

# 飞秒激光相干场诱导材料功能微结构<sup>\*</sup>

赵全忠<sup>†</sup> 邱建荣

(中国科学院上海光学精密机械研究所光子技术国际合作实验室 上海 201800)

**摘要** 飞秒激光在整个脉冲宽度内具有极好的相干性,因而当从同一光束分出的两束或两束以上的光束时间与空间上实现相互叠加时将会形成强度周期性调制的电磁场.这种周期调制的电磁场与材料产生相互作用,能诱导出相应的周期微结构.最近通过两束或两束以上飞秒激光干涉诱导功能微结构得到了广泛研究.文章综合了国内外飞秒激光研究小组在干涉诱导微结构方面的一些最新成果以及作者在这方面开展的工作,对飞秒激光干涉技术的原理及其在诱导微结构方面的应用进行了介绍.

**关键词** 飞秒激光,干涉,功能微结构

## Femtosecond laser induced functional microstructures

ZHAO Quan-Zhong<sup>†</sup> QIU Jian-Rong

(Photon Craft Project Laboratory, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

**Abstract** Femtosecond (fs) laser pulses have good coherence over the whole pulse duration. A periodically modulated light intensity distribution can be generated when two or more beams split from one beam overlap with each other. A periodically modulated microstructure can thus be obtained if the modulated light intensity distribution is transferred to a photoreactive material. This has recently been extensively investigated for the fabrication of functional microstructures by fs laser interference of two or more beams. We present some state-of-the-art fs laser interference induced functional microstructures and some of our research results. The principle of fs laser interference and some applications are also discussed.

**Keywords** femtosecond laser, interference, functional microstructure

## 1 引言

众所周知,干涉、衍射与偏振是波动光学的三大主题.自托马斯·杨(Thomas Yang)的双缝干涉实验以来,干涉现象得到了广泛的应用.近年来,激光干涉光刻技术由于能产生亚微米至纳米尺寸的周期性阵列图形,无须采用掩模,并且光学系统简单,成本低廉,因而得到人们的广泛关注<sup>[1-4]</sup>.在传统的干涉光刻中,将连续或纳秒激光器产生的激光进行分束,使之干涉并对光致抗蚀剂(光刻胶)进行曝光,然后通过显影、定影、刻蚀工艺等,可形成需要的周期微结构.与之相比,飞秒激光干涉不需要光刻胶,可以

直接在材料上诱导微结构.此外,利用飞秒激光与透明材料相互作用的非线性光学效应,将干涉的飞秒激光聚焦到材料内部,还可以在材料内部诱导周期微结构.在本文中,我们将介绍一种极端情况下的干涉现象——飞秒激光干涉,以及飞秒激光干涉技术在诱导周期微结构方面的应用.

飞秒激光超短脉冲和超高强度的特性,使其在诱导、制备功能显微结构方面得到广泛的应用<sup>[5-8]</sup>.

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金杰出青年基金(批准号 50125208),上海市科委(批准号 04dz05112),中国博士后科学基金,王宽诚教育基金资助项目

2004-12-06 收到初稿,2005-01-31 修回

<sup>†</sup> 通讯联系人. Email: zqz@mail.siom.ac.cn

飞秒脉冲属于傅里叶变换极限脉冲. 飞秒激光给出测不准原理中时间  $\Delta t$  和能量  $\Delta\omega$  的乘积最小也即相干性最好的激光, 它在整个脉冲宽度内具有极好的相干性, 因而当从同一光束分出的两束或两束以上的光束实现时间与空间上的相互叠加时, 将会产生强度周期性调制的电磁场. 这种周期调制的电磁场与材料产生相互作用, 能诱导出相关的周期微结构. 最近用两束或两束以上的飞秒激光干涉技术诱导功能微结构得到了广泛研究<sup>[9-29]</sup>.

本文综合了国内外飞秒激光研究小组的在飞秒激光干涉诱导微结构方面的一些最新成果以及我们在这方面开展的工作, 对飞秒激光干涉技术诱导功能微结构及其应用进行介绍.

文中把两束或多束飞秒激光的干涉, 称之为“线性飞秒激光相干”, 把飞秒激光与飞秒激光诱导的等离子体的相干称之为“非线性飞秒激光相干”.

## 2 飞秒激光脉冲干涉的实现

众所周知, 脉冲时间越短, 相干区域越小. 对于两束夹角为  $\theta$  的光束, 叠加区的尺寸由公式  $L = c\tau (\sin\theta/2)^{-1}$  给出<sup>[9]</sup>, 这里  $c$  为光在媒质中的传播速度,  $\tau$  为脉冲持续时间. 例如, 对于脉冲宽度为 120fs、夹角为  $30^\circ$  的两束光束, 其相干长度约为  $140\mu\text{m}$ . 由两束光产生的干涉条纹的数量与两光束的夹角是独立的, 对于一定的脉宽, 由公式  $2c\tau/\lambda$  决定 ( $\lambda$  为激光波长). 例如, 脉冲宽度为 120fs, 波长为 800nm 的两束激光相干, 大约可以产生 90 个干涉条纹.

目前有两种飞秒激光干涉光路的搭建方法, 包括分束镜 (mirror beam splitter, MBS) 分光 and 衍射光栅 (diffractive beam splitter, DBS) 分光, 如图 1 所示. 使用分束镜分光的情形如图 1(a) 所示, 在用分束镜进行分光后, 两束光再通过两面透镜 (lens) 聚焦到样品上. 为了实现两束飞秒激光的干涉, 必须使得两束光在时间和空间上严格叠加, 这要通过光学延迟 (optical delay) 以及观测在焦点处通过非线性光学晶体产生的二次 (或三次) 谐波或在空气中产生的三次谐波来实现<sup>[10]</sup>. 这种方法可以实现单脉冲飞秒激光相干, 但当需要多束 (三束或以上) 飞秒激光相干时, 则增加了光路的复杂性并且难于调节. 为实现多束飞秒激光相干, 采用衍射光栅分光可以克服利用分束镜分光的不足, 如图 1(b) 所示, 首先使用衍射光栅将飞秒激光分成几束, 然后通过一个共焦成像系统将透过孔径阵列 (aperture array) 几束光聚焦到样品上, 这样不用调节光程就能取得时间上的相干. 采用衍射光栅分光与采用分束镜分光的本质差别在于: 从衍射光栅出射的各级衍射光束的波前与入射光束的波前互相平行, 这样使得采用衍射光栅分束后干涉区域的尺寸最大可以和入射光束相当. 图 2 形象地揭示了这两种相干的差别.

在图 2(a) 中, 由于两束光平面波前不平行, 因此在两束光的相交区域相干叠加的长度为  $W = c\tau / \sin(\theta/2)$ . 而在图 2(b) 中, 由于两束平面波的波前互相平行 (均与入射到衍射光栅光束的波前平行), 因此两束光的叠加长度可以与入射光 (入射到衍射光栅) 的直径相当.

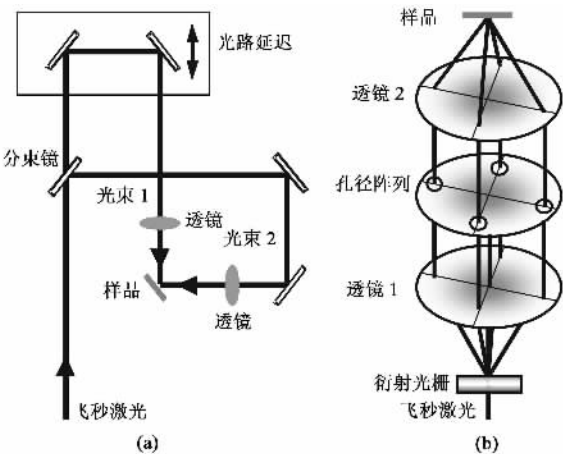


图 1 实现飞秒激光干涉的光路 (a) 使用分束镜 (MBS) 进行分光 (b) 使用衍射光栅 (DBS) 进行分光

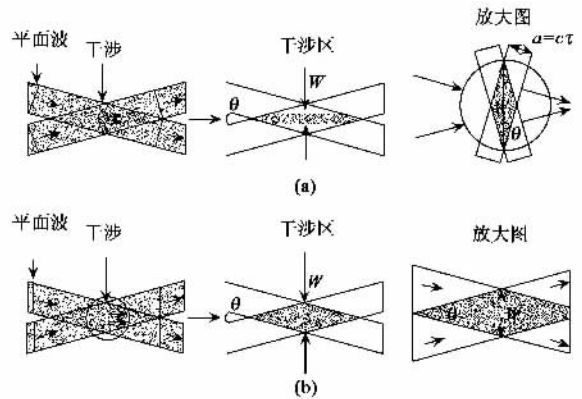


图 2 (a) 分束镜 (MBS) 分光的相干长度; (b) 衍射光栅 (DBS) 共焦成像系统分光的相干长度

### 3 飞秒激光干涉场在诱导微结构方面的一些应用

为了便于分类,按照第二部分介绍的两种光路诱导的微结构来介绍飞秒激光干涉技术的一些应用,其中把由分束镜(MBS)分光光路诱导的微结构称为两束飞秒激光干涉诱导的微结构;把由衍射光栅(DBS)分光光路诱导的微结构称为多束飞秒激光干涉诱导的微结构。

#### 3.1 两束飞秒激光干涉诱导的微结构

飞秒激光干涉技术最直接的应用就是诱导表面光栅,日本 Hosono 小组在这方面进行了较多的工作<sup>[10-15]</sup>。该小组利用图 1(a)所示的光路在石英玻璃、蓝宝石(sapphire)、石英薄膜(沉积在硅片上)以及一些电介质上诱导了表面浮雕光栅。图 3 是用两束飞秒激光干涉在石英玻璃上获得的表面浮雕光栅结构,通过调整两干涉光束之间的夹角,获得了不同周期的光栅。另外,通过两次曝光,即先诱导出图 3 中的光栅,然后将样品旋转 90°再一次曝光,则可以得到如图 4 所示的阵列叠加光栅结构。

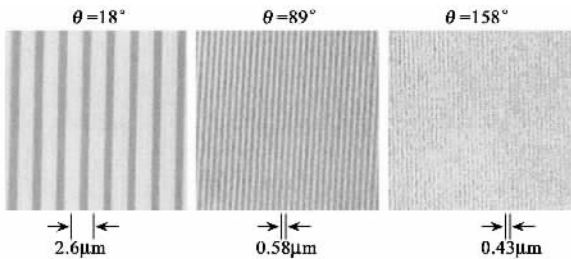


图 3 在不同夹角条件下,两束飞秒激光干涉辐照在石英玻璃上获得的表面浮雕光栅结构

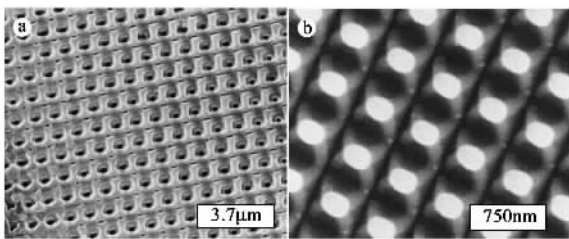


图 4 两束飞秒激光干涉二次曝光在石英玻璃上得到的阵列光栅结构

最近我们课题组利用相近的方法在贵金属掺杂玻璃上诱导出了含有贵金属纳米粒子的表面浮雕光栅<sup>[16]</sup>。首先利用两束飞秒激光干涉辐照金离子掺杂玻璃,然后将激光辐照后的样品进行 550℃、30min 热处理,则在干涉激光束辐照区域形成由金纳米粒

子调制构成的光栅结构。

另外, Kaneko 等通过两束光束飞秒激光辐照金属离子掺杂的聚合物,利用双光子聚合同样在聚合物表面诱导出了含有金属纳米粒子的光栅结构<sup>[17]</sup>。

相对于诱导表面光栅,两束飞秒激光干涉可以在材料内部诱导出体光栅。Si 等<sup>[18,19]</sup>利用两束飞秒激光干涉在聚甲基丙烯酸甲酯(PMMA)聚合物以及有机无机材料中诱导了体光栅结构,其中在 PMMA 中诱导的体光栅其一级布拉格衍射效率可以达到 90%。图 5 为 Si 等在 PMMA 表面及内部同时诱导出的表面浮雕光栅及体光栅。

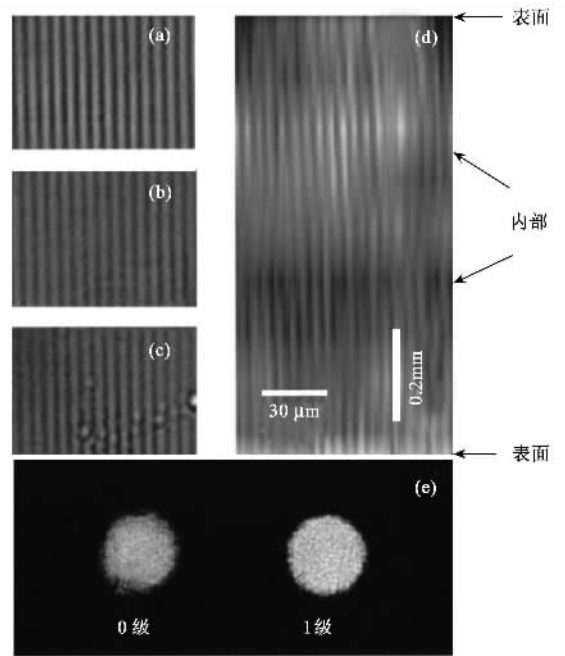


图 5 (a)表面处诱导的光栅 (b)表面以下 0.4 mm 处的光栅结构 (c)样品底部的光栅结构 (d)光栅剖面图 (e)光栅衍射图

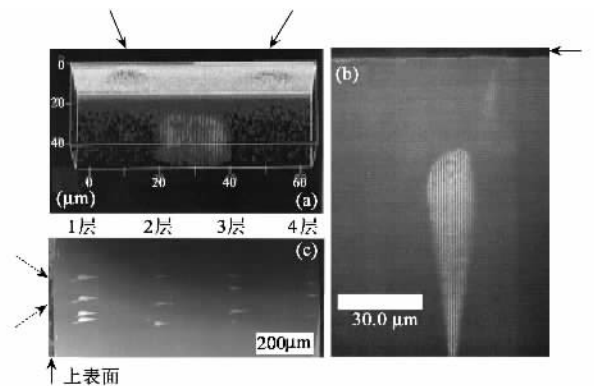


图 6 (a)利用啁啾脉冲干涉在石英玻璃内部诱导的光栅结构; (b)光栅剖面图(1% HF 刻蚀后,光栅可见) (c)石英玻璃内部诱导的四层光栅的剖面图

相对于在非光敏玻璃表面诱导表面光栅,在非光敏玻璃内部诱导体光栅具有较大的困难, Kawamura 等认为,可能是由于以下两个原因<sup>[20]</sup>:首先,强激光脉冲与材料的非线性相互作用会破坏相干过程;其次,可能是自由载流子的产生提高了光吸收,因为由激光辐照引起自由载流子或等离子体引起的吸收带的频率与自由载流子的平方根成正比,这意味着如果激光功率足以产生自由载流子时,在红外区的光吸收系数提高了,而自由载流子的弛豫时间与激光脉冲的时间相当.因此如果将飞秒脉冲展宽,将有可能在材料内部制备出体光栅. Kawamura 等<sup>[20]</sup>利用啁啾脉冲放大(CPA)技术将飞秒脉冲展宽到 500fs,通过两束飞秒激光干涉在石英玻璃内部诱导出了体光栅结构.图 6 为他们利用啁啾脉冲干涉在石英玻璃内部诱导的光栅结构,而且通过飞秒激光在样品内的移动,可以诱导出多层光栅结构.

最近, Kawamura 等<sup>[21]</sup>演示了利用两束干涉的飞秒激光在氟化锂(LiF)晶体内部写入一维光栅阵列,从而获得分布反馈(DFB)色心激光输出的实验.他们利用脉宽达到 510nm 的干涉飞秒激光,在 LiF 晶体内部写入长达 10mm、周期为 510nm 的光栅阵列,这里光栅的周期为 510nm 是为了与 LiF 中 F<sub>2</sub> 色心实现在 710nm 波长的分布反馈振荡的理论值一致.飞秒激光写入光栅后,再利用 X 射线辐照,以提高 F<sub>2</sub> 色心的浓度.利用波长 450nm 的激光抽运,获得了中心波长为 707nm、线宽小于 1nm 的分布反馈激光振荡.

Li 等<sup>[22]</sup>利用没有展宽的飞秒脉冲同样在非光敏玻璃中诱导了多层光栅结构,这与 Kawamura 等的分析不一致.相关原因尚需进一步探讨.

### 3.2 多束飞秒激光干涉诱导的微结构

相对于两束飞秒激光干涉,一次曝光诱导的一维结构以及二次曝光诱导的二维结构,利用衍射光栅分光的多束飞秒激光干涉技术可以直接一次性诱导二维到三维的周期结构.

我们利用三到五束飞秒激光干涉,在硅片、金属以及光敏玻璃等材料上诱导二维、三维的周期微结构.图 7 为我们利用五束飞秒激光干涉在硅片上诱导的周期结构及其衍射图<sup>[23]</sup>.通过五束飞秒激光干涉一步曝光,可以诱导直径大约为 300 $\mu\text{m}$  的斑点结构[图 7(a)],通过连续扫描硅片,这些斑点结构将连成一条直线.图 7(b)是斑点内结构扫描电镜图,

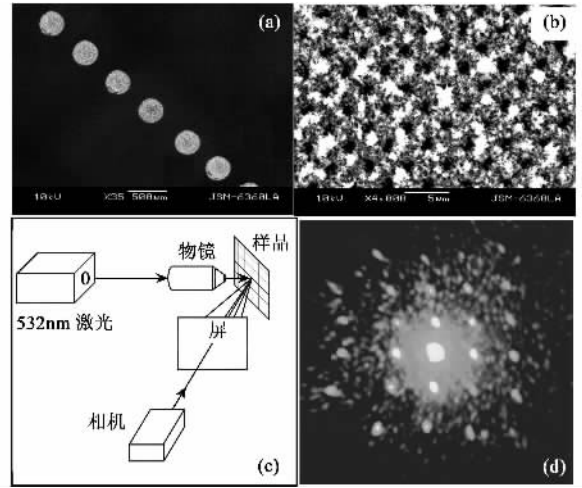


图 7 五束飞秒激光干涉在硅片表面诱导的周期结构 (a)干涉斑阵列;(b)(c)衍射检测装置(d)衍射图

可以看到周期的阵列孔出现在硅片表面.这一周期结构可以作为衍射分束器,将一 532nm 的激光耦合到该周期结构中,可以得到图 7(d)所示的衍射图.

Kondo 等<sup>[24,25]</sup>利用三束、四束飞秒激光干涉辐照光刻胶制备了二维光子晶体结构.图 8 为制备的周期结构,其中(a),(b),(c)为四束飞秒激光干涉,干涉角分别为 10.8°,21.9°,33.6°时诱导的结构(d)为三束飞秒激光干涉,干涉角为 33.6°时诱导的结构(e)为四束飞秒激光干涉,干涉角为 21.9°时诱导的结构剖面图.

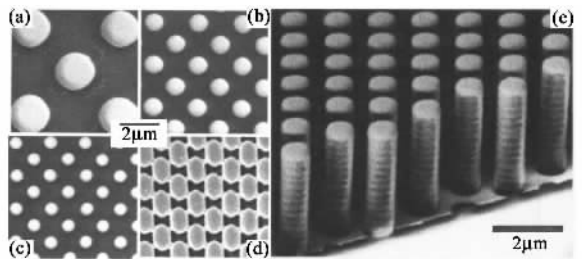


图 8 多束飞秒激光干涉在光刻胶上诱导的周期微结构

Nakata 等<sup>[26]</sup>利用四束飞秒激光干涉辐照金薄膜,通过提高能量密度,研究了阵列结构的演变过程,如图 9 所示.首先当用能量密度为 77mJ/cm<sup>2</sup> 的激光辐照时,在薄膜表面形成了阵列的微凸起(bump)结构[见图 9(a)];随着能量密度增加到 89mJ/cm<sup>2</sup> 时,凸起的高度增加[见图 9(b)];当能量密度增加到 97mJ/cm<sup>2</sup> 时,在凸起上形成了珠粒状结构(bead on bump)[见图 9(c)];继续增加能量密度到 110mJ/cm<sup>2</sup> 时,结构转变为阵列孔中的珠粒状结构(standing bead on hole)[见图 9(d)];最后,当

能量密度增至  $114\text{mJ}/\text{cm}^2$  时,完全形成了阵列孔结构[见图9(e)].

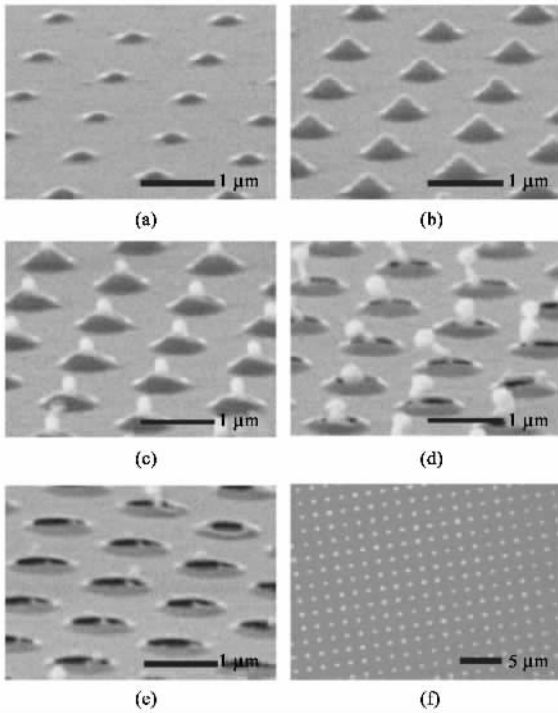


图9 四束飞秒激光干涉在金膜上诱导周期结构的演变 (a)~(e)微结构演变过程 (f)图(c)的俯视图

最近,我们利用多束飞秒激光干涉技术,并结合激光图形传输技术,成功地将周期结构从一个基体复制到另一个基体.图10是实验原理图以及制备的结构.首先,将镀有金属薄膜基体(支撑基体)与另一透明基体(接受基体)互相接触,然后将多束干涉的飞秒激光从接受基体一方(或支撑一方)照射金属薄膜.曝光一定时间后,将支撑基体与接受基体分离,则在接受基体上沉积形成了周期的金属薄膜微结构,同时在支撑基体的金属薄膜上形成了与接受基体上正负相反的周期微结构,如图10(a)(b)所示.

将波长为  $532\text{nm}$  的激光通过聚焦物镜耦合进在支撑基体和接受基体上诱导的结构,得到了如图11所示的衍射图.飞秒激光干涉传输技术有望在制备衍射光学元件、微电子封装中布置焊点阵列等领域得到应用.

#### 4 结束语与展望

本文综述了飞秒激光干涉技术及其在诱导周期功能微结构方面的一些应用,飞秒激光干涉技术具有的无需掩模,无光刻胶,能够聚焦到任何即使是没有光敏性的透明材料的表面与内部形成周期性功能

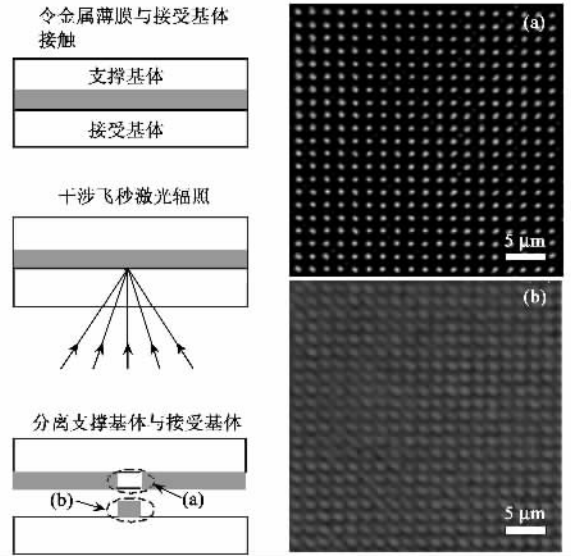


图10 飞秒激光干涉传输周期微结构 左图从上到下为实验过程;右图(a)为金属薄膜上诱导的周期结构;右图(b)为传输的周期结构

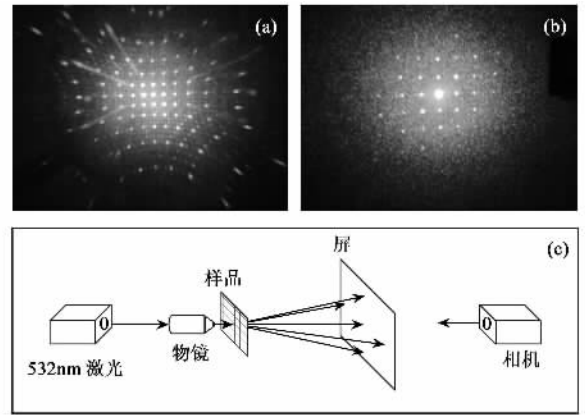


图11 飞秒激光干涉传输周期微结构衍射图 (a)和(b)分别为支撑基体与接受基体上周期结构的衍射图 (c)为探测衍射的实验装置

微结构,以及具有单步、高效、周期可控等特点,使其在诱导周期性功能微结构方面具有得天独厚的优势.飞秒激光具有超快与超强的特点,除了能实现热效应可忽略的超精细微结构的形成外,最近还发现了基于飞秒激光与飞秒激光诱导的等离子体非线性相干所产生的偏振依赖的纳米周期结构等<sup>[30]</sup>.我们认为今后新的思路、新的现象、新的应用将不断涌现,飞秒激光及其干涉技术必将对科学与技术的发展起到极大的推动作用.

#### 参 考 文 献

[ 1 ] Zaidi S H, Brueck S R J. J. Vac. Sci. Technol. B, 1993, 11 : 658  
 [ 2 ] Choi J O, Akinwande A I, Smith H I. J. Vac. Sci. Technol. B, 2001, 19 : 900

- [ 3 ] Pati G S , Heilmann R K , Konkola P T *et al.* J. Vac. Sci. Technol. B , 2002 , 20 : 2617
- [ 4 ] Solak H H , David C. J. Vac. Sci. Technol. B , 2003 , 21 : 2883
- [ 5 ] Glezer E N , Milosavljevic M , Huang L *et al.* Opt. Lett. , 1996 , 21 : 2023
- [ 6 ] Sun H , Xu Y , Juodkakis S *et al.* Opt. Lett. , 2001 , 26 : 325
- [ 7 ] Miura K , Qiu J , Inouye H *et al.* Appl. Phys. Lett. , 1997 , 71 : 3329
- [ 8 ] Qiu J , Jiang X , Zhu C *et al.* Angew. Chem. Int. Ed. , 2004 , 43 : 2230
- [ 9 ] Maznev A A , Crimmins T F , Nelson K A. Opt. Lett. , 1998 , 23 : 1378
- [ 10 ] Kawamura K , Ito N , Sarukura N *et al.* Rev. of Sci. Instrum. , 2002 , 73 : 1711
- [ 11 ] Kawamura K , Ogawa T , Sarukura N *et al.* Appl. Phys. B , 2000 , 71 : 119
- [ 12 ] Kawamura K , Sarukura N , Hirano M *et al.* Appl. Phys. Lett. , 2001 , 78 : 1038
- [ 13 ] Kawamura K , Sarukura N , Hirano M *et al.* Appl. Phys. Lett. , 2001 , 79 : 1228
- [ 14 ] Hirano M , Kawamura K , Hosono H. Appl. Surf. Sci. , 2002 , 197—198 : 688
- [ 15 ] Hosono H , Kawamura K , Matsuishi S *et al.* Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B , 2002 , 191 : 89
- [ 16 ] Qu S , Qiu J , Zhao C *et al.* Appl. Phys. Lett. , 2004 , 84 : 2046
- [ 17 ] Kaneko K , Sun H , Duan X *et al.* Appl. Phys. Lett. , 2003 , 83 : 1426
- [ 18 ] Si J , Qiu J , Zhai J *et al.* Appl. Phys. Lett. , 2002 , 80 : 359
- [ 19 ] Qian G , Guo J , Wang M *et al.* Appl. Phys. Lett. , 2003 , 83 : 2327
- [ 20 ] Kawamura K , Hirano M , Kamiya T *et al.* Appl. Phys. Lett. , 2002 , 81 : 1137
- [ 21 ] Kawamura K , Hirano M , Kurobori T *et al.* Appl. Phys. Lett. , 2004 , 84 : 311
- [ 22 ] Li Y , Watanabe W , Yamada K *et al.* Appl. Phys. Lett. , 2002 , 80 : 1508
- [ 23 ] Zhao Q Z , Qiu J R , Jiang X W *et al.* Appl. Surf. Sci. , 2005 , 241 : 416
- [ 24 ] Kondo T , Matsuo S , Juodkakis S *et al.* Appl. Phys. Lett. , 2003 , 82 : 2758
- [ 25 ] Kondo T , Matsuo S , Juodkakis S *et al.* Appl. Phys. Lett. , 2001 , 79 : 725
- [ 26 ] Nakata Y , Okada T , Maeda M. Jpn. J. Appl. Phys. , 2003 , 42 : L 1452
- [ 27 ] Nakata Y , Okada T , Maeda M. Appl. Phys. Lett. , 2002 , 81 : 4239
- [ 28 ] Nakata Y , Okada T , Maeda M. Appl. Phys. A , 2003 , 77 : 399
- [ 29 ] Qu S L , Zhao C J , Zhao Q Z *et al.* Opt. Lett. , 2004 , 29 : 2058
- [ 30 ] Shimotsuma Y , Kazansky P , Qiu J *et al.* Phys. Rev. Lett. , 2003 , 91 : 247405

**BSOE** 北京晨辉日升光电技术有限公司  
 BEIJING SUNRISE OPTOELECTRONICS CO., LTD.  
 ——专业激光及光电产品代理商

**德国 Radiant Dyes 公司**

**连续可调谐环型腔激光器**

调谐范围: 570-610nm (R6G, 可选其它染料), 700-970nm (Ti:Sa);  
 线宽: 1MHz; 频率漂移: 100MHz/小时; 扫描范围: 30GHz;  
 模式: TEM<sub>00</sub>。

**驻波染料激光器**

调谐范围 560-650nm (可选其它染料), 线宽: <200GHz (单双折射滤光片), <40GHz (多双折射滤光片)。

**荷兰 Avantes 公司**

**AvaSpec 系列微型光纤光谱仪**

波长范围 200nm-1100nm-2200nm, 分辨率 0.04-20nm, 还有多种光源、光纤探头及附件, 是高性价比的在线检测和科学分析用微型光谱仪。可应用于颜色测量、吸收率测量、发光测量、LED 测量、薄膜厚度测量、镀膜过程监控、氧含量测量、宝石成分检测、喇曼光谱、无损血液成分分析、颜色混合及匹配等领域。



欲了解我公司产品详细信息, 请参阅我公司网站: [www.bjlaser.com](http://www.bjlaser.com)

公司地址: 中国北京市朝阳区望京新城 A5 区 422 楼 806 室 邮编: 100102

电话: 010-84718152

传真: 010-64740680

电子邮件: [zzw512@vip.sina.com](mailto:zzw512@vip.sina.com)