

フォトリフラクティブ光学の 3 次元顕微光学への応用 ——多層記録型光メモリーと 4π 共焦点顕微鏡——

川 田 善 正

フォトリフラクティブ結晶は、数十 mW の小さな出力のレーザーで簡単に非線形効果を生ずる媒質として、これまでいろいろな応用に用いられてきた。フォトリフラクティブ結晶を用いた応用は、主に 2 つに大別することができる。一つは、位相共役波の発生や光増幅など、フォトリフラクティブ結晶中での光波結合を利用したものである。これまで、単一の光ファイバーによる画像伝送、光で光を直接増幅する光トランジスタなどが提案されてきた^{1,2)}。これらの応用は、従来の光学素子では実現できない、全く新しい機能を実現することが可能である。

フォトリフラクティブ結晶のもう一つの応用は、フォトリフラクティブ結晶中に生じる屈折率変化を、光メモリーの記録媒体として利用するものである。古くから、データを結晶内にホログラムとして記録し、再生する方法が提案され、研究が進められている。この光メモリーでは、厚みのある記録材料を用い、データを媒体の表面だけでなく、3次元空間にデータを記録するために、データの記録容量を飛躍的に向上させることができる。

これらのフォトリフラクティブ結晶の応用は、古くから研究され、実用化が期待されているが、いまだに実用化にいたっていない。

本報告では、フォトリフラクティブ結晶を、試料の微小な 3次元構造を観察可能な顕微光学に応用することによって、これまでにない新しい応用の可能性を紹介する。ビットデータを記録媒体中に多層に記録し再生する光メモリー³⁻⁸⁾と、自動的に波面収差を補正可能な 4π 共焦点顕微

鏡⁹⁾について述べる。

1. 多層記録型の光メモリー

フォトリフラクティブ結晶をデータの記録材料に用いれば、結晶の表面だけでなく、記録媒体の内部までデータを記録することが可能である。なぜなら、フォトリフラクティブ結晶は、光によって屈折率が変調され、吸収率は大きくないので、結晶の内部にまで情報を記録することができるからである。多層に記録したデータを再生するには、試料の 3次元構造を観察可能な顕微鏡光学系を利用すればよい。100 層のビットデータを記録・再生することができれば、現在の光メモリーの 100 倍の記録密度を実現することができる。

ビットデータを多層に記録する光メモリーは、1) ビットを 1 つずつ独立に読み出すためコヒーレント(スペックル)ノイズの影響を受けない、2) 非線形効果を容易に利用できる、3) 現在の光メモリーの走査系、ピックアップ光学系などの技術を利用可能、等の多くの特長を有する。

図 1 に、フォトリフラクティブ結晶を用いた 3次元光メモリーの記録および再生光学系を示す^{4,5)}。データの記録には、通常の見視野の対物レンズを用いて、レーザー光をフォトリフラクティブ結晶中の一点に集光する。光強度の大きな光スポット付近でのみ、屈折率を変化させ、屈折率変化として、ビットデータを記録する。シャッターの開閉と同期して、集光スポットを 3次元的に走査することにより、記録メディア中に 3次元的にビットデータを記録する。

データは局所的な屈折率変化として記録されるので、データの再生には、位相差顕微鏡光学系を用いる。データを記録した結晶を白色光で照明し、位相差対物レンズを通して、CCD カメラで各層を観察する。CCD で観察するので、

静岡大学工学部 (〒432-8561 浜松市城北 3-5-1)
E-mail: kawata@eng.shizuoka.ac.jp

*平成 8 年度光学論文賞受賞記念解説は、慣例では「光学」第 26 巻第 8 号に掲載されることになっておりました。記事の掲載が大幅に遅れたこととお詫びいたします。(「光学」編集委員長 伊東一良)

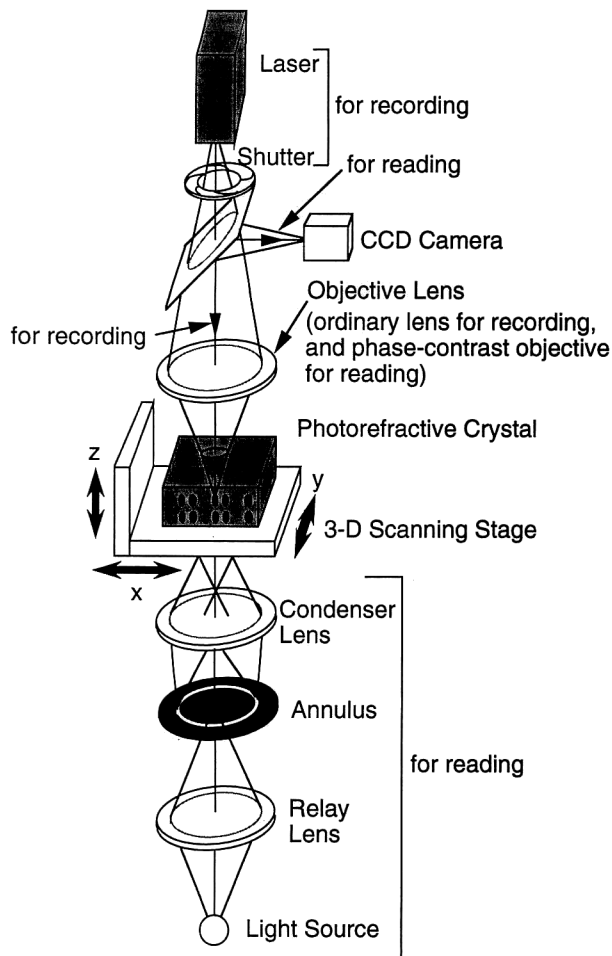


図1 3次元光メモリの記録・再生光学系。

面内のデータを一度に再生することが可能である。このほかにも、レーザー走査型の共焦点顕微鏡光学系などもデータの再生に用いることができる。

フォトフラクティブ結晶には、ニオブ酸リチウム (LiNbO_3)、チタン酸バリウム (BaTiO_3)、珪酸ビスマス ($\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$) など多くの種類があるが、 LiNbO_3 結晶は、結晶軸と入射面との関係や複屈折変調などから、光メモリの記録媒体として最適な結晶のひとつである。この結晶では、フォトフラクティブ効果の感度を向上させるために鉄(Fe)イオンをドーピングしたものを用いている。

2. LiNbO_3 結晶を用いた多層記録型光メモリー

図2に、Feイオンをドーピングした LiNbO_3 結晶にビットデータを記録するメカニズムを示す。結晶内にレーザーを集光すると、光強度に比例して、ドナーレベルである Fe^{2+} イオンから電子が伝導体に励起される。このとき、 Fe^{2+} イオンの密度を N_d とすると、次のレート方程式が成り立つ。

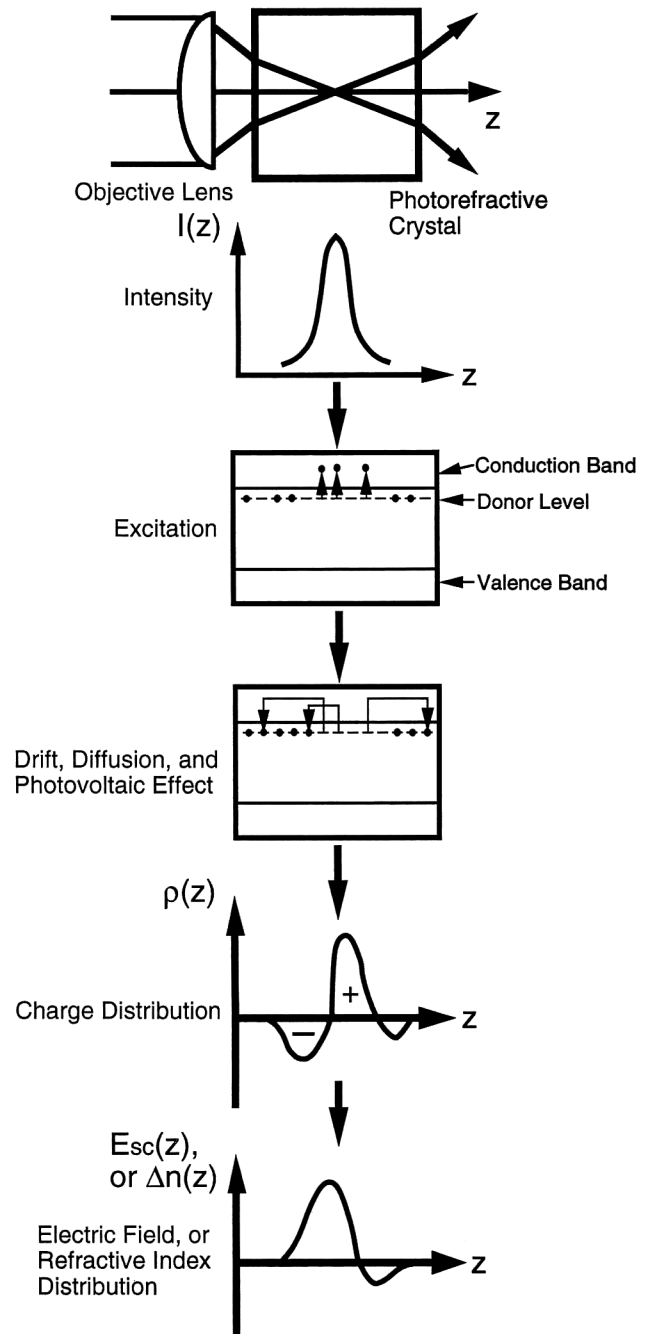


図2 フォトリフラクティブ結晶へのデータ記録のメカニズム。

$$\frac{\partial N_d}{\partial t} = \frac{n}{\tau} - \left(\frac{\alpha x I}{q L_{ph}} + \beta \right) \frac{N_d}{N_{md}} \quad (1)$$

ここで、 n は伝導体内の電子の密度、 q は電気素量、 τ は伝導体における電子の寿命、 α は吸収係数、 x は量子効率、 I は結晶に入射した光の強度分布、 L_{ph} は光起電力効果により移動する電子の平均自由行程、そして β はドナーレベルから伝導体へ熱的に励起される電子の割合を表す。 N_{md} は、結晶全体におけるドナーレベルの平均密度である。

ドナーレベルに励起された電子は、結晶内に形成された電場 E_{sc} によるドリフトと、光起電力、拡散によって結晶内

を移動する。結晶内を流れる電流密度を \mathbf{J} とすると、

$$\mathbf{J} = q\mu n \mathbf{E}_{sc} + qD\nabla n + \alpha kI \frac{N_d}{N_{md}} \mathbf{e}_c \quad (2)$$

となる。右辺の第1項目は、電場 \mathbf{E}_{sc} によるドリフト電流を表す。 μ は電子の移動度である。第2項目は、拡散による電流を表し、 D が拡散係数である。第3項目は、光起電力による電流を表す。 \mathbf{e}_c は、LiNbO₃ 結晶軸の方向を示す単位ベクトルであり、これは、光起電力電流が結晶軸の方向にのみ流れることによる。

また、結晶内を流れる電流 \mathbf{J} は、次の連続の式をみたす必要がある。

$$\frac{1}{q} \nabla \cdot \mathbf{J} = \frac{\partial n}{\partial t} + \frac{\partial N_d}{\partial t} \quad (3)$$

伝導体内を移動した電子は、空のドナーレベルに再結合する。その結果、結晶内に電荷分布が生じ、電場分布が形成される。電場分布 \mathbf{E}_{sc} は、ポアソンの方程式を用いて、

$$\mathbf{E}_{sc} = -\frac{q}{4\pi\epsilon_r\epsilon_0} \nabla \int_v \frac{N_{md} - N_d - n}{|x' - x|} dx' \quad (4)$$

で与えられる。ここで、 ϵ_r は LiNbO₃ 結晶の比誘電率、 ϵ_0 は真空中の誘電率である。結晶内の電場分布が求まれば、ポッケルス効果による屈折率変化の式、

$$\Delta n(x) = -\frac{E_{sc}(x)}{2n_0} \mathbf{e}^* [\epsilon_r] [r] [\epsilon_r] \mathbf{e} \quad (5)$$

を用いて、結晶内の屈折率分布 $\Delta n(x)$ を求めることができる。 \mathbf{e} は読み出し光の偏光ベクトル、 $[r]$ は電気光学テンソルである。

式(1)~(4)を用いて、空間電場分布 \mathbf{E}_{sc} を求めれば、結晶内に形成される屈折率分布を求めることができる。しかしながら、式(1)~(4)から解析的に \mathbf{E}_{sc} を求めることは困難である。そのため、これまでは以下のような近似が用いられてきた。

- 1) 定常状態を仮定する。つまり、 $\mathbf{J} = 0$ 、 $\partial n / \partial t = 0$ 、 $\partial N_d / \partial t = 0$ とする。
- 2) 光強度のコントラストはあまり高くない、つまり、 $N_d / N_{md} = 1$ とする。

このような近似は、データをホログラフィックに記録する場合にはよい結果を与えるが、レーザーを集光してピットデータを記録する場合には適当でない。結晶全体で $\mathbf{J} = 0$ とは限らず、また集光スポットの強度は非常に大きいので、 $N_d / N_{md} = 1$ を仮定することもできない。

そこで、式(1)~(4)を近似を用いずに、数値解析的に計算する手法を開発した。この手法では、時間を離散化して、式(1)~(4)を漸化式として解を求める。離散化するときの時間間隔を Δt とすると、レーザー光を入射してから $t_{m+1} (= (m+1)\Delta t)$ 秒後の電子密度 $n(t_{m+1})$ とドナーレ

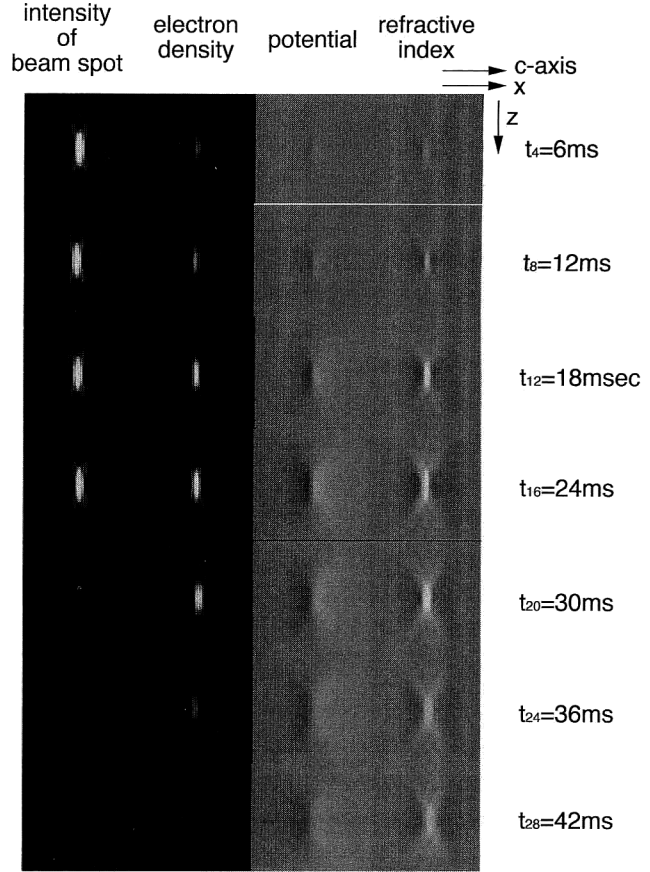


図3 LiNbO₃ 結晶内に誘起される屈折率分布の解析結果。

ベルの密度 $N_d(t_{m+1})$ は、 $t_m (= m\Delta t)$ 秒後の電子密度とドナーレベルの密度を用いて、式(1)、(3)からそれぞれ、

$$n(t_{m+1}) = \Delta t \frac{1}{q} \nabla \cdot \mathbf{J}(t_m) + n(t_m) - \Delta t \left\{ \frac{n(t_m)}{\tau} - \left(\frac{\alpha x I}{qL_{ph}} + \beta \right) \frac{N_d(t_m)}{N_{md}} \right\} \quad (6)$$

$$N_d(t_{m+1}) = \Delta t \left\{ \frac{n(t_m)}{\tau} - \left(\frac{\alpha x I}{qL_{ph}} + \beta \right) \frac{N_d(t_m)}{N_{md}} \right\} \quad (7)$$

と表される。

既知の値 $n(t_0) = 0$ 、 $N_d(t_0) = N_{md}$ 、 $\mathbf{J}(t_0) = 0$ から式(6)、(7)を用いて Δt 秒後の値 $n(t_1)$ 、 $N_d(t_1)$ を求める。 $\mathbf{J}(t_1)$ は式(2)、(4)から求めることができる。

図3に、開発した解析手法を用いて、 y 軸カットの LiNbO₃ 結晶内に、屈折率分布が形成される過程を解析した結果を示す。1番左の列は、結晶に入射したビームスポットの形状を表す。これは、開口数0.8の対物レンズによって形成される集光スポットの x - z 断面である。ビームスポットは、24 ms 入射させて、その以降はシャッターを閉じ、ビームをカットしている。左から2番目の列は、伝導体内の電子密度の時間変化を表している。光の入射とともに、伝導体内の電子が増え、光がカットされると電子の数が減

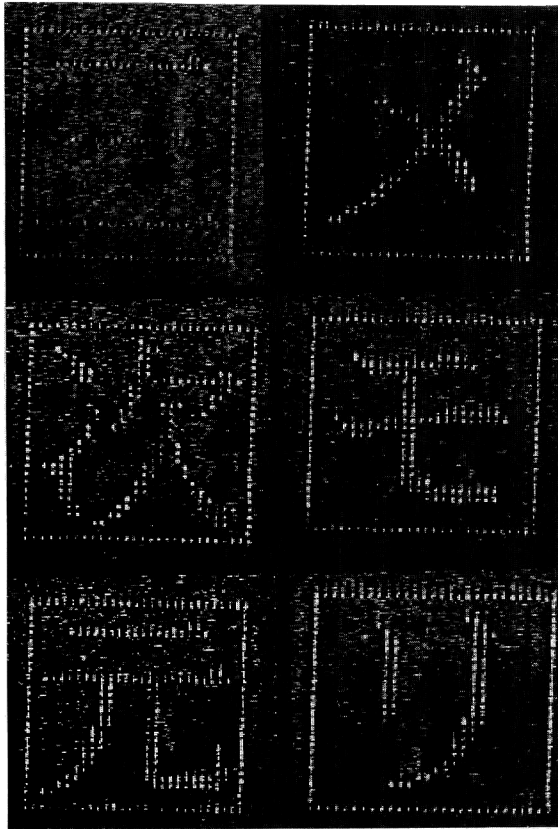


図4 LiNbO₃ 結晶への多層記録・再生の実験結果. 6層のデータを記録・再生した(面内のデータ間隔4 μm, 層間隔15 μm).

少していくことがわかる. 3番目の列は, 結晶内の電荷分布によって形成されたポテンシャルの分布を表し, 最後の列は, それによって形成された屈折率分布の形状を表す. 集光スポットによって, 屈折率分布が徐々に誘起される様子が観察できる. 屈折率分布は, 集光スポット付近に局在しており, 光軸方向の前後に広がっていないことがわかる. またビームを切った後, 電子密度はゼロになるが, 屈折率分布はビームを切った後でもゼロにならず, データを記録できることがわかる. これらの計算では, 波長488 nm, 集光スポットのピーク値を500 mW/cm²とし, 離散化する時間間隔を1.5 msとした.

3. LiNbO₃ 結晶への多層記録の実験結果

図4に多層記録の実験結果を示す. 6層のデータを記録し, 図1に示した位相差顕微鏡を用いて読み出した結果である. 枠の中に“三次元メモリ”の文字を記録した. 光軸方向のデータ間隔は15 μm, 面内のデータ間隔は4 μmである. それぞれ層のデータが他の層からのクロストークなく読み出せていることがわかる.

4. BSO 結晶を用いた3次元光メモリー

Bi₁₂SiO₂₀ (BSO) 結晶もフォトリフラクティブ結晶とし

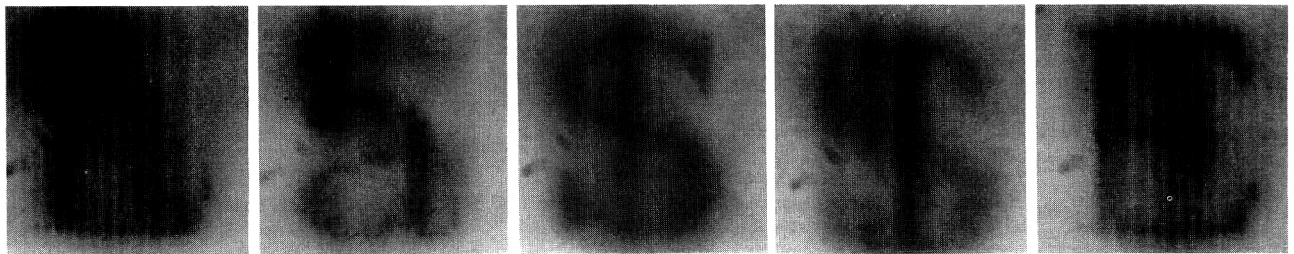
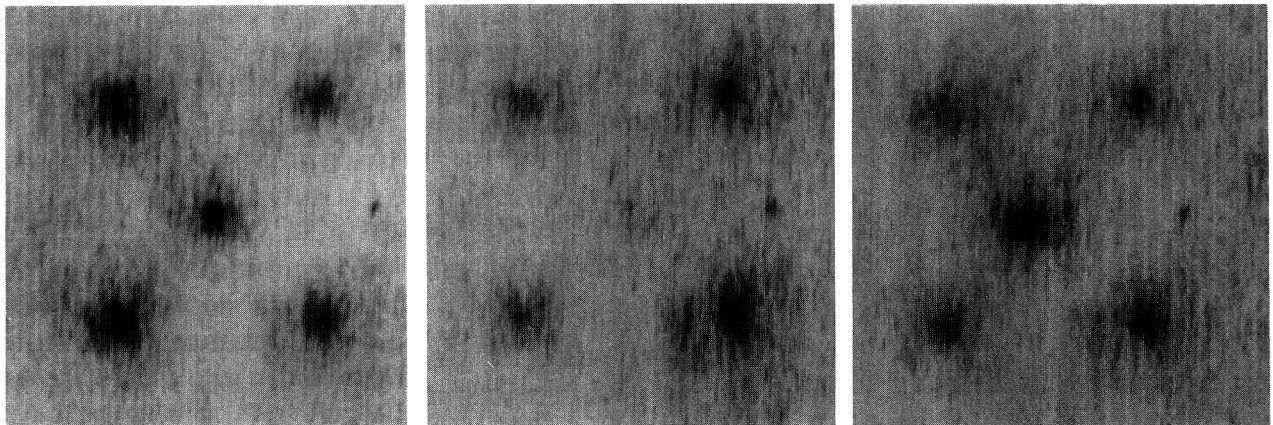


図5 BSO 結晶への多層記録・再生の実験結果. 5層のデータを記録・再生した(面内のデータ間隔5 μm, 層間隔30 μm).



(a)

(b)

(c)

図6 光学的なデータ消去の実験結果. (a) 記録したデータ, (b) データの消去結果, (c) データの再記録結果.

て非常によく用いられているもののひとつである。BSO 結晶は、感度が高く、応答速度が速いので、高速の光メモリーを実現できる可能性をもつとともに、容易に大面積の結晶も作製できるので、大量生産しやすいなどの特長をもっている。

BSO 結晶は、フォトリフラクティブ効果だけでなく、フォトクロミック効果も示すことが報告されている。BSO 結晶のフォトクロミック効果を用いてデータの記録・再生に成功した⁷⁾。

図5に多層に記録したデータの記録・再生結果を示す。図中の黒い点が、アルゴン・イオンレーザーを照射したことにより、フォトクロミック効果で着色した部分である。第1層目から5層目まで、それぞれビット列で“L”, “a”, “S”, “I”, “E”と記録した。各記録層の層間隔は30 μmである。それぞれの層のデータが、他の層からの影響があまりなく、読み出せていることがわかる。面内のデータ間隔は5 μmである。データ記録には、波長488 nm、強度0.7 mWのレーザー光を用いた。

5. BSO 記録データの選択的な消去

記録したデータにヘリウム・ネオンレーザーを照射することにより、データを消去することに成功した。図6に実験結果を示す。図6(a)にはBSO結晶中に記録したデータを示す。これらのビットデータのうち、真ん中の着色した部分のみに、ヘリウム・ネオンレーザーを照射した。図6(b)は、0.05 mWのヘリウム・ネオンレーザーを数十分照

射後のデータを示す。記録したデータの中で、ヘリウム・ネオンレーザーを照射した部分のみの着色が、選択的に消去されていることがわかる。

図6(c)に、消去した部分にアルゴン・イオンレーザーを照射し、再び1ビットデータを記録した結果を示す。データを消去した部分に、もう一度データを記録する、つまり着色させることが可能であることがわかる。

6. 位相共役波を用いた4π共焦点顕微鏡

共焦点顕微鏡は、レーザービームを試料中の1点に集光して照射し、散乱光を点検出器で検出するレーザー走査型の光学顕微鏡である。この顕微鏡は、厚い試料の3次元の内部を観察可能であるという特長を有している。

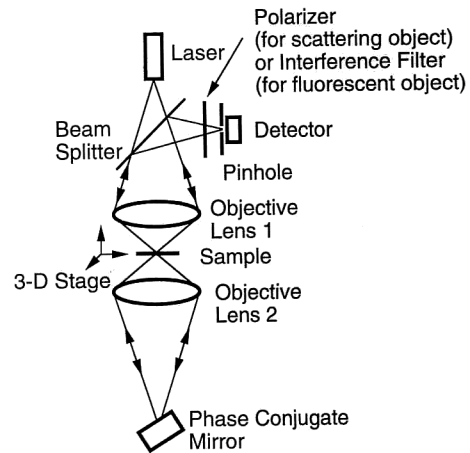


図7 位相共役波を用いた4π共焦点顕微鏡。

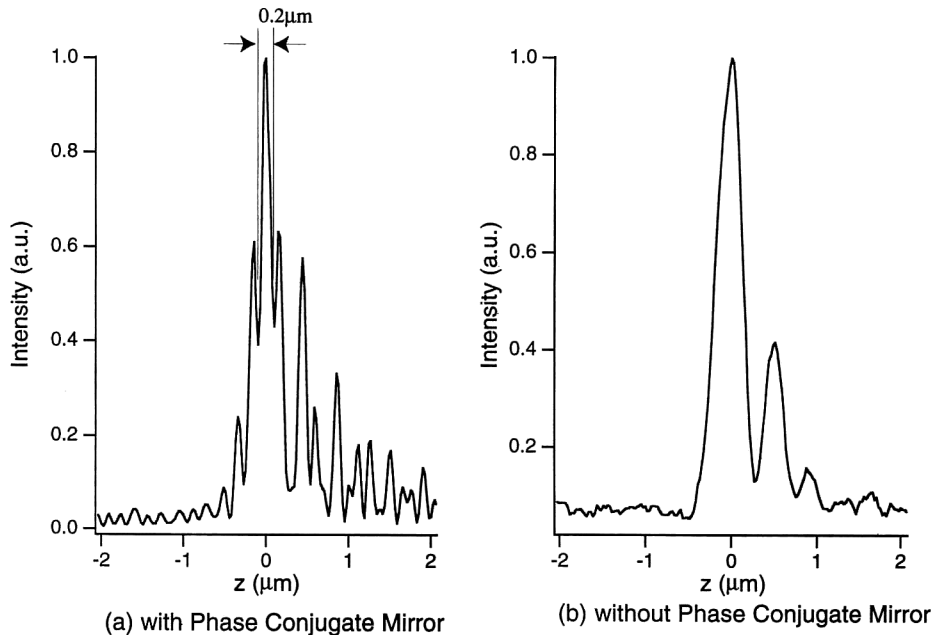


図8 直径40 nmの金微粒子に対する光軸方向の応答。(a) 4π共焦点光学系、(b) 従来の共焦点顕微鏡光学系。

最近、共焦点顕微鏡の奥行き方向の分解能を向上させるために、Hell らによって 4π 共焦点顕微鏡が考案された。 4π 共焦点顕微鏡は、試料を挟んで向い合わせの 2 個の対物レンズを用い、試料の両側から最大 4π の立体角で照明光を収束させ、散乱光を同じ立体角で検出するものである。これにより、奥行き方向の空間分解能を光の回折限界近くまでに大きく向上させることができる。

位相共役鏡を用いれば、非常に簡単に 4π 共焦点光学系を実現することが可能である。図 7 に位相共役鏡を用いた 4π 共焦点顕微鏡の光学系を示す⁹⁾。2 つ目の対物レンズの後に位相共役鏡をおき、セルフポンプにより生じた位相共役波を後退波として用いる。

図 7 の光学系では、位相共役波を用いているので、前進波と後退波の集光点の位置が自動的にかつ完全に一致し、2 つ目の対物レンズの調整は全く不要である。また、収束光が試料を透過することにより生じる波面収差も自動的に補正され、厚い試料をスライスすることなく観察することが可能である。

図 8(a) に位相共役波を用いた 4π 共焦点顕微鏡の実験結果を示す。この実験結果は、直径 40 nm の金微粒子からの散乱光を位相共役鏡で測定した際の光軸方向の応答である。光源には、波長 514.5 nm のアルゴン・イオンレーザーを用いているので、光軸方向に 0.2 μm の幅までスポットが鋭くなっている。図 8(b) は同じ試料を従来の共焦点顕微鏡で観察したときの結果である。 4π 共焦点顕微鏡では、光軸方向の分解能が向上していることがわかる。

フォトリフラクティブ結晶を 3 次元顕微光学に導入することにより、新しい応用が可能であることを示した。まず、 LiNbO_3 結晶と $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ 結晶を用いた、ビット記録型の 3 次元光メモリーについて紹介した。フォトリフラクティブ結晶を用いた 3 次元光メモリーは、書き換え可能であるため、より実用性が高い。特に BSO 結晶においては、1 ビットずつのデータ書き換えが可能であるので、将来有望であると考えられる。今後は、 LiNbO_3 結晶においても、1 ビットずつデータを書き換える手法を検討していく。

フォトリフラクティブ結晶を共焦点顕微鏡光学系に導入することにより、非常に簡単に高分解能化が実現でき、ま

た、これまでは不可能であった収束光が試料を透過する際に生じる波面収差の補正も可能であることを示した。

この他にも、光のロスなく位相分布を可視化する方法¹⁰⁾、ダブルパス顕微鏡光学系¹¹⁾ など多くの応用が提案されている。これらの応用は、フォトリフラクティブ光学と 3 次元顕微光学の融合をめざすものであり、これまでにない新しいフォトリフラクティブ結晶の応用が期待できる。

文 献

- 1) S. Kawata and Y. Kawata: "Image coupling and amplification by two-wave coupling," *Optical Computing in Japan*, ed. S. Ishihara (NOVA Science Publishers, New York, 1990) pp. 249-256.
- 2) Y. Kawata, S. Kawata and S. Minami: "Image amplification with local addressing by two-wave coupling in a $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ crystal by application of direct-current voltage," *J. Opt. Soc. Am. B*, **7** (1990) 2362-2368.
- 3) S. Kawata, T. Tanaka, Y. Hashimoto and Y. Kawata: "Three-dimensional confocal optical memory using photorefractive materials," *Proc. SPIE*, **2042** (1993) 314-325.
- 4) Y. Kawata, H. Ueki, Y. Hashimoto and S. Kawata: "Three-dimensional optical memory with a photorefractive crystal," *Appl. Opt.*, **34** (1995) 4105-4110.
- 5) H. Ueki, Y. Kawata and S. Kawata: "Three-dimensional optical bit memory recording and reading with a photorefractive crystal: Analysis and experiment," *Appl. Opt.*, **35** (1996) 2457-2465.
- 6) Y. Kawata, R. Juskaitis, T. Tanaka, T. Wilson and S. Kawata: "Differential phase-contrast microscope with a split detector for the readout system of a multilayered optical memory," *Appl. Opt.*, **35** (1996) 2466-2470.
- 7) Y. Kawata, T. Tanaka and S. Kawata: "Randomly accessible, multilayered optical memory with a $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ crystal," *Appl. Opt.*, **35** (1996) 5308-5311.
- 8) T. Wilson, Y. Kawata and S. Kawata: "Readout of three-dimensional optical memories," *Opt. Lett.*, **21** (1996) 1003-1005.
- 9) Y. Kawata, K. Fujita, O. Nakamura and S. Kawata: "4Pi confocal optical system with phase conjugation," *Opt. Lett.*, **21** (1996) 1415-1417.
- 10) Y. Kawata and S. Kawata: "Visualization of a phase object by two-wave coupling in a photorefractive bismuth silicon oxide crystal," *Opt. Rev.*, **3** (1996) 124-127.
- 11) O. Nakamura, K. Fujita, Y. Kawata and S. Kawata: "Double-pass confocal absorption microscope with a phase conjugation mirror," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **35** (1996) L852-L853.

(1998 年 4 月 24 日受理)