

## 論文の内容の要旨

論文題目 フォトリフラクティブ結晶を用いた不揮発性ホログラフィックメモリーの研究

氏名 藤村 隆史

ホログラフィックメモリーは、多重記録、並列再生により大容量記憶・高速アクセスを可能にする次世代のメモリーシステムとして期待されている。特に記録媒体にフォトリフラクティブ結晶を用いると、書き換え可能なメモリーシステムを構築することができる。しかしフォトリフラクティブ結晶には、再生時に記録したホログラムが消えていくという再生劣化の問題がある。この現象は、再生時に照射する読み出し光が記録光と同様に記録媒体の感度波長領域内にあるため、記録時に形成した電荷分布を一様に再分布させてしまうことに起因している。

本研究は、このフォトリフラクティブ結晶における再生劣化の問題を解決し、再生時にも情報が消去されることのない不揮発性ホログラフィックメモリーを実現することを目的としている。特に本研究ではこの問題に対し、2つのアプローチで解決を試みた。ひとつは記録媒体の感度領域そのものをコントロールし、記録時と再生時で記録波長における吸収を変化させ電荷の再分布を制御しようというもの（Ru,Fe:LiNbO<sub>3</sub> 結晶における不揮発性ホログラム記録）で、もうひとつは記録と再生の波長を変え、再生を記録媒体の感度のない領域で行おうというもの（広帯域光源を用いたホログラムの非破壊再生法）である。以下では、これらの二つの研究成果について概要を述べる。

### 1. Ru,Fe:LiNbO<sub>3</sub> 結晶における 不揮発性ホログラム記録

再生時にも消えない不揮発性ホログラムの記録は、2色書き込み法によって実現することができる。2色書き込み法とは、信号光、参照光の他に、ゲート光と呼ばれる第3の光を用いて記録媒体の吸収を誘起し、その誘起された吸収を用いて電荷の再分布を行うというものである。本研究ではこの方法が利用可能な高感度・高性能な不揮発性ホログラム記録材料の開発を目標に、材料開発を行った。特に

Ru イオンの高感度ドーパントとしての性能を期待し、Ru と Fe を添加した LiNbO<sub>3</sub> 結晶 (Ru,Fe:LiNbO<sub>3</sub> 結晶) において光学特性ならびに不揮発記録特性の評価を行った。以下に本研究において明らかになったことを簡潔にまとめる。

(a) Ru,Fe: LiNbO<sub>3</sub> における結晶の初期状態と光誘起吸収の起源

Fe 添加量の異なるいくつかの結晶において吸収測定、光起電力電流測定を行った。その結果、Ru,Fe:LiNbO<sub>3</sub> 結晶では、Ru が深い準位、Fe が浅い準位を形成し、Fe は酸化されほぼ Fe<sup>3+</sup> の状態で存在することがわかった。この結晶に青色領域の光を照射すると、700 nm 以下の可視光領域に室温で安定な吸収が誘起される。この吸収は少なくともふたつ以上の起源からなり、Ru から Fe へと電子が移動することによって生じる吸収変化の他に、Ru の Three-valence state モデルに起因すると思われる別の吸収の寄与があることがわかった。また Fe を高濃度 (Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:0.15 wt.%) 添加した結晶では、従来の 2 準位モデルでは説明できない光誘起吸収の光強度依存性も観測された。これは浅い準位を形成する Fe が高濃度に添加されていることで Fe-Fe 間および Fe-Ru 間の原子間距離が短くなって電子のトンネリング (イオン間の直接遷移) が起こり、室温においても Fe 準位に励起された電子が Ru へと緩和するようになったことが原因と考えられる。実際、Fe<sup>2+</sup> に由来する光誘起吸収の緩和プロファイルは拡張指数関数 (stretched exponential function) でよく表すことができ、これは伝導帯を介さないイオン間の直接遷移による緩和モデルにおける理論的な予測と一致する。

(b) ホログラム記録特性と不揮発性ホログラムの記録メカニズム

Ru 添加の LiNbO<sub>3</sub> 結晶は、従来の不揮発記録材料と比べ定着時のホログラム消去率が小さく、効率的に不揮発性ホログラムを記録できるという利点をもつ (図 1)。特に Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を 0.15 wt.%, RuO<sub>2</sub> を 0.18 wt.% 添加した Ru,Fe:LiNbO<sub>3</sub> 結晶では、記録波長 633 nm、ゲート波長 458 nm において記録感度 0.12cm/J、ダイナミックレンジ ( $M/\#$ ) 0.53@0.5 mm、ゲート効率 200、定着率 0.94 という従来にない優れたホログラム記録特性を得ることができた。

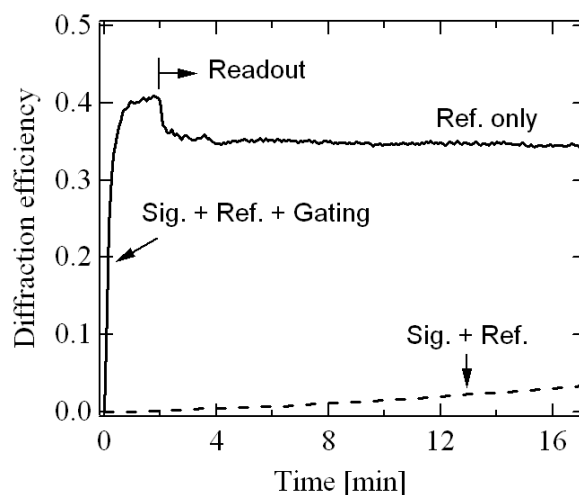


図1. 2色書き込み時の回折効率の時間プロファイル (実線)。点線はゲート光を用いない場合の回折効率の様子を示している。記録光のトータルの光強度、ゲート光の光強度はそれぞれ 18 W/cm<sup>2</sup>, 5.4 W/cm<sup>2</sup>。

ホログラム記録特性と光誘起吸収の相関関係を見ることで、この結晶の不揮発性ホログラムの記録過程には、Fe と Ru の 2 準位モデルが強く関与していることがわかった。また先に述べたイオン間の直接遷移によって従来の 2 準位モデルでは説明できないホログラム記録特性の絶対光強度依存性が生じることも明らかとなった。従来の 2 準位モデルでは一般的に添加量を増やせば光誘起吸収が増加して記録特性は改善すると考えられてきたが、実際はイオンを高濃度に添加すると室温での緩和が顕著となって、逆に光誘起吸収が起こりにくくなることがわかった。このような知見は本研究において初めて明らかになったことであり、Ru, Fe:LiNbO<sub>3</sub> 結晶以外の一般的なダブルドープ結晶においても添加イオン濃度の最適化などを行う際には非常に重要な知見となる。

## 2. 広帯域光源を用いたホログラムの非破壊再生法

体積ホログラムを記録媒体に感度のない記録時とは異なる長波長の光で非破壊的に再生する方法として、広帯域光源を用いたホログラム再生法を提案した。特に多色光によるホログラム再生理論の構築を行い、本手法をホログラフィックメモリーに適用した場合にどのような影響がでるかを考察し、以下のことを明らかにした。

### (a) 再生に必要な光源のスペクトル幅と再生像の形状

本手法によって得られる再生画像は、広い波長幅をもつ読み出し光をスペクトル分解した形で像が形成されていて、一枚の再生画像の中でもその結像位置によって再生波長が異なっている(図2)。一般的に、入力画像の大きさが大きくなればなるほど、また記録時のフーリエ変換レンズの焦点距離が短くなればなるほど画像再生に必要なスペクトル幅は大きくなる。また読み出し光ベクトルが信号光中心ベクトルと参照光ベクトルが作る面内に存在する場合に最も必要なスペクトル幅が狭くなり再生像の歪も小さくなる。さらに記録と再生の波長比に応じて再生に必要なスペクトル幅を最小にする最適な入射角度が存在する。

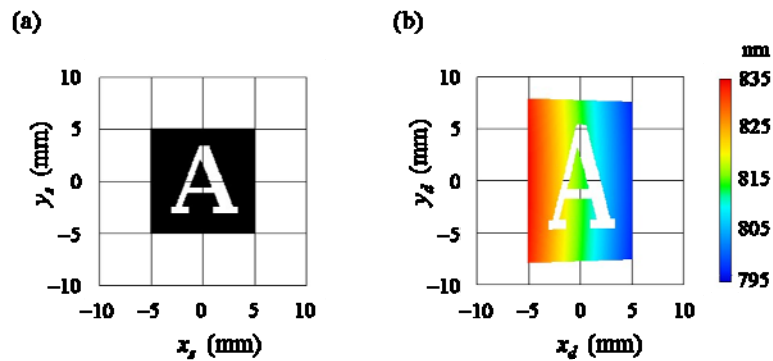


図2. 再生像のシミュレーション. (a)入力画像, (b)再生画像. 記録は波長 532 nm のシングルモードレーザーで記録を行い, 再生には中心波長 815 nm, スペクトル全幅 40 nm の広帯域光源を用いたと仮定した.

### (b) 回折効率

本手法では光源のスペクトル全幅に対して、あるグレーティングによって回折されるために使われるスペクトル幅が狭いことに起因しピクセルあたりの信号回折光強度が低下するといったデメリットがある。

### (c) 多重記録方式

本手法に最も適した多重記録方式は、多重時に結晶を回転させながら記録を行っていく結晶回転角度多重記録方式である。またこれと **Peristrophic multiplexing** を組み合わせ更なる記録密度の増大も可能である。しかし参照光角度を変化させて多重記録を行っていく通常の方法多重記録や波長多重記録は、原理的に不可能なわけではないが本手法にはあまり適さない。これは、再生時の回折方向がページごとに異なるため、プローブ光の入射角度を変えながら、かつ画像取得のためのイメージング光学系も移動しなければならず、システムが複雑になるためである。

### (d) ページ内・ページ間クロストークノイズ

本手法では読み出し光の広いスペクトル幅に起因して、ページ内クロストークノイズの大きさがグレーティングベクトルに平行な方向のホログラムの厚さには依存しない。またページ間クロストークノイズの大きさは、入力画像の大きさや読み出し光のスペクトル幅に起因して大きくなり、多重記録に必要な結晶の回転角は通常の単色光再生の場合と比べ劇的に増加し記録密度限界は二桁程度低下する。

### (e) 記録容量の改善方法(選択的検出手法)

信号回折光とクロストークノイズ回折光の回折波長の違いを利用することで、上記の多重記録性能の低下を改善することができる。これは通常であれば光強度のみしか検出できないイメージング光学系に、適切な分光機能を付加し、ノイズ回折光に埋もれている信号光画像を波長によって分離して選択的に取得することで行う。この時の改善の割合は付加した波長選択素子の分光性能に依存し、その波長選択性が高ければ高いほど、記録容量の改善率は増加させることができる。この手法を用いることにより、原理的には単色光再生の場合と同程度まで記録密度限界を回復することができる。ただしこの場合、同時に回折効率も減少してしまうため、実際には回折効率を減少させない範囲内で波長選択素子の分光性能を決定するのがよい。

以上述べてきたように本研究では、記録材料とシステムの両面からフォトリフラクティブ結晶における再生劣化問題の解決を試みた。本研究における成果は大きくわけて次の2点である。ひとつは、2色書き込み用記録材料として **Ru, Fe:LiNbO<sub>3</sub>** 結晶が高性能なホログラム記録材料となりうることを示し、イオン間の直接遷移という従来モデルでは取り入れられてこなかった新しい現象の知見を得たこと。もう一つは、広帯域光源を用いた体積ホログラムの非破壊再生法を提案・実証し、ホログラム再生理論を構築して実際のホログラフィックメモリーシステムで利用した場合の有効性を理論的に示したことである。特にシステムの側から破壊再生を回避する広帯域光源を用いたホログラム再生法は、記録媒体の種類を選ばずに非破壊再生を実現することができるという点で大きなメリットを有している。例えば今日フォトリフラクティブ結晶におけるホログラム記録媒体といえばほぼ **LiNbO<sub>3</sub>** 結晶に限られてきたが、将来的により高感度でかつメモリー性を有するような新たな母材が開発されれば、その母材を記録媒体として用いてより高速なメモリーシステムを構築することも容易である。今後、選択的検出手法において使用する波長選択フィルターに、より高い波長選択性を有するボリュームホログラフィック回折光学素子などを用いれば、高い記録密度と非破壊再生とを両立したリライタブルホログラフィックメモリーシステムが実現できると期待できる。