

## ホログラム記録用LiNbO<sub>3</sub>, LiTaO<sub>3</sub>単結晶の開発

Development of LiNbO<sub>3</sub> and LiTaO<sub>3</sub> crystals for holographic recording

畑野 秀樹

Hideki Hatano

**要旨** 当社がこれまで物質・材料研究機構と共同で進めてきた、ホログラム記録用フォトリフラクティブ結晶開発における最近の研究成果について述べた。定比に近い組成のLiNbO<sub>3</sub>やLiTaO<sub>3</sub>単結晶を用いた2色ホログラム記録技術の進展により、これまでのフォトリフラクティブ記録の最大の課題であった情報の不揮発化を達成した。

Mnを添加した定比組成LiNbO<sub>3</sub>や不純物を添加しない定比組成LiTaO<sub>3</sub>単結晶(SLT)の欠陥制御技術とエネルギー準位の最適化技術により性能改善を行った。特にSLTにおいては、これまで報告された他の材料に比べて、総合的なホログラム記録性能に優れた理想的な不揮発ホログラムが得られた。

**Summary** We review recent progress in inorganic photorefractive crystals for holographic recording. Major development is the photon-gated two-color holography in LiNbO<sub>3</sub> and LiTaO<sub>3</sub>, which overcomes the longstanding issue of destructive readout. Substantial progress has been made in recent years by developing defect controlling and optimization technologies based on near-stoichiometric LiNbO<sub>3</sub> doped with Mn and nondoped near-stoichiometric LiTaO<sub>3</sub> (SLT) single crystals. We obtained more outstanding overall holographic performance in SLT than in any other materials reported so far

**キーワード** : ホログラムメモリー, ホログラム記録材料, ニオブ酸リチウム, タンタル酸リチウム, 定比組成, Mn添加, フォトリフラクティブ効果, 2色ホログラム, 不揮発メモリー

### 1. ホログラムメモリーと材料開発

現在、デジタル化された様々な情報のサービスを、ユーザが必要なときにいつでも提供を受けられる、いわゆる「ユビキタス」情報化社会実現にむけた取り組みが進展しつつある。このような高度情報化社会におけるキーテクノロジーの一つとして、デジタル化された大量情報を高速に出し入れできる大容量ストレージデバイスに対するニーズが増大してお

り、その可能性のひとつとしてホログラムメモリーが注目されている。

ホログラムメモリー<sup>(1)</sup>とは、レーザー光を使って体積ホログラムの形式で3次的に情報を多重記録する光学メモリー方式である。記録再生の原理を図1に示す。まずデータはチェスパターンのような白黒の2次元画像に変換されて空間光変調器(SLM)に送り込まれる。SLMを通った信号光ともう一方の参照光を記録媒体中

で混合させることによって3次元の干渉パターンができる。この干渉パターンの強度変化を屈折率の変化に置き換えて媒体に記録したものがホログラムである。再生時には、参照光のみをホログラムに照射すると、記録したデータに対応した回折像がホログラムから発生する。その画像をCCDなどの2次元センサで電気信号化してデジタル情報として利用する。ホログラムメモリーにおいては、同じ媒体に異なるデータからつくられる、異なるホログラムを数多く詰め込むことによって大容量(～Tbits/cm<sup>3</sup>)と高速転送(～Gbits/s)を実現する。こうして多重記録される情報は、信号光と参照光の角度、レーザーの波長などを変えることで識別できる(それぞれ、角度多重法、波長多重法と呼ぶ)。

ホログラムメモリーシステムの実用化にとって不可欠な要素のひとつが記録材料である。近年有機材料であるフォトリポマーの性能改善が進み、5インチサイズで200Gbyteを超える容量の追記型ホログラムディスクを目指した研究開発が広く行われるようになった。一方、書き換え型材料としてはフォトリフラクティブ(PR)材料がいまでも唯一有力な候補

である。とりわけニオブ酸リチウム(LN、通常はFe添加)は長い間代表的な書き換え型ホログラム材料としてシステムの評価やデモンストレーション用に広く使われてきたものの、いまだ実用化には至っていない。これまでパイオニアでは独立行政法人物質・材料研究機構(NIMS)と共同で、LN系PR単結晶の性能改善に取り組んできた<sup>(2)</sup>。筆者らは、結晶内の欠陥や添加物などによるPR特性の制御技術を確立し、LN系PR記録における最大の課題であったホログラムの不揮発化技術を開発した。本稿では、筆者らの成果を中心にLN系ホログラム記録材料の最近の研究動向を紹介する。

## 2. ホログラム材料としてのPR結晶の開発動向

### 2.1 フォトリフラクティブ効果

フォトリフラクティブ(PR)効果<sup>(3)</sup>の原理は次のように説明される。まず、PR結晶が光の干渉縞で不均一に照射されると、明部では不純物や欠陥から光励起された電子(または正孔)が、伝導帯(価電子帯)を拡散、ドリフトまたは光起電力効果によって移動し、照射されない暗部で再結合する。これにより、移動後の電子(正孔)の

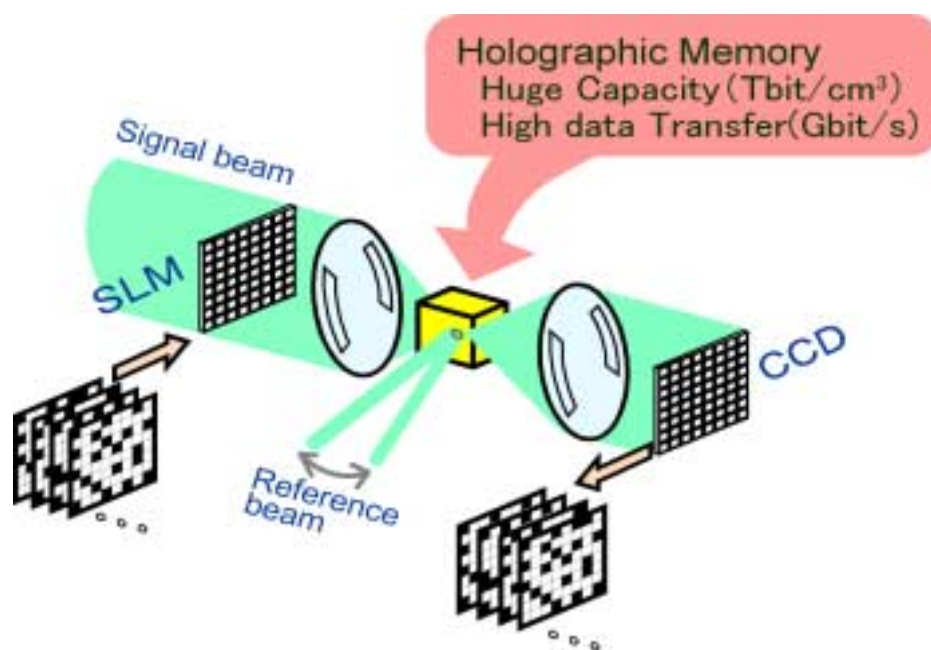


図1 ホログラムメモリーの記録再生原理。

空間分布は光の明暗(干渉縞)と同じパターンをもち、電気光学効果を通じて、空間電荷分布パターンと同じ屈折率分布が形成される。形成された屈折率分布は電荷分布が熱拡散や光照射によって消されるまで保持される。

このPR効果は、1966年に強誘電体結晶材料として注目されていたニオブ酸リチウム(LN)、タンタル酸リチウム(LT)の第二高調波発振や光変調への応用における副産物として観測された<sup>(4)</sup>。光照射により結晶中の屈折率が変化する効果は、これらの応用には有害な現象であり、「光損傷」とも呼ばれた。しかし、その後すぐにこの効果は、書き換え可能なホログラムメモリーとしての応用が検討された<sup>(5)</sup>。フォトフラクティブ結晶を用いたホログラフイー技術は、以後現在に至るまで、何回かの浮き沈みを経緯しながら研究が続けられており、ストレージ応用のみならずさまざまな光情報処理などの分野で、常に新しいアウトプットを創り出してきた。しかし材料の面からいうと、特に無機材料では今までに知られた強誘電体結晶を大きく超える材料の創出はなされておらず、依然LNとLTは研究対象として重要なマテリアルである。強誘電体単結晶を利用する場合、PR効果で誘起される屈折率変化は大きくても $10^{-4}$ 程度であり、十分な回折効率を得るためには、ある程度の大きさを備えた単一分極の単結晶が求められる。しかも、単結晶の均一性は重要であり、結晶内の屈折率変動は $10^{-6}$ 以下に抑えることが望まれる。この理由からも、大型で均質性の高い単結晶が得られるLN、LTへの期待が大きい。

## 2.2 PR記録における情報の揮発とその対策

PR結晶を用いたホログラム記録の最大の課題はメモリーの不揮発化である。書き換えが可能であるということは、記録過程が可逆的であることを意味しており、非可逆的な化学反応をベースにした追記型に比べると、記録された情報の揮発という問題が本質的に存在する。すでに述べたように、PR効果は、不均

一な光を照射したときの、その強度分布に対応した電荷(電子または正孔)の空間的な再配列効果であるということができる。この電子が、永遠にトラップ準位にとどまっていれば情報の劣化はなく、不揮発メモリーとなるが、通常熱的あるいは光学的に励起可能な準安定な状態にある。以下の説明では、電子の輸送を想定して述べる。

### 2.2.1 保存劣化(熱的揮発)

保存劣化とは記録後結晶が暗中に保存されている間に、電子がトラップから熱的に離脱することにより情報が揮発する現象を指す。トラップされた電子が離脱する過程の時定数(保存された情報の寿命)は、誘電緩和時間( $t_d = \epsilon_0 / \sigma_d$ )に対応する。ここでは結晶の比誘電率、 $\epsilon_0$ は真空中の誘電率、 $\sigma_d$ は暗導電率である。通常誘電率はほぼ一定であるため、保存寿命を決定するのは暗導電率である。誘電緩和時間 $t_d$ は活性化型の温度変化を示す。その温度依存性を規定する要因は、不純物間の電子トンネリング伝導あるいはプロトン交換伝導という少なくとも2種類の電子伝導機構に依存することが知られている<sup>(6)</sup>。不純物イオンが少ない場合(たとえばFeの添加量が0.05%以下)はプロトン交換伝導が支配的となり、活性化エネルギーが約1eVである。この場合、保存寿命はプロトンの混入量に逆比例するため、育成工程などでのプロトンの混入を十分に低減することが長寿命化には重要である。LNでは室温で数年程度の保存が可能である。また後述するように、LTを用いることでLNよりさらに長寿命となる。

### 2.2.2 再生劣化(光励起による揮発)

情報が記録されたホログラフィックからの信号再生のために結晶に入射した光子は、トラップ準位から電子を励起する。励起された電子は、伝導帯において、ホログラム自身の空間電界で加速され、空いたトラップ準位に再び戻される。その結果、空間電界が徐々に低減し、ホログラム強度が減少する。これが再生劣化あるいは破壊読み出しとよばれる現象である。

これまで再生劣化低減を目的にした，熱定着の研究が進み，室温での安定な情報読み出しが可能になった<sup>(7)</sup>。しかし熱定着はすべてのホログラムを記録したあとの一括処理で行うためリアルタイムでの処理が困難であり，一括消去可能な大容量ROMという使い方に限定される。

### 2.2.3 フォトンゲート2色ホログラム記録法

フォトンゲート2色ホログラム記録法は「光定着」とも呼ばれ，熱定着に代わる画期的な定着技術と考えられる。従来のFe添加LNにおける記録が1種類のレーザー光源のみを使って記録再生する(単色記録方式と呼ぶ)のに対して，この方式では，ホログラムを形成する記録光(波長 $\lambda_1$ ，参照光と信号光)に加えて，ゲート光(波長 $\lambda_2$ ， $\lambda_1 > \lambda_2$ )と呼ぶもうひとつの光を同時に照射することでホログラムを記録する点に特徴がある。ゲート光はコヒーレントである必要がなく，LEDや白色光なども使われる。図2に2色ホログラム記録における電子遷移のエネルギーバンドモデルを示す。2色ホログラムを記録するためには，バンド間に深さの異なる2種類のトラップ準位，すなわち，

- (1) 浅いトラップ準位(中間励起準位と呼ぶ，スモールポーラロンという欠陥準位が使われる)と，

- (2) ゲート源(ゲート光励起のための電子の供給源)となる深いトラップ準位

を形成することが必要である。これに加えて，

- (3) 最終的な電子のアクセプタである深いトラップ準位が必要であるが，これはゲート源が兼ねることもある。

ゲート光の作用は，ゲート光を照射している間だけ結晶内の中間励起準位に一樣な電子分布を形成し，記録波長( $\lambda_1$ )での記録感度を発生させる点にある。このゲート効果により形成される電子が記録光で励起され，最終的には深いトラップ準位に記録光の干渉縞に対応した電子の濃淡分布が形成されて記録が完了する。再生時にはゲート光を照射しないため，結晶は再生波長( $\lambda_1$ )に感度(光吸収)を持たないという性質により，不揮発再生が可能となる。またゲート光のみの照射によって，結晶の初期化(消去)が可能である。このように2色ホログラム記録は，不揮発再生に加え，選択消去ができ，これらが光学的手法のみで(全光処理)，リアルタイムで行えるという特徴を有しているのである。

2色ホログラム記録の最初のアイディアは，1974年に提案された<sup>(8)</sup>。当時の材料は中間励起準位におけるキャリアの寿命が数10nsと非常に短いため，記録には強度 $10^7 \sim 10^9 \text{W/cm}^2$ のパルス光源が必要とされていた。比較的パワーの小さな連続発振レーザーを用いて記録ができるよ

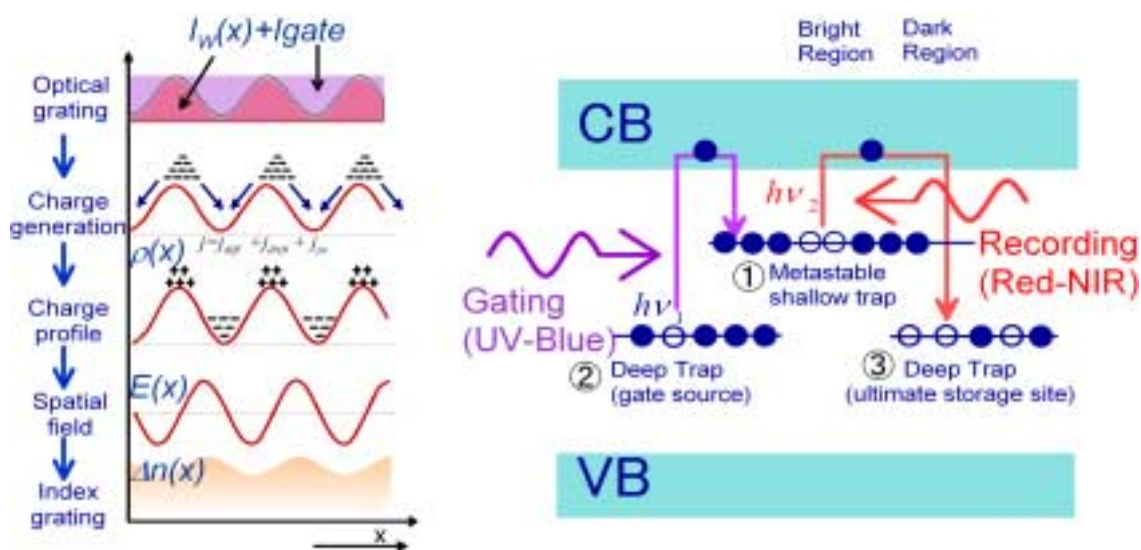


図2 2色ホログラム記録における電子遷移のモデル

うになったのはごく最近のことであり、これは LN 結晶の欠陥密度の低減と密接な関連がある。

これまでホログラム記録に多く使われてきた LN は一致熔融組成 LN 結晶(略称 CLN, 融液の組成と結晶の組成が一致する組成で育成された結晶で Li/Nb 比はおよそ 48.5/51.5)であり、CLN は数%におよぶ不定比欠陥を含んでいる。CLN 中の多量の欠陥はキャリアの再結合中心を生み、中間励起準位であるスモールポーラロンの寿命を著しく低減させてしまう。そのため中間励起準位のキャリア密度を高められないため高い光感度は望めず、高強度のパルスレーザーの使用が不可欠であった。物質・材料研究機構、北村らの研究により LN 結晶の欠陥制御育成技術が進み、不定比欠陥を制御して、Li と Nb の比が 1 に近い定比組成 LN(略称 SLN)を育成する技術が、ここ 10 年ほどの間に確立された<sup>(9)</sup>。SLN では、CLN に比べて不定比欠陥密度が 1 桁以上低減し、構造敏感性(結晶の物性が格子欠陥や添加不純物の種類や量などミクロな構造の微細な変化に非常に敏感に変化する性質)を有するようになる。その結果、複数のエネルギー準位をバンド間に形成しその準位のキャリア寿命などを制御することが容易になった。現在では SLN をベース材料として用いることにより、比較的パワーの小さな連続発振レーザーを用いて記録ができるようになってきた。

最近の代表的な研究例<sup>(10),(11)</sup>は、還元処理をした無添加 SLN における、バイポーラロンという構造欠陥をゲート源に用いた 2 色ホログラム記録である。Li 組成が 49.7%の還元した SLN を用いて、従来の Fe 添加 LN における単色記録の記録感度に迫る、 $0.01 \sim 0.03 \text{ cm}^2/\text{J}$  という光感度( $S_2$ )を実現したが、実用的には不十分である。また記録特性が還元熱処理条件に敏感であること、還元処理によって、結晶中に存在する Fe などの不純物を還元して、不要な光吸収を増やす問題や、導電率の上昇によるダーク保存寿命の低減などの問題がある。保存寿命は還元条件に依存し、数週間から数ヶ月と短寿命である。

### 3. 高効率 2 色ホログラム記録材料の開発

#### 3.1 材料開発の基本コンセプト

記録感度を改善するために、ゲート源の最適化を試みた。2 色ホログラム記録感度は、中間励起準位(スモールポーラロン)の電子密度に比例する。電子密度は、ゲート源から中間励起準位への励起効率(ゲート効率)と電子寿命の積で決まる。したがってスモールポーラロン寿命を低下させずにゲート効率を改善できれば、記録感度の向上が期待できる。

材料設計のための前提条件は以下の通りである。まずスモールポーラロンの光吸収のピーク波長がほぼ 780nm にあることから、記録再生波長を 778nm(光源は Ti サファイアレーザー)とした。またゲート波長を 350nm(光源は Kr イオンレーザー)とした。この理由は、(1)紫外ゲート光の照射は、ゲート光による不要な光損傷を抑圧する作用があること、(2)高エネルギーのゲート光による励起が量子効率を増大させると予想したためである。あわせて、(3)YAG レーザー(波長 1064nm)の 3 倍波発生によりこの波長帯でのコンパクトな発光素子が作成可能である点も魅力的である。

そこで 350nm のゲート光に対して最適なゲート源として SLN 単結晶への Mn の微量添加を検討した。

#### 3.2 Mn の微量添加による改善<sup>(12)</sup>

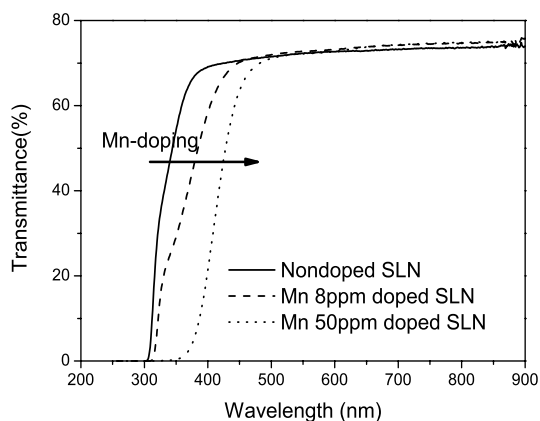
Mn は LN 中で Fe より深い準位を形成するため、350nm 帯のゲート光に対して効率的に電子を励起できる可能性がある。筆者らは微量の Mn を添加した Li 濃度 55mol%の融液から、Mn 添加 SLN 単結晶(Mn:SLN)を育成した。Mn:SLN 単結晶は as-grown の状態で使用した。図 3(a)は Mn:SLN の透過スペクトル、図 3(b)は Mn:SLN の光吸収係数( $\alpha$ )と試料厚さ( $L$ )の積の波長依存性である。図 3 は、Mn の添加量の制御により、LN の光吸収特性を使用波長に応じて自在に制御することが可能であることを示している。 $\alpha L$  積が 1 となる条件が最適な光吸収条件であることを筆者らはす

で確認している。したがって 350nm ゲートに対する最適 Mn 添加量は 8ppm であることが予測される。

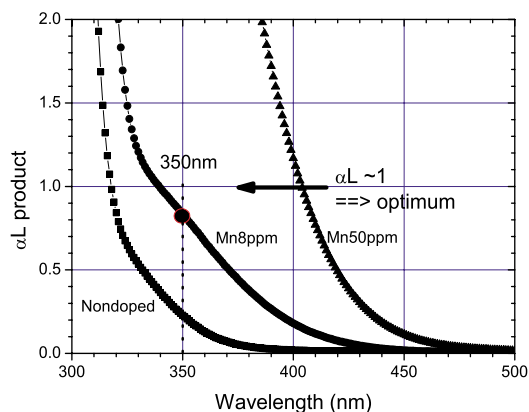
そこで実際に、8ppmMn 添加 SLN 単結晶を用いて平面波 2 波混合による 2 色ホログラム記録を行った。記録時はゲート光と同一強度に分割した 2 本の記録光(混合角度は空气中で  $27^\circ$ )を同時に照射し、格子形成過程をモニターした。その後ゲート光を閉じ、片側の記録光のみで再生不揮発性を測定した。そして再びゲート光を照射してゲート光による消去特性を測定した。図 4 は、これら記録 - 再生 - 消去シーケンスの 1 例を示したものである。記録光は波長 778nm, 強度  $20.5\text{W}/\text{cm}^2$  であり、

ゲート光は波長 350nm, 強度  $0.3\text{W}/\text{cm}^2$  である。図 5 (a) は光感度感度  $S_2$  と  $M/\#$  のゲート光強度依存性, 図 5 (b) は  $M/\#$  の記録強度依存性である。ゲート強度  $1.5\text{W}/\text{cm}^2$  で記録感度  $M/\#$  として約  $0.2\text{cm}/\text{J}$  が得られた。この感度は従来のバイポーラロン方式における感度の約 1 桁大きな値である。飽和回折効率は, 記録光強度  $20\text{W}/\text{cm}^2$  時で約 30% であった。

図 4 における再生時の回折光量変化から, 3 段階のプロセスが存在しているように思われる。記録停止直後に見られる早い減衰はスモールポーラロンのディケイによるものと考えられる。その後, 1000 秒のオーダーの比較的長い減衰を経て非常に安定した不揮発再生特性が得られ



(a) 光透過スペクトル



(b) 光吸収係数と試料厚さの積の波長依存性

図 3 Mn 添加に伴う光吸収特性の変化

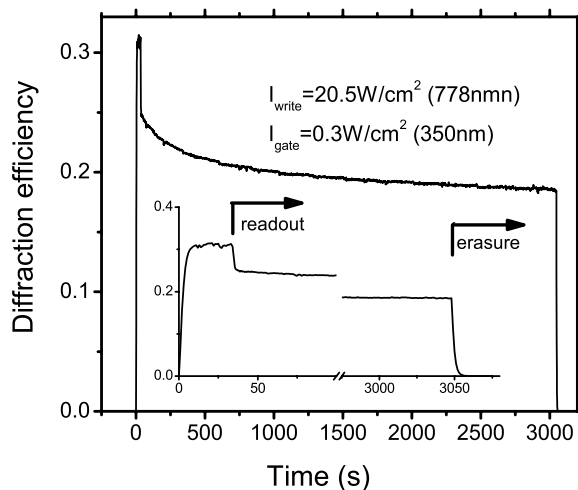
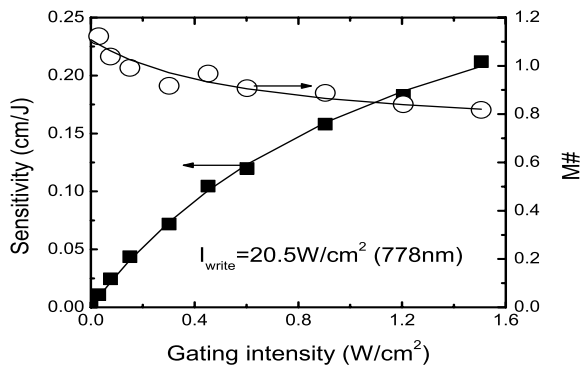
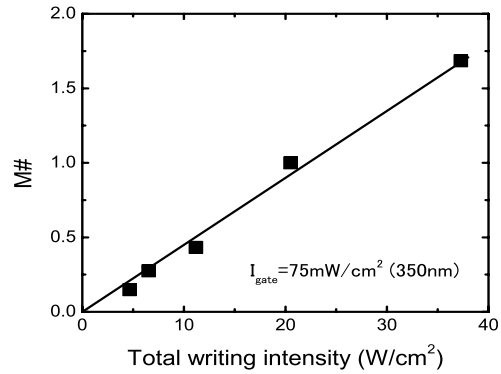


図 4 Mn 添加 SLN における, 記録 - 再生 - 消去に伴う回折効率の時間変化。



(a) 記録感度とM/#のゲート光強度依存性



(b) M/#の記録光強度依存性

図5 Mn添加SLNにおける，記録感度とM/#の光強度依存性

る。この理由は、次のように考えられる。すなわちMn添加SLN中にはFeが含まれており、ホログラムがFeの準位とMnの準位に形成される。中間の比較的長い減衰は、Fe準位にトラップされた電子が再生時に励起された後、最終的にMnの深い準位に移動して安定化するプロセスに対応しているのではないかとと思われる。

以上のように、Mn添加SLNでは記録感度を従来比1桁改善をすることができた。これは設計通りにゲート効率の改善ができたことを示すものであるが、M/#や再生不揮発性にまだ問題がある。

### 3.3 バンドギャップのワイド化による改善<sup>(13)</sup>

筆者らは、さらに性能改善を追求し、定比に近い組成のタンタル酸リチウム単結晶(SLT)の可能性について検討した。

ホログラム記録用PR結晶としてLTを用いる最大の理由はバンドギャップのワイド化である。LTはLNと同じ結晶系に属し、その多くの物性的な性質はLNに類似しているが、LNに比べて広いバンドギャップを有するという大きな違いがある(SLNは約4.0eVに対してSLTは約4.7eV)。LTの広いバンドギャップは、導電率の低減に基づく長いホログラム保存寿命を可能にするとともに、2色ホログラムにおける浅いトラップと深いトラップの電荷の分離性を改善し、高い光感度と良好な再生不揮発性の両立を

可能にするという点で、ホログラム応用には大きなメリットが期待できる。しかしながらこれまで、LTのホログラム応用に関する研究は非常に少ない。LTを用いた不揮発記録に関しては、唯一Osnabrueck大学のImbrockら<sup>(14)</sup>がFeを添加したCLTにおいて、連続発振レーザーによる2色ホログラムの記録に成功している。しかし最大屈折率変化が $1.0 \times 10^{-5}$ と小さいこと、ダークストレージ時間が3ヶ月であること(たぶんFeの還元による)など必ずしも良好な性能とはいえない。

筆者らは不純物を含まないSLT単結晶が良好な2色ホログラム記録特性を示すことを見いだした。SLT単結晶は、DCCZ法(原料の自動供給を伴う2重つぼ法)を用い、Li-richの融液からC軸引き上げにより育成した。育成雰囲気は、るつぼの酸化を防ぐため酸素：窒素 = 1 : 100の還元性混合雰囲気とした。育成された結晶の特性はキュリー温度が669.5である。育成後730でポーリング処理を行い、厚さ2mm程度のY板を切り出した。

図6は育成した結晶の透過スペクトルをSLNと比較したものである。SLNに比べ、SLTの吸収端が短波長にシフトしていることからバンドギャップの増加が確認できる。

Mn添加SLNと同じ実験系で平面波2波混合による2色ホログラム記録を行った。図7は典型

的な記録 - 再生 - 消去シーケンスを示したものである。記録条件は、ゲート光が波長 350nm、強度 31mW/cm<sup>2</sup>、記録光が波長 778nm、強度 11.2 (5.6+5.6)W/cm<sup>2</sup> である。記録時の半分の強度の参照光を照射し、約 6 時間再生してもほとんど回折光の劣化はなく、非常に良好な再生不揮発性を示していることがわかる。

図 8 は光感度 ( $S_2$ ) と飽和屈折率変化 ( $n_{max}$ ) のゲート強度依存性である。30mW/cm<sup>2</sup> 程度のゲート強度で、記録感度として約 0.08cm/J 程度、飽和屈折率変化は約  $1 \times 10^{-4}$  (厚さ 2mm のサンプルで回折効率 41% に相当) が得られた。Fe 添加 CLT の結果 (Imbrock ら) に比較して、約一

桁の改善である。記録と消去の時定数から求めた  $M/\#$  値は厚さ 1cm 換算で 3.6 となった (記録強度 4.0W/cm<sup>2</sup> 時)。

つぎにホログラムの保存寿命について SLT および SLN 単結晶を比較して測定した結果を示す。まず室温にてホログラムを記録したあと所定の温度に昇温してホログラムからの回折光の熱的な減衰特性を測定する。この減衰の時定数 (暗中保存時間) を温度の逆数に対してプロットしたのが図 9 である。図より、SLT 単結晶は、SLN に比べ長い保存寿命の可能性を示している。SLT の室温に外挿した寿命は 5 年以上である。

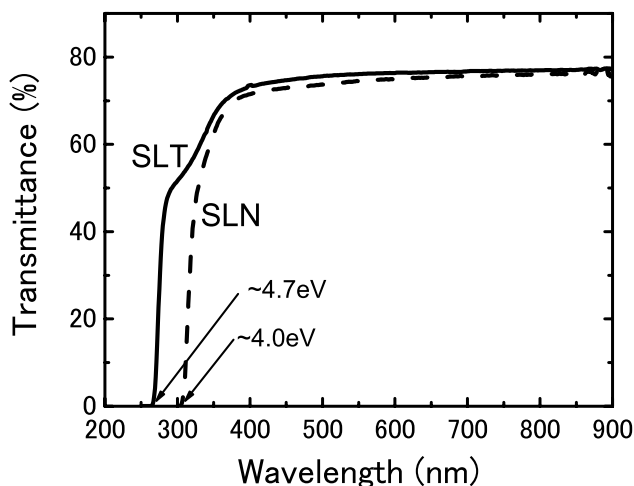


図 6 不純物を添加せずに育成した SLT と SLN の光透過スペクトルの比較。

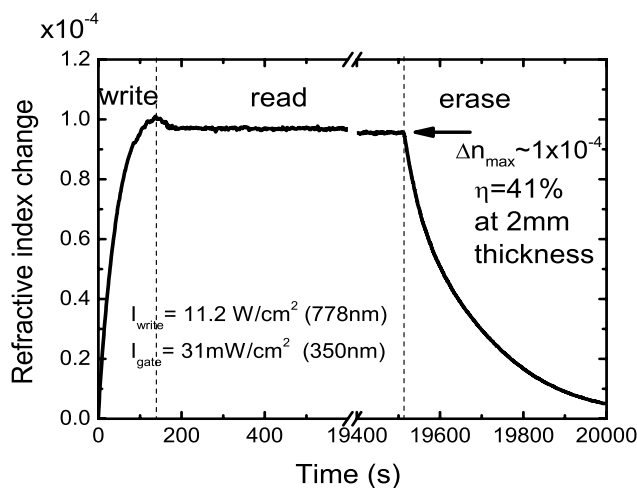


図 7 無添加 SLT における、記録 - 再生 - 消去に伴う屈折率変化の時間変化。



表1はこれまで述べた、代表的な2色ホログラム記録材料の性能を、同一記録条件で比較したものである。SLTが他の材料に比べて、感度、ダイナミックレンジ、再生不揮発性、ホログラム保存寿

命の観点で総合的に優れた性能を示す可能性を示唆している。SLTにおける2色ホログラムの研究は始まったばかりであり、今後LNでは達成できなかった魅力的な材料に変身する可能性がある。

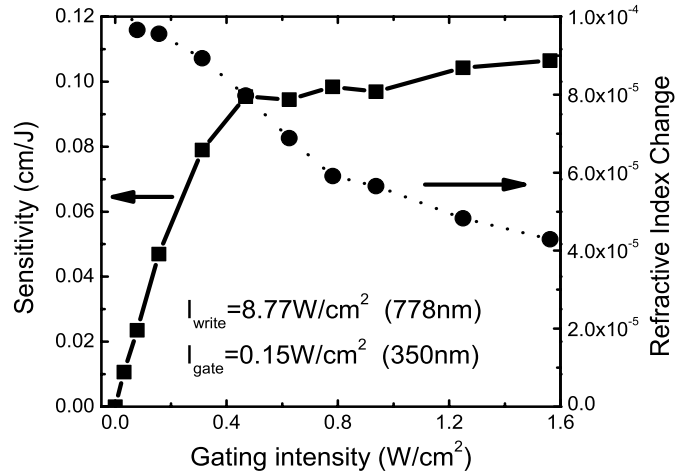


図8 無添加SLTにおける、記録感度とM/#のゲート光強度依存性。

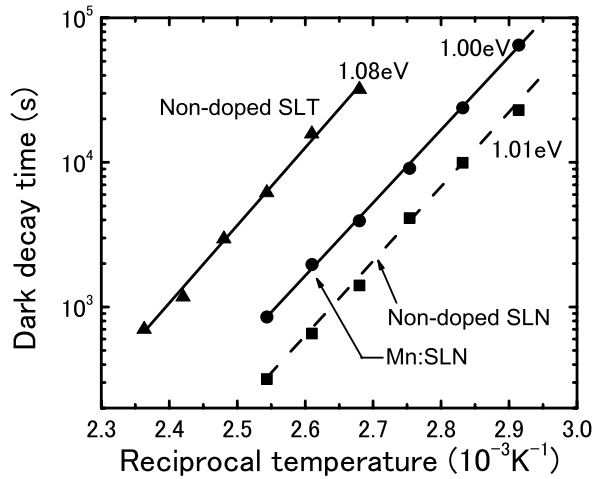


図9 ホログラムの暗黒保存時間のアレニウスプロット比較。

表1 2色ホログラム材料の同一記録条件下での比較。

	Nondoped SLN Reduced[10,11]	SLN:Mn as-grown[12]	CLT:Fe Reduced[14]	Nondoped SLT as-grown[13]
ゲート波長(nm)	488	350	488	350
記録波長(nm)	852	778	660	778
光感度 $S_{\eta_2}$ (cm/J) <sup>a</sup>	~0.01-0.03	~0.16	~0.07	~0.086
$\Delta n$ ( $\times 10^{-4}$ )	NM <sup>c</sup>	NM <sup>c</sup>	0.1	1
M/# <sup>b</sup>	~0.9	~1	NM <sup>c</sup>	~3.6
再生不揮発性	good	good	good	very good
室温でのホログラム保存寿命	~0.3年	~0.6年	~0.25年	~5年

<sup>a</sup>  $I_{gating} = 1W/cm^2$ , <sup>b</sup>  $I_{writing} = 4W/cm^2$ , <sup>c</sup> NM not measured

#### 4. まとめ

PR 結晶における最近の進展を中心に述べた。LN, LT 結晶の欠陥制御結晶育成をベースにした材料設計技術の進歩により, 2 色ホログラム記録材料の性能改善が進み, 全光処理による理想的な不揮発ホログラムが得られ始めた。最初は非常に遅かった記録速度も, 従来の Fe 添加 LN における単色記録程度まで改善された。とは言っても, フォトポリマーほどの高い記録感度と大きな屈折率変化が得られるわけではない。しかしながら PR 結晶は光学的特性に優れた厚い媒体が容易に得られる点は魅力であり, 不揮発性が高まれば駆動部のない理想的な固体メモリーとしての使い方ができる。高速アクセス性に難点があるディスク型に活路を見いだそうとする有機媒体とは異なり, フォトリフラクティブ結晶は, ホログラムメモリーならではの高速アクセスと並列性を活かした魅力的なアプリケーションに応用されることを期待したい。類似検索機能など, 2 次元データ処理ならではの高速検索を活かしたデータベースなどはその一例であろう。

#### 5. 謝辞

本研究は、独立行政法人物質・材料研究機構との共同研究により得られたものである。物質・材料研究機構物質研究所ディレクター、北村健二博士をはじめ、竹川俊二博士、中村優博士、Youwen Liu 博士、Ganesan Ravi 博士、Myeongkyu Lee 博士(現在、韓国の Yonsei 大学)、Ramasamy Jayabel 博士(現在、インドの Anna 大学)、古川保典博士(現在株式会社オキサイド社長)には、単結晶育成と基礎的結晶評価に関して全面的に協力をいただいた。この場を借りて厚く御礼申し上げます。

#### 参 考 文 献

(1) Holographic Data Storage, eds. H. J. Coufal, D. Psaltis, and G. T. Sincerbox (Springer-Verlag, 2000).

- (2) 畑野秀樹, 田中覚, 山路崇, 伊藤善尚, 松下元: 「デジタルホログラムメモリー用記録材料の開発」, パイオニア R & D, Vol. 11, pp.73-82(2001).
- (3) 富田康生: "Photorefractive 効果とその非線形光学への応用", 応用物理 Vol. 59, pp.1154-1174(1990).
- (4) A. Ashkin, G. D. Boyd, J. M. Dziedzic, R. G. Smith, A. A. Ballman, J. J. Levinstein and K. Nassau, "Optically-induced refractive index inhomogeneities in  $\text{LiNbO}_3$  and  $\text{LiTaO}_3$ ", Appl. Phys. Lett. Vol. 9, p. 72-74(1966).
- (5) F. S. Chen, J. T. LaMacchia, and D. B. Fraser: "Holographic storage in lithium niobate", Appl. Phys. Lett., Vol. 13, p. 223-225(1968).
- (6) Y. Yang, I. Nee, K. Buse, and D. Psaltis, "Ionic and electronic decay of holograms in  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  crystals", Appl. Phys. Lett. Vol. 78, p. 4076-4078(2001).
- (7) X. An, D. Psaltis, and G. W. Burr, "Thermal fixing of 10000 holograms in  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ ", Appl. Opt. Vol. 38, p. 386-393(1999).
- (8) D. von der Linde, A. M. Glass and K. F. Rodgers, "Multiphoton photorefractive processes for optical storage in  $\text{LiNbO}_3$ ", Appl. Phys. Lett., Vol. 25, p. 155-157 (1974).
- (9) 北村健二, "強誘電体光学単結晶のブレイクスルー - 不定比欠陥の制御 - ", 応用物理, Vol. 69, p. 511-517(2000).
- (10) H. Guenther, R. M. Macfarlane, Y. Furukawa, K. Kitamura, and R. Neurgaonkar, "Two-color holography in reduced near-stoichiometric lithium niobate", Appl. Opt. Vol. 37, p. 7611-7623 (1998).
- (11) L. Hesselink, S. S. Orlov, A. Liu, A. Akella, D. Lande, and R. R. Neurgaonkar: "Photorefractive Materials for Non-volatile Volume Holographic Data Storage", Science Vol. 282, p. 1089-1094 (1998).
- (12) Y. Liu, K. Kitamura, S. Takekawa, G. Ravi, M. Nakamura, H. Hatano, and T. Yamaji: "Nonvolatile two-color holography in Mn-doped near-stoichiometric lithium niobate", Appl. Phys. Lett. 81, p. 2686-2688 (2002).
- (13) Y. Liu, K. Kitamura, S. Takekawa, M.

Nakamura, Y., Furukawa, and H. Hatano, "Nonvolatile two-color holographic recording in nondoped near-stoichiometric lithium tantalate crystals with cw lasers", Appl. Phys. Lett. Vol. 81, p. 4218-4220 (2003).

(14) J. Imbrock, D. Kip, and E. Kratzig, "Nonvolatile holographic storage in iron-doped lithium tantalate with continuous-wave laser light", Opt. Lett. 24, 1302-1304 (1999).

## 付 録

A1. 評価パラメータについて：

ホログラムメモリの性能を評価するパラメータについて若干説明しておく。

記録感度  $S_{\eta_2}$  は記録速度のパラメータであり，単位時間あたりの回折効率の平方根の変化率を媒体の厚さと光強度で規格化した値として次のように定義される。

$$S_{\eta_2} = \frac{\partial \sqrt{\eta}}{\partial t} / (I \cdot L) \quad (A1)$$

ここで， $\eta$  は回折効率， $t$  は記録時間， $I$  は記録光の強度， $L$  は媒体の厚さをあらわす。

$M/\#$  ( $M$ -number とよぶ) はダイナミックレンジ，すなわち多重記録性能に関するパラメータである。 $M/\#$  は次のように，多重記録されたホログラムの回折効率の平方根の総和として定義される。

$$M/\# = \sum_{i=1}^N \sqrt{\eta_i} \quad (A2)$$

したがってページの多重を行ったときに得られる，各ホログラムからの回折効率は， $M/\#$  を用いると，

$$\eta = \left( \frac{M/\#}{N} \right)^2 \quad (A3)$$

となる。 $S_{\eta_2}$  や  $M/\#$  の詳細については文献(畑野ほか，レーザー研究，第30巻，2002年4月号，pp. 171-176)を参照されたい。

A2. バイポーラロンとスモールポーラロンについて：

バイポーラロンとは隣接した  $Nb_{Li}$  (Li サイトの Nb) と  $Nb_{Nb}$  (Nb サイトの Nb) におおの1個ずつ電子が束縛され，これらがペアを形成している状態の複合格子欠陥である。バイポーラロンは LN 結晶を適切な還元雰囲気中で熱処理すると形成され，熱的に安定である。

一方スモールポーラロンは  $Nb_{Li}$  (Li サイトの Nb) に電子が束縛された状態の格子欠陥である。1.6 eV 付近に中心を持つ吸収バンドを形成する。比較的短寿命であり，その寿命は結晶内の他の欠陥の影響を受け，室温で数 ns から数 10 秒まで変化する。スモールポーラロンはバイポーラロンの光解離や他の不純物準位などから伝導帯への電子の光励起に伴って形成される。

著 者

畑野 秀樹 (はたの ひでき)

- a. 研究開発本部 総合研究所、高機能デバイス研究部
- b. 1978年4月
- c. 光磁気動画記録再生装置，投射型表示用光導電型液晶ライトバルブ素子などの研究開発を経て，体積ホログラムメモリの研究開発に従事。工学博士。