

双螺旋微结构的双光子聚合制备

刘力谱, 张世杰, 杨 宏, 龚旗煌, 李 焱

北京大学物理学院现代光学研究所, 北京 100871

摘要 通过拉盖尔-高斯(LG)模式光束的等权重线性叠加,制备了焦斑形貌为双螺旋的光束。选择模式面内斜率为 3 的直线上的 5 个模式进行叠加,增加了双螺旋焦斑的螺旋圈数,增强了手性并增加了谱宽,但是同时旁瓣光较强,双光子聚合过程中双螺旋的两个主瓣会发生粘连。提出的紧聚焦下的双高斯函数和阶跃函数相结合的优化方法,可明显抑制旁瓣光并制备出纯相位板。将符合要求的纯相位板加载到空间光调制器中,通过单次曝光聚合,最终得到了高螺旋圈数且无粘连的双螺旋微结构。

关键词 激光制造; 微纳制备; 双螺旋微结构; 双光子聚合; 纯相位板

中图分类号 O436

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201744.0102006

Fabrication of Double-Helix Microstructures by Two-Photon Polymerization

Liu Lipu, Zhang Shijie, Yang Hong, Gong Qihuang, Li Yan

Institute of Modern Optics, School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China

Abstract Beams with double-helix shaped focal spots are obtained by equally weighted linear superposition of Laguerre-Gauss(LG) beams. Five modes along the line with a slope of 3 in the modal plane are chosen for superposition, which increases the number of spirals in the double-helix focal spot, enhances the chirality, and broadens spectral bandwidth. However, side lobes simultaneously enhance, which results in severe adhesion of two main lobes during the process of two-photon polymerization. One optimization algorithm with the combination of double-Gaussian function and step function under the tight focusing condition is proposed here which can obviously suppress the side lobes and realize a phase-only mask. This phase-only mask is loaded on the spatial light modulator and a double-helix microstructure with both non-adhesion and more spirals is finally fabricated with a single exposure.

Key words laser manufacturing; micro-nano fabrication; double-helix microstructures; two-photon polymerization; phase-only mask

OCIS codes 140.3390; 220.4000; 220.4241; 190.4180

1 引 言

螺旋超材料是一种由螺旋结构单元周期性排列而成的人工手性材料。相比于传统的利用起偏器和 1/4 波片组合而成的圆起偏器,螺旋超材料具有工作范围宽和手性强等优点^[1]。由于其结构单元的特殊性,螺旋超材料超出了电子束刻蚀(EBL)、聚焦离子束(FIB)刻蚀等传统二维加工方法的加工范围^[2-3]。目前主要通过激光直写(DLW)^[1,4-6]、聚焦离子束诱导沉积(FIBID)^[7]、掠角沉积(GLAD)^[8]等方法来实现螺旋超材料的加工。FIBID 和 GLAD 的实现方法复杂,价格昂贵。DLW 方法具有制备成本低、加工过程简单、制备出的材料结构形貌灵活等优点,广泛应用于螺旋超材料的制备,但是这一方法的制备过程耗时长。因此需要发展

收稿日期: 2016-08-29; 收到修改稿日期: 2016-09-20

基金项目: 国家自然科学基金(11474010,61590933)、国家重大科学研究计划(2013CB921904)

作者简介: 刘力谱(1991—),男,博士研究生,主要从事飞秒激光微纳制备方面的研究。

E-mail: lpliu@pku.edu.cn

导师简介: 李 焱(1966—),男,博士,教授,博士生导师,主要从事自旋光学和飞秒激光微纳制备方面的研究。

E-mail: li@pku.edu.cn(通信联系人)

一种新技术用于螺旋超材料的制备。本文通过拉盖尔-高斯(LG)光束的等权重线性叠加,直接产生一个焦斑形貌为双螺旋的光束,经过单次曝光即可实现双螺旋微结构的双光子聚合制备,缩短了制备时间。但是,这种双螺旋结构焦斑的轴向旋转速率很低,产生的螺旋结构圈数较少,手性较弱,谱宽较窄^[9]。为了增加谱宽,必须增加双螺旋微结构的螺旋圈数,因此采用模式面内斜率更大的直线上的 LG 光束叠加,但是这会导导致旁瓣光较强,在聚合过程中双螺旋的两个主瓣会粘连在一起。本文提出了紧聚焦下的优化方法,在保持较高螺旋圈数的同时可以明显抑制旁瓣光。通过优化得到了符合要求的纯相位板,将其加载到空间光调制器(SLM)中,通过单次曝光就能制备高螺旋圈数且无粘连的双螺旋微结构。

2 双螺旋光束的优化

2.1 双螺旋焦斑的产生

采用特定直线上 LG 模式光束等权重线性叠加的方法,可以得到横截面光强形貌随轴向位置不变、只是发生旋转或缩放的一类螺旋光束^[10-11]。LG 模式光束的光场 $U_{nm}(\mathbf{r})$ 为

$$U_{nm}(\mathbf{r}) = C_{nm} G(\rho, z) R_{nm}(\rho, z) \Phi_m(\varphi) Z_n(z), \quad (1)$$

$$C_{nm} = \frac{\left(\frac{n - |m|}{2}\right)! |m|!}{\sqrt{2}^{|m|} \left(\frac{n + |m|}{2}\right)!}, \quad (2)$$

$$G(\rho, z) = \frac{\omega_0}{w(z)} \exp\left[-\frac{\rho^2}{w^2(z)}\right] \exp\left[i\frac{\rho^2}{w^2(z)}\frac{z}{z_0}\right] \exp[-i\psi(z)], \quad (3)$$

$$R_{nm}(\rho, z) = \left[\sqrt{2}\frac{\rho}{w(z)}\right]^{|m|} L_{(n-|m|)/2}^{|m|} \left[2\frac{\rho^2}{w^2(z)}\right], \quad (4)$$

$$\Phi_m(\varphi) = \exp(im\varphi), \quad (5)$$

$$Z_n(z) = \exp[-in\psi(z)], \quad (6)$$

式中 \mathbf{r} 为场点坐标向量, (ρ, φ, z) 为其对应的柱坐标, m 为拓扑荷数(表示光束相位旋转一周相位从 0 到 2π 变化的次数), n 为径向参量。 C_{nm} 为归一化系数, $G(\rho, z)$ 为高斯项, $R_{nm}(\rho, z) \exp\left[-\frac{\rho^2}{w^2(z)}\right]$ 为拉盖尔函数, $\Phi_m(\varphi)$ 为螺旋相位, $\psi(z)$ 为 Gouy 相位, $z_0 = \pi\omega_0^2/\lambda$ 为瑞利长度, $w(z) = \omega_0[1 + (z/z_0)^2]^{1/2}$ 为传播距离为 z 时的光束截面半径, ω_0 为束腰宽度, $L_{(n-|m|)/2}^{|m|}$ 为缔合拉盖尔多项式, $Z_n(z)$ 为传播相位。当 LG 模式光束的 n 和 m 均为 0 时,光场退化为高斯光束。

双螺旋光束是一类特殊的螺旋光束,可以通过选取 LG 模式平面内一条直线上的模式 (m, n) 等权重线性叠加得到。如果选取斜率 $S_{LG} = \Delta n / \Delta m = 2$ 的直线上的 5 个模式 $(1, 1)$ 、 $(3, 5)$ 、 $(5, 9)$ 、 $(7, 13)$ 、 $(9, 17)$ 叠加,双螺旋焦场光强分布如图 1(a) 所示^[12-13],其中 x, y, z 是以焦点为中心的笛卡尔坐标。由图 1 可知,焦场光强轴向旋转速率较低,聚合制备所得结构手性较弱且谱宽较窄^[9]。一般可以通过增加螺旋结构螺旋圈数来增强螺旋超材料手性并增加谱宽^[1, 14],此时必须增大斜率 S_{LG} 。选择斜率分别为 3、4、5 的直线上的 5 个 LG 模式叠加,可以得到图 1(b)~(d) 所示双螺旋焦斑光强分布。可以看出,随着斜率 S_{LG} 的增大,双螺旋焦斑的轴向旋转速率增大,螺旋圈数也相应增加。但此时中心光强附近出现的旁瓣光的光强也在增大,且旁瓣光的分布有逐渐向中心主瓣靠近的趋势。双光子聚合制备过程中,旁瓣光的存在会导致双螺旋结构的两支主瓣产生严重粘连。因此在增加双螺旋结构圈数的同时,还需要进一步削弱旁瓣光光强,为此提出了相应的优化方法。综合考虑螺旋圈数和旁瓣光的比例,选取了 LG 模式平面内斜率为 3 的直线上 (m, n) 分别为 $(1, 1)$ 、 $(3, 7)$ 、 $(5, 13)$ 、 $(7, 19)$ 、 $(9, 25)$ 的 5 个模式叠加来产生初始双螺旋光束,通过优化,保持较高螺旋圈数的同时又可以明显抑制旁瓣光,进而通过单次曝光聚合得到双螺旋微结构。

如图 1 所示,通过改变斜率 S_{LG} 可以改变螺旋光束轴向旋转速率,因此可以调节制备得到的双螺旋结构的螺距。螺旋结构半径的调节可以通过改变 LG 模式光束的束腰宽度 ω_0 来实现。如图 2 所示,当 ω_0 分别为 300, 400, 500, 600 μm 时,对应的螺旋结构的半径分别为 1.6, 1.2, 0.9, 0.7 μm 。选取 $\omega_0 = 450 \mu\text{m}$, 对应的

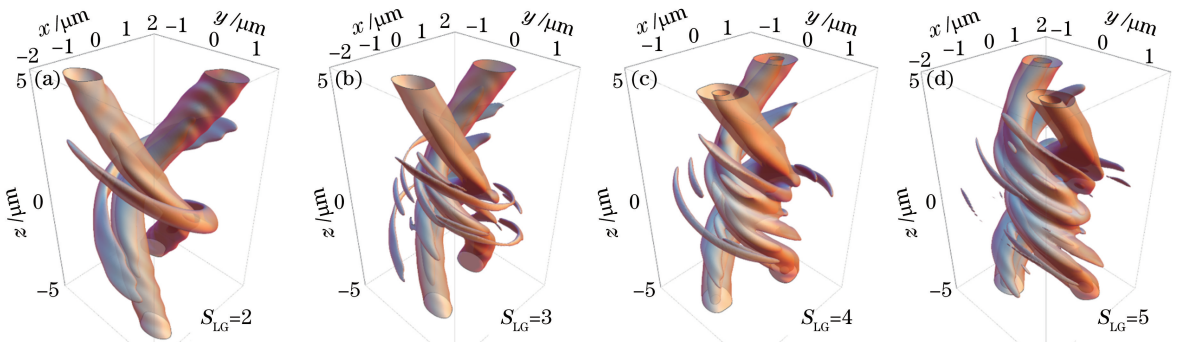


图 1 LG 模式平面内不同斜率的直线上 5 个模式叠加产生的双螺旋焦斑光强分布图

Fig. 1 Intensity distribution at focal spot of double-helix beams superposed by five modes along lines with different slopes in LG modal plane

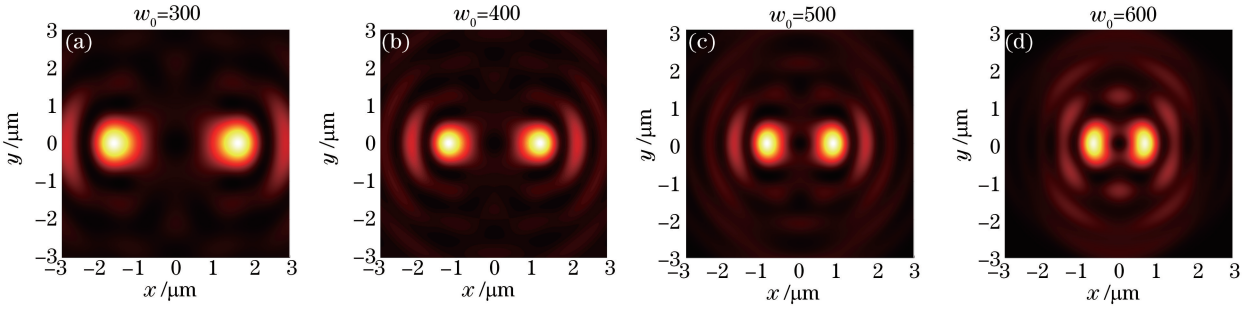


图 2 不同束腰宽度下双螺旋光束的焦面光强分布图

Fig. 2 Intensity distribution at focal spot of double-helix beams with different waist widths

螺旋结构半径为 $1 \mu\text{m}$ 。

2.2 双螺旋焦斑光强的优化

为了提高主瓣光强并改善其均匀性,李恒等^[12-13]通过对 LG 模式平面的模式挑选、空间域和傅里叶域的限制,实现了对双螺旋光束光强的优化。但是,该方法是通过菲涅耳积分来计算空间域的相位分布和对应的激光焦点场,适用于弱聚焦情况。在双光子聚合制备过程中,使用高数值孔径物镜进行紧聚焦,光线的变迹(即切趾)及像差等效应不能忽略,优化过程必须采用矢量德拜积分来计算焦点场分布。

利用矢量德拜积分计算紧聚焦下焦面附近光场的步骤主要包括^[15-18]入射场 $E_1(x_1, y_1)$ 到物镜折射后光场 $E'_1(x_1, y_1)$ 的投影操作 P 、光场 $E'_1(x_1, y_1)$ 到波矢空间场 $E'_1(k_x, k_y)$ 的映射操作 M 、波矢空间场 $E'_1(k_x, k_y)$ 到焦点场 $E_2(x_2, y_2, z_2)$ 的快速傅里叶变换 FFT 三个过程,如图 3 所示,其中 P^{-1} 、 M^{-1} 、IFFT 分别为对应的逆操作。

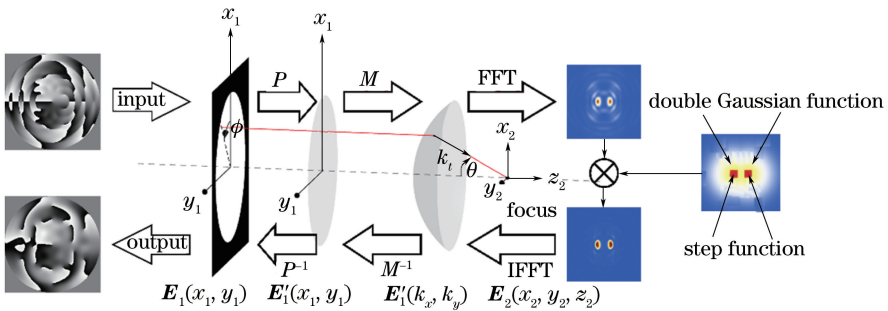


图 3 基于矢量衍射理论的焦点场优化流程图

Fig. 3 Flowchart of focal intensity optimization based on vector diffraction theory

经物镜折射后光场 $E'_1(x_1, y_1)$ 的计算公式为

$$\begin{bmatrix} E'_{1x} \\ E'_{1y} \\ E'_{1z} \end{bmatrix} = A \sqrt{\cos \theta} \mathbf{P} \begin{bmatrix} E_{1x} \\ E_{1y} \\ E_{1z} \end{bmatrix}, \quad (7)$$

式中 A 为归一化系数; E_{1x}, E_{1y}, E_{1z} 分别为 $\mathbf{E}_1(x_1, y_1)$ 在 x, y, z 方向的分量; $E'_{1x}, E'_{1y}, E'_{1z}$ 分别为 $\mathbf{E}'_1(x_1, y_1)$ 在 x, y, z 方向的分量; \mathbf{P} 为投影矩阵, 且

$$\mathbf{P} = \begin{bmatrix} 1 + (\cos \theta - 1) \cos^2 \phi & (\cos \theta - 1) \sin \phi \cos \phi & \sin \theta \cos \phi \\ (\cos \theta - 1) \sin \phi \cos \phi & 1 + (\cos \theta - 1) \sin^2 \phi & \sin \theta \sin \phi \\ -\sin \theta \cos \phi & -\sin \theta \sin \phi & \cos \theta \end{bmatrix}, \quad (8)$$

式中 θ 为光线与光轴 (z 轴) 的夹角; ϕ 为方位角, 表示入瞳上的点 (x_1, y_1) 与 x 轴正方向的夹角。

$\mathbf{E}'_1(x_1, y_1)$ 到波矢空间场 $\mathbf{E}'_1(k_x, k_y)$ 的映射关系为

$$\begin{cases} x_1/f = k_x/k_t \\ y_1/f = k_y/k_t \\ \cos \theta = k_z/k_t \end{cases}, \quad (9)$$

式中 (x_1, y_1) 为物镜入瞳面上坐标, f 为物镜焦距, k_t 为入射光波数, k_x, k_y, k_z 分别对应 x, y, z 方向的波数。

最终, 焦点场 $\mathbf{E}_2(x_2, y_2, z_2)$ 为

$$\mathbf{E}_2(x_2, y_2, z_2) = -\frac{if}{\lambda_0 k_t^2} \text{FFT} [\mathbf{E}'_1(k_x, k_y) \exp(-ik_z z) / \cos \theta]. \quad (10)$$

双螺旋焦斑光强优化要求光束沿传播方向各个面均满足特定的条件, 优化过程中采用焦面附近多面联合优化的方案, 即每个面按顺序执行, 通过多个面的联合作用得到达到要求的相位板。综合考虑优化效果及程序运行时间, 选取 5 个间距 $d_z = 0.6 \mu\text{m}$ 的等间距面进行迭代优化。每个面的优化过程如图 3 所示, 具体操作步骤如下。1) 实验中用于相位调制的空间光调制器仅能对 x 偏振方向的线偏光进行相位调制, 因此选取入射偏振态为 x 方向线偏振的入射场 $\mathbf{E}_1(x_1, y_1)$, 以未优化模式叠加产生的双螺旋光束的相位为初始相位, 经过如上所述的投影、映射、傅里叶变换等操作后得到特定面光场 $\mathbf{E}_2(x_2, y_2, z_2)$ 。2) 保持光场 $\mathbf{E}_2(x_2, y_2, z_2)$ 相位不变, 振幅乘以优化系数函数 O 得到优化场 $\mathbf{E}'_2(x_2, y_2, z_2)$ 。优化系数函数由双高斯函数和阶跃函数共同组成, 利用双高斯函数增强主瓣中心光强, 并减弱中心附近的旁瓣光强, 采用阶跃函数使主瓣窗口外的旁瓣光大幅衰减。以焦平面 ($z_2 = 0$) 为例, 优化系数函数为

$$O = O_{\text{Gauss}} O_{\text{step}}, \quad (11)$$

$$O_{\text{Gauss}} = \begin{cases} \exp\left[-\frac{(x_2 - x_A)^2 + (y_2 - y_A)^2}{w_G^2}\right], & (x_2 - x_A)^2 + (y_2 - y_A)^2 \leq (x_2 - x_B)^2 + (y_2 - y_B)^2 \\ \exp\left[-\frac{(x_2 - x_B)^2 + (y_2 - y_B)^2}{w_G^2}\right], & (x_2 - x_A)^2 + (y_2 - y_A)^2 > (x_2 - x_B)^2 + (y_2 - y_B)^2 \end{cases}, \quad (12)$$

$$O_{\text{step}} = \begin{cases} 1, & (|x_2 - x_A| \leq w_S \cap |y_2 - y_A| \leq w_S) \cup (|x_2 - x_B| \leq w_S \cap |y_2 - y_B| \leq w_S) \\ \gamma, & \text{else} \end{cases}, \quad (13)$$

式中 O_{Gauss} 为双高斯函数; O_{step} 为阶跃函数; w_G 为高斯函数的束腰宽度; w_S 为阶跃函数的窗口宽度; (x_A, y_A) 和 (x_B, y_B) 分别为双螺旋焦斑两主瓣强度最大值对应位置; γ 为衰减系数 (小于 1), γ 的数值越小, 旁瓣的衰减越明显, 优化过程越不容易收敛, 所以要权衡两方面的因素。3) 优化场 $\mathbf{E}'_2(x_2, y_2, z_2)$ 经过傅里叶逆变换、逆映射、逆投影操作后, 提取光场 x 偏振方向的相位作为下一截面优化的入射光场相位, 并进行下一截面的优化, 5 个截面均完成优化就是一次循环。经过多次循环, 可使 5 个平面的焦点中心光场光强达到预定的条件。

通过上述优化方法, 得到了图 4 所示相位板和双螺旋焦斑光场分布, 可以看出优化过程既减弱了双螺旋结构的旁瓣光强, 同时又保持了较高的螺旋圈数。

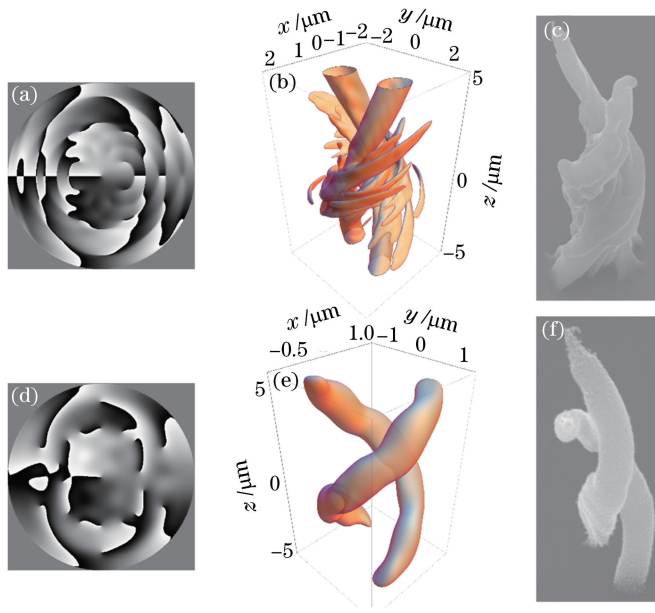


图 4 优化效果。(a)(d)相位板;(b)(e)焦点光强分布;(c)(f)单次曝光聚合结构的 SEM 图;(上)优化前;(下)优化后
Fig. 4 Optimization results. (a)(d) Phase masks; (b)(e) intensity distributions at focal spot; (c)(f) SEM images of polymerized structure with single-exposure; (upper) before optimization; (down) after optimization

3 双螺旋微结构的双光子聚合制备

图 5 为单次曝光双光子聚合实验装置示意图^[9],整个实验系统由 5 部分组成:飞秒激光系统、三维精密位移系统、光束传输及优化系统、实时监测系统和空间整形系统。飞秒激光系统(Mira900, Coherent, 美国)输出脉冲的中心波长为 830 nm,脉冲宽度为 120 fs,脉冲重复频率为 78 MHz。三维精密位移系统主要由三维纳米位移平台(P-527.3CL, PI 公司, 美国)组成,可以实现激光焦点对样品的三维扫描。光束传输及优化系统主要包含三个部分:第一部分由透镜 RL1、RL2 和针孔组成,可以将飞秒激光扩束至充满空间光调制器工作区域,同时提高光斑质量;第二部分由透镜 RL3 和 RL4 组成的 4f 系统构成,将调制后的光束平行地传递到物镜后焦面;第三部分为激光能量控制部分,由半波片和格兰棱镜组成,通过旋转半波片实现激光能量控制。实时监测系统由白光冷光源、物镜(100 \times , 数值孔径为 1.4)、透镜 TL2 以及电荷耦合器件(CCD)组成。由物镜与 TL2 构成的显微镜系统可以将加工平面成像到 CCD,由于加工时发生聚合的材料折射率会有微小的变化,可以通过 CCD 监视聚合过程。空间整形系统为一个反射式空间光调制器(HSPDM512, BNS, 美国),对入射光空间上不同位置的相位进行调控,实现光束波前整形。

将优化后的相位板加载到空间光调制器上,聚焦后在光刻胶(SZ2080, IESL-FORTH, 希腊)中产生双螺旋焦场,单次曝光即可聚合得到所需的双螺旋微结构。图 6(a)为制备周期为 4 μm 的 10 \times 10 双螺旋微结构

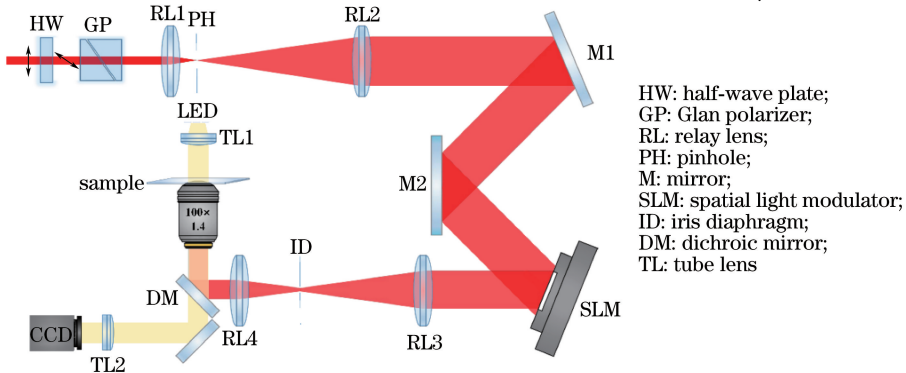


图 5 单次曝光双光子聚合实验装置示意图

Fig. 5 Schematic diagram of experimental setup for two-photon polymerization with single exposure

阵列的扫描电子显微镜(SEM)图,单个微结构曝光时间为 0.5 s,速度比传统的激光直写方法快。图 6(b)、(c)分别为单个双螺旋微结构的顶视图和侧视图,可以看出双螺旋微结构的螺旋圈数较高,旁瓣光明显衰减,聚合结构中不存在旁瓣光引起的两支螺旋粘连的情形。

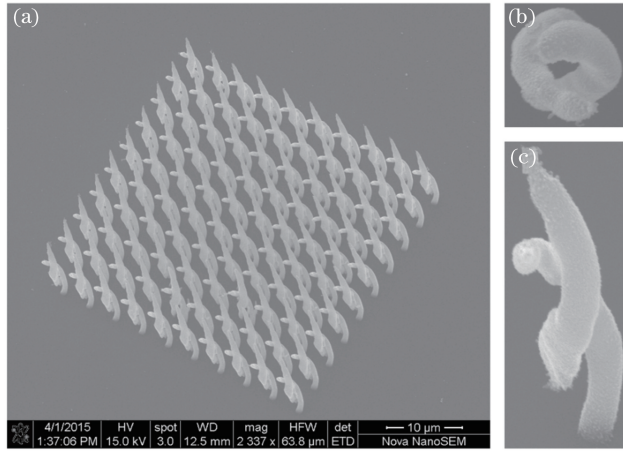


图 6 聚合双螺旋微结构的 SEM 图。(a)双螺旋微结构阵列;单个双螺旋微结构的(b)顶视图和(c)侧视图

Fig. 6 SEM images of polymerized double-helix microstructures. (a) Double-helix microstructure array; (b) top and (c) side view of single double-helix microstructure

4 结 论

通过双高斯函数和阶跃函数相结合的方法,对拉盖尔-高斯模式叠加形成的双螺旋光束进行了优化,在保持高螺旋圈数的同时有效抑制了旁瓣光强。利用这种双螺旋光束,经过单次曝光就能聚合出无粘连且螺旋圈数高的双螺旋微结构,并在此基础上制备出了周期为 $4 \mu\text{m}$ 的双螺旋微结构阵列。该方法有望用于螺旋超材料的快速制备。

参 考 文 献

- [1] Gansel J K, Thiel M, Rill M S, *et al.* Gold helix photonic metamaterial as broadband circular polarizer[J]. *Science*, 2009, 325(5947): 1513-1515.
- [2] Kaschke J, Wegener M. Optical and infrared helical metamaterials[J]. *Nanophotonics*, 2016, 5: 38-51.
- [3] Yoon G, Kim I, Rho J. Challenges in fabrication towards realization of practical metamaterials[J]. *Microelectronic Engineering*, 2016, 163: 7-20.
- [4] Gansel J K, Latzel M, Frölich A, *et al.* Tapered gold-helix metamaterials as improved circular polarizers[J]. *Applied Physics Letters*, 2012, 100(10): 101109.
- [5] Kaschke J, Wegener M. Gold triple-helix mid-infrared metamaterial by STED-inspired laser lithography[J]. *Optics Letters*, 2015, 40(17): 3986-3989.
- [6] Kaschke J, Blume L, Wu L, *et al.* A helical metamaterial for broadband circular polarization conversion[J]. *Advanced Optical Materials*, 2015, 3(10): 1411-1417.
- [7] Esposito M, Tasco V, Todisco F, *et al.* Triple-helical nanowires by tomographic rotatory growth for chiral photonics [J]. *Nature Communications*, 2015, 6: 6484.
- [8] Mark A G, Gibbs J G, Lee T C, *et al.* Hybrid nanocolloids with programmed three-dimensional shape and material composition[J]. *Nature Materials*, 2013, 12(9): 802-807.
- [9] Zhang S J, Li Y, Liu Z P, *et al.* Two-photon polymerization of a three dimensional structure using beams with orbital angular momentum[J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 105(6): 061101.
- [10] Abramochkin E G, Volostnikov V G. Spiral light beams[J]. *Physics-Uspekhi*, 2004, 47(12): 1177-1203.
- [11] Piestun R, Schechner Y Y, Shamir J. Propagation-invariant wave fields with finite energy[J]. *Journal of the Optical Society of America A*, 2000, 17(2): 294-303.
- [12] Li Heng, Yu Bin, Chen Danni, *et al.* Design and experimental demonstration of high-efficiency double-helix point spread function phase plate[J]. *Acta Physica Sinica*, 2013, 62(12): 124201.

- 李 恒, 于 斌, 陈丹妮, 等. 高效双螺旋点扩展函数相位片的设计与实验研究[J]. 物理学报, 2013, 62(12): 124201.
- [13] Pavani S R P, Piestun R. High-efficiency rotating point spread functions[J]. Optics Express, 2008, 16(5): 3484-3489.
- [14] Yu Yang. Study on the optical circular polarizers with metallic helical metamaterials[D]. Wuhan: Huazhong University of Science and Technology, 2011: 27-28.
余 杨. 螺旋金属线栅圆偏振器的研究[D]. 武汉: 华中科技大学, 2011: 27-28.
- [15] Leutenegger M, Rao R, Leitgeb R A, *et al.* Fast focus field calculations[J]. Optics Express, 2006, 14(23): 11277-11291.
- [16] You S T, Kuang C F, Toussaint K C, *et al.* Iterative phase-retrieval method for generating stereo array of polarization-controlled focal spots[J]. Optics Letters, 2015, 40(15): 3532-3535.
- [17] Lin J, Rodriguez-Herrera O G, Kenny F, *et al.* Fast vectorial calculation of the volumetric focused field distribution by using a three-dimensional Fourier transform[J]. Optics Express, 2012, 20(2): 1060-1069.
- [18] Gu M. Advanced optical imaging theory[M]. New York: Springer Science & Business Media, 2000.