichmäßige Beleuchtung gelöscht, und anschließend neu geschrieben werden kann. Dadurch sind diese Materialien besonders für Echtzeit-Anwendungen wie HOCI geeignet. Der Vorteil der Holographie gegenüber anderen modernen Abbildungsverfahren, einschließlich konfokaler Mikroskopie oder optischer Kohärenztomographie (engl.: *optical coherence tomography*, kurz: OCT), besteht im Bildformungsmechanismus. Durch die Abbildung kompletter Bildebenen, wird paralleler Datentransfer ermöglicht. In Folge dessen werden hohe Bildwiederholungsraten erreicht und gleichzeitig Punkt für Punkt Scanvorgänge vermieden.

Um in der Praxis mit anderen Techniken mithalten zu können, ist die Aufzeichnungsgeschwindigkeit des Materials sowie eine hohe Detektionssensitivität im nahen Infrarot (NIR) Bereich des Spektrums entscheidend. In diesem Bereich weist biologisches Gewebe eine geringe Absorption, und folglich eine hohe Eindringtiefe auf. Diese Anforderungen setzen für das PR Material eine hohe Gitteraufbaugeschwindigkeit sowie eine hohe Beugungseffizienz voraus. In der Vergangenheit ist es gelungen, die Geschwindigkeit des Materials auf zwei grundsätzlich unterschiedliche Arten drastisch zu steigern. Der chemische Ansatz besteht darin die

Beziehung zwischen Struktur und Eigenschaft der verschiedenen funktionellen Einheiten des PR Komposits zu verstehen und entsprechend an die experimentellen Bedürfnisse anzupassen. Dies führte unsere Arbeitsgruppe zu der Entwicklung des laut Literatur bisher NIR sensitivsten, polymeren PR Komposits. Dieses basiert auf einer lochleitenden PF6-TPD Polymermatrix, mit PCBM als Sensibilisator. Alternativ kann die PR Leistung auf physikalischem Wege gesteigert werden. In diesem Fall erwies sich Vorbeleuchtung (PI, vom englischen *preillumination*) als ein wirksames Mittel zur Verbesserung der Ansprechzeiten, was auf vorangehende, zusätzliche Erzeugung von Ladungsträgern zurückzuführen ist. Es wurden aber auch negative Effekte wie z.B. die Verringerung der Gitteraufbaugeschwindigkeit beobachtet.

In der vorliegenden Arbeit wird der PI Effekt an einem auf poly(N-vinylcarbazol)-basierenden PR Komposit durch die Bestrahlung innerhalb der Absorptionsbande der elektrooptischen (EO) Chromophore systematisch untersucht. Unter diesen Umständen werden sowohl bewegliche Löcher als auch bewegliche Elektronen erzeugt. Zusätzlich wurde PI außerhalb der Absorptionsbande, im roten Spektralbereich des Lichts durchgeführt. Die PR Performanz wurde mittels Zwei- bzw. Vier-Wellen-Mischexperimenten bei einer Wellenlänge von 830 nm untersucht.

Wenn das Material in einem Wellenlängenbereich starker Absorption beleuchtet wird, entsteht eine relativ dünne Ladungsträgerschicht, welche das PR Material von einer Seite "flutet", sobald das externe elektrische Feld aktiviert wird. Durch die dadurch, auch bei der Aufzeichnungswellenlänge, veränderte "Fallenlandschaft", und durch die zusätzliche Ladungsträgererzeugung, sollte die Aufzeichnungsdynamik modifiziert werden. Aufgrund der geringen Dicke der Ladungsträgerschicht ($\sim 1 \mu\text{m}$) in Relation zur gesamten Dicke des Bauteils ($105 \mu\text{m}$), ist die Ausbildung von holographischen Gittern, trotz Anwesenheit der PI Wellenlänge, selbst bei hohen Intensitäten ohne weiteres möglich. Durch PI mit 405 nm bzw. 532 nm wurde die Aufzeichnungsgeschwindigkeit um einen Faktor von 2 bzw. 2,5 verbessert. Zusätzlich führt die Konkurrenz der positiven mit den negativen Ladungen unter PI Bedingungen zu einer Vorzeichenumkehr des Verstärkungskoeffizienten der Zwei-Strahlen Kopplung (engl.: *two-beam coupling*, kurz: TBC).

Die Radikalanionen der Chromophore DMNPAA und MNPAA konnten als die ladungstragende Spezies identifiziert werden. Ihre Lebensdauer wurde durch die Einführung variabler Zeitverzögerungen zwischen Vorbeleuchtung und Hologrammaufzeichnung ermittelt. Es konnte beobachtet werden, dass die Stärke des PI Effekts

von der PI Wellenlänge, der PI Intensität sowie vom externen elektrischen Feld abhängt.

PI bei 633 nm und 830 nm erhöht die Beugungseffizienz, führt aber gleichzeitig zu einer Verminderung der Aufzeichnungsgeschwindigkeit. Dies kann durch das Modell der optischen Fallenaktivierung (engl.: *optical trap activation*, kurz: OTA) erklärt werden. Aufgrund der starken Feldabhängigkeit der Ladungsträgererzeugungseffizienz, kann der OTA Effekt nur durch das Anlegen starker externer Felder kompensiert werden.

Trotz einer geringfügigen Verbesserung der Aufzeichnungsgeschwindigkeit, besitzt das auf PVK basierende Material eine zu geringe Sensitivität, um als Aufzeichnungsmedium bei holographischen Abbildungsverfahren Anwendung zu finden. Im Gegensatz dazu erlaubte die überragende Sensitivität und Lebensdauer des auf PF6-TPD basierenden Mediums eine Implementierung in ein abbildendes System basierend auf HOCl. Umfangreiche Experimente mit unterschiedlichen kurzkohärenten Lichtquellen ermöglichten es, die Bilddomäne gegenüber der weit verbreiteten Fourierdomäne als die Aufzeichnungsgeometrie mit der höchsten Auflösung zu identifizieren. Der Grund für diese Wahl ist ein Problem, welches unter dem Namen *beam walk-off* bekannt ist. Dies tritt bei *off-axis* Geometrien auf und führt zu einer deutlichen Verkleinerung der Wechselwirkungszone innerhalb des Überlappungsbereichs der beiden Schreibstrahlen.

Es wurden unterschiedliche zwei dimensionale (2D) und drei dimensionale (3D) Testobjekte und Gewebekonstrukte, einschließlich verschiedener Auflösungsobjekte, polymerer Schäume und sphärischer Rattentumore, untersucht. Die Proben wurden zuerst in einer Transmissionsanordnung untersucht. Diese Methode bietet jedoch nicht die Möglichkeit der tiefenaufgelösten Abbildung von Schichten. Folglich wurde HOCl implementiert, um Tiefenaufnahmen zu ermöglichen. In diesem Fall wird von der Probe zurückgestreutes Licht innerhalb des PR Materials kohärent detektiert. Mit einer Gesamtintensität der Schreibstrahlen von $\sim 10 \text{ mW/cm}^2$ und einer Gitterperiodenlänge von $4 \mu\text{m}$ wurde eine holographische Belichtungsdauer von $\sim 1 \text{ s}$ erreicht, entsprechend einer Sensitivität von $\sim 10 \text{ cm}^2/\text{J}$. Bei der Abbildung von polymerem Schaum konnte eine axiale Auflösung von $18 \mu\text{m}$ und eine transversale Auflösung von $30 \mu\text{m}$, bis hin zu einer Tiefe von $600 \mu\text{m}$ ($1,2 \text{ mm}$ Gesamtweglänge) erreicht werden. Die HOCl Daten des Rattentumors zeigen eine Eindringtiefe von $\sim 800 \mu\text{m}$ auf, bei einer dynamischen Reichweite von $\sim 20 \text{ dB}$. Der Sichtbereich der holographischen Rekonstruktionen betrug $\sim 1 \text{ mm}$.