

面向大数据应用的大容量全息光存储技术研究进展

胡德骄^{1,2*}, 王震², 罗铁威², 夏启繁¹, 张荻琴³, 赵榆霞³, 郑穆², 李向平¹, 曹耀宇^{1*}

¹暨南大学光子技术研究院, 广东省光纤传感与通信技术重点实验室, 广东 广州 510632;

²广东紫晶信息存储技术股份有限公司, 广东 梅州 514000;

³中国科学院理化技术研究所, 北京 100190

摘要 随着信息时代全球数据量爆发式增长,需要存储的数据量与日俱增。面对大数据存储的挑战,全息光存储技术将信息以数据页的形式并行记录在体全息介质中,可以实现大容量数据的存储与高速读写,具有独特优势。本文从全息存储的原理和关键技术入手,详细介绍了面向商业化应用的全息光存储系统和全息光存储介质的研究现状,探讨了实现大容量和长寿命数据存储的技术途径。

关键词 全息; 全息光存储技术; 大数据; 全息记录介质

中图分类号 O436 文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL230870

1 引言

随着信息时代全球数据爆发式增长,需要存储的数据量与日俱增。如何安全、长期、稳定且低能耗地存储互联网和各种应用场景中生成的海量数据,已成为未来信息技术发展的基石^[1]。基于磁介质的机械硬盘存储是目前大容量存储采用的主要方式。目前,单个机械硬盘的容量可达 20 TB 以上,应用场景广泛。最近几年快速发展起来的固态硬盘存储技术,也被称为电存储技术,具有相当高的读写速率;随着技术迭代,其容量也得到了提升。然而,它们都存在功耗大、存储寿命短、安全性低、稳定性差等问题,特别是在面对容量不断攀升而访问频率又随时间降低的“冷”数据时,这些问题被迅速放大。相比之下,光存储技术具有高可靠性、长寿命(可超过 50 年)、低能耗等特点。因此,如何利用光存储技术的优势满足大数据存储的需求,已成为业界研究的重点之一^[2-3]。

在传统的光存储技术中,信息的写入和读取主要发生在激光焦点区域内,通过调整激光焦点的位置和光强实现串行信息记录,利用返回光信号再现记录信息。基于此,光存储技术和光存储产业发展经历了 CD、DVD、BD 到 AD(档案光盘)4 个阶段^[4-5]。2019 年, Sony 公司推出第二代档案光盘,其单盘容量可达到 500 GB。然而,该技术的最小数据记录点尺寸已达到 68 nm,几乎接近现有技术路线的极限。这些光存储技术都属于面存储,即记录点都在一个或多个平面

上,只能以增加记录平面层数的方式来增加容量。随着层数越来越多,层间的相互干扰越来越严重,而且每一个记录层的反射率也会越来越低,导致信噪比下降,误码率上升。因此,通过进一步增加记录层数来扩大其容量的方案已很难持续,容量存在一定上限。此外,为了增加光盘的寿命,无机玻璃被用于替代聚合物存储介质。例如,2019 年,微软发布了基于透明石英玻璃的光盘,利用飞秒激光在玻璃上创建不同深度和角度的多层三维纳米光栅,将数据编码到光盘中。但是,飞秒激光器的成本很高,光学系统体积较大,数据存取速度较慢^[6]。随着人工智能、云计算等 IT 技术的发展,人们对提升光存储容量和存读速率提出了更迫切的要求。

全息光存储技术通常利用激光的相干性将待存储数据转换成光的振幅、相位以及偏振等状态信息,并将其记录在光敏材料中。作为一种并行体存储技术,该技术利用光的干涉和衍射效应,对大量数据编码后,以数据页的形式记录在三维空间中,充分利用了记录介质的厚度维度,因而可以实现大容量存储。同时,该技术利用并行存储的优势来实现高速读写^[7-12]。全息存储的数据存储容量与多通道复用技术以及记录介质的性能息息相关。复用技术决定了所能记录全息图的密度上限,是实现大容量存储的关键一环,而记录介质的性能则影响着复用技术的应用效果。常用动态范围来表征记录介质所能提供的极限复用密度。动态范围可用记录介质的折射率调制度 Δn 或与衍射效率直接相

收稿日期: 2023-05-29; 修回日期: 2023-07-07; 录用日期: 2023-07-14; 网络首发日期: 2023-07-30

基金项目: 国家重点研发计划(2022YFB2804301)、国家自然科学基金(62275108, 12272362)、广东省重点领域研发计划项目(2019B090915003)

通信作者: *yaoyucao@jnu.edu.cn; *hudejiao@amethystum.com

关的参数 $M/\#$ 来表示。记录介质需要具有足够高的动态范围 ($\Delta n > 5.6 \times 10^{-3}$, $M/\# > 25/0.5 \text{ mm}$), 以确保多通道复用记录的全息图都有足够的衍射效率, 从而保证复用密度可充分实现。同时, 记录介质的膨胀或收缩会导致其 Bragg 角发生偏离^[8], 导致对记录信息的完整读取变得困难甚至不可能。特别是光致聚合物材料, 当对其进行曝光时, 其会由于单体聚合而产生收缩, 对所记录的全息图造成影响。此外, 记录介质对光场的瑞利散射或米散射会引入杂散光, 导致信噪比下降。因此, 还要求记录介质具备低收缩 ($< 0.1\%$)、低散射等特点^[8], 以便使每一幅全息图的读出信号有足够高的信噪比。此外, 使用图像稳定技术让光束跟随介质移动 (以延长记录介质在高速移动过程中的曝光时间), 可在千帧每秒以上的读写帧率下实现百微秒以上的曝光时间^[13]。利用这种技术, 在曝光时间为 $0.7 \sim 1 \text{ ms}$ 、曝光功率密度为 100 mW/cm^2 的情况下, 当记录介质的灵敏度达到 0.7 cm/mJ 时, 全息光存储的写入速率可以达到数百 MB/s。

本文从全息光存储的技术原理出发, 介绍了适用于商业应用的全息光存储技术, 包括全息光存储系统与全息存储材料的国内外研究进展, 并对未来光学体全息存储技术的应用进行了展望。

2 全息光存储原理

最简单的全息图可以通过成一定夹角的两束准直平行光束 (平面波) 在记录介质中干涉曝光生成, 如图 1(a)、(b) 所示。两束平面波在记录介质中形成稳定的明暗干涉条纹, 明条纹区域的记录介质在光的作用下发生折射率实部或虚部的变化, 从而形成与暗条纹区域的折射率差。这种折射率差最终体现为在一定空间范围内的周期性折射率调制, 即为全息图或全息光栅。理想情况下, 两束平面波干涉所形成的全息光栅具有余弦型的折射率调制分布, 即

$$n = n_0 + \Delta n \cos(\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}), \quad (1)$$

式中: n_0 为折射率直流分量; Δn 为折射率调制度; \mathbf{K} 为光栅倒格矢; \mathbf{r} 为空间坐标矢量。光栅倒格矢与光栅周期 Λ 存在以下换算关系: $|\mathbf{K}| = \frac{2\pi}{\Lambda}$ 。一般地, 这里的

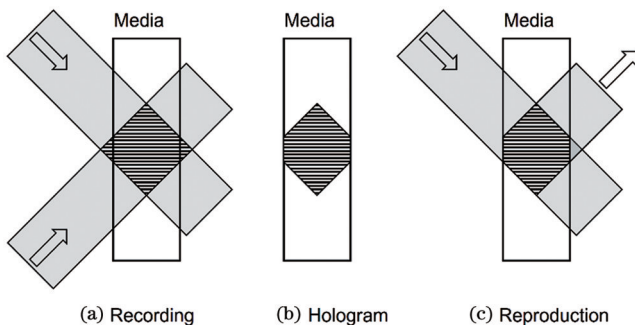


图 1 全息记录和再现的基本原理示意图

Fig. 1 Schematic of holographic recording and reproduction

折射率调制包含实部和虚部的调制。当有光束照射到全息图上时, 折射率实部对光束的相位产生调制作用, 而折射率虚部对光束的振幅产生调制作用。两种情况分别对应相位型全息图和振幅型全息图。由于振幅型全息图会带来额外的光损耗, 故全息光存储一般采用相位型全息图来实现。

全息图可以记录在薄记录介质或厚记录介质上。记录在薄记录介质上的二维全息图对光束的衍射属于 Raman-Nath 衍射, 其与光束的相互作用较弱, 而且一般会有多个级次的衍射, 入射光束在较大入射角度范围内均能产生衍射光, 不利于实现高密度存储。记录在厚介质上的体全息图对光束的衍射属于 Bragg 衍射, 其具有的 Bragg 选择性要求入射光束只有满足一定的匹配条件才能实现信号的读取。利用 Bragg 选择性, 可在记录介质的同一区域记录多幅全息图, 并可使用满足各自 Bragg 条件的参考光进行读取而互不串扰。Bragg 选择性越严格, 则能在同一区域复用的全息图越多, 这一特性是实现高密度存储的基础。因此, 全息光存储所使用的记录介质厚度一般为 $500 \mu\text{m}$ 到几毫米, 而且光栅周期小于 $1 \mu\text{m}$ 。可引入参数 Q 作为薄 (二维) 全息图或厚 (体) 全息图的判据^[14], 即

$$Q = \frac{2\pi\lambda L}{n_0\Lambda^2}, \quad (2)$$

式中: λ 是入射光波长; L 是记录介质的厚度。当 $Q < 10$ 时, 全息图位于 Raman-Nath 衍射区, 具有多级次衍射, 对应的全息图为二维全息图; 当 $Q > 10$ 时, 全息图位于 Bragg 衍射区, 具有单一衍射级次, 对应的全息图为体全息图^[14-15]。在激光波长为 405 nm 的情况下, 假设光栅周期与波长相同, n_0 取 1.56 , 可估算得到: 当 $L > 1 \mu\text{m}$ 时, 所记录的全息图为体全息图。

当照射全息图的光束为记录光束之一时, 其光场经过全息图调制衍射后, 可将另一光束通过衍射再现出来, 如图 1(c) 所示。其中, 照射全息图的光束为参考光, 被再现出来的光束为信号光。信号光与参考光的光强之比即为再现时的衍射效率 (DE, η), $\eta = I_d/I_r$ (I_d 表示复现出来的信号光的光强, I_r 表示用于复现的参考光的光强)。利用耦合波理论^[16] 可以很方便地通过理论计算得到平面波体全息光栅的衍射效率。对于纯相位型透射式全息图, 当满足 Bragg 匹配条件时, 其衍射效率为

$$\eta = \sin^2\left(\frac{\pi\Delta n L}{\lambda\sqrt{\cos\theta_r\cos\theta_s}}\right), \quad (3)$$

式中: θ_r, θ_s 为参考光和信号光与记录介质表面法线的夹角。当衍射效率远小于 1 时, 该衍射效率正比于折射率调制度和介质厚度的平方, 即

$$\eta \propto (\Delta n L)^2, \text{ or } \sqrt{\eta} \propto \Delta n L. \quad (4)$$

在一定入射光强条件下, 衍射效率的高低决定了信号光的强弱, 从而影响所获取数据的信噪比, 因此衍

射效率是影响全息光存储性能的关键因素。按照 LDPC 编码方式,在参考光光强约为 8 mW/cm^2 的条件下,衍射效率 η 为 5×10^{-5} 即可获得具有足够信噪比的高码率再现信号(数据由广东紫晶信息存储技术股份有限公司提供)。高密度存储一般通过在记录介质的相同区域复用记录多幅全息图来实现,每一幅全息图都会消耗该区域一定的折射率调制度。当某区域的复用全息图达到最大数量时,其所能用的折射率调制度被完全耗尽,一般用最大折射率调制度 Δn_{\max} 或 $M/\#$ ^[8,17] 作为表征记录介质复用性能的参数。如图 2 所示,以角度复用为例, $M/\#$ 的计算公式为

$$M/\# = \sum_{i=1}^N \sqrt{\eta_i}, \quad (5)$$

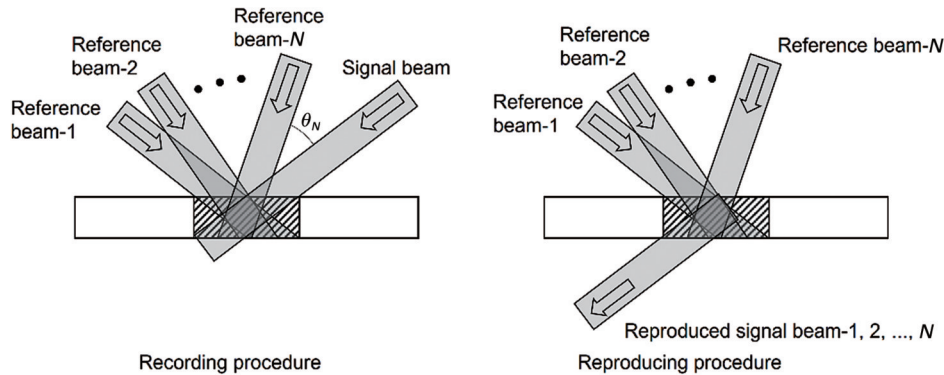


图 2 角度复用示意图

Fig. 2 Schematic of angular multiplexed recording and reproduction

全息光存储技术除了可以使用平面波之外,理论上还可以使用具有任意波前形状的光束进行记录和再现。例如,使用透镜将被照明物体所反射出的光波进行傅里叶变换,可在焦平面上得到物体的频域光场。将物体的频域光场与另一参考光束干涉并对记录介质进行曝光,就可将物体的频域信息记录到全息图中。全息光存储技术一般采用傅里叶变换全息图,其原因包括:1)在光束传播路径上,傅里叶频域面具有最小的光束尺寸,而且可以通过空间频域滤波的方式最大限度地去除多余频谱成分,仅保留由采样定理所决定的最大频谱,从而最大限度地减小全息图尺寸,提高全息图密度;2)傅里叶变换光学系统具有更大的记录介质偏离容许度,可降低读取过程中对伺服系统的要求^[8];3)可通过对频域面进行特殊光学滤波实现对全息信息的直接处理^[8]。

在基于傅里叶变换全息的全息光存储技术中,信号光由空间光调制器对平面光波调制后经傅里叶变换透镜产生,并与参考光在记录介质中重叠,发生干涉。根据参考光与信号光的关系,可将全息光存储分为同轴全息光存储和离轴全息光存储两大类:同轴全息光存储的参考光和信号光经过同一块傅里叶变换透镜后在频谱面上重叠,具有轴对称特点^[18-20];而离轴全息光存储的参考光和信号光的光轴则成一定角度^[8-9]。一

式中: η_i 为第*i*幅复用全息图的衍射效率。最大折射率调制度与 $M/\#$ 之间存在以下关系:

$$\Delta n_{\max} = \frac{M/\#}{\pi L} \lambda \sqrt{\cos \theta_r \cos \theta_s}. \quad (6)$$

可见,由于 $M/\#$ 与衍射效率直接相关,利用它可以较为方便地评估记录介质的复用能力。在假设所有全息图的衍射效率相同的情况下,最大复用数即可由 $\frac{M/\#}{\sqrt{\eta}}$ 计算得出。根据式(4)以及反射式全息图的衍射效率公式^[8,16]可推知 $M/\#$ 与最大折射率调制度、记录介质厚度成正比。因此,在记录介质的最大折射率调制度一定的情况下,可以通过增加记录介质的厚度来提升存储容量。

般来说,同轴全息常采用基于相关性的复用方式^[8]。其中一种方式需要构造一系列具有某种复振幅分布的参考光,以便使这些参考光之间的互相关系数为零。这样的每一种参考光单独与信号光干涉并在同一位置曝光生成复用全息图。当某一种参考光照射全息图位置进行数据读取时,只能再现与该参考光对应的信号光。另一种方式只需要一束具有特殊复振幅分布的参考光,当它移动时,自相关系数随移动距离增加而急剧衰减。当自相关系数衰减到一定值以下时,即可进行基于相关性的移位复用^[8]。在同轴全息技术中,基于相关性的复用方式包括正交编码复用、相位编码复用、移位复用等^[21-22]。离轴全息除了可以使用相关性复用方式外,还可以使用基于 Bragg 选择性的角度复用^[8]、周向复用(或交叉复用^[23-24])、球面波移位复用^[25]等,而且这些方式也经常使用。例如紫晶存储技术方案,其采用球面波参考光移位复用与交叉复用结合的方式^[9,23,25]来实现大容量数据存储。由于参考光使用了球面波,其参考光波矢具有空间分布特点,当参考光相对于所记录的全息图中心偏离一定距离后,由于无法满足 Bragg 匹配条件,其再现信号光的衍射效率可降低到 0。衍射效率随参考光偏离距离变化的曲线即为选择性曲线,如图 3(a)所示。在移位选择性曲线中,将衍射效率由峰值降低到 0 的两点之间的距离称为移

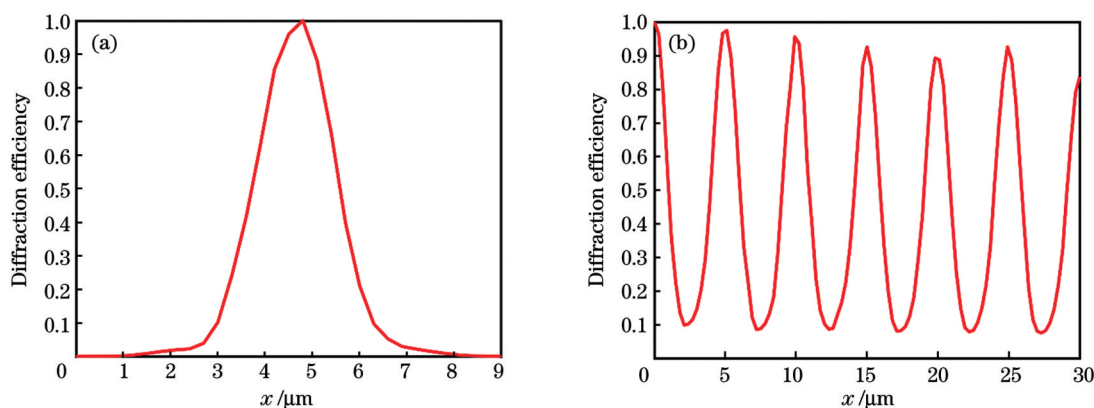


图3 典型的选择性曲线以及全息图的衍射效率随再现参考光位置的变化曲线(由广东紫晶信息存储技术股份有限公司提供)。

(a)球面波参考光典型的选择性曲线;(b)以移位复用方式记录的全息图的衍射效率随再现参考光位置的变化曲线

Fig. 3 Typical selectivity curve and diffraction efficiency versus the position of the media relative to the reference beam (provided by Amethystum Storage Technology Co., Ltd.). (a) Typical selectivity curve related to spherical wave reference beam; (b) diffraction efficiency from multiplex-recorded holograms as a function of relative position between the media and the reference beam

位选择性长度。移位选择性长度是决定复用性能的关键参数,其越小,意味着可在同一区域以移位复用的方式记录的全息图越多。图3(b)所示曲线是以 $5\ \mu\text{m}$ 的移位距离复用记录的一系列全息图对应的衍射效率曲线。

3 全息光存储技术

3.1 全息光存储系统

全息光存储系统通常包括光路系统、伺服系统以及信号处理和编解码系统等子模块,其核心是光路系统,对系统整体性能具有重要影响。优良的光路设计不仅可以缩小系统尺寸,还可以提升系统的稳定性、容量、传输速率等性能。此外,伺服系统可为光路系统的精确和稳定运行提供保障,信号处理和编解码系统是保证数据准确读出的重要基础。

全息光存储光路系统的核心器件主要有空间光调制器、图像传感器和傅里叶变换透镜。空间光调制器的作用是将数据加载到信号光上,其主要参数包括像素数、像素大小、填充率以及调制比(振幅型空间光调制器)等。像素数和像素大小分别影响单个数据页容量和全息图大小,像素数的典型值为200万到400万,像素尺寸在 $10\ \mu\text{m}$ 以内。此外,填充率要求大于85%,调制比要求大于500。图像传感器用于采集再现出的信号光所携带的数据页图像,关键参数包括像素数、帧率以及最低可读出能量密度等。图像传感器对再现的数据页图像进行读取时实际上是对图像进行了空间离散采样。根据采样定理,图像传感器所需的像素数一般比空间光调制器多,以保证空间光调制器的一个像素对应多个图像传感器像素。傅里叶变换透镜是用于进行空域-频域转换的关键光学元件,承担着将数据页图像传递到全息图,并由全息图传递到图像传感器的任务。为保证光路系统的性能,必须充分考虑各核心器件的协同性。例如,由于空间光调制器和图像传感器的像素尺寸具有一定差异,需要在图像传感器前面

设计倍率镜,以匹配像素尺寸。除了以上核心器件外,全息光存储光路系统还包括激光光源、扩束准直系统、奈奎斯特滤波系统、分束器件、光快门等。

伺服系统用于控制光学元件或记录介质的位置,以确保参考光束和信号光束的位置相对于记录介质在一定容许范围内。为实现此功能,用传感器系统、伺服信号处理系统、控制器、驱动器以及运动机构等构成伺服系统。传感器系统一般由伺服光路和光电传感器模块构成,伺服光路发出伺服光束并照射到记录介质上,经记录介质反射或衍射后照射到光电传感器模块,运算后得到伺服信号。伺服信号包括用于表征离焦情况的对焦误差信号、用于表征偏离轨道情况的锁轨误差信号等。伺服信号经伺服信号处理模块进行滤波、放大等处理后送入控制器和驱动器,控制运动机构的移动,从而保证光束和记录介质的位置偏差在可接受范围内。2022年,广东紫晶信息存储技术股份有限公司通过精密位移平台机构控制光束与记录介质之间的相对位置,在实验室验证了小于 $100\ \text{nm}$ 定位精度的闭环伺服系统。

在全息光存储技术中,所需存储的数据经过编码形成二维数据页的形式,并通过空间光调制器和记录系统写入记录介质中;在读取过程中,再现出的信号光经傅里叶逆变换、倍率镜匹配后被图像传感器采集,经信号处理、解码之后输出读出数据。编解码技术主要包括调制编解码、纠错编解码等。调制编码的目的主要是降低数据页中的“1”和对应的亮像素数量,因此会有更多的暗像素,而暗像素不会消耗记录介质的 $M/\#$,故而潜在增加了复用密度。此外,稀疏的亮像素分布还具有避免由亮点聚集带来的信噪比下降、均衡空间频率等作用。纠错编解码一般包含RS码、BCH码、LDPC码等,用于对数据进行算法纠错,以保证误码率低于所要求的水平。图像传感器采集的数据在进行纠错解码之前,还需要经过仿射变换、下采样、自动增益、

均衡、解交织等信号处理步骤。

2000年前后,部分高校和公司开始进行全息光存储的商业化研发,其技术路线主要分为两条,其一是以斯坦福大学为代表的同轴全息光存储系统,其二是以InPhase为代表的离轴全息光存储系统。同轴技术通过调整物镜对光束位置进行校正,结构简单紧凑,双束光光路相同(稳定性高),实现难度小,利于产品系统的小型化。但是由于参考光和信号光重叠区域有限,仅为百微米量级,因此记录介质无法具有较大的厚度,限制了存储密度的上限。而离轴技术的光场重叠区域较大,可支持毫米量级厚度的记录介质,存储密度上限高。但是其两路光所占据空间较大,导致系统体积较大;两束光相对位置易受振动影响,稳定性差,而且难以通过同时调整两路光进行位置校正。两种技术路线各有优缺点。

2000年,斯坦福大学演示了高达1 Gb/s传输速率的同轴全息光存储样机。该样机使用了1024 pixel×1024 pixel的空间光调制器以及匹配像素的高速相机(1000 frame/s),同时将高重复频率的脉冲激光器作为读写光源^[8]。此后,Optware和Sony等公司在同轴全息光存储技术路线上进行了产品化开发,并于2006年前后演示了容量为200 GB~1 TB的样机系统。Sony公司的样机系统使用了连续激光器,其功率峰值远低于脉冲激光器。研究人员设计了可使光束跟随介质移动的技术。利用这种技术可以增加记录介质在高速移

动过程中的曝光时间,保证了较高的读写帧率,从而可以获得较高的读写速率^[13,19]。近些年,福建师范大学的谭小地课题组^[22]围绕新型编码技术展开研究,在复振幅编码等方面取得了较大进展,为进一步提升存储容量奠定了基础。在离轴全息光存储方面,InPhase公司于2001年左右推出了基于角度复用的全息光驱Tapestry,该光驱经过了产品化的紧凑设计,具有较小的尺寸(14.6 cm×12.38 cm×69.85 cm)。2001—2009年,该系列光驱进行了多次迭代,容量达到了300 GB,读写速率为20 MB/s^[8]。2017年之后,东京理科大学和广东紫晶信息存储技术股份有限公司基于球面波参考光开发了单臂离轴全息光存储系统,如图4所示。该系统具有两大特点,其中一个特点是单臂系统设计。该系统利用偏振分束器将光束分为具有正交偏振的信号光和参考光,其中信号光经空间光调制器(DMD)加载数据页之后立即经同一个偏振分束器与参考光合束。两束光经过相同的奈奎斯特滤波路径传播到记录介质附近时再分为两束,从两个角度照射记录介质,在一定程度上解决了离轴系统体积较大且不稳定的问题。第二个特点是参考光经物镜会聚之后成为会聚和发散的球面波,从而实现球面波移位复用。广东紫晶信息存储技术股份有限公司基于单臂系统设计开发了相应的存储样机,其核心部分尺寸约为300 mm×210 mm×150 mm,如图4(b)所示。该系统使用50 mm×50 mm的记录介质,其容量约为300 GB。

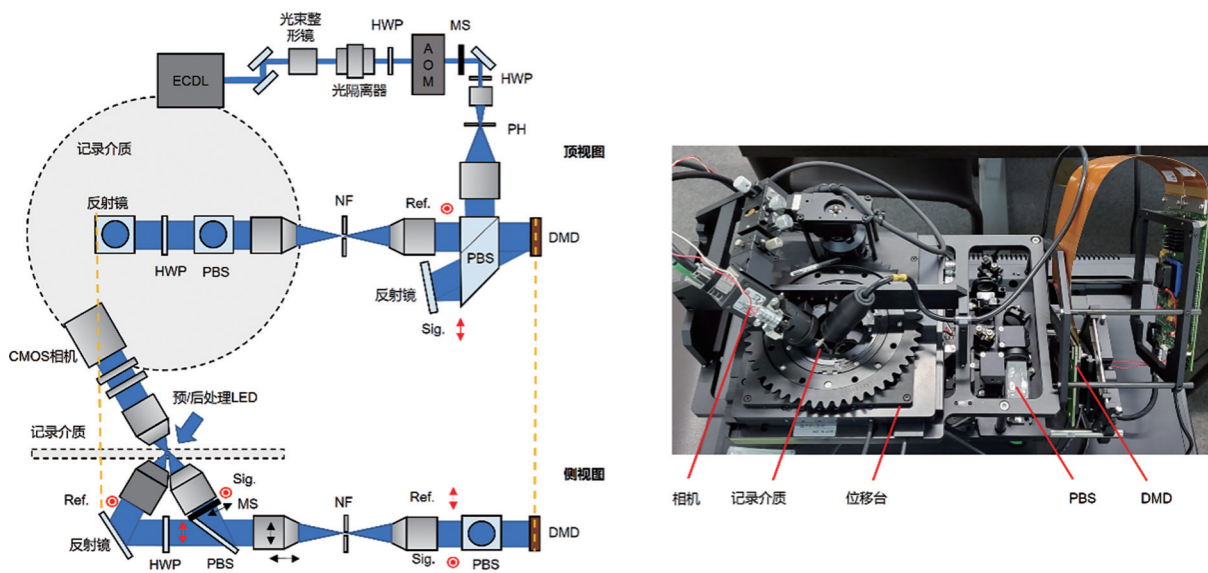


图4 离轴全息光存储光路的单臂设计方案及全息光存储样机实物照片^[25](由广东紫晶信息存储技术股份有限公司提供)

Fig. 4 Single arm design for off-axis holographic data storage system and the prototype of holographic data storage^[25] (provided by Amethystum Storage Technology Co., Ltd.)

3.2 全息光存储材料

在全息光存储技术逐步走向商业化的几十年的发展过程中,光致聚合物以其高稳定性、低成本、长寿命和易制备等优势,从众多可用于进行全息光存储的候选存储材料中脱颖而出。经过几十年的深入研究,通

过围绕高效且精确地实现碳碳双键的光化学反应调控开展攻关(目的是实现全息图的记录),研究人员完成了诸多材料的组分合成和配方设计工作,存储材料从单一组分发展到多组分,从有机分子材料发展到有机/无机复合材料。根据目前的文献报道,近商业化的存

储材料已超过数百种,典型的存储材料及其特性如表 1 所示。为提高全息存储材料技术的成熟度,通常

需要全面实现高动态范围、高灵敏度、低收缩率、低散射等关键技术指标。

表 1 典型光致聚合物存储材料及其特性
Table 1 Typical photopolymers and their performances

Company or unit	Material	$M/\#^*$	Photosensitivity / ($\text{cm}\cdot\text{mJ}^{-1}$)	Shrinkage / %	Scattering (BSDF)	Archival lifetime
California Institute of Technology ^[26]	PQ/PMMA	0.8				
Rice University ^[27]	Epoxy resin/vinyl monomers	4.3				
Aprilis ^[28]	HMD-050-G-C-400	27.5	0.5			
University of California, Santa Barbara ^[29]	Polyurethane/acrylate	10	0.46	0.04		
Swinburne University of Technology ^[30]	LS-CASs	1.6		0.02		
InPhase ^[8]	Tapestry	10.5		0.14	$<6\times 10^{-4}$	339 years
University of Electro-Communications ^[31]	Nanoparticle-(thiol-ene) polymer composites		1.62	0.4		
Bayer Material Science ^[32]	Bayfol®HX200			1.4		
Harbin Institute of Technology ^[33]	ZnMA/PQ/PMMA	1.4				
Henan University ^[34]	PVA/AA, Au			0.8		
University of Colorado ^[35]	Thiol-acrylate/thiol-alkyne	14		1.1		
Akonia Holographics ^[36]	DRED™	60		<0.1		
Huazhong University of Science and Technology ^[37]	Photopolymer/ZnS nanocomposites	21	9.8			
Mitsubishi Chemical ^[38]	Polyurethane/acrylate	35				
Fujian Normal University ^[39]	TAPMP		3×10^{-3}	0.2		
Technical Institute of Physics and Chemistry, CAS**	Epoxy resin/vinyl monomers	13.7	0.39	0.36		

Note: *All converted to the $M/\#$ related to a thickness of 500 μm ;

** Data provided by Amethystum Storage Technology Co., Ltd.

3.2.1 动态范围

动态范围与记录单体和基质的折射率差异、单体的初始浓度等有关。美国 Lucent Technologies 公司设计的聚合物体系由两个独立的可聚合和互溶的化学体系组成,即低折射率的基质前驱体和高折射率的可光聚合单体。介质的基质是通过原位聚合形成的,它能在可光聚合单体存在的情况下产生交联网络,同时这些单体保持溶解和未反应。全息曝光使光敏单体聚合,未反应的单体在基质中扩散,产生折射率调制。该折射率调制由单体和基质的折射率之差以及单体的相对体积分数决定^[40],如图 5(a)所示。独立的基质和单体系统能够避免稀释折射率对比度的交叉反应。1999 年,该公司通过这种设计制备了 1 mm 厚的记录介质,其 $M/\#$ 可达到 42^[40-41]。

美国 Akonia Holographics 公司通过添加少量 DRED™(称为“动态范围增强掺杂剂”)来提高单体的使用效率,从而使材料的动态范围大幅增加。如

图 5(b)所示,DRED™包含三个部分,连接基团连接附着基团和自由基捕集器。在基质形成交联网络时,附着基团通过共价键附着在支撑基质上,从而将自由基捕集器的功能通过连接基团固定在基质上。自由基捕集器可以与生长中的聚合物链反应形成共价键。通过这种方式,即使聚合形成的低聚物相对分子质量不高,它们也不会扩散出明亮区域^[42]。2015 年,该公司在包含 DRED™的介质配方中,实现了 200 μm 厚材料的 $M/\#$ 为 24,1.5 mm 厚材料的 $M/\#$ 为 180^[36]。

纳米粒子种类繁多、刚性大,能够大幅度调节基质与记录单体的折射率差,进而提高材料的 $M/\#$ 。掺杂纳米粒子的光致聚合物中光栅的形成机理示意图如图 5(c)所示。曝光前,单体和纳米粒子在材料中均匀分布。干涉曝光时,单体在亮区发生聚合,在明暗区域形成浓度差,单体由暗区扩散至亮区;因单体的聚合与扩散,在明暗区域中纳米粒子的化学势产生差异,不发生化学反应的纳米粒子由亮区扩散至暗区,即纳米

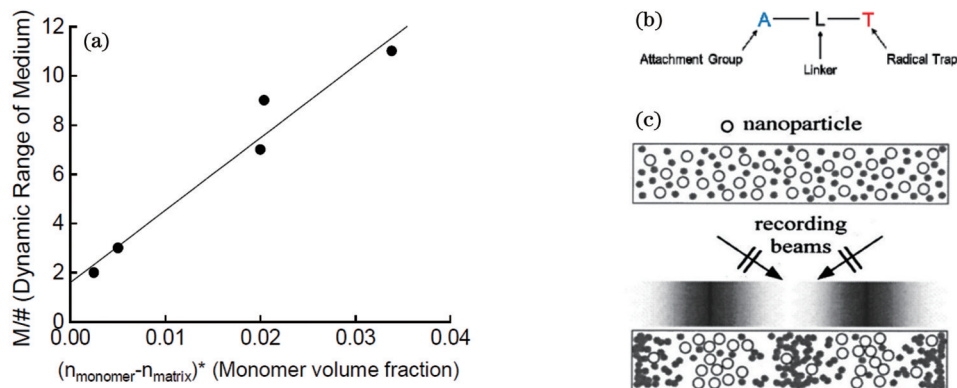


图5 $M/\#$ 的改进方法。(a)5种不同光致聚合物的光敏单体与基体的折射率之差乘以单体体积分数所得结果同 $M/\#$ 之间的关系(介质的厚度都是 $200\ \mu\text{m}$)^[40]; (b)化合物DREDTM的结构特征^[42]; (c)掺杂纳米粒子的光致聚合物中光栅形成机理示意图^[43]

Fig. 5 Improvement methods of $M/\#$. (a) $M/\#$ versus the product of the difference between refractive indices of the photosensitive monomer and the matrix and the volume fraction of the monomer for five different resins (the media are all $200\ \mu\text{m}$ thick)^[40]; (b) general depiction of the structural features of a compound DREDTM^[42]; (c) schematic diagram of a grating forming mechanism in a photopolymer doped with nanoparticles^[43]

粒子“逆扩散”^[43-51]。河南大学的黄明举团队分别研究了 SiO_2 、 TiO_2 、 ZrO_2 、 Fe_3O_4 、 Au 、 PbSe 量子点等纳米粒子对材料全息性能的影响^[52-58]。2013年,该团队在AA/PVA光致聚合物中加入亲水性的Au纳米粒子,使得 $0.08\ \text{mm}$ 厚度的材料的 $M/\#$ 达到 25.3 ^[34,59]。

根据扩散模型理论,参与聚合或迁移的单体增加可以提高动态范围,然而单体的聚合会导致体系黏度增加,抑制单体的进一步迁移,从而导致动态范围的提升受到限制。同时,单体的聚合还会导致材料的收缩率增大,影响数据的保真度^[60-67]。另外,增加记录单体和基质的折射率差也有助于提高材料的动态范围。根据Lorentz-Lorenz理论,在组分中引入高(或低)摩尔折射率的取代基可以增加(或降低)组分的折射率。例如,芳香族基团、卤族元素(氟除外)、硫元素的引入可以增加对应组分的折射率,氟元素、脂肪族的引入则会降低对应组分的折射率^[63,66-68]。然而,引入高(低)摩尔折射率的取代基会影响配方中各组分间的相容性,可能会引发个别组分的析出,形成雾状散射颗粒,导致材料不可用。近几年未见既能提升动态范围,又能兼顾低收缩率、低散射要求的新型记录介质的相关报道。

3.2.2 灵敏度

材料的灵敏度主要与光敏剂和引发剂的种类、浓度有关,同时,记录单体和基质的折射率差异也会影响材料的灵敏度。全息曝光时,光敏剂吸收光子,通过电子或能量转移使引发剂达到激发态,处于激发态的引发剂分裂产生活性自由基,引发单体发生反应。光敏剂的吸收峰及摩尔消光系数对材料的灵敏度有较大影响。

中国科学院理化技术研究所的赵榆霞团队^[69-71]在光敏剂的制备、改性方面开展了较多研究。2018年,该团队制备了环戊酮类光敏剂PRZA,其在材料中的吸收峰为 $529\ \text{nm}$,与 $532\ \text{nm}$ 光源的匹配性更好,在

$532\ \text{nm}$ 处的摩尔消光系数为 $6.35 \times 10^4\ \text{L}/(\text{mol} \cdot \text{cm})$ 。研究发现,当PRZA在单体材料中的质量分数为 0.01% 时,材料具有最高的引发聚合效率和双键转化率。当光敏剂浓度过高时,初期产生的活性自由基较多,快速引发单体聚合,导致体系的黏度快速增加,抑制单体扩散;当光敏剂的浓度过低时,初期生成的活性自由基较少,不利于引发单体聚合。以此为参考制备的PRZA质量分数为 0.01% 的全息材料的灵敏度为 $0.297\ \text{cm}/\text{mJ}$ ^[69,72]。

日本三菱化学集团株式会社(MCC)在全息材料方面进行了大量的研究工作^[73-75]。为了提高全息材料的灵敏度,MCC发明了一种脲脂类引发剂,其通式如图6(a)所示。与以往的光聚合引发剂相比,此种光聚合引发剂产生的自由基的相对分子质量较小,有利于迁移,因此在较少的使用量下便具有足够的活性。2010年,MCC制备出了掺杂脲脂类引发剂X1[其结构如图6(b)所示]的聚氨酯/烯炔类全息材料,当X1的质量分数为 0.03% 和 0.15% 时,灵敏度分别为 $1.4\ \text{cm}/\text{mJ}$ 和 $9.3\ \text{cm}/\text{mJ}$ ^[76]。

2014年,华中科技大学的解孝林团队^[77]提出了“光引发阻聚剂”的概念。如图6(c)所示,由KCD/NPG组成的光引发阻聚剂吸收光后同时生成两种功能不同的自由基:具有引发单体检合作用的苯胺甲基自由基和具有阻聚作用的羰基自由基。其中,羰基自由基的阻聚作用可以有效调控光聚合反应速率和凝胶化行为。2015年,该团队利用KCD/NPG光引发阻聚剂调控全息高分子/ZnS纳米粒子复合材料的性能,结果显示:凝胶化时间延长,ZnS纳米粒子充分迁移,提高了复合材料的相分离程度和全息性能。含有 0.6% (质量分数)KCD和 22.6% (体积分数)ZnS纳米粒子的全息材料的灵敏度可以达到 $9.8\ \text{cm}/\text{mJ}$ ^[37]。2022年,中国科学院理化技术研究所的赵榆霞团队^[70,72]制

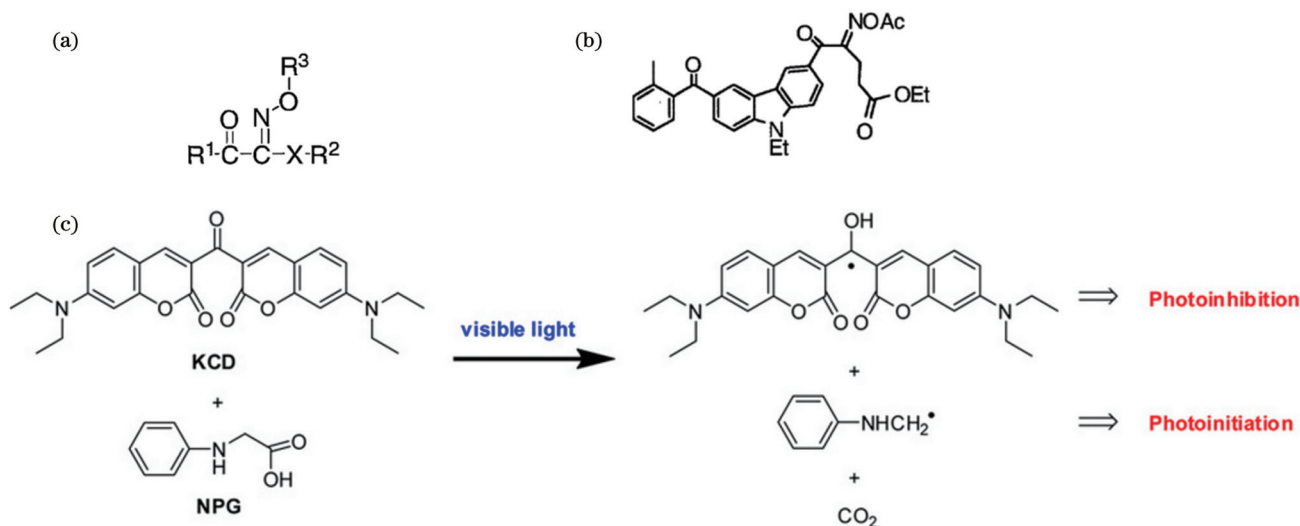


图6 组分结构。(a)肟脂类引发剂结构^[76];(b)X1的结构^[76];(c)由KCD和NPG组成的光引发阻聚剂在可见光照射下同时产生光引发和光阻聚功能^[37]

Fig. 6 Compositional structure. (a) Structure of oxime ester initiator^[76]; (b) structure of X1^[76]; (c) schematic diagram of simultaneously generated photoinitiation and photoinhibition functions by the photoinitiator composed of KCD and NPG under a visible light exposure^[37]

备了一系列含氟环氧树脂,并将其应用于全息存储材料。含氟环氧树脂具有较低的折射率,且表面能较低,既可以增大其与单体之间的折射率差值,又利于单体在基质中的扩散。其中,制备的含23%(质量分数) Prop-FTGE的全息存储材料的灵敏度为 $0.33 \text{ cm}^2/\text{mJ}$ ^[70]。

福建师范大学的谭小地团队^[39,78-81]在PQ/PMMA类全息存储材料方面开展了一系列增敏研究。2021年,谭小地团队^[78]采用氧化石墨烯修饰PMMA(GO-g-PMMA/PQ),通过控制氧化石墨烯的添加量来调节PQ/PMMA的聚合相对分子质量。与原始PQ/PMMA相比,当添加氧化石墨烯的质量分数为 $1.5 \times 10^{-3}\%$ 时,感光灵敏度提高了3倍,为 $0.52 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{mJ}$ 。2022年,谭小地团队^[39]在PQ/PMMA体系内引入了共光引发剂TEA、共聚物AA和交联剂MBA制备了TAPMP材料,其感光灵敏度与原始PQ/PMMA相比提高了10倍,为 $3 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{mJ}$ 。

提升材料的动态范围可以增大其灵敏度,因此,增大灵敏度会受到与提升动态范围同样的限制。此外,光敏剂、引发剂的摩尔消光系数和含量的增大可以提高单体的聚合速率,在一定程度上增大灵敏度。然而,当单体的扩散速率与单体聚合速率的比值低于一定值时,会导致所形成的光栅的质量和衍射效率降低,进而制约灵敏度的提升^[60]。

3.2.3 材料散射、收缩及寿命

来自介质表面和内部的散射限制了全息材料的实际应用。材料的散射来源主要包括不溶颗粒或反应析出的颗粒、高相对分子质量聚合物、曝光过程中产生的噪声光栅等,可用双向散射分布函数(BSDF)表征。美国InPhase公司开发的散射测试仪使用蓝色(405 nm)和红色(633 nm)激光器测量介质和衬底的

散射,其中:蓝光以驱动器中使用的波长测试散射,但对记录层具有破坏性;红光可用于记录介质层的无损检测。通常,固化后的介质的散射高于未曝光介质的散射。利用散射测试仪对InPhase公司研发的Tapestry介质进行测试,结果显示:预固化(633 nm)后, $\text{BSDF} \leq 5 \times 10^{-5}$;固化(405 nm)后, $\text{BSDF} \leq 6 \times 10^{-4}$ ^[8]。广东紫晶信息存储技术股份有限公司对其研发的多种材料进行了散射测试,并分别使用具有不同BSDF的材料进行了全息光存储实验,实验结果如图7所示。高散射特性的材料会引入大量杂散光,在数据页上形成较强的背景噪声,从而降低信噪比;而使用低散射特性的材料记录数据时,读出数据页的背景噪声可以得到有效抑制,信噪比较高。

溶剂会影响材料的尺寸稳定性。利用交联网络替代高分子黏结剂可以避免使用溶剂,提高全息材料的尺寸稳定性,降低收缩率。交联网络可以通过多元醇-异氰酸酯、硫醇-丙烯酸酯、环氧-有机胺等反应得到。这些形成交联网络的反应与全息记录的单体聚合反应属于正交关系,无串扰。

2009年,德国Bayer Material Science公司推出了Bayfol®HX系列材料^[82-86]。Bayfol®HX光致聚合物的工作原理如图8(a)所示,即:第一步利用羟基-异氰酸酯反应形成交联网络,第二步通过光引发自由基聚合反应记录全息图^[74]。Bayfol®HX系列材料的收缩率较低,如Bayfol®HX200,其收缩率为1.4%^[32]。

2011年,美国Akonia Holographic公司利用双单体共聚合成了该公司的第二代光致聚合物型体全息材料DRED™,其收缩率小于0.1%,能够满足使用要求^[36]。美国科罗拉多大学开发了硫醇-烯炔-丙烯酸酯材料,如图8(b)所示。该材料的制备分为两个阶段:

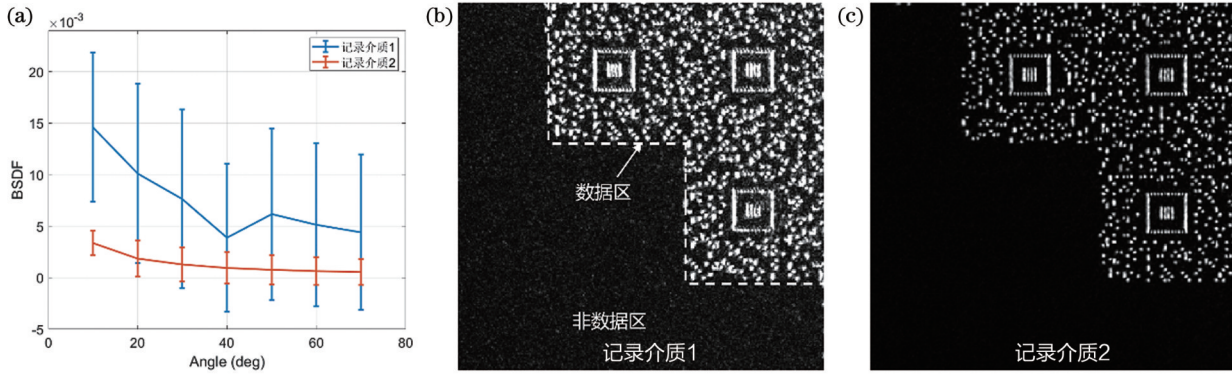


图7 两种不同记录介质的BSDLF曲线和数据页图像(由广东紫晶信息存储技术股份有限公司提供)。(a)BSDLF随散射角度的变化; (b)(c)利用两种记录介质对数据页进行全息存储实验读取的数据页图像的局部
Fig.7 BSDLF curves and reproduced data page images from two different kinds of media (provided by Amethystum Storage Technology Co., Ltd.). (a) BSDLF versus diffraction angle; (b)(c) corners of the reproduced data page images from holograms recorded in two kinds of media, respectively

1) 硫醇和丙烯酸酯在三乙胺的催化下发生迈克尔加成反应,此阶段的产物具有良好的成膜性,可以实现材料的自支撑性;2) 剩余的硫醇与烯烃遵循逐步聚合生长

机制形成大分子聚合物,最终形成体全息光栅^[87]。该单位于2014年研发的硫醇-丙烯酸酯类材料的收缩率为1.1%^[35]。

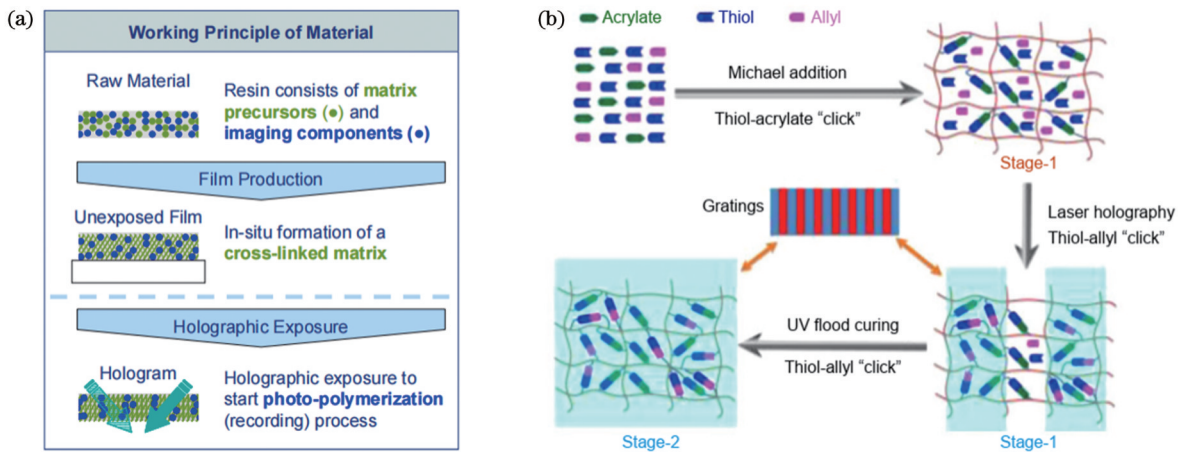


图8 交联网络的形成示意图。(a) Bayfol[®]HX光致聚合物的工作原理^[83]; (b) 通过二阶正交硫醇点击化学来实现全息记录的示意图^[87]
Fig.8 Schematic diagram of the formation of a cross-linked network. (a) Diagram showing the working principle of Bayfol[®]HX photopolymer film^[83]; (b) schematic illustration of holographic record through two-stage orthogonal thiol-click chemistry^[87]

环氧/乙烯基单体类全息高分子材料通过环氧与有机胺在室温下发生亲核加成反应来形成交联网络结构(该结构可使材料具有优异的力学性能,能为光致聚合物材料提供稳定的支撑骨架),然后通过乙烯基单体自由基聚合形成全息光栅^[88]。中国科学院理化技术研究所的赵榆霞团队^[70,72,89-91]系统地对比研究了两种光致聚合物体系(高折射率双酚A/F型环氧树脂+低折射率脂肪族丙烯酸酯和低折射率脂肪族环氧树脂+高折射率芳香族丙烯酸酯)的全息记录性能。2023年,该团队研发了环氧/乙烯基单体全息高分子材料,其收缩率为0.36%(数据由广东紫晶信息存储技术股份有限公司提供)。

纳米粒子通过“逆扩散”作用可有效补充暗区物质的减少,降低材料的收缩率。日本电气通信大学研究

团队分别将 TiO₂、ZrO₂、SiO₂、ZnS、CdSe 量子点等纳米粒子与液晶分子掺入光致聚合物材料中,研究了掺杂后光致聚合物材料的全息性能^[43-51]。2011年,该团队在硫醇-烯烃材料中加入液晶分子制备了复合材料,其收缩率为0.4%^[31]。2013年,河南大学的黄明举^[34]团队研究了经柠檬酸离子修饰的金纳米粒子的尺寸和掺杂浓度对PVA/AA型光致聚合物材料尺寸稳定性的影响。他们发现,通过控制柠檬酸钠的用量及反应时间,可以控制被修饰的金纳米粒子的尺寸。由于柠檬酸离子的静电排斥作用,金纳米粒子可以稳定地分散在溶液中。未掺杂的光致聚合物的收缩率为3.21%,而掺杂适量直径分别为12、19、26 nm金纳米粒子的样品的收缩率分别降低到0.8%、0.8%和1.61%。材料收缩率的降低主要有两个方面的原因:

一方面,刚性纳米粒子可以降低光栅的变形;另一方面,聚合物链与附着在金纳米粒子表面的柠檬酸离子结合形成了氢键,可以防止光致聚合物畸变,从而提高了光栅的稳定性。当纳米粒子的掺杂量较低时,有助于收缩率的降低,随着纳米粒子掺杂量增加,团聚效应会破坏被修饰纳米粒子表面的化学键,影响纳米粒子在溶液中的分散,增大材料的散射。2015年,哈尔滨工业大学团队和河南大学黄明举团队^[58]利用不同的表面活性剂修饰 Al_2O_3 纳米粒子,并将修饰后的纳米粒子应用于 PVA/AA 型光致聚合物材料。掺杂 1.02×10^{-3} mol/L HD 修饰的 Al_2O_3 纳米粒子的材料,其收缩率由未掺杂材料的 3.2% 降至 0.8%。

综上,为降低收缩率,可采用交联网络或纳米颗粒修饰的方式。然而,交联网络会影响体系黏度,降低单体的迁移速率,进而导致动态范围和灵敏度降低。此外,纳米颗粒掺杂浓度的提高会导致颗粒团聚,进而导致散射增大。材料的各种性能之间存在相互制约,因此材料综合性能的提升难度较大。

全息光存储材料的寿命包括保质期和存档寿命。保质期是记录介质在制造后可以使用时而不退化的时间,存档寿命是存储的数据可恢复而不退化的时间。对于全息光存储材料,保质期是指在常温常湿避光条件下保存材料, $M/\#$ 降低 10% 对应的时长;而存档寿命则是指材料记录数据后在常温常湿避光条件下存放,当读取数据的误码率升高恰好到无法准确恢复所存储数据时对应的存放时间。全息光存储材料的保质期和存档寿命与材料配方有关。此外,保质期还与材料的封装情况息息相关,优良的封装技术可以减小水分和氧气的渗透对材料的影响,从而延长寿命。存档寿命还与编解码方式、纠错技术相关,同时,组分的扩散会造成存储数据质量降低。美国 InPhase 公司对其研发的双化学体系的 Tapestry 材料进行了加速老化试验测试(更高的温度和湿度水平),结果显示:在 25 °C 环境中,预期该材料的保质期为 10 年,存档寿命为 339 年^[8,92-93]。

4 结束语

全息光存储以其高存储密度、高速读写的优势成为下一代光存储技术的首选。目前,全息光存储读写装置系统的相关技术(如光路技术、伺服技术等)已经比较成熟,信号处理和编解码相关技术也比较成熟。然而,其距商业产品化还有一定距离,主要原因在于:1)记录介质的综合性能还不够高;2)复用记录过程中全息图之间的相互影响还难以消除。前者主要体现在记录介质的动态范围、感光灵敏度、收缩率、散射、保质期、存档寿命等参数难以全部兼顾。高动态范围的记录材料一般也会具有较高的收缩率,而高感光灵敏度的记录材料具有较强的活性,因而保质期和存档寿命较短。后者主要体现在全息图读出数据页的信噪比会

随复用密度的增加而降低,当复用密度较高时,所读数据页基本无法解码。其可能的原因是:在复用记录过程中,复杂的单体分子浓度梯度环境使得单体的扩散过程变得复杂,对每一个全息图的折射率调制分布造成破坏,进而使得每一个复用记录的全息图都不完整且散射噪声增加。为推进全息光存储技术的商业化应用,还需要对以上问题进行深入研究。此外,开发新信号处理和编解码算法,也将提升对读出数据的解码能力,降低对信噪比的要求。

除了应对大数据对数据存储和处理的需求,全息光存储技术凭借其特有的数据页并行存储模式,以及高存储密度、高读写速度和长期稳定性等优势,还可在人工智能(AI)领域发挥更多作用。如:与光子器件设计、加工结合,利用存储全息图构建神经网络中的权重矩阵,进行快速光学并行计算;将虚拟对象或信息以全息图的形式投射到用户的视野中,可以实现更真实、更直观的人机交互体验,提升用户与 AI 系统的互动效果。然而,为实现上述应用,全息光存储还需克服一系列技术挑战,持续突破现有全息光学系统和全息存储材料的技术瓶颈,达到大容量、长寿命和低成本等关键指标要求。

参 考 文 献

- [1] David R, John G, John R. The digitization of the world from edge to core[EB/OL]. [2023-02-02]. <https://www.seagate.com/files/www-content/our-story/trends/files/idc-seagate-data-age-whitepaper.pdf>.
- [2] GroupPanasonic. Supporting the IoT/big data era with the "optical disc data archiving": the high capacity high speed challenge [EB/OL]. [2023-03-05]. <https://news.panasonic.com/global/stories/798>.
- [3] Microsoft. Optics for the Cloud Research Alliance establishes collaborative research approach to improving cloud technology [EB/OL]. [2023-05-04]. <https://www.microsoft.com/en-us/research/blog/optics-for-the-cloud-research-alliance-establishes-collaborative-research-approach-to-improving-cloud-technology/>.
- [4] 苏文静, 胡巧, 赵苗, 等. 光存储技术发展现状及展望[J]. 光电工程, 2019, 46(3): 4-10.
Su W J, Hu Q, Zhao M, et al. Development status and prospect of optical storage technology[J]. Opto-Electronic Engineering, 2019, 46(3): 4-10.
- [5] Wikipedia. Archival disc[EB/OL]. [2023-02-03]. https://en.wikipedia.org/wiki/Archival_Disc#cite_note-12.
- [6] Microsoft. Project silica-storing data in glass[EB/OL]. [2023-02-04]. <https://www.microsoft.com/en-us/research/video/project-silica-storing-data-in-glass/>.
- [7] Hesselink L, Orlov S S, Bashaw M C. Holographic data storage systems[J]. Proceedings of the IEEE, 2004, 92(8): 1231-1280.
- [8] Lisa D, Adrian H, Kevin C, et al. Holographic data storage: from theory to practical systems[M]. Singapore: Wiley, 2010.
- [9] Ushiyama Z, Kurata H, Tsukamoto Y, et al. Shift-peristrophic multiplexing for high density holographic data storage[J]. Applied Sciences, 2014, 4(2): 148-157.
- [10] 李建华, 刘金鹏, 林泉, 等. 体全息存储研究现状及发展趋势[J]. 中国激光, 2017, 44(10): 1000001.
Li J H, Liu J P, Lin X, et al. Volume holographic data storage[J]. Chinese Journal of Lasers, 2017, 44(10): 1000001.
- [11] 菅佳玲, 曹琳, 魏夕桥, 等. 面向体全息存储技术的光致聚合物

- 材料研究进展[J]. 光电工程, 2019, 46(3): 45-56.
- Jian J L, Cao L, Wei X Q, et al. A review of photopolymers on holography volume data storage[J]. Opto-Electronic Engineering, 2019, 46(3): 45-56.
- [12] 林泉, 郝建颖, 郑明杰, 等. 光全息数据存储: 新发展时机已至[J]. 光电工程, 2019, 46(3): 11-25.
- Lin X, Hao J Y, Zheng M J, et al. Optical holographic data storage—the time for new development[J]. Opto-Electronic Engineering, 2019, 46(3): 11-25.
- [13] Takasaki K, Hirooka K, Takeda T, et al. High-speed data recording and retrieving using the image-stabilizing technique in a coaxial holographic disk system[C]//Optical Data Storage, May 20-23, 2007, Portland, Oregon. Washington, D. C.: Optica Publishing Group, 2007: WDPDP2.
- [14] Klein W R, Cook B D. Unified approach to ultrasonic light diffraction[J]. IEEE Transactions on Sonics and Ultrasonics, 1967, 14(3): 123-134.
- [15] Moharam M G, Young L. Criterion for Bragg and Raman-Nath diffraction regimes[J]. Applied Optics, 1978, 17(11): 1757-1759.
- [16] Kogelnik H. Coupled wave theory for thick hologram gratings[J]. Bell System Technical Journal, 1969, 48(9): 2909-2947.
- [17] Burr G W, Psaltis D. Effect of the oxidation state of LiNbO_3 : Fe on the diffraction efficiency of multiple holograms[J]. Optics Letters, 1996, 21(12): 893-895.
- [18] 谭小地, 堀米秀嘉. 同轴式光全息存储技术及其系统[J]. 光学学报, 2006, 26(6): 827-830.
- Tan X D, Hideyoshi H. Collinear holographic information storage technologies and system[J]. Acta Optica Sinica, 2006, 26(6): 827-830.
- [19] Fukumoto A. Coaxial holographic data recording[J]. Optics and Photonics News, 2008, 19(11): 28-33.
- [20] Lin X A, Liu J P, Hao J Y, et al. Collinear holographic data storage technologies[J]. Opto-Electronic Advances, 2020, 3(3): 190004.
- [21] Tanaka K, Mori H, Hara M, et al. High density recording of 270 Gbit/in.² in a coaxial holographic recording system[J]. Japanese Journal of Applied Physics, 2008, 47(7): 5891-5894.
- [22] Liu J P, Horimai H, Lin X A, et al. Phase modulated high density collinear holographic data storage system with phase-retrieval reference beam locking and orthogonal reference encoding[J]. Optics Express, 2018, 26(4): 3828-3838.
- [23] 郑穆, 罗铁威, 田军, 等. 一种增加存储容量的全息复用记录方法: CN111063374A[P]. 2020-04-24.
- Zheng M, Luo T W, Tian J, et al. Holographic multiplexing recording method for increasing storage capacity: CN111063374A [P]. 2020-04-24.
- [24] Pramitha V, Joseph R, Sreekumar K, et al. Peristrophic multiplexing studies in silver doped photopolymer film[J]. Journal of Modern Optics, 2010, 57(10): 908-913.
- [25] 郑穆, 罗铁威, 田军, 等. 一种单臂结构的全息数据存储装置: CN110992991A[P]. 2020-04-10.
- Zheng M, Luo T W, Tian J, et al. Holographic data storage device with single-arm structure: CN110992991A[P]. 2020-04-10.
- [26] Steckman G J, Solomatine I, Zhou G, et al. Characterization of phenanthrenequinone-doped poly(methyl methacrylate) for holographic memory[J]. Optics Letters, 1998, 23(16): 1310-1312.
- [27] Trentler T J, Boyd J E, Colvin V L. Epoxy resin-photopolymer composites for volume holography[J]. Chemistry of Materials, 2000, 12(5): 1431-1438.
- [28] Waldman D A, Butler C J, Raguin D H. CROP holographic storage media for optical data storage greater than 100 bits/ μm^2 [J]. Proceedings of SPIE, 2003, 5216: 10-25.
- [29] Khan A, Daugaard A E, Bayles A, et al. Dendronized macromonomers for three-dimensional data storage[J]. Chemical Communications, 2009(4): 425-427.
- [30] Choi K, Chon J W M, Gu M, et al. Low-distortion holographic data storage media using free-radical ring-opening polymerization [J]. Advanced Functional Materials, 2009, 19(22): 3560-3566.
- [31] Hata E, Mitsube K, Momose K, et al. Holographic nanoparticle-polymer composites based on step-growth thiol-ene photopolymerization[J]. Optical Materials Express, 2011, 1(2): 207-222.
- [32] Covestro AG. Bayfol® HX200[EB/OL]. [2023-03-02]. https://solutions.covestro.com/en/products/Bayfol/Bayfol_86194384-20033146.
- [33] Yu D, Liu H P, Wang J, et al. Study on holographic characteristics in ZnMA doped PQ-PMMA photopolymer[J]. Optics Communications, 2011, 284(12): 2784-2788.
- [34] Xue X Y, Hai F S, Gao L Z, et al. Effect of nanoparticle diameter on the holographic properties of gold nanoparticle dispersed acrylate photopolymer films[J]. Optik, 2013, 124(24): 6987-6990.
- [35] Peng H Y, Wang C, Xi W X, et al. Facile image patterning via sequential thiol-Michael/thiol-yne click reactions[J]. Chemistry of Materials, 2014, 26(23): 6819-6826.
- [36] Ayres M R, Anderson K, Askham F, et al. Holographic data storage at 2+ Tbit/in²[J]. Proceedings of SPIE, 2015, 9386: 93860G.
- [37] Ni M L, Peng H Y, Liao Y G, et al. 3D image storage in photopolymer/ZnS nanocomposites tailored by “photoinitiator”[J]. Macromolecules, 2015, 48(9): 2958-2966.
- [38] 清水尧纪. 全息记录介质用组合剂和全息记录介质: CN112313745A[P]. 2022-07-05.
- Takanori S. Composition for hologram recording medium, and hologram recording medium: CN112313745A[P]. 2022-07-05.
- [39] Li J H, Hu P, Jin J C, et al. Highly sensitive photopolymer for holographic data storage[J]. Optics Express, 2022, 30(22): 40599-40610.
- [40] Dhar L, Hale A, Katz H E, et al. Recording media that exhibit high dynamic range for digital holographic data storage[J]. Optics Letters, 1999, 24(7): 487-489.
- [41] Schilling M L, Colvin V L, Dhar L, et al. Acrylate oligomer-based photopolymers for optical storage applications[J]. Chemistry of Materials, 1999, 11(2): 247-254.
- [42] Askham F, Ayres M R, Urness A C. High dynamic range holographic data storage media[J]. Proceedings of SPIE, 2015, 9587: 9587.
- [43] Tomita Y, Suzuki N, Chikama K. Holographic manipulation of nanoparticle distribution morphology in nanoparticle-dispersed photopolymers[J]. Optics Letters, 2005, 30(8): 839-841.
- [44] Kojima T, Suzuki N, Tomita Y. Holographic grating formation in nanoparticle-dispersed photopolymer films[C]//Summaries of Papers Presented at the Lasers and Electro-Optics. CLEO '02. Technical Diges. May 24, 2002, Long Beach, CA, USA. New York: IEEE Press, 2003: 37-38.
- [45] Suzuki N, Tomita Y, Ohmori K, et al. Highly transparent ZrO_2 nanoparticle-dispersed acrylate photopolymers for volume holographic recording[J]. Optics Express, 2006, 14(26): 12712-12719.
- [46] Suzuki N, Tomita Y. Holographic scattering in SiO_2 nanoparticle-dispersed photopolymer films[J]. Applied Optics, 2007, 46(27): 6809-6814.
- [47] Tomita Y, Nakamura T, Tago A. Improved thermal stability of volume holograms recorded in nanoparticle-polymer composite films[J]. Optics Letters, 2008, 33(15): 1750-1752.
- [48] Liu X M, Tomita Y, Oshima J, et al. Holographic assembly of semiconductor CdSe quantum dots in polymer for volume Bragg grating structures with diffraction efficiency near 100%[J]. Applied Physics Letters, 2009, 95(26): 261109.
- [49] Momose K, Takayama S, Hata E, et al. Shift-multiplexed holographic digital data page storage in a nanoparticle-(thiol-ene) polymer composite film[J]. Optics Letters, 2012, 37(12): 2250-2252.
- [50] Fujii R, Guo J X, Klepp J, et al. Nanoparticle polymer composite volume gratings incorporating chain transfer agents for holography

- and slow-neutron optics[J]. *Optics Letters*, 2014, 39(12): 3453-3456.
- [51] Mitsube K, Nishimura Y, Nagaya K, et al. Holographic nanoparticle-polymer composites based on radical-mediated thiol-yne photopolymerizations: characterization and shift-multiplexed holographic digital data page storage[J]. *Optical Materials Express*, 2014, 4(5): 982-996.
- [52] 赵磊, 王龙阁, 胡宾, 等. 掺杂 TiO₂ 纳米颗粒的抗收缩光致聚合物全息特性的研究[J]. *物理学报*, 2011, 60(4): 044213.
Zhao L, Wang L G, Hu B, et al. Study of holographic characteristics of TiO₂ nanoparticles dispersed resisting shrinkage photopolymer[J]. *Acta Physica Sinica*, 2011, 60(4): 044213.
- [53] 何飞, 海富生, 薛晓渝, 等. 有机-无机 ZrO₂ 纳米复合光致聚合物的全息特性[J]. *光电子·激光*, 2012, 23(4): 712-717.
He F, Hai F S, Xue X Y, et al. Holographic characteristics of organic-inorganic ZrO₂ nano-composite photopolymer[J]. *Journal of Optoelectronics·Laser*, 2012, 23(4): 712-717.
- [54] Zhao L, Han J H, Li R P, et al. Resisting shrinkage properties of volume holograms recorded in TiO₂ nanoparticle-dispersed acrylamide-based photopolymer[J]. *Chinese Physics B*, 2013, 22(12): 124207.
- [55] 李春柳, 李贇玺, 薛晓渝, 等. 掺杂修饰与未修饰 Fe₃O₄ 纳米粒子的光致聚合物全息性能[J]. *光子学报*, 2014, 43(6): 0616006.
Li C L, Li Y X, Xue X Y, et al. Holographic properties of modified and unmodified Fe₃O₄-nanoparticle dispersed acrylate photopolymer[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2014, 43(6): 0616006.
- [56] 李贇玺, 李春柳, 薛晓渝, 等. 掺入不同粒径 Al₂O₃ 纳米颗粒的光致聚合物全息特性研究[J]. *光电子·激光*, 2014, 25(5): 913-919.
Li W X, Li C L, Xue X Y, et al. Study of holographic characteristics of photopolymers doped with different size Al₂O₃ nano-particles[J]. *Journal of Optoelectronics·Laser*, 2014, 25(5): 913-919.
- [57] 聂慧丽, 李若平, 李海柱, 等. 掺杂 PbSe/PVA 量子点的光致聚合物全息特性[J]. *光子学报*, 2015, 44(4): 0409002.
Nie H L, Li R P, Li H Z, et al. Holographic properties of photopolymer doped PbSe/PVA quantum dots[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2015, 44(4): 0409002.
- [58] Li Y X, Wang C H, Li H L, et al. Effect of incorporation of different modified Al₂O₃ nanoparticles on holographic characteristics of PVA/AA photopolymer composites[J]. *Applied Optics*, 2015, 54(33): 9799-802.
- [59] 薛晓渝. 掺杂金纳米粒子光致聚合物材料全息存储特性研究[D]. 开封: 河南大学, 2013.
Xue X Y. Study on holographic storage characteristics of photopolymer materials doped with gold nanoparticles[D]. Kaifeng: Henan University, 2013.
- [60] Zhao G H, Mouroulis P. Diffusion model of hologram formation in dry photopolymer materials[J]. *Journal of Modern Optics*, 1994, 41(10): 1929-1939.
- [61] Piazzolla S, Jenkins B K. First-harmonic diffusion model for holographic grating formation in photopolymers[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2000, 17(7): 1147-1157.
- [62] Sheridan J T, Lawrence J R. Nonlocal-response diffusion model of holographic recording in photopolymer[J]. *Journal of the Optical Society of America A*, 2000, 17(6): 1108-1114.
- [64] Gleeson M R, Liu S, McLeod R R, et al. Nonlocal photopolymerization kinetics including multiple termination mechanisms and dark reactions: Part II. Experimental validation[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2009, 26(9): 1746-1754.
- [65] Gleeson M R, Liu S, Guo J X, et al. Non-local photopolymerization kinetics including multiple termination mechanisms and dark reactions: Part III. Primary radical generation and inhibition[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2010, 27(9): 1804-1812.
- [66] Guo J X, Gleeson M R, Liu S, et al. Non-local spatial frequency response of photopolymer materials containing chain transfer agents: I. Theoretical modelling[J]. *Journal of Optics*, 2011, 13(9): 095601.
- [67] Guo J X, Gleeson M R, Liu S, et al. Non-local spatial frequency response of photopolymer materials containing chain transfer agents: II. Experimental results[J]. *Journal of Optics*, 2011, 13(9): 095602.
- [68] 解孝林, 彭海炎, 倪名立. 全息高分子材料[M]. 北京: 科学出版社, 2020: 151-154.
Xie X L, Peng H Y, Ni M L. Holographic polymer material[M]. Beijing: Science Press, 2020: 151-154.
- [69] 王震, 张荻琴, 赵宇, 等. 用于全息存储的新型感绿光敏剂的制备及其性能研究[J]. *影像科学与光化学*, 2018, 36(3): 211-218.
Wang Z, Zhang D Q, Zhao Y, et al. Synthesis and properties of a novel photosensitizer for holographic storage[J]. *Imaging Science and Photochemistry*, 2018, 36(3): 211-218.
- [70] Zhang D Q, Zhao Y, Zhang Z, et al. Improving performance of two-stage photopolymers for volume holographic recording by fluorinated epoxy-amine cross-linked matrices[J]. *Journal of Applied Polymer Science*, 2022, 139(20): 52161.
- [71] Tao S Q, Zhao Y X, Wan Y H, et al. Dual-wavelength sensitized photopolymer for holographic data storage[J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2010, 49(8S2): 08KD01.
- [72] 王震. 光致聚合型全息存储材料的研制及其性能研究[D]. 北京: 中国科学院大学, 2017: 34-40.
Wang Z. Preparation and properties of holographic storage materials based on photopolymerization[D]. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences, 2017: 34-40.
- [73] Ishihara K, Fujiwara T, Esaki A. Evaluation of multilayered waveguide holographic memory media[J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2004, 43(7S): 4915.
- [74] Khan A, Stucky G D, Hawker C J. High-performance, nondiffusive crosslinked polymers for holographic data storage[J]. *Advanced Materials*, 2008, 20(20): 3937-3941.
- [75] 田中麻人, 清水尧纪. 全息记录介质用组合物、全息记录介质用固化物和全息记录介质: CN112154504A[P]. 2022-10-25.
Asato T, Takanori S. Composition for holographic recording medium, cured product for holographic recording medium, and holographic recording medium: CN112154504A[P]. 2022-10-25.
- [76] 三木康彰, 龟山泰弘, 水上润二. 用于形成全息记录层的组合物, 使用该组合物的全息记录材料, 以及全息光学记录介质: P2008167888[P]. 2010-01-14.
Yasuaki M, Yasuhiro K, Junji M. Composition for forming hologram recording layer, and hologram recording material and hologram optical recording medium using the same: P2008167888 [P]. 2010-01-14.
- [77] Peng H Y, Bi S G, Ni M L, et al. Monochromatic visible light "photoinitiator": Janus-faced initiation and inhibition for storage of colored 3D images[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2014, 136(25): 8855-8858.
- [78] Chen Y X, Hu P, Huang Z Y, et al. Significant enhancement of the polarization holographic performance of photopolymeric materials by introducing graphene oxide[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2021, 13(23): 27500-27512.
- [79] Li J H, Hu P, Zeng Z Y, et al. Phenanthraquinone-doped polymethyl methacrylate photopolymer for holographic recording [J]. *Molecules*, 2022, 27(19): 6283.
- [80] Hu P, Li J H, Jin J C, et al. Highly sensitive photopolymer for holographic data storage containing methacryl polyhedral oligomeric silsesquioxane[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2022, 14(18): 21544-21554.
- [81] Hu P, Chen Y X, Li J H, et al. Impact of fullerene on the holographic properties of PQ/PMMA photopolymer[J]. *Composites Science and Technology*, 2022, 221: 109335.
- [82] Jurbergs D, Bruder F K, Deuber F, et al. New recording materials for the holographic industry[J]. *Proceedings of SPIE*, 2009, 7233: 72330K.
- [83] Berneth H, Bruder F K, Fäcke T, et al. Holographic recording

- aspects of high-resolution Bayfol HX photopolymer[J]. Proceedings of SPIE, 2011, 7957: 79570H.
- [84] Bemeth H, Bruder F K, Fäcke T, et al. Bayfol HX photopolymer for full-color transmission volume Bragg gratings[J]. Proceedings of SPIE, 2014, 9006: 900602.
- [85] Bruder F K, Fäcke T, Hagen R, et al. Diffractive optics with high Bragg selectivity: volume holographic optical elements in Bayfol® HX photopolymer film[J]. Proceedings of SPIE, 2015, 9626: 96260T.
- [86] Riva G, Zanutta A, Bruder F K, et al. Tuning the Δn and scattering in Bayfol® HX based holograms[J]. Optical Materials, 2020, 109: 110362.
- [87] Peng H Y, Nair D P, Kowalski B A, et al. High performance graded rainbow holograms via two-stage sequential orthogonal thiol-click chemistry[J]. Macromolecules, 2014, 47(7): 2306-2315.
- [88] Dušek K. Cross-linking of epoxy resins[M]//Advances in chemistry. Washington, D.C.: American Chemical Society, 1984: 3-14.
- [89] 嵯渡华, 陶世荃, 施盟泉, 等. 全息记录材料光致聚合物的收缩率[J]. 中国激光, 2007, 34(11): 1543-1547.
- Zhuo D H, Tao S Q, Shi M Q, et al. Shrinkage of photopolymer for holographic recording materials[J]. Chinese Journal of Lasers, 2007, 34(11): 1543-1547.
- [90] 施盟泉, 吴飞鹏, 李妙贞, 等. 高折射率环氧树脂和低折射率烯类单体组成的光致聚合物体全息存储材料及其制备方法: CN1504828A[P]. 2021-03-19.
- Shi M Q, Wu F P, Li M Z, et al. Photopolymer holographic memory materials comprising high refractive index epoxy and low refractive index olefine monomer and manufacturing method thereof: CN1504828A[P]. 2021-03-19.
- [91] 赵榆霞, 吴飞鹏, 施盟泉. 光致聚合物型全息存储光盘的制备方法: CN102054498A[P]. 2011-05-11.
- Zhao Y X, Wu F P, Shi M Q. Method for preparing photopolymer holographic storage optical disk: CN102054498A[P]. 2011-05-11.
- [92] Schnoes M, Ihas B, Hill A, et al. Holographic data storage media for practical systems[J]. Proceedings of SPIE, 2003, 5005: 29-37.
- [93] Dhar L. High performance recording media for holographic data storage[C]//The 17th Annual Meeting of the IEEE Lasers and Electro-Optics Society, 2004. LEOS, November 11, 2004, Rio Grande, PR, USA. New York: IEEE Press, 2004: 727-728.

A Review of High-Capacity Hologram Data Storage for Big Data Applications

Hu Dejiao^{1,2**}, Wang Zhen², Luo Tiewei², Xia Qifan¹, Zhang Diqin³, Zhao Yuxia³, Zheng Mu²,
Li Xiangping¹, Cao Yaoyu^{1*}

¹Guangdong Provincial Key Laboratory of Optical Fiber Sensing and Communications, Institute of Photonics Technology, Jinan University, Guangzhou 510632, Guangdong, China;

²Amethystum Storage Technology Co., Ltd., Meizhou 514000, Guangdong, China;

³Technical Institute of Physics and Chemistry, Chinese Academy of Science, Beijing 100190, China

Abstract

Significance With the explosive growth of global data in the information age, the amount of data to be stored is increasing exponentially. The secure, stable, and long-term storage of vast amount of data generated by the internet in various scenarios has become the foundation for the sustainable development of future information technology. The capacity of a single hard disk drive (HDD) can be as large as 20 TB, which plays an important role in many applications. An HDD is a typical magnetic data storage technique. However, the rapidly developing technology of solid-state disks (SSD), which employ electronic circuits to store and retrieve data, is superior in terms of a high transfer rate and favors applications requiring frequent data exchange. However, both magnetic- and electronic-circuit-based data storage have the disadvantages of high energy consumption, short lifetime, low safety, and poor stability. These issues become increasingly obvious for the storage requirement of “cold data,” which have large size and needs to be accessed less frequently. Optical data storage (ODS) has the advantages of low energy consumption, long lifetime (as long as 50 years), high safety, and high stability. Consequently, the utilization of the ODS technology in the field of large data storage has attracted considerable attention.

The conventional ODS technique employs a focused laser spot to record and read data, and the data density depends on the lateral size of the laser spot. Based on this concept, the ODS industry developed compact discs (CD), digital video discs (DVD), blue-ray discs (BD), and archival discs (AD). In 2019, Sony released a second-generation AD with a capacity of 500 GB per disc. The minimum size of the data bit on the disc was approximately 68 nm, which is close to the physical limit of this technique. Further increase in the capacity requires an increase in the number of recording layers, which causes serious interlayer interference and limits the maximum number of layers. Inorganic glass was used as the recording medium to further increase the archive lifetime. Microsoft reported their silica-based compact discs in 2019, where data was recorded inside silica disc in the format of multi-layered 3-dimensional (3D) data bit called “voxel.” This technique is based on the interaction between a focused femtosecond laser and quartz that generates micro-gratings for data encoding. However, it exhibits drawbacks, such as a relatively low transfer rate, large physical size, and high cost.

Holographic data storage (HDS) records data in photosensitive media in the form of holograms by utilizing the coherence of the laser beam, where the recorded data are represented by the amplitude, phase, or polarization of the light wave. In a parallel storage scheme, the data are scribed into 3D volume space, which makes full use of the thickness of the media and increases the storage

capacity. The data is recorded and read as a 2-dimensional (2D) coded data page, which enables a high transfer rate of up to several hundred million bits per second (GBPS). Its predominant performance potential makes HDS the best candidate for next-generation optical data storage technology.

Progress The foundation of the HDS technology lies in its multiplexing recording method, which guarantees a large storage capacity. HDS techniques can be categorized into two classes according to the relationship between the reference and signal beams: coaxial and off-axis. Coaxial HDS has an axially symmetric record and read beam, where the reference and signal beams share the same optical axis. Whereas, in an off-axis HDS system, the reference and signal beams are directed onto the media at a nonzero angle of incidence. Multiplexing techniques, such as orthogonal coding, phase-coding, and shift, can be employed in coaxial HDS systems. Commonly used multiplexing techniques for off-axis HDS systems include angular, peristrophic, and spherical reference wave-shift multiplexing. The HDS encompasses the practical implementation of various techniques, including optical, servo, signal processing, and coding systems. In 2000, Stanford University demonstrated a coaxial HDS prototype with a transfer rate of 1 GBPS using a pulsed laser as the light source. Subsequently, Sony designed an image-stabilizing technique for a coaxial holographic disk system to increase the transfer rate using a low-peak-power continuous laser. Around 2006, Optware and Sony demonstrated their prototype with a capacity of about 200 GB to 1 TB. During the same period, InPhase released its HDS drive, Tapestry, which employed an angular multiplexing method to increase data density. It has a capacity of 300 GB and a transfer rate of 20 MBPS. After 2017, Tokyo University of Science and Amethystum Storage Technology Co., Ltd. developed an HDS system based on spherical reference wave cross-shift multiplexing, which combines shift and peristrophic multiplexing techniques. The shift interval can be as small as 5 μm , which enables a high multiplexing density (Fig. 3). Furthermore, the prototype was provided with a single-arm architecture, in which the reference and signal beams pass through the same relay lens system and split into two beams immediately before the recording media. This design reduces the path along which the reference and signal beams are separated, leading to a compact size and stable performance (Fig. 4).

Another core foundation for HDS is the recording media. Photopolymer materials are regarded as the best candidates to date. Dynamic range, photosensitivity, shrinkage rate, scattering, and lifetime are used to characterize the performance of the media. The dynamic range is the largest amplitude of refractive index modulation that the media can achieve, restricting the maximum multiplexing density from the media aspect. A larger dynamic range allows for a higher multiplexing density and capacity. However, a large dynamic range is always accompanied by a large shrinkage rate, which is induced by the polymerization of monomers and can result in the complete deterioration of the hologram. To guarantee a high signal-to-noise ratio (SNR) for the readout data page, the shrinkage rate is typically required to be less than 0.1%. Photosensitivity is the main factor influencing the recording rate. Larger photosensitivity reduces the requirement of high laser power and complexity of the mechanism; however, it may decrease the lifetime owing to high chemical activity. Materials with superior comprehensive performance have been developed by Aprilis, InPhase, Akonia Holographics, and Mitsubishi Chemical (Table 1).

Conclusions and Prospects HDS is a prominent candidate for next-generation optical data storage owing to its high storage density and potentially high transfer rate. The main obstacle for HDS to enter practical applications is the recording medium. Intensive studies on photochemical kinetics, particularly on the interaction between two multiplexed holograms during the recording process, are required. In addition to its applications in the field of big data, HDS has great potential in the field of artificial intelligence. Specifically, it offers promising prospects for storing the weight matrices of neural networks in holographic media, thereby enabling fast parallel calculations.

Key words holography; holographic optical storage; big data; holographic recording media