

ФОРМИРОВАНИЕ СКРЫТОГО АССОЦИАТИВНОГО ИЗОБРАЖЕНИЯ В ФОТОТЕРМОПЛАСТИЧЕСКИХ СРЕДАХ В СРАВНЕНИИ С ИЗОБРАЖЕНИЕМ В ФОТОРЕФРАКТИВНОМ КРИСТАЛЛЕ

© 2005 г. Н. А. Давиденко*, доктор физ.-мат. наук; А. Г. Держипольский*; Д. А. Меленевский***;
А. Н. Гнатовский**, канд. физ.-мат. наук; А. А. Ищенко***, доктор хим. наук;
Д. Д. Мысык****, канд. хим. наук; Р. Д. Мысык****

* Киевский национальный университет им. Тараса Шевченко, г. Киев, Украина

E-mail: daviden@ukrpack.net

** Институт физики НАН Украины, г. Киев, Украина

*** Институт органической химии НАН Украины, г. Киев, Украина

**** Донецкий национальный технический университет, г. Донецк, Украина

Исследованы особенности формирования скрытого ассоциативного изображения голограмм в пленках на основе поли-N-эпоксипропилкарбазола с добавками органических красителей с внутримолекулярным переносом заряда. Обнаружена аналогия скрытого изображения, формируемого голограммами, в фоторефрактивном кристалле и фототермопластических носителях. Эта аналогия объясняется фотогенерацией носителей заряда с большим временем жизни. В фототермопластических носителях исследованы зависимости эффективности фотогенерации и рекомбинации носителей заряда от температуры, интенсивности и длины волны света, времени облучения. Показана корреляция между концентрацией, временем жизни фотогенерированных носителей заряда и эффективностью и временем хранения скрытого изображения.

Коды OCIS: 090.0090, 3000.34700, 260.5250, 090.2900, 160.5470, 160.5320.

Поступила в редакцию 20.01.2005.

Введение

Ассоциативный характер формирования изображения присущ любой голографической схеме и является следствием равноправности опорного и сигнального пучков. Полный информативный пучок можно сформировать при воздействии на голограмму только лишь фрагментом сигнального пучка. Это происходит при одновременном выполнении двух условий:

детерминированного отклика голографической схемы, а именно ее одинаковой реакции на различающиеся фрагменты сигнального пучка,

получения результирующего отклика в наглядной форме полного сигнального пучка.

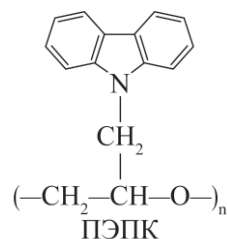
Возможность формирования ассоциативного голографического изображения с использованием фоторефрактивного кристалла (ФРК) была показана в [1]. Необходимыми условиями при этом являются: оптическая однородность; высокие значения коэффициентов поглощения света на длинах волн, соответствующих возбуждению фоторефрактивного эффекта; стабильное детектирование оптических нелинейных эффектов; устойчивость оптических характеристик в процессе многократного использования. Таким требованиям удовлетворяют также голографические регистрирующие среды (ГРС) для фототермопластического (ФТП) способа записи голограмм [2, 3].

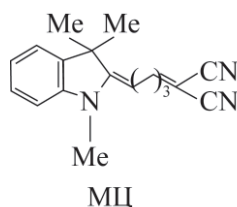
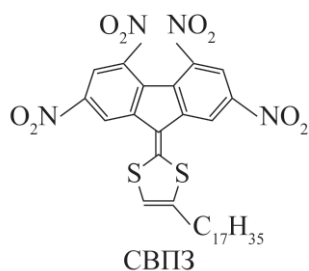
В [4] показано, что характер зависимости качества восстановленного ассоциативного изображения одинаков как для ФРК, так и для сред при ФТП способе записи голограмм. Но при этом не были исследованы механизмы формирования ассоциативного или фантомного изображения в этих средах и, соответственно, взаимосвязь между ними.

В данной работе рассмотрены особенности формирования скрытого ассоциативного изображения, включающие фотогенерацию носителей заряда в пленках полимерных композитов, их информационные характеристики и ассоциативные свойства голографических схем на их основе.

Образцы и экспериментальные методы

Исследованы пленки поли-N-эпоксипропилкарбазола (ПЭПК), содержащие 1 мол.% органических красителей с внутримолекулярным переносом заряда – СВПЗ и МЦ [2] структурных формул:





Для оптических и электрофизических измерений образцы приготавливали либо в виде структур со свободной поверхностью (кварцевая подложка–полимерная пленка), либо в виде сандвич-структур (стеклянная подложка–Al–полимерная пленка–SnO₂). В образцах со свободной поверхностью полимерных пленок измеряли спектры оптической плотности. В образцах сандвич-структуры измеряли плотность фототока j_{ph} во время облучения образца со стороны электрода SnO₂ монохроматическим светом с длиной волны $\lambda = 410\text{--}700$ нм из области поглощения СВПЗ и МЦ. Напряженность электрического поля изменяли в пределах $E = 2 \times 10^7\text{--}2 \times 10^8$ В/м. Измерения выполнены для температуры $T = 290\text{--}355$ К.

Изучение формирования скрытого ассоциативного изображения и его информационных свойств для регистрирующих сред проводилось с помощью схемы записи плоского волнового фронта и схемы фурье-голографии с одинаковыми по интенсивности опорным и сигнальными пучками [5]. В этой схеме (рис. 1) пучок лазера L расширяется телескопической системой T и освещает транспарант – миру Tr , которая формирует исследуемое изображение A . Далее с помощью светоделительной системы Sp из него образуются два одинаковых изображения A_1 и A_2 , которые направляются на объектив O_1 , выполняющий с полями этих двух изображений операцию фурье-преобразования. В задней фокальной плоскости объектива O_1 происходит ин-

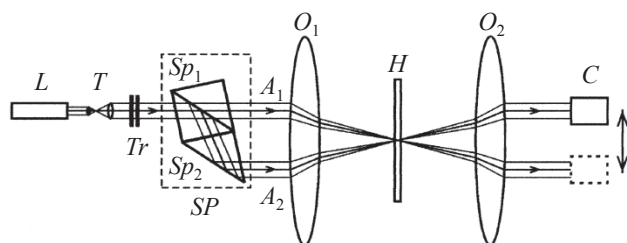


Рис. 1. Оптическая схема записи и восстановления голограмм с одинаковыми опорным и сигнальными пучками.

терференционное наложение “угловых” спектров a_1 и a_2 этих двух пучков и на фоточувствительной среде записывается голограмма H . Объектив O_2 выполняет обратное фурье-преобразование над полем восстановленного изображения (в случае схемы записи голограммы плоского волнового фронта элементы Tr , O_1 , O_2 отсутствуют и пучки сводятся под углом $15^\circ\text{--}30^\circ$ на фоточувствительной среде). Оно регистрируется цифровой телекамерой или фотодетектором C с линзой.

Результаты экспериментов и обсуждение

В видимой области спектра поглощение пленок ПЭПК + 1 мол.% СВПЗ, ПЭПК + 1 мол.% МЦ определяется электронным поглощением СВПЗ, МЦ (рис. 2). В образцах сандвич-структуры обнаружен фототок, который увеличивается с ростом E и L . Графики зависимости $j_{ph}(E)$ линейны в координатах $\lg j_{ph}$ и $E^{1/2}$. Тангенсы угла наклона графиков этих зависимостей для всех исследуемых образцов одинаковы. На рис. 3 представлены графики зависимостей j_{ph} от T , измеренные для различных E . В координатах Аррениуса графики зависимости $\lg j_{ph}$ от $1/T$ линейны, тангенс угла наклона прямых уменьшается с ростом E , а участки графиков, экстраполированные в область больших температур, пересекаются вблизи температуры $T_0 = 490 \pm 20$ К. Значения энергии активации W_{ph} фототока, рассчитанные из тангенсов углов наклона графиков зависимостей $\lg j_{ph}$ от $1/T$, уменьшаются с ростом E . Графики зависимости $W_{ph}(E)$ линейны в координатах W_{ph} и $E^{1/2}$, причем значение тангенса угла наклона составляет $(4,3 \pm 0,3) \times 10^{-5}$ эВ (В/м)^{-1/2} и близко к постоянной Пула–Френ-

D , отн. ед.

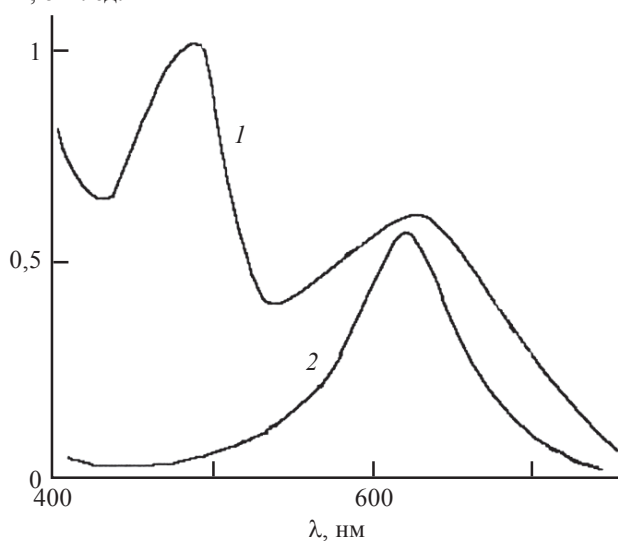


Рис. 2. Спектры поглощения пленок ПЭПК с 1 мол.% СВПЗ (1) и ПК (2).

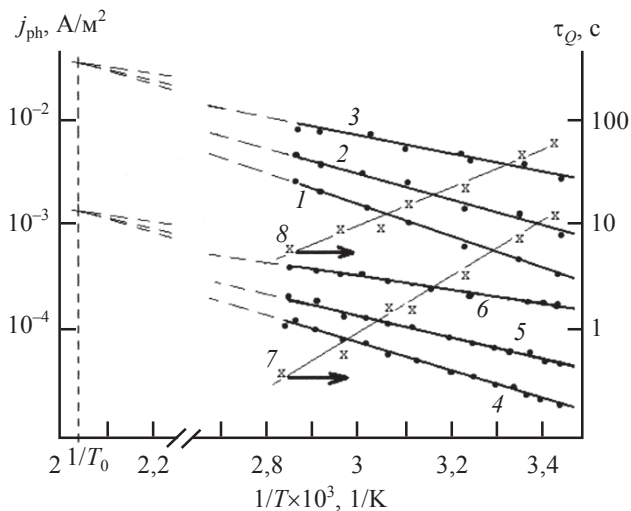


Рис. 3. Зависимости j_{ph} от $1/T$ (кривые 1–6) и τ_Q от $1/T$ (кривые 7, 8) в образцах Al–ПЭПК + 1 мас.% СВПЗ–SnO₂ (1–3, 7) и Al–ПЭПК + 1 мас.% ПК–SnO₂ (4–6, 8) для $E = 3 \times 10^7$ В/м (1, 4), 5×10^7 В/м (2, 5), 8×10^7 В/м (3, 6), измеренные при облучении образцов светом с $\lambda = 633$ нм.

кея [3, 6]. Экстраполированные в область $E = 0$ участки этих графиков пересекаются с осью ординат при $W_{0ph} = 0,56 \pm 0,03$ эВ для пленок ПЭПК с СВПЗ и при $W_{0ph} = 0,49 \pm 0,03$ эВ для пленок ПЭПК с МЦ. Это позволяет предположить, что в исследуемых пленках ПЭПК с СВПЗ и МЦ зависимость $j_{ph}(E)$ можно представить аналитическим выражением

$$j_{ph}(E) \approx \exp(-(W_{0ph} - \beta E^{1/2}))(T^{-1} - T_0^{-1})/k_B, \quad (1)$$

с помощью которого описывают процесс фотогенерации носителей заряда в полимерных фотопроводниках из центров фотогенерации [2, 6]. В (1) W_{0ph} – энергия активации фотогенерации, равная энергии кулоновского притяжения между дыркой и электроном в фотогенерированной электронно-дырочной паре (ЭДП), k_B – постоянная Больцмана.

В образцах с ГРС на основе пленок ПЭПК с СВПЗ и МЦ последовательно ФТП способом записаны голограммы плоского волнового фронта. Определяли максимально достижимые значения полосы пространственных частот передаточной характеристики $\Delta\omega$, оптимальную пространственную частоту ω_{opt} передаточной характеристики, голографическую чувствительность S , отношение сигнал/шум в восстановленном голографическом изображении, цикличность и оперативность работы ГРС. Контролируемым параметром в этих измерениях была величина дифракционной эффективности η записываемой голограммы плоского волнового фронта, определяемая в -1 -м порядке дифракции. Определенные значения $\Delta\omega = 200\text{--}1500$ мм⁻¹ и $\omega_{opt} = 350\text{--}1000$ мм⁻¹ не различались при замене СВПЗ на МЦ и близки к аналогичным ГРС на основе ПЭПК [2, 7]. Основные информационные характеристики исследуемых ГРС не

ухудшались после многократных циклов записи и стирания голограмм (более 400 циклов), причем отношение сигнал/шум восстановленных изображений составляло не менее 90. Лучшими результатами отличаются ГРС на основе пленок ПЭПК + 1 мол.% СВПЗ (рис. 4), для которых при использовании лазера с длиной волны света $\lambda = 633$ нм достигнуты значения $\eta = 24\text{--}27\%$, $S = 30\text{--}40$ м²/Дж при отношении интенсивностей опорного луча к объектному 1:1.

Особенность ГРС на основе пленок ПЭПК с СВПЗ, МЦ состоит в том, что они позволяют создать скрытое изображение без предварительной зарядки полимерной пленки в коронном разряде. В последовательном способе записи голограмм перед началом облучения ГРС светом ее некоторое время заряжают в коронном разряде для накопления электрического заряда на свободной поверхности полимерной пленки. Однако предварительную зарядку в коронном разряде можно не делать. Мы предполагаем, что эффект образования и длительного хранения скрытого изображения в ГРС на основе пленок ПЭПК с СВПЗ, МЦ подобен эффектам в фоторефрактивных средах [8] и связан с образованием ЭДП с большим временем рекомбинации. Это предположение основано на результатах измерений концентрации Q носителей заряда, образовавшихся в электрически закороченном образце сэндвич-структуры за время его облучения t_{irr} монохроматическим светом и вышедших на собирающие контакты после приложения электрического напряжения через интервал времени t_{rec} по окончании импульса света. Методика определения Q была ра-

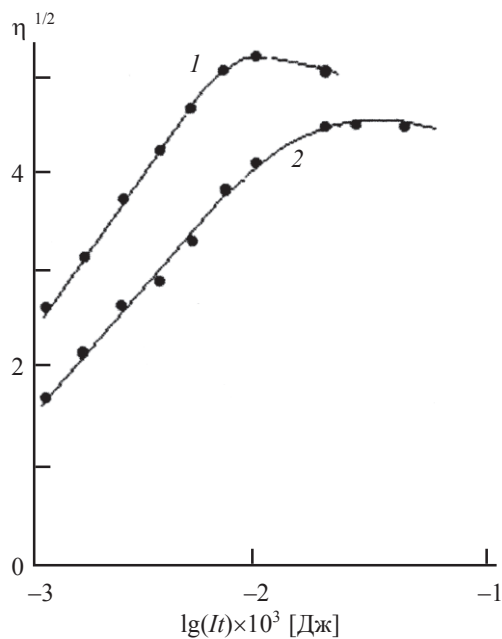


Рис. 4. Зависимости $\eta^{1/2}$ от $\lg(It)$ для ГРС на основе пленок ПЭПК + 1 мас.% СВПЗ (1) и ПЭПК + 1 мас.% МЦ (2).

нее разработана и описана в [2, 9] и состоит в том, что Q рассчитывают из соотношения

$$Q = \int_0^{\infty} dt (i_2(t) - i_1(t)) / eSL, \quad (2)$$

где момент времени $t = 0$ соответствует моменту включения E , e – заряд электрона, S и L – площадь и толщина полимерной пленки, находящейся между контактами; $i_1(t)$ – ток зарядки электрической емкости образца сэндвич-структуры, находившегося перед этим в закороченном состоянии в течение времени $t_{\text{ит}} + t_{\text{rec}}$ в темноте; $i_2(t)$ – ток зарядки электрической емкости этого образца, который предварительно в закороченном состоянии облучали монохроматическим светом в течение времени $t_{\text{ит}}$ и затем выдерживали в течение времени t_{rec} в темноте (рис. 5). На рис. 6 представлены нормированные графики зависимости $Q(t_{\text{ит}})$ и $Q(t_{\text{rec}})$, а на рис. 3 (кривые 7, 8) – графики зависимости постоянной времени τ_Q накопления заряда Q во время облучения светом от T . Полученные результаты позволяют предположить, что накопление заряда Q , отвечающего за формирование скрытого изображения в ГРС без предварительной зарядки в коронном разряде, можно описать соотношением

$$Q = Q_{\text{max}} (1 - \exp(-t_{\text{ит}}/\tau_Q)), \quad (3)$$

где $\tau_Q = \tau_{Q0} \exp(W_r/kT)$, W_r – энергия активации, пропорциональная энергии активации рекомбинации

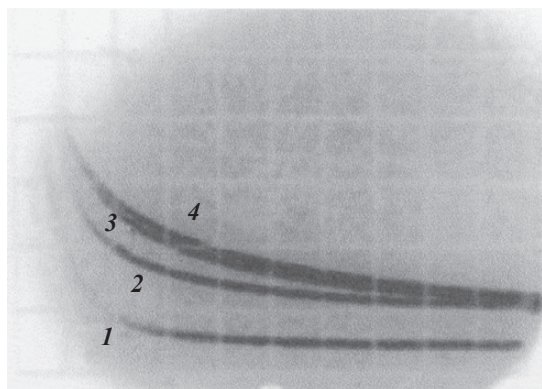


Рис. 5. Фотография с экрана осциллографа, где 1 – кинетика тока зарядки геометрической емкости образца Al–ПЭПК + 1 мас.% ПК–SnO₂, который был длительное время выдержан в темноте с электрически закороченными контактами Al и SnO₂; 2 – кинетика тока зарядки геометрической емкости этого же образца, который был облучен светом в течение времени $t_{\text{ит}} = 30$ с; 3 – кинетика тока зарядки геометрической емкости этого же образца, который был облучен в течение времени $t_{\text{ит}} = 40$ с; 4 – кинетика тока зарядки геометрической емкости этого же образца, который был облучен в течение времени $t_{\text{ит}} = 60$ с. Цена деления на экране 2 мс, $T = 293$ К, $\lambda = 633$ нм, $t_{\text{rec}} = 10$ с, $E = 1 \times 10^8$ В/м.

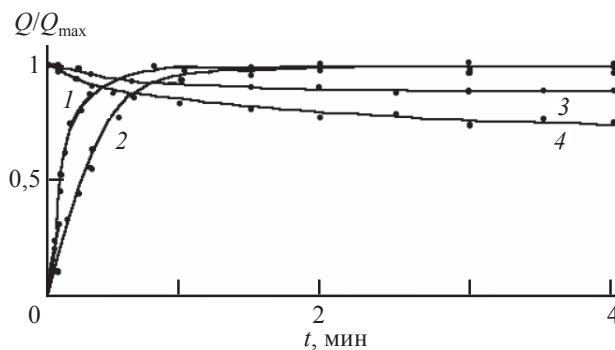


Рис. 6. Зависимости Q/Q_{max} от $t_{\text{ит}}$ (1, 2) и Q/Q_{max} от t_{rec} (3, 4) в образцах ПЭПК + 1 мас.% СВПЗ–SnO₂ (1, 3) и Al–ПЭПК + 1 мас.% МЦ–SnO₂ (2, 4).

долгоживущих ЭДП [2, 9] и равная $0,55 \pm 0,03$ эВ для пленок ПЭПК с СВПЗ и $0,29 \pm 0,03$ эВ для пленок ПЭПК с МЦ.

Таким образом, в исследуемых ГРС скрытое электростатическое изображение формируется не только в период времени зарядки поверхности полимерной пленки в коронном разряде, но и во время экспонирования, что обусловлено большим временем жизни ЭДП из-за наличия потенциального барьера W_r для рекомбинации носителей заряда. Большая эффективность фотогенерации носителей заряда и, соответственно, голографическая чувствительность наблюдаются в ГРС с СВПЗ. Но узость полосы поглощения ГРС с МЦ позволяет использовать эти ГРС без специальных мер защиты от внешнего излучения света. Тем не менее, и те и другие ГРС могут быть использованы для записи голограмм, и информационные характеристики этих ГРС не уступают средам на основе фоторефрактивных кристаллов.

Феноменологическая модель ассоциативного изображения

Рассмотрим процесс записи ассоциативного голографического изображения на примере вышеуказанной схемы фурье-голографии с двумя идентичными опорным и сигнальными пучками (рис. 1). При записи голограммы в момент времени t_1 регистрируется интенсивность поля $|\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2|^2$. При восстановлении голограммы в момент времени t_2 используется только фрагмент изображения A_1^S (или A_2^S) и, соответственно, на голограмму попадает пучок $\mathbf{a}_1^S$. В первом дифракционном порядке поля непосредственно за голограммой сформируется поле $\mathbf{a}_1^S(t_2)\mathbf{a}_1^*(t_1)\mathbf{a}_2(t_1)$ [1, 10]. Это поле после преобразования объективом O_2 даст изображения

$$\begin{aligned} \mathfrak{Z}\{\mathbf{a}_1^S(t_2)\mathbf{a}_1^*(t_1)\mathbf{a}_2(t_1)\} = \\ = A_1^S(t_2) \otimes A_1(t_1)^* \cdot A_2(t_1) \approx A_1^S(t_2) \end{aligned} \quad (4)$$

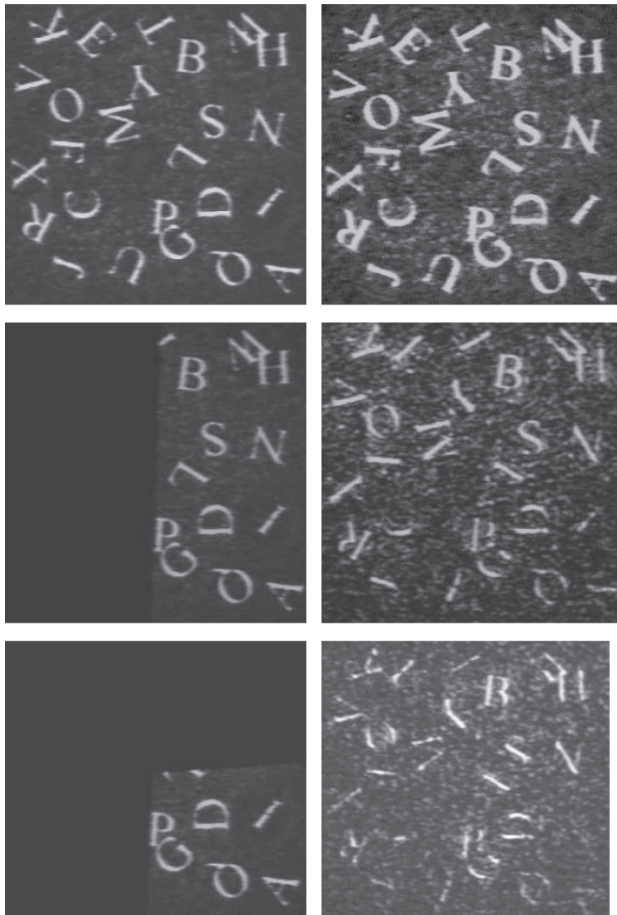


Рис. 7. Результаты эксперимента при записи/восстановлении голограммы в плоскости Фурье при разведенных пучках для различных открытых областей считываемого изображения (слева – считываемое изображение, справа – восстановленное). Результаты (снимки) получены при восстановлении изображения, записанного в ГРС на основе пленок ПЭПК + 1 мас.% СВПЗ.

или

$$\begin{aligned} \Im\{a_1^S(t_2)a_1^*(t_1)a_2(t_1)\} = \\ = A_1^S(t_2)*A_1(t_1)^*\otimes A_2(t_1) \approx A_2(t_1). \end{aligned} \quad (5)$$

Здесь $\Im$, $\otimes$, $(*)$ и $(^*)$ – соответственно операторы фурье-преобразования, свертки, корреляции и комплексного сопряжения.

Приведенное формальное описание процесса формирования изображений транспаранта A не учитывает того, что одинаковые в информационном плане пучки A_1 и A_2 при строгом математическом их описании могут отличаться за счет трансляционного смещения перед объективом O_1 , различного углового наклона пучков a_1 и a_2 на голограмме, их возможного смещения друг относительно друга.

Обозначим параметр, характеризующий различие в математическом описании пучков, символом Δ . Пространственное распределение энергии в результирующем изображении транспаранта A в ко-

нечном счете определяется пиковым значением центрального максимума либо автокорреляционной функцией $AC_{1,2} = A_1(t_1, \Delta)*A_2(t_1)$, либо кросс-корреляционной функцией $CC_{1,2} = A_1^S(t_2)*A_1(t_1, \Delta)^*$, которая реализуется при частичном экранировании площадки S в транспаранте A . Первый случай имеет аналогом формирование фантомных изображений, второй случай соответствует прямому ассоциативному восстановлению изображения.

На рис. 7 приведены результаты полученных ассоциативных изображений для тестовой таблицы, состоящей из отдельных букв алфавита. В зависимости от вариаций смещения a_1 относительно a_2 в плоскости голограммы можно получить или тривиальное изображение фрагмента A_1^S , или полное ассоциативное изображение транспаранта A . Реальное смещение угловых спектров пучков на голограмме лежало в диапазоне 0,01–0,03 мм.

Заключение

Можно считать, что эффект образования и длительного хранения скрытого изображения в исследованных голографических регистрирующих средах на основе пленок полимерных композитов подобен эффектам в голографических средах на основе фоторефрактивных кристаллов и он объясняется образованием долгоживущих электронно-дырочных пар. На основе экспериментально полученных ассоциативных откликов предложена феноменологическая модель формирования ассоциативного голографического изображения для схемы фурье-голографии с одинаковыми опорным и сигнальными пучками. Эффект ассоциативности преобразуется в эффект фантомности в соответствии с пиковыми значениями кросс- и автокорреляционных функций.

ЛИТЕРАТУРА

1. Gnatovsky A.V., Medved N.V., Melenevsky D.A., Pryadko L.D., Yarovoy L.K. Associative correlator of direct operation (based on PhR crystal) // *Spectehnika i vooruzhenie* (Special techniques and weapons). 2001. V. 2. P. 26–29.
2. Davidenko N.A., Ishchenko A.A. Characteristics of functional polymers and of compositions based on them // *Theoretical and Experimental Chemistry*. 2002. V. 38. № 2. P. 88–108.
3. Кувшинский Н.Г., Давиденко Н.А., Комко В.М. Физика аморфных молекулярных полупроводников. Киев: Лыбидь, 1994.
4. Derzhypolskiy A., Melenevskyy D., Gnatovskiy A., Medved N. The comparative analysis of some peculiarities of the associative holographic image forming and quality. *Functional materials* (submitted).

5. *Gnatovsky A.V., Melenevsky D.A.* Hologram as a associative procesor // Visnyk of Kyiv University (Herald of Kyiv University). 2002. № 4. P. 30–33 (In Ukrainian).
 6. *Pope M., Swenberg C.E.* Electronic processes in organic crystals. Oxford: Clarendon press, 1982.
 7. *Аль-Кадими А.Д., Давиденко Н.А., Деревянко Н.А., Ищенко А.А., Павлов В.А., Пивторак В.А., Чуприна Н.Г.* Особенности фотопроводимости и информационные характеристики регистрирующих сред на основе пленок поли-N-эпоксипропилкарбазола, допированных полиметиновыми красителями различной ионности // Оптический журнал. 2002. Т. 69. № 10. С. 53–59.
 8. *Ванников А.В., Гришина А.Д.* Фоторефрактивный эффект в полимерных системах // Успехи химии. 2003. Т. 72. № 6. С. 531–549.
 9. *Davidenko N.A., Kuvshinsky N.G.* Peculiarities of generation and dissociation of electron-hole pairs in amorphous molecular semiconductors containing molecules of compounds with intramolecular charge transfer // J. Inf. Rec. Mats. 1993. V. 21. P. 185–197.
 10. *Collier R.J., Burckhart C.B., Lin L.H.* Optical holography: New York and London: Academic Press, 1973.
-