



DOI: 10.12086/oe.2019.180584

基于无序金纳米棒编码的多维光信息存储

欧阳旭¹, 徐毅^{1*}, 洗铭聪¹, 曹耀宇², 戴峭峰³, 李向平², 兰胜³¹暨南大学信息科学技术学院电子工程系, 广东 广州 510632;²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;³华南师范大学信息光电子科技学院, 广东 广州 510631

摘要: 随着信息时代的到来, 日益增长的海量数据对数据存储技术提出了高容量、高安全性和高存储时长等要求。常规的磁存储技术难以满足这些要求, 面临着前所未有的挑战。随着激光器的发明和纳米技术的快速发展, 基于金纳米棒与读写激光相互作用的五维光存储技术应运而生, 其存储密度高和寿命长的特点能够满足上述要求。本文将总结如何从结构物质的角度来实现读写激光物理维度的复用和多进制存储以及如何从结构光的角度来实现超分辨存储。本文还将讨论进一步提升五维光存储容量的方法, 并对这种技术的未来发展方向进行展望。

关键词: 光存储; 金纳米棒; 超分辨存储; 多进制存储**中图分类号:** O436.3; O438.1**文献标志码:** A**引用格式:** 欧阳旭, 徐毅, 洗铭聪, 等. 基于无序金纳米棒编码的多维光信息存储[J]. 光电工程, 2019, 46(3): 180584

Encoding disorder gold nanorods for multi-dimensional optical data storage

Ouyang Xu¹, Xu Yi^{1*}, Xian Mingcong¹, Cao Yaoyu², Dai Qiaofeng³,Li Xiangping², Lan Sheng³¹Department of Electronic Engineering, College of Information Science and Technology, Jinan University, Guangzhou, Guangdong 510632, China;²Guangdong Provincial Key Laboratory of Optical Fiber Sensing and Communications, Institute of Photonics Technology, Jinan University, Guangzhou, Guangdong 510632, China;³Guangdong Provincial Key Laboratory of Nanophotonic Functional Materials and Devices, School of Information and Optoelectronic Science and Engineering, South China Normal University, Guangzhou, Guangdong 510631, China

Abstract: The digital data created by human being grows exponentially in time. Conventional magnetic storage technologies are difficult to meet this challenge. It means that new storage technologies with higher capacity, higher security and longer storage time should be developed to meet the challenge in information age. With the invention of lasers and the rapid development of nanotechnology, multidimensional optical data storage based on the polarization and wavelength dependent responses of gold nanorods was demonstrated to be capable of meeting these requirements. We will review the recent progresses about five-dimensional optical data storage and multilevel storage

收稿日期: 2018-11-13; 收到修改稿日期: 2019-01-10

基金项目: 国家科技部重点研发计划(YS2018YFB110012); 国家自然科学基金项目(11674130, 91750110, 61522504); 广东省珠江人才创新团队(2016ZT06D081); 广东省自然科学基金(2016A030306016、2016TQ03X981); 广州市科技计划(201806010040)资助

作者简介: 欧阳旭(1993-), 男, 硕士, 主要从事光存储的研究。E-mail: 270709831@qq.com

通信作者: 徐毅(1984-), 男, 博士, 副教授, 主要从事共振微纳结构调控光与物质相互作用的研究。E-mail: yi.xu@osamember.org

utilizing disorder gold nanorod from the structured matter point of view and super resolution storage from the structured light point of view, respectively. We also provide outlooks for how to further increase the capacity of the five dimensional optical data storage and our future prospective of this technology.

Keywords: optical data storage; super resolution storage; multilevel storage

Citation: Ouyang X, Xu Y, Xian M C, *et al.* Encoding disorder gold nanorods for multi-dimensional optical data storage[J]. *Opto-Electronic Engineering*, 2019, **46**(3): 180584

1 引言

古代使用雕刻和纸张记录等方法进行信息存储。工业革命之后科技发展迅速,信息存储的容量需求不断增大。1884年Hollerith发明了存储数据的穿孔卡,在很薄的纸片上通过打孔来存储数据。计算机的发明大大加速了数据的产生和处理,也加速了新的存储方式的涌现,如计数电子管和磁存储技术等。进入21世纪后,大数据在各行各业中扮演着越来越重要的角色,其不仅对数据存储容量的需求巨大,并且对安全性和存储时间的要求也极高。国际数据公司(International Data Corporation, IDC)的报告显示到2025年人类社会的数据量将达到163 ZB^[1]。目前数据中心存储方式以磁存储设备为主,但这类数据存储方式的保存时间不长,在数据定期迁移的时候容易出现数据丢失。随着存储容量的不断扩大,数据中心的耗电也大量增加。因此发展一种大容量、存储时间长、低能耗和高安全性的存储技术迫在眉睫。

随着激光器的发明,光存储技术应运而生,如CD(compact disc)、DVD(digital versatile disc)、

BD(blue-ray disc)、全息光存储^[2-4]等。光存储技术在满足大容量数据存储的需求中扮演了重要的角色^[5-7]。光存储与磁存储技术相比较,存储容量虽然目前还处于劣势,但光存储技术具备极大的提升空间,未来有望超越磁存储,而且其存储寿命可以轻易达到10年以上。光存储技术的容量主要受限于激发光波长(λ_{ex})和聚焦透镜的数值孔径(NA)。目前商用的光存储技术主要包括CD, DVD和BD,它们的存储容量以及对应的 λ_{ex} 和NA参考图1。根据衍射极限的公式,光斑大小(spot size)为 $1.22\lambda_{ex}/NA$ ^[8],降低光斑尺寸需要通过减小波长或增大NA的方法。但蓝光技术之后,再进一步减小激光波长及增加物镜NA在技术上将遇到非常大的困难。研究人员也在探索新的方式来进一步提高存储容量以应对时代发展对海量数据存储的需求^[9-10]。

激光不仅具有单色性高、相干性好、方向性强以及强度高的优点,还具有可外部调控的物理维度,如:频率^[11-12]、波长^[13-15]、偏振^[16-21]、相位^[22]、振幅^[23]、角动量^[24-25]、模式^[26-27]、空间^[28-30]等物理维度。光的物理维度复用是实现大容量存储和宽带高速光通信的重要基础。为了利用光的物理维度进行存储复用,需要选

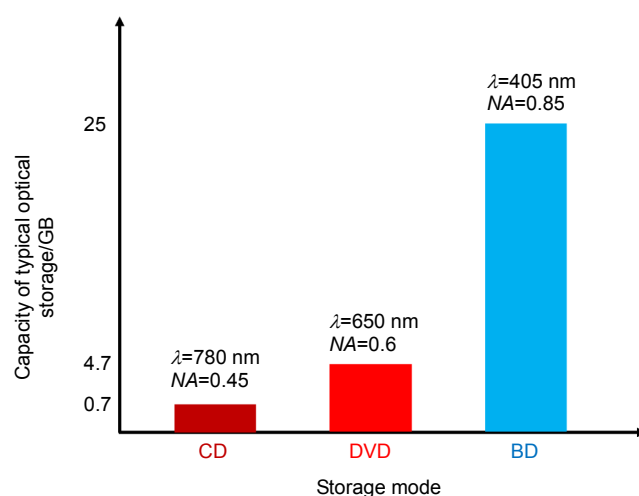


图1 几种传统光存储技术的主要参数以及存储容量。 λ 为读写光波长; NA为透镜的数值孔径
Fig. 1 Main parameters and capacity of typical optical storage technologies. λ is the wavelength of recording/readout beam; NA is the numerical aperture of lens

择对光的物理维度具有响应的材料作为存储媒介。量子点等荧光材料可实现偏振复用或者空间复用^[18,31],金纳米棒(gold nanorod, GNR)可以实现波长复用^[13]。GNR 能支持具有近场增强功能的局域表面等离子共振^[32-35]。2009 年顾敏院士研究组使用无序 GNR 作为存储媒介,利用光的波长、偏振以及空间三维实现了五维光存储,理论上与一张 DVD 体积相同的光碟其存储容量可以达到 1.6 TB,比 DVD 存储容量高出两个数量级以上^[14]。由于 GNR 在焦点体积内是呈无序分布的,通过矢量焦场调控技术,可以实现 GNR 的三维偏振编码^[16]。2017 年兰胜教授研究组与顾敏院士合作证明了超低读写能量的五维光存储^[15]。他们通过增加单个信息单元体积内的 GNR 的耦合强度令 GNR 间产生电磁能量热点。并对这些随机分布的热点进行编码,不仅可以把读写能量降低两个数量级,而且增加了波长、偏振和空间复用通道的数量。运用他们的技术,单张光碟的存储容量理论上可以达到 20 TB,大幅提高了存储容量与质量^[15]。除 GNR 之外,稀土元素混合纳米晶体、石墨烯^[36]等都可以作为光存储的存储媒介。由于衍射极限的存在,光存储信息单元的尺寸受到衍射极限的限制。通过受激发射损耗(stimulated emission depletion, STED)和超透镜等方法可以突破该衍射极限^[37-42],其也是提高光存储容量的重要途径之一^[43]。基于 STED 概念,2015 年李向平教授和曹耀宇教授等人使用光聚合物作为存储媒介,使用 800 nm 的飞秒激光记录光束,结合 375 nm 连续激光的抑制光束,在玻璃基板上实现了最小 33 nm 的单个信息点,单张光盘的理论容量可以达到 30 TB。由于他们通过

光场调控技术实现多焦点的并行记录,其读写速度可以达到 GB/s^[44]。

光物理维度的复用、超分辨存储技术以及多进制存储技术^[45-49],是从不同角度提高信息存储容量的有效方法。这三种方法的存储容量与传统光存储技术相比有巨大的提高。本文将对现有的多维复用存储、超分辨存储以及多进制存储技术进行系统地介绍,并对其未来的发展予以展望。

2 多维光存储技术

2.1 基于随机金纳米棒的信息存储

光与物质的相互作用包括很多基础物理过程和应用,如拉曼散射、超分辨成像、太阳能电池等等。它不仅与我们生活中常见的一些场景息息相关,并且在很多基础科学研究方面扮演着非常重要的角色,如受激辐射和光频段的理想磁偶极子散射等^[50-54]。本文重点讨论的五维光存储技术就是依赖于读写激光与深亚波长尺寸 GNR 之间的相互作用来实现的。

GNR 支持纵向和横向局域表面等离子共振(local surface-plasmon resonance, LSPR)^[32,52],如图 2(a)所示。随着 GNR 长径比的增加,纵向 LSPR 共振峰会红移。GNR 的纵向 LSPR 共振强度也与 GNR 长轴方向和激光偏振间的夹角有关系,纵向 LSPR 共振在夹角为零时达到最强。当激光辐射频率与 GNR 纵向共振频率一致时,GNR 的吸收将被共振增强。GNR 在受激光辐射时会经历复杂的光与物质相互作用过程,包括线性吸收、非线性吸收、线性散射和非线性散射,如图 2(b)所示。利用 GNR 的波长和频率响应特性并结合

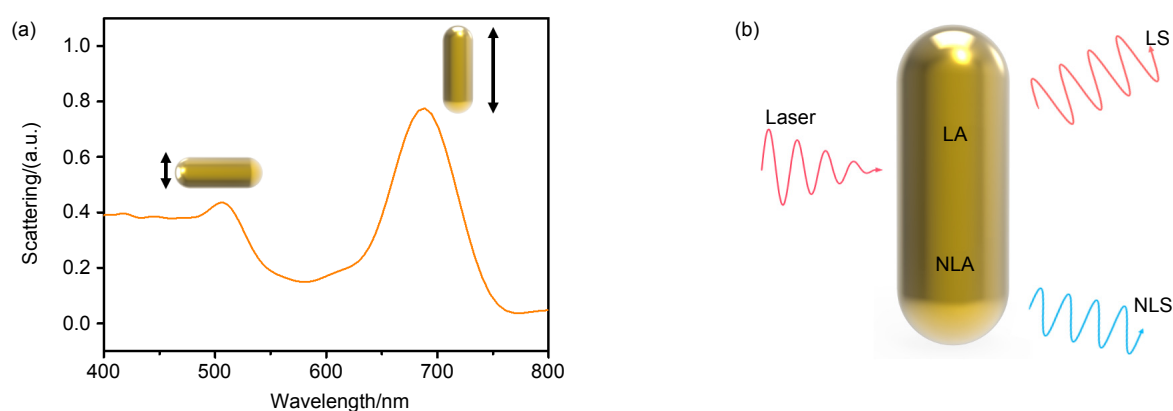


图 2 GNR 的光学性质。(a) GNR 的散射谱;(b) GNR 在激光辐射时的一些物理效应。LA: 线性吸收; NLA: 非线性吸收; LS: 线性散射; NLS: 非线性散射

Fig. 2 Optical properties of gold nanorods. (a) Scattering spectrum of gold nanorods; (b) Typical physical processes involved in the interaction during laser irradiation. LA: Linear absorption; NLA: Nonlinear absorption; LS: Linear scattering; NLS: Nonlinear scattering

三维空间分布的无耦合 GNR 可以实现五维光存储。Zijlstra 等人通过将三种不同长径比的 GNRs 混合作为存储媒介来实现波长复用,其平均尺寸分别为 37 nm×19 nm(长径比: 2±1)、50 nm×12 nm(长径比: 4.2±1)、50 nm×8 nm(长径比: 6±2)^[14]。他们实验上使用的读写飞秒激光波长分别为 700 nm, 840 nm 和 980 nm, 激光的偏振态分别为水平和垂直偏振, 如图 3 所示。在信息写入的过程中, 不同波长和不同偏振的飞秒激光只会熔掉与纵向 SPR 共振峰匹配的 GNRs。由于光热效应, GNR 会熔成球状^[50], 其 LSPR 共振峰也会蓝移到 500 nm 左右。在信息读出的过程中, 他们使用低能量的飞秒激光来读取写入信息单元中 GNR 辐射的双光子荧光(two-photon-induced luminescence, TPL)。与之前基于散射或者消光信号等线性方法相比, TPL 检测方法对偏振角度和波长具有更高的灵敏度。特定波长和偏振组合的激光在已写入和未写入的信息单元中读出的 TPL 具有较大的对比度。根据荧光强度大小, 他们可以实现“0”和“1”的二进制编码。由于在单个信息元体积内存在大量无序分布的 GNR, 如果改变波长和偏振的组合对该已写入信息单元进行读取, 其 TPL 强度与未写入信息单元的强度处于相同量级上, 这是实现五维复用存储的基础。图 3(b)为五维光存储实验结果, 信息层的厚度为 1.3 μm, 层与层的间隔为 10 μm。此方法可实现 1.1 Tbit/cm³的密度, 在 DVD 同体积下可实现 1.6 TB 的存储容量。运用五维光存储技术不仅可以大幅提高存储容量, 也可以在五个维度上对信息进行加密存储, 只有在正确的空间

区域以及特定的波长和偏振组合下才能读取正确的信息^[14]。

光的偏振是信息复用中的一个重要维度。高斯光在自由空间中传播时只能在垂直于传输方向的横截面内有效地改变偏振方向。当它经由高数值孔径物镜聚焦后就可以产生沿着传输方向的电场分量。利用径向和角向偏振光的叠加, 可以在焦点处产生任意方向的三维矢量, 其电场矢量对应的 θ 和 β 角可以通过径向和角向偏振光的叠加来进行调控。无序 GNRs 的空间朝向也是三维随机分布的, 当焦点处偏振朝向与 GNRs 朝向一致时, GNRs 的纵向 LSPR 共振峰会达到最大, 选择合适的阈值的能量可以熔掉共振峰附近的棒, 从而实现三维偏振编码及加密。图 4(a)~4(d)为基于焦斑处三维偏振方向编码的实验结果。这种方法可以在偏振的维度上极大地增加存储通道数目, 由于三维矢量朝向理论上是无限的, 信息存储的安全性得到了极大的提高^[16]。

2.2 基于耦合无序金纳米棒的信息存储

无序物质与光作用时也有丰富的光学性质, 如无序散射光学系统中的安德森局域化等^[51]。为了增加聚焦光斑体积内可存储信息通道的数目, 最直接的方法是增加单位体积内的 GNR 数目, 即使用尺寸更小的 GNR。但这时 GNR 间的表面等离子模式相互作用变强, 它们近场耦合会产生空间分布的随机电磁能量热点。这些热点对近场电场有极大的增强, 在表面增强拉曼散射和单分子检测等多个方面具有重要作用^[55]。

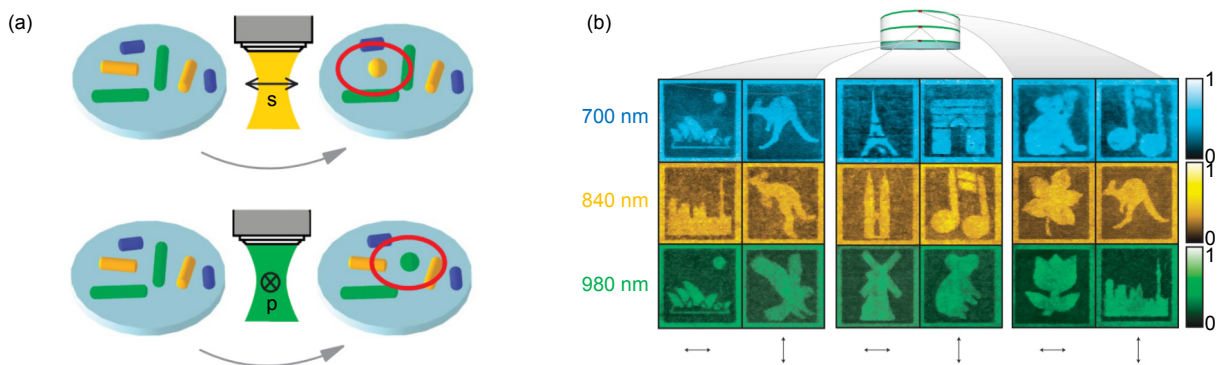


图 3 基于 GNR 编码的五维光存储。(a) 物理机制的示意图; (b) 五维光存储的实验结果, 箭头代表入射光的偏振方向, 图像尺寸为 100 μm×100 μm, 像素点为 75×75^[14]

Fig. 3 Five-dimensional optical data storage based on coding gold nanorod. (a) Schematic diagram of the physical mechanism; (b) Experimental results of five-dimensional optical data storage, the arrow represents the polarization direction of the incident light, the image size is 100 μm×100 μm, and the pixel point is 75×75^[14]

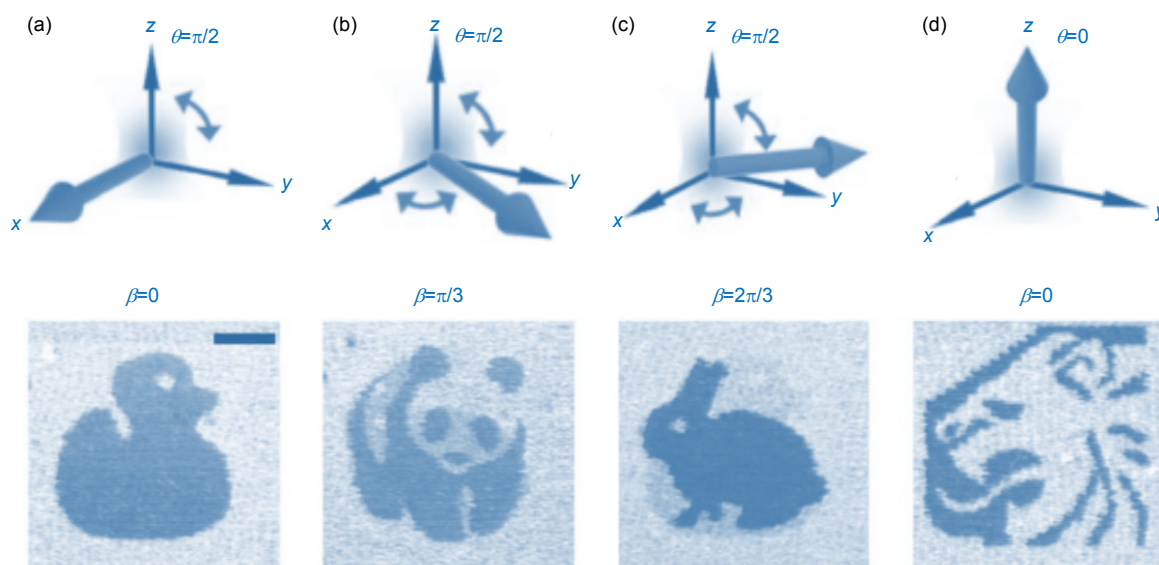


图 4 三维矢量偏振编码。(a)~(d)为同一区域使用不同三维偏振方向记录信息后解码得到的图像， θ 和 β 的数值代表焦点处偏振方向的空间朝向。图像像素点为 75×75 个，单个像素点大小为 $550 \text{ nm} \times 550 \text{ nm}$ ，比例尺长度为 $10 \mu\text{m}$ ^[16]

Fig. 4 Three-dimensional polarization encoding. (a)~(d) Schematic diagram of electric vectors specified by angles θ and β at the focus spot and the corresponding retrieved information multiplexed in same area. The pixels of all images are 75×75 , and the size of single pixel is $550 \text{ nm} \times 550 \text{ nm}$. The scale bar is $10 \mu\text{m}$ ^[16]

2016 年李锦祥和徐毅等人证明了随着 GNR 间耦合强度的增加，无序 GNR 体系的双光子吸收 (two-photon absorption, TPA) 峰与单光子吸收峰会发生分离。他们引入了一个简化的随机耦合 GNR 模型来讨论耦合无序 GNR 系统的光吸收特性。该模型由分布在正方格点上 ($10 \times 10 \times 1$ 和 $10 \times 10 \times 3$) 的无序 GNR 组成，如图 5(a) 和图 5(b) 所示。GNR 的尺寸相同 (长度为 $A=25 \text{ nm}$ ，半径为 3 nm)，其长轴的空间朝向遵从均匀随机分布，通过改变正方阵列的晶格常数 S ，可以研究 GNR 间的耦合强度对系统光吸收的影响^[56-57]，如图 5(c) 和图 5(d) 所示。当 GNR 阵列的晶格常数小于 $1.2A$ (A 为金棒长轴长度) 时，系统存在较强的耦合作用，表现为它们的局域化表面等离子共振模式在空间上发生了交叠。这些相互作用的模式可以视为这个无序 GNR 体系存在的准正交模式，其物理性质与弱耦合无序 GNR ($S=2A$) 不一样，表现为系统单光子吸收峰与双光子吸收峰的分离，如图 5(c) 和 5(d) 所示。单层 GNR 阵列与多层 GNR 阵列模型得到的结论是一致的。实验上他们通过利用不同光学浓度 (optical density, OD) 的 GNR 来制备耦合强度可控的无序 GNR 光存储物质。GNR 长轴的平均尺寸为 35 nm ，短轴为 8 nm 。

由于所采用的 GNR 体积较小，其线性吸收在消光谱中占主导地位，因此可认为其透过率谱线的峰值即为线性吸收谱的峰值。图 5(e) 和图 5(f) 为由不同 OD 的 GNR 原液所制备样品对应的归一化线性和非线性吸收谱。当 GNR 间耦合强度足够大时，非线性和线性吸收峰将分开，与计算结果吻合^[58]。

2017 年戴峭峰等人发现无序 GNR 耦合产生的热点对读写激光的偏振和波长具有很强的敏感性。这些热点对相邻 GNR 之间的空隙宽度极为敏感，当 GNR 出现微小形变时，GNR 之间的间隙增大，会导致热点附近 GNR 的 TPL 急剧下降。与此同时，不同空间位置的热点对读写激光的偏振和波长的依赖关系不同，这样就不用通过掺杂长径比不同的 GNR 来实现波长复用，可以简化样品的制备过程。他们利用 GNRs 耦合产生的随机热点证明了超低记录能量的五维光存储，其读写能量比基于单个 GNR 的存储技术降低了两个数量级。这种存储技术的偏振复用角度间距可以降低到 45° ，波长复用间隔降低到 40 nm ，信息单元的最小面积降低为 $500 \text{ nm} \times 500 \text{ nm}$ 。与原始记录信息相比，其信息记录相关系数 (correlation coefficient, C) 可以达到 90% 以上，对比度可以达到 50% 以上，信息存

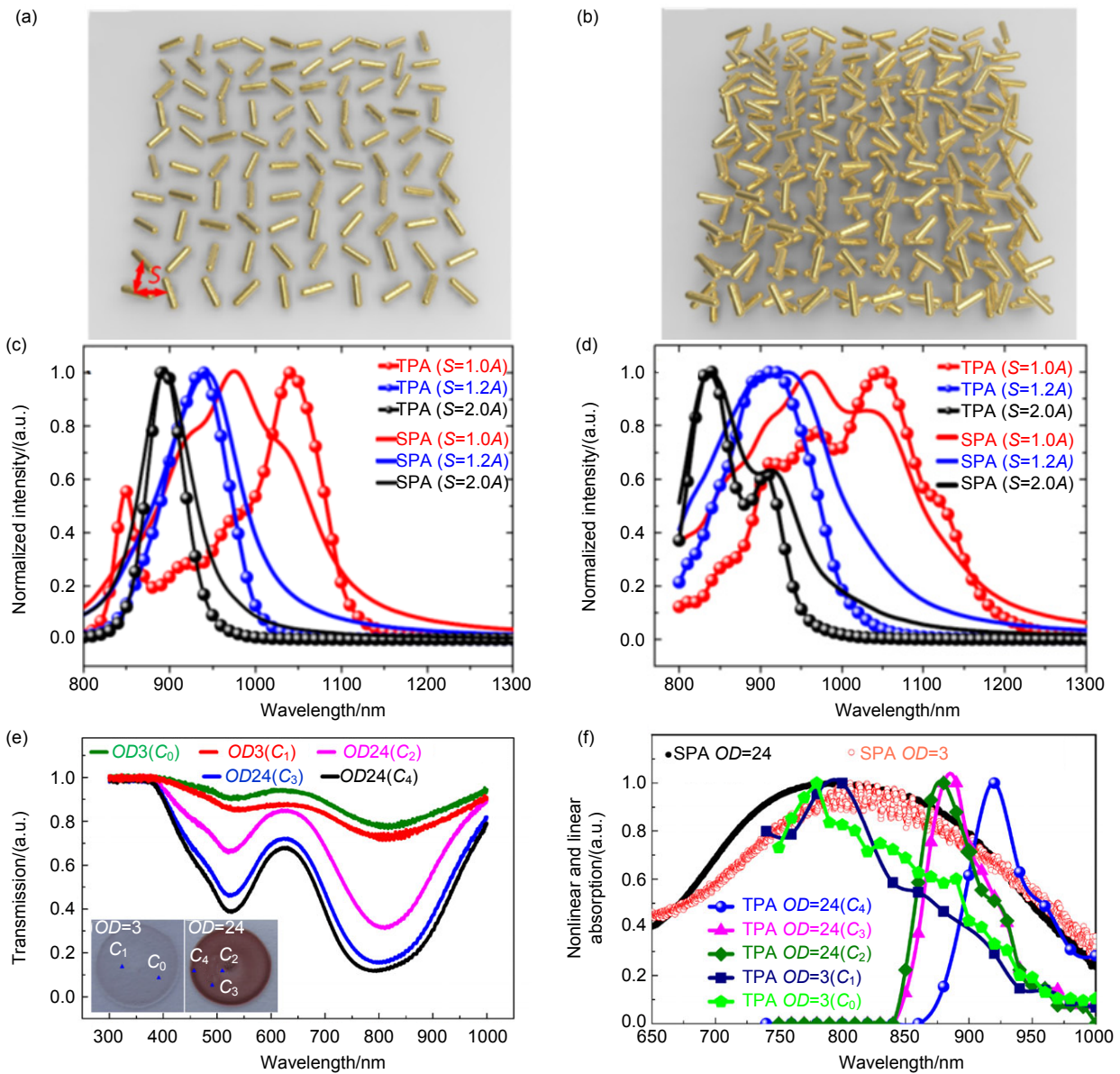


图 5 GNR 耦合强度对单光子吸收和双光子吸收的影响。(a) 单层随机耦合 GNR 模型；(b) 三层随机耦合 GNR 模型；(c)和(d)分别对应(a)和(b)所示模型的归一化单光子和双光子吸收谱。SPA 代表单光子吸收强度，TPA 代表双光子吸收强度， S 为正方晶格的晶格常数， A 为 GNR 的长度；(e) 具有不同光学密度值(OD)的随机耦合 GNR 体系透过率谱线，其测量位置如插图所示；(f) 不同 GNR 浓度的归一化双光子吸收谱(TPA)和线性吸收谱(SPA)^[58]

Fig. 5 The effect of GNR coupling strength on single photon absorption (SPA) and two-photon absorption (TPA). (a) Single-layer randomly coupled GNR model; (b) Three-layer randomly coupled GNR model; (c) and (d) are the normalized SPA and TPA spectra of the models shown in (a) and (b), respectively. S is the lattice constant of the square lattice, A is the length of the GNR; (e) Transmittance spectra of randomly coupled GNR systems with different optical density (OD), the measurement locations are shown in the insets; (f) Normalized TPA spectra and SPA at different GNR concentration^[58]

储的质量有了大幅的提升。图 6 为随机热点五维复用存储的实验结果，图 6(a)和图 6(b)为正交偏振复用的结果。图 6(c)~图 6(f)为多层复用的结果，在无串扰的情况下将信息层之间的间距缩短至 $4 \mu\text{m}$ 。与基于单个 GNR 编码实现的五维光存储相比，通过 GNR 耦合产

生的随机热点在五个物理维度内均增加了存储通道的数目，且信息解码之后具有更高的准确度和对比度，是五维光存储技术上的一个重要里程碑^[15]。

目前多维光存储技术主要利用激光诱导微纳结构形变，其形变之后对应的光学特性会发生改变，通过

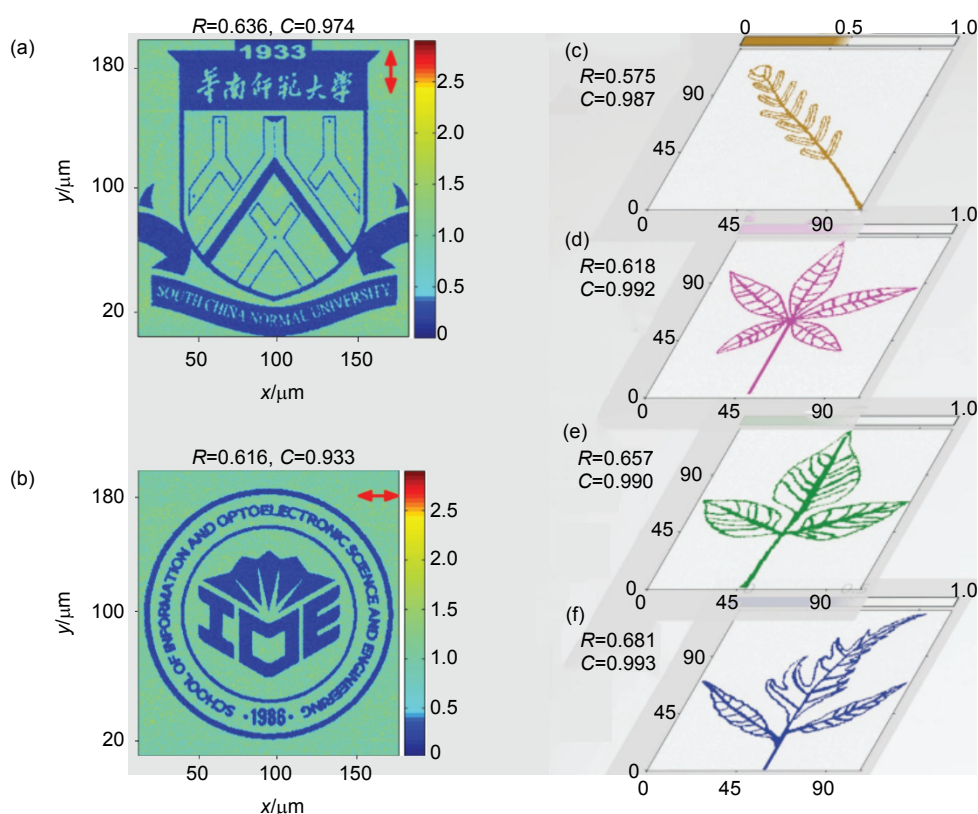


图 6 基于无序 GNR 耦合产生的随机热点实现的信息复用存储。(a)和(b)为偏振复用信息存储, 通过使用不同偏振的激光将信息记录在同一区域解码后得到的图片, 激发光波长为 750 nm, 图中红色箭头代表入射光的偏振方向; (c)~(f)为多层存储对应的实验结果, 信息层之间的间隔为 4 μm , 图像单个信息点大小为 650 nm \times 650 nm^[15]

Fig. 6 Encoding random hot spots generated by the coupling of gold nanorods. (a), (b) The results of polarization multiplexing. The image is decoded using different polarizations. The wavelength of excitation light is 750 nm and the red arrows in the figure represent the polarization directions of the incident light; (c)~(f) is the experimental results of multilayer storage. The interval between two adjacent layers is 4 μm and the size of a single information unit is 650 nm \times 650 nm^[15]

合适的检测手段即可实现二进制存储编码。这类光存储技术一般为一次性存储, 如果能够实现信息的重复擦写, 那么这种存储技术将更具有市场吸引力。基于 GNR 耦合产生的随机热点来进行信息编码, 在使用低能量记录时, GNR 只需缩短一点点或者只需熔化几根 GNR, 焦斑处 TPL 信号强度就会产生明显的对比度。因此, 这种无序耦合 GNR 体系有望实现多次擦写的复用存储。图 7 为讨论重复擦写过程中一个信息单元内耦合 GNR 所辐射 TPL 的理论模型, 由 10 \times 10 的 GNR 阵列组成。根据在谐振波长下每个 GNR 的双光子荧光强度, 可将 GNR 分成几组, 用不同颜色表示。第一次使用较低能量进行记录时, 吸收最强的一组 GNR(红色部分)会被熔掉。如果这时使用相同能量熔掉其它未写入信息单元中对应的那部分 GNR, 这样即实现了对第一次记录信息的擦除。通过增加记录激光

的能量可以选择性地熔掉第二组 GNR, 实现第二次信息写入, 以此类推。戴峭峰等人在实验上实现了基于无序耦合 GNR 体系的 4 次重复擦写存储, 如图 7 插图所示。但这种方法实现的重复擦写次数是有限制的。在重复存储几次之后大部分 GNR 均会发生形变, 这时为了写入信息就不得不进一步增加写入的激光功率, 如果这个功率已经足以烧毁支撑 GNR 的聚合物材料, 这时也就达到了可擦写存储次数的极限^[15]。

2.3 基于金纳米棒与高杨氏模量玻璃混合材料的长寿命信息存储

与磁存储技术相比, 光存储技术的寿命有较大幅度的提高, 其可达几十年以上。但随着大数据时代的到来, 档案资料等很多数据需要至少上百年的保存时间。这也要求存储媒介即使暴露在高温、高湿以及有

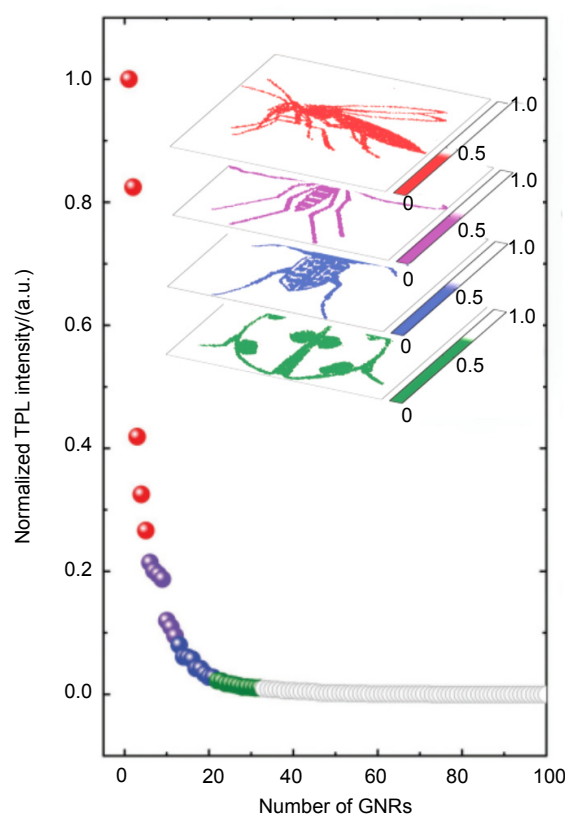


图7 可擦写光存储技术。图为理论计算 10×10 GNR 阵列中每个 GNR 的 TPL 强度分布对应的降序排列，其激发波长为 1000 nm 。他们将 GNR 分成 4 组，分别用不同颜色表示，第一次擦写过程熔掉第一组红色棒，第二次为紫色的棒，以此类推。插图从上到下分别为第一次到第四次记录的信息。图像单个信息点大小为 $650 \text{ nm} \times 650 \text{ nm}$ ^[15]

Fig. 7 Erasable optical storage technology. The figure shows the theoretical calculation of the 10×10 GNR array. The TPL intensity distribution of each GNR is arranged in a descending manner. The wavelength of excitation light is 1000 nm . The GNRs are divided into 4 groups, which are represented by different colors, respectively. The first erasing process melts the first group of GNRs in red. The GNRs in purple can be used for the second write-in. The experimental results are presented in the inset. The size of a single information unit is $650 \text{ nm} \times 650 \text{ nm}$ ^[15]

氧的环境中其存储数据仍不被破坏。高杨氏模量材料可以满足这些要求，比如无机陶瓷材料、石英玻璃、钻石等。但这些高杨氏模量材料的存储容量一般只有 100 GB 左右，很难满足大容量信息存储的需求。玻璃复合材料通常可以保存很长的时间，将其与 GNR 体系结合就可以获得大容量以及长寿命的信息存储，但如何将 GNRs 与玻璃聚合物混合仍是一个大的技术挑战。2018 年 Zhang 等人使用溶胶凝胶方法将玻璃复合材料加热至液态，由于玻璃复合材料的熔点远低于 GNR 熔点，这样可以在避免 GNR 形变的情况下将其混合在玻璃复合材料中，其杨氏模量增加了一到两个数量级，并且可以通过加入无机相变材料来进一步提高稳定性。通过改变飞秒激光的记录能量能改变棒的长度，可以实现多进制存储，并且存储时间可以长达

600 年。存储容量和信息层的厚度与杨氏模量之间的关系如图 8(a)所示，其最大容量可以达到 10 TB 每张光盘。图 8(b)为长寿命数据存储的记录和读取过程，插图对应着数据存储在 0 年， 200 年， 400 年和 600 年后分别读取得到的信息。柱状图为不同时刻信息记录和读取的对比度。由图可见信息在记录 600 年以后的对比度与刚开始记录时非常接近。这种存储技术的存储介质制备简单，为新型光盘的低成本大规模生产铺平了道路^[59]。

光的物理维度复用对提高信息存储容量具有重要作用，增加一个复用维度将提升几倍甚至几十倍的存储容量，可见通过增加复用维度数目提升的信息存储容量非常惊人，而且其对应的信息存储安全性也随之提高，是多维光存储技术的独特之处。

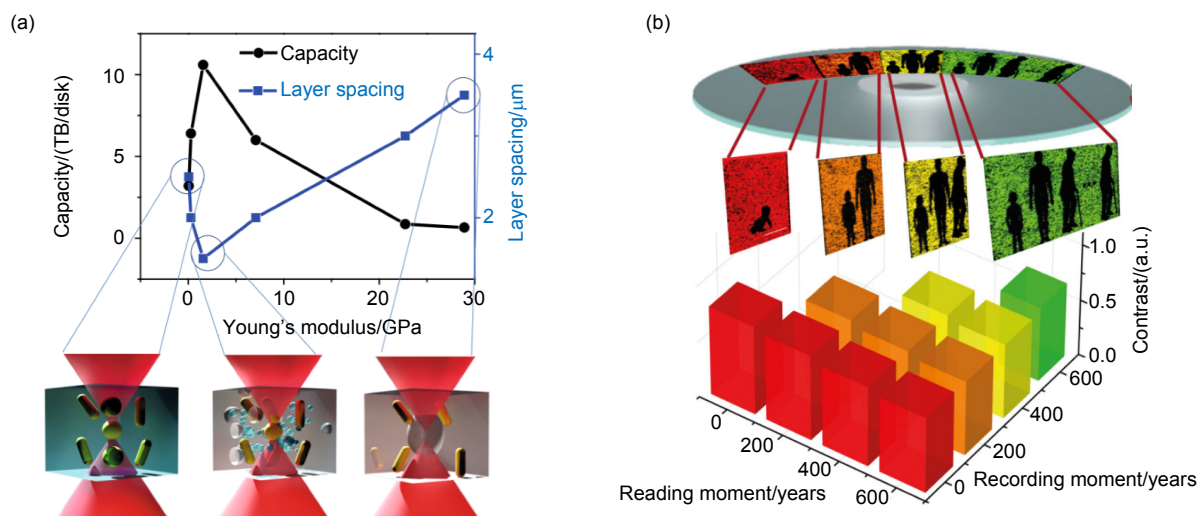


图 8 长寿命光存储技术。(a) 纳米金属颗粒与玻璃混合材料的数据存储容量和层间距与材料杨氏模量的关系；(b) 在不同时刻读取和记录的对比度。插图老化超过 0 年，200 年，400 年和 600 年后读出的荧光图像^[59]
 Fig. 8 Long time optical data storage. (a) Dependence of storage capacity and layer spacing of nano plasma hybrid glass composites on the Young's modulus; (b) Contrast between readout and write-in at different reading moments. The illustrations are fluorescent images read out after aging over 0 years, 200 years, 400 years and 600 years^[59]

3 超分辨光存储

随着光学显微镜的发明，人类逐渐揭开微观世界的面纱，那么光学显微镜究竟能够看到多小的物体？1873 年，德国科学家阿贝尔给出了答案。他提出了衍射极限理论：光是一种电磁波，由于衍射极限的限制，点源的像不是一个理想的点。当两个点靠得很近时，我们看到的是一个模糊的图像。常规光学显微系统的分辨率接近入射光波长的二分之一，光学显微镜的分辨极限在 200 nm 左右。基于这个分辨率对微观世界进行探索远远不够，科学家正不断努力去突破这个极限。STED 光学显微镜通过使用一束甜甜圈光束作抑制光，将高斯光斑周围的荧光分子转换为非辐射态，可以实现 50 nm 左右的空间分辨率。多维光信息存储技术的容量大小也受衍射极限的影响，突破光学衍射极限进行存储也是一种提高光存储容量的有效方法。

2015 年李向平等人结合光激发-抑制技术与多焦点技术，以光聚合物为存储媒介，在 800 nm 波长高斯形状诱导光与 532 nm 波长甜甜圈抑制光的协同作用下实现超分辨存储以及并行读写。图 9(a)为该光存储系统的示意图，两个空间光调制器分别控制激发光和抑制光在物镜聚焦后实现三维多焦点阵列。图 9(b)为多焦点阵列示意图。图 9(c)为实现超分辨读写的示意图。他们在实验上实现了 33 nm×33 nm 的信息单元，单张光盘容量可高达 30 TB，结合多焦点技术，信息

读写的速率可以提高两个数量级。与传统的光存储技术相比，在容量和速率上都有两个数量级的提高^[44]。

4 基于金纳米棒的多进制光存储

常规多维光存储通常基于“0”和“1”二进制存储编码。如果利用多进制编码，这样在相同存储单元数目情况下，存储容量将会得到大幅提高。多进制存储技术不仅可以提高存储的容量而且可以减少存储过程中的能耗。目前已有基于 GNR 的多进制光存储技术的报道。2018 年 Chu 等人利用无序 GNR 耦合产生的随机电磁能量热点实现多进制编码。他们通过控制写入激光的能量来控制每次熔融 GNR 的数目，实现多进制编码。通过优化光存储介质中 GNR 的密度，他们证明了六进制的光信息存储，如图 10 所示。其中图 10(a)~10(e)为用不同浓度 GNR 作为存储介质时读出的图像，图 10(f)~10(j)为对应的信息单元 TPL 强度统计图。当 GNR 浓度较低时($OD=3$)，GNR 间的耦合强度很弱，读取信息的质量较差，图 10(d)所示。在使用高浓度 GNR 存储介质时($OD=24$)，GNR 间横向 SPP 共振的耦合导致共振峰蓝移，其存储效果也比较差，图 10(e)所示。而在合适的 GNR 浓度下($OD=12$)，其多进制存储效果较好，TPL 统计图中的峰均可以明显分辨，有利于减少误码。多进制光存储技术能够在提高容量的同时降低存储介质所占的空间^[46]。

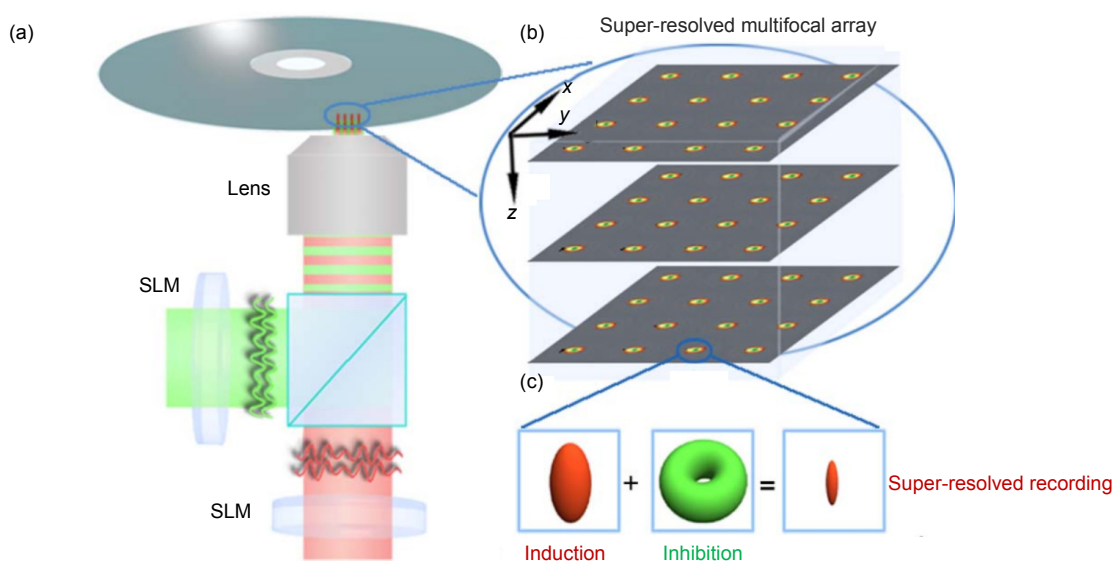


图 9 并行超分辨光存储技术。(a) 存储系统示意图, SLM: 空间光调制器; (b) 超分辨三维焦点空间分布示意图; (c) 超分辨原理示意图^[44]

Fig. 9 Parallel recording of super-resolution optical data storage. (a) Schematic diagram of the storage system, SLM: Spatial light modulator; (b) Schematic diagram of three-dimensional focus distribution; (c) Schematic diagram of the super resolution principle^[44]

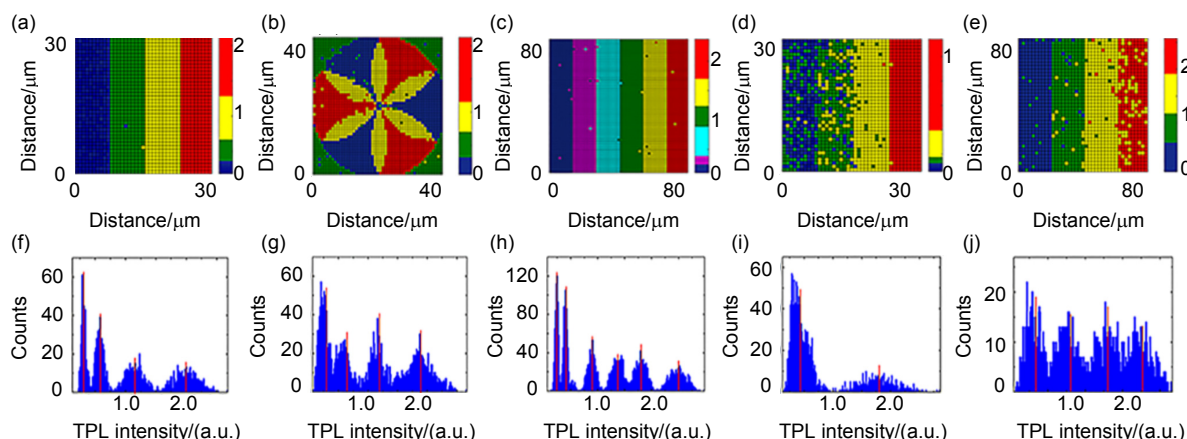


图 10 多进制光存储。(a)~(c) GNR 浓度为 $OD=12$ 时, 解码得到的图像, 不同颜色表示 TPL 强度大小, 从而代表不同的进制, 最大为 6 进制; (d)和(e) 样品浓度分别为 $OD=3$ 和 $OD=24$ 时所读取的存储信息; (f)~(h) 对应图像(a)~(c)存储单元 TPL 强度的统计图; (i)和(j) 对应图像(d), (e)的统计图^[46]

Fig. 10 Multi-level optical data storage. (a)~(c) The experimental results when the OD of GNR solution is 12. The above figures are the readout information. Different colors indicate the different TPL intensities, which represent different levels in which the maximum is the sixth level; (d) and (e) the readout results when the ODs of GNR solutions are 3 and 24, respectively; (f)~(h) the corresponding statistical diagrams of the TPL intensities of all information units in (a)~(c); (i) and (j) the corresponding statistical charts in (d), (e)^[46]

5 总结和展望

本文围绕着激光与 GNR 等发光材料间的相互作用, 介绍了通过物理维度的复用、超分辨存储以及多进制编码等方法提高多维光存储信息容量的各种技术。同时也介绍了结合复用物理维度的特性和光存储

介质的材料特性来增强光存储信息的安全性、延长存储时间和提升读写速率的方法。

这种多维光信息存储技术未来存在几种发展方向。从光存储材料的角度出发, 寻找一种相对于 GNR 光存储介质制备工艺更简单、成本更低廉以及可以使用更低能量激光进行读写操作的材料将具有更好的实

用化前景。从增加存储容量角度出发,寻找新的复用物理维度是进一步提升五维光存储技术容量的有效方法。纳米材料荧光寿命对应的时间维度是一个可供参考的选择。与此同时,将信息编码与物理维度的复用结合起来,也可以在很大程度上提升多维光存储的容量。图 11 为我们将物理维度的复用与多进制编码结合,实现了基于随机电磁能量热点的五进制光信息复用存储^[60]。结合以上提及的各种优化方法,我们期望多维光存储技术能够成为主流的冷数据存储方式,在减少能耗的情况下安全持久地实现高密度数据存储。

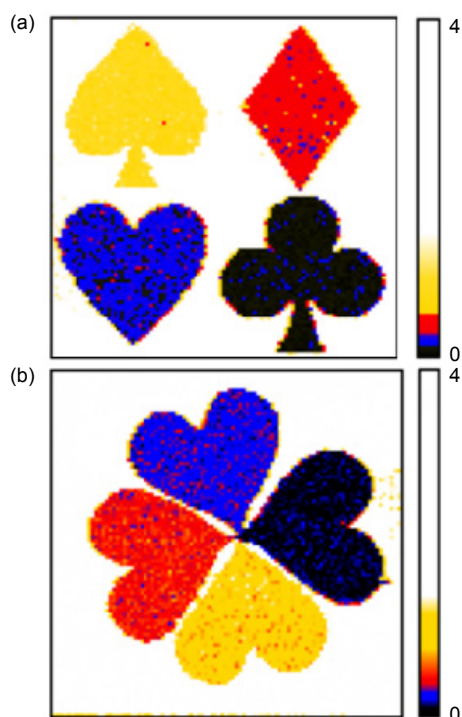


图 11 多进制复用光存储。两个五进制信息记录在同一区域解码后的图像,读出激光分别为(a) 800 nm, 水平偏振; (b) 880 nm, 垂直偏振

Fig. 11 Multi-level multiplexed optical data storage. Two color images are multiplexed storage in the same area. The readout lasers are: (a) 800 nm, horizontal polarization; (b) 880 nm, vertical polarization

参考文献

- [1] Seagate Technology LLC. Data age 2025 – the digitization of the world[EB/OL]. 2018. <https://www.seagate.com/our-story/data-age-2025/>.
- [2] Horimai H, Tan X D. Collinear technology for a holographic versatile disk[J]. *Applied Optics*, 2006, **45**(5): 910–914.
- [3] Tan X D, Lin X, Wu A A, et al. High density collinear holographic data storage system[J]. *Frontiers of Optoelectronics*, 2014, **7**(4): 443–449.
- [4] Lin X, Huang Y, Shimura T, et al. Fast non-interferometric iterative phase retrieval for holographic data storage[J]. *Optics Express*, 2017, **25**(25): 30905–30915.
- [5] Mansuripur M. Effects of high-numerical-aperture focusing on the state of polarization in optical and magneto-optic data storage systems[J]. *Applied Optics*, 1991, **30**(22): 3154–3162.
- [6] Mansuripur M, Zakharian A R, Lesuffleur A, et al. Plasmonic nano-structures for optical data storage[J]. *Optics Express*, 2009, **17**(16): 14001–14014.
- [7] Mansuripur M, Sincerbox G. Principles and techniques of optical data storage[J]. *Proceedings of the IEEE*, 1997, **85**(11): 1780–1796.
- [8] Airy G B. On the diffraction of an object-glass with circular aperture[J]. *Transactions of the Cambridge Philosophical Society*, 1835, **5**: 283–291.
- [9] Gu M, Li X P, Cao Y Y. Optical storage arrays: a perspective for future big data storage[J]. *Light: Science & Applications*, 2014, **3**(5): e177.
- [10] Gu M, Zhang Q M, Lamon S. Nanomaterials for optical data storage[J]. *Nature Reviews Materials*, 2016, **1**(12): 16070.
- [11] Oh W Y, Yun S H, Vakoc B J, et al. High-speed polarization sensitive optical frequency domain imaging with frequency multiplexing[J]. *Optics Express*, 2008, **16**(2): 1096–1103.
- [12] Aiki K, Nakamura M, Umeda J. Frequency multiplexing light source with monolithically integrated distributed-feedback diode lasers[J]. *Applied Physics Letters*, 1976, **29**(8): 506–508.
- [13] Chon J W M, Bullen C, Zijlstra P, et al. Spectral encoding on Gold nanorods doped in a silica sol-gel matrix and its application to high - density optical data storage[J]. *Advanced Functional Materials*, 2007, **17**(6): 875–880.
- [14] 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.
- [15] Dai Q F, Ouyang M, 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.
- [16] Li X P, Lan T H, Tien C H, et al. Three-dimensional orientation-unlimited polarization encryption by a single optically configured vectorial beam[J]. *Nature Communications*, 2012, **3**: 998.
- [17] Taylor A B, Michaux P, Mohsin A S M, et al. Electron-beam lithography of plasmonic nanorod arrays for multilayered optical storage[J]. *Optics Express*, 2014, **22**(11): 13234–13243.
- [18] 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.
- [19] Zheng Y B, Liu H Y, Xiang J, et al. Hot luminescence from gold nanoflowers and its application in high-density optical data storage[J]. *Optics Express*, 2017, **25**(8): 9262–9275.
- [20] Ren H R, Li X P, Gu M. Polarization-multiplexed multifocal arrays by a π -phase-step-modulated azimuthally polarized beam[J]. *Optics Letters*, 2014, **39**(24): 6771–6774.
- [21] Wang Z H, Hu Y S, Xiong X, et al. Encoding and display with stereo split-ring resonator arrays[J]. *Optics Letters*, 2017, **42**(6): 1153–1156.
- [22] Lu G W, Abedin K S, Miyazaki T. All-optical RZ-DPSK WDM to RZ-DQPSK phase multiplexing using four-wave mixing in highly nonlinear fiber[J]. *IEEE Photonics Technology Letters*, 2007, **19**(21): 1699–1701.
- [23] Yun H, Lee S Y, Hong K, et al. Plasmonic cavity-apertures as dynamic pixels for the simultaneous control of colour and intensity[J]. *Nature Communications*, 2015, **6**: 7133.
- [24] Ren H R, Li X P, Zhang Q M, et al. On-chip noninterference

- angular momentum multiplexing of broadband light[J]. *Science*, 2016, **352**(6287): 805–809.
- [25] Mehmood M Q, Mei S T, Hussain S, *et al.* Visible - frequency metasurface for structuring and spatially multiplexing optical vortices[J]. *Advanced Materials*, 2016, **28**(13): 2533–2539.
- [26] Ding Y H, Xu J, Da Ros F, *et al.* On-chip two-mode division multiplexing using tapered directional coupler-based mode multiplexer and demultiplexer[J]. *Optics Express*, 2013, **21**(8): 10376–10382.
- [27] Carpenter J, Wilkinson T D. All optical mode-multiplexing using holography and multimode fiber couplers[J]. *Journal of Lightwave Technology*, 2012, **30**(12): 1978–1984.
- [28] 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**(4–6): 791–794.
- [29] Taylor A B, Kim J, Chon J W M. Detuned surface plasmon resonance scattering of gold nanorods for continuous wave multilayered optical recording and readout[J]. *Optics Express*, 2012, **20**(5): 5069–5081.
- [30] Li X P, Chon J W M, Evans R A, *et al.* Two-photon energy transfer enhanced three-dimensional optical memory in quantum-dot and azo-dye doped polymers[J]. *Applied Physics Letters*, 2008, **92**(6): 063309.
- [31] Li X P, Bullen C, Chon J W M, *et al.* Two-photon-induced three-dimensional optical data storage in CdS quantum-dot doped photopolymer[J]. *Applied Physics Letters*, 2007, **90**(16): 161116.
- [32] Chen H J, Lei S, Li Q, *et al.* Gold nanorods and their plasmonic properties[J]. *Chemical Society Reviews*, 2013, **42**(7): 2679–2724.
- [33] Fang Z Y, Zhu X. Plasmonics in nanostructures[J]. *Advanced Materials*, 2013, **25**(28): 3840–3856.
- [34] Fang Z Y, Fan L R, Lin C F, *et al.* Plasmonic coupling of bow tie antennas with Ag nanowire[J]. *Nano Letters*, 2011, **11**(4): 1676–1680.
- [35] Lin J, Wang D P, Si G Y. Recent progress on plasmonic metasurfaces[J]. *Opto-Electronic Engineering*, 2017, **44**(3): 289–296.
- 林佼, 王大鹏, 司光远. 表面等离子激元超构表面的研究进展[J]. *光电工程*, 2017, **44**(3): 289–296.
- [36] Li X P, Ren H R, Chen X, *et al.* Athermally photoreduced graphene oxides for three-dimensional holographic images[J]. *Nature Communications*, 2015, **6**: 6984.
- [37] Hell S W, Wichmann J. Breaking the diffraction resolution limit by stimulated emission: stimulated-emission-depletion fluorescence microscopy[J]. *Optics Letters*, 1994, **19**(11): 780–782.
- [38] Qin F, Li X P, Hong M H. From super-oscillatory lens to super-critical lens: surpassing the diffraction limit via light field modulation[J]. *Opto-Electronic Engineering*, 2017, **44**(8): 757–771.
- 秦飞, 李向平, 洪明辉. 从超振荡透镜到超临界透镜: 超越衍射极限的光场调制[J]. *光电工程*, 2017, **44**(8): 757–771.
- [39] Gao P, Yao N, Wang C T, *et al.* Enhancing aspect profile of half-pitch 32 nm and 22 nm lithography with plasmonic cavity lens[J]. *Applied Physics Letters*, 2015, **106**(9): 093110.
- [40] Tang D L, Wang C T, Zhao Z Y, *et al.* Ultrabroadband superoscillatory lens composed by plasmonic metasurfaces for subdiffraction light focusing[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2015, **9**(6): 713–719.
- [41] Cao Y Y, Xie F, Zhang P D, *et al.* Dual-beam super-resolution direct laser writing nanofabrication technology[J]. *Opto-Electronic Engineering*, 2017, **44**(12): 1133–1145.
- 曹耀宇, 谢飞, 张鹏达, 等. 双光束超分辨激光直写纳米加工技术[J]. *光电工程*, 2017, **44**(12): 1133–1145.
- [42] Gan Z S, Cao Y Y, Evans R A, *et al.* Three-dimensional deep sub-diffraction optical beam lithography with 9 nm feature size[J]. *Nature Communications*, 2013, **4**: 2061.
- [43] Cao Y Y, Li X P, Gu M. Super-resolution nanofabrication with metal-ion doped hybrid material through an optical dual-beam approach[J]. *Applied Physics Letters*, 2014, **105**(26): 263102.
- [44] Li X P, Cao Y Y, Tian N, *et al.* Multifocal optical nanoscopy for big data recording at 30 TB capacity and gigabits/second data rate[J]. *Optica*, 2015, **2**(6): 567–570.
- [45] Wang Q, Maddock J, Rogers E T F, *et al.* 1.7 Gbit/in.² gray-scale continuous-phase-change femtosecond image storage[J]. *Applied Physics Letters*, 2014, **104**(12): 121105.
- [46] Chu Y H, Xiao H M, Wang G, *et al.* Randomly distributed plasmonic hot spots for multilevel optical storage[J]. *The Journal of Physical Chemistry C*, 2018, **122**(27): 15652–15658.
- [47] Cui Y, Phang I Y, Hegde R S, *et al.* Plasmonic silver nanowire structures for two-dimensional multiple-digit molecular data storage application[J]. *ACS Photonics*, 2014, **1**(7): 631–637.
- [48] Zhou Y, Han S T, Sonar P, *et al.* Nonvolatile multilevel data storage memory device from controlled ambipolar charge trapping mechanism[J]. *Scientific Reports*, 2013, **3**: 2319.
- [49] Lee J S, Kim Y M, Kwon J H, *et al.* Multilevel data storage memory devices based on the controlled capacitive coupling of trapped electrons[J]. *Advanced Materials*, 2011, **23**(18): 2064–2068.
- [50] Zhang C Y, Xu Y, Liu J, *et al.* Lighting up silicon nanoparticles with Mie resonances[J]. *Nature Communications*, 2018, **9**: 2964.
- [51] Feng T H, Xu Y, Zhang W, *et al.* Ideal magnetic dipole scattering[J]. *Physical Review Letters*, 2017, **118**(17): 173901.
- [52] Chen L, Li G C, Liu G Y, *et al.* Sensing the moving direction, position, size, and material type of nanoparticles with the two-photon-induced luminescence of a single gold nanorod[J]. *The Journal of Physical Chemistry C*, 2013, **117**(39): 20146–20153.
- [53] Taylor A B, Siddiquee A M, Chon J W M. Below melting point photothermal reshaping of single gold nanorods driven by surface diffusion[J]. *ACS Nano*, 2014, **8**(12): 12071–12079.
- [54] Anderson P W. Absence of diffusion in certain random lattices[J]. *Physical Review*, 1958, **109**(5): 1492–1505.
- [55] Xu H X, Bjerneld E J, Käll M, *et al.* Spectroscopy of single hemoglobin molecules by surface enhanced Raman scattering[J]. *Physical Review Letters*, 1999, **83**(21): 4357–4360.
- [56] Ghenuche P, Cherukulappurath S, Taminiau T H, *et al.* Spectroscopic mode mapping of resonant plasmon nanoantennas[J]. *Physical Review Letters*, 2008, **101**(11): 116805.
- [57] Viarbitskaya S, Teulle A, Marty R, *et al.* Tailoring and imaging the plasmonic local density of states in crystalline nanoprisms[J]. *Nature Materials*, 2013, **12**(5): 426–432.
- [58] Li J X, Xu Y, Dai Q F, *et al.* Manipulating light-matter interaction in a gold nanorod assembly by plasmonic coupling[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2016, **10**(5): 826–834.
- [59] Zhang Q M, Xia Z L, Cheng Y B, *et al.* High-capacity optical long data memory based on enhanced Young's modulus in nanoplasmonic hybrid glass composites[J]. *Nature Communications*, 2018, **9**: 1183.
- [60] Ouyang X, Xu Y, Feng Z W, *et al.* Polychromatic and porized multilevel optical data storage[J]. *Nanoscale*, 2019, **11**(5): 2447–2452.

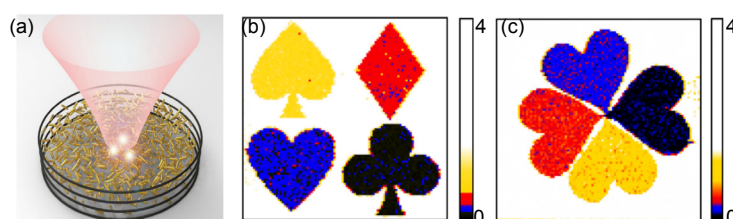
Encoding disorder gold nanorods for multi-dimensional optical data storage

Ouyang Xu¹, Xu Yi^{1*}, Xian Mingcong¹, Cao Yaoyu², Dai Qiaofeng³,
Li Xiangping², Lan Sheng³

¹Department of Electronic Engineering, College of Information Science and Technology, Jinan University, Guangzhou, Guangdong 510632, China;

²Guangdong Provincial Key Laboratory of Optical Fiber Sensing and Communications, Institute of Photonics Technology, Jinan University, Guangzhou, Guangdong 510632, China;

³Guangdong Provincial Key Laboratory of Nanophotonic Functional Materials and Devices, School of Information and Optoelectronic Science and Engineering, South China Normal University, Guangzhou, Guangdong 510631, China



(a) Schematics showing hot spots created in disorder gold nanorods; (b), (c) Five-level data multiplexing optical data storage

Overview: The digital data created by human being grows exponentially in time. Conventional magnetic storage technologies are difficult to meet this challenge. It means that new storage technologies with higher capacity, higher security and longer storage time should be developed to meet such challenge in information era. With the invention of lasers and the rapid development of nanotechnology, optical data storage technology based on light-matter interaction was shown to be a potential solution to this end. However, commercial optical data storage technologies are currently difficult to meet the increasing requirement for big data storage. Researchers are going to explore new means to further increase storage capacity to meet the growing requirements for massive data storage. For example, the capacities of multi-dimensional optical data storage, super-resolution optical data storage and multi-level optical data storage technologies were demonstrated to be much larger than traditional optical storage technologies. Herein, we review the recent progresses of multi-dimensional optical data storage, super-resolution optical data storage and multi-level optical data storage technology, with the focus on multi-dimensional optical storage technology. The gold nanorod (GNR) shows unique properties of a longitudinal surface plasmon resonance. By using the wavelength and polarization dependent responses of GNRs, five-dimensional (the wavelength and polarization of light and the three spatial dimensions) optical data storage has been demonstrated with TB scale storage capacity for the same volume of a DVD disc. In order to increase the number of information channels in the focused spot volume for this kind of optical storage technology, the intuitive approach is to increase the number of GNRs per unit volume, which inevitably increase the coupling strength among GNRs. Therefore, hot spots will be formed in the small gaps among GNRs. As a result, rather than using the response of a single GNR, the polarization and wavelength sensitivity of random hot spots in a volume GNR assembly can be used to encoded information and realize multi-dimensional data storage. At the same time, the plasmonic coupling among GNRs can also significantly enhance linear absorption and two-photon induced luminescence of the GNRs. As a result, five-dimensional optical data storage by encoding random hot spots of a volume GNR can be realized by using an ultralow energy. This technology improves significantly both the quality and capacity of optical data storage. We also provide outlooks for how to further increase the capacity of the five dimensional optical data storage and our future prospective of this technology.

Citation: Ouyang X, Xu Y, Xian M C, *et al.* Encoding disorder gold nanorods for multi-dimensional optical data storage [J]. *Opto-Electronic Engineering*, 2019, 46(3): 180584

Supported by National Key R&D Program of China (YS2018YFB110012), National Natural Science Foundation of China (NSFC) (11674130, 91750110 and 61522504), Guangdong Provincial Innovation and Entrepreneurship Project (2016ZT06D081), the Natural Science Foundation of Guangdong Province, China (2016A030306016 and 2016TQ03X981), and the Pearl River Nova Program of Guangzhou (201806010040)

* E-mail: yi.xu@osamember.org