

3次元多層ビット記録型光メモリ

田中 拓男^{1,2,3}, 河田 聡^{1,2,3,4}

¹(独)理化学研究所 ナノフォトニクス研究室(〒351-0198 埼玉県和光市広沢2-1)

²阪大フロンティア研究機構(〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-1)

³(独)科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業

⁴大阪大学 大学院工学研究科(〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-1)

Three-Dimensional Multi-Layered Bit-Oriented Optical Storage

Takuo TANAKA^{1,2,3} and Satoshi KAWATA^{1,2,3,4}

¹RIKEN (The Institute of Physical and Chemical Research), Nanophotonics Laboratory
2-1 Hirosawa, Wako, Saitama 351-0198

²Handai Frontier Research Center 2-1, Yamada-oka, Suita, Osaka 565-0871

³Core Research for Evolutional Science and Technology

⁴Graduate School of Engineering, Osaka University, 2-1, Yamada-oka, Suita, Osaka 565-0871

(Received July 8, 2003)

Three-dimensional multi-layered optical storage is one of the most promising methods that break the limitation of recording density in optical storage. It stores the bit information onto the multilayered recording planes inside the thick recording medium and realizes the tremendous large recording capacity. This paper describes the recording/reading principles, the systems, and the materials suitable for three-dimensional multi-layered memory. We also present the experimental results that using photochromic organic materials and rhodamine-B-doped and Au(III)-doped PMMA for recording medium.

Key words: Three-dimensional microscopy, Optical memory, Confocal microscopy, Two-photon microscopy, Photochromic material

1. はじめに ～2次元から3次元へ～

VHSのビデオテープが急速にDVDへ置き換わろうとしている。ビデオテープとDVDの違いは何なのか？アナログ記録とデジタル記録、磁気記録と光記録など細かく上げてゆくとキリがないが、どちらも記録できるのは約2時間の映像(映画)である。実際に記録されているものだけを考えれば、DVDもVHSテープも大した違いはない。両者の本質的な違いは、前者がリールに巻かれたテープに情報を記録する1次元記録なのに対し、後者が2次元平面に広がったディスクに情報を記録していることである。つまりDVDでは情報が平面に記録されているので、好きな場所へ瞬時にジャンプできる。テープをリールに巻かなければならないビデオテープでは到底真似ができない。情報を記録する次元を1次元から2次元に高めたことで獲得したこの高いアクセススピードこそが、DVDの最も大きなメリットである。これは、次世代の光メモリの形態に対する1つの答えを与えてくれる。本特集でとりあげるようなテラバイトクラスの記憶装置を作る場合は、単に容量が大きければ良いというものではな

い。必要な情報をすばやく記録・再生できることも重要である。そのためには、これまで2次元に記録していた光メモリの次元をさらに1つ増やして、3次元にするのがもっともシンプルでスマートな方法である(Fig. 1)。要するに記録層を3次元的に多層にしてやれば良いわけで、これは普段読んでいる書籍が複数のページからできているのと同じである。誰も一枚の紙に小さな文字をピシッと印刷したり、大きな紙を持ち歩いたりはしない。人間は昔から扱いやすいサイズのものを積み重ねるという3次元多層記録を行ってきたのである。本報では、このビットデータの記録層を3次元的に多層化した多層記録光メモリを取り上げ、その技術背景を解説するとともに、筆者らが行った実験結果を紹介する。

2. 3次元多層光メモリを実現するには

3次元多層記録のアイデアそのものは新しいものではない。既に様々な研究が行われ、記録材料や記録原理、記録・再生光学系について多くの提案がなされている。例えばRenzepisらのグループは、1989年にフォトクロミック

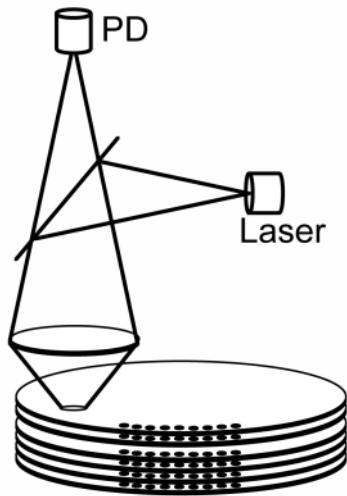


Fig. 1 Schematic diagram of three-dimensional multi-layered optical memory.

材料を用いた3次元光メモリを提案し¹⁾、現在も精力的に研究を行っている。Stricklerらは2光子吸収過程を用いて、記録媒体中に局所的な屈折率変化を生じさせ、これを微分干渉顕微鏡法により再生する手法を提案した²⁾。国内でも大阪大学において我々のグループが、1992年にまずフォトリフラクティブポリマーを用いて、ビット情報を材料の屈折率変化として記録する3次元メモリを提案した³⁾。この材料は、書き換えのできないWrite-Once型のメモリ材料であったが、その後LiNbO₃などのフォトリフラクティブ結晶や^{4,6)}、フォトクロミック材料を用いた^{7,8)}書き換え可能な3次元光メモリも提案した。静岡大学のKawataは、ウレタン-ウレア共重合体を記録材料に用い、材料の光異性化反応を用いて情報を記録することに成功している⁹⁾。さらに我々は、ローダミンB色素と3価の金イオンとの相互作用を利用して、情報を蛍光分布として記録する3次元光メモリを中心に研究を進めている¹⁰⁾。

一方、この3次元多層記録メモリとよく比較されるものに多重記録型のポリウムホログラフィックメモリがあるが、この両者に関して我々はその記録密度を解析的に比較し、トータルの記録密度については、多層記録ビット型光メモリの方が有利であることを示した¹¹⁾。これ以外にも国内外を通して多くの研究がなされている。

さて、この3次元多層記録を実現するには、情報を奥行き方向に多層に記録、再生できなければならない。ところが、現在の光メモリに使用されているピックアップ光学系ではこれは実現できない。その理由は、光学顕微鏡の特性を考えれば解る。なぜならビット記録型光メモリのピックアップは、ディスク上に記録された微小な凹凸を光とレンズで観察しているわけで、ピックアップレンズを顕微鏡の対物レンズ、光ディスクを顕微鏡試料と考えれば、これは光学顕微鏡と変わらないからである。Fig. 2(a)は、一般に用いられるインコヒーレント照明の明視野顕微鏡の3次元光学的伝達関数である¹²⁾。網掛けを施した領域は、伝達関数が値を持つ領域であり、横軸が光軸方向の空間周波数(k_z)に対応し、縦軸が面内(半径)方向の空

間周波数(k_r)に対応する。ここで重要なのは、この伝達関数が k_z 軸上に値を持っていないことである。これは、試料が持つ3次元構造のうち、光軸方向(奥行き方向)の構造をこの光学顕微鏡が全く像空間に伝達しないことを示している。つまり、たとえ物体が3次的に広がった構造を持っていても検出側(観察側)ではこれを知ることができず、物体の像は単にボケるだけである。これは3次元物体の構造の一断面を選択的に観察できないことでもある。このように書くと少々難しいが、顕微鏡を扱う場合試料を薄くスライスして観察していたことを思い出せば良い。顕微鏡では、試料に厚みがあるとボケた像が邪魔をして観察できないので、あらかじめ物理的に破壊して奥行き方向の構造(厚み)をなくしてから観察していたのである。

光源にレーザーを用いるレーザー走査顕微鏡の3次元伝達関数も、Fig. 2(a)のインコヒーレント照明顕微鏡の伝達関数と全く同じであることが証明されている¹²⁾。つまり、光ピックアップもやはり3次元的な空間周波数伝達帯域を持たず、3次元空間に情報を記録したり再生することができないのである。

3次元物体を観察できないという光学顕微鏡の問題を解決する手段として、共焦点蛍光顕微鏡^{13,14)}や2光子蛍光顕微鏡がある^{15,16)}。共焦点蛍光顕微鏡と2光子蛍光顕微鏡の3次元伝達関数をFig. 2(b), (c)に示す。また、共焦点顕微鏡の光学系をFig. 3に示す。共焦点光学系がそれまでの顕微鏡光学系と大きく異なるのは、光の検出器が受光面積の小さい点検出器で構成されており、点光源であるレーザーとレーザーの集光点、ならびに点検出器が互いに共役な位置関係に配置されていることである。実際の装置では図のように、小さな検出器を用いるのではなく光検出器の前にピンホールを配置する。原理の詳細は文献に譲るが、ポイントは、レーザーの集光点以外からの光をこのピンホールがカットするので、焦点からはずれた光はボケて重なるのではなく消えてしまい、焦点を合わせた位置の像だけが選択的に観察できることである。後述するが、2光子顕微鏡では2光子過程の非線形性がこのピンホールと同様の効果を与える。いずれにしても、Fig. 2(b), (c)に示すようにこれらの光学系の伝達関数は k_z 軸

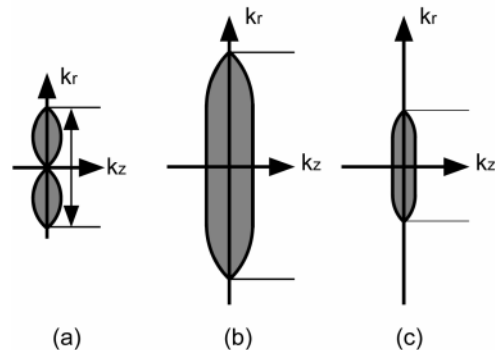


Fig. 2 Optical transfer functions. (a) incoherent illumination microscopy and laser scanning microscopy, (b)confocal fluorescent microscopy, and (c)two-photon fluorescent microscopy.

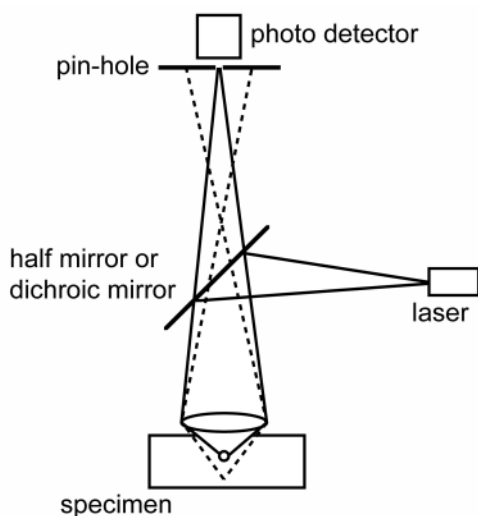


Fig. 3 Schematic optical setup of confocal microscope.

上に伝達帯域を持っており、物体の3次元情報を像空間に伝達していることがわかる。(2光子顕微鏡の帯域が共焦点蛍光顕微鏡と比べて小さいのは、用いる光源の波長が2倍長いためである)。この光軸方向の伝達(結像)能力は光メモリのピックアップとしては、多層に記録されたデータを1層ずつ選択的に分離して記録・再生できることを意味しており、このような特性を持つ光学系を用いれば、Fig. 1に示したような、多層記録のビット型光メモリが実現できる。

3. 3次元多層ビット記録型光メモリの実際

先にも述べたように3次元多層光メモリには、さまざまな手法が提案されている。情報の記録方法だけでも、記録材料の屈折率変化として記録するものや、吸収率、反射率、蛍光発光強度の変化、さらには光学異方性の変化で記録するものなどがある。ここでは、これらの中からフォトクロミック色素を用いたものと、情報を蛍光発光分布として記録する手法の2つを取り上げる。

3.1 フォトクロミック色素を用いた3次元光メモリ

フォトクロミック色素とは、光照射によってその吸収スペクトルが変化する色素である。一例として九州大学の入江らによって開発されたジアリルエテン系のフォトクロミック色素cis-1, 2-dicyano-1, 2-bis(2, 4, 5-trimethyl-3-thienyl)ethane (B1536)を取り上げ、その化学構造をFig. 4に、またその吸収スペクトルをFig. 5に示す²⁰⁾。この材料は、開環体と閉環体の2つの構造を持つ。開環体では波長450 nm以下にのみ強い吸収を持ち、色は黄色である。この色素に紫色光を照射すると、構造が開環体から閉環体に変化する。すると、波長512 nm付近に新たな吸収帯が現れ、そのスペクトルの変化に伴って色も黄色から赤色へと変化する。閉環体の色素に500 nm付近の光を照射すると、逆の反応が起こり閉環体は開環体へ戻る。このようにフォトクロミック色素とは、光照射により分子構造が可逆的に変化し、その構造変化に伴い吸収スペクトル

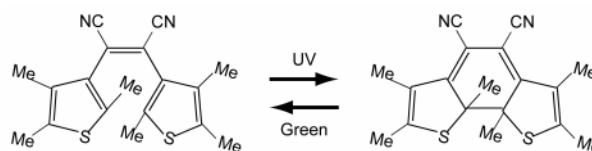


Fig. 4 Chemical structures of cis-1, 2-dicyano-1, 2-bis(2, 4, 5-trimethyl-3-thienyl)ethane (B1536) and photochemical reaction.

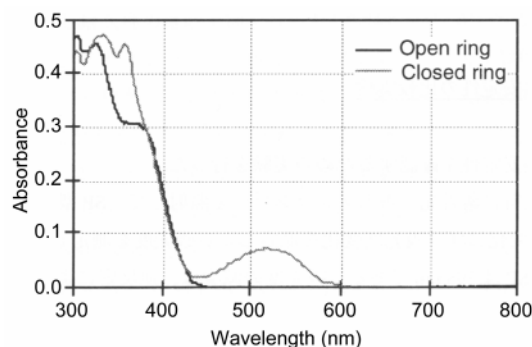


Fig. 5 Absorption spectra of B1536.

が変化する材料である。この可逆的な反応を利用すると、データの書き換えができる光メモリを作ることができる。

フォトクロミック材料を3次元光メモリに利用する場合は、フォトクロミズムを誘起する波長の光をそのまま照射してはいけない。それは、レーザーを記録材料内部の特定のデータ層だけに集光して照射しても、実際にはその上下の層にも光は照射されるので、これらの層のデータも同時に書き換わってしまう(破壊されてしまう)からである。そこで利用するのが、2光子吸収という現象である。ふつう物質内の電子は、その物質のエネルギーギャップと同じエネルギーを持つ光子を1つ吸収して、基底状態から励起状態に遷移する。これを1光子吸収過程という。一方、2光子吸収過程とは、電子がエネルギーギャップの半分に相当するエネルギーを持つ光子を2つ同時に吸収して励起状態に遷移する現象である。光のエネルギーは、光の振動数に比例し、また真空中の波長に反比例するので、例えば400 nmに相当する吸収を2光子過程で起こすには、800 nmの光を照射すればよい。この時重要なのは、1光子吸収が光強度に比例して起こるのに対し、2光子吸収は光強度の2乗に比例して起こることである。この非線形性のために、2光子吸収は光子密度の高い集光レーザースポット付近のみで起こり、焦点以外ではほとんど起こらない¹⁵⁾。つまり、この2乗特性が共焦点光学系のピンホールと同じ作用を生み、これを利用すれば、3次元空間内の局所的な1点のみで光反応を起こしたり、その点からの信号だけを検出することができる。さらに光源は近赤外光を用いることになるので、記録材料中での光の散乱効率が小さくなり、光を記録媒体の奥深くまで到達させることができるというメリットも生まれる。

フォトクロミック光メモリの場合、データの再生方法も慎重に検討しなければならない。データを再生する時

は、記録したデータを破壊せずに読み出さなければならないが、そのためには吸収率の変化つまり色素の色の変化を情報として再生してはいけい。光を吸収させるとフォトクロミック反応が誘起され、分子が元に戻って情報が消えてしまうからである。この問題を解決してデータを非破壊で再生するには、吸収スペクトルの変化に伴う屈折率の変化を検出するのが良い。例えば、Fig. 4に示したB1536の場合、波長650 nm以上の波長域ではほとんど吸収はないが、フォトクロミック反応によって生じた520 nm付近の吸収帯による屈折率変化はこの波長域でも存在する。この屈折率の変化を反射率の変化としてレーザー走査共焦点反射顕微鏡で再生すれば、高い3次元分解能で非破壊に情報を再生することができる。

Fig. 6にジアリールエテンを用いた多層記録光メモリの記録・再生実験の結果を示す。実験では、記録光源に波長780 nm、パルス幅80 fsecのチタンサファイアレーザーを、再生光源には波長632.8 nmのHe-Neレーザーを用いて、ビット間隔2 μm 、層間隔5 μm で26層のデータを記録再生した。最近では、ビット間隔1.5 μm 、層間隔3 μm で46層の記録再生に成功している。これは記録密度に換算して13.2 GBit/in²に相当する。

同じくフォトクロミック色素を利用した3次元光メモリとして、Renzepisらのグループは、スピロピラン系の材料を用いた手法を提案している¹⁾。彼らも2光子吸収過程を

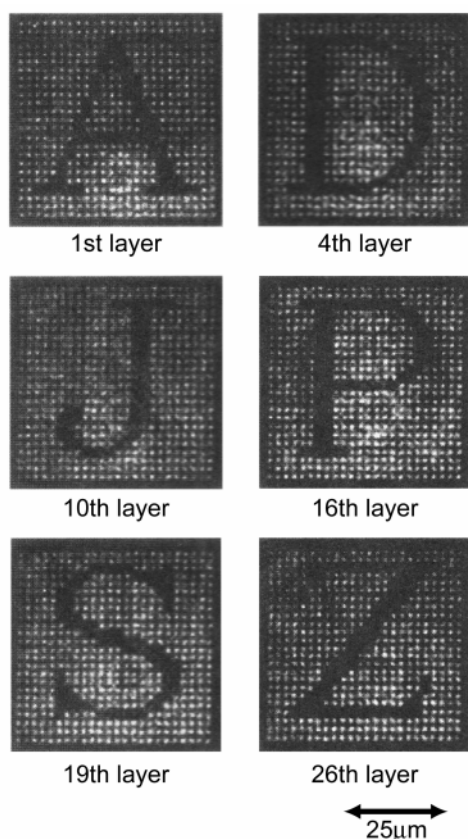


Fig. 6 Readouts of bit patterns written into photochromic memory using B1536. The bit and layer intervals were 2 and 5 μm , respectively. The recorded data were read using a reflection confocal microscope.

利用しているが、1波長の光のみで2光子吸収を起こすのではなく、Fig. 7のように、1064 nmと532 nmの2つの波長の光を使用し、両者が同時に照射された部位のみで光の吸収が起こるといふ2波長の2光子吸収過程を利用している。そして2つのレーザー光をInformation beamとAddressing beamとみなして立方体の記録材料中に互いに直交する方向から照射し、両ビームが重なるところのみで2光子反応を励起させて3次的に情報を記録している。また、再生時にも2光子励起蛍光を用いて、記録したビットからの蛍光発光として情報を再生している。

3.2 蛍光記録型光メモリ

試料からの蛍光発光分布を3次的に観察できる共焦点蛍光顕微鏡を光メモリに応用するには、情報を蛍光の発光強度分布(発光する/しないなど)として記録できる材料が必要である。例えば、Renzepisのグループは、ローダミンB色素がpHの違いによって分子構造が変化し、その構造変化に伴って蛍光発光がOn/Offするという現象を利用した記録材料を提案している¹⁸⁾。また我々は同じローダミンB色素を用いながらも、金属錯イオンと蛍光色素の相互作用を利用した記録材料を開発し、これを用いた3次元光メモリを提案した¹⁰⁾。

我々が開発した記録材料は、塩化金酸とローダミンB色素をポリメタクリル酸メチル樹脂(PMMA)に分散させたものである。この材料の蛍光分布の記録メカニズムをFig. 8に示す。塩化金酸から供給される3価の金イオン(以下Au(III))がローダミンB分子の近くにあると、ローダミンB分子の蛍光を光励起しても、励起されたローダミンB分子のエネルギーはAu(III)にエネルギー遷移し、結果としてローダミンB分子はクエンチ(消光)される(Fig. (a))。この状態は、記録材料に何も情報が記録されていない初期状態に対応する。この材料に紫~紫外領域の光(波長310 nmに吸収ピーク)を照射すると、Au(III)は光化学反応

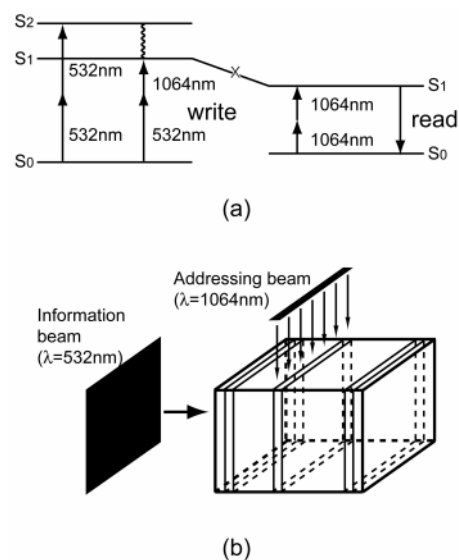


Fig. 7 Two-photon photochromic three-dimensional memory. (a) Schematic representation of "Write" and "Read" processes, (b) Two-photon 3D memory addressing with orthogonally propagating beams.

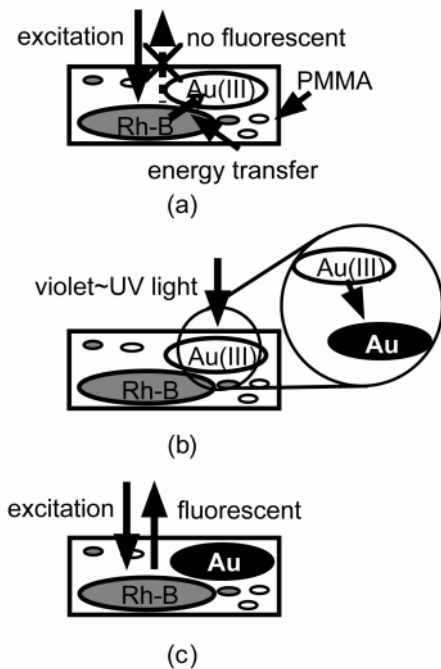


Fig. 8 The recording mechanism of the fluorescent patterns inside the Au (III)-doped and rhodamine-B doped PMMA medium. The details are given in the text.

もしくは熱反応により、ナノメートルサイズの金微粒子に還元される (Fig. (b)). 還元された金ナノ微粒子はAu (III)とはエネルギー状態が異なるので、エネルギー遷移が起こらずローダミンBをクエンチしなくなる。つまり紫外光を照射して金イオンを還元した領域のローダミンB分子は、再活性され蛍光を発するようになる (Fig. (c))¹⁹⁾。紫外光の照射条件を調整して生成される金微粒子の粒径を制御したり、ローダミンBの励起光の波長をうまく選択すると、金微粒子表面に局在モードの表面プラズモンが励起される²⁰⁾。この時、金微粒子表面の電場は数桁程度増強されるので、これを利用すれば蛍光分子からさらに強い蛍光を発光させることが可能となり、再生信号のS/N比が向上する。

実験で用いた記録材料は、メタクリル酸メチル(MMA)を溶媒として、これにPMMA、ローダミンBと塩化金酸を混合した。これを十分に攪拌した後スライドガラス上にキャストして溶媒を揮発させポリマーフィルムを作成した。実験に用いた記録光学系をFig. 9に示す。光源には、波長441.6 nm, 出力10 mWのHe-Cdレーザーを使用した。このレーザー光をビームエキスパンダーでコリメートし、対物レンズで回折限界にまで集光した。用いた対物レンズは40倍, NA= 0.65である。記録材料は, x-y-zステージ上にセットし, コンピュータ制御により3次元走査した。記録したデータのビット間隔は5 μm , 上下方向のデータ層間隔は10 μm で, 計5層の記録を行った。記録したデータは, カールツァイス社製レーザー走査共焦点顕微鏡LSM-410により再生した。再生光には, He-Neレーザー(543.5 nm)を用いた。Fig. 10がその実験結果である。それぞれの層の情報は高いコントラストで再生できており, 上下の層からのクロストークもない。この結果から共焦点蛍光顕微光学系のもつ高い3次元分解能の効果と3

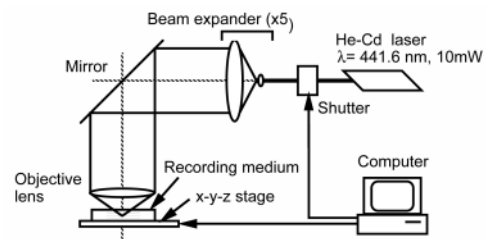


Fig. 9 Optical recording system for three-dimensional multi-layered memory.

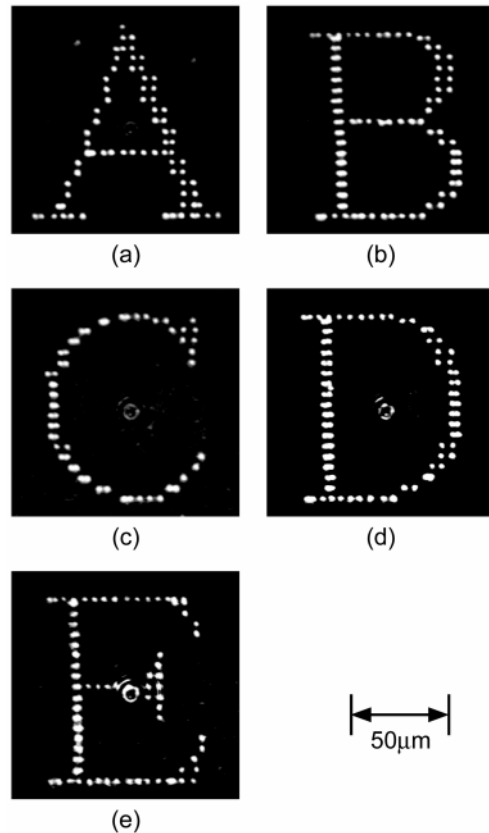


Fig. 10 Experimental results of three-dimensional recording. (a), (b), (c), (d), and (e) are the first (nearest to the medium's surface), second, third, fourth, and fifth layer, respectively. The bit data are recorded every 5 \times 5 μm in a lateral plane, and the longitudinal distance between data planes is 10 μm .

次元光メモリへの有効性が確認できた。

4. 今後の展望

CDやDVDがこれだけ広く利用されている以上、次世代の大容量光メモリもこれらを無視できない。3次元多層メモリには、トラッキングの手法などこれまでのDVDの開発で蓄積した多くの技術を利用でき、またこれまでの光メモリと互換性を保つことが出来るという大きなメリットがある。もちろん新しく開発しなければならない技術もある。例えば透明に近い記録材料の中に多層に記録したデータ層の中から、特定の1層だけに正確にフォーカスを合わせるには、奥行き方向も含めた3次元的なトラッキ

ング方法を開発しなければならない。また2光子過程を用いた光記録技術についても、小型・低消費電力の超短パルスレーザーの開発が必要である。しかし、数年前では単なる夢物語であったこれらの技術も、ここ数年の急速な技術進歩により実現の可能性が見えてきた。最先端の技術を駆使すれば、近い将来必ずテラバイトクラスの超大容量を持った光メモリが手に入るようになる。そうなれば我々はもう情報を取捨選択してから記録する必要はない。面倒なビデオの録画予約から解放され、各個人が見たいもの聞きたいものなど好きな情報を好きなだけ記録・保存できるようになる。テラバイトという容量は単に 10^{12} バイトという数字だけの問題ではない。携帯電話が、それまでの電話のあり方やコミュニケーションの概念を一変したように、超大容量の光メモリは情報記録の概念に劇的な変化を与えるのである。

参考文献

1) D. A. Parthenopoulos and P. M. Rentzepis: *Science*, **245** (1989) 843.

2) J. H. Strickler and W. W. Webb: *Opt. Lett.* **16** (1991) 1780.
 3) S. Kawata, T. Tanaka, Y. Hashimoto, and Y. Kawata: *Proc. SPIE*, **2042** (1993) 314.
 4) Y. Kawata, H. Ueki, Y. Hashimoto, and S. Kawata: *Appl. Opt.* **34** (1995) 4105.
 5) H. Ueki, Y. Kawata, and S. Kawata: *Appl. Opt.* **35** (1996) 2457.
 6) Y. Kawata, T. Tanaka, and S. Kawata: *Appl. Opt.* **35** (1996) 5308.
 7) A. Toriumi, J. Herrmann, and S. Kawata: *Opt. Lett.* **22** (1997) 555.
 8) A. Toriumi, S. Kawata, and M. Gu: *Opt. Lett.* **23** (1998) 1924.
 9) M. Ishikawa, Y. Kawata, C. Egami, O. Sugihara, N. Okamoto, M. Tsuchimori, and O. Watanabe: *Technical Digest of International Symposium on Optical Memory (ISOM) 1998* (1998) 142.
 10) T. Tanaka and S. Yamamoto: *Opt. Commun.* **212** (2002) 45.
 11) T. Tanaka and S. Kawata: *J. Opt. Soc. Am. A*, **13** (1996) 935.
 12) T. Wilson and C. J. R. Sheppard: *THEORY AND PRACTICE OF SCANNING OPTICAL MICROSCOPY* (Academic, London, 1985).
 13) O. Nakamura and S. Kawata: *J. Opt. Soc. Am. A*, **7** (1990) 522.
 14) C. J. R. Sheppard: *Optik*, **74** (1986) 128.
 15) W. Denk, J. H. Strickler, and W. W. Webb: *Science*, **248** (1990) 73.
 16) O. Nakamura and T. Okada: *Optik*, **100** (1995) 167.
 17) M. Irie and M. Mohri: *J. Org. Chem.*, **53** (1988) 803.
 18) A. S. Dvornikov and P. M. Rentzepis: *Opt. Commun.* **136** (1997) 1.
 19) P. Xu and H. Yanagi: *Chem. Mater.* **11** (1999) 2626.
 20) S. Kawata ed: *Near-Field Optics and Surface Plasmon Polaritons* (Springer, Berlin, 2001).

レーザーワード

共焦点顕微鏡(confocal microscope)

共焦点顕微鏡とは、点光源からの光を対物レンズで集光して試料を照明し、さらに試料からの光を再度対物レンズで集めて点光検出器で検出することにより、厚みのある試料中の特定の断面のみを観察できる顕微鏡である。通常、光源にはレーザーを用いるため、共焦点顕微鏡はレーザー走査型顕微鏡であることが多い。また光検出器は、検出器前面にピンホールを配置することによ

て点検出器とする。一般的に、光学顕微鏡では焦点が合っている部位以外の光も重なって見えてしまうため像がぼやけてしまうが、共焦点顕微鏡ではピンホールが焦点面以外の光をカットするため厚い試料の特定の深さの情報を選択的に観察することができる。さらに、厚みのある試料のそれぞれの深度での像をパソコン上で合成すれば三次元構造を構築できる。(田中 拓男)
