

飞秒激光永久光存储的发展及挑战

王磊¹, 张栩¹, 王熠², 王琳¹, 王晴¹, 臧雪¹, 李瑞凡³, 胥亦实¹, 李臻贇¹, 陈岐岱^{1*}¹吉林大学电子科学与工程学院, 集成光电子学国家重点实验室, 吉林 长春 130012;²清华大学精密仪器系, 精密测试技术与仪器国家重点实验室, 北京 100084;³吉林大学材料科学与工程学院, 吉林 长春 130012

摘要 面向大数据存储, 总结当前冷数据存储的主要方式及特点, 针对长寿命和高容量的需求, 介绍飞秒激光永久光存储的概念和基本存储内涵; 围绕透明介质材料体内改性的类型, 依次介绍三维光存储和五维光存储的历史发展过程; 阐述了当前具有双折射特性的存储单元形成机制, 超百层的高密度存储技术, 225 kB/s 单通道、潜在 MB/s 多通道的快速直写机制; 并从纳米区域的电场连续性边界条件和光学衍射极限出发, 展望飞秒激光永久光存储在存储容量和写入速度方面的挑战。

关键词 光电器件加工; 飞秒激光; 激光材料加工; 光与物质相互作用; 光存储; 纳米光栅

中图分类号 TN249

文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL202249.1002504

1 引言

信息存储一直都是人类生产活动中的重要环节。在人类探索世界的过程中, 信息不断积累、代代传递, 构成了人类的历史和文明。进入 21 世纪后, 人工智能、大数据、物联网等数字信息技术的突飞猛进, 在促进经济和社会快速发展的同时, 也产生了爆炸式增长的数据量^[1-3]。数据按照被访问频次可分为热数据、温数据和冷数据, 其中冷数据约占总量的 10%~15%, 包含了人类所创造的文化、历史、科学研究成果, 以及不经常访问、但很重要的沉淀信息等^[4]。本文针对冷数据的长寿命、大容量存储的需求, 比较了当前存储介质的不同特点, 与飞秒激光永久光存储的技术方案进行了详细比较; 从飞秒激光与物质相互作用的机理出发, 依次介绍了三维、五维光存储的发展历程、结构的形成机制、超百层高密度存储、快速直写等工作, 并展望了飞秒激光永久光存储的未来挑战。

2 大数据时代冷数据存储的需求: 高密度+低能耗+长寿命

随着人类社会进入大数据时代, 全球数据量呈

指数式增长, 据国际数据公司(IDC) 2018 年发布的报告, 如图 1(a)、(b)所示, 到 2025 年全球数据总量将达到 175 ZB(1 ZB=10⁹ TB), 数据中心数量也以每两年翻一番的趋势增加^[5-6]。为存储数据, 人们发展了基于磁、电、光等不同原理的 0、1 二进制存储技术; 利用电磁感应装置调控磁性物质表面微区磁畴的不同状态, 发展了磁性存储, 如磁带(tape)和机械硬盘(HDD); 基于激光对感光染料分子价键或极性改变发展了光学存储, 例如 CD、DVD 和 BD; 基于浮栅晶体管的高低电压值发展了 U 盘、固态硬盘(SSD)等电学存储方式; 基于即时电压控制场效应晶体管(CMOS)或者忆阻器的两个开关状态而发展出非易失性存储设备(NVM)。

存储媒介根据其本身的材料属性、存储速度等, 分别适用于热、温、冷数据的存储, 在存储规模和存储市场上也占据不同的分量。其中 HDD 具有很高的数据读写能力[图 1(a)], 数据存储规模占比甚至一度达到 80%以上, 随着其他替代技术的发展, 其占比也一直保持在 40%以上[图 1(c)], 特别是对于个人文件来说, 约 75%的娱乐、教育、工作等数据用

收稿日期: 2022-01-12; 修回日期: 2022-02-23; 录用日期: 2022-03-01

基金项目: 国家自然科学基金(61825502, 61827826, 62175086, 61805100)、吉林大学学科交叉融合创新项目(JLUXKJC2021ZZ15)

通信作者: *chenqd@jlu.edu.cn

HDD存储^[3];近几年来,具有容量大、读写速度较快、兼容性高的SSD的应用逐渐广泛,如图1(b)所示,逐渐成为当前数据中心的重要存储介质^[3],占总体存储规模的20%以上。然而,HDD和SSD的缺点也很明显,需要恒温防震等,且存在消磁、漏电、可

篡改等安全风险,需要每3~5年进行一次数据迁移来防止数据丢失^[3],特别地,基于HDD/SSD的数据中心需要耗费巨大的电能^[7],导致其在长期数据存储方面性价比较低,也基于相同的原因,HDD/SSD主要用来存储访问较为频繁的热数据和温数据。

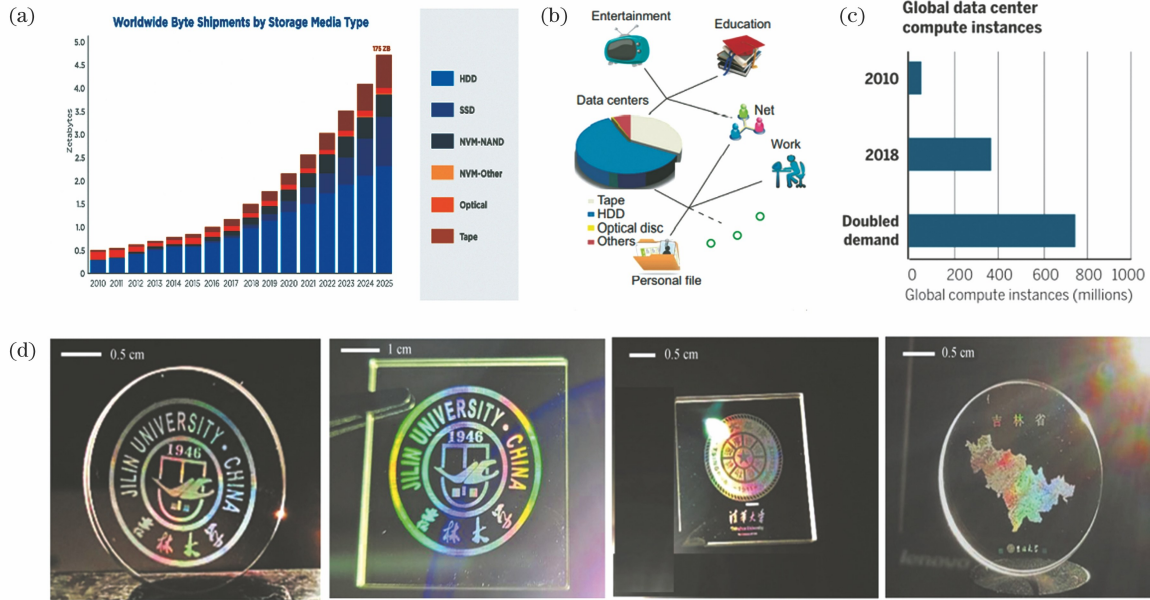


图1 大数据存储的现状以及飞秒激光永久光存储时间胶囊。(a)全球数据量年度增长^[5]; (b)不同存储方法的占比^[3]; (c)全球大数据中心数量^[21]; (d)由飞秒激光制备的永久光存储时间胶囊实物图^[36]

Fig. 1 State of big data storage and eternal time capsules fabricated by femtosecond laser direct writing. (a) Annual data increasing of the global datasphere^[5]; (b) proportion of different methods for data storage^[3]; (c) global data center compute instances^[21]; (d) time capsules of eternal data storage fabricated by laser direct writing^[36]

利用激光在盘面上刻出凹凸不平的小坑表示0和1的光盘存储于20世纪80年代就得到开发,10年前的存储容量占比甚至达到30%左右。然而,由于光盘不好分层、最小记录位受限于光的衍射特性被限制在一半波长,存储容量无法突破GB量级,难以满足企业的冷数据存储的需求,被存储的数据总量近10年来基本无变化^[1,8-10]。近些年发展起来的较为完善的光盘库装备是当前冷数据存储的一个主要媒介,在中国、日本等国家得到了一定的应用,欧美国家的企业也开始转向光盘开发,但单盘较低的存储容量导致光盘库中呈几何级数增加的光盘数量,在系统集成、性价比方面的优势没有特别突出,其数据总量占比逐年下降,甚至低于10%。

冷数据存储的另一主要媒介是磁带存储,它是迄今为止成本最低的数据存储介质,具有离线、节能、长寿命、错误率比硬盘低4~5个数量级等优势,且在其他存储介质接近极限时,其存储容量依然多年保持约33%的年增长率,市场占比接近20%,是冷数据存储的有效解决方案^[1,11]。但是,磁带的可

扩展性受到格式的限制,需要将数据更新到新格式以实现后向兼容,且带盘随着时间的推移会逐渐磨损,大多数磁带盒在完美条件下的额定存储寿命为20~30年,特别地,为保证磁带在正常读取时不粘连,湿度、温度等条件需要维持在较高水平^[12-13]。表1所示为不同存储介质的比较。

据统计,2018年全球数据中心能耗达到205太瓦时(TW·h),约占全球电力消耗的1%,这与2010年相比增加了6%^[21]。而全球数据中心的数量仅2010年到2018年就增加了近6倍^[21][图1(b)]。在这种情况下,为解决海量数据的存储问题,下一代数据存储技术不仅应具有大容量和快速响应能力,还应具有极低的能耗,并通过降低频繁迁移数据的成本、提高存储设备的寿命,实现长期数据保存的“绿色数据中心”。在光数据存储领域,过去50年里进行了许多尝试来将全息数据存储商业化,但记录材料的性能和成本却是阻碍其商业化的瓶颈^[22-23]。与此同时,研究者们已将目光转向金纳米棒^[24]、氧化石墨烯^[25]、半导体量子点^[26]和稀土掺杂纳米晶

表1 不同存储介质的比较

Table 1 Comparison of different storage media

Media	Lifetime /a	Storage capacity	Advantage	Disadvantage	Ref.
SSD	2-5	32 GB-5 TB	Fast reading/writing, high compatibility, and shock-resistance	High costs, low capacity, and short lifecycle	[14]
HDD	3-5	64 GB-20 TB	Fast reading/writing, high capacity, and high compatibility	High environmental standards and high power consumption	[15-16]
BD	30-50	25-200 GB	Low consumption, long-term storage, and portability	Capacity <1 TB, scratched disk	[12,17]
Tape	20-30	300 GB-330 TB (201 Gbit/in ²)	Low consumption, cost-effective, dependability, and simple replication	Limit scalability and potential media issues	[13,18]
Glass	>1000	up to 360 TB	Permanent storage, low power consumption, security, and high capacity	Low writing speed	[19-20]

体^[27]等可作为存储介质的材料。金纳米棒在其表面等离子体振荡的激发下对激光束的偏振和波长具有依赖性,可实现基于波长和偏振的五维编码,通过光束的轨道角动量可进一步实现六维编码^[28-30]。而利用激光使氧化石墨烯高温脱氧,导致石墨烯的结构恢复能力和荧光强度降低,可在亚波长范围内提供鲜明的对比度,用于记录和读取数据^[31-32]。

不同于这些技术,飞秒激光永久光存储则是将玻璃作为存储介质,当飞秒激光紧密聚焦在材料内时,在适当强度下,可以在亚微米尺度产生局部结构变化,改变折射率,形成稳定的比特体积元。该过程通过写入多个平面来记录三维信息,利用双折射的慢轴取向(第四维)和延迟强度(第五维)进行信息编码,慢轴方向和延迟强度分别由飞秒激光束的偏振和光强/脉冲数独立控制,能实现五维超高密度光存储^[8,33-34]。飞秒激光永久光存储具有超高存储密度、超长寿命、低能耗等特点^[35]。如图1(d)所示,通过控制飞秒激光的偏振方向和脉冲数进行十六进制编码,制作出五维永久存储的时间胶囊,分别将吉林大学校史、清华大学校史、吉林省省史省情写入到正方形边长和圆形直径都为25.4 mm的石英玻璃样品中,理论存储容量能够达到100 TB,并能够实现数据的无耗损读出^[36]。

3 飞秒激光永久光存储

3.1 飞秒激光与硬质透明物质作用的机理

飞秒激光具有超短的脉冲宽度(几十到几百飞秒)和极高的峰值功率,与透明材料相互作用时会产生一系列非线性效应,包括多光子电离、雪崩电离、自聚焦等^[37-38]。当激光强度达到多光子电离阈值时,价带电子同时吸收多个光子的能量而被电离出来,在此过程中, N 个光子吸收的能量与激光强度

的 N 次方成正比($N=1,2,\dots$)。当种子电子的动能大于束缚电子的电离势时,种子电子会挣脱原子的束缚并与其他原子发生碰撞电离,产生两个较低动能的自由电子,这一过程重复发生将导致雪崩电离,使自由电子的数量呈指数形式增长^[39-42][图2(a)]。飞秒激光聚焦后的能量密度非常高,一般可达 $10^{12} \sim 10^{14} \text{ W/cm}^2$,此时多光子电离和雪崩电离共同作用,在透明材料内产生极高密度的等离子体,当等离子体的频率达到或接近于激光频率时,可能会在激光脉冲后沿发生特别短暂的逆韧致辐射和单光子吸收^[43-44]。由于飞秒激光脉冲宽度远小于电子-声子耦合时间,在飞秒激光作用的时间范围内仅发生能量吸收,电子来不及将能量转移,在电子碰撞并与声子相互作用的过程中,由于没有持续的光吸收来补充能量,热量的生成和扩散有限,因此飞秒激光加工与纳秒激光、皮秒激光相比,热作用区域较弱,也被称为“冷加工”^[45-46]。

在飞秒激光与透明材料的相互作用过程中,通过多光子吸收机制和能量传递过程,能量会在透明材料中均匀沉积^[47],当能量达到某一阈值,就会使材料化学键发生不可逆的改变,引起微观、纳观的相变以及宏观的折射率、颜色等改变。飞秒激光诱导透明材料内部改性由激光能量、波长、脉冲持续时间和脉冲密度等参数决定。如图2(b)所示,受到脉冲能量大小与脉冲持续时间的综合影响,当飞秒激光脉冲的光强高于多光子电离阈值,但低于自聚焦阈值时^[48],区域1产生光滑的材料改性,材料折射率呈均匀的正变化,通常被认为是Type I型改性,其形成机制现在还没有统一的解释,一般认为与材料致密化、黏流化、色心形成、离子重新分布等有关^[44,49-51];而在较高功率时,激光光强超过材料光损伤阈值,在聚焦区域产生高温、高压的等离子体,这

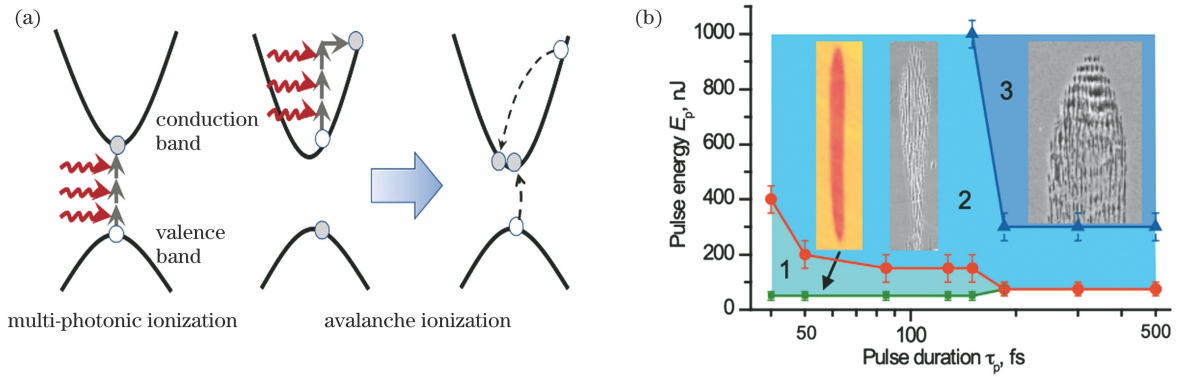


图2 飞秒激光与物质作用的机理。(a)多光子电离与雪崩电离过程;(b)使用 $NA=0.65$ 的显微镜物镜,根据脉冲能量与脉冲持续时间关系定义材料改性的三个阶段^[52]

Fig. 2 Mechanism of femtosecond laser interaction with matter. (a) Process of multi-photon ionization and avalanche ionization; (b) graph of pulse energy versus pulse duration defining three regimes of material modification using a $NA=0.65$ objective lens^[52]

些等离子体被约束在极小的体积内,当压力超过材料所能承受的强度值时会出现微爆炸,形成周围被致密材料包围的微孔洞(Type III)或裂缝(Type IV)^[53-55],与图2(b)区域3的部分结构一样,会形成复杂的永久破坏性损伤^[52]。介于折射率变化和微孔洞之间还存在一种特殊结构——纳米光栅(Type II),如图2(b)的区域2所示,产生的周期性纳米光栅表现出单轴双折射的光学特性,同时它具有长程有序、热稳定性极强等特点,在新型光存储领域拥有巨大的应用潜力^[19,56-57]。在这些结构之间,不同的能量和脉冲还可能诱导出其他纳米微结构^[58-59],都是由超快激光与物质的相互作用所致,需要根据材料和激光条件进行具体分析。

3.2 飞秒激光三维光存储

利用飞秒激光在透明材料内部进行改性研究,20多年前就已有报道。如1994年,三泽弘明等利用超短脉冲激光照射玻璃内部时,发现有空间选择性的折射率变化,并以此提出制造三维光存储器的技术方案^[60]。1996年,Davis等^[61]利用超短脉冲激光在玻璃内部产生 $10^{-2} \sim 10^{-3}$ 量级的折射率变化[图3(a)],使得在大块玻璃中制作光波导成为可能。1997年,Hirao研究小组成功地在二氧化硅、硼硅酸盐、氟化物和硫系玻璃内部写入永久性光波导^[50]。飞秒激光直写避开了传统物理气相沉积和离子交换等技术制备光波导的难点,可以在二氧化硅^[62]、硼硅酸盐^[63]、氟化物^[64]和硫系玻璃^[50]等内部写入各种波导、光学器件,并以其加工速度快、质量高、可三维加工等优点,为集成光学、三维光学电路、量子领域制备光波导开辟了道路^[65]。然而,Type I型结构难以实现高的透过或反射衬度,且改

性区域较大,不利于数据阵列的密集排布。

在Type I型结构被发现的同时,1996年,Glezer等^[66]利用数值孔径为0.65的物镜将飞秒激光聚焦于熔融二氧化硅中,产生了具有高折射率对比度的亚微米小孔结构(Type III),微孔洞及其基体之间有很大的折射率差值,这可以用于记录三维的二进制数据,并以此实现了点间距和层间距分别为 $2 \mu\text{m}$ 和 $15 \mu\text{m}$ 的10层信息存储[图3(b)]。随后又在熔融石英、蓝宝石和其他透明材料中诱导出同样的微孔,孔径仅为 $200 \sim 250 \text{ nm}$ ^[53]。2001年,Sun等^[67]提出,将这些具有径向折射率分布的“体素”以晶体中原子的排列方式进行排列,折射率的变化会产生光的周期性调制,可成为光子晶体。图3(c)显示了掺Ge二氧化硅中的光子晶格平面,空的Y型区域由缺失的“体素”组成,可用作微集成光波导。2006年,Juodkazis等^[68-69]对这种小孔进行了更为详细的研究,发现纳米小孔的形成是由光学击穿所产生的超高温和高压所致,并通过驱动周围材料产生巨大的冲击波及稀疏波[图3(e)]。Cheng等^[70]演示了在熔融的二氧化硅内用 400 nJ 、 200 fs 的超短脉冲实现了层间距离为 $2 \mu\text{m}$ 的比特点阵,理论存储密度达到 $500 \text{ Gbit}/\text{cm}^3$ [图3(d)]。

相比于使用粉体、有机聚合物等“软”材料作为存储介质的磁存储和光盘,使用石英玻璃、蓝宝石等硬质材料的飞秒激光永久光存储在高温高压、强辐射、酸碱、潮湿等严酷环境中具有天然的优势,是战争、灾变、航天等场景里存储关键及海量数据的绝佳物理介质。2012年,日立公司实现了在熔融石英玻璃中永久存储数据[图3(f)]^[71], 2 h 、 $1000 \text{ }^\circ\text{C}$ 的加速耐温试验表明,存储时间可以达到数亿年之久,存储

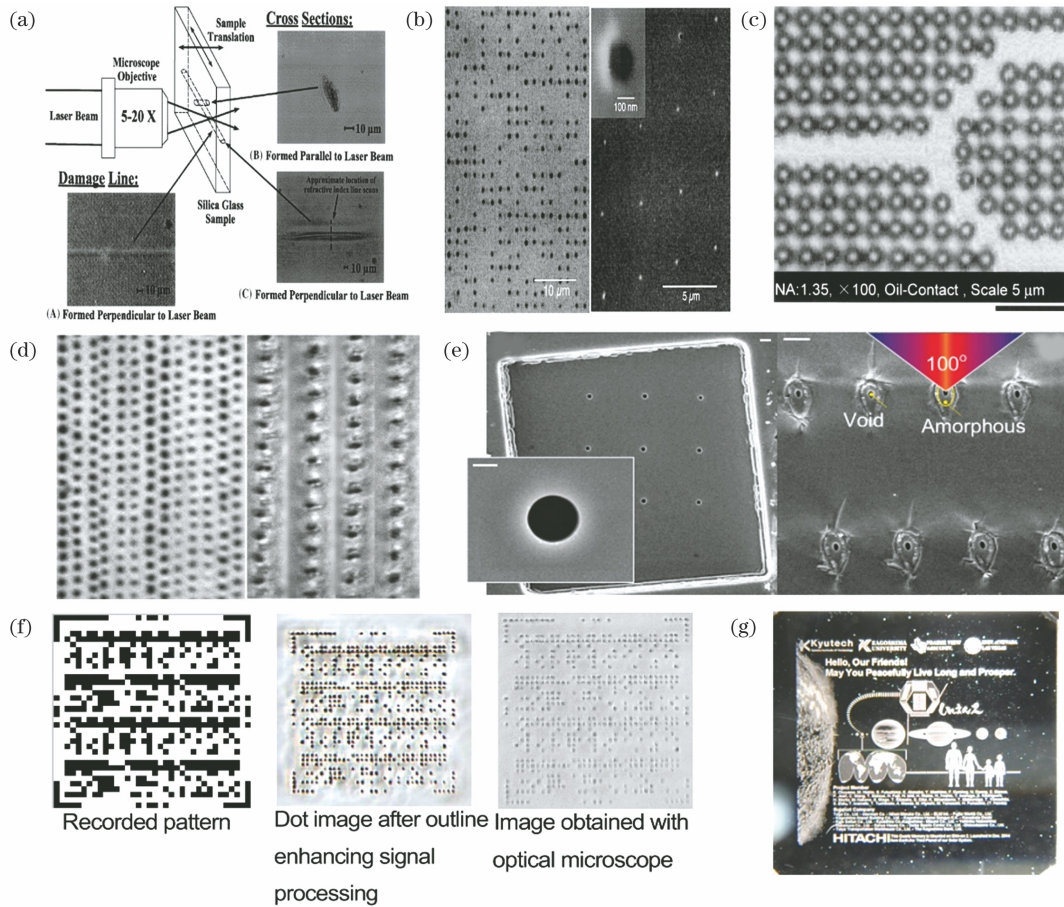


图3 基于体光损伤的飞秒激光光存储的发展。(a)激光损伤使折射率发生改变^[61];(b)将二进制数据存储在熔融二氧化硅内^[66];(c) Ge 掺杂二氧化硅中的光子晶格平面^[67];(d)写在熔融二氧化硅内部的光学图像^[70];(e)在蓝宝石中产生的纳米孔洞图案^[68];(f) 100个点的同步多位记录、读取、信号增强^[71];(g)可保持3亿年的熔融石英版画^[72]

Fig. 3 Development of femtosecond laser-induced bulk damage for data storage. (a) Laser-induced refractive index changes^[61]; (b) binary data stored in fused silica^[66]; (c) plane of photonic lattice in Ge-doped silica^[67]; (d) optical image of bits written inside fused silica^[70]; (e) pattern of voids produced in sapphire^[68]; (f) 100-point simultaneous multi-bit recording, reading, and signal enhancement^[71]; (g) fused silica prints with images and information for the next 300 million years^[72]

密度超过 CD 的记录密度,进一步将这项技术推向实际应用后,在 2014 年,通过隼鸟 2 号火箭将可保存 3 亿年、具有图像和人类信息的熔融石英玻璃版画发射到太空中[图 3(g)]^[72]。然而,利用微孔的存储虽然在单层上信号比较强,由于多层的散射信号太强,无法对层间串扰信号进行有效去除,很难实现更高容量的数据存储。

3.3 飞秒激光诱导纳米光栅双折射的五维光存储

纳米光栅具有独特的单轴双折射性质。1999 年,在 Ge 掺杂的石英玻璃中观察到各向异性光散射现象[图 4(a)]^[73]。2000 年, Qiu 等^[74]观察到具有记忆性的偏振依赖光散射,并认为这是由超短脉冲激光引起的、与偏振相关的永久微结构造成的。2001 年 Sudrie 等^[75]报道了通过飞秒激光脉冲在石

英玻璃中获得具有双折射效应的永久性损伤,如图 4(b)所示,左、右两图分别是在非偏振光和正交偏振光照射下损伤轨迹的照片,随着激光功率增加,当功率大于从 Type I 到 Type II 的转变阈值 P_2 时,所得到的结构有明显的双折射信号。

2002 年 Mills 等^[78]提出飞秒激光诱导的双折射很可能是由垂直于激光偏振方向的周期性纳米光栅引起的。而真正在实验上观察到纳米光栅的存在是在 2003 年^[76],日本京都大学学者通过背散射电子图像,发现在与光传播方向垂直的平面上存在着与激光偏振方向垂直排列的纳米光栅结构[图 4(c)]。在图 4(d)所示的俄歇电子谱中,条纹暗区内氧的俄歇信号偏低,在暗区之间的区域信号更强,而硅信号强度在整个成像区域内是不变的,说明在照射后氧

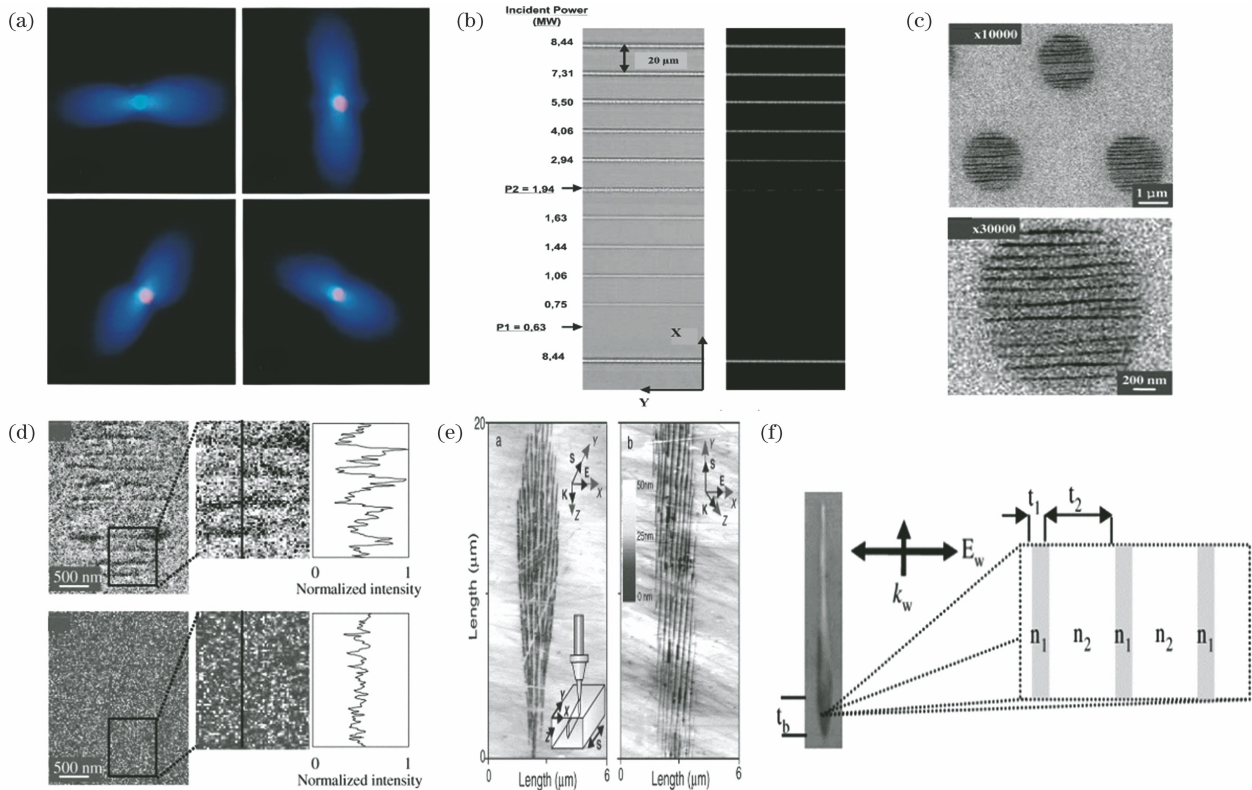


图4 纳米光栅的发现历程。(a)具有4个不同偏振方向的激光在样品内聚焦的示意图^[73]；(b)通过非偏振光透射观察熔融石英内部损伤轨迹(左图)和通过正交偏振光透射观察熔融石英内部损伤轨迹(右图),箭头表示 Type I 和 Type II 的两个阈值^[75]；(c)背散射电子成像^[76]；(d)在同一硅玻璃上氧和硅的俄歇光谱图和相应的线扫描结果^[76]；(e)熔融石英玻璃内部纳米光栅的侧面图^[56]；(f)自组织纳米光栅双折射原理图^[77]

Fig. 4 Development of laser-induced nanogratings. (a) Four different polarization directions focused inside the sample^[73] ; (b) damage trajectories inside fused silica by unpolarized light transmission (left) and by orthogonal polarization light transmission (right), and arrows indicate the two thresholds for type I and type II damages^[75] ; (c) backscattering electron images^[76] ; (d) Auger spectra and corresponding line scanning results of oxygen and silicon on same silica glass^[76] ; (e) sideview of nanogratings induced inside fused silica^[56] ; (f) schematic of form birefringence introduced by the self-organized nanograting^[77]

元素浓度被周期性调制了,从而产生了周期性的纳米条纹。在平行于光的传播方向上,纳米光栅呈“胡萝卜”形^[52],如图4(e)所示,当激光偏振方向垂直于激光扫描方向时,纳米光栅平面沿扫描方向延展^[56]。纳米光栅可以抽象成一种交替排列的折射率为 n_1 、 n_2 ,厚度为 t_1 、 t_2 的层状三维结构[图4(f)]。激光偏振方向与光栅平面相互垂直,只要改变激光偏振方向,就可以直接调控纳米光栅平面的方向。纳米光栅的双折射主要取决于 n_1 、 n_2 的差,且只有结构顶部 t_b 区域对双折射有贡献^[77]。光栅周期对激光的波长具有依赖性,研究表明,纳米光栅周期近似满足 $\Delta = \lambda/2n$ (λ 为激光波长, n 为材料折射率)^[52,56,79-80]。

纳米光栅具有可重复擦除和重写特性,这允许数据在需要时被纠正或更新。图5(a)~(d)展示了

光栅重写的演化过程^[80]:首先用4000个脉冲分别对4个区进行辐射,然后将偏振方向旋转 45° ,分别用3、30、300、4000个脉冲进行辐射。从图5(a)~(d)可以看出,新的纳米光栅生长在旧的结构上,经4000次脉冲辐射后,旧结构消失,新的纳米光栅完全形成,同时这些纳米光栅可重写1000次,而结构质量几乎没有退化。其形成过程在当时被认为是材料经飞秒激光辐射后,辐射区的元素在激光的调控下再次进行周期性分布。

作为存储设备,使用寿命是必须考虑的因素。对于几乎所有的光致变色分子来说,读取和擦除的吸收带非常接近,导致重复读取后存储的信息被擦除^[81]。对纳米光栅的热稳定性研究表明^[82-83],即使在 1150°C 的高温下,纳米光栅的双折射效应也不会完全消失,信号强度仍然是初始的13%。2014年,

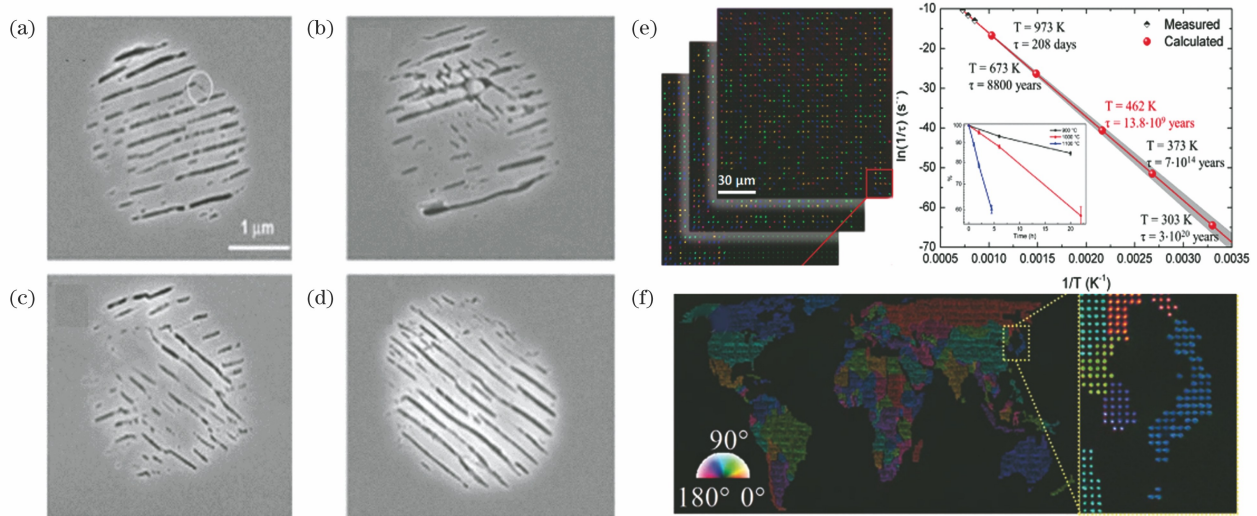


图5 纳米光栅的特性。(a)~(d)纳米光栅体素的重写^[80]；(e) 5D光存储读出(左)和纳米光栅衰减速率的阿伦尼乌斯图(右)^[19]；(f)用飞秒激光诱导纳米光栅制作的伪彩世界地图^[84]

Fig. 5 Characteristics of nanogratings. (a)–(d) Rewriting of nanograting voxels^[80]; (e) 5D optical storage readout (left) and Arrhenius plot of the nanogratings decayrate (right)^[19]; (f) a pseudo-color map of the world made with femtosecond laser-induced nanogratings^[84]

南安普敦大学的 Zhang 等^[19]评估了纳米光栅在室温下的稳定性,结果如图 5(e)所示,在室温(303 K)下,纳米光栅的寿命为 $3.0 \times 10^{20 \pm 1}$ 年,即使在 673 K 的高温下,也能存储 8800 年。他们利用三个空间坐标轴和双折射的慢轴方向、相位延迟进行五维数据编码,在熔融石英内部进行打点,每个点可以实现 0~7 任一状态,实现每点 3 bit 二进制数据,随后对 3 个双折射层的数据进行读取,结果在所记录的 1164 位数据中,仅 42 位错误,且大多数误差可以通过额外校准程序消除。2010 年,京都大学的 Shimotsuma 等^[84]利用偏振方向和光程延迟分别作为第四、第五维,制作的一幅尺寸为 $3.4 \text{ mm} \times 1.8 \text{ mm}$ 的世界地图[图 5(f)],存储密度达到 300 Gbit/cm^3 。

3.4 飞秒激光诱导纳米光栅形成的机制

在纳米光栅形成机制的研究中形成了许多种模型,如等离子体干涉模型^[76,85-86]、纳米等离子体各向异性生长理论模型^[52,56,87]、自陷激子(STEs)辅助演化模型^[82,88-89]等。等离子体干涉模型认为,材料通过非线性吸收产生具有一定体积的等离子体,入射光与等离子体密度波相互干涉,导致等离子体浓度的周期性调制和材料结构的变化。这一模型为低氧浓度条纹的形成给出了合适解释,但认为纳米光栅的周期对施加的脉冲数量具有显著依赖性与实际不符^[86]。

对纳米等离子体各向异性生长理论来说,当超短脉冲聚焦到透明介质中时,由于介质中缺陷处的

局部非均匀电离产生随机分布的电离中心[图 6(a)],在相继的多个脉冲后电离中心进化成球形纳米等离子体[图 6(b)]。一旦纳米等离子体形成,其后续进化仅由其密度决定。对于低密度纳米等离子体(电子等离子体密度 N_e 小于临界密度 N_{cr}),局部场在垂直于偏振的赤道平面内增强,而在两极受到抑制^[90],纳米等离子体在局部场增强的方向上加速生长[图 6(e)],形成椭球形等离子体[图 6(c)]。当 N_e 接近 N_{cr} 时,等离子体的非对称生长加速,椭球形纳米等离子体进一步进化为纳米平面[图 6(d)],这些纳米平面的电子密度随脉冲的积累而不断增大,当电子密度超过临界值时,纳米平面具有类金属相的性质,开始影响光的传播,导致散射光与入射光之间相互干涉,最终形成自组织的纳米光栅。

形成均匀纳米光栅需要大量脉冲的贡献,但在熔融石英中等离子体寿命约为 150 fs^[91],当脉冲间隔时间较长时,为实现脉冲累积效果,需要依靠材料结构缺陷的“记忆特性”。Richter 等^[82]发现辐照后形成的 STEs 会影响纳米光栅的形成,当非线性吸收所产生的自由电子被畸变晶格捕获时便形成了 STEs,即使在最初没有缺陷的晶格位置,自由电子也可能会陷入无序的晶格场而形成 STEs,这些快速过程发生在大约 150 fs 的时间尺度上^[61,92-94]。STEs 会增加对后续脉冲的吸收,因此更多的能量可用于促进纳米光栅的形成。室温下,STEs 以非

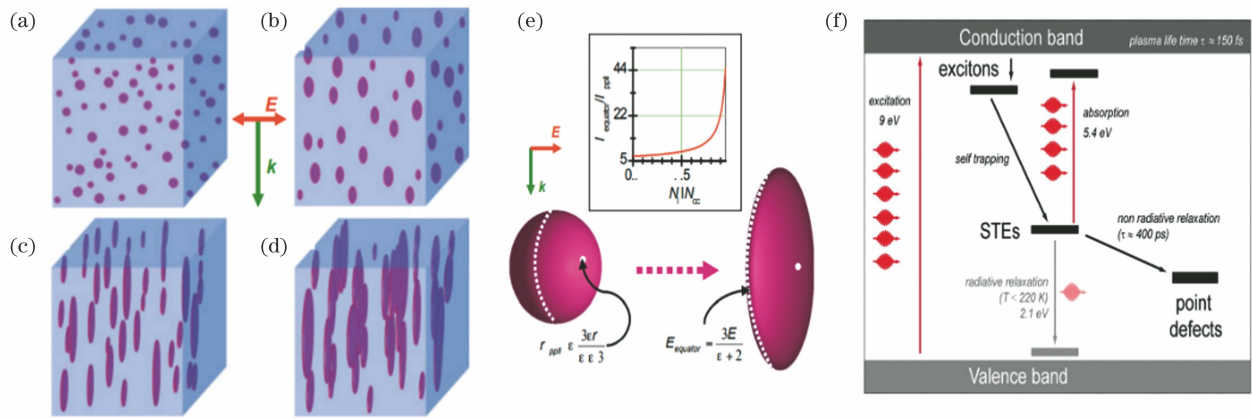


图6 纳米光栅形成机制。(a)~(d)纳米等离子体进化成纳米平面^[86]；(e)纳米等离子体的不对称增强效应^[52]；(f)STEs的形成和弛豫过程^[82]

Fig. 6 Mechanism of nanograting formation. (a)–(d) Nanoplasmas evolved by nanoplasmas^[86]; (e) asymmetric enhancement effect of nanoplasmons^[52]; (f) formation and relaxation process of STEs^[82]

辐射方式衰变并形成(半)永久点缺陷[图6(f)]。Wang等^[95]验证了局部记忆效应可以产生正反馈以促进纳米条纹的形成。

超短脉冲激光在透明材料内诱导纳米光栅的形成过程仍然是激烈争论的对象。Liao等^[96]提出飞秒激光激发的局域场增强效应是纳米光栅周期减半的主要原因；Zimmermann等^[97]则认为纳米光栅的形成和随后的周期数量减少是通过纳米空隙和裂纹的增加和相互重新排列实现的；Rudenko等^[98]结合麦克斯韦方程组、流体力学模型、热力学模型，利用初期形成的散射中心模拟计算了纳米光栅的形成过程。目前对于纳米光栅的形成机理没有统一和明确的阐述，依然需要进行广泛和深入的研究。

4 永久光存储的挑战

飞秒激光永久光存储能进行多维大容量、永久的信息存储，在冷数据存储领域无疑具有诱人前景。但是，从实验室走向实际应用，还面临若干关键科学与技术问题，近年来，在本领域也取得了相关的进展。

4.1 多层(>100层)永久光存储

光与物质的非线性相互作用，导致纳米光栅与其他类型的结构混合出现，从而导致散射明显增强，透过率降低，特别是在紫外区，损耗十分严重，这在一定程度上限制了纳米光栅在光学器件上的应用。2020年Sakakura等^[99]报道了一种用飞秒激光在石英玻璃内部诱导产生的新型改性结构——Type X[图7(a)]，它由随机分布的垂直于偏振方向的细长纳米孔组成，在产生双折射的同时，避免了微孔等具有大散射效应结构的出现，保

证了高透过率。

如图7(b)所示，相比于Type II，Type X的透光率在可见光范围内高达99%，在330 nm以下波长范围内透光率达到90%以上。Type X是介于Type I和Type II之间的结构，脉冲能量、脉冲密度、脉冲持续时间是形成Type X结构的关键，图7(c)、(d)所示分别为脉冲密度和脉冲持续时间对透过率和延迟的影响，随着脉冲持续时间的增大，激光辐射的改性区域由Type I到Type X再到Type II依次演变[图7(d)]，同时如图7(c)所示，延迟随脉冲密度的增大而急剧变化，表明Type X和Type II之间并没有其他结构存在。Type X结构中随机分布的细小纳米孔能有效降低米氏散射^[100]，这是该结构具有高透过率的主要原因，而高透过率能够实现数百层甚至上千层的数据写入，提高了存储容量和数据读取精度，开启了高密度多维存储的新方向。

4.2 高速飞秒激光永久光存储

受限于单个存储单元需要的脉冲数是固定的，提高激光器重复频率是一种提升光存储写入速度的有效方式。然而，高重复频率带来的热积累效应对加工的影响也不容小觑。南安普敦大学的Lei等^[101]分析了结构形成中的近场增强过程，采用脉冲能量调制的方式极大降低了热效应的影响，成功实现了在10 MHz重复频率下，单通道约225 kB/s的高速写入。如图8(a)所示，随着重复频率的不断提高，写入区域出现了强应力的修改，双折射被破坏。Lei等将前2个脉冲作为种子脉冲(高于阈值32 nJ)，后8个脉冲作为写入脉冲(亚阈值为14.4 nJ)，种子脉冲先在石英玻璃中产生纳米空隙，

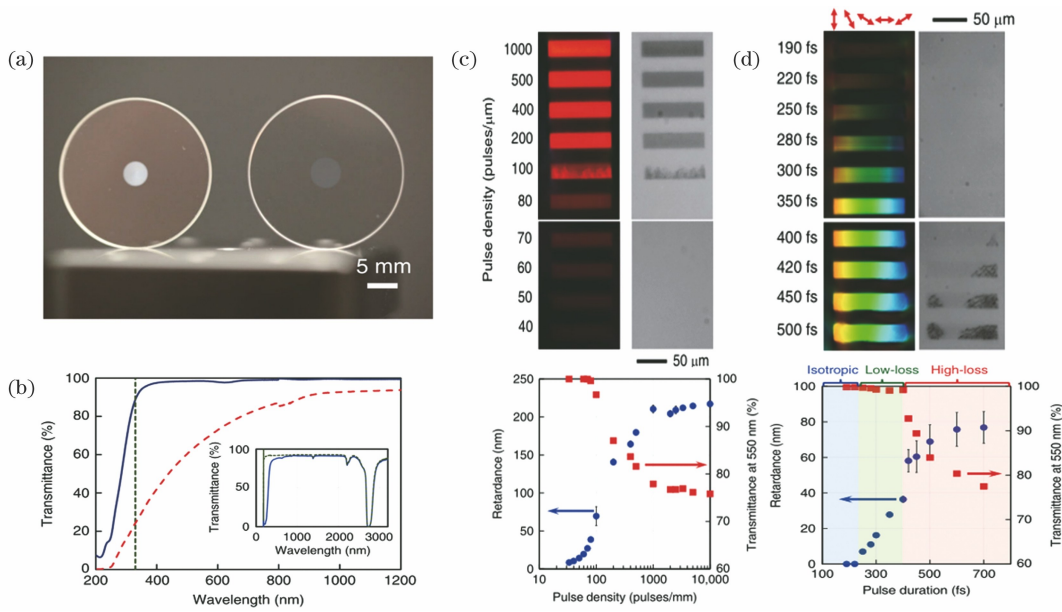


图7 通过 Type X 结构实现高透过率^[99]。(a)被 Type II (左)和 Type X (右)修饰的石英玻璃板照片;(b)Type II (红虚线)和 Type X (蓝实线)双折射结构的透射光谱;(c)不同脉冲密度下的双折射结构的延迟 (蓝)和透射 (红)图像;(d)不同脉冲持续时间下的双折射结构的延迟 (蓝)和透射 (红)图像

Fig. 7 High transmittance through Type X structure^[99]. (a) Photo of quartz glass plate modified with Type II (left) and Type X (right); (b) transmission spectra of birefringent structures of Type II (red dashed line) and Type X (blue solid line); (c) retardance (blue) and transmission (red) images of birefringent structures written at different pulse densities; (d) retardance (blue) and transmission (red) images of birefringent structures written at different pulse durations

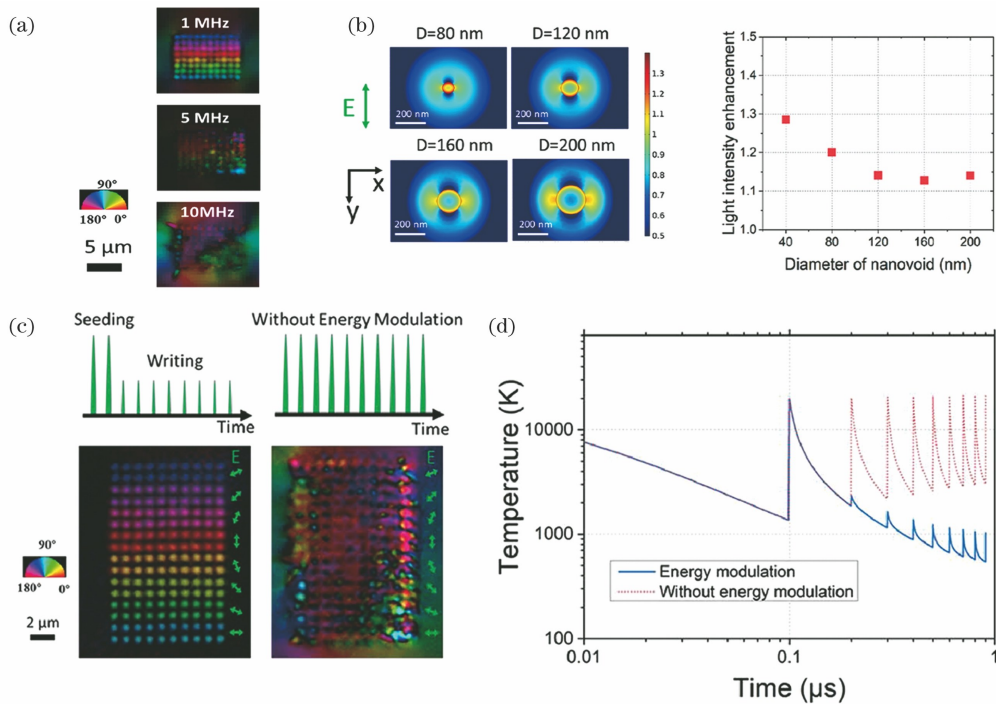


图8 通过脉冲能量调制实现双折射结构的高速写入^[101]。(a)不同重复频率(1 MHz,5 MHz,10 MHz)下写入结构的慢轴方位角图像;(b)不同直径的纳米体周围的光强分布模拟;(c)调制能量前后写入双折射结构的对比;(d)焦点中心的温度演变模拟

Fig. 8 High-speed writing of birefringent structure through pulse energy modulation^[101]. (a) Slow axis azimuth images of the writing structure at different repetition rates (1 MHz, 5 MHz, and 10 MHz); (b) simulation of light intensity distribution around nanobodies with different diameters; (c) contrast of writing birefringent structure before and after modulating energy; (d) simulation of temperature evolution of focal center

在激光脉冲的照射过程中,光学近场出现在纳米空隙的边缘。如图8(b)所示,增强的光场可以诱导局部电离,导致各向异性纳米结构的形成,在随后的写入脉冲中,纳米空隙逐渐演变成纳米片状结构。在10 MHz重复频率下,实现了精准可读的双折射图案[图8(c)]。与此同时,热效应也因为这种能量调制策略而大大降低[图8(d)],从而实现了单通道225 kB/s,潜在MB/s量级的写入速度。

4.3 飞秒激光多维永久光存储的瓶颈

从应用的角度来看,飞秒激光多维永久光存储在存储密度、写入速度、读取速度及准确度方面还存

表2 在直径为120 mm、厚度为2 mm的样品中点间距、层间距、单点比特数与存储容量的关系

Table 2 Relationship between dot spacing, layer spacing, and bit number per dot and capacity in a sample with diameter of 120 mm and thickness of 2 mm

Dot spacing / μm	Layer spacing / μm	Number of layers	Bit number per dot	Capacity /TB
1.0	20	96	1	0.13
0.5	20	191	1	0.53
0.5	10	191	1	1.05
0.5	10	191	2	2.11
0.2	5	381	8	100
0.1	2	951	8	1000

2)写入速度较低。纳米光栅的生长需要种子结构的辅助,形成过程所需要的脉冲数过多,这大大限制了其直写速度^[102]。最大存储速度与形成每个记录点所需的脉冲数负相关,单点脉冲数越少,写入速度就越快,如在激光器重复频率为10 MHz的前提

表3 激光器重复频率为10 MHz时最高写入速度与单点脉冲数、单点比特数、并行写入通道数的关系

Table 3 Relationship among writing speed, pulse number per dot, bit number per dot, and channels when laser repetition rate is 10 MHz

Pulse number per dot	Bit number per dot	Max speed	10 channels' speed
100	1	12.5 kB/s	125 kB/s
50	4	100 kB/s	1 MB/s
10	4	500 kB/s	5 MB/s
2	8	5 MB/s	50 MB/s

3)读取速度和准确率较低。数据读取基本上是逐点采集,当读取大量数据时,单点读取难以满足要求。在提高存储密度时,过小的点间距和层间距会造成数据读出时的串扰。此外,纳米光栅的产生还伴随着其他效应的产生,不可避免地引入Type I型、Type III型结构,影响读取准确率。

特别地,虽然双折射信号相较于飞秒激光诱导微米孔的散射信号要更为强烈,且比反射光强信号更为精确和不易失真,从理论上克服了数百层甚至

在瓶颈。

1)存储密度较低。一张存储盘能存储的信息与存储单元的点间隔、层间隔和单点多比特个数如表2所示。点间隔每降低1/2,存储容量提高约4倍;层间隔每降低1/2,存储容量提高1倍;单点存储的比特信息也影响存储容量,从1比特/点增加到2比特/点,容量增加一倍。要想提高存储密度,就意味着一方面在保证光折变性能的前提下,需要降低比特体积元的纵向和横向尺寸;另一方面,需要缩小比特体积元的点间距和层间距,这是制约存储密度进一步提高的关键。

下,将单点所需脉冲数由100个降低到10个,单点比特数由1提高到4,可将单通道写入速度由12.5 kB/s提升到500 kB/s,10通道速度可提升到5 MB/s,特别地,如果用2个脉冲数来写结构,就可以将写入速度提高到50 MB/s(表3)。

上千层的信号采集问题,但目前还没有较成熟的商用快速双折射显微镜系统。一般的系统装置如图9(a)所示,通过液晶相位延迟片的4~5次转动,计算得到相位延迟量和慢轴方位角,虽然此装置通过面读提高了读出效率,但在配套伺服系统等方面还没有发展起来,多次液晶延迟也损失了读出效率;在读出数据处理方面,由于层内和层间的信号串扰,需要对采集到的信息进行除噪处理、识别。图9(b)展示了以“吉林大学”为例的编码方式及读出效果。

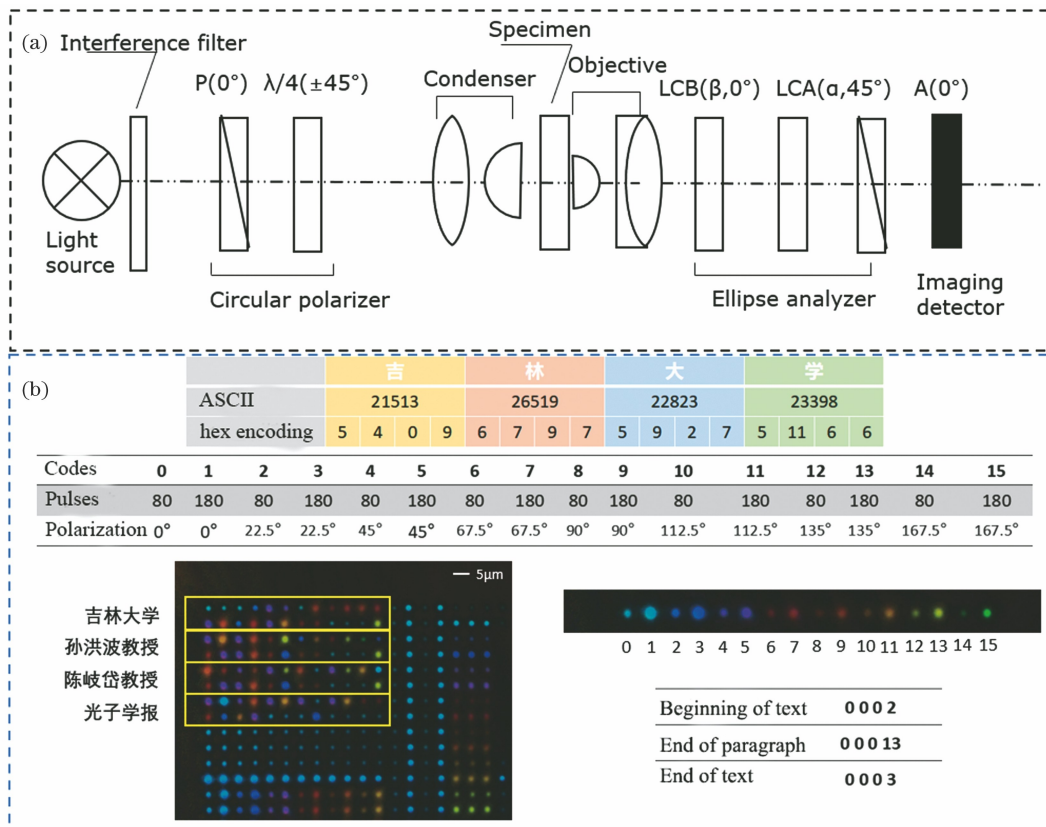


图9 飞秒激光永久光存储的读出方式。(a)双折射显微镜的装置图^[103]；(b)光存储的编码方式、数据读出图像及解码示例^[37]

Fig. 9 Readout schematic for permanent optical storage by femtosecond laser direct writing. (a) Diagram of the setup of a birefringent microscope^[103]; (b) optical storage encoding method, data readout image, and decoding method^[37]

优化以上过程来实现理论的百 TB 容量快速存储,其根本是加深对飞秒激光与材料相互作用机制的认识:1) 理解纳米光栅形成机制,实现超衍射加工,将比特体积元尺寸降低到 200 nm 甚至 100 nm,解决多层加工的光场畸变,实现几十到几百层的三维多层存储,甚至可以参考利用纳米光栅倾斜调控,实现六维甚至更多维光存储^[104];2) 如何以更少的脉冲数实现结构改性,同时保证对已形成结构不会形成串扰,提高加工速度,考虑采用时空光场调控技术,提升其写入效率和分辨率^[105-106];3) 提高双折射信号处理能力,通过面/体扫描等方式,实现数据的快速、准确读出等。

4.4 飞秒激光永久光存储的发展潜力

飞秒激光永久光存储的容量和写入速度的理论瓶颈在于其超衍射加工的能力。在微纳加工领域,传统的聚焦离子束(FIB)技术虽有纳米级精度,但需要在真空条件下才能工作^[107]。2020年,Li等^[108]报道了一种允许在空气中直接加工的光学远场诱导近场击穿(O-FIB)技术,如图10(a)所示,纳米小孔作为近场增强的种子,当激光对亚波长孔径的纳米

孔作用时,两边界上渐逝场的强相互作用增强了纳米孔内部的光强,随着脉冲能量的增加,纳米孔不断伸长,并最终变成哑铃坑或凹槽。近场光强随纳米孔尺寸的增加而减少,能让随机排列、随机形状的种子形成均匀的亚波长阵列[图10(b)],纳米凹槽内脉冲能量的强近场定位,可以有效消除相邻凹槽之间的串扰,实现 400~50 nm 衍射极限的纳米凹槽分离[图10(c)]。

相比于 FIB,O-FIB 不仅提高了空间分辨率,还降低了纳米级烧蚀所需要的光强,能实现几乎适用于任何固体材料的大气远场纳米制造。在这种情况下,利用直径为 50 nm 的存储点、100 nm 的点间距来实现 1000 TB(PB)的光盘在未来是有可能的;通过利用 1 个脉冲写种子结构,1 个脉冲写数据,只用 2 个脉冲的快速写入在物理机制上也是可行的。以此推算,可以实现 0.5 MB/s、重复频率为 1 MHz 和至少 20 MB/s、重复频率为 40 MHz 的单通道写入速度,这与 U 盘等的拷贝数据速度处于同一量级。通过多通道写入技术,用百 MB/s 甚至 GB/s 量级的写入速度,花几小时到1天时间写入 10~100 TB 无刷

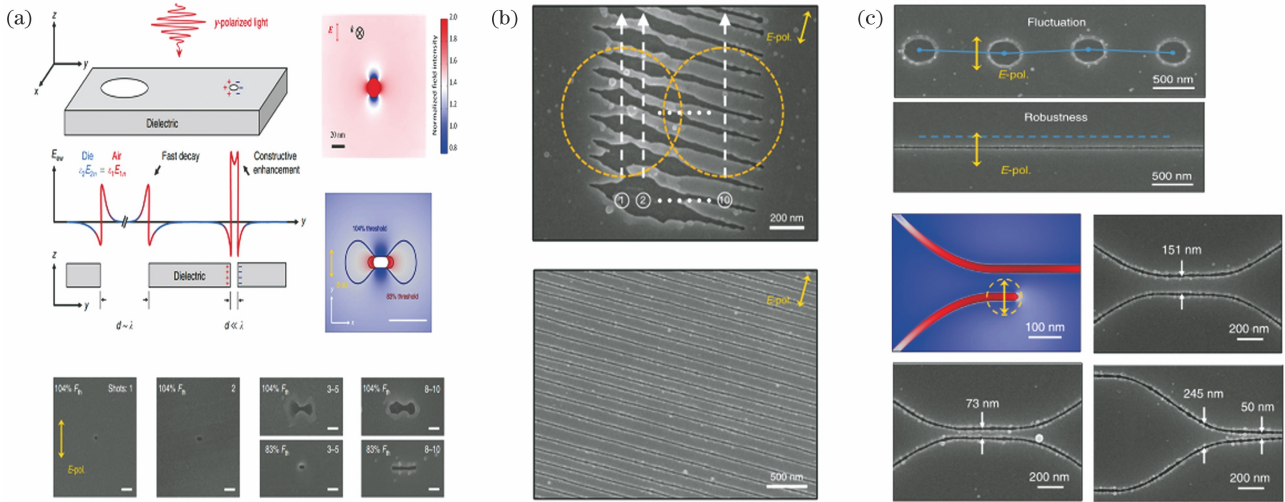


图 10 O-FIB 理论的示意^[108]。(a)O-FIB 的理论与实验验证；(b)O-FIB 的自我调节；(c)O-FIB 的曲率和分离控制

Fig. 10 Diagram of O-FIB^[108]. (a) Theoretical and experimental verification; (b) self-regulation of O-FIB;

(c) curvature and separation control of O-FIB

新可永久保存的光盘在某种程度上是可以接受的。

5 结 论

在大数据、人工智能等技术的加持下,数据呈爆炸式增长,对高存储密度、低能耗、长寿命的存储媒介提出了重要需求,尤其是在冷数据存储中,如何实现 TB、百 TB 量级的长期存储成为当前的挑战。为此,本文综述了飞秒激光永久光存储的发展历程及当前研究面临的难题:从飞秒激光与透明材料的相互作用机制开始,介绍了飞秒激光在透明材料内诱导出不同结构类型和以此为基础发展出的三维光存储和五维光存储技术,阐述了当前双折射纳米结构的形成机制和飞秒激光永久光存储的读出方式,并就存储容量、写入速度等具体问题进行了分析;同时列举了飞秒激光永久光存储目前遇到的瓶颈,提出了光学远场控制、近场击穿的理论指导模型,突破了百 TB 甚至 PB 存储容量理论瓶颈。相信在不远的将来,这项技术必将支撑起人们生活的方方面面,给社会带来巨大的经济效益。

参 考 文 献

[1] Xu D Y. Multi-dimensional optical storage [M]. Beijing: Tsinghua University Press 2016:16-21.
 [2] Trelles O, Prins P, Snir M, et al. Big data, but are we ready? [J]. Nature Reviews Genetics, 2011, 12 (3): 224.
 [3] Gu M, Li X, Cao Y. Optical storage arrays: a perspective for future big data storage [J]. Light: Science & Applications, 2014, 3(5): e177.

[4] Levandoski J J, Larson P Å, Stoica R. Identifying hot and cold data in main-memory databases [C] // 2013 IEEE 29th International Conference on Data Engineering, April 8-12, 2013, Brisbane, QLD, Australia. New York: IEEE Press, 2013: 26-37.
 [5] Reinsel D, Gantz J, Rydning J. The digitization of the world from edge to core [EB/OL]. (2018-11-05) [2022-01-25]. <https://www.seagate.com/files/www-content/our-story/trends/files/idc-seagate-dataage-whitepaper.pdf>.
 [6] 姜美玲, 张明德, 李向平, 等. 超分辨率光存储研究进展 [J]. 光电工程, 2019, 46(3): 180649.
 Jiang M L, Zhang M S, Li X P, et al. Research progress of super-resolution optical data storage [J]. Opto-Electronic Engineering, 2019, 46(3): 180649.
 [7] Fleischer A S. Cooling our insatiable demand for data [J]. Science, 2020, 370(6518): 783-784.
 [8] Gu M, Li X P. The road to multi-dimensional bit-by-bit optical data storage [J]. Optics and Photonics News, 2010, 21(7): 28-33.
 [9] Liu Z W, Lee H, Xiong Y, et al. Far-field optical hyperlens magnifying sub-diffraction-limited objects [J]. Science, 2007, 315(5819): 1686.
 [10] van de Nes A S, Braat J M, Pereira S F. High-density optical data storage [J]. Reports on Progress in Physics, 2006, 69(8): 2323-2363.
 [11] Dee R H. Magnetic tape for data storage: an enduring technology [J]. Proceedings of the IEEE, 2008, 96(11): 1775-1785.
 [12] Gu M, Zhang Q, Lamon S. Nanomaterials for optical data storage [J]. Nature Reviews Materials, 2016, 1: 16070.
 [13] Understanding the advantages and disadvantages of

- tape backup [EB/OL]. (2020-10-20) [2022-01-25]. <https://www.securedatarecovery.com/services/tape-data-recovery/advantages-and-disadvantages-of-tape-backup>.
- [14] Sandro V. What is a solid-state drive (SSD)? [EB/OL]. (2021-11-24) [2022-01-25]. <https://www.avast.com/c-what-is-ssd#gref>.
- [15] Gillis A S. Hard disk drive (HDD) [EB/OL]. (2021-12) [2022-01-25]. <https://www.techtarget.com/searchstorage/definition/hard-disk-drive>.
- [16] Shiroishi Y, Fukuda K, Tagawa I, et al. Future options for HDD storage [J]. *IEEE Transactions on Magnetics*, 2009, 45(10): 3816-3822.
- [17] Admin. Advantages and disadvantages of blu-ray disk [EB/OL]. (2021-09-07) [2022-01-25]. <https://www.chtips.com/computer-fundamentals/advantages-and-disadvantages-of-blu-ray-disk/>.
- [18] Wikipedia. Magnetic tape data storage [EB/OL]. (2021-12-30) [2022-01-25]. https://en.wikipedia.org/wiki/Magnetic_tape_data_storage.
- [19] Zhang J Y, Gecevičius M, Beresna M, et al. Seemingly unlimited lifetime data storage in nanostructured glass [J]. *Physical Review Letters*, 2014, 112(3): 033901.
- [20] Hong M H, Luk'yanchuk B, Huang S M, et al. Femtosecond laser application for high capacity optical data storage [J]. *Applied Physics A*, 2004, 79(4/5/6): 791-794.
- [21] Masanet E, Shehabi A, Lei N A, et al. Recalibrating global data center energy-use estimates [J]. *Science*, 2020, 367(6481): 984-986.
- [22] Lin X, Liu J P, Hao J Y, et al. Collinear holographic data storage technologies [J]. *Opto-Electronic Advances*, 2020, 3(3): 190004.
- [23] Bruder F K, Hagen R, Rölle T, et al. From the surface to volume: concepts for the next generation of optical-holographic data-storage materials [J]. *Angewandte Chemie International Edition*, 2011, 50(20): 4552-4573.
- [24] Zijlstra P, Chon J W M, Gu M. Five-dimensional optical recording mediated by surface plasmons in gold nanorods [J]. *Nature*, 2009, 459(7245): 410-413.
- [25] Li X, Zhang Q, Chen X, et al. Giant refractive-index modulation by two-photon reduction of fluorescent graphene oxides for multimode optical recording [J]. *Scientific Reports*, 2013, 3: 2819.
- [26] Dallari W, Scotto d'Abbusco M, Zanella M, et al. Light-induced inhibition of photoluminescence emission of core/shell semiconductor nanorods and its application for optical data storage [J]. *The Journal of Physical Chemistry C*, 2012, 116(48): 25576-25580.
- [27] Lu Y, Zhao J, Zhang R, et al. Tunable lifetime multiplexing using luminescent nanocrystals [J]. *Nature Photonics*, 2014, 8(1): 32-36.
- [28] Zhu L W, Cao Y Y, Chen Q Q, et al. Near-perfect fidelity polarization-encoded multilayer optical data storage based on aligned gold nanorods [J]. *Opto-Electronic Advances*, 2021, 4(11): 210002.
- [29] Dai Q F, Min O Y, Yuan W G, et al. Encoding random hot spots of a volume gold nanorod assembly for ultralow energy memory [J]. *Advanced Materials*, 2017, 29(35): 1701918.
- [30] Ouyang X, Xu Y, Xian M, et al. Synthetic helical dichroism for six-dimensional optical orbital angular momentum multiplexing [J]. *Nature Photonics*, 2021, 15(12): 901-907.
- [31] Li X, Ren H, Chen X, et al. Athermally photoreduced graphene oxides for three-dimensional holographic images [J]. *Nature Communications*, 2015, 6: 6984.
- [32] Wang S C, Ouyang X, Feng Z W, et al. Diffractive photonic applications mediated by laser reduced graphene oxides [J]. *Opto-Electronic Advances*, 2018, 1(2): 170002.
- [33] Parthenopoulos D A, Rentzepis P M. Three-dimensional optical storage memory [J]. *Science*, 1989, 245(4920): 843-845.
- [34] Li X P, Chon J W M, Wu S H, et al. Rewritable polarization-encoded multilayer data storage in 2, 5-dimethyl-4-(p-nitrophenylazo) anisole doped polymer [J]. *Optics Letters*, 2007, 32(3): 277-279.
- [35] Buse K, Adibi A, Psaltis D. Non-volatile holographic storage in doubly doped lithium niobate crystals [J]. *Nature*, 1998, 393(6686): 665-668.
- [36] 王琳, 樊华, 李臻, 等. 基于飞秒激光诱导双折射效应的时间胶囊的制备 [J]. *光子学报*, 2021, 50(6): 0650105.
- Wang L, Fan H, Li Z Z, et al. Fabrication of time capsules by femtosecond laser-induced birefringence [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2021, 50(6): 0650105.
- [37] Du D, Liu X, Korn G, et al. Laser-induced breakdown by impact ionization in SiO₂ with pulse widths from 7 ns to 150 fs [J]. *Applied Physics Letters*, 1994, 64(23): 3071-3073.
- [38] Joglekar A P, Liu H H, Meyhöfer E, et al. Optics at critical intensity: applications to nanomorphing [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2004, 101(16): 5856-5861.
- [39] von der Linde D, Sokolowski-Tinten K, Bialkowski

- J. Laser-solid interaction in the femtosecond time regime[J]. *Applied Surface Science*, 1997, 109/110: 1-10.
- [40] Maine P, Strickland D, Bado P, et al. Generation of ultrahigh peak power pulses by chirped pulse amplification [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1988, 24(2): 398-403.
- [41] Sundaram S K, Mazur E. Inducing and probing non-thermal transitions in semiconductors using femtosecond laser pulses [J]. *Nature Materials*, 2002, 1(4): 217-224.
- [42] Schaffer C B, Brodeur A, Mazur E. Laser-induced breakdown and damage in bulk transparent materials induced by tightly focused femtosecond laser pulses [J]. *Measurement Science and Technology*, 2001, 12(11): 1784-1794.
- [43] Bloembergen N. Laser-induced electric breakdown in solids [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1974, 10(3): 375-386.
- [44] Della Valle G, Osellame R, Laporta P. Micromachining of photonic devices by femtosecond laser pulses[J]. *Journal of Optics A*, 2009, 11(1): 013001.
- [45] Li X B, Liu X Q, Liu X, et al. Role of electronic excitation in the amorphization of Ge-Sb-Te alloys [J]. *Physical Review Letters*, 2011, 107(1): 015501.
- [46] Chichkov B N, Momma C, Nolte S, et al. Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids[J]. *Applied Physics A*, 1996, 63(2): 109-115.
- [47] Chen T, Wang W J, Tao T, et al. Deposition and melting behaviors for formation of micro/nano structures from nanostructures with femtosecond pulses[J]. *Optical Materials*, 2018, 78: 380-387.
- [48] Rayner D, Naumov A, Corkum P. Ultrashort pulse non-linear optical absorption in transparent media[J]. *Optics Express*, 2005, 13(9): 3208-3217.
- [49] 周秦岭, 刘丽英, 徐雷, 等. 飞秒激光辐照 K9 玻璃引起的暗化和折射率变化[J]. *中国激光*, 2005, 32(1): 119-122.
Zhou Q L, Liu L Y, Xu L, et al. Femtosecond laser induced darkening and refractive index change in K9 glass[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2005, 32(1): 119-122.
- [50] Miura K, Qiu J R, Inouye H, et al. Photowritten optical waveguides in various glasses with ultrashort pulse laser [J]. *Applied Physics Letters*, 1997, 71(23): 3329-3331.
- [51] Shimizu M, Sakakura M, Kanehira S, et al. Formation mechanism of element distribution in glass under femtosecond laser irradiation [J]. *Optics Letters*, 2011, 36(11): 2161-2163.
- [52] Taylor R, Hnatovsky C, Simova E. Applications of femtosecond laser induced self-organized planar nanocracks inside fused silica glass [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2008, 2(1/2): 26-46.
- [53] Glezer E N, Mazur E. Ultrafast-laser driven micro-explosions in transparent materials [J]. *Applied Physics Letters*, 1997, 71(7): 882-884.
- [54] Juodkazis S, Misawa H, Hashimoto T, et al. Laser-induced microexplosion confined in a bulk of silica: formation of nanovoids[J]. *Applied Physics Letters*, 2006, 88(20): 201909.
- [55] Sundaram S K, Schaffer C B, Mazur E. Microexplosions in tellurite glasses [J]. *Applied Physics A*, 2003, 76(3): 379-384.
- [56] Bhardwaj V R, Simova E, Rajeev P P, et al. Optically produced arrays of planar nanostructures inside fused silica [J]. *Physical Review Letters*, 2006, 96(5): 057404.
- [57] Liao Y, Shen Y L, Qiao L L, et al. Femtosecond laser nanostructuring in porous glass with sub-50 nm feature sizes[J]. *Optics Letters*, 2013, 38(2): 187-189.
- [58] Toratani E, Kamata M, Obara M. Self-fabrication of void array in fused silica by femtosecond laser processing [J]. *Applied Physics Letters*, 2005, 87(17): 171103.
- [59] Gaizauskas E, Vanagas E, Jarutis V, et al. Discrete damage traces from filamentation of Gauss-Bessel pulses[J]. *Optics Letters*, 2006, 31(1): 80-82.
- [60] 孙轲, 孙盛芝, 邱建荣. 玻璃基类介质光存储研究发展综述[J]. *激光与光电子学进展*, 2020, 57(11): 111407.
Sun K, Sun S Z, Qiu J R. Review on research progress of glasses used for optical storage[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2020, 57(11): 111407.
- [61] Davis K M, Miura K, Sugimoto N, et al. Writing waveguides in glass with a femtosecond laser [J]. *Optics Letters*, 1996, 21(21): 1729-1731.
- [62] Gorelik T, Will M, Nolte S, et al. Transmission electron microscopy studies of femtosecond laser induced modifications in quartz[J]. *Applied Physics A*, 2003, 76(3): 309-311.
- [63] Ams M, Marshall G, Spence D, et al. Slit beam shaping method for femtosecond laser direct-write fabrication of symmetric waveguides in bulk glasses [J]. *Optics Express*, 2005, 13(15): 5676-5681.
- [64] Tong L M, Gattass R R, Maxwell I, et al. Optical loss measurements in femtosecond laser written waveguides in glass [J]. *Optics Communications*,

- 2006, 259(2): 626-630.
- [65] Meany T, Gräfe M, Heilmann R, et al. Laser written circuits for quantum photonics [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2015, 9(4): 363-384.
- [66] Glezer E N, Milosavljevic M, Huang L, et al. Three-dimensional optical storage inside transparent materials [J]. *Optics Letters*, 1996, 21(24): 2023-2025.
- [67] Sun H B, Xu Y, Juodkakis S, et al. Arbitrary-lattice photonic crystals created by multiphoton microfabrication [J]. *Optics Letters*, 2001, 26(6): 325-327.
- [68] Juodkakis S, Nishimura K, Tanaka S, et al. Laser-induced microexplosion confined in the bulk of a sapphire crystal: evidence of multimegabar pressures [J]. *Physical Review Letters*, 2006, 96(16): 166101.
- [69] Huang J, Jiang L, Li X W, et al. Fabrication of highly homogeneous and controllable nanogratings on silicon via chemical etching-assisted femtosecond laser modification [J]. *Nanophotonics*, 2019, 8(5): 869-878.
- [70] Cheng G H, Wang Y S, White J D, et al. Demonstration of high-density three-dimensional storage in fused silica by femtosecond laser pulses [J]. *Journal of Applied Physics*, 2003, 94(3): 1304-1307.
- [71] Storage technology developed for fused silica glass to record and read digital data in the order of CD recording density [EB/OL]. (2012-09-24) [2022-01-25]. <https://www.hitachi.com/New/cnews/120924.html>.
- [72] Hitachi continues R&D to preserve the heritage of human civilization [EB/OL]. (2014-03-10) [2022-01-25]. https://social-innovation.hitachi/en/case_studies/rd_silica_glass.
- [73] Kazansky P G, Inouye H, Mitsuyu T, et al. Anomalous anisotropic light scattering in Ge-doped silica glass [J]. *Physical Review Letters*, 1999, 82(10): 2199-2202.
- [74] Qiu J R, Kazanski P G, Si J H, et al. Memorized polarization-dependent light scattering in rare-earth-ion-doped glass [J]. *Applied Physics Letters*, 2000, 77(13): 1940-1942.
- [75] Sudrie L, Franco M, Prade B, et al. Study of damage in fused silica induced by ultra-short IR laser pulses [J]. *Optics Communications*, 2001, 191(3/4/5/6): 333-339.
- [76] Shimotsuma Y, Kazansky P G, Qiu J R, et al. Self-organized nanogratings in glass irradiated by ultrashort light pulses [J]. *Physical Review Letters*, 2003, 91(24): 247405.
- [77] Bricchi E, Klappauf B G, Kazansky P G. Form birefringence and negative index change created by femtosecond direct writing in transparent materials [J]. *Optics Letters*, 2004, 29(1): 119-121.
- [78] Mills J D, Kazansky P G, Bricchi E, et al. Embedded anisotropic microreflectors by femtosecond-laser nanomachining [J]. *Applied Physics Letters*, 2002, 81(2): 196-198.
- [79] Yang W J, Bricchi E, Kazansky P G, et al. Self-assembled periodic sub-wavelength structures by femtosecond laser direct writing [J]. *Optics Express*, 2006, 14(21): 10117-10124.
- [80] Taylor R S, Hnatovsky C, Simova E, et al. Femtosecond laser erasing and rewriting of self-organized planar nanocracks in fused silica glass [J]. *Optics Letters*, 2007, 32(19): 2888-2890.
- [81] Tsujioka T, Hamada Y, Shibata K, et al. Nondestructive readout of photochromic optical memory using photocurrent detection [J]. *Applied Physics Letters*, 2001, 78(16): 2282-2284.
- [82] Richter S, Heinrich M, Döring S, et al. Nanogratings in fused silica: formation, control, and applications [J]. *Journal of Laser Applications*, 2012, 24(4): 042008.
- [83] Mihailov S J, Smelser C W, Grobnc D, et al. Bragg gratings written in all-SiO₂ and Ge-doped core fibers with 800-nm femtosecond radiation and a phase mask [J]. *Journal of Lightwave Technology*, 2004, 22(1): 94-100.
- [84] Shimotsuma Y, Sakakura M, Kazansky P G, et al. Ultrafast manipulation of self-assembled form birefringence in glass [J]. *Advanced Materials*, 2010, 22(36): 4039-4043.
- [85] Huang M, Zhao F L, Cheng Y, et al. Origin of laser-induced near-subwavelength ripples: interference between surface plasmons and incident laser [J]. *ACS Nano*, 2009, 3(12): 4062-4070.
- [86] 戴晔, 邱建荣. 单光束飞秒激光诱导石英玻璃内部纳米光栅的研究进展 [J]. *激光与光电子学进展*, 2013, 50(12): 120002.
- Dai Y, Qiu J R. Research progress of single beam femtosecond laser direct writing self-organized nanogratings in fused silica [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2013, 50(12): 120002.
- [87] Rajeev P P, Gertsvolf M, Hnatovsky C, et al. Transient nanoplasmonics inside dielectrics [J]. *Journal of Physics B*, 2007, 40(11): S273-S282.
- [88] Richter S, Heinrich M, Döring S, et al. Formation of femtosecond laser-induced nanogratings at high repetition rates [J]. *Applied Physics A*, 2011, 104

- (2): 503-507.
- [89] Dai Y, Wu G R, Lin X, et al. Femtosecond laser induced rotated 3D self-organized nanograting in fused silica[J]. *Optics Express*, 2012, 20(16): 18072-18078.
- [90] Cao W, Jiang L, Hu J, et al. Optical field enhancement in Au nanoparticle-decorated nanorod arrays prepared by femtosecond laser and their tunable surface-enhanced Raman scattering applications [J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2018, 10(1): 1297-1305.
- [91] Martin P, Guizard S, Daguzan P, et al. Subpicosecond study of carrier trapping dynamics in wide-band-gap crystals[J]. *Physical Review B*, 1997, 55(9): 5799-5810.
- [92] Petite G, Daguzan P, Guizard S, et al. Conduction electrons in wide-bandgap oxides: a subpicosecond time-resolved optical study[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, 1996, 107(1/2/3/4): 97-101.
- [93] Mao S S, Quéré F, Guizard S, et al. Dynamics of femtosecond laser interactions with dielectrics [J]. *Applied Physics A*, 2004, 79(7): 1695-1709.
- [94] Song K, Williams R T. *Self-trapped excitons*[M]. Heidelberg: Springer, 2013.
- [95] Wang H D, Song J, Li Q, et al. Formation of nanograting in fused silica by temporally delayed femtosecond double-pulse irradiation [J]. *Journal of Physics D*, 2018, 51(15): 155101.
- [96] Liao Y, Ni J L, Qiao L L, et al. High-fidelity visualization of formation of volume nanogratings in porous glass by femtosecond laser irradiation [J]. *Optica*, 2015, 2(4): 329-334.
- [97] Zimmermann F, Plech A, Richter S, et al. The onset of ultrashort pulse-induced nanogratings [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2016, 10(2): 327-334.
- [98] Rudenko A, Ma H F, Veiko V P, et al. On the role of nanopore formation and evolution in multi-pulse laser nanostructuring of glasses[J]. *Applied Physics A*, 2017, 124(1): 1-11.
- [99] Sakakura M, Lei Y, Wang L, et al. Ultralow-loss geometric phase and polarization shaping by ultrafast laser writing in silica glass [J]. *Light: Science & Applications*, 2020, 9: 15.
- [100] Cox A J, DeWeerd A J, Linden J. An experiment to measure Mie and Rayleigh total scattering cross sections[J]. *American Journal of Physics*, 2002, 70(6): 620-625.
- [101] Lei Y H, Sakakura M, Wang L, et al. High speed ultrafast laser anisotropic nanostructuring by energy deposition control via near-field enhancement [J]. *Optica*, 2021, 8(11): 1365-1371.
- [102] Fang H H, Lu S Y, Zhan X P, et al. Low threshold melt-processed two-photon organic surface emitting upconversion lasers [J]. *Organic Electronics*, 2013, 14(3): 762-767.
- [103] Shribak M, Oldenbourg R. Techniques for fast and sensitive measurements of two-dimensional birefringence distributions [J]. *Applied Optics*, 2003, 42(16): 3009-3017.
- [104] 李跃东, 尹唯一, 戴晔. 飞秒脉冲激光的时空变换影响纳米光栅直写过程的研究进展 [J]. *激光与光电子学进展*, 2020, 57(11): 111403.
- Li Y D, Yin W Y, Dai Y. Research progress on spatio-temporal coupling of femtosecond pulse laser for direct-writing nanograting [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2020, 57(11): 111403.
- [105] Sun B S, Salter P S, Roeder C, et al. Four-dimensional light shaping: manipulating ultrafast spatiotemporal foci in space and time [J]. *Light: Science & Applications*, 2018, 7(1): 17117.
- [106] Froula D H, Turnbull D, Davies A S, et al. Spatiotemporal control of laser intensity[J]. *Nature Photonics*, 2018, 12(5): 262-265.
- [107] Hell S W. Far-field optical nanoscopy[J]. *Science*, 2007, 316(5828): 1153-1158.
- [108] Li Z Z, Wang L, Fan H, et al. O-FIB: far-field-induced near-field breakdown for direct nanowriting in an atmospheric environment [J]. *Light: Science & Applications*, 2020, 9: 41.

Femtosecond Laser Direct Writing for Eternal Data Storage: Advances and Challenges

Wang Lei¹, Zhang Xu¹, Wang Yi², Wang Lin¹, Wang Qing¹, Zang Xue¹, Li Ruifan³,
Xu Yishi¹, Li Zhenze¹, Chen Qidai^{1*}

¹ College of Electronic Science and Engineering, State Key Laboratory of Integrated Optoelectronics, Jilin University, Changchun 130012, Jilin, China;

² Department of Precision Instrument, State Key Laboratory of Precision Measurement Technology and Instruments, Tsinghua University, Beijing 100084, China;

³ College of Material Science and Engineering, Jilin University, Changchun 130012, Jilin, China

Abstract

Significance Nowadays, the using of big data is reshaping our lives via artificial intelligence (AI) and internet of things (IoT) by penetrating education medical care, business, entertainment, and so on. Industrial companies around the world are sparing no effort to collect much data to obtain market conditions, competitors, and logistics information for profits and have long created TB- or even PB-scale information. Meanwhile, consumers are integrating social media, entertainment, and real-time personalized services on mobile devices to connect with friends and shop online. According to the International Data Corporation (IDC), there is an explosive growth in global data, which is estimated to reach 175 zettabytes (ZBs) by 2025. However, the disparity between the amount of digital data and the available storage capacities is enlarging. Most importantly, data storage accounts for 1% of global electricity consumption and exert enormous pressure on resources and environments. However, none of the current medium is capable to meet the requirements. In especial, the cold data storage that is for culture, history, scientific research and these important but infrequently used data is urgently calling for long-term and high capacity medium.

Therefore, we are challenged with the arduous task of developing next-generation data storage technologies, where femtosecond laser direct writing for eternal data storage offers a practical solution with low energy consumption, long lifetime, and high capacity. With multiplexing degrees of freedom, this technology's achievable limit capacity could reach 360 TB/disc. Furthermore, accelerated aging measurements show that nanograting has unprecedentedly high stability, including thermal stability up to 1000 °C and a practically unlimited lifetime.

Progress We reviewed the research progress of femtosecond laser direct writing for eternal data storage. At first, we introduce the interaction between femtosecond laser and materials by reviewing three types of modification. On this basis, the concept and basic physical mechanism of femtosecond laser permanent optical storage were introduced. Then, we reviewed the development of 3D optical storage and 5D optical storage, as well as the structure formation mechanism in detail. Next, we introduced the high-density storage of over 100 layers and fast data recording at a speed of 100 kB/s via a single channel (potential MB/s via multichannel). At the final, based on electronic field continuity conditions at the nanoscale, we calculated the theoretical bottleneck and physical limit of optical storage by femtosecond laser direct writing.

Conclusion and Prospect Femtosecond laser direct writing inside hard materials for permanent optical storage provides an unexceptionable solution for cold data storage to meet the demands of big data era. However, there are still some significant scientific and technical problems that must be addressed between the laboratory and the industrial application. For instance, volumes of nanograting must be minimized, and the dot and layer spacing must be reduced to increase the storage density. Moreover, fast writing with fewer pulses and new data readout algorithms for accurate and fast data readout are required. We firmly believe this technology will support every aspect of our lives and bring huge economic benefits to society in the future.

Key words photoelectric device processing; femtosecond laser; laser materials processing; laser-matter interactions; optical storage; nanograting