文章编号: 0253-2239(2009)05-1347-05

# 等曝光量时间递增双光子三维光存储

唐火红<sup>1,3</sup> 形 卉<sup>2,3</sup> 黄文浩<sup>3</sup> 张复实<sup>4</sup> <sup>1</sup>合肥工业大学机械与汽车工程学院,安徽 合肥 230009 <sup>2</sup>中科院光电技术研究所 微细加工光学技术国家重点实验室,四川 成都 610209 <sup>3</sup>中国科学技术大学精密机械与精密仪器系,安徽 合肥 230026 <sup>4</sup>清华大学化学系,北京 100084

**摘要** 为提高双光子三维光存储的深层存储信息的读出信号强度和存储容量,根据 Torok 的光在多层介质中传播 理论,模拟了折射率失配情况下(介质折射率为 1.48,数值孔径为 NA=0.65)双光子写入光束在不同存储深度处 会聚点的强度分布,分析得到了会聚点处最大光强平方与存储深度的关系;根据原子的光吸收基本理论,分析得到 了等曝光量写入光强不变情况下曝光时间随存储深度增加的递增关系;根据上述结果和利用自制的双光子三维光 存储系统在光致变色存储材料中实现了连续八层的信息存储对比实验,实验结果表明等曝光量时间递增存储方法 可有效提高存储容量和深层存储信息的读出信号强度。

关键词 信息光学; 三维光存储; 双光子; 存储深度; 等曝光量 中图分类号 TQ591 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS20092905.1347

# Two-Photon Three-Dimensional Optical Data Storage with Equal Exposure Energy and Time Increase

Tang Huohong<sup>1,3</sup> Xing Hui<sup>2,3</sup> Huang Wenhao<sup>3</sup> Zhang Fushi<sup>4</sup>

<sup>1</sup> School of Mechanical and Automotive Engineering, Hefei University of Technology, Hefei Anhui 230009, China

 $^{2}$  State Key Lab of Optical Technologies for Microfabrication , The Institute of Optics and Electronics ,

The Chinese Academy of Sciences, Sichuan, Chengdu 610209, China

<sup>3</sup> Precise Machinery and Precise Instrument Department, University of Science and Technology of China,

Anhui, Hefei 230026, China

<sup>4</sup> Department of Chemistry, Tsinghua University, Beijing 100084, China

**Abstract** Intensity of laser focus was simulated in the condition of refractive index mismatch (n=1.48, NA=0.65) at different recording depth with two-photon writing based on Torok's theory, in order to increase the readout signal intensity of deep layer bits and the memory capacity of two-photon 3D optical data storage. The relationship between the square of the maximum intensity at laser focus and the recording depth was acquired. Based on atomic absorption theory, the relationship between the exposure time and the recording depth in the condition of equal exposure energy without recording power changed was acquired. According to the results and using home-made two-photon 3D optical data memory system, the contrast experiment of recorded bits in eight consecutive layers with equal exposure energy and excitation time increasing was done in a photochromic storage medium. The experimental result indicates that the memory capacity is increased and the readout signal intensity in deep layer is enhanced effectively.

Key words information optics; 3D optical data storage; two-photon; recording depth; equal exposure energy

收稿日期: 2008-08-03; 收到修改稿日期: 2008-09-24

基金项目:国家自然科学基金(50335050)资助项目。

作者简介: 唐火红(1973-),男,博士,副教授,主要从事飞秒激光应用和机械制造及其自动化技术等方面的研究。 E-mail: tanghh@ustc.edu.cn

### 1 引 言

三维光信息存储技术中利用双光子吸收特性实现 高密度信息存储已成为相关领域的一个研究热点<sup>[1~5]</sup>。 双光子三维光存储中写入光束经过两层不同的介质 (空气和存储材料),由于两层介质的折射率不同(折射 率失配),光束在存储介质中会聚点的强度随存储深度 增加而减弱<sup>[3,6,7]</sup>,从而降低三维存储信息的容量和信 号强度。目前实验中通常采用油浸物镜<sup>[8]</sup>、能量调节 补偿法<sup>[7]</sup>和多层聚焦像差校正法<sup>[9,10]</sup>来克服折射率失 配情况下由于存储深度增加导致能量的衰减。

本文提出了等曝光量曝光时间递增存储法来减小 折射率失配情况下存储深度对存储容量和信号强度的 影响。根据 Torok 的光在多层介质中传播理论,利用 Matlab 模拟得到了在折射率失配情况下三维光存储的 双光子写入光束在不同存储深度会聚点的强度分布, 以及不同存储深度处的最大光强平方与存储深度的关系、等曝光量情况下曝光时间与存储深度的关系。利 用自行研制的单光束双光子三维光存储写/读集成系统进行了等曝光量曝光时间递增存储的对比实验。

#### 2 实验装置与材料

实验材料为光致变色材料二芳基乙烯类衍生物 1-(3-甲基-5-(4-甲氧基)苯基噻吩-2-基-2-(3-甲基-苯并噻吩-2-基)全氟环戊烯。该 化合物经紫外光激发前后分别为开环态和闭环态, 其分子结构式如图 1(a)所示。存储介质为全氟环戊 烯/有机玻璃(PMMA)200 μm 厚涂层,经紫外光激 发前后的吸收谱和荧光光谱分别如图 1(b)和(c)所 示。闭环态的比开环态的荧光强度约高四倍,可实 现光信息存储和荧光信号读出<sup>[3]</sup>。



图 1 光致变色材料的分子结构及其光谱特性。(a)光致变色材料的分子结构式,(b)存储介质(开环态和闭环态) 的吸收谱,(c)存储介质(开环态和闭环态)的荧光光谱

Fig. 1 Molecular structure of photochromic material and its spectroscopic properties. (a) Molecular structures of open-and closed-ring forms, (b) absorption spectra of the storage medium (open-and closed-ring form)(c) fluorescence spectra of the storage medium excited with 514 nm laser (open-and closed-ring form)

实验系统为单光束双光子写入和单光子荧光读 出集成系统<sup>[11,12]</sup>。系统中 Ti: sapphire 激光器输出的 光束(800 nm, 80 fs,80 MHz)经滤色、衰减和准直扩束 后,由高数值孔径物镜(40X,NA=0.65)紧聚焦在固定 于 PZT 扫描台上的存储介质内,PZT 扫描台在计算机 的控制下可在 XY平面内和 Z 方向上移动来实现双光 子三维光存储。系统中二极管固体激光器输出 532 nm 的连续光作为读出光源。信息点经读出光激发后发出 的荧光经分色镜,小孔光阑进入光电倍增管,光电倍增 管信号经计算机采样处理后提供灰度值可在监视器上 逐点产生图像,实现存储信息读出。

#### 3 理论分析与模拟

从衍射的角度出发,双光子三维光存储中不同 存储深度的光强分布可以看成是折射率失配情况下 电磁场在分层介质中的传播引起的,如图 2 所示。 Torok 等从 Wolf 的积分公式导出了两层介质间界 面上的电磁场分布<sup>[13]</sup>。然后应用菲涅耳公式在单 独的平面波上导出这个电磁场在第二分层介质内的 分布。忽略物镜的去极化作用和向量作用,最终得 到焦点处的光强分布为<sup>[14]</sup>

$$I(r,z) = \left| \int_{0}^{a} (\cos \phi_{1})^{1/2} (\sin \phi_{1}) \exp[ik_{0} \psi(\phi_{1},\phi_{2},-d)] \right| \\ \times (\tau_{s} + \tau_{p} \cos \phi_{2}) J_{0} (k_{0} r_{p} n_{1} \sin \phi_{1}) \\ \times \exp(ikz_{p} n_{2} \cos \phi_{2}) d\phi_{1} \right|^{2}, \qquad (1)$$

其中 n<sub>1</sub> 和 n<sub>2</sub> 分别为第一层和第二层介质的折射率, d 为两介质界面到焦点的距离,J<sub>0</sub> 为零阶贝塞尔函数,k<sub>0</sub> 为入射光在真空中的波数,r<sub>p</sub>、z<sub>p</sub> 分别为横向和 轴向坐标,τ<sub>s</sub> 和 τ<sub>p</sub> 分别为菲涅耳系数<sup>[13]</sup>,α 为物镜的 孔径半角,φ<sub>1</sub> 和 φ<sub>2</sub> 分别为光在两层介质中的会聚角,





图 2 光通过两层介质的聚焦路径

Fig. 2 Diagram of light being focused through two media

根据(1)式,采用如图 2 所示的坐标系统(坐标 原点位于无折射率失配时光束的会聚点,即图中虚 线交点),用 Matlab 模拟得到在激光波长为 800 nm,存储介质折射率为 $n_2$ =1.48,干燥系物镜 数值孔径NA=0.65的情况下存储介质中不同深 度聚焦点的光强分布,如图 3 所示。由于双光子吸 收与激发光强的平方成正比,根据模拟结果得到了 不同深度聚焦点光强最大值的平方 $I_{max}^2$ 的变化曲 线,如图 4 所示,可以看出,随着存储深度的逐渐加 深,光强最大值的平方 $I_{max}^2$ 迅速减小。



图 3 存储介质中不同深度的光强点扩展函数分布 Fig. 3 Profile of IPSF focus point at different depths in storage medium



图 4 存储介质中不同深度最大光强的平方 I<sup>2</sup><sub>max</sub>的变化趋势 Fig. 4 Square of maximum intensity at the focus I<sup>2</sup><sub>max</sub> at different depths in storage medium

双光子光致变色存储中信息点的读出信号强度 主要与其产生的荧光强度成正比,而荧光强度与其 激发态分子浓度有着密切的关系。根据原子的光吸 收基本理论可知<sup>[15]</sup>,在有效激发光强的作用下激发 态分子浓度与激发光强的平方和激发时间成正比:

 $N_s(t) = \sigma N_0 I^2 t, \qquad (2)$ 

其中 N<sub>s</sub>为激发态分子浓度,N<sub>o</sub>为基态分子初始浓度,I为会聚点光强,t为激发时间,σ为材料的双光 子吸收截面。

假设存储介质中基态分子的初始浓度为一定值, 在读出光强度不变的情况下,激发态分子浓度相等即 可实现信息点的等信号强度读出,由公式(2)可推导出 不同存储深度的信息点激发态分子浓度相等关系式:

$$\int_{0}^{t_{0}} I_{0}^{2} dt = \int_{0}^{t_{1}} I_{1}^{2} dt = \int_{0}^{t_{2}} I_{2}^{2} dt \cdots = \int_{0}^{t_{n}} I_{n}^{2} dt = C,$$
(3)

其中 C 为常数, I<sub>0</sub> 和 t<sub>0</sub> 分别为无折射率失配情况下焦 点处的激发光强和曝光时间, I<sub>n</sub> 和 t<sub>n</sub> 分别为折射率失 配情况下存储深度为 d<sub>n</sub> 处的激发光强和曝光时间。

对于激发光强( $I_0$ )和曝光时间时间( $t_0$ )不变的 情况下,根据公式(3)和模拟结果图 4(不同存储深 度处的激发光强  $I^2_{max}$ )可得到不同存储深度信息点 具有相等的激发态分子浓度所需的曝光时间  $t_n$  及 其与 $t_0$ 的关系,如图 5 所示。





从式(1)和(3)可见出,在不改变初始激发光强的情况下可通过增加激发时间使不同存储深度的信息点具有相同的曝光量,从而具有相同的激发态分子浓度。这种存储方法在实际操作中很容易通过软件控制曝光时间来实现。

## 4 实验结果与讨论

为验证等曝光量曝光时间递增法在多层双光子 激发光存储中能否有效提高深层信息点的读出强 度,实验中用干燥系物镜(40X,0.65NA)将单束双 光子写入激光(功率为18.7 mW)聚焦到存储介质 内分别进行了曝光时间不变和曝光时间递增的多层 存储实验,然后统一用 0.1 mW 的532 nm 连续激 光读出。为保证信息点处于存储介质内部,信息点 从样品表面 10  $\mu$ m 处的焦平面开始存储,存储层间 隔约 20  $\mu$ m,相邻信息点的间隔约 4  $\mu$ m,最大存储 深度约 150  $\mu$ m。

图 6(a)为激发时间(20 ms)不变的情况下在存储介质内不同深度进行存储的连续八层信息点的读出图像,图 6(b)为存储信息点的读出信号强度与存储深度的关系。可见,存储深度不同,存储信息点的读出信号强度有较大的差异;存储信息层数越多,存储信息离介质表面的距离就越大,读出信号强度就越弱;信息点的读出信号强度随着存储深度的增加明显呈现出线性下降的趋势,与前人所做的实验结果基本一致<sup>[3,7]</sup>。根据理论分析和模拟结果可知:这种现象出现的原因之一是由于两层介质的折射率不同(折射率失配),写入光束在存储介质中会聚点的强度随存储深度增加而减弱,从而降低了存储介质的激发态分子浓度。



- 图 6 曝光时间不变存储信息点及其信号强度与存储深 度的关系(a)不同深度连续八层信息点(b)信号强 度与存储深度的关系
- Fig. 6 Images of multilayer bits and plot of signal intensity versus recording depth with equal exposure time recording. (a) Images of 8 consecutive layers at difference recording depth and (b) plot of signal intensity vs recording depth

图 7(a)为等曝光量激发时间按图 5 所示模拟 结果逐渐递增的情况下在存储介质内不同深度进行 存储的连续八层信息点的读出图像,图 7(b)为存储 信息点的读出信号强度与存储深度的关系。可见, 存储深度不同,连续层之间存储信息点的读出信号 强度的差异较小;随着存储信息层数的增加,第一层 和最后一层之间的读出信号强度的差异还较大;与 图 6 实验结果相比,最后层信息的的读出信号强度 有了明显的提高,约提高三倍。可见,采用等曝光量 曝光时间递增法在一定的程度上有效的提高了深度 存储信息点的读出信号强度,利于提高双光子三维 光存储容量。



- 图 7 曝光时间递增存储信息点及其信号强度与存储深 度的关系(a)不同深度连续八层信息点(b)信号强 度与存储深度的关系
- Fig. 7 Images of multilayer bits and plot of signal intensity versus recording depth with exposure time increase. (a) Images of 8 consecutive layers at difference recording depth; (b) plot of signal intensity versus recording depth

# 5 结 论

在双光子三维光存储中由于折射率失配的存 在,信息点的读出信号强度随着存储深度的增加而 减弱,从而影响了三维光存储容量。利用等曝光量 时间递增存储方法可有效提高深层存储信息的信号 强度和存储容量,但还没完全达到各层信息点读出 信号强度一致,信息点读出信号强度随着存储深度 的增加仍然呈现出一定的下降趋势。这种现象可能 是由于写入光的散射以及读出时也存在折射率失配 等问题引起的。减少读出光的折射率失配的影响, 利用激发能量递增的方法实现深层存储点的写入和 读出信号强度一致将是以后研究的主要内容之一。

#### 参考文献

- 1 D. A. Parthenopoulos, P. M. Rentzepis. Three-dimensional optical storage memory[J]. Science, 1989,245(4920): 843~845
- 2 Xing Hui, Tang Huohong, Jiang Bing *et al.*. Three-dimensional optical storage in a PMMA polymer doped with (Ce<sup>3+</sup>)[J]. *Acta Optica Sinica*, 2006, 26(6):874~877
  刑 卉,唐火红,江 兵等.聚甲基丙烯酸甲酯掺杂 Ce<sup>3+</sup>的飞秒
- 激光三维信息存储[J].光学学报,2006,26(6):874~877 3 Tang Huohong, Zhou Yougjun, Jiang Zhongwei *et al.*.. Experimental study on photochromic three-dimensional optical
- storage under two-photon excitiation [J]. Chin. J. Lasers, 2005, 32(1) :  $92 \sim 96$

唐火红,周拥军,蒋中伟 等.双光子吸收光致变色三维光存储实验研究[J].中国激光,2005,**32**(1):92~96

- 4 Yongjun Zhou, Huohong Tang, Wenhao Huang et al.. Threedimensional optical data storage in photochromic material with two-photon writing and superlow power readout[J]. Opt. Eng., 2005,44(3): 035202-1~5
- 5 A. N. Shipway, M. Greenwald, N. Jaber *et al.*. A new medium for two-photon volumetric data recording and playback [J]. *Japn. J. Appl. Phys.*, 2006, 45(2B):1229~1234
- 6 Cai Jianwen, Cheng Yezeng, Shen Zhaolong *et al.*. Influence of refractive index mismatch on the optical aberration in two-photon three-dimensional optical data storage[J]. *Acta Optica Sinica*, 2006,26(3):443~446

蔡建文,程晔增,沈兆龙等,折射率失配对双光子三维光存储中 像差的影响[J]. 光学学报,2006,26(3):443~446

7 Daria V, Blanca C. M., Nakamura O et al.. Image contrast

enhancement for two-photon fluorescence microscopy in a turbid medium[J]. Appl. Opt., 1998, 37 (34): 7960~7967

- 8 J. H. Strickler, W. W. Webb. Three-dimensional optical storage in refractive media by two-photon point excitation [J]. *Opt. Lett.*, 1991,16(22):1780~1782
- 9 Ling Ning. Wavefront correctors of adaptive optics[J]. Optial Technology, 1998,(3):12~16
- 凌 宁. 自适应光学波前校正器[J],光学技术,1998,(3):12~16 10 Yan Jixiang. Application of spatial light modulators using liquid crystal in adaptive optics[J]. *Optial Technology*, 1999,(2):3~ 4

阎吉祥,液晶空间光调制器在自适应光学中的应用[J],光学技术,1999,(2):3~4

- 11 Jiang ZhongWei, Zhou YongJun, Yuan DaJun et al.. A twophoton femtosecond laser system for three-dimensional microfabrication and data storage[J]. Chin. Phys. Lett., 2003, 20(12): 2126~2129
- 12 Zhou Yongjun, Tang Huohong, Jiang Zhongwei *et al.*. Confocal laser scanning fluorescence microscope for three-dimensional optical data storage and microfabrication [J]. *J. Chin. Electr. Microsc. Soc*, 2003, 22:551~552(in Chinese) 周拥军,唐火红,将中伟等,用于三维光学信息存储和微细加工 研究的共焦激光扫描荧光显微镜[J]. 电子显微学报,2003, 22: 551~552
- 13 P. Torok, P. Vargo, Z. Laczik *et al.*. lectromagnetic diffraction of light focused through a planar interface between materials of mismatched refractive indices: an integral representation[J]. J. Opt. Soc. Am. A., 1995, (12): 325~332
- 14 Yongjun Zhou, Deqiang Chen, Wenhao Huang et al.. An alternative method for simulating IPSF in two-photon laser scanning microscopy[C]. SPIE, 2002, 4927: 413~420
- 15 Qian Shixiong, Wang Gongming. Nonlinear Optics— Principles and Evolution [M]. Shanghai: Fudan University Press, 2001 钱士雄,王恭明.非线性光学—原理与进展[M]. 上海:复旦大学

出版社,2001