

FEIMIAO  
JIGUANG

SANWEI GUANGCUNCHU JISHU YANJIU

# 飞秒激光

## 三维光存储技术研究

蔡建文 ◎著

江苏省自然科学基金资助项目(BK20171197)资助  
江苏省“六大人才高峰”高层次人才资助项目(GDZB-084)资助  
江苏省电气工程及其自动化品牌专业建设一期工程项目资助  
江苏省文化创意协同创新中心项目(XYN1704)资助  
江苏省“333人才工程”科研项目(BRA2016112)资助

# 飞秒激光三维光存储技术研究

蔡建文 著



东南大学出版社

SOUTHEAST UNIVERSITY PRESS

• 南京 •

## 内 容 简 介

本书从科研和实际应用的角度出发,全面、系统地阐述了飞秒激光三维光存储技术的发展现状及相关研究工作。全书共分七章,系统地介绍了飞秒激光双光子三维光存储的原理、特点及国内外发展现状;飞秒激光三维光盘存储系统搭建及测试;折射率失配对双光子三维光存储的影响及补偿研究;飞秒激光三维光存储超分辨研究及飞秒激光三维光存储实验研究等。本书适合从事飞秒激光光存储、微加工、微纳光学器件、微机械等研究的工程技术人员使用,也可以供光学类、机械类、微电子类等专业高校教师和科研人员参考。

## 图书在版编目(CIP)数据

飞秒激光三维光存储技术研究 / 蔡建文著. — 南京 :  
东南大学出版社, 2018. 8

ISBN 978 - 7 - 5641 - 7951 - 9

I. ①飞… II. ①蔡… III. ①飞秒激光—光存储—研究  
IV. ①TN24

中国版本图书馆 CIP 数据核字(2018)第 194613 号

## 飞秒激光三维光存储技术研究

出版发行 东南大学出版社

出版人 江建中

社址 南京市四牌楼 2 号

邮编 210096

经 销 全国各地新华书店

印 刷 虎彩印艺股份有限公司

开 本 700 mm×1000 mm 1/16

印 张 7.75

字 数 180 千字

版 次 2018 年 8 月第 1 版

印 次 2018 年 8 月第 1 次印刷

书 号 ISBN 978 - 7 - 5641 - 7951 - 9

定 价 30.00 元

(本社图书若有印装质量问题,请直接与营销部联系。电话:025-83791830)

# 前言

随着现代科技的飞速发展,信息的数字化越来越盛行,在科学、工业、信息、军事、医学等领域,需要存储的数字化信息以惊人的速度增长。如此大的信息量需要大容量的存储设备来支撑。飞秒激光三维光存储作为高密度和超高密度存储技术之一,在国内外已受到普遍重视,并已成信息存储技术一个研究热点。飞秒激光三维光存储中,如何研制获得稳定、低存储阈值和短曝光时间的存储材料,如何提高开关速度,如何完善多层存储光盘旋转过程中聚焦循道伺服控制,如何补偿折射率失配引起的深层信号强度减弱等,均是当前急需解决的关键问题。本书基于飞秒激光双光子吸收的非线性特性和现有 CD/DVD 成熟的聚焦、循道伺服技术,自行搭建了一套双光头三维光盘存储实验系统,并进行了飞秒激光三维光存储技术和实验方面的研究。

全书共分 7 章,第 1 章绪论概述了光存储的发展现状并简要介绍了高密度和超高密度三维光存储包括飞秒激光双光子三维光存储的原理、特点及国内外发展现状;第 2 章基于飞秒激光三维光存储技术,搭建了一套与 CD/DVD 相兼容的实验存储系统,并采用常规 PID 算法、模糊 PID 算法和最少拍控制算法,对 DVD 光学头进行 Matlab 仿真;第 3 章采用直接测试法和间接测试法对三维光盘存储系统双光头同步性能进行了研究;第 4 章主要分析了折射率失配现象对三维光信息存储的影响,并采用泽尔尼克多项式对折射率失配引起的像差进行补偿研究;第 5 章采用菲涅尔衍射公式对激光焦斑整形进行了理论分析,基于遗传算法和设计约束条件从轴向、横向和三维超分辨通过 Matlab 设计了多种二元相位元件,可以有效地减小加工点的尺寸大小;第 6 章对双光子漂白材料和微爆材料进行多层信息存储及其读出性、存储密度的实验研究;第 7 章总结了本书的研究内容,并展望三维光存储技术未来的发展方向。

本书适合从事飞秒激光光存储、微加工、微纳光学器件、微机械等研究的工程技术人员使用,也可以供光学类、机械类、微电子类等专业高校教师和科研人员参考。

由于作者水平有限,书中难免有错缺之处,敬请同行、专家和读者批评指正,不胜感激!

蔡建文

常州工学院

2018年7月

中南大学出版社  
ISBN 978-7-5641-7951-9  
印制：北京中南卓旗印务有限公司  
开本：787×1092mm 1/16  
印张：1.0  
字数：130千字  
版次：2018年7月第1版  
印次：2018年7月第1次印刷  
定价：35元

中南大学出版社  
出版物编号：2018第19453号

宋村山面大雄深

中南大学出版社  
印制：北京中南卓旗印务有限公司  
开本：787×1092mm 1/16  
印张：1.0  
字数：130千字  
版次：2018年7月第1版  
印次：2018年7月第1次印刷  
定价：35元

# 目 录

|          |                       |        |
|----------|-----------------------|--------|
| <b>1</b> | <b>绪论</b>             | ( 1 )  |
| 1.1      | 光信息存储概述               | ( 1 )  |
| 1.2      | 二维光盘存储发展现状            | ( 1 )  |
| 1.3      | 三维光存储技术发展现状           | ( 3 )  |
| 1.3.1    | 光谱烧孔光存储技术             | ( 3 )  |
| 1.3.2    | 体全息光存储技术              | ( 4 )  |
| 1.3.3    | 双光子吸收三维光存储技术          | ( 6 )  |
| 1.4      | 飞秒激光微爆三维光存储技术         | ( 9 )  |
| 1.5      | 三维光存储技术实用化发展现状        | ( 10 ) |
| 1.5.1    | 多层荧光光盘存储              | ( 10 ) |
| 1.5.2    | Call/Recall 公司三维光存储研究 | ( 11 ) |
| 1.5.3    | 新型波导多层光存储             | ( 13 ) |
| 1.6      | 本书主要研究内容              | ( 13 ) |
| <b>2</b> | <b>飞秒激光三维光盘存储系统搭建</b> | ( 15 ) |
| 2.1      | 引言                    | ( 15 ) |
| 2.2      | CD/DVD 技术             | ( 16 ) |
| 2.2.1    | CD/DVD 系统介绍           | ( 16 ) |
| 2.2.2    | CD/DVD 系统伺服技术         | ( 16 ) |
| 2.3      | 飞秒激光三维光盘存储系统研制        | ( 19 ) |
| 2.3.1    | 声光调制器测控研究             | ( 20 ) |
| 2.3.2    | 盘片结构                  | ( 21 ) |
| 2.3.3    | CD/DVD 光头音圈电机特性测试     | ( 22 ) |
| 2.3.4    | 伺服模块电路控制              | ( 22 ) |
| 2.3.5    | 读/写光头电路控制             | ( 23 ) |

|                                 |      |
|---------------------------------|------|
| 2.3.6 读/写模块共焦系统                 | (24) |
| 2.3.7 软件控制                      | (25) |
| 2.4 系统模型及仿真                     | (26) |
| 2.4.1 音圈电机原理及模型                 | (26) |
| 2.4.2 音圈电机模型参数的计算               | (26) |
| 2.4.3 噪音模型                      | (27) |
| 2.4.4 系统模型及仿真                   | (28) |
| 2.5 光学头的常规 PID 控制器设计            | (31) |
| 2.5.1 数字式 PID 控制算法              | (31) |
| 2.5.2 DVD 光学读取头的 PID 控制仿真       | (32) |
| 2.6 光学头的模糊 PID 控制器设计            | (33) |
| 2.6.1 模糊 PID 算法                 | (33) |
| 2.6.2 DVD 光学读取头的模糊 PID 控制仿真     | (34) |
| 2.7 光学头的最少拍控制器设计                | (36) |
| 2.8 本章小节                        | (38) |
| <b>3 飞秒激光三维光盘存储系统的测试</b>        | (39) |
| 3.1 直接测试法                       | (39) |
| 3.2 间接测试法                       | (41) |
| 3.2.1 测试原理                      | (41) |
| 3.2.2 测试实验结果及分析                 | (45) |
| 3.3 本章小节                        | (46) |
| <b>4 折射率失配对双光子三维光存储的影响及补偿研究</b> | (47) |
| 4.1 引言                          | (47) |
| 4.2 三维光存储中折射率失配引起的像差理论和实验研究     | (47) |
| 4.2.1 模型建立及理论计算                 | (47) |
| 4.2.2 实验研究                      | (52) |
| 4.3 三维光存储中折射率失配引起的像差补偿研究        | (53) |
| 4.3.1 像差补偿理论模拟计算                | (53) |

|   |              |
|---|--------------|
| 4.3.2 像差补偿方法研究 .....                                | (56)         |
| 4.4 本章小节 .....                                      | (58)         |
| <b>5 飞秒激光三维光存储超分辨研究 .....</b>                       | <b>(59)</b>  |
| 5.1 引言 .....  | (59)         |
| 5.2 飞秒激光三维光存储分辨机理研究 .....                           | (61)         |
| 5.2.1 高斯光束轴向超分辨 .....                               | (61)         |
| 5.2.2 横向超分辨机理 .....                                 | (64)         |
| 5.2.3 三维超分辨 .....                                   | (70)         |
| 5.3 本章小节 .....                                      | (72)         |
| <b>6 飞秒激光三维光存储实验研究 .....</b>                        | <b>(74)</b>  |
| 6.1 引言 .....  | (74)         |
| 6.2 光致漂白材料的双光子存储性能实验研究 .....                        | (75)         |
| 6.2.1 二苯乙烯衍生物存储实验研究 .....                           | (75)         |
| 6.2.2 芳类衍生物 .....                                   | (81)         |
| 6.2.3 嘧啶类材料 .....                                   | (84)         |
| 6.3 微爆材料的存储性能实验研究 .....                             | (88)         |
| 6.3.1 PMMA 为基质掺杂 Ce(DBM) <sub>3</sub> Phen 染料 ..... | (89)         |
| 6.3.2 纳米银掺杂聚合物 .....                                | (94)         |
| 6.4 本章小节 .....                                      | (98)         |
| <b>7 总结与展望 .....</b>                                | <b>(100)</b> |
| 7.1 总结 .....  | (100)        |
| 7.2 工作展望 .....                                      | (102)        |
| <b>参考文献 .....</b>                                   | <b>(104)</b> |

## 1.2 二维光盘存储发展现状

光盘存储技术发展到 20 世纪 80 年代，开创了 CD(Compact Disk)的应用新时代。到 20 世纪 90 年代，与只读式光盘读出驱动器相配套的一次写入型和可擦重写型系列光盘相继问世在多媒体领域，我们可以把 CD 系列光存储设备称作第一

# 1

# 绪论

## 1.1 光信息存储概述

随着现代科技的飞速发展,信息的数字化越来越盛行,在科学、工业、信息、军事、医学等领域,需要存储的数字化信息都在以惊人的速度增长。如此大的信息量需要大容量的存储设备来支撑。20世纪80年代到90年代,人们最关心的是信息处理,即如何提高计算机芯片的处理速率和效率,全球因此掀起了计算机主处理器(CPU)技术大战;90年代后期通信网络兴起,大家可以共享数据和通信,有人讲“网络就是计算机”;进入21世纪,人们要考虑如何有效地存储和管理越来越多的数据和如何应用这些数据,信息存储空间日益拥挤,信息数据的采集和数据管理体系的复杂性越来越高。随着网络的普及,Internet/Intranet/Extranet逐步进入单位和个人生活,21世纪信息技术的浪潮将在存储领域兴起。信息技术是21世纪的关键技术,信息产业是21世纪的支柱产业。在信息技术的几个环节(获取、传播、存储、显示和处理)中,信息存储是关键环节之一。

光信息存储技术是从20世纪70年代开拓出来的。在写入信息时,采用具有很高相干性、方向性和单色性的激光束通过透镜紧聚焦到光存储介质中,用调制激光束载入要存储的信息,使这个微光斑区域内的存储介质产生物理或化学变化,从而导致该微区域的某种光学性质(如荧光性、折射率、透射率等)与四周介质形成较大的反差;读取信息时采用另一束能量较低的激光检测光信号,然后经过解调以读出信息。

## 1.2 二维光盘存储发展现状

光盘存储技术发展到20世纪80年代,开创了CD(Compact Disk)的应用新纪元。到20世纪90年代,与只读式光盘读出驱动器相兼容的一次写入型和可擦重写型系列光盘相继出现在多媒体领域,我们可以把CD系列光存储设备称作第一

代光盘技术,其主要特点是应用 GaAlAs 半导体激光器为读取和记录光源,其激光束波长在 780~830 nm 之间。而随之出现的 DVD(Digital Versatile Disk)光盘及其读取/存储器则被称为第二代光盘技术,其主要特点是以 GaAlInP 半导体激光器为光源,激光波长在 630~650 nm。由于对数据容量的需求越来越大,近年来以 HD-DVD(High Density Digital Versatile Disk)和 BD(Blue-Ray Disk)为代表的大容量 DVD 碟片在市场上出现,这些碟片可称之为第三代光盘技术,其主要特点为采用 ZnCdSe 半导体激光器(波长在 500~550 nm)或 GaN 半导体激光器(波长在 400~450 nm)进行读写,亦称为高密度 DVD 光盘系列。相对于 CD 和 DVD 光盘系列,HD-DVD 和 BD 具有更高的面存储密度和数据传输速率。上述三代光盘系列的数据点均是由一些信息坑组成的,光束经过信息坑边缘时反射光强发生变化时为“1”,而在坑内和坑面上时均为“0”。表 1.1 为上述三代光盘技术各项参数对比。从表中我们可以看出,HD-DVD 和 BD 通过采用较短的激光波长、较高的数值孔径实现了更高的面密度。

表 1.1 CD、DVD、HD-DVD、BD 标准对比

| 参数              | CD   | DVD  | HD-DVD | BD   |
|-----------------|------|------|--------|------|
| 激光波长(nm)        | 780  | 650  | 405    | 405  |
| 数值孔径            | 0.45 | 0.60 | 0.65   | 0.85 |
| 容量(GB)          | 0.65 | 4.7  | 15     | 25   |
| 数据记录点大小(μm)     | 1.74 | 1.08 | 0.62   | 0.48 |
| 道间距(μm)         | 1.6  | 0.74 | 0.46   | 0.32 |
| 最小凹坑长度(μm)      | 0.83 | 0.4  | 0.22   | 0.14 |
| 数据传输速率(Mbits/s) | 1.44 | 10   | 13     | 36   |
| 光头工作距离(mm)      | 1.2  | 0.6  | 0.6    | 0.1  |

BD、HD-DVD、DVD 和 CD 碟片外观十分相似,直径为 120 mm,厚度为 1.2 mm,但本质上它们的区别很大。CD 只有一种物理结构,为单面单层,存储容量为 0.65 GB;DVD 可以分为单面单层、单面双层、双面单层和双面双层四种物理结构,单面单层的 DVD 容量为 4.7 GB,而双面双层的 DVD 容量可达 17 GB;HD-DVD 一般有单面和双面两种物理结构,存储容量分别为 15 GB 和 30 GB;BD 通常有单面单层和单面双层两种物理结构,存储容量可分别达到 25 GB 和 50 GB。由于第三代光盘技术还没有完全市场化,现在市场上的主流产品还是以第二代光盘技术为主。

BD 光盘使用蓝光把代码刻制到光盘上,而不是用红光,其数据存储量为一张单面密度盘的 5 倍,容量为 25 GB,而同样普通 DVD 盘则只能储存 4.7 GB 的

数据。相比 DVD 光盘,蓝光光盘在技术上主要有两方面的提高:首先,在蓝光光盘上,数据记录轨道间的距离被减少到  $0.32 \mu\text{m}$ ,只有常规 DVD 的一半左右;其次,蓝光光盘具备更小的数据记录点,让蓝光光盘在相同的盘片面积上可以有更多的数据记录点与轨道。这种新型光盘可以录制 2 个多小时的高密度数字图像,13 个小时的常规电视图像,而目前的单面 DVD 盘只能录制 133 分钟的常规电视图像。

虽然二维光盘存储技术有了飞速发展,但是,二维光盘存储技术在传统的光学系统和二维存储模式下,光存储的密度已经接近由物镜的数值孔径和激光波长所确定的衍射极限,因此存储密度和存储容量的提高受到了很大限制。

## 1.3 三维光存储技术发展现状

由于二维光存储技术的局限性,需要从其他方面来提高光存储容量,如从传统分辨率发展到超分辨率<sup>[1-5]</sup>、从二阶编码到多阶编码<sup>[6,7]</sup>、从单波长到多波长<sup>[8]</sup>、从单光子效应到双光子效应、从二维存储到三维甚至多维存储,下面将对三维光存储技术以及双光子技术等的发展做详细的介绍。

### 1.3.1 光谱烧孔光存储技术

光谱烧孔是指光反应性分子以分子状态分散在低温固体基质中,在激光诱导下发生的具有位置选择性的光化学反应引起吸收光谱带上有选择性地产生光谱孔的一种现象。

原子能级间能量差所决定的吸收光谱为均匀增宽谱线,由于固体中原子(离子)所处环境的差异造成不同环境中的粒子均匀增宽谱线的中心频率不同。这些中心频率不同的均匀增宽谱线叠加在一起就形成了非均匀增宽吸收谱线。由于非均匀增宽谱线上某一频率处对应着一群特定的粒子,当用该

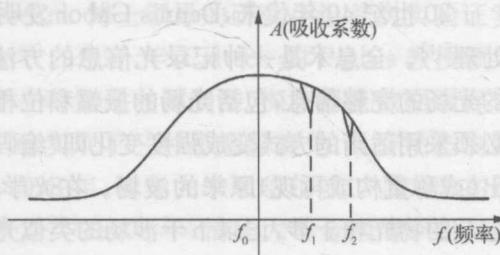


图 1.1 光谱烧孔原理图

频率附近的窄带激光照射时,可使这一群粒子共振吸收而发生光化学变化或光物理变化。整个吸收谱线在该频率附近出现一个凹陷,这就是所谓的烧孔(图 1.1)。若孔可长期保存,即持久烧孔,则可实现信息的记录<sup>[9]</sup>。

光谱烧孔技术是国际上近几十年发展起来的高密度光信息存储技术之一<sup>[10-11]</sup>。1974 年俄罗斯人 B. M. Anarlamov、Personov 等人<sup>[12]</sup>首先在有机分子材

料中发现了光化学反应引起的持久光谱烧孔现象。1985 年 IBM 科学家 W. E. Moerner 首次实现了光子选通光谱烧孔<sup>[13]</sup>, 即写入信息时需烧孔光和选通光同时作用才能烧出孔。读出时不加选通光, 则不会对孔有影响。这可避免多次读出后信息被破坏。目前的光谱烧孔存储技术主要是光子选通光谱烧孔存储技术, 它利用分子对不同频率的光吸收率不同来识别不同分子从而实现分子水平信息存储的技术, 是包括频率在内的三维信息存储技术, 使传统的光盘二维信息存储发展成包含频率域在内的三维的信息存储, 可以使存储密度提高 3~4 个数量级, 达到超高速度存储。

国内在光谱烧孔研究方面也取得了一些重要成果<sup>[14-16]</sup>, 1989 年长春物理所虞家琪课题组成功制备出  $\text{BaFCl}_{0.5}\text{Br}_{0.5}:\text{Sm}^{2+}$  混晶材料, 首先实现液氮温度下的光子选通光谱烧孔。随后, 又进行了混晶体系  $\text{M}_y\text{M}'_{1-y}\text{FCl}_x\text{Br}_{1-x}:\text{Sm}^{2+}$  ( $\text{M}, \text{M}' = \text{Mg}, \text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}$ ) 的光谱烧孔性质研究, 1991 年在  $\text{Ba}_y\text{Sr}'_{1-y}\text{FCl}_{0.5}\text{Br}_{0.5}:\text{Sm}^{2+}$  中实现了室温下的光子选通永久性光谱烧孔。

但是目前光谱烧孔存储技术还处在实验室阶段, 还无法满足实用化的要求, 主要是受到光谱烧孔存储材料的限制。目前, 光谱烧孔光存储的研究主要使用两类材料: Sm 离子掺杂的无机材料以及给体和受体电子转移反应的有机材料体系。光谱烧孔工作温度太低, 一般为液氮温度甚至液氦温度。在同一波段内, 在液氦温度下可以烧出 1 000 个孔, 而在液氮温度下只能烧出不到 100 个孔, 而且随着温度的提高, 孔的宽度会逐渐增加, 当温度达到室温时, 孔会填平而消失。

### 1.3.2 体全息光存储技术

20 世纪 40 年代末, Dennis Gabor 发明了全息术, 将其应用于 X 光图像的放大处理<sup>[17]</sup>。全息术是一种记录光信息的方法。全息图记录的是物体发射或散射出的光场的完整信息, 包括光场的振幅和位相。为了记录位相信息, 光场的位相变化必须采用适当的方式变成强度变化即“编码”, 一旦全息图形成以后, 需要解码还原出(或称重构或再现)原来的波场。在光学全息术中, “编码”是引入参考光波与待记录的物光相干涉, 记录下干涉场的类似光栅结构; “解码”则通过此光栅结构对入射光的衍射, 重构出原来的物光, 两者都是采用光学的方法<sup>[18]</sup>。

1963 年, Van Heerden 提出了全息数据存储的概念<sup>[19]</sup>, 基本原理图如图 1.2 所示。全息存储是基于全息理论的光学信息存储技术, 全息技术的原理包括两个物理光学过程, 即用干涉方法实现的波前记录和用衍射的方法实现的波前再现。波前记录即将激光照射于物体上, 使其物光与参考光互相干涉, 然后将干涉花样记录于全息记录介质上, 使之成为复杂的包含了记录光所有光学信息的光栅(称全息光栅), 该过程在全息存储过程中通常叫做数据的记录或写入; 波前再现即用记录

时所用的参考光或其他适宜光照射记录形成的全息光栅，光线通过全息光栅时的衍射光之间的干涉形成与物光相同或相似的光波，即实现了物光的波前重现，重构了物体的再现像，这个过程又叫数据的读出或取出<sup>[20]</sup>。

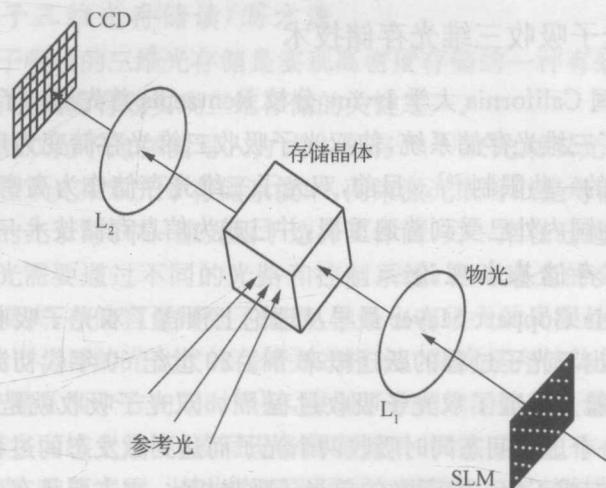


图 1.2 体全息存储原理图

由于体全息存储具有容量大、数据传输率高、数据寻址时间短、具有内容寻址功能、存储冗余度高等方面的特点，因此全息存储成为国内外研究的热点。国外，1991 年美国军方 Northrop 公司 P. H. Mok 已能够在  $1\text{ cm}^3$  掺铁的  $\text{LiNbO}_3$  晶体中存储并高保真再现 500 幅高分辨率军用车辆全息图<sup>[21]</sup>。1994 年美国加州理工学院的 G. W. Burr 等人演示了在  $1\text{ cm}^3 \text{Fe : LiNbO}_3$  晶体中 10 000 幅图像全息图的存储与恢复<sup>[22]</sup>。同年，斯坦福大学 Hesselink 博士领导的研究小组首次实验证实了完整的体全息数字存储系统的可行性<sup>[23]</sup>。1997 年，Caltech 的 Psaltis 教授领导的研究小组为晶体存储系统专门设计了一种集光电调制器、探测器及数据缓存器于一体的硅集成电路，利用该电路，他们已实现了一种小型紧凑化、具有动态刷新功能的原形体全息存储系统<sup>[24]</sup>。国内，1998 年，清华大学和哈尔滨工业大学在铌酸锂晶体中实现了 1 000 幅的存储和恢复<sup>[25]</sup>；2002 年，清华大学金国藩小组又实现了 1 500 幅高分辨率全息图的记录和复现<sup>[26]</sup>；2004 年，北京工业大学<sup>[27]</sup>在掺铁  $\text{LiNbO}_3$  晶体中实现了 1 020 幅汉字图像的存储与恢复。

虽然体全息存储有着上述优点，但是其还存在很多问题需要解决。首先，全息图的正确读取依赖于读出的干涉图像与写入信息是否相同，如果在这过程中干涉图像改变，重现的图像将与输入数据不同；其次，需要记录材料有足够的动态范围，这样才能保证每幅全息图有足够的读出信号强度；再次，从材料改性及全息记录方法两方面设法进一步提高存储系统的响应速度，尤其对记录速度的提高；接着，需

要开发更好的全息记录材料,要求具有大的动态范围、大的光折变灵敏度、高光学质量及低的暗电导率;最后,需要设计抗噪能力更强、编码效率更高的调制编码方法及信号处理技术<sup>[28]</sup>。

### 1.3.3 双光子吸收三维光存储技术

1989年,美国California大学Irvine分校Rentzepis首先提出了双光子三维光存储模型,搭建了三维光存储系统,使双光子吸收三维光存储变为现实,从根本上超越了二维存储的一些限制<sup>[29]</sup>。目前,双光子三维光存储作为高密度和超高密度存储技术之一,在国内外已受到普遍重视,并已成为信息存储技术一个研究热点。

#### 1) 双光子存储基本理论

1931年Maria Göppert-Mayer最早从理论上预言了双光子吸收的存在,并用二阶微扰理论导出双光子过程的跃迁概率<sup>[30]</sup>。20世纪60年代初激光器出现后,Kaiser等人从实验上验证了双光子吸收过程<sup>[31]</sup>。双光子吸收就是在强激光场作用下,分子通过一个虚中间态同时吸收两个光子而达到激发态的过程,其跃迁概率与入射光强的平方成正比。与通常的单光子吸收相比,它主要具有两个突出特点:(1)由于到达激发态所需的光子能量为单光子吸收所需能量的一半,因此可用红外或近红外激光做光源,提高在吸收材料中的穿透力,实现在材料深层进行观察;(2)由于双光子吸收与入射光强的平方成正比,双光子吸收过程被紧紧地局限在焦点附近的很小区域(体积数量级为 $\lambda^3$ ),如此小的有效作用体积不仅使双光子过程具有极其优越的空间分辨率和空间选择性,而且随后发生的诸如荧光或光化学反应过程都被局限在这个极小的体积范围内。

双光子吸收与单光子吸收过程示意图如图1.3所示。物质发生单光子吸收时,吸收一个波长为 $\lambda_1$ 的光子就可以从基态 $S_0$ 到 $S_1$ 态的高振动能级,分子在这个高振动能级上寿命极短,迅速弛豫到第一单重激发态 $S_1$ 的最低能级,而发生双光子吸收时物质同时吸收两个波长相同或波长不同的 $\lambda_2$ 和 $\lambda_3$ 光子到达激发态 $S_1$ 、 $S_2$ 、 $S_n$ ,由于分子的 $S_n$ 态和 $S_1$ 态能量差很小,分子在 $S_n$ 激发态上寿命很短,迅速通过无辐射过程弛豫到第一单重激发态 $S_1$ 的最低振动能级。处于 $S_1$ 态的分子通过无辐射内转换或化学反应失活,也可以通过荧光辐射形式发出较入射光波长长(单光子吸收)或较出射光波长短(双光子吸收)的荧光。

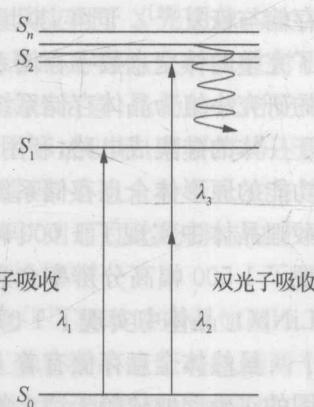


图 1.3 单光子与双光子吸收示意图

一般单光子的吸收截面为  $10^{-17} \sim 10^{-18} \text{ cm}^2$ , 而双光子的吸收截面一般为  $10^{-50} \sim 10^{-46} (\text{cm}^4 \cdot \text{s})/\text{photon}$ , 因此单光子吸收对光密度要求小, 即使弱光也可发生, 而双光子吸收只有在光强足够大的地方才可能发生。

## 2) 双光子三维光存储读/写方法

基于双光子吸收的三维光存储是实现高密度存储的一种有效方法, 而选择采用哪种读/写方法成为有效实现三维存储的关键之一。

目前主要的双光子光存储写入方式主要有<sup>[32, 34]</sup> 双光束双光子写入和单光束双光子写入。在双光束双光子存储系统中, 两束激光既可以是等能量的光子, 也可以是不等能量的光子, 其中一束光用于选择工作面, 另一束在已选择的面上实现信息写入。两束光需要通过不同的光路和控制系统, 在两束光的交点处完成写入。基于这种写入模式, 存储容量得到了提高, 但是也有很大的局限性。首先速度受到很大的限制, 难于与目前光盘式的存储方式相比。其次是存储体体积问题, 由于这种存储方式, 光需从两个方向同时照射, 限制了存储体的体积。最后是写入设备的问题, 由于需要在两维上定位, 读写设备都安置于 XYZ 三维工作台上, 这样设备体积庞大而且昂贵, 难以实用。单光束双光子写入系统由于系统结构简单, 在现在研究工作中普遍采用这种写入方式。

与写入方法相对应的信号读出系统一般有透射共焦和反射共焦两种情况, 反射式共焦读出方式比透射共焦读出方式具有一定的优势, 反射式具有简单的光学系统和高的轴向分辨率, 能够减少存储层间的串扰和消除由存储介质和衬底的不均匀性带来的背景影响。此外, 各种类型的显微镜, 包括位相反衬显微镜、普通透射显微镜、差分干涉反衬显微镜和差分位相反衬扫描显微镜等, 都可以用作三维光存储的读出系统<sup>[33-36]</sup>。

## 3) 双光子三维光存储材料

目前用于研究双光子三维光信息存储的材料主要有光致变色材料、光致漂白材料、光致聚合材料、光致折变材料等。

### (1) 光致变色材料

到现在为止, 已经有多种光致变色材料用于双光子三维或多层记录研究。光致变色材料具有两种同分异构体 A 和 B, 两者具有不同的吸收谱, 记录光和读出光对应不同的吸收系数。记录时, 在记录光的作用下通过双光子吸收将同分异构体 A 转化成同分异构体 B, B 对读出光有吸收作用而对记录光没有吸收作用。用这两种同分异构体的状态分别代表数字“0”和“1”。光致变色材料最适合做可擦重写型光存储介质, 主要有: Spirobenzopyran(螺吡喃)<sup>[29, 37]</sup>、Fulgide(俘精酸酐)<sup>[38]</sup>、Diarylethene(二芳基乙烯)<sup>[39]</sup>、anthracene derivatives(蒽类衍生物)<sup>[40]</sup>、Rhodamine B(罗丹明 B)<sup>[32]</sup>、Azo(偶氮化合物)<sup>[34]</sup>等。但是, 光致变色材料的最大缺点是对光

和热的不稳定性,这需要通过材料结构和掺入的基质材料的变化来改进。

1997年,Rentzepis等<sup>[41]</sup>在光致变色材料上记录100层获得成功。2001年,清华大学齐国生课题组<sup>[38]</sup>在俘精酸酐材料记录中可实现30层,点间距和层间距分别可以达到1 μm和3 μm;2002年课题组<sup>[40]</sup>又对蒽类衍生物体系光致变色材料进行高密度多层记录和读出,实验结果表明,最小层间距有希望达到3 μm以下,最小横向光点尺寸可以达到1 μm以下。

### (2) 光致漂白材料

掺杂荧光染料的聚合物,在双光子吸收的激发下辐射荧光。在低强度的光激发下,辐射的荧光强度与入射光强度的平方成正比。在高强度的光激发下,激发点的染料会被漂白,在相同波长的光激发下,漂白点不再辐射荧光。因此,漂白点与未漂白点可以用来记录数据。

1999年,Gu Min等人<sup>[42]</sup>在光致漂白材料中实现6层存储记录,点间距和层间距分别为4.3 μm和20 μm,存储密度达到3 Gbits/cm<sup>3</sup>;2002年,课题组<sup>[43]</sup>报道了在光致漂白聚合物中使用连续激光光束实现双光子激发进行记录和读出,其记录介质为掺杂有荧光染料AF-50(0.3wt%)的PMMA聚合物。1999年,美国纽约州立大学buffalo分校Paras N. Prasad小组<sup>[44]</sup>在光致变色材料AF-240中进行了多层存储实验研究,对单光子和双光子读出进行了详细的分析,在双光子方式下更容易获得没有层间串扰的存储结果,可以获得更小的层间距,在双光子读出方式下,存储密度可以达到10<sup>12</sup> bits/cm<sup>3</sup>。2003年,美国Kevin D. Belfield等人在芴类衍生物中成功实现了双光子漂白实验研究<sup>[45]</sup>。2003年,希腊I. Polyzos等人在pyrylium chromophores漂白材料中实现了三维存储,最小点间距和层间距分别可以达到1 μm和4 μm<sup>[78]</sup>。

### (3) 光致聚合材料

双光子吸收分子掺入到交联光聚物体系中,在双光子吸收激发下发生光致聚合作用。聚合部分与未聚合部分产生物理性质上的差异(如折射率或荧光强度),这一差异可用来记录数据。这类体系一般包含有:双光子吸收引发剂、聚合单体、稳定剂、助聚合单体和黏结剂,在双光子吸收作用下,引发剂吸收光给出电子产生活性而使得聚合单体发生聚合。

通过利用双光子引发聚合作用,可以在一个厚的(>100 μm)存储介质上实现高密度三维存储。与单光子过程相比,可以实现多层写入而获得更高的信息密度,这是因为:(1)激发光可以深深地穿透到材料内部,并只在焦点区域发生吸收;(2)用长波长的激发光可以降低瑞利散射。利用这个方案,已经证实存储密度可以达到10<sup>12</sup> bits/cm<sup>3</sup>。但是,由于目前所用引发剂的双光子吸收比较弱,这种方法离实用化还有一段距离。

1991年,Watt. W. Webb 等人<sup>[33]</sup>在光致聚合材料中进行三维光存储实验,获得25层记录数据,点间距1 μm,层间距3 μm,存储密度可以达到 $1.3 \times 10^{12}$  bits/cm<sup>3</sup>。1999年,Cumpston 等人<sup>[46]</sup>的最新研究表明,具有D-π-D、D-π-A-π-D和A-π-D-π-A(这里π指π共轭键,D是给体,A是受体)结构的分子具有大的双光子吸收截面δ(高达 $1.250 \times 10^{-50}$  cm<sup>4</sup>·s/photon)。2001年,日本Kawata 小组<sup>[47, 48]</sup>利用光致聚合原理加工出一些功能器件弹簧以及微型小牛等,在当时微加工领域引起了不小的震动。

#### (4) 光致折变材料

光折变晶体(如:LiNbO<sub>3</sub>)首先用于可擦写三维数字光存储,但是这类材料昂贵而且制备困难,所以人们改用光折变聚合物材料作为记录介质实现双光子三维存储<sup>[49-52]</sup>。最新研究表明<sup>[53]</sup>,将光折变聚合物掺入到液晶中能够有效提高折射率的空间调制,这是因为在内部空间电荷场的诱导下液晶偶极子发生重排所致。他们系统研究了在此体系中这种极化现象与荧光性质的关系:在写入光的照射下,焦点附近的液晶偶极子沿照射光的极化方向发生重排,由此而引起的荧光则随读出光束的极化状态发生变化。他们以聚丙烯酸甲酯(PMMA)、液晶材料4-戊基-4-氰基双苯(E49)、光敏材料TNF和增塑剂乙基咔唑(ECZ)组成的聚合物为记录介质,在900 nm的脉冲激光的照射下,得到三维存储密度204.8 G bits/cm<sup>3</sup>。日本大阪大学Kawata课题组<sup>[51, 54]</sup>在LiNbO<sub>3</sub>晶体中实现7层存储,点间距为5 μm,层间距为20 μm。

## 1.4 飞秒激光微爆三维光存储技术

飞秒激光微爆三维光存储是以飞秒激光为写入光源,利用材料的多光子吸收特性进行三维光存储的一种技术。将高功率飞秒脉冲紧聚焦到物质体中,通过单光子或多光子电离激励过程能迅速在局部产生一个高温、高密度的等离子体结构,从而吸收大部分后续激光能量,在透明介质体内聚焦点附近将物质消融,直接通过汽化改变物质的局部结构形成一个微小的空腔。超短激光脉冲几乎不会产生热作用区域和热损伤,能更精密地改变介质的局部物理化学结构,三维光数据体存储就是利用飞秒脉冲激光对光学介质的非线性作用,从而引起透明介质体内某空间位置上结构的改变,导致介质折射率发生较大的变化,用这种办法在介质中记录多层逐位式二进制数据<sup>[55]</sup>。

用于飞秒脉冲光存储的材料很多,包括有机或无机透明介质(如玻璃、熔融石英、钛宝石等),这些存储材料的温度、机械、化学、光学、电学等性质非常稳定,可以在介质中产生十分稳定的记录,不受环境影响,可实现永久性存储。1996年,美国