

## 解 説

# 永続的ホールバーニングを用いた ピコ秒時間・空間ホログラフィー

中塚 宏樹・服部 利明

筑波大学物理工学系 〒305 つくば市天王台 1-1-1

(1992年12月22日受理)

## Picosecond Time- and Space-Holography Using Persistent Hole Burning

Hiroki NAKATSUKA and Toshiaki HATTORI

Institute of Applied Physics, University of Tsukuba, 1-1-1, Tennohdai, Tsukuba 305

### 1. はじめに

光は波動であるが、通常の写真やその他の多くの光画像の記録法では、それらが光の強度のみに反応する物理過程に依存しているため、位相情報が捨て去られている。それに対して、ガボールに由来するホログラフィーは、光波の位相情報をも記録することができる“完全”な画像記録法として知られている。ホログラフィーは、信号光とともに、参照光をフィルムに照射して、その干渉パターンを記録するものであり、光波の位相に敏感な物理過程が関与するため、光強度のみでなく、位相情報をも含む、完全な記録法となっている。

一方、光の時間軸情報の検出ならびにその記録においても、光波信号の位相は、通常考慮の対象とはなっていない。しかし、1982年に Mossberg によって提唱された<sup>1)</sup>、時間軸ホログラフィーともよぶべきフォトンエコーメモリーは、時間軸上における光信号を、強度のみでなく、その位相をも同時に記録・再生することのできる、新たな光情報記録法である。フォトンエコーメモリーでは、ホログラフィーの場合と同様に、書き込み段階で、信号光の他に書き込み用参照光パルスを要し、また読み出し段階でも、読み出し用参照光パルスが必要である。すなわち、ホログラフィーが信号光と参照光の三次元空間における干渉パターンを記録するのに対し、フォトンエコーメモリーでは、時系列信号と書き込み用参照光パルスの、周波数軸上における干渉パターンを、記録するのである。したがって、もしもホログラムフィルムが、空間的干渉パターンと同時に、周波数軸上の干渉

パターンをも記録し得る媒質であれば、時間軸・空間軸両者にわたる光情報の、強度と位相を含む“完全”な記録・再生法が得られるものと期待されるが、それが実際に実現されている。本稿では、時間・空間ホログラフィーの原理とその実例について、できるだけ平易に紹介したい。

### 2. ホログラフィーとフォトンエコーメモリー

#### 2.1 ホログラフィー

ホログラフィーの概念図を図1に示す。フィルム上には、信号光とともに、平面波的な参照光が照射される。このとき、信号光と参照光は、ともに一つのコヒーレントなレーザー光源から、ビームスプリッターによって分けられた、互いに可干渉な光であり、信号光と参照光の干渉パターンが、フィルムに記録される。このような干渉縞が記録されたフィルムを、ホログラムという。信号光の再生は、記録時と同じ配置で、ホログラムに参照光を照射することによって行われる。

ホログラフィーの原理は、つぎのように説明することができる。簡単のために、記録媒体上でともに平面波的な信号光と参照光が、干渉するものとする。図2の記録媒体内に描かれた縞は、その干渉縞を表している。ところで、このような干渉縞が記録されたホログラムに、記録時と同じ配置で参照光が照射されると、この干渉縞回折格子は、ブリッジ反射を生じるであろう。そして、そのブリッジ反射光は、まさに記録時に照射された信号光と、全く同一方向の平面波となる。さらに、このブリッジ反射光が、再生用参照光に対して、決った位相関係を

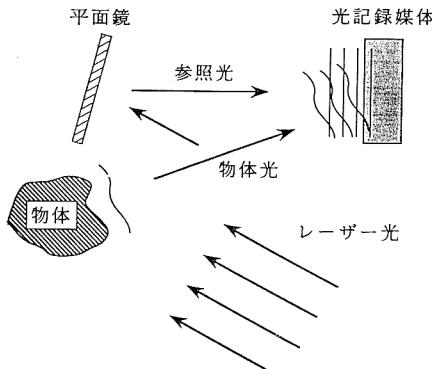


図 1 ホログラフィーの概念図

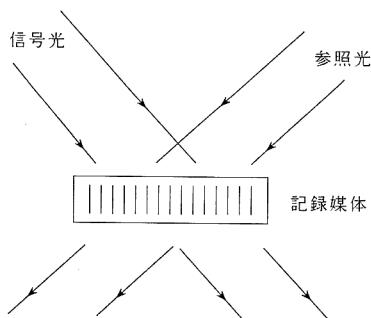


図 2 互いに可干渉な信号光と参照光が、記録媒体中に干渉縞を作る。この干渉縞回折格子によって、参照光がプラグ反射される方向は、信号光の方向と同一である。

有することは明らかであり、この位相関係は、元の信号光と書き込み用参照光の間の位相関係を反映したものである。したがって、任意の光画像が平面波の重ね合わせでできることから、ホログラフィーにおいて、任意の画像情報が、その位相情報をも含めて、記録・再生されるものであることが理解される。

## 2.2 フォトンエコーメモリー

フォトンエコーメモリーに関しては、本特集にも紹介されるので、ここでは、以下の展開に必要な、最小限の説明にとどめる。

ポリマーフィルムにドープされた色素分子、あるいは結晶やガラス中の不純物イオンなどの吸収スペクトルは、各色素分子や不純物イオンが、鋭い吸収線をもっているとしても、全体としては、そのまわりの結晶場の不均一性のために、大きな不均一拡がりをもつ。このような不均一拡がりをもった吸収媒質に、単色光を照射すると、図 3 に示すように、その光に共鳴したサイトのみが励起され、そのサイトはそれ以上光を吸収しないため、不均一に拡がった吸収スペクトルに、吸収率の減少した

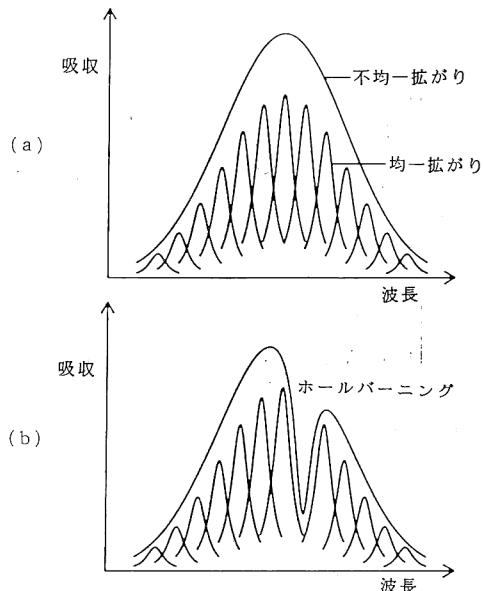


図 3 不均一に拡がった吸収スペクトル (a) と、ホールバーニング (b) の概念図

部分（ホール）が生じる。この現象をホールバーニングというが、ポリマーフィルム中の色素分子や、ある種の不純物イオンなどでは、極低温下において、このようにして作られたホールが、長時間あるいはほぼ永続的に保持されることが知られており、これを永続的ホールバーニング (persistent hole burning, PHB) という。本稿では、PHB 媒質のうち、主にポリマー中の色素分子に限って話をすすめる。この種の PHB 媒質は、波長多重性により、現在の光メモリーの容量を、飛躍的に向上させる、超高密度光メモリーの素材として期待されている<sup>2)</sup>。

フォトンエコーメモリーは、誘導フォトンエコーすなわち 3 パルスフォトンエコーが基礎となっている。誘導フォトンエコーでは、まず図 4(a) のように、時刻  $t_1$  および  $t_2$  に第 1、第 2 の共鳴光パルスを照射する。その後、時刻  $t_3$  に第 3 の共鳴光パルスを照射すると、時刻  $t_3 + t_2 - t_1$  にエコーが放出される。したがって、第 2 パルスが図 4(b) のような時間波形の信号であるとすれば、その波形は、パルスの重ね合わせと考えられるから、エコーが元の信号と同一の時間波形を有することが、理解されるであろう。第 1 パルスを書き込み用参照光、第 3 パルスを読み出し用参照光と考えれば、ホログラフィーとフォトンエコーメモリーの原理的類似性は、明らかである。

ホログラフィーが信号光と参照光の空間的干渉パター

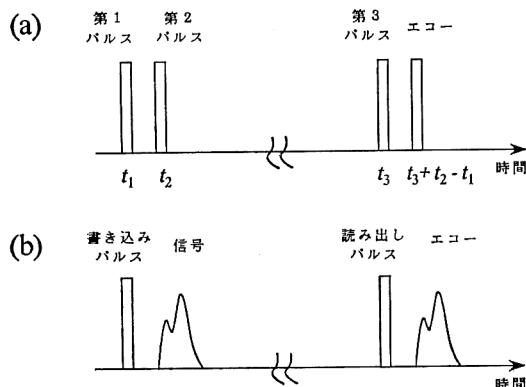


図4 誘導フォトンエコー (a) と、フォトンエコーメモリー (b) の概念図<sup>4)</sup>

ンを記録するのに対し、フォトンエコーメモリーは後述するように、信号光と書き込み用参照光パルスの周波数軸上における干渉パターンともいすべき、両者の合成光のパワースペクトルを、PHB 媒質の吸収スペクトルに、ホール形として記録するものである。したがって、ホログラフィーが、光波の位相にも敏感な、空間画像の記録・再生法であるのと同様に、フォトンエコーメモリーも、光波の位相に敏感な、時間軸上における光情報の記録・再生法となっている。

### 2.3 フォトンエコーメモリーの周波数帯域

前節で述べた有機系 PHB 媒質、すなわちポリマーフィルムや有機ガラス中にドープされた色素分子の  $S_0-S_1$  準位間の 0-0 遷移は、ホスト媒質の不均一性により、全体としての吸収スペクトルは、 $100\text{ cm}^{-1}$  以上の不均一幅をもっている。しかし一方、同媒質中の各单一色素分子のもつ均一幅は、極低温下では  $0.1\text{ cm}^{-1}$  程度あるいはそれ以下となる。

この PHB 媒質をフォトンエコーメモリーの記録媒質として用いると、不均一幅  $\sim 100\text{ cm}^{-1}$  すなわち  $\sim 3 \times 10^{12}\text{ Hz}$  が記録可能な高周波限界であり、均一幅  $\sim 0.1\text{ cm}^{-1}$  すなわち  $\sim 3 \times 10^9\text{ Hz}$  が低周波限界となる。この均一幅の逆数を位相緩和時間  $T_2$  というが、この  $T_2$  以上にわたって時間的に継続する信号の記録は不可能である。

現在のエレクトロニクスでは、 $3 \times 10^{12}\text{ Hz} \sim 3 \times 10^9\text{ Hz}$  の周波数帯域は実用的でないかも知れないが、レーザー分光などでは、この周波数帯域に属する超高時間分解能が既に実現されており、超高周波数帯域の利用あるいは超高時間分解という点では、レーザー技術がエレクトロニクス技術を、はるかに凌いでいるといえる。ただし、

現在の実用的エレクトロニクスの周波数帯域との整合性ということから、結晶中の不純物イオンを記録媒質とする、フォトンエコーメモリーの研究も、活発に行われている<sup>3)</sup>。

### 3. 時間・空間ホログラフィー

有機系 PHB フィルムは、良質のフォトンエコーメモリー媒体であるとともに、そのフィルム状の形状が、ホログラム媒体としても適している。したがって、これを用いて、空間画像情報の記録であるホログラフィーと、時間波形情報のフォトンエコーメモリーを結合した、光情報の究極的な記録法ともいえる、時間・空間ホログラフィーが考えられ、実際これが Rebane らによって実験的に示された<sup>4)</sup>。

#### 3.1 原理

図5に時間・空間ホログラフィーの書き込み過程の概念図を示す。ただしここで信号光と参照光ビームの空間的関係は、図1で示したホログラフィーの場合と同様である。

書き込み段階では、パルス幅の短い書き込み用参照光パルス  $E_w(\mathbf{r}, t)$  を照射した後、任意の空間・時間波形をもつ信号光  $E_s(\mathbf{r}, t)$  を照射する。書き込みパルスのパルス幅が十分に短いので、その電場  $E_w(\mathbf{r}, t)$  を

$$\begin{aligned} E_w(\mathbf{r}, t) \\ = & \theta_w \delta(t - t_1 - \mathbf{n}_0 \cdot \mathbf{r}/c) \exp[-i\omega_0(t - t_1 - \mathbf{n}_0 \cdot \mathbf{r}/c)], \end{aligned} \quad (1)$$

と表す。ただし  $t_1$  は書き込み用参照光パルスの到着時

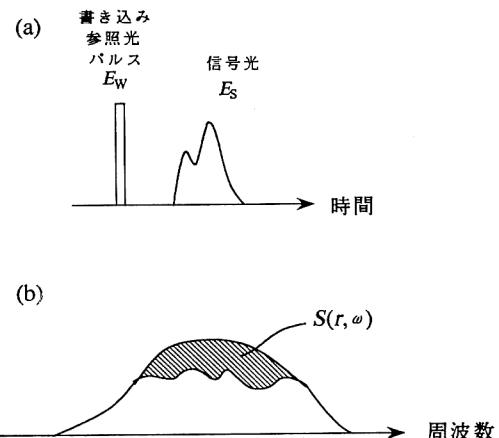


図5 時間・空間ホログラフィーの書き込み過程  
書き込み参照光パルス  $E_w$  と、信号光  $E_s$  が記録媒体に照射される (a)。参照光と信号光の合成電場のパワースペクトル  $S(r, \omega)$  が、記録媒体の各位置  $\mathbf{r}$  に記録される (b)。

間、 $c$  は光速、 $\omega_0$  および  $\mathbf{n}_0$  は光の中心周波数およびその進行方向の単位ベクトルである。その後時刻  $t_2$  ( $0 < t_2 - t_1 < T_2$ ) に、任意の時間・空間波形をもつ信号光

$$E_S(\mathbf{r}, t) = \int d\mathbf{n} E(\mathbf{n}, t - t_2 - \mathbf{n} \cdot \mathbf{r}/c) \exp[-i\omega_0(t - t_2 - \mathbf{n} \cdot \mathbf{r}/c)], \quad (2)$$

を照射すると、 $E_w$  と  $E_s$  の合成電場の PHB フィルム上におけるパワースペクトル  $S(\mathbf{r}, \omega)$  は

$$\begin{aligned} S(\mathbf{r}, \omega) &\propto |\int dt \exp(i\omega t)[E_w(\mathbf{r}, t) + E_s(\mathbf{r}, t)]|^2 \\ &= |\theta_w|^2 + |\int d\mathbf{n} F(\mathbf{n}, \Delta\omega) \exp[i\omega(\mathbf{n} \cdot \mathbf{r}/c)]|^2 \\ &\quad + \theta_w \int d\mathbf{n} F^*(\mathbf{n}, \Delta\omega) \\ &\quad \exp[i\omega(t_1 - t_2 + (\mathbf{n}_0 - \mathbf{n}) \cdot \mathbf{r}/c)] \\ &\quad + \theta_w^* \int d\mathbf{n} F(\mathbf{n}, \Delta\omega) \\ &\quad \exp[i\omega(t_2 - t_1 + (\mathbf{n} - \mathbf{n}_0) \cdot \mathbf{r}/c)], \end{aligned} \quad (3)$$

となる。ここで、

$$\Delta\omega = \omega - \omega_0, \quad (4)$$

であり、また

$$F(\mathbf{n}, \Delta\omega) \equiv \int dt \exp(i\Delta\omega t) E(\mathbf{n}, t), \quad (5)$$

は信号光を平面波に分解したときの、 $\mathbf{n}$  方向に進む平面波成分のフーリエスペクトルである。書き込み段階では、図 5(b) で示すように、(3)式で与えられる、記録媒体である PHB フィルムの各部分  $\mathbf{r}$  に依存したパワースペクトルが、不均一に拡がった吸収スペクトルに掘られたホールとして記録される。このとき、パワースペクトルとして記録可能な周波数構造の最大幅が吸収スペクトルの不均一幅であり、最小幅が均一幅である。

書き込みが終了した後、任意の時刻  $t_3$  ( $t_3 > t_2$ ) に、書き込み用参照光パルスと同じ方向に、第 3 パルスすなわち読み出し用参照光パルスを照射する。読み出し用参照光パルスの電場  $E_R(\mathbf{r}, t)$  は(1)式と同様に、

$$E_R(\mathbf{r}, t) = \theta_R \delta(t - t_3 - \mathbf{n}_0 \cdot \mathbf{r}/c) \exp[-i\omega_0(t - t_3 - \mathbf{n}_0 \cdot \mathbf{r}/c)], \quad (6)$$

と表す。この読み出し用参照光パルスが、(3)式で与えられたパワースペクトル  $S(\mathbf{r}, \omega)$  と同形のホールが掘られた PHB フィルムに照射されると、PHB フィルム中の各色素分子は、各々の固有振動数で自由歳差運動を始め、光を放出する。その放出光の光電場  $E_E(\mathbf{r}, t)$  は

$$E_E(\mathbf{r}, t) \propto \int d\omega \theta_R \exp[-i\omega(t - t_3 - \mathbf{n}_0 \cdot \mathbf{r}/c)] S(\mathbf{r}, \omega), \quad (7)$$

となる。ただし以上の議論では、簡単のため、PHB フィルムに掘られるホール形の、均一幅による“ボケ”や自由歳差運動の位相緩和による減衰を無視した。これらのこと、および不均一幅の有限性によって、前述した記録可能な信号に対する、周波数帯域の制限が生じる。

(3)式で与えられるパワースペクトル  $S(\mathbf{r}, \omega)$  の表式には全部で 4 項あるが、その中の第 4 項を(7)式の  $S(\mathbf{r}, \omega)$  に代入すると、放出光電場  $E_E(\mathbf{r}, t)$  の成分として

$$\begin{aligned} E_E(\mathbf{r}, t) &\propto \theta_R \theta_w^* \int d\mathbf{n} E(\mathbf{n}, t - t_3 - t_2 + t_1 - \mathbf{n} \cdot \mathbf{r}/c) \\ &\quad \exp[-i\omega_0(t - t_3 - t_2 + t_1 - \mathbf{n} \cdot \mathbf{r}/c)], \end{aligned} \quad (8)$$

を得る。(2)式と(8)式を比較すれば、この放出光電場  $E_E(\mathbf{r}, t)$  が、光波の位相情報をも含む、信号光  $E_S(\mathbf{r}, t)$  の時間的に遅延された正確な複製となっていることがわかる。ここで無視した(3)式の他の項から、通常のホログラフィーの場合と同様に、信号光以外の放出光が生じるが、これらは再生された信号光と進行方向が異なるため、その除去は容易である。

### 3.2 実験

図 6 にわれわれの行った PHB フィルムによる、ピコ秒時間・空間ホログラフィーの実験配置図を示す<sup>5)</sup>。モード同期色素レーザーの繰返し周波数、パルス幅および発振波長は各々 76 MHz, 5 ps および 641 nm であった。この色素レーザーの出力を適当に減衰させた後、ビームスプリッターにより、三つの方向の異なる信号光ビームを構成した。各信号光ビーム上のパルスは独立に、遅延線により、書き込み参照光パルスに対する遅延時間を、設定することができる。これらの信号光および参照光は、PHB フィルムの同一点上に、約 3 mm<sup>2</sup> のスポットサイズとなるよう集光される。記録用 PHB 試料として、Oxazine 720 がドープされた PMMA フィルムを用いた。この PHB フィルムは、超流動ヘリウムクライオスタット中で、1.6 K に保たれている。三つの信号光ビームは、PHB フィルムを透過後、円筒レンズにより、ストリーカカメラのスリット上に、各々の間隔が約 1 mm となるよう、一直線上に集光した。

PHB フィルムには、信号光の各ビームに、アスキーコードによる文字のアルファベット “P”, “H”, “B” の 1 文字を記録した。各文字を表す 8 ビット 2 進コードにおいて、“1” をパルスのピークに、“0” をパルスの存在しない状態に対応させた。これらの 3 文字がすべて、二つの “1” と六つの “0” で構成されているため、三つの文字を同時に、合計 2 度のレーザー照射によ

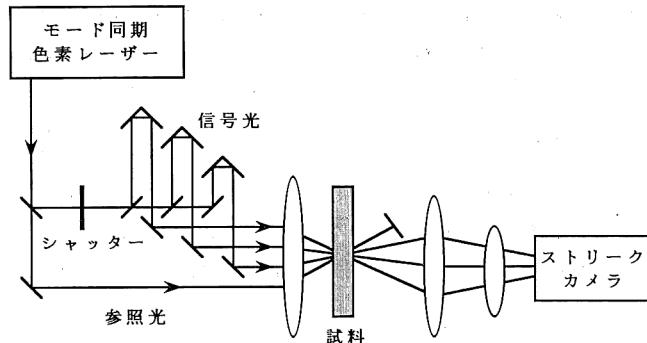


図 6 ピコ秒時間・空間ホログラフィー実験配置図

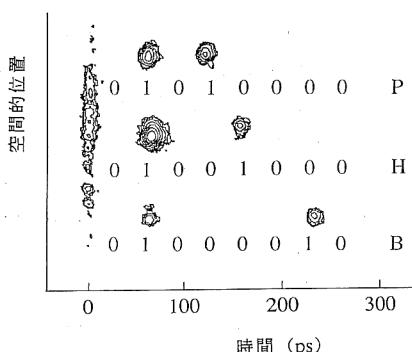


図 7 ストリークカメラによって観測された、時間・空間ホログラムからの再生像の等高線図。アスキーコードによる“P”, “H”, “B”の3文字が同時に再生される。

り書き込んだ。1ビットの書き込みに用いた光量は、約3mJ/cm<sup>2</sup>であった。

書き込まれたデータは、その後信号光ビームを遮断して、読み出し参照光パルスのみをPHBフィルムに照射することにより、シンクロスキャンストリークカメラ（浜松ホトニクス、C3681-01）で検出した。読み出しに要した時間は約10秒であった。しかし、読み出し参照光パルスに高出力レーザーパルスを用いれば、読み出し時間は短縮され、単一パルスによる読み出しも原理的に可能である。図7にストリークカメラによって検出された、読み出しデータの時・空座標における等高線図を示す。“P”, “H”, “B”3文字のアスキーコードが、各文字の等高線図の下に示されている。時刻t=0近傍の空間的に広がった信号は、読み出し用参照光パルスの、PHBフィルムからの単純な散乱によるものである。ここでみられるパルス幅約10psは、ストリークカメラの

分解時間に対応している。

#### 4. おわりに

本稿では、三つの信号光ビームにのせたアスキーコードデータの記録・再生を示した。しかし、原理の説明からも明らかなように、時間・空間ホログラフィーでは、さまざまな图形や時間波形の記録が可能である<sup>6)</sup>。また、10%を越す極めて高い量子収率のPHB媒質の報告もあり<sup>7)</sup>、空間的に並列な超高速信号の処理技術における将来の発展により、有機系PHB媒質を用いた時間・空間ホログラフィーが、超高速光情報の重要な記録・再生法となるものと期待される。

#### 文 献

- 1) T. W. Mossberg: "Time-domain frequency-selective optical data storage," Opt. Lett., **7** (1982) 77-79.
- 2) 例えば、W. E. Moerner, ed.: *Persistent Spectral Hole Burning: Science and Applications* (Springer, Berlin, 1988).
- 3) 本特集号“光エコーメモリー”的文献を参照されたい。
- 4) A. K. Rebane, R. K. Kaarli and P. M. Saari: "Dynamic picosecond holography by means of photochemical hole burning," JETP Lett., **38** (1983) 383-386.
- 5) T. Hattori, S. Uemura and H. Nakatsuka: "Spatially parallel picosecond optical data storage using persistent hole burning," Opt. Commun., **92** (1992) 225-228.
- 6) P. Saari, R. Kaarli and A. Rebane: "Picosecond time- and space-domain holography by photochemical hole burning," J. Opt. Soc. Am. B, **3** (1986) 527-533.
- 7) H. Suzuki and T. Shimada: "Subnanosecond burning of persistent spectral holes by donor-acceptor electron transfer in tetraphenylporphine/p-benzoquinone systems," Appl. Phys. Lett., **59** (1991) 1814-1816.