

# 中国激光

## 飞秒激光时空整形电子动态调控加工微光学元件

吴梦楠<sup>1,2</sup>, 李晓炜<sup>2\*</sup>, 向志昆<sup>2</sup>, 张乐仪<sup>2</sup>, 杨炎培<sup>2</sup>, 王志鹏<sup>2</sup>, 刘洋<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 北京理工大学机电学院, 北京 100081;

<sup>2</sup> 北京理工大学机械与车辆学院, 北京 100081

**摘要** 飞秒激光加工具有精度高、无污染、材料适用性广、热效应小等特点, 在加工微光学元件方面有着独特的优势。通过对飞秒激光进行时间和空间整形, 调控电子动态及其后续的电子-声子作用过程, 能够有效提高加工精度和加工效率, 解决微光学元件在实际加工中的质量和成本问题。本文以微透镜、光栅和波带片为例, 综述了常见微光学元件的飞秒激光加工现状, 介绍了时空整形飞秒激光调控电子动态的基本原理, 总结了飞秒激光进行时空整形的主要实现途径, 展示了这些方法在加工微光学元件上的典型应用和研究进展, 最后分析讨论了时空整形飞秒激光用于加工微光学元件所面临的挑战和今后的研究重点。

**关键词** 激光技术; 飞秒激光; 电子动态调控; 微孔加工; 时空整形; 微光学元件

中图分类号 O436

文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL202249.1002501

### 1 引言

与普通光学器件相比, 微光学器件具有微型化、集成化特征。在近波长至亚波长特征结构尺寸下的微光学器件具有特殊的光学性质, 能够实现普通光学器件无法实现的功能, 在光通信<sup>[1]</sup>、光显示<sup>[2]</sup>、光加工<sup>[3]</sup>、光信息存储<sup>[4]</sup>等领域具有难以替代的应用价值。微光学器件的加工需求小、个性化程度高, 其性能易受形貌精度和表面缺陷的影响<sup>[5]</sup>。质量、效率和成本这三方面的平衡是微光学器件制造过程中需要面对的问题<sup>[6]</sup>。

飞秒激光加工具有灵活、高效、材料适用性广等特性。近年来, 微光学元件的飞秒激光加工成为了国内外的研究热点。飞秒激光是指脉宽在飞秒量级的脉冲激光。飞秒激光具有极高的功率密度, 其与物质的作用过程具有非线性、非平衡性的特点, 能够产生包括多光子电离、隧穿电离、库仑爆炸、相爆炸等多种非线性过程<sup>[7-8]</sup>。多光子电离、隧穿电离等非线性吸收过程具有阈值效应<sup>[9]</sup>, 这种效应使飞秒激光加工材料的精度可以超越衍射极限<sup>[10]</sup>。库仑爆

炸是非热过程, 对基体材料无热影响<sup>[11]</sup>; 而相爆炸是指晶格发生爆炸沸腾, 使材料喷发的同时带走大量热量的过程, 对周围材料的热影响极低<sup>[10, 12-13]</sup>。因此, 飞秒激光加工具有精度高、无污染、材料适用性广、热影响区小<sup>[14]</sup>等特点, 适合快速加工小批量元器件<sup>[15]</sup>。采用超高峰值能量密度的激光束进行加工, 无元素注入, 不污染器件。由于多光子吸收效应, 飞秒激光加工的热影响区小, 缺陷少<sup>[16]</sup>。多光子吸收效应同样可使加工精度达到亚波长量级, 满足光学调制的精度要求<sup>[17]</sup>。与离子束加工、电子束加工等超高精度加工方法相比, 飞秒激光加工的成本相对较低, 能够推广应用到批量生产中。由于具有上述优势, 飞秒激光目前已成为加工微纳光学元件的重要选择<sup>[18-19]</sup>。

在飞秒激光加工过程中, 流体动力运动和晶格热传导可以忽略不计<sup>[20]</sup>。激光与材料相互作用的过程包括激光吸收、材料相变和材料去除过程, 基本由激光和电子的相互作用决定<sup>[21]</sup>。因此, 控制激光与电子的相互作用过程, 尤其是控制局部电子动态(电子密度、温度、自旋、能级分布等)是优化激光加

收稿日期: 2021-12-22; 修回日期: 2022-02-09; 录用日期: 2022-02-11

基金项目: 国家自然科学基金(52075041)、北京市自然科学基金(JQ20015)、北京高校卓越青年科学家计划(BJJWZYJH01201910007022)

通信作者: \*lixiaowei@bit.edu.cn

工质量的必要过程<sup>[22-23]</sup>。Jiang 等<sup>[24]</sup>提出了电子动态调控(EDC)新技术,其核心理念是:通过在空间和时间上控制飞秒激光的振幅、相位和偏振来控制局部瞬态电子动态,并进一步调控材料的局部瞬态性质,进而改变材料的形貌和性质。电子动态调控技术可以有效提高材料对激光的吸收效率<sup>[25]</sup>,降低加工过程中的热效应<sup>[26]</sup>,控制加工区域材料的物理、化学性质<sup>[27]</sup>,优化加工形貌,实现未整形激光无法达到的高质量、高效率和高精度<sup>[19, 28]</sup>。10余年来,EDC理念已被学界广泛认可,并在微纳制造中发挥着重要作用,极大地提高了微光学元件等功能性微结构的制造效率与精度<sup>[29]</sup>。

尽管目前已有部分文章介绍了激光在微光学元件加工中的应用,但仍缺少对微结构加工过程中电子动态调控技术的原理和应用进行总结的公开报道。鉴于此,本课题组首先从飞秒激光加工微纳光学元件出发,列举了常见光学元件的飞秒激光加工技术;随后着重介绍了通过时空整形飞秒激光进行电子动态调控的原理,以及该方式加工微光学元件的研究进展;最后总结了不同整形方式在加工中的优缺点及应用范围,以促进相关技术的进一步发展。

## 2 飞秒激光制备微纳光学元件

微纳光学元件是指面形精度达到亚微米级别的自由光学曲面及微结构光学元器件,其涵盖范围非常广泛,微透镜、波带片、微全息光学元件都属于微光学元件的范畴。其中光栅、微透镜和波带片这三种光学元件的特征尺寸较小,总尺寸较大,性能参数主要受加工精度的影响,最能体现飞秒激光加工的优势。飞秒激光加工微纳光学元件的主要方法包括激光烧蚀去除材料、利用双光子聚合3D打印方法进行增材制造、采用激光改变材料的折射率、利用激光改变材料的化学性质并用刻蚀选择性去除材料等。本节以光栅、微透镜和波带片为例,介绍激光在微纳光学元件加工中的应用。

### 2.1 飞秒激光制备光栅

光栅是一种具有周期性空间结构的光学器件,能够实现光谱分离、偏振控制、相位控制等功能<sup>[30]</sup>。常见光栅包括衍射光栅、布拉格光栅和达曼光栅。

衍射光栅是最常见的光栅,其利用周期性的透射率或反射率的改变使光发生衍射效应。周期低于可见光波长的衍射光栅是飞秒激光加工的热点。光栅的衍射使其在白光下具有肉眼可见的特定颜色,

常被用于图案展示和防伪<sup>[31]</sup>。布拉格光栅(FBG)由周期性调制折射率的结构组成,它可使特定波长范围的光被反射,而其他波段的光顺利通过。在光纤上加工布拉格光栅后,可以通过改变反射光谱或透射光谱对光纤的应变进行测量<sup>[32]</sup>,进而获得光纤所处环境的温度、应力等信息。通过两个布拉格光栅叠加的方式可以制备相移布拉格光栅(PS-FBG),其在一段光谱区间内仅允许特定波长的光透过<sup>[32]</sup>。达曼光栅是一种相位光栅,由达曼于1971年首先提出,它由周期性排列的方形结构组成。达曼光栅这种具有特殊结构的二维相位光栅可以实现光束的均匀分束<sup>[33]</sup>。

未整形激光加工光栅的主要方法包括激光诱导周期性结构(LIPSS)方法和激光直写光栅结构方法。在激光加工过程中,固体材料普遍具有产生激光诱导周期性结构的特性。通过使激光诱导周期性结构整齐排列,材料表面可以产生光栅结构,用于图案的选择性显示。在金属上通过飞秒激光改性方法制备激光诱导周期性结构可以实现衍射光栅的加工,并使衍射光栅实现从紫外到太赫兹不同波长的颜色衍射<sup>[34]</sup>。另外,利用激光诱导周期性结构与激光偏振方向垂直的关系,可以实现在不同偏振白光下的选择性图案显示,图案之间既可以互相重叠也可以不重叠。通过优化激光加工参数,可使光栅结构的深度比较均匀<sup>[31]</sup>。结构的均匀性是决定光栅质量的重要因素。改性后晶硅表面形成了非晶改性条纹,其后续的刻蚀速度与未改性晶硅不同,因此可以通过飞秒激光诱导的方式加工大面积周期性非晶态改性结构,然后利用湿法刻蚀的方式去除非晶态硅,实现长程周期均匀结构的高效加工。可以通过不同的刻蚀时间来实现衍射效率的调谐。与已有的激光诱导周期性结构方法相比,此方法制备的周期性表面结构具有更好的均匀性和长程有序度,在宽带白光源下,可以清楚地观察到有序的多色图案,如图1(b)所示<sup>[17]</sup>。有人将新型的介质上硅膜(SOI)作为加工基体,通过精确调节脉冲能量来精确地控制相变过程,实现不了同尺度的光栅结构变化。这种有效的刻蚀辅助激光改性的方法可以在SOI器件上制造可控光子结构,图1(c)展示了SOI器件上可见光光栅的鲜艳色彩和规则结构。该方法有望进一步促进集成光学的发展<sup>[35]</sup>。

激光诱导周期性光栅结构的周期往往局限于特定值,激光直写光栅结构方法具备更高的灵活性和普适性。采用光刻胶3D打印的方式,精确控制加

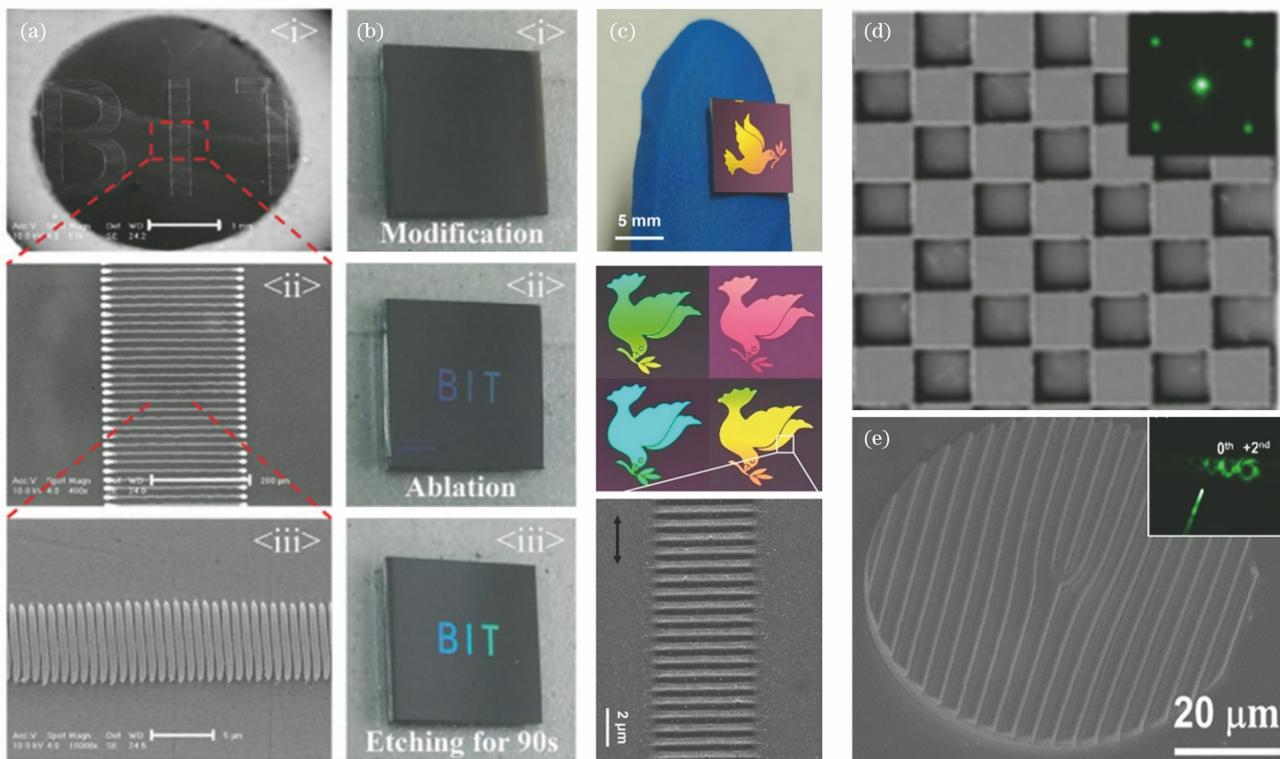


图1 飞秒激光制备的不同种类的光栅。(a)在硅上采用化学刻蚀辅助激光改性方法加工的大面积纳米光栅结构<sup>[17]</sup>;(b)采用三种不同方法加工的硅表面的结构色,化学刻蚀辅助激光改性方法加工的硅表面具有更鲜艳的色彩<sup>[17]</sup>;(c)在SOI表面加工的规则的光栅结构<sup>[35]</sup>;(d)采用3D打印方法加工的高质量达曼光栅及其衍射图案<sup>[36]</sup>;(e)采用3D打印方法在光纤端面加工的涡旋光栅及其衍射图案<sup>[37]</sup>

Fig. 1 Gratings fabricated by different methods using femtosecond lasers. (a) Large area nano grating structures fabricated by chemical etching assisted laser modification on silicon<sup>[17]</sup>; (b) structural color of silicon surface processed by three different methods, the silicon surface processed by chemical etching assisted laser modification method displays a more vivid color<sup>[17]</sup>; (c) regular grating structure machined on silicon-on-insulator (SOI) surface<sup>[35]</sup>; (d) high-quality Dammann gratings processed by 3D printing and their diffraction patterns<sup>[36]</sup>; (e) vortex grating processed on fiber end face by 3D printing method and its diffraction pattern<sup>[37]</sup>

工厚度和形貌,可加工出图1(d)所示的高精度达曼光栅。该光栅在5×5衍射点情况下可以达到52%的衍射效率<sup>[36]</sup>。同时,利用最优分束理论设计的光纤端面连续相位涡旋光栅也能采用该技术进行制备。图1(e)所示的光纤端面光栅可以将光纤传递的激光功率任意分配在不同的衍射阶数中,高精度的3D打印技术使测试结果与模拟结果高度吻合<sup>[37]</sup>。此外,3D打印技术还可以通过还原金属来制备光栅。银线光栅可以通过在水凝胶内部进行选择性还原来制备,制备的银线光栅的特征尺寸随着水凝胶中含水量的改变而改变<sup>[38]</sup>。

将光栅和光纤进行耦合可使光纤具有更多的功能和特性。目前,最常用的光纤是基于石英纤芯的光纤。2004年,Martinez等<sup>[39]</sup>利用飞秒激光加工出了损耗低、线宽窄、共振强的布拉格光栅,展现了

飞秒激光加工的灵活性。激光直写加工的方式使光栅无需局限于平行的直线条纹。在已加工布拉格光栅的光纤内,进一步采用激光直写螺旋结构,可以获得相移布拉格光栅,光栅的波长选择性可达到100 pm带宽。通过调节激光能量,还可以调节透射光谱的带宽<sup>[40]</sup>。研究人员采用两位移台组合的方式分别控制光纤的正常光栅加工和引入额外相移的移动,实现了对任意类型光纤的高效灵活加工。这种直写带来的高精度能够使光栅的波长选择性达到1 pm的带宽<sup>[41]</sup>。

除了石英材质的纤芯以外,其他材质的光纤也在激光加工的范围内。硫系玻璃在中红外波段的优秀传输性、热稳定性、成纤维性使其成为红外波段光纤的首选。2008年,Florea等<sup>[42]</sup>使用800 nm飞秒激光器在As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>玻璃和光纤中写入了光栅结构。

高厚度的体相光栅(VPGs)可以通过不同脉冲能量的单步激光直写方法在Ge-As-S(GAS)硫系玻璃(ChG)内制备<sup>[43]</sup>,该光栅由于材料的自聚焦效应而具有清晰的衍射图案和较高的衍射效率。有人将有套管连接(FC)接口的硫系光纤的端面抛光到表面粗糙度小于0.08 μm的高平整度,然后利用飞秒激光逐行直写,制备出了相同周期的一维和二维衍射光栅;在1550 nm时,该端面光栅的一级衍射效率接近50%<sup>[44]</sup>。

除了在光纤上制备单层光栅外,飞秒激光还可用于在铌酸锂NPCs中制备三维光栅结构,实现二次谐波涡旋和厄米-高斯光束的高效生成。通过将单层光栅进行周期性重复可以实现二次谐波生成过程中基频光和二次谐波纵向相位的匹配,转换效率比二维光栅提高了两个数量级<sup>[45]</sup>。另外,在铌酸锂晶体内部写入叉形光栅、规则的一维光栅、圆形光栅能够使入射

的高斯光束转换成二次谐波的涡旋光、发生衍射、进一步转化为贝塞尔光束,实现光束的倍频整形转换<sup>[46]</sup>。该光栅高效的非线性光束整形为其在光通信、超分辨成像、高维纠缠源等领域的应用奠定了基础。

## 2.2 飞秒激光制备微透镜

微透镜阵列是一种常用的微光学元件,可以对入射光进行发散、分束、聚焦等光束整形调制,进而实现成像传感、光源调制、优化显示等功能,在光电器件和光学系统的微型化、智能化和集成化方面具有巨大的应用潜力<sup>[47]</sup>。

3D打印具有灵活性和高精度等特性,因此研究人员可以更加灵活地设计微透镜的结构和尺寸。利用3D打印的高精度特性可以提高微透镜组的紧凑度。为了实现高质量成像,Gissibl等<sup>[48]</sup>于2016年采用3D打印方法加工出了尺寸约为100 μm的多透镜微透镜组,如图2(c)所示,他们将微透镜组的

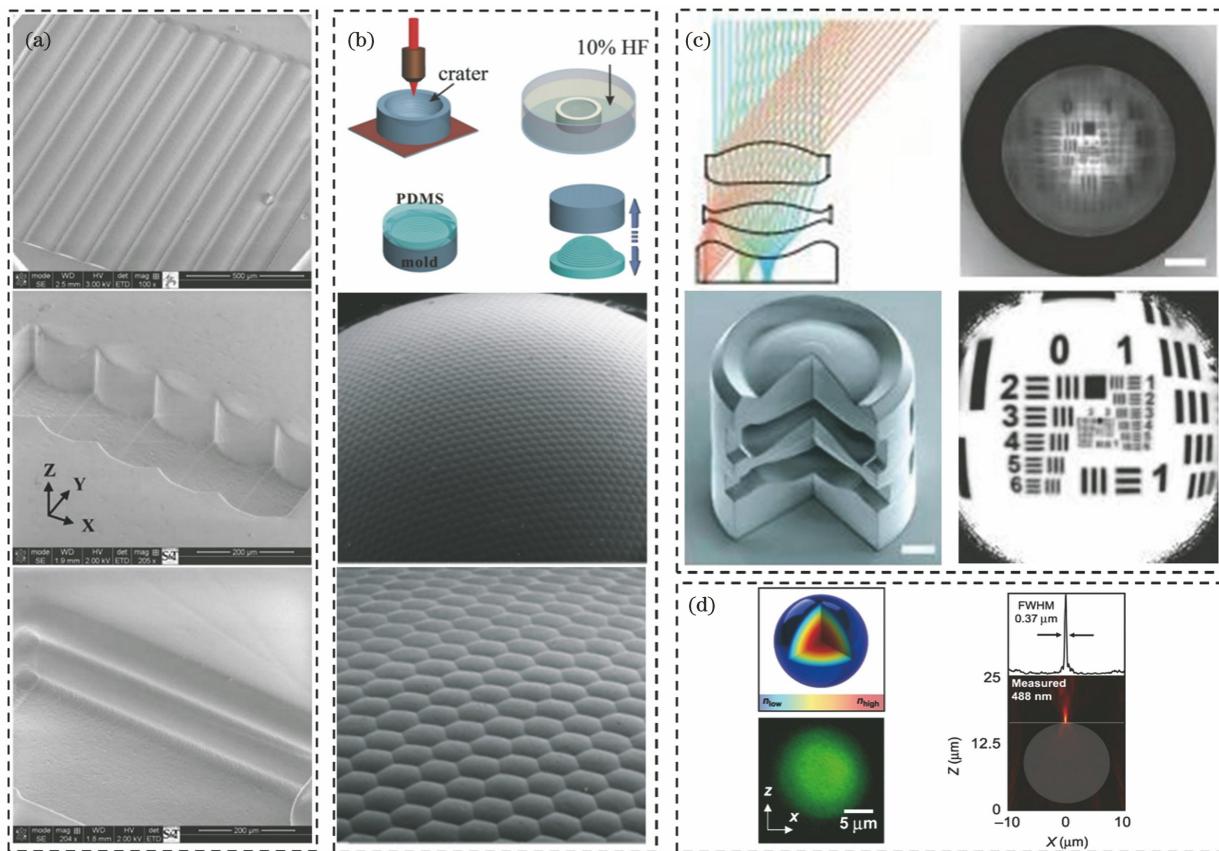


图2 利用飞秒激光通过不同的方法制备的微透镜。(a)退火辅助刻蚀加工的不同方向的微柱透镜阵列<sup>[54]</sup>; (b)湿法刻蚀辅助改性制作复眼的过程示意图以及该方法得到的PDMS微凸透镜阵列<sup>[60]</sup>; (c)采用3D打印制造的三层微透镜组的成像原理图、模拟图、实物图及实际成像<sup>[48]</sup>; (d)调制材料内部折射率加工出的微透镜及其实际聚焦光场<sup>[70]</sup>

Fig. 2 Microlenses fabricated by different methods using femtosecond laser. (a) Microcolumn lens array with different directions prepared by anneal-assisted etching<sup>[54]</sup>; (b) schematic of compound eye made by wet etching assisted modification and PDMS microconvex lens array gotten by the method<sup>[60]</sup>; (c) imaging principle diagram, simulation diagram, picture, and actual imaging of three-layer microlens group manufactured by 3D printing<sup>[48]</sup>; (d) microlens machined with material inside refractive index modulation and its actual focusing light field<sup>[70]</sup>

尺寸减小了一个量级。3D 打印的高精度加工特性可以实现微透镜特性的灵活调整。Florian 等<sup>[49]</sup>通过激光正向转移高黏度的光固化胶获得了微透镜阵列,他们在研究中发现,通过调整激光的脉冲能量可以调整微透镜的尺寸和聚焦特性。3D 打印的灵活性体现在加工材料的多样性上,比如,Sun 等<sup>[50]</sup>在 2012 年打印了蛋白质微透镜,他们通过 pH 值来调节微透镜的形貌和焦距。蛋白质的生物相容性使该微透镜在生物医药领域具有巨大的应用潜力。此外,3D 打印的灵活性还体现在加工形貌的多样性上,3D 打印能更加灵活地加工多种非球透镜形貌,比如:2009 年,Wu 等<sup>[5]</sup>采用激光直写 3D 打印方法加工出了微透镜,其轮廓的相对误差仅为 0.2%;2013 年,Tian 等<sup>[51]</sup>采用 3D 打印方法在半导体二极管激光器上加工出了双轴双曲面微透镜,该微透镜能将激光器发出的椭圆形光束全部聚焦在同一个焦点上,确保了几乎所有的光束都通过微透镜,并能将激光集成到光纤中。3D 打印的灵活性和高精度使其不仅可以优化微透镜本身的结构,还可以辅助其他结构来提升微透镜的成像质量。2018 年,Lin 等<sup>[52]</sup>采用更简易灵活的方式优化了微透镜的成像,他们将 3D 打印的微凸透镜阵列和对应的针孔阵列复合,制备出了复眼微透镜阵列,该阵列可使复眼边缘的光准确地聚集到探测器上。2019 年,Li 等<sup>[53]</sup>对透镜的抗反射结构化表面进行了优化设计,并利用三维直写技术通过双光子聚合制造实现了这一设计。

化学刻蚀辅助飞秒激光加工微透镜阵列无需掩模或热回流,操作简单,加工效率高,是激光加工微透镜阵列的一种重要方式。2009 年,Lin 等<sup>[54]</sup>采用激光对玻璃进行直写改性,然后通过退火和刻蚀获得了形貌灵活的微柱面镜和凸透镜阵列。直写改性的灵活性使其可以在玻璃上以任何角度加工出微透镜,如图 2(a)所示,退火和刻蚀则保证了微透镜的面形质量和面形精度。2010 年,Chen 等<sup>[55]</sup>提出了比直写方法更简单的氢氟酸湿法刻蚀激光改性区域的方法,并采用该方法高效加工出了密集排布的微透镜阵列;2015 年,Deng 等<sup>[56]</sup>将湿法刻蚀激光改性区的方法引入到硅微透镜的加工上,采用硝酸、氢氟酸和醋酸刻蚀改性硅得到了非球曲面。湿法刻蚀具有一定的限制,因此对于一些特定的材料,需要利用干法刻蚀辅助加工。2017 年,Liu 等<sup>[57]</sup>利用干法刻蚀辅助飞秒激光加工(DE-FsLM)方法制造了全硅微透镜,该方法显著提高了复杂表面结构的制造效

率和表面质量。此外,研究人员还使用其他手段来辅助刻蚀工艺,如:2019 年,Liu 等<sup>[58]</sup>以激光 3D 打印光刻胶作为掩模,采用干法刻蚀在蓝宝石表面上加工了高精度的单体微透镜;2019 年,Sohn 等<sup>[59]</sup>使用飞秒激光直写法加工微透镜胚体,然后采用二氧化碳激光加热熔融微透镜表面,获得了一致性高的微透镜和柱透镜。还可以用其他加工辅助的方式来提高加工效率和表面质量,如可以借助液体辅助(将加工面浸入染料溶液中,以提高烧蚀效率和促进烧蚀碎屑的排出)和退火工艺来降低微透镜的表面粗糙度<sup>[2]</sup>。

由于化学刻蚀只能形成凹坑,因此可以利用激光刻蚀玻璃得到的凹坑作为模具来制造微凸透镜。如图 2(b)所示,该方法可以用来制造聚二甲基硅氧烷(PDMS)球面微透镜阵列<sup>[60]</sup>。此外,该方法还可以配合热压印制造 PMMA 微透镜平面片,然后用球体对平面片进行热压,使 PMMA 片变为球面片,获得球壳上分布的微透镜阵列<sup>[61]</sup>。2019 年,Liu 等<sup>[62]</sup>用激光在已有的蓝宝石凹面上进行改性加工,然后采用干法刻蚀得到了微透镜阵列,接着以蓝宝石微凹透镜为模具,使用 K9 玻璃制造出了凸面微透镜阵列(微透镜的填充因子接近 100%,视场角超过 90°)。Cao 等<sup>[63]</sup>同样采用干法刻蚀,用 PDMS 倒模出平面微透镜阵列薄膜,然后采用微流体液压的方式将薄膜膨胀为球面复眼结构。这种方法不需要预制玻璃凹面,具有较高的灵活性和统一性,而且效率较高,可用于大规模生产高质量的微透镜阵列。此方法制备的微透镜具有良好的均匀性和 100% 的填充因子,并且制备的复眼的视场角可以在 0°~180° 范围内调节。

以上研究的都是单层微透镜。飞秒激光在加工双层微透镜时仍然适用,如,2014 年,Deng 等<sup>[64]</sup>采用飞秒激光加工出了双面微透镜阵列,该双面微透镜阵列可用于激光的匀化。通过飞行时间扫描法对表面进行改性,并配合湿法刻蚀,可以在 60 min 内加工出 2780000 个微透镜。当两面微透镜规则排列时,可以用于成像。通过改变微透镜的大小、形状和排列,可以实现多种成像模式,如同轴嵌套矩形、同轴嵌套六边形、非同轴嵌套六边形等成像模式<sup>[65]</sup>。

裸露在空气中的微透镜适用于绝大多数场合,但对于需要灵活调节微透镜参数的场合,改变微透镜周围环境的折射率是一种简单的方式。2018 年,Hu 等<sup>[66]</sup>采用激光扫描轮廓的方式在微流体通道内加工了微透镜,他们发现,通过改变通道内液体的折

射率可以改变微透镜的焦距。在加工过程中,通常通过调整不同扫描区域的速度来兼顾加工效率和表面质量。2018年,He等<sup>[67]</sup>利用氧化铟锡(ITO)涂层平面衬底聚合IP-Dip光刻胶制作了微透镜阵列,他们发现,在加工的微透镜阵列上覆盖液晶涂层,然后对液晶涂层施加不同的电压,可以调节微透镜阵列的焦距。

利用激光焦点在材料内产生折射率调制可以快速便捷地制造微透镜。由于微透镜位于材料内部,其抗污染性与鲁棒性都更优秀。2015年,Zheng等<sup>[68]</sup>将高重复频率的飞秒激光聚焦在PMMA内部形成了高透明度无裂纹的空腔,并将这种空腔用作透镜使用,他们将其命名为球腔微透镜(CMFL)。调节制备CMFL过程中的激光能量密度,焦点区域可能形成折射率轻微升高的改性区或折射率降低的空腔区,它们可以分别作为微凸透镜或凹透镜使用<sup>[69]</sup>。通过对材料的成分进行设计,然后利用飞秒激光诱导材料的成分发生变化,进而改变材料的折射率,可以加工出多种形貌的折射率微透镜<sup>[70]</sup>,如图2(d)所示。

### 2.3 飞秒激光制备波带片

菲涅耳波带片是一种由同心圆环结构组成的衍

射光学元件,它利用光的衍射和干涉特性实现聚焦功能。与透镜相比,菲涅耳波带片的结构更紧凑,设计更灵活,适用波长不受材料限制,在成像、激光整形等方面具有重要应用。按照成像原理,菲涅耳波带片可以分为振幅型和相位型。振幅型波带片中全部的奇数环(或偶数环)是不透明的,通过偶数环(或奇数环)光强分布的不同可以实现衍射聚焦,环带间对比清晰,聚焦性能更好<sup>[71]</sup>。由于仅奇数或偶数环带区域对光透明,因此振幅型波带片的衍射效率受到极大限制,理论上单层振幅型波带片的最高衍射效率仅为10%。菲涅耳波带片最初的加工办法是在熔融石英内部打孔,通过改变其折射率加工出相位型波带片,其衍射效率仅为2%<sup>[72]</sup>。通过波带片层数叠加实现的三层振幅型波带片,可以将衍射效率提高至15.4%。进一步,对振幅型波带片的结构进行改进(使用中心环结构),其衍射效率最高可达17.0%<sup>[73]</sup>。除了对波带片结构进行改进之外,使用新型二维材料同样可以提高波带片的衍射效率。如图3(a)~(e)所示,过渡金属二卤代物与氧气反应生成的纳米颗粒的散射特性能有效改变结构表面的散射特性,进而改变衍射效率,因此,该纳米颗粒可以用于制造振幅型波带片<sup>[74]</sup>。类似地,在使用飞

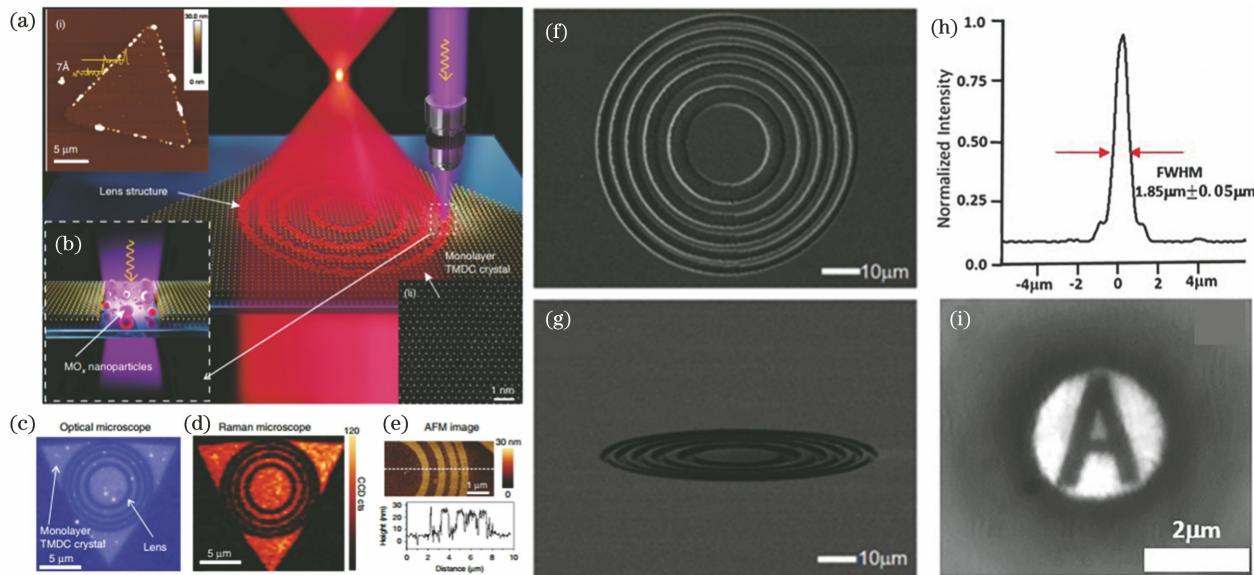


图3 利用飞秒激光通过不同方法制备的波带片。飞秒激光制备单层原子振幅型波带片<sup>[74]</sup>: (a)~(b) 制备示意图; (c)~(e) 波带片的光学显微镜图、拉曼图谱和原子力显微镜图。用化学刻蚀辅助激光改性加工的蓝宝石相位型波带片<sup>[82]</sup>; (f)~(g) 电镜图; (h) 聚焦的光强分布; (i) 成像特征

Fig. 3 Zone plates fabricated by different methods using femtosecond lasers. A single atom amplitude type zone plate fabricated by femtosecond laser<sup>[74]</sup>: (a)–(b) preparation schematic; (c)–(e) optical microscopy image, Raman spectrum, and atomic force microscopy image of zone plate. Sapphire phase type zone plate processed by chemical etching assisted laser modification<sup>[82]</sup>: (f)–(g) scanning electron microscopy images; (h) distribution of focused light intensity; (i) imaging characteristics

秒激光诱导选择性还原氧化石墨烯过程中,材料的透光率、反射率和折射率等参数会发生显著变化,因此该方法也可以用于波带片的加工<sup>[75]</sup>。通过对还原过程进行选择性控制,可以有效提高波带片的衍射效率<sup>[76]</sup>。

在光纤端面制备透镜是长期以来的加工难点,这是因为光纤直径极小,在光纤端面加工长焦距凸透镜非常困难。相比于凸透镜,波带片具有焦距长和易加工的特点。因此,如何将光纤与波带片结合从而在紧凑面积内实现聚焦需要深入研究。在无芯熔融石英光纤端面加工粗糙表面,将波带片与光纤耦合,从而实现振幅调制,可以有效解决光纤与波带片的集成问题<sup>[77]</sup>。类似地,在聚合物光纤端面同样可以加工出振幅型菲涅耳波带片,且其焦距可高达600 μm<sup>[78]</sup>。通过理论计算可知,菲涅耳波带片的焦距与入射光的波长负相关,即波长越长,焦距越短。利用这一规律,可以在光纤端面加工出焦距可变的振幅型波带片。Kim等<sup>[79]</sup>采用银膜作为振幅调制层加工出了菲涅耳波带片,他们发现,当光纤入射光波长变化范围在400~700 nm时,菲涅耳波带片的焦距变化范围为28.6~14.9 μm。这种焦距大幅度变化的特性是传统凸透镜无法实现的。此外,可以将端面加工有菲涅耳波带片的光纤作为探针浸入样品溶液中,激发SERS信号,测量拉曼光谱<sup>[80]</sup>。

相位型波带片通过将光束波前整形为特定的相位来实现光束在焦点处聚焦,因此对加工的形貌精度有着更高的要求。研究人员通过改进加工方法,利用激光加工的光刻胶作为掩模,采用化学刻蚀加工出了波带片;该波带片具有更高的形貌规则性,可以获得更高的衍射效率(最高可达12.1%<sup>[81]</sup>)。湿法刻蚀激光改性区的方法加工步骤更简单,可以在蓝宝石上加工出如图3(f)所示的焦距仅为340.5 μm的相位型菲涅耳波带片,该波带片的表面粗糙度小于工作波长的1/25,衍射效率可达37.5%。图3(h)和图3(i)展示了该波带片的良好成像能力<sup>[82]</sup>。

在加工石英相位型波带片方面,材料改性也是一种途径。虽然材料改性对加工过程中的脉宽、能量和速度都非常敏感,但改性区域可以位于材料内部,使波带片的光学特性不受环境介质折射率的影响,从而具有优良的聚焦成像性能<sup>[83]</sup>。将改性波带片和波导等结构在玻璃内进行耦合,可以直接用于测量波带片的衍射效率<sup>[84]</sup>。在改性加工的同时,可以通过改变波带片的结构来实现不同的光场调制,

如:在铌酸锂内部改性加工出菲涅耳波带片的一种变体,将调制区由环状变为螺旋状,就可以将入射光整形为涡旋光<sup>[85]</sup>。

相位型波带片中限制衍射效率的因素往往是加工区域烧蚀损伤散射和改性不稳定性,复合多层相位型波带片的体菲涅耳波带片可以提高波带片整体的均匀度,将衍射效率由不足10%提高到59.1%<sup>[73]</sup>。在多层次相位型波带片设计的基础上进行优化,将多层次相位型波带片中各级波带片的中心位置进行偏移,可以实现利用菲涅耳波带片分束的功能<sup>[86]</sup>。

除了在光学材料上通过烧蚀或改性的方式加工波带片以外,飞秒激光还可以通过双光子聚合3D打印的方式加工菲涅耳波带片,加工的高阶菲涅耳波带片的最高衍射效率可以达到68%<sup>[87]</sup>。与微透镜相比,菲涅耳波带片阵列很容易就可以实现100%的填充率,并保持着优秀的成像特性<sup>[88]</sup>。采用3D打印方式加工的经过改进设计的分形波带片可以应用到软X射线显微成像和太赫兹成像等方面。与其他微光学元件相比,波带片的尺寸较大。针对3D打印波带片效率低下的问题,研究人员采用振镜和压电位移台相结合的方式来提高打印效率<sup>[89]</sup>。针对微流体通道内部存在平整度差和难以集成光学元件的难题,研究人员通过双光子聚合垫平基底,将菲涅耳波带片集成在微流体通道中<sup>[90]</sup>。

### 3 飞秒激光电子动态调控及制备微纳光学器件

#### 3.1 基于时空整形的飞秒激光电子动态调控的原理

在加工微光学元件时,精度和效率通常是难以同时保证的,而利用时空整形飞秒激光电子动态调控可以同时提高加工结构的精度和加工效率。

通常情况下,从激光器中直接输出的激光在时间和空间上都呈高斯分布,非线性电离仅发生在光强极高的状态下;当材料的自由电子密度达到一定程度后,即使是金属材料也会呈现出很强的金属态,能反射大部分激光。因此,受自由电子密度时空分布的影响,材料吸收激光的时间和空间窗口很小,限制了加工的效率和精度<sup>[24]</sup>。由于飞秒激光的脉宽短于电子-晶格弛豫时间( $10^{-10} \sim 10^{-12}$  s),对激光进行时间整形的精度甚至可以短于电子弛豫时间( $10^{-13} \sim 10^{-15}$  s),因此,通过激光的时域整形可以调控材料的局部瞬时电子动态,实现调控材料的瞬时局

部特性,进而调控激光吸收的时间窗口,大大提高飞秒激光的加工效率和加工精度。在加工过程中未整形激光自由电子密度的空间分布受到限制,无法同时保证加工效率和加工精度。通过设计并改变激光光场的空间分布,可以改变自由电子密度的空间分布,进而改变能量的吸收和转移过程,实现高精度、高效率加工。因此,通过激光的时空整形进行电子动态调控,能影响材料中电子的激发机理、激发区域和激发程度,控制激光与材料的相互作用过程,实现新的制造方法,有效提高激光的加工效率和加工质量<sup>[24]</sup>。

未整形激光在加工过程中产生的自由电子密度远高于库仑势垒,从而导致严重的电子屏蔽效应,并且使热相变主导烧蚀过程。Jiang 等<sup>[91]</sup>于 2006 年建立了超短脉冲激光烧蚀介质的等离子体模型,用以研究自由电子的产生和分布;在这一模型的基础上,他们通过在时域上对激光进行整形,控制自由电子密度维持在略高于临界密度的状态,使非热相变过程(库仑爆炸等)占据主导地位,显著减少了烧蚀熔融石英产生的重铸层,获得了更高的加工质量<sup>[26]</sup>。通过调整整形后脉冲的子脉冲延时和子脉冲数量,可以显著提高相同能量下的激发电子数以及材料对能量的吸收<sup>[92-93]</sup>。在孔加工过程中,将激光整形为脉冲序列能降低等离子体对激光的反射,避免已加工孔壁的再次烧蚀,使更多的能量传递至孔底,提高了所加工微孔的深度<sup>[94]</sup>。在对激光进行

时间整形的基础上,采用水辅助背表面激光加工微孔,能有效提高激光的能量沉积效率;与未整形激光相比,采用水辅助背表面激光加工的去除效率可以提高 56 倍,最大深度可以提高 3 倍<sup>[95]</sup>。时间整形可以将激光整形为更多脉冲。在相同的总能量下,递减型脉冲串比递增型脉冲串具有更高的沉积效率<sup>[25]</sup>;与未整形脉冲相比,递减型脉冲串改性融石英时实现的刻蚀体积提高了 18 倍<sup>[96]</sup>。

未整形高斯激光的瑞利长度较短,束腰焦斑尺寸较小,相位、偏振状态均匀,极大地限制了飞秒激光的加工效率。通过对激光进行空间整形来改变这些参数,可以控制材料的自由电子密度和温度分布,实现材料局部可控选择性去除,从而提高加工质量和加工效率。受限于波动效应,未整形激光加工亚波长结构依赖于阈值效应,效率低,稳定性差。在金膜加工过程中,将激光整形为有相位差的两部分,由于衍射效应,这两部分激光聚焦后形成了两个紧邻的光斑,并激发了较高的自由电子密度,使金膜材料被去除,而自由电子密度未达到临界密度的中间区域则被保留,最终形成了仅为波长 1/14 宽度的纳米线<sup>[97]</sup>。

### 3.2 时空整形飞秒激光方法

研究人员采用多种方法和装置对激光进行时间和空间整形。在时间整形方面,本课题组设计并制造了如图 4(a)所示的一种用于产生激光脉冲串的

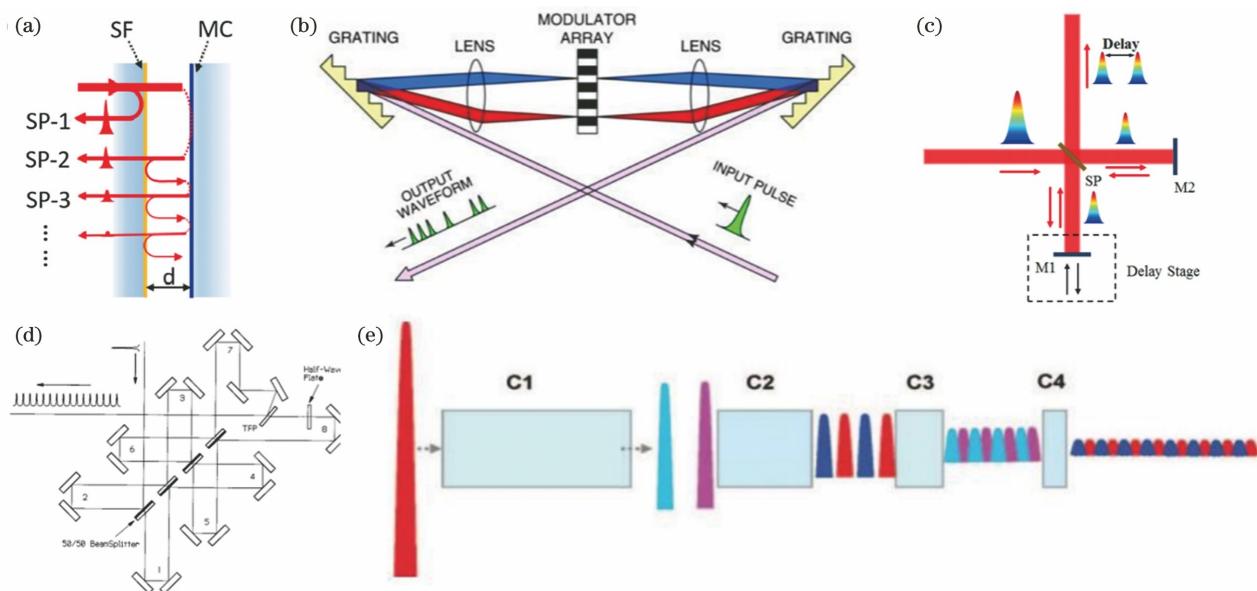


图 4 几种时域整形原理。(a) 脉冲序列产生器件的结构<sup>[98]</sup>;(b) 基于 4f 系统的时域整形系统<sup>[99]</sup>;(c) 利用迈克耳孙干涉仪形成脉冲序列<sup>[100]</sup>;(d) 利用级联迈克耳孙干涉仪形成脉冲序列<sup>[100]</sup>;(e) 利用双折射晶体产生脉冲序列<sup>[101]</sup>

Fig. 4 Several principles of temporal pulse shaping. (a) Structure of pulse train generator<sup>[98]</sup>; (b) temporal pulse shaping system based on 4f system<sup>[99]</sup>; (c) shaping pulse train by using Michelson interferometer<sup>[99]</sup>; (d) shaping pulse train by using cascade Michelson interferometer<sup>[100]</sup>; (e) shaping pulse train by birefringent crystal<sup>[101]</sup>

简易器件<sup>[98]</sup>,该器件通过分束薄膜的内部反射产生了各种时间分布的脉冲串。与其他的脉冲序列产生方式相比,这一方法具有结构紧凑、成本低、损伤阈值高且不受偏振方向限制的特点。由于该器件的结构相对简单,且具有可靠性高、成本低的特点,比较适合大规模工业应用。

图4(b)所示的基于4f系统的时域整形系统是目前最常用的商用时域整形系统。一束激光经光栅衍射后,在空间上按波长展开,通过透镜使不同波长的光平行照射到空间光调制器上,空间光调制器对空间展开的激光添加不同的相位延迟,激光经由一块透镜和一个光栅会聚后形成出射光束(脉冲序列)。该系统的价格较贵,损伤阈值较低,可以产生脉冲个数、脉冲能量比、脉冲延时间隔不同的激光脉冲序列<sup>[99]</sup>。

图4(c)所示的基于迈克耳孙干涉仪的时域整形系统是实验室中常用的时域整形系统。利用分束膜将激光分为两束,通过调整分束后的激光光程差实现激光延迟调制,再采用反射镜将两束光合为一束。单个迈克耳孙干涉仪仅能产生子脉冲数为2的脉冲序列,但可以通过图4(d)所示的多个干涉仪的串联实现多脉冲数的脉冲序列产生<sup>[100]</sup>,其难点在于子脉冲的光轴重合调节。

另一种产生脉冲序列的方法是采用双折射晶体,如图4(e)所示,利用光速不同的寻常光与非常光可以简单地产生两个偏振方向不同的子脉冲,通过双折射晶体的串联可以产生包含更多脉冲数的整形光。但是该方法产生的子脉冲的偏振互相垂直的特性不可调节,因此该方法仅适用于特殊场合。

对激光进行空间整形的方法可以分为静态整形和动态整形两种。静态整形主要包括利用锥透镜、柱面镜、掩模版以及特殊的光路等对激光进行整形。锥透镜为圆锥形棱镜,主要用于贝塞尔光束及环状光束的整形,最早于1954年由McLeod<sup>[102]</sup>设计并用于成像中,1978年起被用于激光加工<sup>[103]</sup>。高斯光束经锥透镜整形后,其截面光强在相当长的一段距离内以贝塞尔函数分布<sup>[104]</sup>。自此,贝塞尔光束在光学领域逐渐得到广泛运用<sup>[105]</sup>。相较于高斯光束,贝塞尔光束最典型的特征是加工焦深长,本课题组在透明材料中加工出了深径比高达1000:1的通道。通过将时间整形和空间整形结合,采用双脉冲贝塞尔光束改性融石英,可以实现高深径比微通道的刻蚀;当双脉冲间隔为20~40 ps时,蚀刻深度的提高程度最大,达到未整形脉冲刻蚀深度的

13倍<sup>[106]</sup>。

柱面镜可以在单一轴向会聚或发散光束,将圆形光斑整形为线形光斑。类似地,利用柱面镜的单向聚焦特性也可以对线性光斑进行整形,最终得到圆形光斑。研究人员常用柱面镜将椭圆激光光斑整形为圆形光斑或在成像中校正某个维度的像散,早在2003就有科研人员将其引入飞秒激光加工中用光束的空间分布整形<sup>[107]</sup>。

干涉作为一种常见的空间光整形方法,常被用于产生条纹状或点阵状干涉条纹<sup>[108]</sup>。常用的整形光路是用分束镜将光束分为两束或更多束,然后采用反射镜使光束从不同的角度入射到同一位置,产生干涉。但飞秒激光的脉宽较短,对不同激光束的时间重合要求较高,因此现在多用相位掩模版产生干涉。

实际的加工过程往往是复杂的,这就要求对光场进行非标准设计和实现,如多焦点、光学涡旋等,对于这些特殊设计的光场,静态整形光学元件往往并不能完全满足加工需求。因此,动态整形方法被研究人员提出并用于实践。目前,动态整形中应用比较广的设备是相位型液晶空间光调制器(SLM)和数字微镜器件(DMD)。SLM利用液晶的双折射效应,使反射光携带不同的相位信息。这一特性使得相位型SLM具有对单个像素进行独立相位调制的功能,可以实现激光在空域的任意整形<sup>[109-111]</sup>;反射光的相位分布经过调制后,在远场传播过程中以干涉的方式实现激光能量的空间分布整形,通过算法计算相位信息,可以实现特定的场强分布<sup>[112]</sup>。与相位型SLM不同的是,DMD通过振幅调制来实现激光在空域上的整形。DMD表面微镜的旋转可以调整激光的出射角度,使固定出射方向上对应像素点的亮度发生整体性调节,从而实现振幅调制。因此,在场强分布的空间调制上,DMD不需要复杂的算法,但由于反射光不携带相位信息,因此仅适用于场强的空间调制。

### 3.3 时空整形飞秒激光制备微纳光学器件

#### 3.3.1 时间整形提高激光能量沉积效率

最常见的时问整形方式是将脉冲分为两个子脉冲。赵梦娇<sup>[113]</sup>基于电子动态调控理论,通过飞秒激光与电介质相互作用的多尺度模型和等离子体模型,解释了时间整形飞秒激光增强融石英刻蚀效率的机理,并利用这一机理实现了高质量微透镜阵列的快速制造;如图5(a)所示,得到的微透镜阵列具有优良的阵列均匀度、几何特征参数、光学性能参数

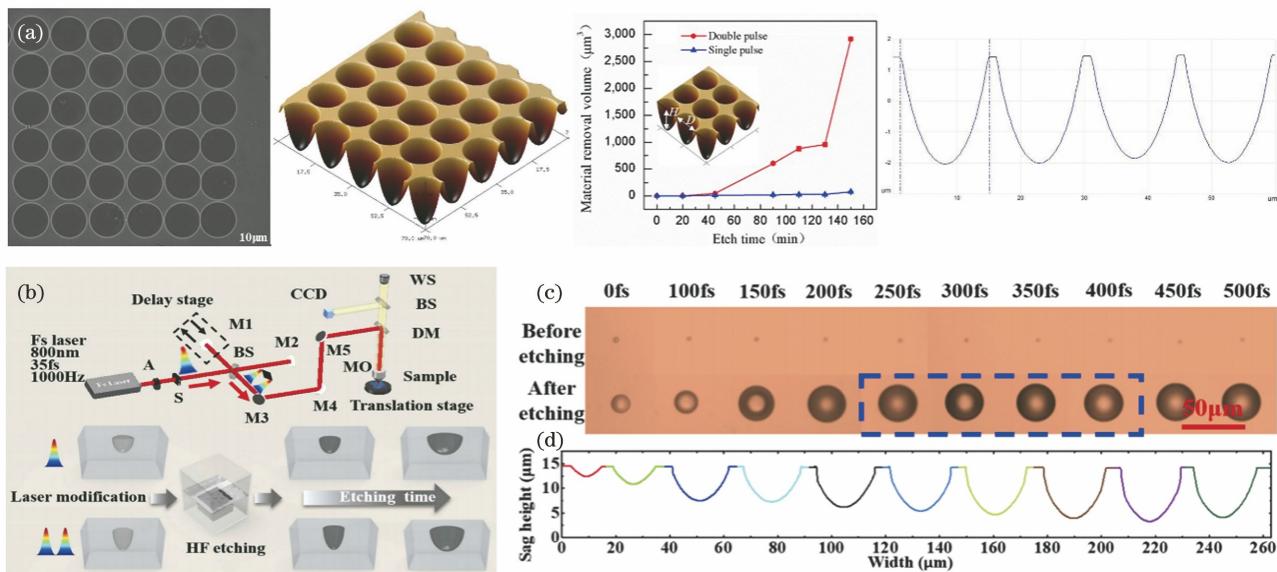


图 5 利用时空整形激光提高化学刻蚀效率。(a) 刻蚀辅助双脉冲时域整形加工的微透镜阵列<sup>[113]</sup>; (b)~(d) 不同延迟双脉冲刻蚀微透镜的光路图、光学显微镜图像及轮廓图<sup>[114]</sup>

Fig. 5 Improving chemical etching efficiency by temporal/spatial pulse shaping laser. (a) Microlens array processed by etching assisted temporal double pulse shaping<sup>[113]</sup>; (b)–(d) optical path chart, optical microscopy images, and profile of microlens etched by double-pulse with different delay values<sup>[114]</sup>

和表面粗糙度。Qin 等<sup>[114]</sup>采用图 5(b)所示的光路,通过调节时间整形中的脉冲延迟来调整激光的吸收效率和改性强度,实现了图 5(c)和图 5(d)所示的不同数值孔径微透镜的加工,数值孔径可以从 0.1 调节至 0.65。

对激光同时进行时间整形和空间整形可以控制材料表面等离子激元(SPP)的周期性能量沉积。Liu 等<sup>[115]</sup>通过控制时间整形激光两个子脉冲的偏振方向来控制 SPP 的强度,在两个子脉冲偏振相互垂直的情况下,激光诱导周期性结构的方向始终与扫描方向垂直。采用这种方式,只需调节扫描方向就可以灵活地控制表面可见光光栅的方向,加工出的光栅如图 6(a)所示。可见,在不同的入射光方向下,光栅显示出了不同的图案。

### 3.3.2 静态空间整形高效加工周期性结构

仅采用空间整形的方法也能改变激光诱导周期性结构,如,利用干涉产生的干涉条纹在材料表面加工固定周期的条纹图案,这种清晰的条纹图案可以增强激光与空间驻场 SPP 波的相干耦合,导致激光诱导周期性结构的周期降低(在 GaN 表面可以降至 200 nm<sup>[116]</sup>)。利用这种方法制作的衍射光栅的周期更均匀,结构色更明亮。应用于衍射光栅的激光诱导周期性结构的加工需要能量密度较低且分布均匀的光斑。普通高斯光斑聚焦用于加工结构色图案时往往效率很低,采用柱面镜聚焦激光在材料表面

诱导周期性结构可以大大提高加工效率,结合高重复频率激光,加工效率可以提高 7 个数量级<sup>[117]</sup>。通过牺牲一部分加工效率,降低扫描速度,可以使结构的形貌更规则,分布更均匀<sup>[118]</sup>。这一技术也可以用在氧化石墨烯薄膜上,如图 6(b)所示,通过周期性地还原氧化石墨烯实现了二维材料衍射光栅的加工<sup>[119]</sup>。由于柱面镜在一个维度上不对激光进行整形,光斑尺寸较大,因此在加工条带结构时可以有效提高加工效率。这一技术在晶体硅表面应用时,可以将晶硅周期性地调制为非晶硅。由于柱面镜非烧蚀方式加工时材料未发生烧蚀,改性结构均匀规则,因此进一步采用化学刻蚀的方法就可以制备图 6(c)所示的大面积、长程均匀的光学衍射光栅<sup>[120]</sup>。

利用相位掩模版对柱面镜产生的狭长光斑进行进一步调制,使光斑的光强周期性分布,可以在光栅上实现周期性折射率调制,形成布拉格光栅。随着激光曝光时间延长,能量密度较高区域的折射率调制将再次被擦除,布拉格光栅被拆分成图 6(d)所示的两段,叠加后的新光栅的光谱具有一个透射窗口区,因而该光栅被称为相移光纤光栅(PS-FBG)<sup>[121]</sup>。也可以将利用这种方法加工的两段布拉格光栅进行融合拼接,利用融合区的负折射率调制,获得相位偏移型布拉格光栅<sup>[122]</sup>。同样,可以采用相位掩模版对柱面镜产生的狭长光斑进行调制,在光纤上加工

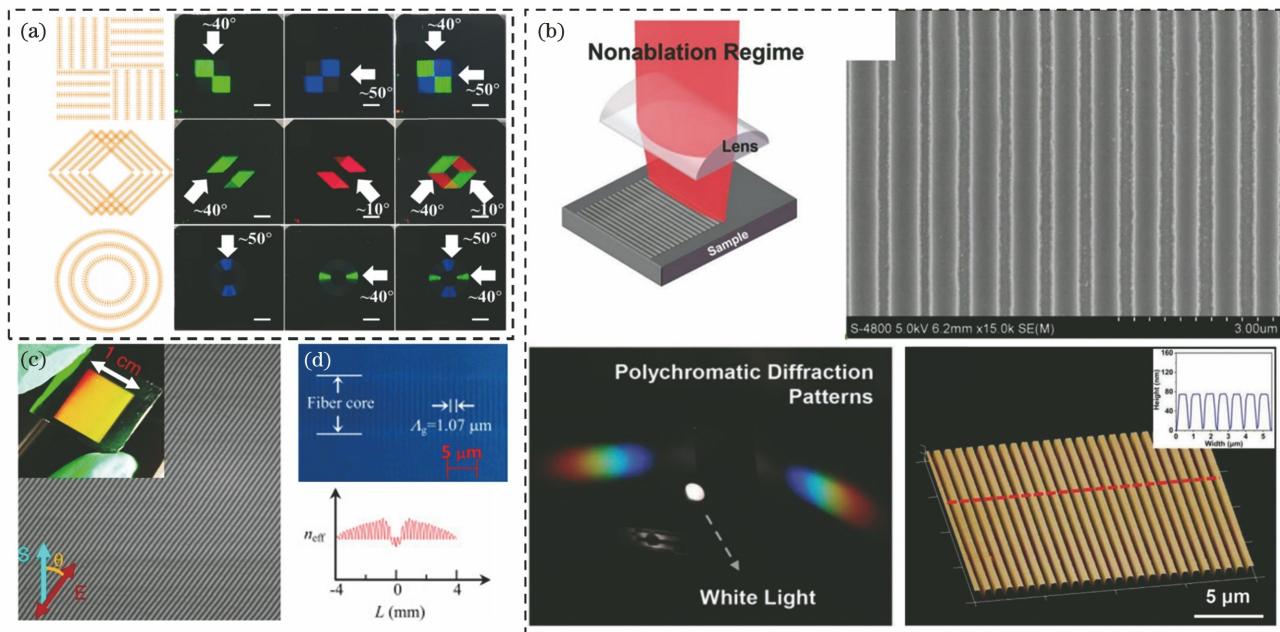


图 6 不同方法加工得到的光栅。(a)利用时间整形电子动态调控方法加工的光栅及其衍射图案<sup>[115]</sup>;(b)用柱面镜整形激光在二维材料表面诱导得到的光栅<sup>[119]</sup>;(c)利用柱面镜非烧蚀方式加工的规则光栅<sup>[120]</sup>;(d)在光纤中加工的相移布拉格光栅及其折射率变化<sup>[121]</sup>

Fig. 6 Gratings processed by different methods. (a) Grating processed by electrons dynamics controlled temporally shaped pulse and grating diffraction patterns<sup>[115]</sup>; (b) grating induced by cylindrical mirror shaping laser on a two-dimensional material surface<sup>[119]</sup>; (c) regular grating processed by non-ablative method of a cylindrical mirror<sup>[120]</sup>; (d) phase shifted Bragg grating processed in optical fiber and its refractive index change<sup>[121]</sup>

光栅,随后将光纤倾斜再次曝光,并使两次曝光的改性部分叠加重合,同一段光栅具有两个不同参数的布拉格光栅的共振特征,然后调节光纤的倾斜角度,就可以调节窗口段的强度和波长。该方法简单,能够减小相移光栅的结构尺寸<sup>[123]</sup>。在这一整形方式的基础上,将柱面镜替换为一个长焦距柱面镜和一个短焦距柱面镜的叠加,能够实现聚焦程度的精细调节,获得更好的加工质量<sup>[124]</sup>。除了利用掩模版外,还可以通过干涉进一步调制柱面镜产生的光场,如采用柱面镜和 Talbot 干涉仪叠加,使用紫外飞秒激光获得周期约为 500 nm 的条纹光强分布,用这一光场加工光纤能实现超过 50 dB 的布拉格反射<sup>[125]</sup>。除柱面镜外,狭缝也可以用于产生非对称性结构。高斯光斑通过狭缝后被整形为椭圆形光场,光场的长短轴比与狭缝的宽度呈负相关关系。这种椭圆光场可以在非烧蚀的情况下在金膜上制备各向异性的微凸起结构<sup>[126]</sup>,也可以在烧蚀的情况下在金膜上制备各向异性的椭圆微孔。这种微孔可以用于制备图 7(a)和图 7(b)所示的基于相位和幅度调制的圆偏振、线偏振复用的双通道太赫兹超表面,具有良好的波前控制能力<sup>[127]</sup>。

对于微光学元件而言,在材料内部加工各种空间分布的条纹结构同样重要。空间中条纹结构的制备可以采用贝塞尔光束进行加工,以提高加工效率。与高斯光斑逐点加工布拉格光栅线结构相比,贝塞尔光束的高长径比可以实现单脉冲加工一条固定长度的线状改性结构,改性区不产生多脉冲引起的纳米波纹结构,因此 s 偏振和 p 偏振的衍射效率没有区别<sup>[128-129]</sup>。将线状改性结构用于加工厚度相同的体折射率改变结构时,加工速度和加工质量均较高。贝塞尔光束可以用于在材料内部加工特定厚度的菲涅耳波带片等结构<sup>[130]</sup>。贝塞尔光束也可以用于加工连贯的微孔结构,这种微孔结构的折射率对比度高,用其加工的布拉格光栅最高可以达到 40 dB 的共振强度<sup>[131]</sup>。需要注意的是,不同脉宽的贝塞尔光束在融石英材料中产生的折射率调制不同,仅有特定脉宽区间的贝塞尔光束才能在融石英中产生连贯的微孔结构<sup>[132]</sup>。贝塞尔光束独特的光强分布还可以实现其他应用,当贝塞尔光束聚焦在材料表面时,产生的烧蚀槽切面呈弧形,通过简单的拼接就可以在 PMMA 和融石英表面加工平凸柱面透镜<sup>[6,133]</sup>。

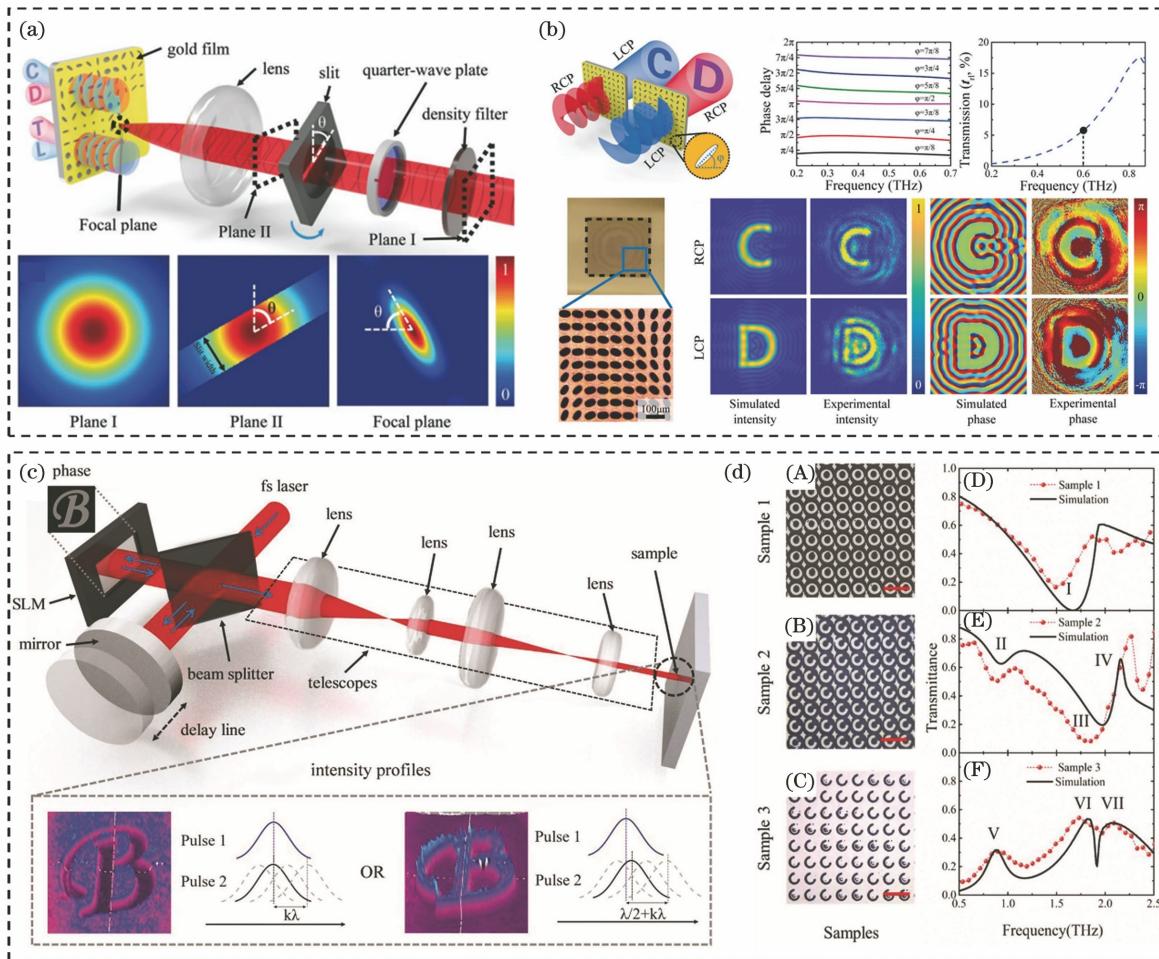


图 7 利用动态整形技术制备超表面。(a)飞秒激光狭缝整形制作太赫兹超表面<sup>[127]</sup>;(b)圆偏振复用太赫兹全息超表面<sup>[127]</sup>;(c)采用 SLM 干涉整形光场<sup>[136]</sup>; (d) SLM 干涉整形光场加工太赫兹超表面及其太赫兹透射光谱<sup>[136]</sup>

Fig. 7 Fabrication of different metasurfaces by dynamic shaping techniques. (a) Fabrication of terahertz hypersurface by femtosecond laser slit shaping<sup>[127]</sup>; (b) circular polarization multiplexing terahertz holographic hypersurface<sup>[127]</sup>; (c) using SLM interference shaping light field<sup>[136]</sup>; (d) fabrication of terahertz hypersurface by SLM interference shaping light field and its terahertz transmission spectrum<sup>[136]</sup>

### 3.3.3 动态空间整形提高加工效率和灵活性

相比于采用透镜或掩模版的静态整形方式,采用 SLM 进行动态整形可以得到更灵活的光场,实现更多的加工方式。通过设计相位的分布,可以模拟多光束干涉的效果,一次加工大量的二维周期性结构,然后通过拼接就可以制备大面积二维衍射光栅<sup>[134]</sup>。贝塞尔光束作为平面波干涉产生的光场,也可以利用 SLM 对高斯光场整形获得。通过调节 SLM 的相位图,可以灵活地控制贝塞尔光束无衍射区的长度和光强分布<sup>[16]</sup>。通过控制贝塞尔光束在材料内加工的改性区长度,在材料内加工不同深度的改性阵列,就可以加工形成全息图的超表面<sup>[135]</sup>。在利用 SLM 产生干涉光场方面,也可以将 SLM 与迈克耳孙干涉仪结合,如图 7(c)所示,用 SLM 替代其中的一个反射镜,通过两臂的干涉实现光强分布

的控制,使材料表面发生选择性烧蚀。这个方法避免了计算 SLM 相位图的复杂过程,可以简单快速地实现图形调节和灰度调节,提高了 SLM 整形激光的加工效率<sup>[136]</sup>。

SLM 也可以用于将入射光调制成多个光点,以提高加工效率。由于通常的入射光场是高斯光束,为提高不同光点加工的均匀性,在整形中需要对相位图进行额外设计,使不同焦点处的光强尽可能均匀化<sup>[137]</sup>。这些多光点整形方法都需要大量的算力用于计算相位图,Wang 等<sup>[134]</sup>采用更简单的方式将光束进行分束,即,采用扇形分布的  $0 \sim \pi$  相位将光束均匀地分为多个点阵,大大降低了多光点整形的难度,提高了衍射光栅等周期性结构的加工效率。

整形后的多光点光场除了可以用于直接在材料上加工点阵外,也可以用于并行 3D 打印<sup>[137]</sup>加工,

或者进一步采用湿法刻蚀加工微透镜阵列<sup>[138-139]</sup>。通过进一步调节相位图,可以使每个焦点处的能量按任意比例分布,实现各焦点对材料进行不同程度的改性,进而在湿法刻蚀的辅助下获得不同尺寸的微透镜<sup>[139]</sup>。由于SLM相位图可以灵活地控制焦点的位置,因此,通过SLM相位图的变化可以控制焦点的位置移动。这种方式可以代替平移台的移动或振镜的运动进行加工,通过快速变换相位图能大幅提高3D打印微透镜结构的效率<sup>[140]</sup>。进一步控制焦点的空间分布,使焦点沿轴向排列,还可以改变单脉冲下改性区的形貌,调节刻蚀后的微透镜形貌,从而大大提高湿法刻蚀激光改性区制造微透镜阵列的效率和灵活性<sup>[141]</sup>。

## 4 结束语

微光学元件作为近代光学器件的重要组成部分,在加工、通信、医疗等领域有着重要的应用。

本文对飞秒激光加工光学元件的方法进行了综述,以光栅、微透镜和波带片为例,介绍了飞秒激光加工微光学元件的典型技术手段,包括激光直写去除、激光3D打印、激光改性及湿法刻蚀辅助激光加工等方法。未整形激光的加工精度、效率存在不可调和的矛盾;对飞秒激光进行时间和空间整形,使光场在时间和空间上不局限于高斯分布,能有效控制加工过程中材料的电子动态,提高加工的精度和效率。对飞秒激光进行时间整形,能有效提高激光的能量沉积效率,丰富飞秒激光的应用场景;对飞秒激光进行空间整形不仅是提高加工精度超越衍射极限的重要途径,也是提高加工效率实现大面积加工的主要方法。

因此,合适的时空整形方法是提高飞秒激光加工微纳光学元件精度、效率和适用范围的重要方法。目前,时空整形飞秒激光电子动态调控加工光学元件仍面临着时间整形技术相对单一、与空间整形方法结合不充分等缺点。高精度空间整形耗费算力,且不耐受高功率激光。下一步需要深刻理解电子动态调控的机理,进一步发展微纳光学元件制造中的时间、空间整形技术以及时空整形的结合方式,如,在Li等<sup>[136]</sup>的SLM与迈克耳孙干涉仪结合的基础上,通过设计其中一个子脉冲的空间相位及强度分布,实现材料不同位置能量沉积效率的控制。进一步,对时间整形后激光的各子脉冲分别进行空间整形,对自由电子密度的时间和空间分布进行更精确、灵活的调控。更进一步,对激光各子脉冲的偏振、相

位等参数分别进行整形,实现精确设计、精确控制激光加工成形和改性过程。随着对时空整形飞秒激光加工技术的进一步研究,飞秒激光将进一步拓宽微纳光学元件的设计范围。

## 参 考 文 献

- [1] Jiang L, Zhao L J, Wang S M, et al. Femtosecond laser fabricated all-optical fiber sensors with ultrahigh refractive index sensitivity: modeling and experiment[J]. Optics Express, 2011, 19(18): 17591-17598.
- [2] Hua J G, Ren H, Jia A, et al. Convex silica microlens arrays via femtosecond laser writing[J]. Optics Letters, 2020, 45(3): 636-639.
- [3] Zhang F, Duan J A, Zhou X F, et al. Broadband and wide-angle antireflective subwavelength microstructures on zinc sulfide fabricated by femtosecond laser parallel multi-beam[J]. Optics Express, 2018, 26(26): 34016-34030.
- [4] Wang Z P, Li X W, Jiang L, et al. High-quality micropattern printing by interlacing-pattern holographic femtosecond pulses[J]. Nanophotonics, 2020, 9(9): 2895-2904.
- [5] Wu D, Chen Q D, Niu L G, et al. 100% fill-factor aspheric microlens arrays (AMLA) with sub-20-nm precision[J]. IEEE Photonics Technology Letters, 2009, 21(20): 1535-1537.
- [6] Luo Z, Wang C, Yin K, et al. Rapid fabrication of cylindrical microlens array by shaped femtosecond laser direct writing[J]. Applied Physics A, 2016, 122(7): 633.
- [7] Gamaly E. Femtosecond laser-matter interaction: theory, experiments and applications[M]. Singapore: Jenny Stanford Publishing, 2011.
- [8] Juodkazis S, Nishimura K, Tanaka S, et al. Laser-induced microexplosion confined in the bulk of a sapphire crystal: evidence of multimegabar pressures[J]. Physical Review Letters, 2006, 96(16): 166101.
- [9] Cheng J, Liu C S, Shang S, et al. A review of ultrafast laser materials micromachining[J]. Optics & Laser Technology, 2013, 46: 88-102.
- [10] Jiang L, Tsai H L. Energy transport and material removal in wide bandgap materials by a femtosecond laser pulse[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2005, 48(3/4): 487-499.
- [11] Stoian R, Rosenfeld A, Ashkenasi D, et al. Surface charging and impulsive ion ejection during ultrashort pulsed laser ablation[J]. Physical Review Letters, 2002, 88(9): 097603.

- [12] Glezer E N, Mazur E. Ultrafast-laser driven micro-explosions in transparent materials [J]. *Applied Physics Letters*, 1997, 71(7): 882-884.
- [13] Jiang L, Tsai H L. Energy transport and nanostructuring of dielectrics by femtosecond laser pulse trains [J]. *Journal of Heat Transfer*, 2006, 128(9): 926-933.
- [14] Momma C, Chichkov B N, Nolte S, et al. Short-pulse laser ablation of solid targets [J]. *Optics Communications*, 1996, 129(1/2): 134-142.
- [15] Yuan Y, Jiang L, Li X, et al. Laser photonic-reduction stamping for graphene-based micro-supercapacitors ultrafast fabrication [J]. *Nature Communications*, 2020, 11: 6185.
- [16] Yao Z L, Jiang L, Li X W, et al. Non-diffraction-length, tunable, Bessel-like beams generation by spatially shaping a femtosecond laser beam for high-aspect-ratio micro-hole drilling[J]. *Optics Express*, 2018, 26(17): 21960-21968.
- [17] Huang J, Jiang L, Li X W, et al. Fabrication of highly homogeneous and controllable nanogratings on silicon via chemical etching-assisted femtosecond laser modification[J]. *Nanophotonics*, 2019, 8(5): 869-878.
- [18] 史杨, 许兵, 吴东, 等. 飞秒激光直写技术制备功能化微流控芯片研究进展[J]. *中国激光*, 2019, 46(10): 1000001.  
Shi Y, Xu B, Wu D, et al. Research progress on fabrication of functional microfluidic chips using femtosecond laser direct writing technology [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2019, 46(10): 1000001.
- [19] 郭恒, 闫剑锋, 李欣, 等. 空间整形飞秒激光图案化加工氧化石墨烯[J]. *中国激光*, 2021, 48(2): 0202018.  
Guo H, Yan J F, Li X, et al. Patterned graphene oxide by spatially-shaped femtosecond laser [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, 48(2): 0202018.
- [20] Sugioka K, Cheng Y. Ultrafast lasers: reliable tools for advanced materials processing [J]. *Light: Science & Applications*, 2014, 3(4): e149.
- [21] Gattass R R, Mazur E. Femtosecond laser micromachining in transparent materials[J]. *Nature Photonics*, 2008, 2(4): 219-225.
- [22] Sundaram S K, Mazur E. Inducing and probing non-thermal transitions in semiconductors using femtosecond laser pulses [J]. *Nature Materials*, 2002, 1(4): 217-224.
- [23] Sakakura M, Terazima M. Initial temporal and spatial changes of the refractive index induced by focused femtosecond pulsed laser irradiation inside a glass [J]. *Physical Review B*, 2005, 71 (2): 024113.
- [24] Jiang L, Wang A D, Li B, et al. Electrons dynamics control by shaping femtosecond laser pulses in micro/nanofabrication: modeling, method, measurement and application[J]. *Light: Science & Applications*, 2018, 7(2): 17134.
- [25] Du K, Li X W, Zhang H, et al. Controllable photon energy deposition efficiency in laser processing of fused silica by temporally shaped femtosecond pulse: experimental and theoretical study [J]. *Optics & Laser Technology*, 2020, 128: 106265.
- [26] Xu C C, Jiang L, Leng N, et al. Ultrafast laser ablation size and recast adjustment in dielectrics based on electron dynamics control by pulse train shaping[J]. *Chinese Optics Letters*, 2013, 11(4): 41403-41406.
- [27] Zhao M, Hu J, Jiang L, et al. Controllable high-throughput high-quality femtosecond laser-enhanced chemical etching by temporal pulse shaping based on electron density control [J]. *Scientific Reports*, 2015, 5: 13202.
- [28] 梁密生, 李欣, 王猛猛, 等. 空间整形飞秒激光加工金属微细槽实验研究[J]. *中国激光*, 2021, 48(2): 0202003.  
Liang M S, Li X, Wang M M, et al. Spatially-shaped femtosecond laser manufacturing of microgrooves in metals [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, 48(2): 0202003.
- [29] 丁铠文, 王聪, 罗志, 等. 超快激光光束整形原理与方法及其在功能性微结构制造中的应用[J]. *中国激光*, 2021, 48(2): 0202005.  
Ding K W, Wang C, Luo Z, et al. Principle and method of ultrafast laser beam shaping and its application in functional microstructure fabrication [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, 48 (2): 0202005.
- [30] 凌进中. 基于全息工艺的特种光栅的制备与应用研究[D]. 上海: 上海理工大学, 2013.  
Ling J Z. Research on fabrication and applications of special holographic gratings[D]. Shanghai: University of Shanghai for Science & Technology, 2013.
- [31] Yao J W, Zhang C Y, Liu H Y, et al. Selective appearance of several laser-induced periodic surface structure patterns on a metal surface using structural colors produced by femtosecond laser pulses [J]. *Applied Surface Science*, 2012, 258 (19): 7625-7632.
- [32] Campanella C E, Cuccovillo A, Campanella C, et al. Fibre Bragg grating based strain sensors: review of technology and applications[J]. *Sensors*,

- 2018, 18(9): 3115.
- [33] Dammann H, Görtler K. High-efficiency in-line multiple imaging by means of multiple phase holograms [J]. Optics Communications, 1971, 3 (5): 312-315.
- [34] Vorobyev A Y, Guo C L. Colorizing metals with femtosecond laser pulses [J]. Applied Physics Letters, 2008, 92(4): 041914.
- [35] Huang J, Jiang L, Li X W, et al. Controllable photonic structures on silicon-on-insulator devices fabricated using femtosecond laser lithography [J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2021, 13 (36): 43622-43631.
- [36] Chen Q D, Lin X F, Niu L G, et al. Dammann gratings as integratable micro-optical elements created by laser micronanofabrication via two-photon photopolymerization [J]. Optics Letters, 2008, 33 (21): 2559-2561.
- [37] Xu L Q, Wang C W, Qi X B, et al. Femtosecond laser direct writing continuous phase vortex gratings with proportionally distributed diffraction energy [J]. Applied Physics Letters, 2021, 119 (13): 131101.
- [38] Machida M, Nakajima Y, Torres-Mapa M L, et al. Shrinkable silver diffraction grating fabricated inside a hydrogel using 522-nm femtosecond laser [J]. Scientific Reports, 2018, 8: 187.
- [39] Martinez A, Dubov M, Khrushchev I, et al. Direct writing of fibre Bragg gratings by femtosecond laser [J]. Electronics Letters, 2004, 40 (19): 1170-1172.
- [40] Zhou X, Dai Y T, Karanja J M, et al. Fabricating phase-shifted fiber Bragg grating by simple postprocessing using femtosecond laser [J]. Optical Engineering, 2017, 56(2): 027108.
- [41] Takashima H, Fukuda A, Maruya H, et al. Fabrication of a nanofiber Bragg cavity with high quality factor using a focused helium ion beam [J]. Optics Express, 2019, 27(5): 6792-6800.
- [42] Florea C, Sanghera J S, Aggarwal I D. Direct-write gratings in chalcogenide bulk glasses and fibers using a femtosecond laser [J]. Optical Materials, 2008, 30(10): 1603-1606.
- [43] Ma W Q, Zhang P Q, Zhou W J, et al. Femtosecond-laser direct-writing volume phase gratings inside Ge-As-S chalcogenide glass [J]. Ceramics International, 2020, 46 (11): 17599-17605.
- [44] Ma W Q, Zhang P Q, Zhou W J, et al. Diffraction grating fabricated on chalcogenide glass fiber end surfaces with femtosecond laser direct writing [J]. Journal of Lightwave Technology, 2021, 39 (7): 2136-2141.
- [45] Wei D, Wang C, Xu X, et al. Efficient nonlinear beam shaping in three-dimensional lithium niobate nonlinear photonic crystals [J]. Nature Communications, 2019, 10: 4193.
- [46] Liu S, Switkowski K, Xu C, et al. Nonlinear wavefront shaping with optically induced three-dimensional nonlinear photonic crystals [J]. Nature Communications, 2019, 10: 3208.
- [47] 李建军, 褚春艳, 卢玮彤, 等. 微透镜阵列的制备与应用研究进展 [J]. 光学学报, 2021, 41(21): 2100001.
- [48] Li J J, Chu C Y, Lu W T, et al. Development of microlens arrays: from fabrication to photonic applications [J]. Acta Optica Sinica, 2021, 41(21): 2100001.
- [49] Gissibl T, Thiele S, Herkommer A, et al. Two-photon direct laser writing of ultracompact multi-lens objectives [J]. Nature Photonics, 2016, 10(8): 554-560.
- [50] Florian C, Piazza S, Diaspro A, et al. Direct laser printing of tailored polymeric microlenses [J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2016, 8 (27): 17028-17032.
- [51] Sun Y L, Dong W F, Yang R Z, et al. Dynamically tunable protein microlenses [J]. Angewandte Chemie International Edition, 2012, 51(7): 1558-1562.
- [52] Tian Z N, Wang L J, Chen Q D, et al. Beam shaping of edge-emitting diode lasers using a single double-axial hyperboloidal micro-lens [J]. Optics Letters, 2013, 38(24): 5414-5417.
- [53] Lin J Q, Kan Y D, Jing X, et al. Design and fabrication of a three-dimensional artificial compound eye using two-photon polymerization [J]. Micromachines, 2018, 9(7): 336.
- [54] Li Y Z, Park S, Fullager D B, et al. Near-infrared transmittance enhancement using fully conformal antireflective structured surfaces on microlenses fabricated by direct laser writing [J]. Optical Engineering, 2019, 58(1): 010501.
- [55] Lin C H, Jiang L, Chai Y H, et al. Fabrication of microlens arrays in photosensitive glass by femtosecond laser direct writing [J]. Applied Physics A, 2009, 97(4): 751-757.
- [55] Chen F, Liu H W, Yang Q, et al. Maskless fabrication of concave microlens arrays on silica glasses by a femtosecond-laser-enhanced local wet etching method [J]. Optics Express, 2010, 18(19): 20334-20343.

- [56] Deng Z F, Yang Q, Chen F, et al. Fabrication of large-area concave microlens array on silicon by femtosecond laser micromachining[J]. Optics Letters, 2015, 40(9): 1928-1931.
- [57] Liu X Q, Chen Q D, Guan K M, et al. Dry-etching-assisted femtosecond laser machining[J]. Laser & Photonics Reviews, 2017, 11(3): 1600115.
- [58] Liu X Q, Yang S N, Sun Y L, et al. Ultra-smooth micro-optical components of various geometries[J]. Optics Letters, 2019, 44(10): 2454-2457.
- [59] Sohn I B, Choi H K, Noh Y C, et al. Laser assisted fabrication of micro-lens array and characterization of their beam shaping property[J]. Applied Surface Science, 2019, 479: 375-385.
- [60] Bian H, Wei Y, Yang Q, et al. Direct fabrication of compound-eye microlens array on curved surfaces by a facile femtosecond laser enhanced wet etching process[J]. Applied Physics Letters, 2016, 109(22): 221109.
- [61] Deng Z F, Chen F, Yang Q, et al. Compound eyes: dragonfly-eye-inspired artificial compound eyes with sophisticated imaging [J]. Advanced Functional Materials, 2016, 26(12): 1853.
- [62] Liu X Q, Yang S N, Yu L, et al. Rapid engraving of artificial compound eyes from curved sapphire substrate[J]. Advanced Functional Materials, 2019, 29(18): 1900037.
- [63] Cao J J, Hou Z S, Tian Z N, et al. Bioinspired zoom compound eyes enable variable-focus imaging [J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2020, 12(9): 10107-10117.
- [64] Deng Z F, Yang Q, Chen F, et al. High-performance laser beam homogenizer based on double-sided concave microlens[J]. IEEE Photonics Technology Letters, 2014, 26(20): 2086-2089.
- [65] Wei Y, Yang Q, Bian H, et al. Fabrication of high integrated microlens arrays on a glass substrate for 3D micro-optical systems [J]. Applied Surface Science, 2018, 457: 1202-1207.
- [66] Hu Y L, Rao S L, Wu S Z, et al. Optofluidic microlenses: all-glass 3D optofluidic microchip with built-in tunable microlens fabricated by femtosecond laser-assisted etching[J]. Advanced Optical Materials, 2018, 6(9): 1870035.
- [67] He Z Q, Lee Y H, Chanda D, et al. Adaptive liquid crystal microlens array enabled by two-photon polymerization[J]. Optics Express, 2018, 26(16): 21184-21193.
- [68] Zheng C, Hu A M, Kihm K D, et al. Femtosecond laser fabrication of cavity microball lens (CMBL) inside a PMMA substrate for super-wide angle imaging[J]. Small, 2015, 11(25): 3007-3016.
- [69] Zheng C, Hu A M, Li R Z, et al. Fabrication of embedded microball lens in PMMA with high repetition rate femtosecond fiber laser[J]. Optics Express, 2015, 23(13): 17584-17598.
- [70] Ocier C R, Richards C A, Bacon-Brown D A, et al. Direct laser writing of volumetric gradient index lenses and waveguides [J]. Light: Science & Applications, 2020, 9: 196.
- [71] Xu C, Zhang F, Lu S Q, et al. Gold filled in Fresnel zone plate fabricated by femtosecond laser on fiber tip[J]. Optical Fiber Technology, 2021, 64: 102572.
- [72] Watanabe W, Kuroda D, Itoh K, et al. Fabrication of Fresnel zone plate embedded in silica glass by femtosecond laser pulses[J]. Optics Express, 2002, 10(19): 978-983.
- [73] Srisungsitthisunti P, Ersoy O K, Xu X F. Volume Fresnel zone plates fabricated by femtosecond laser direct writing[J]. Applied Physics Letters, 2007, 90(1): 011104.
- [74] Lin H, Xu Z Q, Cao G, et al. Diffraction-limited imaging with monolayer 2D material-based ultrathin flat lenses [J]. Light: Science & Applications, 2020, 9: 137.
- [75] Liu Y Q, Mao J W, Chen Z D, et al. Three-dimensional micropatterning of graphene by femtosecond laser direct writing technology [J]. Optics Letters, 2019, 45(1): 113-116.
- [76] Low M J, Lee H, Lim C H J, et al. Laser-induced reduced-graphene-oxide micro-optics patterned by femtosecond laser direct writing[J]. Applied Surface Science, 2020, 526: 146647.
- [77] Kim J K, Kim J, Oh K, et al. Fabrication of micro Fresnel zone plate lens on a mode-expanded hybrid optical fiber using a femtosecond laser ablation system [J]. IEEE Photonics Technology Letters, 2009, 21(1): 21-23.
- [78] Kim J, Ha W, Park J, et al. Micro Fresnel zone plate lens inscribed on a hard polymer clad fiber using femtosecond pulsed laser[J]. IEEE Photonics Technology Letters, 2013, 25(8): 761-763.
- [79] Kim H, Kim J, An H, et al. Metallic Fresnel zone plate implemented on an optical fiber facet for super-variable focusing of light[J]. Optics Express, 2017, 25(24): 30290-30303.
- [80] Tan X L, Geng Y F, Chen Y, et al. Femtosecond laser-ablated Fresnel zone plate fiber probe and sensing applications[J]. Optical Engineering, 2018, 57(2): 026119.
- [81] Sohn I B, Ahsan M S, Noh Y C, et al. Fabrication

- of Fresnel zone plate lens in fused silica glass using femtosecond laser lithography technology [J]. Optical Engineering, 2014, 53(5): 055107.
- [82] Li Q K, Yu Y H, Wang L, et al. Sapphire-based Fresnel zone plate fabricated by femtosecond laser direct writing and wet etching [J]. IEEE Photonics Technology Letters, 2016, 28(12): 1290-1293.
- [83] Guo H C, Li Y, Wang X, et al. Fabrication of high refractive index-modulation structures in fused silica by femtosecond laser pulses [J]. Proceedings of SPIE, 2005, 5646: 480-488.
- [84] Choi J, Ramme M, Anderson T, et al. Femtosecond laser written embedded diffractive optical elements and their applications [J]. Proceedings of SPIE, 2010, 7589: 143-154.
- [85] Tian Z N, Hua J G, Hao J, et al. Micro-buried spiral zone plate in a lithium niobate crystal [J]. Applied Physics Letters, 2017, 110(4): 041102.
- [86] Choi J, Ramme M, Richardson M. Multiple beam splitter using volumetric multiplexed Fresnel zone plates fabricated by ultrafast laser-writing [J]. Optics Letters, 2012, 37(16): 3375-3377.
- [87] Chen Q D, Wu D, Niu L G, et al. Phase lenses and mirrors created by laser micronanofabrication via two-photon photopolymerization [J]. Applied Physics Letters, 2007, 91(17): 171105.
- [88] Yu Y H, Tian Z N, Jiang T, et al. Fabrication of large-scale multilevel phase-type Fresnel zone plate arrays by femtosecond laser direct writing [J]. Optics Communications, 2016, 362: 69-72.
- [89] Wu D, Niu L G, Chen Q D, et al. High efficiency multilevel phase-type fractal zone plates [J]. Optics Letters, 2008, 33(24): 2913-2915.
- [90] Wu D, Xu J, Niu L G, et al. In-channel integration of designable microoptical devices using flat scaffold-supported femtosecond-laser microfabrication for coupling-free optofluidic cell counting [J]. Light: Science & Applications, 2015, 4(1): e228.
- [91] Jiang L, Tsai H L. Plasma modeling for ultrashort pulse laser ablation of dielectrics [J]. Journal of Applied Physics, 2006, 100(2): 023116.
- [92] Wang C, Jiang L, Wang F, et al. First-principles calculations of the electron dynamics during femtosecond laser pulse train material interactions [J]. Physics Letters A, 2011, 375 (36): 3200-3204.
- [93] Wang C, Jiang L, Wang F, et al. First-principles electron dynamics control simulation of diamond under femtosecond laser pulse train irradiation [J]. Journal of Physics. Condensed Matter: an Institute of Physics Journal, 2012, 24(27): 275801.
- [94] Jiang L, Fang J Q, Cao Q, et al. Femtosecond laser high-efficiency drilling of high-aspect-ratio microholes based on free-electron-density adjustments [J]. Applied Optics, 2014, 53 (31): 7290-7295.
- [95] Jiang L, Liu P J, Yan X L, et al. High-throughput rear-surface drilling of microchannels in glass based on electron dynamics control using femtosecond pulse trains [J]. Optics Letters, 2012, 37 (14): 2781-2783.
- [96] Du K, Jiang L, Li X W, et al. Chemical etching mechanisms and crater morphologies pre-irradiated by temporally decreasing pulse trains of femtosecond laser [J]. Applied Surface Science, 2019, 469: 44-49.
- [97] Wang A, Jiang L, Li X, et al. Mask-free patterning of high-conductivity metal nanowires in open air by spatially modulated femtosecond laser pulses [J]. Advanced Materials, 2015, 27(40): 6238-6243.
- [98] Wang A D, Jiang L, Li X W, et al. Simple and robust generation of ultrafast laser pulse trains using polarization-independent parallel-aligned thin films [J]. Optics & Laser Technology, 2018, 101: 298-303.
- [99] 王智. 时空整形飞秒激光高效率加工微通道的实验研究[D]. 北京: 北京理工大学, 2017.
- Wang Z. High-throughput microchannels fabrication in fused silica by temporally shaped femtosecond laser Bessel beam [D]. Beijing: Beijing Institute of Technology, 2017.
- [100] Siders C W, Siders J L, Taylor A J, et al. Efficient high-energy pulse-train generation using a 2"-pulse Michelson interferometer [J]. Applied Optics, 1998, 37(22): 5302-5305.
- [101] Zhou S A, Ouzounov D, Li H, et al. Efficient temporal shaping of ultrashort pulses with birefringent crystals [J]. Applied Optics, 2007, 46 (35): 8488-8492.
- [102] McLeod J H. The axicon: a new type of optical element [J]. Journal of the Optical Society of America, 1954, 44(8): 592-597.
- [103] Rioux M, Tremblay R, Bélanger P A. Linear, annular, and radial focusing with axicons and applications to laser machining [J]. Applied Optics, 1978, 17(10): 1532-1536.
- [104] Durnin J, Miceli J, Jr, Eberly J H. Diffraction-free beams [J]. Physical Review Letters, 1987, 58(15): 1499-1501.
- [105] Chen T Q, Zhang G D, Wang Y S, et al. Reconstructing of embedded high-aspect-ratio nano-voids generated by ultrafast laser Bessel beams [J].

- Micromachines, 2020, 11(7): 671.
- [106] Wang Z, Jiang L, Li X W, et al. High-throughput microchannel fabrication in fused silica by temporally shaped femtosecond laser Bessel-beam-assisted chemical etching[J]. Optics Letters, 2018, 43(1): 98-101.
- [107] Osellame R, Taccheo S, Marangoni M, et al. Femtosecond writing of active optical waveguides with astigmatically shaped beams[J]. Journal of the Optical Society of America B, 2003, 20(7): 1559-1567.
- [108] Kuczyńska D, Kwaśniak P, Marczak J, et al. Optimized holographic femtosecond laser patterning method towards rapid integration of high-quality functional devices in microchannels [J]. Applied Surface Science, 2016, 390: 560-569.
- [109] Zhang C, Hu Y, Du W, et al. Optimized holographic femtosecond laser patterning method towards rapid integration of high-quality functional devices in microchannels [J]. Scientific Reports, 2016, 6: 33281.
- [110] Ni J, Wang C, Zhang C, et al. Three-dimensional chiral microstructures fabricated by structured optical vortices in isotropic material [J]. Light: Science & Applications, 2017, 6(7): e17011.
- [111] Gauthier G, Lenton I, Parry N M, et al. Direct imaging of a digital-micromirror device for configurable microscopic optical potentials[J]. Optica, 2016, 3(10): 1136-1143.
- [112] 刘思垣, 张静宇. 基于空间光调制器的超快激光加工原理及应用[J]. 激光与光电子学进展, 2020, 57(11): 111431.  
Liu S Y, Zhang J Y. Principles and applications of ultrafast laser processing based on spatial light modulators[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2020, 57(11): 111431.
- [113] 赵梦娇. 基于电子动态调控的飞秒激光脉冲序列诱导的材料改性研究[D]. 北京: 北京理工大学, 2016.  
Zhao M J. Research on material modification by femtosecond pulse trains based on electron dynamic control[D]. Beijing: Beijing Institute of Technology, 2016.
- [114] Qin B, Li X W, Yao Z L, et al. Fabrication of microlenses with continuously variable numerical aperture through a temporally shaped femtosecond laser[J]. Optics Express, 2021, 29(3): 4596-4606.
- [115] Liu W, Jiang L, Han W N, et al. Manipulation of LIPSS orientation on silicon surfaces using orthogonally polarized femtosecond laser double-pulse trains [J]. Optics Express, 2019, 27 (7): 9782-9793.
- [116] Miyazaki K, Miyaji G. Nanograting formation through surface plasmon fields induced by femtosecond laser pulses [J]. Journal of Applied Physics, 2013, 114(15): 153108.
- [117] Wang L, Chen Q D, Cao X W, et al. Plasmonic nano-printing: large-area nanoscale energy deposition for efficient surface texturing[J]. Light: Science & Applications, 2017, 6(12): e17112.
- [118] Dostovalov A, Bronnikov K, Korolkov V, et al. Hierarchical anti-reflective laser-induced periodic surface structures (LIPSSs) on amorphous Si films for sensing applications [J]. Nanoscale, 2020, 12(25): 13431-13441.
- [119] Zou T, Zhao B, Xin W, et al. High-speed femtosecond laser plasmonic lithography and reduction of graphene oxide for anisotropic photoresponse[J]. Light: Science & Applications, 2020, 9: 69.
- [120] Huang J, Jiang L, Li X W, et al. Cylindrically focused nonablative femtosecond laser processing of long-range uniform periodic surface structures with tunable diffraction efficiency[J]. Advanced Optical Materials, 2019, 7(20): 1900706.
- [121] He J, Wang Y P, Liao C R, et al. Highly birefringent phase-shifted fiber Bragg gratings inscribed with femtosecond laser[J]. Optics Letters, 2015, 40(9): 2008-2011.
- [122] Jiang Y J, Yuan Y, Xu J, et al. Phase-shifted fiber Bragg grating inscription by fusion splicing technique and femtosecond laser [J]. Optics and Lasers in Engineering, 2016, 86: 236-241.
- [123] Sun X Y, Zeng L, Du H F, et al. Phase-shifted gratings fabricated with femtosecond laser by overlapped two types of fiber Bragg gratings [J]. Optics & Laser Technology, 2020, 124: 105969.
- [124] Montz Z, Shirakov A, Ami U B, et al. Optimal output coupler grating reflectivity for Er/Yb fiber lasers[J]. Optics & Laser Technology, 2020, 126: 106070.
- [125] Saliminia A, Vallée R. Fiber Bragg grating inscription based on optical filamentation of UV femtosecond laser pulses[J]. Optics Communications, 2014, 324: 245-251.
- [126] Gao S. Anisotropic elliptical microbumps on gold films induced by slit-shaped femtosecond laser[J]. Proceedings of SPIE, 2021, 11885: 1188513.
- [127] Li B H, Li X W, Zhao R Z, et al. Polarization multiplexing terahertz metasurfaces through spatial femtosecond laser-shaping fabrication[J]. Advanced Optical Materials, 2020, 8(12): 2000136.

- [128] Mikutis M, Kudrius T, Šlekys G, et al. High 90% efficiency Bragg gratings formed in fused silica by femtosecond Gauss-Bessel laser beams [J]. Optical Materials Express, 2013, 3(11): 1862-1871.
- [129] Paipulas D, Mikutis M, Sirutkaitis V, et al. Volumetric modifications in fused silica using Gaussian and Bessel femtosecond laser beams [J]. Proceedings of SPIE, 2013, 8786: 11306-11312.
- [130] Sun Q, Lee T, Ding Z Q, et al. Diffractive Fresnel lens fabrication with femtosecond Bessel beam writing in silica [C] // Frontiers in Optics / Laser Science, September 16-20, Washington, DC. Washington, D.C.: OSA, 2018: JW3A.12.
- [131] Zhang G, Cheng G, Bhuyan M, et al. Efficient point-by-point Bragg gratings fabricated in embedded laser-written silica waveguides using ultrafast Bessel beams [J]. Optics Letters, 2018, 43(9): 2161-2164.
- [132] Bhuyan M K, Velpula P K, Colombier J P, et al. Single-shot high aspect ratio bulk nanostructuring of fused silica using chirp-controlled ultrafast laser Bessel beams [J]. Applied Physics Letters, 2014, 104(2): 021107.
- [133] Luo Z, Duan J A, Guo C L. Femtosecond laser one-step direct-writing cylindrical microlens array on fused silica [J]. Optics Letters, 2017, 42(12): 2358-2361.
- [134] Wang A D, Jiang L, Li X W, et al. Nanoscale material redistribution induced by spatially modulated femtosecond laser pulses for flexible high-efficiency surface patterning [J]. Optics Express, 2017, 25(25): 31431-31442.
- [135] Yao Z L, Li X W, Wang Z P, et al. High-efficiency fabrication of computer-generated holograms in silica glass using a femtosecond Bessel beam [J]. Optics & Laser Technology, 2021, 135: 106729.
- [136] Li B H, Jiang L, Li X W, et al. Flexible gray-scale surface patterning through spatiotemporal-interference-based femtosecond laser shaping [J]. Advanced Optical Materials, 2018, 6(24): 1801021.
- [137] Hu Y L, Chen Y H, Ma J Q, et al. High-efficiency fabrication of aspheric microlens arrays by holographic femtosecond laser-induced photopolymerization [J]. Applied Physics Letters, 2013, 103(14): 141112.
- [138] Cao X W, Lu Y M, Fan H, et al. Wet-etching-assisted femtosecond laser holographic processing of a sapphire concave microlens array [J]. Applied Optics, 2018, 57(32): 9604-9608.
- [139] Zhang Z Y, Zhang C C, Hu Y L, et al. Highly uniform parallel microfabrication using a large numerical aperture system [J]. Applied Physics Letters, 2016, 109(2): 021109.
- [140] Yang L, El-Tamer A, Hinze U, et al. Parallel direct laser writing of micro-optical and photonic structures using spatial light modulator [J]. Optics and Lasers in Engineering, 2015, 70: 26-32.
- [141] Fan H, Cao X W, Wang L, et al. Control of diameter and numerical aperture of microlens by a single ultra-short laser pulse [J]. Optics Letters, 2019, 44(21): 5149-5152.

## Machining of Micro-Optical Elements Using Electrons Dynamics Controlled Temporally/Spatially Shaped Femtosecond Laser

Wu Mengnan<sup>1,2</sup>, Li Xiaowei<sup>2\*</sup>, Xiang Zhikun<sup>2</sup>, Zhang Leyi<sup>2</sup>, Yang Yanpei<sup>2</sup>,  
Wang Zhipeng<sup>2</sup>, Liu Yang<sup>2</sup>

<sup>1</sup> School of Mechatronical Engineering, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China;

<sup>2</sup> School of Mechanical Engineering, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China

### Abstract

**Significance** Micro-optical devices have the characteristics of miniaturization and integration compared with ordinary optical devices owing to their extremely small size. Therefore, they have irreplaceable application value and importance in optical communication, optical display, optical processing, and optical information storage.

Femtosecond laser processing is flexible, efficient, and has several materials to use. As the laser is compressed for a short time, it produces a very high-power density. Furthermore, the interaction between the laser and material is nonlinear and nonequilibrium. Therefore, controlling the interaction process between laser and electrons, especially the local electron dynamics, is necessary for quality optimization of laser processing. Jiang et al. proposed

a new electronic dynamic control (EDC) technique, whose core idea is to control the local transient electron dynamics by controlling the amplitude, phase, and polarization of the femtosecond laser in space and time. This will regulate the local transient electron dynamics of the material, and change the morphology and properties of the material. Based on EDC technology, laser processing quality and processing efficiency can be effectively optimized, which is of great significance in the processing of micro-optical devices.

**Progress** The main methods of femtosecond laser processing of micro-nano-optical components include both laser-controlled material properties and morphology. Laser-controlled material properties alter the local refractive index of the material to fabricate microlenses, as shown in Figure 2(d). Notably, etching assistance can be further used. In Figure 1(a), Huang et al. obtain vibrantly colored gratings by using laser-induced nonablative periodic modification and etching of silicon. Figure 2(a) shows the method of laser-controlled material morphology in which two-photon polymerization is used to process a multilayer microlens group, or as shown in Figure 3(f), where direct writing subtraction is used.

The main methods used in EDC technology to improve processing efficiency and processing quality include temporal and spatial shaping of the laser. Time shaping controls the distribution of the laser field intensity in time so that the free electron density on the material surface can be controlled near the critical electron density, which not only increases the proportion of linear absorption, such as avalanche ionization, but also preventing high free electron density on material surface. It makes nonthermal phase transformation a crucial part of the main processing, considerably reducing the recast layer in material processing, and increasing the number of excited electrons and absorbed energy under the same energy. Spatial shaping achieves locally controllable selective removal of materials by controlling the spatial distribution of various laser parameters. For example, shaping the laser into two adjacent spots with a phase difference, processing on a gold film with only a wavelength of 1/14 width nanowires.

The devices for time-shaping laser mainly include the pulse sequence generating device, time-domain shaping system using 4f system, Michael interferometer for generating pulse sequence and its cascade, birefringent crystal for generating pulse sequence and its cascade (Figure 4). The devices for spatial shaping of the laser include dynamic shaping devices and static shaping devices based on SLM and axicons, cylindrical mirrors, and masks. By temporally shaping the laser, the etching efficiency improves the microlens processing and controls the size parameters of the obtained microlens, as shown in Fig. 5. Using a cylindrical mirror to perform static spatial shaping of the laser can efficiently process micro-optics, such as gratings. More flexible machining results can be obtained using dynamic spatial shaping, for example, simulating multibeam interference to improve machining efficiency or shaping the laser into multispot light, processing several two-dimensional graphics at a time, on-site material lattice processing or parallel processing can greatly improve the processing efficiency.

**Conclusion and Prospect** In this paper, we reviewed the methods for femtosecond laser processing of optical components. The technical methods for femtosecond laser processing of micro-optical components, including laser direct writing removal, laser three-dimensional printing, laser modification, and wet etching assisted laser processing methods were introduced for gratings, microlenses, and zone plates. We observed irreconcilable contradictions in the processing accuracy and efficiency of the unshaped laser. By shaping the femtosecond laser in temporal and spatial, the light field is not limited to the Gaussian distribution in time and space, which effectively controls the electronic dynamics of the processing and improves the processing accuracy and efficiency. The temporal shaping of the femtosecond laser effectively improves the energy deposition efficiency of the laser and enriches the application scenarios of the femtosecond laser. Furthermore, the spatial shaping of the femtosecond laser is an important way to improve the processing accuracy beyond the diffraction limit and improve the processing efficiency to achieve large-area processing. Therefore, the appropriate use of spatial-temporal shaping methods is an important method for improving the precision, efficiency, and application scope of femtosecond laser processing of micro-nano-optical components. Presently, the femtosecond laser electronic dynamic control and processing of optical components with spatial-temporal shaping is still faced by the relatively single-time shaping technology, which is yet to fully combine the spatial shaping method. The next step is to further develop the temporal and spatial shaping technologies and to combine spatial-temporal shaping in the fabrication of micro-nano-optical components through a deep understanding of the electronic dynamic regulation mechanism.

**Key words** laser technique; femtosecond laser; electrons dynamics control; microhole processing; temporal/spatial pulse shaping; micro-optical element