

# ホログラフィックメモリー： フォトリフラクティブ材料

八 木 生 剛

体積多重ホログラフィックメモリーは、3次元記録領域に由来する大容量性と、2次元一括記録再生方式に由来する高速性ことから、60年代<sup>1)</sup>から“次世代”のランダムアクセス可能なファイルメモリーとして期待され続けてきた。期待されつつも、未だに実用化には至っていないのではあるが、近年、小型可視レーザーの進歩や、液晶パネルとCCDの産業的成功等、周辺技術の進歩と相俟って、米国を中心にホログラフィックメモリーの研究が加速している。

本稿では、記録媒体としてフォトリフラクティブ (photorefractive: PR) 材料を用いた場合について、原理、多重化方式、定着技術、およびデジタルデータ記録方式について概説する。

## 1. フォトリフラクティブ効果

PR効果は、読んで字のごとく光によって屈折率が変化する効果である<sup>2)</sup>。その原理を図1に示す。光が照射された部分で電子(正孔)が励起され、伝導帯(価電子帯)で移動し、再結合する。この光励起・電荷移動・再結合という過程を繰り返すことで、光を照射した部分では正(負)に、相対的に暗い部分では逆に負(正)に帯電する。

電荷分布が形成されれば、マックスウェル方程式に従って静電場分布が形成され、電気光学効果を通じて屈折率変化分布が生じる。この屈折率変化分布は光強度分布と同じパターンをもつので、光強度分布として二光波の干渉パターンを用いれば、屈折率変化ホログラムが形成

されたことになる。

PR材料としては、酸化物、半導体、有機物のそれぞれで多くの物質が報告されているが、ホログラフィックメモリー用の記録媒体としては、質の高い結晶を得やすいLiNbO<sub>3</sub>を用いた報告<sup>3-5)</sup>が最も多い。また、Sr<sub>x</sub>Ba<sub>1-x</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>6</sub>やKNbO<sub>3</sub>も、その光感度の高さから、記録転送速度の向上を目指して用いられている<sup>6-8)</sup>。

## 2. 体積多重記録方式

体積ホログラフィーの原理を用いて記録再生を行う。物体光と参照光とでつくられる干渉縞を表現するグレーティングベクトル ( $K_G$ ) が、逆空間中で互いに重ならないようにすれば、ブラッグ条件を満たすホログラムを選択的に再生することが可能になり、記録媒体の同一箇所複数個のホログラムを多重記録することができる。その方式として、角度多重<sup>9)</sup>/波長多重<sup>9)</sup>/電場多重<sup>10)</sup>/位相多重<sup>11)</sup>/球面参照光シフト多重<sup>12)</sup>が提案されている(図2)。 $K_G$ は、物体光の波数ベクトル( $k_o$ )と平面波の参照光( $k_r$ )の差ベクトルであり、

$$K_G = k_r - k_o = 2\pi n(\hat{k}_r - \hat{k}_o) / \lambda \quad (1)$$

と表される。各多重方式のうち、波長多重は波長( $\lambda$ )を、電場多重は屈折率( $n$ )を、その他三方式では参照光あるいは参照光と物体光双方の方向( $\hat{k}_r$ ,  $\hat{k}_o$ )を変化させている。

### 2.1 角度多重方式

これは、現在最も広く用いられている方式で、参照光の入射角度を変化させるかPR結晶を回転させるだけで、異なるホログラムを記録再生できる(図2(a))。簡単のため、物体光も平面波であるとすると、クロストークは、

NTT光エレクトロニクス研究所 (〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方白根 162)  
E-mail: shogo@iba.iecl.ntt.co.jp

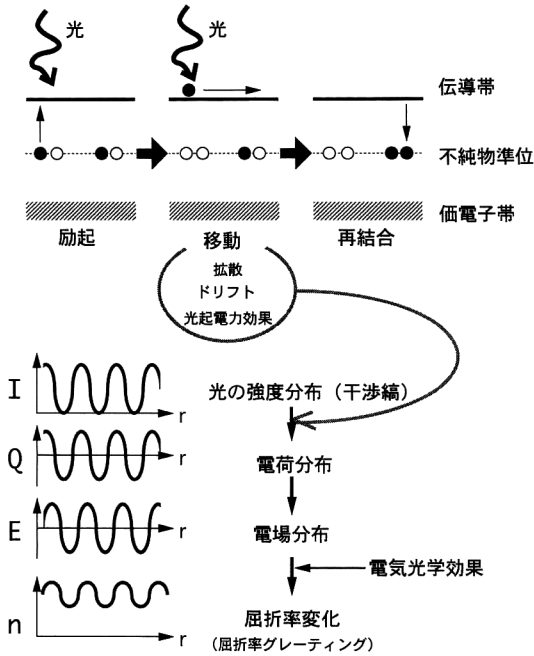


図1 フォトリフラクティブ効果の原理. 光の干渉縞の光強度の強い部分で, 不純物から電子が励起され, 暗い部分で再結合すると, 干渉縞と同じパターンの電荷分布が形成される. 電荷分布はポッケルス効果を通じて屈折率分布に変換される.

$$\eta = \text{sinc}^2\left(\frac{\pi}{\lambda} L \sin \theta d\theta\right) \quad (2)$$

で表され (ここで,  $\lambda$ ,  $\theta$  は PR 結晶内での波長, および物体光と参照光のなす角,  $L$  は PR 結晶長さ), 参照光の入射角変化は,

$$d\theta = \lambda/L \sin \theta \quad (3)$$

程度であればよく, 結晶長さに比例して多重度を大きくでき, また, 物体光と参照光は直交に近いほど小さい角度で分離できることがわかる. なお, 物体光と参照光をほぼ直交させる場合には,  $K_G$  と PR 結晶の  $c$  軸が平行になるよう, (101) 面で結晶をカットすると回折効率が高くなる.

なお, 参照光の入射角度変調に音響光学素子を用いると, 高速ページアクセスが可能であり, 40  $\mu\text{s}$  のアクセス速度が報告されている<sup>13)</sup>.

## 2.2 波長多重方式

2.1 節の角度多重の説明では簡単のために物体光を平面波としたが, 実際には広がりをもっており,  $K_G$  も広がりをもつことになる. しかし, 波長多重方式で反射型ホログラムを採用すると, 近接する  $K_G$  は, 広がりによらず一様に離れているので逆空間の有効利用が可能である (図 2(b)). この方式の問題点は, 高価な波長可変レーザーを必要とすることであるが, 参照光の入射位置と角度が固定式であることから, 機械的な動作を必要とせ

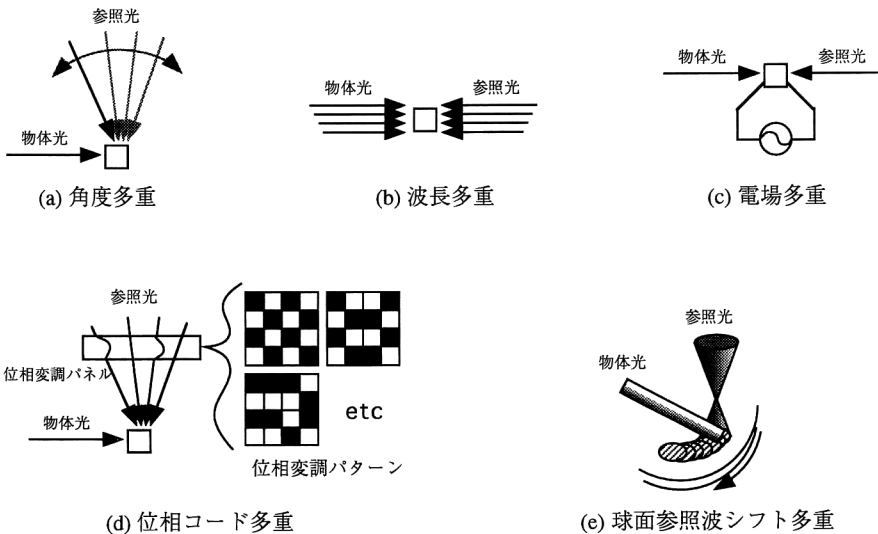


図2 各種多重化法. (a)は角度多重法. (b)は波長多重法で矢印の長さは波長を意味する. (c)は電場多重法. (d)は位相コード多重法で, 位相コードのパターンの例を示す. 白ヌキは位相シフト無し, 黒は  $\pi$ シフト. (e)は球面参照波シフト多重で, ディスク状の記録媒体を回転して多重化を行う.

ず、安価な波長可変レーザーが入手可能になれば、有望な方式である。

### 2.3 電場多重方式

PR 結晶に外部電圧を印加することで電気光学効果を通じて屈折率を変化させることで多重記録を行う (図 2(c))。ただし、透過型のホログラムにすると屈折率が変化してもスネルの法則に従って入射角度が変化し、多重記録ができないので反射型ホログラムを用いる。この方式では、異なるホログラム間のクロストークを抑えるために、kV/cm オーダーの電場差が必要であり、せいぜい数多重しか期待できず、メモリーとしては実用的ではない。

### 2.4 位相コード多重方式

これは、一種の角度多重記録である。ただし、入射角度の異なる多数の参照光を同時に入射させ、かつ、それぞれの参照光の位相を液晶パネル等を用いて独立に制御することを特徴としている (図 2(d))。ここで、位相制御は 0、もしくは  $\pi$  で、参照光の数を  $N$  本とし、第  $\alpha$  番目のホログラムを記録再生するときの第  $x$  番目の参照光の位相変調を  $\phi_{x\alpha}$  とすると、

$$\sum_{\alpha=1}^N \exp(i\phi_{x\alpha}) \exp(i\phi_{x\beta}) = N\delta_{\alpha\beta} \quad (4)$$

を満たすような  $\{\phi_{x\alpha}\}$  の組を用いる必要がある ( $\delta$  はクロネッカーのデルタ)。個々の参照光は、それぞれ、多重記録されたすべてのホログラフィーを同時に再生する。ところが、記録時と同じ位相変調パターンでない場合には、個々の参照光からの回折光は、互いに打ち消しあうので再生されず、同じ位相変調パターンを用いたホログラフィーのみが再生される。なお、このような位相変調パターンは、参照光の数 ( $N$ ) だけ存在し、位相変調のための液晶のピクセル数だけ多重ができることを意味する。この方式の利点は、機械的な動きを必要としないところにあるが、ホログラフィックメモリーの特長のひとつである高速アクセスが、液晶のパターン生成速度 (数十 ms) に律速されて失われるところに難点がある。

### 2.5 球面参照光シフト多重方式

この方式は、回転ディスクのように記録媒体が移動する構成のときに有利である。参照光を球面波とする (図 2(e)) ことで、入射角度の異なる多数の参照光が同時に照射されているのと等価になっている。ここで、PR 結晶の移動を止めて結晶中の一点に着目すると、その点では参照光の入射角度は一意に定まっている。その点の参照光の焦点からの距離を  $r$  とする。次に結晶がわずかな距離 ( $d$ ) を移動すると、着目した点への新たな参照光

の入射角度は移動前と比べて  $d/r$  だけ変化している。したがって、結晶の厚みを  $L$ 、物体光の入射角を  $\theta$  として、

$$d \approx \frac{r\lambda}{L \sin \theta} \quad (5)$$

の距離 (典型的には、数  $\sim 10 \mu\text{m}$  程度) を PR 結晶が移動すると新たなホログラムが現れることになる。つまり、回転によって画像が変化する光ディスクとなる。この方法では、記録露光時にはディスク回転を止めるか、パルスレーザーを用いて短時間で記録する必要があり、記録時に若干の問題を有しているが、将来的には非常に有望な方式である。

### 2.6 計画記録

以上、5 種類の多重化方式を簡単に説明したが、そのいずれの方式においても、多重記録による回折効率の劣化は避けられない。そこで、徐々に記録位置を変える球面参照波シフト多重と、あまり多重記録できない電場多重記録を除いて、多重記録した結果、すべてのホログラムの回折効率が等しくなるように、記録露光量を制御する必要がある。ホログラムを多重記録する際には、すでに記録したホログラムを消し去らない程度に露光量を少なくして記録するので、屈折率変化は小さく、したがって、記録時の物体光や参照光の回折効果は無視できる。結果、第  $n$  ページの露光時間 ( $t_n$ ) と回折効率 ( $\eta_n$ ) の関係は、記録緩和時間 ( $\tau_w$ ) を用いて、

$$\eta_n = (t_n / \tau_w)^2 \quad (6)$$

と記述できる。一方、第  $(n+1)$  ページを記録することで、第  $n$  ページの回折効率変化は消去緩和時間 ( $\tau_e$ ) を用いて、

$$\eta_n \rightarrow \eta_n \exp(-t_{n+1} / 2\tau_e) \quad (7)$$

のように表されるが、これを、第  $(n+1)$  ページの回折効率と等しくするには、

$$t_n = t_{n+1} \exp(t_{n+1} / \tau_e) \quad (8)$$

なる漸化式が満たされなければならない。 $n$  が大きいとき、 $t_n$  はほぼ  $n$  に反比例するので、回折効率は、 $n^2$  に反比例する。システムノイズの大きさから、必要な回折効率が決定されるので、大きな多重度を得るには、 $\tau_e / \tau_w$  が大きい材料が望まれる。なお、筆者らの実験では、この値は、同じ結晶でもドーパント量や育成条件によって異なる。

## 3. 定着技術<sup>14)</sup>

PR 効果のような閾値のないフォトンモード記録では、再生によるデータの劣化が問題となる。すなわち、

再生露光エネルギーが小さくても、PR 効果に光強度の閾値が存在しないため、再生回数を重ねると強い光を露光したと等価になり、結果として回折効率が減衰し、S/N が低下してしまう。システムのノイズを減らし再生露光エネルギーを小さくすれば、再生劣化の低減には役立つが、露光エネルギーには原理的な下限があるのでこの方法だけでは問題の解決にはならない。まず、露光エネルギーの下限について説明する。

情報は、 $N$  個のピクセルの明暗で与えられるが、情報を低いエラー率で検出するためには、回折光のそれぞれのピクセルに対応する光が、十分な数の光子を含んでいなければならない。一般に、多重記録されたホログラムは、回折効率が小さく、多重度や記録媒体にもよるが  $\eta=10^{-3}\sim 10^{-7}$  程度の回折効率をもつ。仮に  $N=10^6$ 、 $\eta=10^{-6}$  とすると、再生時の入射光子は  $10^{-12}$  の確率で個々のピクセルに対応する光として受光される。これは、稀なイベントなので、入射光に含まれる全光子数を  $M$ 、1ピクセル当たりの平均光子数を  $\rho=10^{-12}M$  とし、1ピクセルに受光される光子数が  $x$  である確率  $P_\rho(x)$  は、ポアソン分布

$$P_\rho(x)=\exp(-\rho)\rho^x/x! \quad (9)$$

に従う。ここで、 $x < \rho/2$  で読み取りエラーであるとすると、 $10^{-9}$  以下のビットエラー率を要求したとき  $\rho > 120$ 、したがって  $M > 1.2 \times 10^{14}$  が必要条件となる。これは、波長 500 nm の光の場合、約 50  $\mu\text{J}$  に相当し、例えば 1000 多重したホログラムを一通り読み出すには少なくとも計 50 mJ の露光エネルギーが必要であることがわかる。実際には、受光素子の量子効率や熱雑音、光学部品によるロスを考慮すれば、100 mJ 以上のエネルギーが必要になる。この露光エネルギーは、1  $\text{cm}^2$  の露光面積を仮定すれば、Fe:LiNbO<sub>3</sub> でもせいぜい千回、Ce: Sr<sub>x</sub>Ba<sub>1-x</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> ならば数回程度しか再生できないことを意味している。したがって、露光エネルギーを小さくするだけでは問題は解決せず、定着等を用いた非破壊再生技術が重要となってくる\*1。これは、PR 効果で生成された電子的なグレーティングを、光に不感なイオン（熱定着）や分極（電場定着）のグレーティングに変換する技術であり、再生劣化を抑えるだけでなく、熱劣化も同時に抑制する効果をもっている。

### 3.1 熱定着

これは、電子的なグレーティングをイオンに置き換え

\*1 定着以外にも、再生劣化を避ける技術として電子を励起しない長波長による再生、2光子吸収ホログラムの生成、再生されたホログラムを別の結晶に転写する等の方式が検討されている。

る技術である<sup>15)</sup>。LiNbO<sub>3</sub>、LiTaO<sub>3</sub>、KNbO<sub>3</sub> 等で行われている<sup>4,16,17)</sup>。電子（正孔）は光励起によって移動するので、低温でも電子的グレーティングは形成される。一方、イオンは光励起されず、熱励起によってのみ移動できる。そこで、光照射によって電子的グレーティング

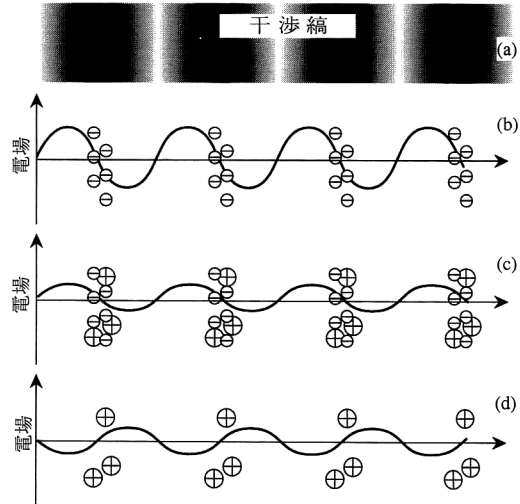


図3 熱定着法。干渉縞(a)によって、通常的光トリフラクティブ効果によるグレーティング(b)が形成され、昇温によってイオンの伝導度を上げて(b)のグレーティングを打ち消すように分布させる(c)。最後に、温度を下げて光の一樣照射によって(b)のグレーティングを消去すると、イオンのグレーティング(d)のみが残される。

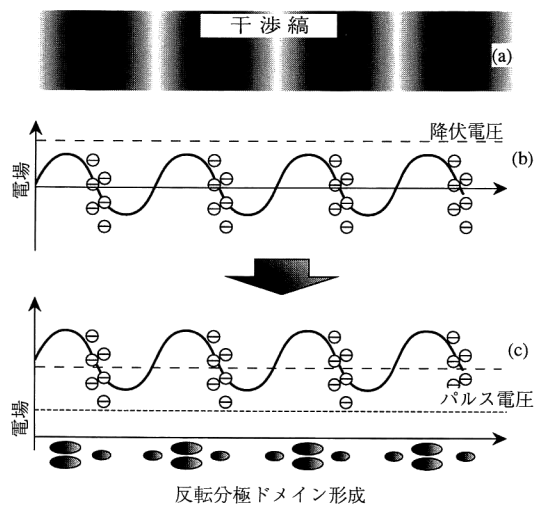


図4 電場定着法。干渉縞(a)によって、空間電場(b)を形成し、外部電場をパルス的に印加することによって部分的に分極反転の降伏電圧を越し、反転分極ドメイン(c)が形成される。

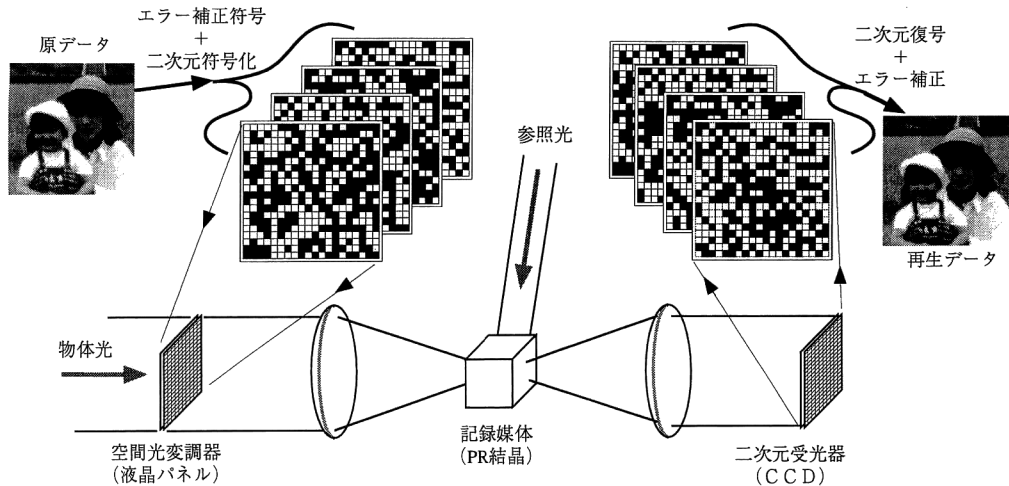


図5 デジタルホログラムメモリーの概念図。

を形成しておいて、PR結晶を昇温すると電子による電荷分布を打ち消すようにイオンが移動し、イオンによるグレーティングが形成される(図3)。このイオンによるホログラムは再生劣化はしないが、熱励起によって劣化する。なお、イオンの種類は、 $\text{LiNbO}_3$ では $\text{H}^+$ だと考えられている。 $\text{H}^+$ の伝導率( $\sigma$ )の温度( $T$ )依存性は、アレニウス則

$$\sigma T = A \exp(-E/k_B T) \quad (10)$$

に従う。活性化エネルギー( $E$ )は1eV程度である。室温でのデータ保存寿命は、数年~100年程度と大きく異なる値が報告されているが、これらの違いは、頻度因子( $A$ )や活性化エネルギー( $E$ )は $\text{H}^+$ 濃度に依存すること<sup>18)</sup>、定着操作の後、電子グレーティングを消去するかしないかの差によるものであろう。

なお、この方法では定着操作による回折効率の低下と定着に時間がかかる(数十分)ことが欠点であり、書き換え型メモリーへの適用は困難で、再生専用メモリーへの適用が有望である。

### 3.2 電場定着

これは、 $\text{Sr}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Nb}_2\text{O}_6$ や $\text{BaTiO}_3$ で行われている方法<sup>19,20)</sup>で、電子的なグレーティングを分極反転分布に置き換える技術である。露光によって形成された電子分布による電場と適当な強さ(1kV/cm程度)の外部電場を重ね合わせる<sup>\*2</sup>と、部分的に分極の降伏電圧を越す。したがって、重畳された電場分布と電圧印加時間

に応じて反転分極分布が形成されるので、光の干渉縞が分極分布に転写されたことになる(図4)。この方法は前述の熱定着法に比べて、短時間(1秒以下)で行えるところに利点がある。分極分布は再生劣化は示さず、また、強誘電-常誘電相転移温度に近くない限り熱的にも安定である。これは、微小分極反転の熱緩和時間がVogel-Fulcher則<sup>20)</sup>に従い、熱定着の緩和時間を記述するアレニウス則より温度依存性が強いためである。この方法は、書き換え型メモリーもしくはライトワンス型メモリーへの適用が可能であり、電場定着が可能な $\text{Sr}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Nb}_2\text{O}_6$ や $\text{BaTiO}_3$ が、 $\text{LiNbO}_3$ なみの光学品質をもって安価に供給されることが望まれる。

## 4. デジタルホログラム記録

デジタルホログラム記録では、記録情報をアナログ像でなく、空間光変調器のピクセルのon/offパターンとしてデジタル化し、記録再生を行う(図5)。最近では、具体的な光学系や多重化方式に基づくS/Nやビット誤り率評価あるいは2次元符号化の提案、光学系の収差の影響等、より工学的な観点からの研究が進展している<sup>21-23)</sup>。記録密度は多重方式や物体光のレンズ構成によって異なるが、いずれの方式でも $\lambda^{-3}$ (波長500nmで1GB/mm<sup>3</sup>)には届かない。例えば、Neifeldらの解析<sup>22)</sup>によれば、波長多重方式でフーリエ光学系の場合、標準的な光学部品使用で収差の影響等を考慮すると、記憶密度は2Mbit/mm<sup>3</sup>となる。これはDVD-RAMで5GBが実現されている現在、あまり魅力的な数字ではなく、記録再生の2次元性(10<sup>5</sup>bit/回)による高速転送

\*2 光が照射された部分の降伏電圧が下がることを利用した分極分布形成や、光強度を強くして干渉縞の明るい部分の温度を上昇させて分極を消失させる方法も報告されている。

速度に優位性を見いだすのみである。一方、球面参照波シフト多重では、 $\lambda^{-3}$ には届かないものの136 Mbit/mm<sup>3</sup>の高密度が得られ<sup>24)</sup>、転送速度のみならず記録容量も次世代メモリーとしての資格を有している。

光ディスクや磁気ディスクの記録密度は、10年で100倍のペースで向上してきた。しかし、光ディスクでは回折限界から、磁気ディスクでは熱ゆらぎから、それぞれ、21世紀初頭には理論限界に達するであろう。一方のPR結晶を用いたデジタルホログラムメモリーは、次世紀を担うメモリーとなりうるであろうか。ホログラムメモリーの高速度を真に発揮するためには、液晶パネルや2次元受光素子の高速化が必須であるし、使いやすメモリーとするためには比破壊再生技術の確立も必須である。克服すべき課題は多いが、原理的に解決不可能なものではない。本稿が、ホログラムメモリー研究の広がりの一助になれば幸いである。

## 文 献

- 1) F. S. Chen, J. T. LaMacchia and D. B. Fraser: "Holographic storage in lithium niobate," *Appl. Phys. Lett.*, **13** (1968) 223-224.
- 2) フォトリフラクティブ効果の簡潔な解説記事として、志村努: "フォトリフラクティブ効果の物理", *光学*, **25** (1996) 376-379.
- 3) J. F. Heanue, M. C. Bashaw and L. Hesselink: "Volume holographic storage and retrieval of digital data," *Science*, **265** (1994) 749-752.
- 4) J. F. Heanue, M. C. Bashaw, A. J. Daiber, R. Snyder and L. Hesselink: "Digital holographic storage system incorporating thermal fixing in lithium niobate," *Opt. Lett.*, **21** (1996) 1615-1617.
- 5) F. H. Mok: "Angle-multiplexed storage of 5000 holograms in lithium niobate," *Opt. Lett.*, **8** (1993) 915-917.
- 6) M. D. Ewbank, R. R. Neurgaonkar, W. K. Cory and J. Feinberg: "Photorefractive properties of strontium-barium niobate," *Appl. Phys. Lett.* **62** (1987) 374-380.
- 7) 八木生剛, 今井欽之: "フォトリフラクティブ材料: 酸化物材料の特性", *光学*, **25** (1996) 383-387.
- 8) C. Medrano, E. Voit, P. Amrhein and P. Günter: "Optimization of the photorefractive properties of KNbO<sub>3</sub> crystals," *J. Appl. Phys.*, **64** (1988) 4668-4673.
- 9) G. A. Rakuljic, V. Levya and A. Yariv: "Optical data storage by using orthogonal wavelength-multiplexed volume holograms," *Opt. Lett.*, **17** (1992) 1471-1473.
- 10) A. Kewitsch, M. Segev, A. Yariv and R. R. Neurgaonkar: "Electrical-field multiplexing/demultiplexing of volume holograms in photorefractive media," *Opt. Lett.*, **18** (1993) 534-536.
- 11) C. Denz, G. Pauliat, G. Roosen and T. Tschudi: "Volume hologram multiplexing using a deterministic phase encoding method," *Opt. Commun.*, **85** (1991) 171-176.
- 12) D. Psaltis: "Paralell optical memories," *Byte*, **17** (1992) 179-182.
- 13) J. H. Hong, I. MacMichael, T. Y. Chang, W. Christian and E. G. Paek: "Volume holographic storage systems: techniques and architectures," *Opt. Eng.*, **34** (1995) 2193-2203.
- 14) 定着技術を総括したものとして, A. S. Kewitsch, A. Yariv and M. Segev: "Permanently fixed volume phase gratings in ferroelectrics," *Photorefractive Effects and Materials*, ed. D. D. Nolte (Kluwer Academic Publishers, Boston, 1995) pp. 173-219.
- 15) J. J. Amodei and D. L. Staebler: "Holographic pattern fixing in electro-optic crystals," *Appl. Phys. Lett.*, **18** (1971) 540-542.
- 16) R. Matull and R. A. Rupp: "Microphotometric investigation of fixed holograms," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **21** (1988) 1556-1565.
- 17) G. Montemezzani and P. Günter: "Thermal hologram fixing in pure and doped KNbO<sub>3</sub> crystals," *J. Opt. Soc. Am. B*, **7** (1990) 2323-2328.
- 18) T. Imai, S. Yagi and H. Yamazaki: "Thermal fixing of photorefractive holograms in KTa<sub>1-x</sub>Nb<sub>x</sub>O<sub>3</sub> and its relation to proton concentration," *J. Opt. Soc. Am. B*, **13** (1996) 2524-2529.
- 19) R. S. Cudney, J. Fousek, M. Zgonik, P. Günter, M. H. Garret and D. Rytz: "Enhancement of the amplitude and lifetime of photorefractive space-charge fields in multidomain ferroelectrics crystals," *Phys. Rev. Lett.*, **72** (1994) 3883-3886.
- 20) A. S. Kewitsch, M. Segev, A. Yariv, G. J. Salamo, T. W. Towe, E. J. Sharp and R. R. Neurgaonkar: "Ferroelectric domain grating in strontium barium niobate induced by photorefractive space charge field," *Phys. Rev. Lett.*, **73** (1994) 1174-1177.
- 21) M. C. Bashaw, J. F. Heanue, A. Aharoni, J. F. Walkup and L. Hesselink: "Cross-talk considerations for angular and phase-encoded multiplexing in volume holographys," *J. Opt. Soc. Am. B*, **11** (1994) 1820-1836.
- 22) M. A. Neifeld and M. McDonald: "Optical design for page access to volume optical media," *Appl. Opt.*, **35** (1996) 2418-2430.
- 23) X. Yi, P. Yeh and C. Gu: "Statistical analysis of cross-talk noise and storage capacity in volume holographic memory," *Opt. Lett.*, **19** (1994) 1580-1582.
- 24) G. Barbastathis, M. Levene and D. Psaltis: "Shift multiplexing with spherical reference waves," *Appl. Opt.*, **35** (1996) 2403-2417.

(1997年3月11日受理)