

ホログラフィックメモリー：ホールバーニング材料 ——ホールバーニングホログラフィーの原理と応用——

佐々木 浩子

マルチメディア社会の到来は高速な情報通信、情報処理技術に支えられているが、このような大量に処理される情報を記録するためのメモリー技術もいっそうの高密度・高速化が要求されている。すでに情報通信の分野では2010年を目標に1Tbit/sの高速通信計画がなされており、このような通信網を支えるためには1Tbit/in²の記録密度、400Mbpsの記録速度のメモリーが必要であるといわれている。

次世代の大容量・高速メモリーの候補としていくつもの技術が提案され研究が行われているが、その中で波長領域での多重化を用いた光メモリーはその大容量性から注目されている。そのひとつがホールバーニングメモリーである。ホールバーニングメモリーは通常の光ディスクのようなバイナリーデータのみならず2次元あるいは3次元的に広がりをもつようなデータすなわち画像のメモリーとしても用いることができる。

ここではホールバーニングメモリーとホールバーニングの機構について述べ、さらにホールバーニングを用いたホログラフィックな情報記録の原理と実験、可能性について詳述する。

1. ホールバーニング

1.1 ホールバーニングメモリー¹⁾

はじめにホールバーニングメモリーの基礎となるスペクトルホールバーニング²⁾について簡単に述べる。原子、分子あるいは媒質中の不純物イオンの集団の光吸収線の広がり、不均一幅と均一幅という2つの異なるス

ペクトル広がりによって構成されている(図1(a))。個々の原子や分子等の吸収線に現れる広がり均一幅と呼ばれ、主に吸収に関与する準位の寿命によるものである。一方、不均一幅は原子、分子等の集団において、個々の原子や分子のおかれている環境の差異によってそれぞれの吸収線の中心波長がわずかに異なるため集団全体のスペクトルに現れる広がりである。

均一幅が不均一幅に比べて非常に狭い場合、均一幅に見合ったスペクトル幅をもつレーザー光を照射しながら吸収スペクトルを測定すると、レーザー光の照射を受けた波長の吸収が飽和し、吸収スペクトル全体の中に鋭く穴があいたような状態ができる。これをスペクトルホールバーニング(図1(a))という。レーザー光の照射を止めると吸収の飽和がなくなるためにホールが消えてしまうもの(過渡的ホールバーニング)もあるが、固体中に分散された不純物イオンや分子による吸収線には、レーザー光の照射を止めた後もホールが観測されるものがある。これは吸収線の起源となるイオンや分子がレーザー光によって励起され、始状態とは異なる安定な基底状態に緩和してしまい光を吸収しなくなるからである。これを永続的ホールバーニング(persistent spectral hole-burning: 以下PHBと省略する)と呼び、これがメモリー(以下PHBメモリーと省略する)として応用される。PHBはクロリンやポルフィリン等の色素分子をポリマーに分散させたもの、希土類のEu³⁺(ユーロピウムイオン)やSm²⁺(サマリウムイオン)を結晶やガラスにドーブしたもので観測されている。

PHBメモリーとは図1(b)に示すように、不均一広がりをもつ光の吸収線に形成された永続的ホールに0-1のbit信号を対応させた波長領域の多重メモリーである。

オリンパス光学工業(株)基礎技術研究所(〒192 八王子市久保山町2-3)

E-mail: sasaki-h@rnet.olympus.co.jp

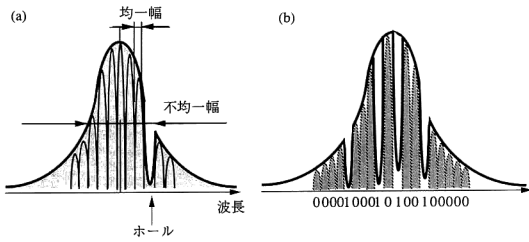


図1 (a) ホールバーニング, (b) ホールバーニングメモリー.

ホールの多重度は (不均一幅)/(均一幅) で、この値は多くの PHB 材料で 100~1000 以上になるため、PHB メモリーでは光ディスクの 100 倍、1000 倍の記録密度が期待される。一方現時点での PHB 媒体の課題はその温度特性とホールバーニングの効率である。均一幅が不均一幅に比べて十分に狭くなり、ホールの寿命がメモリーとして利用するのに十分長くなるのが極低温領域に限られているため室温動作でのメモリーが実現できない。また多くの PHB 媒体ではホールバーニング効率が低いいため、高速なホール書き込みが難しく、メモリーの高速性が図れないのである。

1.2 ホールバーニングの機構

次にホールバーニングの機構について述べる。

1.2.1 光化学変化による機構¹⁾

この機構では光を吸収する分子やイオンが光化学反応や固体の構造変化を起こすことでホールが生成される。ポルフィリン等の色素を分散したポリマーがこれに該当する。図2において S_g 状態にあった分子 (あるいはイオン) は光の照射によって励起状態の S_e に遷移する。このうちあるものは F_e 状態に移るが、 F_e 状態からは光を放出することで基底状態 F_g に遷移する。S 状態と F 状態では遷移エネルギーが異なるため、吸収スペクトルの $h\omega_s$ の位置にホールが、 $h\omega_F$ の位置にアンチホールができる。ホールの寿命はフォノンとの相互作用によって F 状態から S 状態へ戻るときの戻りやすさと基底状態の障壁 DE の高さに依存するが、数時間~半永続的と長い。

1.2.2 光ポンピングによる機構

励起状態に光で選択的に励起された電子が基底状態に緩和する際に寿命の非常に長いボトルネック準位を経由することで、基底状態の分布が減りその結果としてホールが形成されるものである。これは光によってボトルネック準位に電子を蓄積するので光ポンピングと呼ばれる。希土類の Eu^{3+} イオンや Pt^{3+} イオンをドーブした

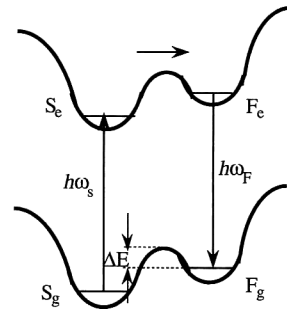


図2 光化学変化によるホールバーニングの機構の概念図.

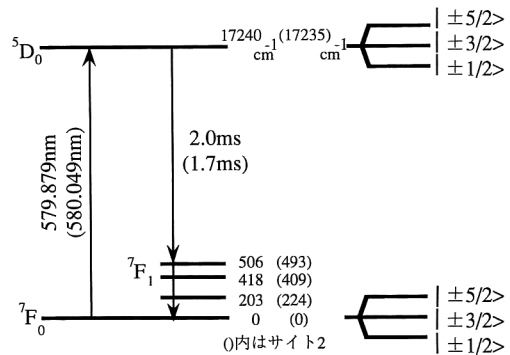


図3 $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$ 結晶の 7F_0 - 5D_0 遷移のエネルギー単位.

結晶のホールバーニングがこれに該当する。ここでは $Eu^{3+} : Y_2SiO_5$ 結晶³⁾ の場合で説明する。

Eu^{3+} の 7F_0 - 5D_0 遷移において基底状態 7F_0 、励起状態 5D_0 はともに一重項でシュタルク準位をもたないが、核四重極相互作用により両準位とも超微細分裂を起こし、核磁気量子数の違いによりそれぞれ 2 重に縮退した 3 つのサブレベルに分裂する (図3)。サブレベル間隔は 30~300 MHz 程度であり不均一幅に比べて十分狭い。このような光学遷移のひとつ (例えば $|\pm 3/2\rangle \rightarrow |\pm 3/2\rangle$ 遷移) に共鳴するような周波数のレーザー光を照射すると、対応する基底状態の分布数が減少し他のサブレベルに移動する。すなわち $|\pm 3/2\rangle$ の分布数が減り、 $|+1/2\rangle$ あるいは $|\pm 5/2\rangle$ の分布数が増える。この結果、励起レーザー光の吸収飽和が起こりこれがホールバーニングとして吸収スペクトルに観測される。ポンピングされたレベルからもとのレベルへ戻るとホールは埋まってしまうので、超微細構造にポンピングされた場合 10 K 以下の極低温でしかホールは観測できない。またホールの寿命も短く、この機構で起きるホールバーニン

グのほとんどが過渡的なものである。現在 Eu^{3+} イオンをドープした結晶のホール寿命が最も長く、低温の $\text{Eu}^{3+} : \text{Y}_2\text{SiO}_5$ で数時間である。

1.2.3 光イオン化による機構¹⁾

レーザー光で励起されたイオンが電子を放出してさらにイオン化することで、ホールが生成されるものである。 Sm^{2+} イオンをドープした結晶のホールバーニングがこの機構である。また最近注目されている Sm^{2+} イオンをドープしたガラスのホールバーニングもこの機構で起きていると考えられている。

サマリウムイオンはホストの結晶あるいはガラスの作製条件によって2価と3価の両方のイオンをドープすることが可能である。このとき図4のように2価のイオンを光で励起した場合、何らかの理由でイオン化して放出された電子が同時に存在する3価のイオンに捕獲される(図4(1)の場合)か、あるいは電子トラップ準位 Z^0 に捕獲される(図4(2)の場合)ことによって、もとの2価のイオンが減少して吸収スペクトルにホールが形成される。これは Sm^{2+} イオンの励起状態の寿命がミリ秒と長い場合、基底状態から励起状態、励起状態からイオン化レベルへの2段階励起が効率よく生じているためだと考えられている。またゲート光⁴⁾と呼ばれる第2の光を照射し、励起状態からイオン化レベルへの励起を効率よく起こすことで、ホールバーニングの効率をあげることも可能である。

この機構で起こったホールバーニングは熱的に安定で、たとえば $\text{Sm}^{2+} : \text{BaClF}^{4)}$ では極低温でホールを形成した後、いったん結晶を室温にして再度極低温に冷やしてもホールを観測することができる。このことは終状態で熱的なイオン化が起こりさえしなければホールが存在し続けることを示している。また逆にこのメカニズムを利用すると強い光を照射して逆イオン化過程を促すこ

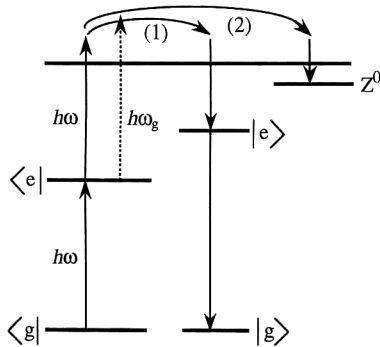


図4 Sm^{2+} イオンの光イオン化の概念図。

とで、ホールを消去する⁴⁾ことも可能である。

2. ホールバーニングホログラフィー

2.1 原理

PHBメモリーの基本的なアイデアは図1(b)に示したように0-1のビット情報を個々のホールに対応させて記録するというデジタルな記録方法である。一方PHB材料は結晶やポリマーなどのホストマトリックスに光と反応するイオンや分子を分散したものであるから、写真のフィルムのような感光材料と捉えることもでき、2次元的空间広がりアナログ的に画像を記録することが可能である。しかも波長多重性をもつ感光材料であるから、PHB媒体の1つの空間領域にホールの多重度だけ画像を多重記録することができる。

PHBメモリーによる画像の記録・再生において技術的に重要なのは、S/Nよく画像を再生することである。ホールバーニングの検出方法として一般的なのは透過スペクトルやルミネセンスを検出する方法である。つまり波長を固定したレーザー光を照射してホールを形成し、その後波長を掃引したレーザー光を照射して透過光をモニターする。ホールの形成されている波長ではすでに吸収飽和が起こっているためにそれ以外のところに比べて光の吸収が小さいためにホールを検出することができる。ルミネセンスの場合も同様でホールの掘られている波長ではルミネセンスの強度が小さいことから検出できる。一方ホログラフィックなホールの形成は2本のビームをPHB媒体で干渉させ、その干渉縞をホールバーニングによって媒体中に記録することで実現する。光の波長を掃引しながら光を照射すると、ホールを書き込んだ波長のときだけ光が媒体中で回折されるため検出することができる。透過スペクトルやルミネセンスでは信号がバックグラウンドに対する変化量として現れるのに対し、ホログラフィックな方法ではバックグラウンドフリーな検出が可能である。図5に透過スペクトルとホログラフィック読み出しで検出したホールスペクトルを示す。S/Nよくホールを検出できることから画像の記録はホログラフィックに行う。またホログラフィックな画像記録をホールバーニングホログラフィーと呼ぶ。

ホールバーニングホログラフィーはETHのWildのグループにより1980年代半ばに画像記録^{5,6)}が実現して以来研究が進められてきた。PHB媒体としてクロリン等の有機色素分子をポリマー(例えばポリビニルブチラル)のホストマトリックスに分散させたものを用いて実験を行っている。また波長多重のほかにシュタルク効果

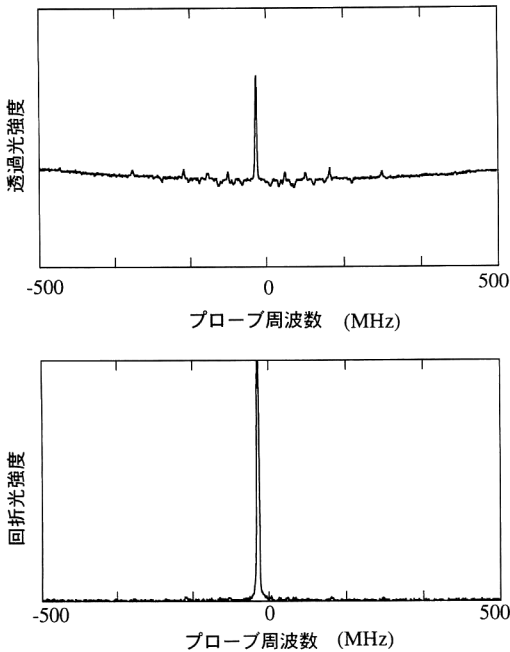


図5 $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ 結晶の $7\text{F}_0-5\text{D}_0$ 遷移の吸収線に形成したホールバーニング。透過スペクトル(上)とホログラフィックな回折信号(下)。

を利用した電場多重^{1,7)}も行っており、6000多重以上の画像記録⁹⁾や、記録画像をビデオレートで再生したアニメーション⁹⁾、ビットマップを記録するデジタルホログラフイーのデモンストレーション^{9,10)}等に成功している。

2.2 実験

ホールバーニングホログラフイーの実験^{5,6,11)}は通常ホログラフイーと同様に行うことができる。実験は図6のようなホログラフイーの配置で行う。必要なものはPHB媒体、レーザー光源、PHB媒体を冷却する冷却装置である。光源の波長は共鳴吸収線に合わせておく。またPHB媒体はPHB温度まで冷却しておく必要がある。

レーザーの出力光は平行光に拡大した後、ビームスプリッターで物体光と参照光に2分割する。物体光は記録物体(ここでは透過マスク)を通過して、クライオスタット中のPHB媒体で参照光と交差する。その結果ホログラムが空間的なホールバーニングとして媒体中に記録される。記録時は波長を固定するか、一定の波長帯域を掃引しながら両ビームを媒体に照射する。記録に要する時間は媒体によって異なる。また異なる画像を記録するにはレーザー光の波長を変えればよい。

ホログラムの再生は物体光を遮断して記録時と同じ波

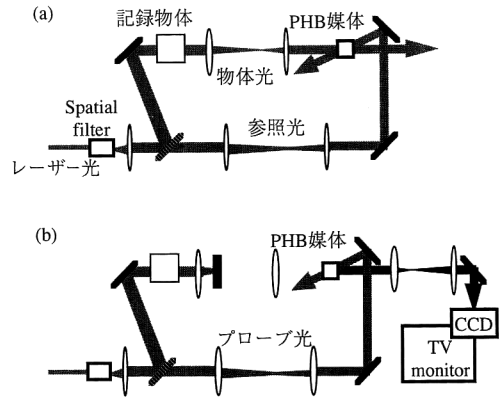


図6 ホールバーニングホログラフイーの実験配置。(a)記録、(b)再生。

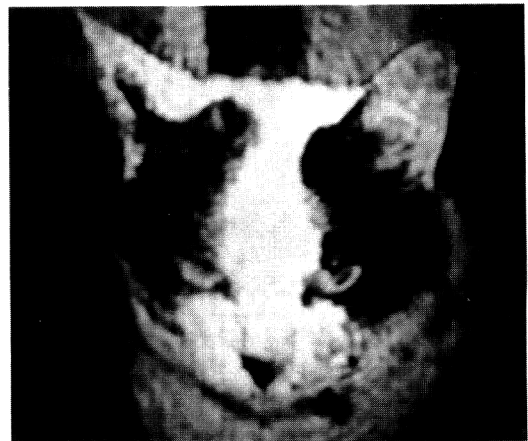


図7 $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ 結晶に記録した画像の例。猫のスライド写真を記録物体として用いた。

長の参照光を読み出し光として媒体に照射する。再生像は回折光として(図6の場合は物体光の方向)現れるので、それぞれCCDカメラで検出する。回折効率は約0.1~1%程度である。

図7は $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ が結晶に記録した画像の例である。階調のある画像¹¹⁾も記録可能である。

2.3 ホログラフィックな応用

以上で画像記録の原理と実験について述べたが、ホールバーニングホログラフイーではホログラフイーの特性とホールバーニングの波長多重性の両方を生かした応用が期待される。ここではホールバーニングホログラフイーの応用についてふれる。

2.3.1 動画記録

先に述べたようにPHB媒体は「波長感度特性の異なるフィルムが波長領域に隙間なく積み重ねられている」

ものと考えられるので、波長という自由度を単なる画像の多重記録に使うだけでなく、時間に対応させることで映画のフィルムのように利用することもできる。実際に Wildらはアニメーションのフレームを有機色素をドープしたポリマーに多重記録して、これをビデオレートで再生することにより PHB のアニメーション映画⁹⁾を実現した。

ところで一般に有機系の PHB 媒体ではホールバーニング効率が低いことが知られており、再生はビデオレートで行っても、実時間で映画を記録することはできなかった。もしホールバーニングの効率が高い媒質を使えば、ビデオレートでの動画記録も実現できるはずであ

る。ホールバーニングの効率が高いのは希土類をドープした結晶であるが、中でも低温 (10 K 以下) における $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ の結晶のホールバーニングの効率は有機色素系 PHB 媒体の 100 倍以上で、1 ms の記録時間で検出に十分なホールを記録することができる¹¹⁾。しかもこの温度での $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ 結晶の不均一幅は 6 GHz (0.02 nm)、均一幅は 1 kHz (1×10^{-8} nm) 以下³⁾で、ホールの多重度は 1000 万にも達する。このような高速ホール書き込み特性と媒体の多重記録特性を利用すると動画の直接記録¹¹⁻¹⁴⁾が可能になる、つまり図 6 においてレーザーの波長を連続的に掃引しながら記録を行うと刻々と変化する物体の動きが記録できる。記録時の波長の掃引幅はもちろん不均一幅を超えては意味がないし、均一幅より十分広くなくてはいけない。再生も同様に読み出し光の波長を掃引しながら照射するだけで動画として再生できる。このとき掃引の速度を遅くすればスローモーションで再生することも可能である。動画記録の一例を図 8¹³⁾に示す。

この動画記録はレーザーの波長を連続的に掃引することで物体の時間変化を記録するので、従来の映画やビデオにあったフレームの概念がない。したがってレーザー波長のチューンだけで映画のあらゆる時間のスチルにもアクセスが可能であり、しかも高速アクセスが可能である。また記録の時間分解能はレーザーの波長掃引の速度で決まり、図 8 のデモンストレーションの場合は 10 ms 程度である。レーザー波長の安定化を行うことでサブマイクロ秒以上の時間分解能の記録が実現でき、高速物体の撮影が期待される。

2.3.2 画像処理

次にホログラフィックな応用の例についてふれる。画像の検索やパターン認識等の処理にフーリエ変換ホログラフィーを利用して高速に行う研究は広く行われてきた。これは計算機による処理では大規模な画像データの処理に時間がかかりすぎるためである。最近ではホログラムを記録するデバイスとして液晶の空間光変調器¹⁵⁾やフォトリフラクティブ材料¹⁶⁻¹⁸⁾などが使われるようになり、処理レートの高速化が進んでいる。

ホログラムの記録デバイスとして PHB 媒体を使うと、そのメモリー性から処理レートを高速化できる。SRI の Kachru のグループでは PHB 媒体を使いフォトンエコーと呼ばれる時間領域ホログラフィーと空間領域ホログラフィーを組み合わせることでナノ秒オーダーのパターン認識や相関演算^{19,20)}を実現し高速プロセッサへの可能性を示した。

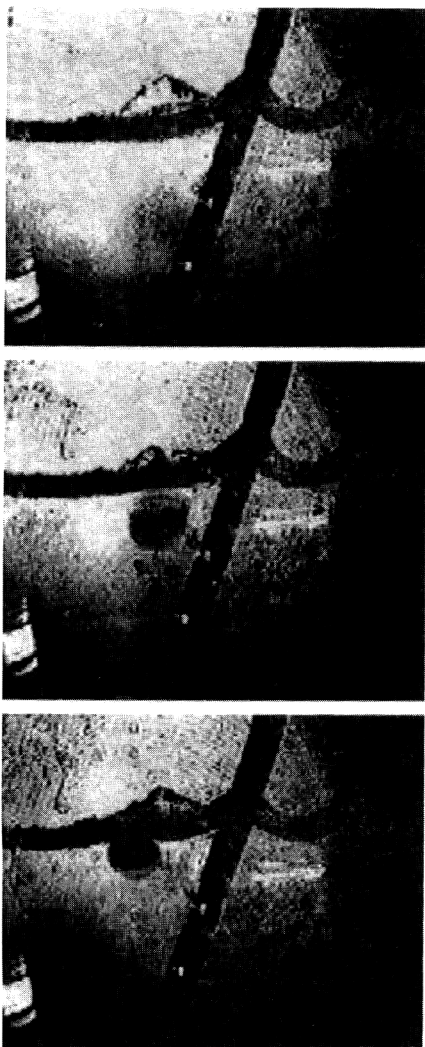


図 8 $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ 結晶にピペットから出る泡の動きを記録した動画のスチル。3 GHz の波長幅に 25 秒間の動画を記録している。

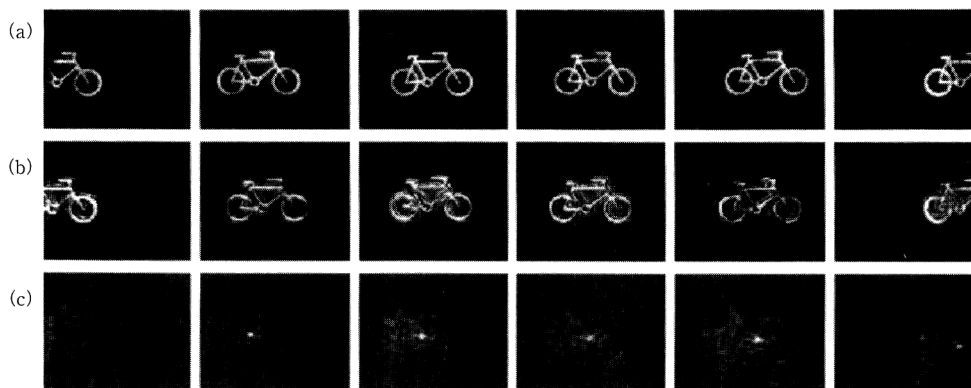


図9 動画像のリアルタイムパターン認識。(a) 記録した動画像(自転車のスライドを横方向に動かしたものの)。(b) 再生動画のスタイル。(c) (b)の動画の中から自転車を抽出。相関スポットが自転車の動きを追いかけている。

また2.3.1で述べた動画記録技術を利用すると記録された画像を時系列に処理することができるので、動画像の直接パターン認識処理²¹⁾も可能である(図9)。

ホログラフィックな画像処理のみならず、PHB媒体に電場多重で記録されたビットマップの光学的な“AND”や“XOR”演算^{9,10)}がWildらのグループで実現され、分子コンピューターへの可能性を示唆する結果が得られている。

3. 今後の展望

ホールバーニングホログラフィーの研究は媒体のもつ高密度、大容量という魅力的な特性によって進められてきた。しかし実用化には解決すべき課題が多く残されている。材料の側面ではその低温度特性であり、遅いホールバーニング速度である。またシステムの側面ではチューナブル、狭線幅のコンパクトなレーザー光源の開発である。

現在Sm²⁺イオンをドーブしたガラス^{22,23)}で室温におけるPHBが報告されている。まだ波長多重度やホールバーニングの速度で他の材料に劣るが室温PHB材料の今後の進展が期待される。また最近では半導体レーザーの短波長化が進み、チューナブルなレーザーも市販されるようになってきた。このように材料開発や周辺システムの開発は、この分野の進展の鍵となるであろう。

最後にホールバーニングホログラフィーにはその波長特性を生かすことで、メモリー以外にも応用の可能性があると考えられる。今後の通信や情報処理技術の進展に貢献する技術の開発を期待したい。

文 献

- 1) W. E. Moerner, W. Lenth and G. C. Bjorklund: "Frequency domain optical storage and other applications of persistent spectral hole-burning," *Persistent Spectral Hole-Burning: Science and Applications*, ed. W. E. Moerner (Springer-Verlag, Berlin, 1988) pp. 251-307.
- 2) W. E. Moerner: "Introduction," *Persistent Spectral Hole-Burning: Science and Applications*, ed. W. E. Moerner (Springer-Verlag, Berlin, 1988) pp. 1-15.
- 3) R. Yano, M. Mitsunaga and N. Uesugi: "Nonlinear laser spectroscopy of Eu³⁺: Y₂SiO₅ and its application to time-domain optical memory," *J. Opt. Soc. Am. B*, **9** (1992) 992-997.
- 4) A. Winnacker, R. M. Shelby and R. M. Macfarlane: "Photon-gated hole burning: a new mechanism using two-step photoionization," *Opt. Lett.*, **10** (1985) 350-352.
- 5) A. Renn and U. P. Wild: "Spectral hole burning and hologram storage," *Appl. Opt.*, **26** (1987) 4040-4042.
- 6) C. D. Caro, A. Renn and U. P. Wild: "Spectral hole-burning: applications to optical image storage," *Phys. Chem.*, **93** (1989) 1395-1398.
- 7) U. P. Wild, S. E. Bucher and A. Burkhalter: "Hole burning, Stark effect, and data storage," *Appl. Opt.*, **24** (1985) 1526-1529.
- 8) E. S. Maniloff, S. B. Altner, S. Bernet, F. R. Graf, A. Renn and U. P. Wild: "Recording of 6000 holograms by use of a spectral hole burning," *Appl. Opt.*, **34** (1995) 4140-4147.
- 9) U. P. Wild, S. Bernet, B. Kohler and A. Renn: "From supermolecular photochemistry to the molecular computer," *Pure Appl. Chem.*, **64** (1992) 1335-1342.
- 10) U. P. Wild, C. D. Caro, S. Bernet, M. Traber and A. Renn: "Molecular computing," *J. Lumin.*, **48 & 49** (1991) 335-339.
- 11) H. Sasaki, K. Karaki, M. Mitsunaga and N. Uesugi: "Holeburning holography in Eu³⁺: Y₂SiO₅ crystal," *Optical Society of America, Washington, D. C.* (1994), paper FD2-1.
- 12) M. Mitsunaga, N. Uesugi, H. Sasaki and K. Karaki: "Holographic motion picture by Eu³⁺: Y₂SiO₅," *Opt. Lett.*, **19** (1994) 752-754.
- 13) H. Sasaki, K. Karaki, M. Mitsunaga and N. Uesugi: "Holographic motion picture: theory and observations," *J. Lumin.*, **64** (1995) 273-281.

- 14) 光永正治, 上杉 直, 佐々木浩子, 唐木幸一: “ホールバーニングによるホログラフィック動画記録”, 応用物理, **64** (1995) 250-254.
- 15) E. C. Tam, F. T. S. Yu, D. A. Gregory and R. D. Juday: “Autonomous real-time object tracking with an adaptive joint transform correlator,” *Opt. Eng.*, **29** (1990) 314-320.
- 16) D. M. Pepper, J. AuYeung, D. Fekete and A. Yariv: “Spatial convolution and correlation of optical fields via degenerate four-wave mixing,” *Opt. Lett.*, **3** (1978) 7-9.
- 17) J. O. White and A. Yariv: “Real-time image processing via four-wave mixing in a photorefractive medium,” *Appl. Phys. Lett.*, **37** (1980) 5-7.
- 18) N. Hammp, R. Thoma, D. Oesterhelt and C. Brauchle: “Biological photochrome bacteriorhodopsin and its genetic variant Asp96 → Asn as media for optical pattern recognition,” *Appl. Opt.*, **31** (1992) 834-841.
- 19) E. Y. Xu, S. Kroll, D. L. Huestis, R. Kachru and M. K. Kim: “Nanosecond image processing using stimulated photon echoes,” *Opt. Lett.*, **15** (1990) 562-564.
- 20) X. A. Shen and R. Kachru: “High-speed pattern recognition by using stimulated echoes,” *Opt. Lett.*, **17** (1992) 520-522.
- 21) H. Sasaki and K. Karaki: “Direct pattern recognition of a motion picture by hole-burning holography of $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$,” *Appl. Opt.* **36** (1997) 1742-1746.
- 22) K. Hirao, S. Todoroki, D. H. Cho and N. Soga: “Room-temperature persistent hole burning of Sm^{2+} in oxide glasses,” *Opt. Lett.*, **18** (1993) 1586-1587.
- 23) N. Kodama, S. Hara, Y. Inoue and K. Hirao: “Room-temperature persistent spectral hole burning of Sm^{2+} in disordered fluorite-type single crystals a- MALnF_6 ($M = \text{Ca, Sr}$; $A = \text{Na, K, Rb}$; $\text{Ln} = \text{Y, La}$),” *J. Lumin.*, **64** (1995) 181-187.

(1997年2月26日受理)