

铌酸锂微纳米结构的制备与分析

唐汇诗, 陈智利*, 唐黎, 惠迎雪, 刘卫国

西安工业大学光电工程学院, 陕西 西安 710021

摘要 为实现铌酸锂光学器件的高效集成,在其表面制备亚波长结构是实现其光学特性的最佳方式。然而,目前使用的聚焦离子束刻蚀、激光刻蚀、湿法刻蚀等方法很难简单、经济、较快地制备铌酸锂亚波长结构。鉴于此,本课题组基于有限元仿真及低能离子束刻蚀技术,研究了不同离子束参数下刻蚀的铌酸锂亚波长结构及其透射率。采用 Lambda950 分光光度计和原子力显微镜分别对刻蚀后的铌酸锂样品的透射率、均方根粗糙度、纳米结构的纵向高度和表面形貌进行了分析。结果表明:当离子束入射角度为 70° 、入射能量大于 600 eV、束流大于 40 mA、刻蚀时间大于 60 min 时,铌酸锂样品表面形成了大面积的锥形纳米结构,并且纳米结构的高度随着离子束刻蚀参数的增大而增大;在可见光波段,铌酸锂表面纳米结构越高,增透效果就越明显;当入射能量为 1000 eV、离子束束流为 40 mA、入射角度为 70° 、刻蚀时间为 120 min 时,铌酸锂表面刻蚀出了纵向高度为 143.5 nm 的锥形结构,此时在可见光范围内铌酸锂样片的峰值透射率为 83.5%,相较于原片的透射率提高了约 12.5 个百分点。

关键词 表面光学; 铌酸锂; 亚波长结构; 光学性能; 离子束刻蚀; 透射率

中图分类号 O484.1

文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL221329

1 引言

为了解决光学器件的小型化和低成本等难题,很多研究人员将研究重点聚焦在了亚波长结构上。亚波长结构是指结构的特征尺寸小于工作波长或者与工作波长相近的一种周期性或非周期性结构,由于该结构的特征尺寸小于波长,所以当光波传输到具有该结构的介质表面时,高级次衍射光将无法传播,仅存在零级透射或者零级反射。基于亚波长结构特殊的电磁特性制成的光学器件具有与常规衍射光学元件截然不同的特征,其不仅可以实现普通光学器件无法实现的功能,还具有高度集成性,在集成光学应用领域展现出了非常广阔的应用前景^[1]。铌酸锂(LiNbO_3)是一种人工铁电晶体,其以显著的电光、光折变及非线性光学效应等特点脱颖而出,具有高折射率、耐高温、耐腐蚀、宽透明窗口等材料特性,是应用于集成光路的主要材料之一^[2]。为了实现铌酸锂光学器件的优异功能并实现高效集成,在铌酸锂表面制备亚波长结构成为展现该材料光学特性和潜力的最佳方式。

目前,制备铌酸锂亚波长结构的方法主要是聚焦离子束^[3-4]、激光刻蚀^[5-6]以及湿法刻蚀^[7]。通过分析国内外铌酸锂表面亚波长结构制备的研究现状可以发现,这些方法在铌酸锂表面形成的亚波长结构在形状和特征尺寸上都受到了一定限制。因此,实现一个无

需任何模板、简单、经济、可大范围制备亚波长结构的微纳加工技术,对于铌酸锂光学器件的应用研究具有重要意义。近年来,研究人员将目光集中在了低能离子束刻蚀上,而且相关研究人员已经基于 Ar^+ 离子通过改变离子束参数在金属^[8]、聚合物^[9-11]、硅化物^[12]等材料表面刻蚀出了不同的微纳米结构。西安工业大学的研究人员^[13-14]采用低能离子束对蓝宝石表面进行了刻蚀,他们通过改变离子束参数在蓝宝石表面制备了不同类型的自组织纳米结构,并对蓝宝石表面的亚波长纳米结构进行了透射率分析;分析结果显示,亚波长纳米结构较蓝宝石原片的透射率明显提高。中国科技大学的杨高元等^[15]采用低能离子束刻蚀具有光刻掩模的熔石英材料,使其在 600~1300 nm 范围内的透射率相较原片提高了 1%。

然而,目前国内鲜有利用低能离子束刻蚀技术在铌酸锂表面制备不同类型亚波长结构并探索其结构演变规律的研究报道^[16]。鉴于此,本课题组通过改变离子束入射能量、刻蚀时间、束流,采用低能离子束刻蚀方法在铌酸锂晶体表面制备了亚波长结构,研究了铌酸锂晶体表面亚波长结构随离子束参数的演变规律,并进一步分析了亚波长结构对铌酸锂光学特性的影响,以探究其在光通信和集成光学器件中的潜在应用。

收稿日期: 2022-10-17; 修回日期: 2022-11-09; 录用日期: 2022-11-15

基金项目: 国家自然科学基金(62001364)、陕西省教育厅重点科学研究计划(20JS059)

通信作者: *medichen@163.com

2 亚波长锥形结构的光学特性仿真

2.1 亚波长结构的电磁仿真模型建立

采用有限元分析软件 COMSOL 对铌酸锂晶体表面的亚波长结构进行仿真设计,选用波动光学模块以及电磁波频域接口下的波长域进行仿真研究。根据亚波长锥形结构进行几何建模,设置端口 1 和端口 2 分别为入射端口和接收端口,亚波长结构上方设置空气作为传输介质层,亚波长结构材料选择材料库中的铌酸锂晶体,亚波长结构的周期和高度分别为 d 和 h ,设定端口上方和下方为完美匹配层(PML),模型的边界条件设定为周期性边界条件(PBC)。图 1 为亚波长结构的模型示意图。

2.2 铌酸锂表面亚波长结构的透射率仿真

本节主要探究铌酸锂表面亚波长锥形结构在可见光范围内的增透效果。考虑到锥形纳米阵列适用于等效介质理论,因此采取亚波长光栅结构的周期和深度对锥形结构进行仿真。选定探究的铌酸锂表面亚波长锥形结构的周期为 50~200 nm,高度为 20~200 nm,不同周期下零级透射率随高度的变化曲线图如图 2 所示。等效折射率变化带来的减反射效果类似单层减反射膜的作用。

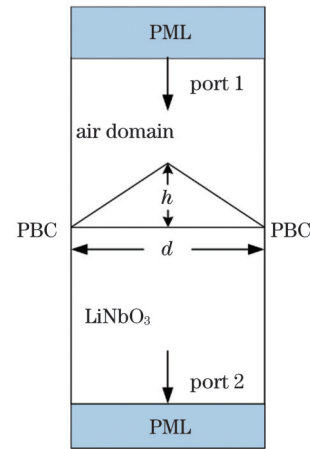


图 1 亚波长结构仿真模型图

Fig. 1 Diagram of subwavelength structure simulation model

由图 2 可以看出,在同一周期下,透射率随亚波长锥形结构高度的增加而增大。由图 2(a)可以看出:当周期为 50 nm 时,随着纳米结构高度增大,短波长范围内的透射率增幅明显;当纳米结构高度为 200 nm 时,最高透射率可达到 98.4%,相较于 20 nm 结构高度下的透射率增大了近 14 个百分点。随着周期增大,透射率在 400~600 nm 波长范围内开始下降但下降幅度较

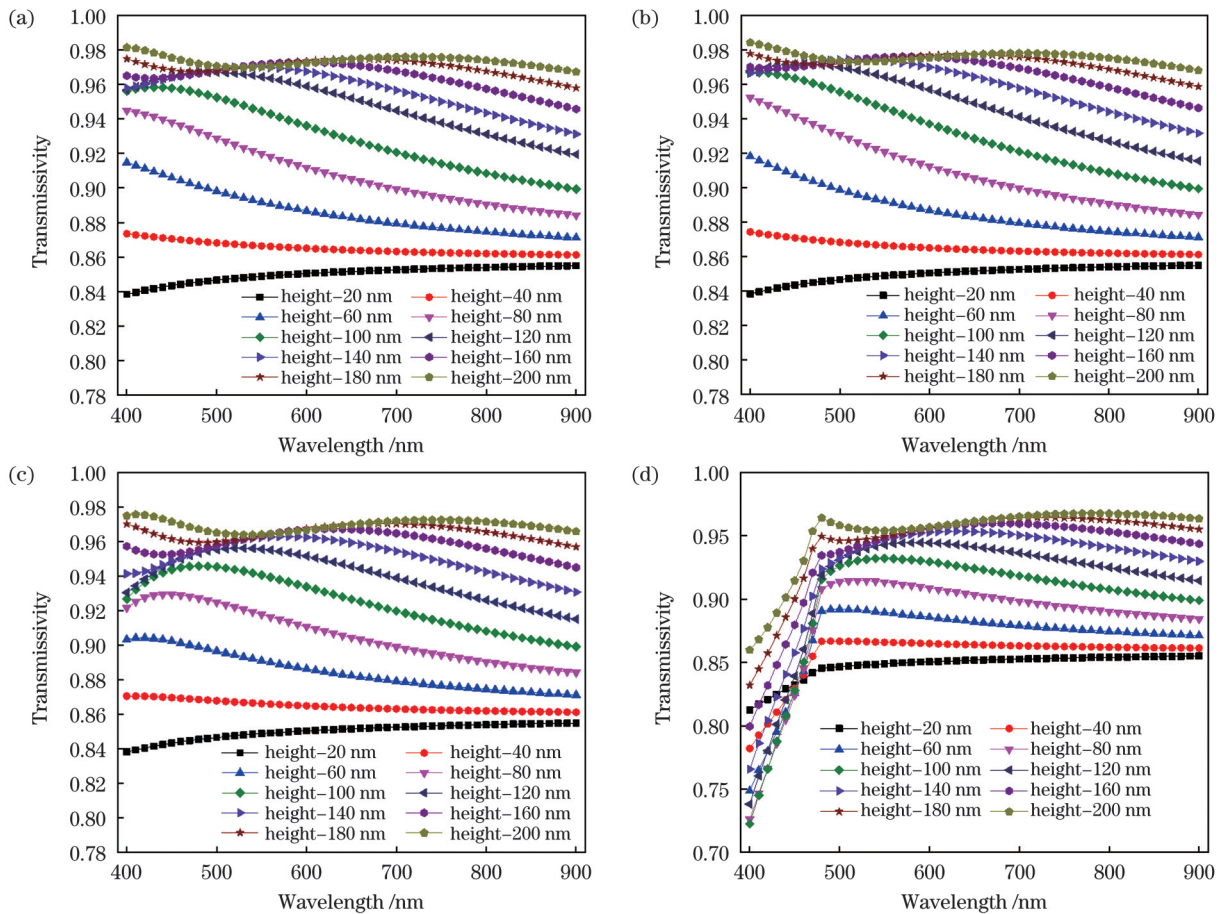


图 2 不同周期下零级透射率随结构高度的变化。(a)周期为 50 nm;(b)周期为 100 nm;(c)周期为 150 nm;(d)周期为 200 nm
Fig. 2 Variations of level 0 transmissivity with structure height under different periods. (a) Period of 50 nm; (b) period of 100 nm; (c) period of 150 nm; (d) period of 200 nm

小;当周期增大至 150 nm 且纳米结构高度大于 60 nm 后,透射率的降幅较大,约降低了 2 个百分点。随着周期继续增大至 200 nm,400~500 nm 波段范围内的透射率出现“断崖式”下降。这是由于随着纳米结构的周期逐渐增大并接近入射波长,出现了多级衍射,因此 400~500 nm 波段范围内的零级透射率明显下降。当周期为 200 nm 时,500~900 nm 波长范围内的整体透射率与周期为 150 nm 时的透射率趋势趋于一致,但较周期为 150 nm 时的透射率略有降低。

3 亚波长锥形纳米结构的制备

实验选用的离子束刻蚀设备是实验室自主研发的等离子抛光与刻蚀系统,离子束刻蚀设备主要通过微波回旋共振离子源产生等离子体来溅射固体表面。采用原子力显微镜(AFM)测定样品的表面形貌及表面均方根粗糙度(RMS 粗糙度),利用功率谱密度(PSD)分析纳米结构的有序性。

通过分析离子束刻蚀制备亚波长结构的相关文献

以及本课题组的研究成果^[17-18]可知,在不同材料表面制备亚波长光栅结构的离子束入射角度适宜设定在 50°~70° 范围内。因此,在实验中选择入射角为 70°。工作气体选用纯度为 99.999% 的氩气。通过调控离子束工艺参数(入射能量、束流、刻蚀时间)在铌酸锂晶体表面进行刻蚀,研究不同离子束参数对亚波长锥形结构的影响。设定离子束束流为 20~50 mA,离子束入射能量为 400~1000 eV(步长为 200 eV),刻蚀时间为 20~120 min(步长为 20 min)。

3.1 离子束入射能量对亚波长锥形结构的影响

本节主要研究不同离子束入射能量对亚波长锥形结构的影响,设置离子束束流为 40 mA,离子入射能量为 400~1000 eV(步长为 200 eV),刻蚀时间为 60 min。图 3 是不同离子束入射能量下刻蚀后铌酸锂样品表面的 AFM 图(其中 Z 表示纳米结构的高度),图 4(a)是铌酸锂样品表面形成的锥形纳米结构的 PSD 曲线图,图 4(b)是纳米结构的纵向高度和表面粗糙度曲线。

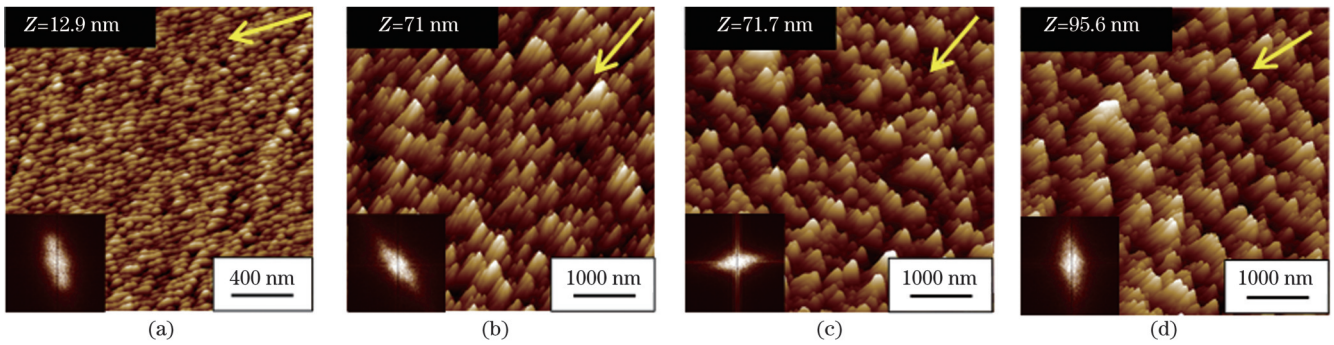


图 3 不同入射能量下刻蚀后铌酸锂样品表面的 AFM 图,左下角为傅里叶变换(FFT)图,箭头表示离子束入射方向(入射角为 70°,刻蚀时间为 60 min,离子束束流为 40 mA)。(a)入射能量为 400 eV;(b)入射能量为 600 eV;(c)入射能量为 800 eV;(d)入射能量为 1000 eV

Fig. 3 AFM images of LiNbO₃ sample surface after etching with different incident energies, where the lower left corner is Fourier transform (FFT) image and the arrow indicates ion beam incidence direction (incident angle is 70°, etching time is 60 min and ion beam current is 40 mA). (a) Incident energy is 400 eV; (b) incident energy is 600 eV; (c) incident energy is 800 eV; (d) incident energy is 1000 eV

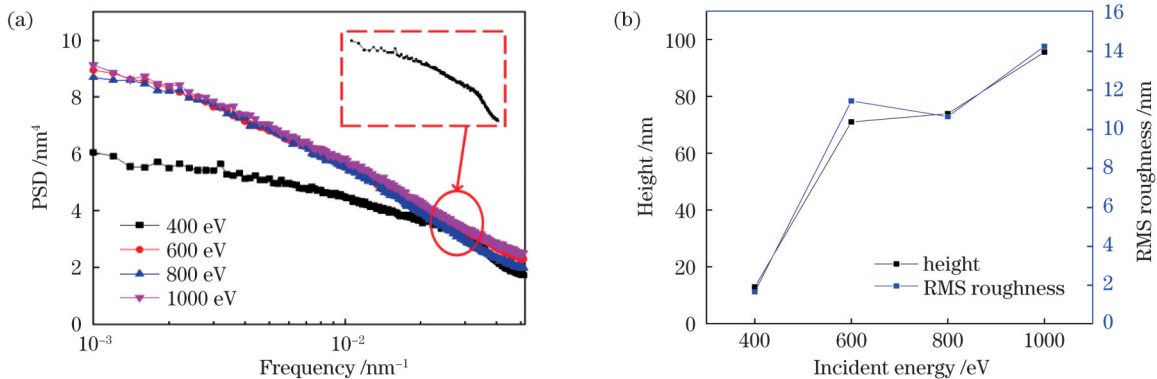


图 4 不同入射能量下刻蚀后铌酸锂样品表面纳米结构的 PSD 曲线图、高度和 RMS 粗糙度(入射角为 70°,刻蚀时间为 60 min,离子束束流为 40 mA)。(a)PSD 曲线图;(b)纳米结构的高度和 RMS 粗糙度

Fig. 4 PSD curves, height and RMS roughness of nanostructure on LiNbO₃ sample surface after etching with different incident energies (incident angle is 70°, etching time is 60 min and ion beam current is 40 mA). (a) PSD curves; (b) height and RMS roughness of nanostructure

由图 3 和图 4 可知,保持其他离子束工艺参数不变,随着入射能量增加,亚波长锥形结构的高度和 RMS 粗糙度增大,整体锥形结构的生长方向总是平行于离子束入射方向在样品平面上的投影方向。

当入射能量为 400 eV 时,铌酸锂表面纳米结构表现为短小的光栅结构,此时纳米结构的高度为 12.9 nm, RMS 粗糙度为 1.63 nm, PSD 曲线图中有一个较为明显的特征峰,但 FFT 图中的对称点并不明显,说明纳米结构的有序性较差。随着入射能量增大至 600 eV,铌酸锂表面出现了密集的锥形结构,并且锥形结构的顶端较为尖锐,纳米结构的高度和 RMS 粗糙度明显增大。继续增大入射能量,铌酸锂表面锥形结构的横向尺寸变大,局部出现了较大结构,此时铌酸锂表面纳米结构纵向高度和 RMS 粗糙度的变化幅度较小。当入射能量为 1000 eV 时,每个

大的锥形结构与相邻的结构融合,整体锥状纳米结构的横向尺寸变大,结构高度增大至 95.6 nm, RMS 粗糙度为 14.2 nm, 并且锥形结构的侧壁出现了明显的条纹结构。观察图 4(a) 可以发现,随着入射能量增大,整体的 PSD 曲线上没有特征峰, FFT 图中无对称点出现,说明形成的锥形纳米结构是长程无序的。

3.2 离子束束流对亚波长锥形结构的影响

根据上节亚波长锥形结构高度的结果,本节主要研究不同 Ar^+ 离子束束流对锥形结构的影响,设置离子束束流为 20~50 mA,入射能量为 1000 eV,刻蚀时间为 60 min。图 5 是不同离子束束流下刻蚀后铌酸锂样品表面的 AFM 图,图 6(a) 为铌酸锂样品表面形成的锥形纳米结构的 PSD 曲线,图 6(b) 为纳米结构的纵向高度和 RMS 粗糙度曲线。

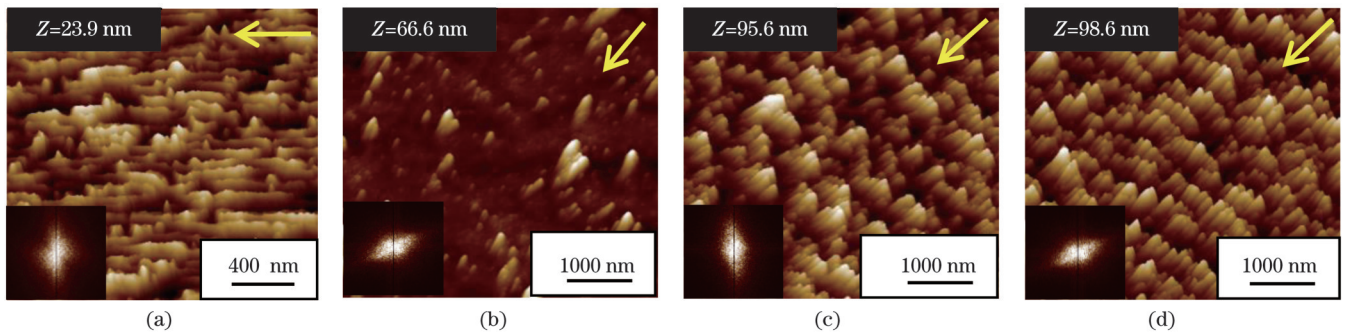


图 5 不同离子束束流下刻蚀后铌酸锂样品表面的 AFM 图,左下角为 FFT 图,箭头表示离子束入射方向(入射角为 70° ,刻蚀时间为 60 min,入射能量为 1000 eV)。(a)离子束束流为 20 mA;(b)离子束束流为 30 mA;(c)离子束束流为 40 mA;(d)离子束束流为 50 mA

Fig. 5 AFM images of LiNbO_3 sample surface after etching with different ion beam currents, where the lower left corner is FFT image and the arrow indicates ion beam incidence direction (incident angle is 70° , etching time is 60 min and incident energy is 1000 eV).

(a) Ion beam current is 20 mA; (b) ion beam current is 30 mA; (c) ion beam current is 40 mA; (d) ion beam current is 50 mA

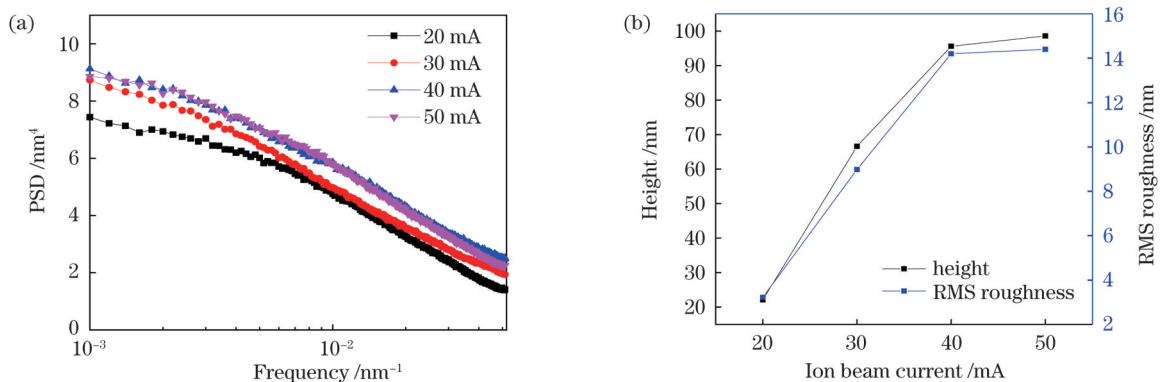


图 6 不同离子束束流下刻蚀后铌酸锂样品表面纳米结构的 PSD 曲线图、高度和 RMS 粗糙度(入射角为 70° ,刻蚀时间为 60 min,入射能量为 1000 eV)。(a)PSD 曲线图;(b)纳米结构的高度和 RMS 粗糙度

Fig. 6 PSD curves, height and RMS roughness of nanostructure on LiNbO_3 sample surface after etching with different ion beam current (incident angle is 70° , etching time is 60 min and incident energy is 1000 eV). (a) PSD curves; (b) height and RMS roughness of nanostructure

保持其他离子束工艺参数不变,随着离子束束流增加,铌酸锂表面纳米结构较高位置处的高度增大(如图 6 所示);继续增大离子束束流,锥形结构的密度增

大,直至整个表面被锥形结构覆盖。

当离子束束流为 20 mA 时,刻蚀后的铌酸锂表面出现了条纹与点状相结合的结构,纳米结构的高度为

23.9 nm, RMS 粗糙度为 3.22 nm, 整个平面在微观上不完全平整。随着离子束束流增大, 局部相对较高的结构经过刻蚀后整体高度明显增大, 但整个平面上的纳米结构的均匀性不高, 所以整体表现为锥形纳米结构的密度小。随着离子束束流继续增大, 铌酸锂表面的锥形结构铺满整个表面, 并且纳米结构的高度和 RMS 粗糙度都明显增大。当离子束束流增大至 40 mA 时, 铌酸锂表面锥形结构的高度增大为 95.6 nm, RMS 粗糙度为 14.2 nm, 并且整个平面上锥形结构的密度增大。当离子束束流为 50 mA 时, 铌酸锂表面锥形结构高度的增幅不大, 但整个平面上锥形结构的高度趋于一致, 这与纳米结构在生长过程中存在生长阈值这一理论吻合。观察整体的 PSD 曲线并未发现明显的

特征峰, 并且 FFT 图中也都无对称点, 这说明通过改变离子束束流在铌酸锂表面形成的锥形纳米结构是长程无序的。

3.3 离子束刻蚀时间对亚波长锥形结构的影响

本节主要研究不同离子束刻蚀时间对亚波长锥形结构的影响, 设置离子束束流为 40 mA, 离子束入射能量为 1000 eV, 刻蚀时间为 20~120 min (步长为 20 min)。

图 7 为经过不同时间的离子束刻蚀后 LiNbO₃ 表面形貌的 AFM 图 (入射角为 70°, 离子束束流为 40 mA, 入射能量为 1000 eV), 图 8(a) 为表面形成的锥形纳米结构的 PSD 曲线图, 图 8(b) 为形成的纳米结构的纵向高度和表面粗糙度曲线图。

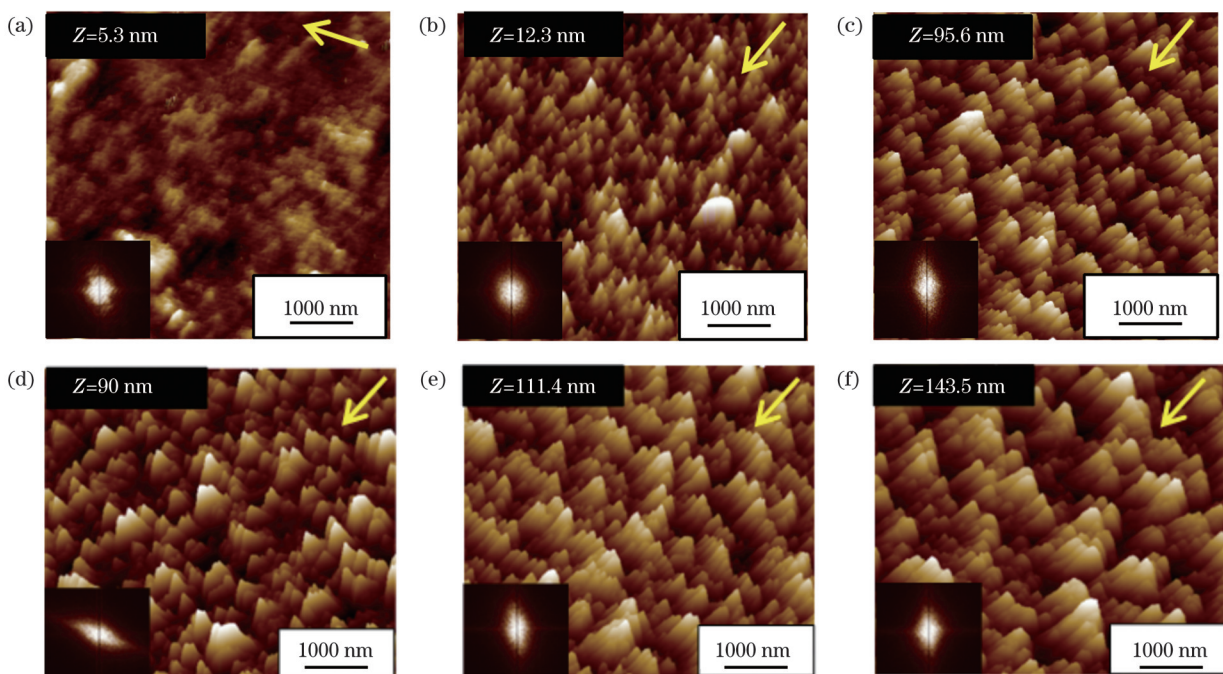


图 7 不同刻蚀时间下 LiNbO₃ 样品表面的 AFM 图, 左下角为 FFT 图, 箭头表示离子束入射方向 (入射角为 70°, 离子束束流为 40 mA, 入射能量为 1000 eV)。(a) 刻蚀时间为 20 min; (b) 刻蚀时间为 40 min; (c) 刻蚀时间为 60 min; (d) 刻蚀时间为 80 min; (e) 刻蚀时间为 100 min; (f) 刻蚀时间为 120 min

Fig. 7 AFM images of LiNbO₃ sample surface after different etching time, where the lower left corner is FFT image and the arrow indicates ion beam incidence direction (incident angle is 70°, ion beam current is 40 mA and incident energy is 1000 eV). (a) Etching time is 20 min; (b) etching time is 40 min; (c) etching time is 60 min; (d) etching time is 80 min; (e) etching time is 100 min; (f) etching time is 120 min

从图 7 可以看出, 随着离子束刻蚀时间延长, 铌酸锂表面锥形结构的高度和直径同时增大, 而且在整个刻蚀过程中表面结构的均匀性较好。

当刻蚀时间为 20 min 时, 铌酸锂表面平整, 无明显的纳米结构出现, 此时表面高度为 5.3 nm, RMS 粗糙度为 2.45 nm; 随着离子束刻蚀时间延长, 铌酸锂表面出现了大面积的小锥形结构, 纳米结构的纵向高度明显增大; 当刻蚀时间为 60 min 时, 铌酸锂表面上形成了大面积的锥形结构, 此时纳米结构高度增大至 95.6 nm, RMS 粗糙度为 14.2 nm;

随着刻蚀时间继续延长, 铌酸锂表面锥形结构的直径增大, 当刻蚀时间延长至 120 min 时, 铌酸锂表面锥形结构的直径明显增大, 高度增大至 143.5 nm, RMS 粗糙度为 21.5 nm, 锥形结构覆盖整个铌酸锂表面。

从 PSD 曲线图及图 7 可以看出, 当刻蚀时间超过 60 min 后, 铌酸锂表面形成的锥形结构的有序性发生明显变化, 但仍未出现特征峰, 并且 FFT 图中也都无对称点。这说明铌酸锂表面的锥形结构是长程无序的。

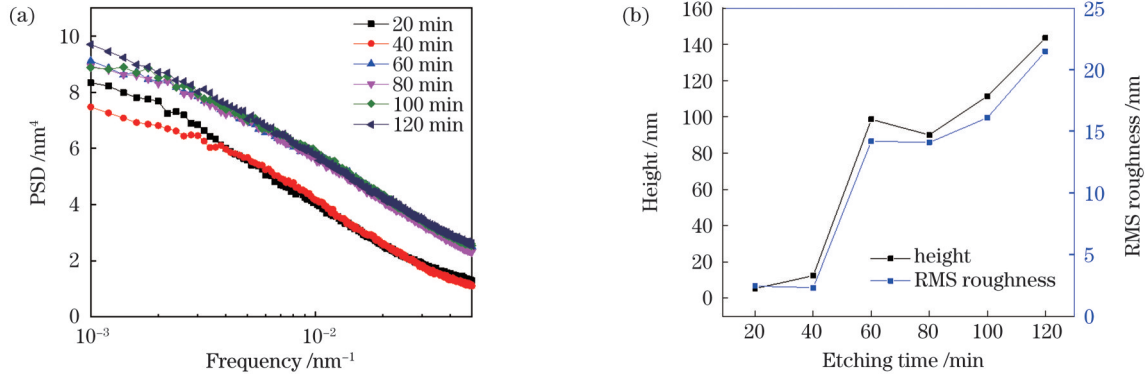


图 8 不同刻蚀时间后 LiNbO₃ 样品表面纳米结构的 PSD 曲线图、高度和 RMS 粗糙度 (入射角为 70°, 离子束束流为 40 mA, 入射能量为 1000 eV)。(a) PSD 曲线图; (b) 纳米结构的高度和 RMS 粗糙度

Fig. 8 PSD curves, height and RMS roughness of nanostructure on LiNbO₃ sample surface after etching with different time (incident angle is 70°, ion beam current is 40 mA and incident energy is 1000 eV). (a) PSD curves; (b) height and RMS roughness of nanostructure

4 亚波长锥形纳米结构的光学特性

为了研究 Ar⁺ 离子束刻蚀后铌酸锂样品的透射率, 本课题组采用 Lambda950 分光光度计对透射率进行了测量, 并分析了不同锥形结构参数下铌酸锂晶体的透射率。利用 COMSOL 模拟软件对刻蚀后铌酸锂晶体表面锥形结构的透射率进行了仿

真, 并将仿真结果与实际测试结果进行了比较和分析。

4.1 亚波长锥形纳米结构实测透射率的表征及分析

图 9(a)、(b)、(c) 为刻蚀前后铌酸锂晶体样品在 400~800 nm 波段范围内的透射率曲线图, 图 9(d)、(e)、(f) 为刻蚀后铌酸锂表面亚波长锥形结构的高度与 RMS 粗糙度趋势图。

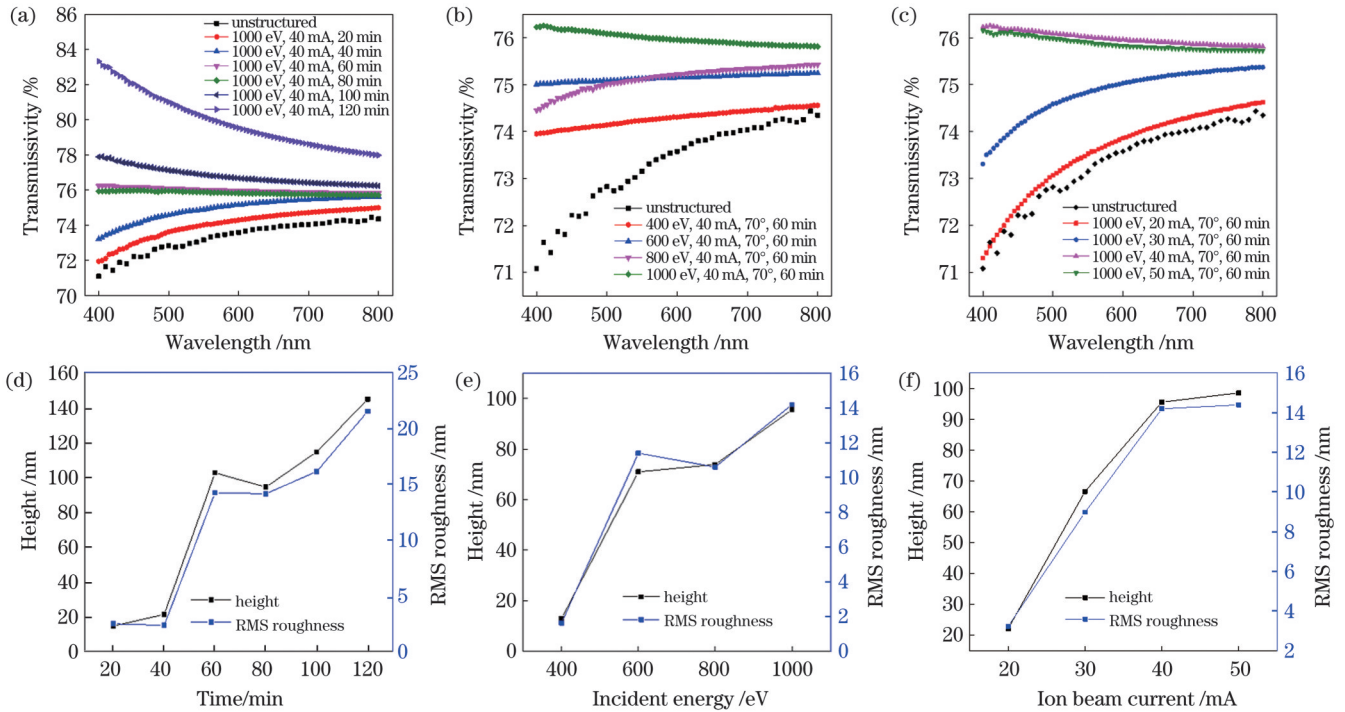


图 9 铌酸锂样品表面的透射率曲线以及锥形纳米结构的高度和 RMS 粗糙度。(a)~(c) 70° 入射角和不同离子束参数下刻蚀后铌酸锂样品表面的透射率曲线图; (d)~(f) 锥形纳米结构的高度和 RMS 粗糙度

Fig. 9 Transmissivity curves of LiNbO₃ sample surface and height and RMS roughness of conical nanostructure. (a)~(c) Transmissivity curves of LiNbO₃ sample surface after etching with different ion beam parameters at 70° incident angle; (d)~(f) height and RMS roughness of conical structure

由图 9 可知, 铌酸锂表面透射率随着表面亚波长结构高度的增大而增大。分析不同离子束刻蚀时间下铌酸锂晶体的透射率曲线 (入射角为 70°、离子束束

流为 40 mA、入射能量为 1000 eV) 可以发现: 当刻蚀时间少于 60 min 时, 铌酸锂表面纳米结构的纵向高度和 RMS 粗糙度快速增大, 此时铌酸锂表面的透射率

从原片的 71% 增大至约为 76%，增幅约为 5 个百分点；随着刻蚀时间延长到 80 min 时，铌酸锂表面由于表面平滑机制的作用，纳米结构的高度出现小幅降低，此时透射率同样表现为降低，降幅约为 0.2 个百分点；继续延长刻蚀时间，铌酸锂表面纳米结构的纵向高度持续增大，透射率也出现了明显增大的趋势，当刻蚀时间为 120 min 时，铌酸锂表面的透射率约为 83.5%，相对于无结构的原片增大了约为 12.5 个百分点。

随着纳米结构高度增大，铌酸锂表面的透射率在可见光范围内明显增大。铌酸锂表面的亚波长锥形

结构可以等效成多层折射率不同的薄膜，因此，增透作用随着纳米结构高度增大而越发明显。

4.2 亚波长纳米锥形结构仿真透射率分析

当入射角为 70° 、入射能量为 1000 eV、离子束束流为 40 mA 时，不同刻蚀时间下铌酸锂的透射率数值跨度比较大，因此选取这一组数据进行测试透射率与仿真透射率的对比。基于亚波长结构的有限元仿真以及二阶等效介质理论的研究发现，在 50~200 nm 周期内，亚波长结构的周期对透射率的影响非常微弱。因此，仿真时不考虑周期对透射率的影响。仿真和实测透射率的对比结果如图 10 所示。

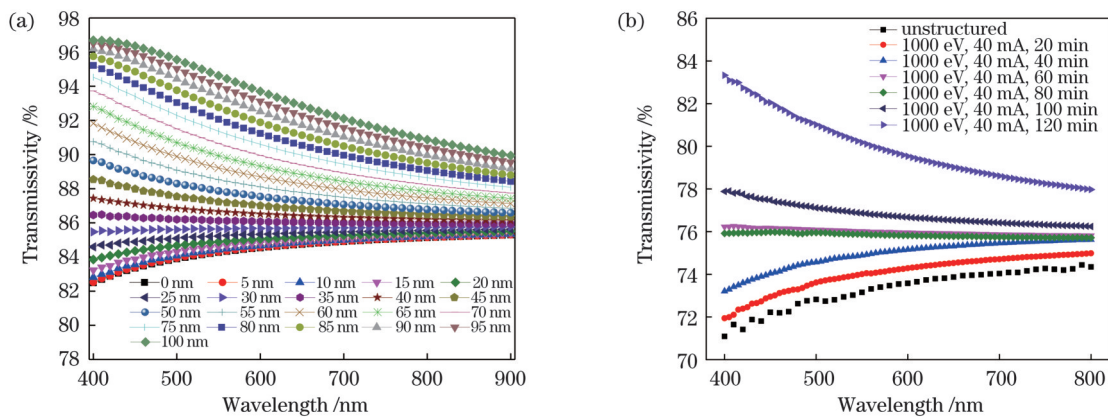


图 10 铌酸锂表面的透射率(入射角为 70° ，入射能量为 1000 eV，离子束束流为 40 mA)。(a)不同纳米结构高度下的仿真透射率；(b)不同刻蚀时间下的实测透射率

Fig. 10 Transmissivity of LiNbO_3 surface (incident angle is 70° , incident energy is 1000 eV and ion beam current is 40 mA).

(a) Simulated transmissivity at different nanostructure heights; (b) measured transmissivity at different etching time

观察图 10(a)所示的仿真图可以发现：透射率随着纳米结构高度的增大而增大，并且当纳米结构高度达到一定值时，透射率由随着波长增大而增大逐渐演变成随着波长增大而降低的趋势。这是由于当纳米结构高度逐渐增大为波长的 $1/4$ 时，透射率在该波长下明显增大。通过对比不同纳米结构高度下的仿真透射率曲线与不同刻蚀时间下的实测透射率曲线可以发现，透射率曲线的整体变化趋势是一致的。COMSOL 仿真中采用的是单面透射，为了与实际测量数据进行对比，需要对仿真数据进行转换。因此，本文对不同纳米结构高度下的透射率进行逐一仿真，以对比仿真透射率与实测透射率的差异。

由 AFM 的测试原理可知 AFM 测试结果中的结构高度表示扫描范围内纳米结构的最大纵向高度，因此不能将其作为仿真参数进行仿真。本文使用 Nanoscopy Analysis 原子力图像处理软件中的 Particle Analysis 模块进行仿真，该模块可以找出扫描范围内覆盖面积最大的一个纳米结构的高度。蓝色部分范围越大，表征相同高度的纳米结构在整个扫描区域内覆

盖的范围越大。选取覆盖区域最大的纳米结构，将其高度设定为仿真高度。

当入射角度为 70° 、入射能量为 1000 eV、离子束束流为 40 mA 时，不同刻蚀时间下铌酸锂实测透射率与仿真透射率的对比如图 11 所示，图中的仿真数据为最大覆盖范围的纳米结构的高度，小图表示 Nanoscopy Analysis 软件中仿真纳米结构高度对应的覆盖区域。

由图 11 可知：铌酸锂原片的仿真透射率与测试透射率基本一致；20~80 min 刻蚀时间内的铌酸锂晶体的实测透射率与仿真透射率之间的偏差较大，为 2 个百分点；当刻蚀时间延长到 120 min 时，铌酸锂表面被纳米结构覆盖，并且整个平面高度基本趋于一致，此时仿真和测量的透射率基本一致。

当刻蚀时间为 20~80 min 时，随着离子束刻蚀时间延长，整个铌酸锂表面上的纳米结构不是均匀增大，而是铌酸锂表面先生长出纳米结构，在该纳米结构不断变大的同时小的纳米结构不断出现，因此铌酸锂表面的均匀性较差，这是仿真结果与测试结果产生较大偏差的主要原因。

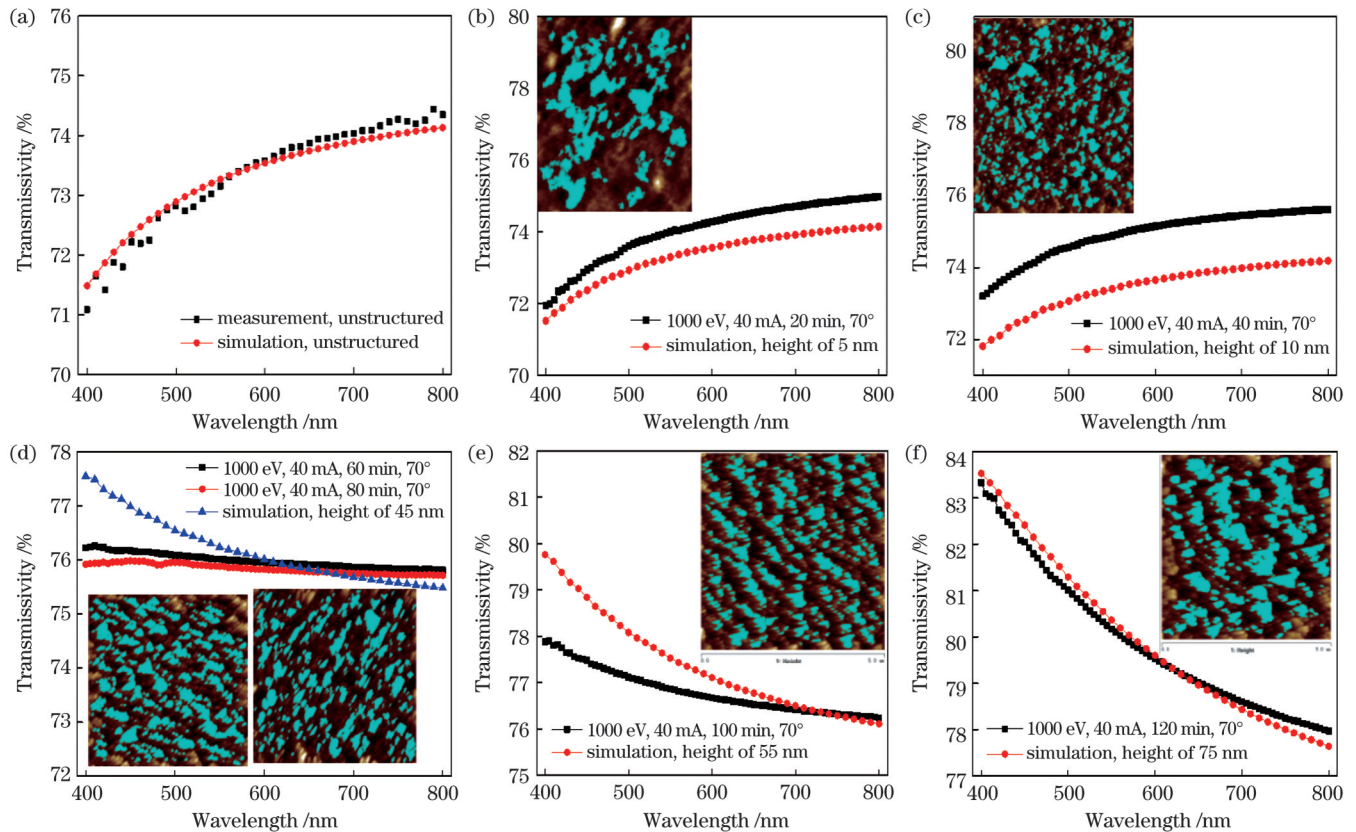


图 11 不同刻蚀时间下 LiNbO_3 样品仿真透射率与实测透射率的对比图(入射角度为 70° , 离子束束流为 40 mA, 入射能量为 1000 eV)
Fig. 11 Comparison between simulated and measured transmissivity of LiNbO_3 samples under different etching time (incident angle is 70° , ion beam current is 40 mA and incident energy is 1000 eV)

5 结 论

使用有限元仿真方法建立了铌酸锂表面亚波长锥形结构模型,研究了不同的结构参数对铌酸锂表面透射率的影响。在入射角度为 70° 的条件下,采用低能离子束刻蚀技术在铌酸锂晶体表面制备了亚波长锥形结构,研究不同了离子束参数对亚波长锥形结构的影响,同时分析了铌酸锂表面不同结构参数的锥形纳米结构对其透射率的影响规律。

当离子束入射角度为 70° 、入射能量大于 600 eV、束流大于 40 mA、刻蚀时间大于 60 min 时,铌酸锂表面可以形成大面积的锥形纳米结构,锥形纳米结构的高度和 RMS 粗糙度随着入射能量、刻蚀时间、离子束束流的增大而增大。采用分光光度计分别对不同离子束参数下刻蚀的铌酸锂晶体进行透射率测量,测量结果显示:铌酸锂表面纳米结构的高度越大,可见光波段的增透效果越明显;当入射能量为 1000 eV、束流为 40 mA、入射角度为 70° 、刻蚀时间为 120 min 时,铌酸锂表面出现纵向高度为 143.5 nm 的锥形结构,此时在可见光波段范围内铌酸锂晶体样片的峰值透射率为 83.5%,相对于铌酸锂原片的透射率提高了约为 12.5 个百分点。

利用 COMSOL 仿真软件对入射角度为 70° 、入射能量为 1000 eV、束流为 40 mA、不同刻蚀时间下铌酸

锂表面产生的纳米结构的透射率进行仿真,并将仿真结果与实测结果进行对比,结果显示:仿真透射率曲线与实测透射率曲线的整体趋势是一致的,都随着纳米结构高度的增大而明显增大。然后对不同刻蚀时间下的纳米结构的透射率进行仿真,对比实验结果与仿真结果可以发现:铌酸锂原片的仿真透射率曲线与测试透射率曲线基本一致;刻蚀时间为 20~80 min 时的仿真结果与测试结果有较大偏差。该偏差是由刻蚀过程中亚波长结构生长的均匀性与实际表面形貌测量误差综合导致的。若进行更长时间的刻蚀,如刻蚀时间达到 120 min,铌酸锂表面就会被纳米结构覆盖,并且整个平面的高度基本趋于一致,此时仿真和测量的透射率基本一致。

参 考 文 献

- [1] Lin J T, Bo F, Cheng Y, et al. Advances in on-chip photonic devices based on lithium niobate on insulator[J]. Photonics Research, 2020, 8(12): 1910-1936.
- [2] Kong Y, Bo F, Wang W, et al. Recent progress in lithium niobate: optical damage, defect simulation, and on-chip devices[J]. Advanced Materials, 2019, 32(3): 1806452.
- [3] Gao B F, Ren M X, Wu W, et al. Lithium niobate metasurfaces [J]. Laser & Photonics Reviews, 2019, 13(5): 1800312.
- [4] 瞿敏妮, 沈赞靓, 乌李瑛, 等. 聚焦离子束对铌酸锂表面加工的形貌控制研究[J]. 电子显微学报, 2020, 39(2): 189-195. Qu M N, Shen Y L, Wu L Y, et al. Topology control for focused ion beam milling of lithium niobate[J]. Journal of Chinese Electron

- Microscopy Society, 2020, 39(2): 189-195.
- [5] Wang T X, Xu X Y, Yang L, et al. Fabrication of lithium niobate fork grating by laser-writing-induced selective chemical etching[J]. *Nanophotonics*, 2022, 11(4): 829-834.
- [6] Li Y N, Wu Q, Yang M, et al. Uniform deep-subwavelength ripples produced on temperature controlled LiNbO₃: Fe crystal surface via femtosecond laser ablation[J]. *Applied Surface Science*, 2019, 478: 779-783.
- [7] Geiss R, Brandt J, Hartung H, et al. Photonic microstructures in lithium niobate by potassium hydroxide-assisted ion beam-enhanced etching[J]. *Journal of Vacuum Science & Technology B, Nanotechnology and Microelectronics: Materials, Processing, Measurement, and Phenomena*, 2015, 33(1): 010601.
- [8] Chowdhury D, Ghose D. Fabrication of nanoscale topographies on Ge(100) surface by low energy Ar⁺ ion sputtering[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions With Materials and Atoms*, 2017, 409: 197-201.
- [9] Joe G, Yang J, Byeon E Y, et al. Effect of argon ion beam incident angle on self-organized nanostructure on the surface of polyethylene naphthalate film[J]. *Journal of the Korean Institute of Surface Engineering*, 2020, 53(3): 116-123.
- [10] Atta A, Abdel Reheem A M, Abdeltwab E. Ion beam irradiation effects on surface morphology and optical properties of ZnO/PVA composites[J]. *Surface Review and Letters*, 2020, 27(9): 1950214.
- [11] Pachchigar V, Ranjan M, Mukherjee S. Role of hierarchical protrusions in water repellent superhydrophobic PTFE surface produced by low energy ion beam irradiation[J]. *Scientific Reports*, 2019, 9: 8675.
- [12] Liao W L, Nie X Q, Liu Z Z, et al. Researches on formation mechanism of ultra-smooth surface during ion beam sputtering of fused silica[J]. *Optik*, 2019, 179: 957-964.
- [13] 陈智利, 刘卫国, 杨利红. 低能离子束诱导蓝宝石自组织纳米结构与光学性能研究[J]. *中国激光*, 2015, 42(3): 0306003. Chen Z L, Liu W G, Yang L H. Self-organizing nano-structure and optical properties of sapphire induced by low energy ion beam[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2015, 42(3): 0306003.
- [14] 王梦皎, 陈智利. 不同离子束参数刻蚀蓝宝石纳米微结构及其光学性能[J]. *应用光学*, 2014, 35(4): 691-695. Wang M J, Chen Z L. Sapphire nanostructure and optical property eroded by different ion beam parameters[J]. *Journal of Applied Optics*, 2014, 35(4): 691-695.
- [15] 杨高元, 蔡茂琦, 李金昱, 等. 基于低能离子轰击的亚波长纳米结构制备[J]. *光学学报*, 2020, 40(17): 1736001. Yang G Y, Cai M Q, Li J Y, et al. Preparation of subwavelength nanostructures based on low-energy ion bombardment[J]. *Acta Optica Sinica*, 2020, 40(17): 1736001.
- [16] 费芒芒. 氟酸锂晶体表面自组织纳米结构制备与特性研究[D]. 西安: 西安工业大学, 2020. Fei M M. Preparation and characterization of self-organized nanostructures on the surface of lithium niobate crystals[D]. Xi'an: Xi'an Technological University, 2020.
- [17] 费芒芒, 陈智利, 刘卫国, 等. 低能 Kr⁺ 离子束诱导蓝宝石晶体实验研究[J]. *光子学报*, 2019, 48(6): 0616004. Fei M M, Chen Z L, Liu W G, et al. Experimental research on sapphire crystal induced by low energy Kr⁺ ion beam[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2019, 48(6): 0616004.
- [18] 唐黎, 陈智利, 刘雨昭, 等. 金属杂质辅助低能氩离子束诱导蓝宝石自组织纳米结构[J]. *光子学报*, 2021, 50(2): 0216002. Tang L, Chen Z L, Liu Y Z, et al. Metal-assisted low-energy Ar⁺ ion beam induces self-organized nanostructure of sapphire[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2021, 50(2): 0216002.

Preparation and Analysis of Lithium Niobate Nanostructures

Tang Huishi, Chen Zhili*, Tang Li, Hui Yingxue, Liu Weiguo

School of Optoelectronic Engineering, Xi'an Technological University, Xi'an 710021, Shaanxi, China

Abstract

Objective Subwavelength structures have been at the forefront of recent research as they can facilitate the miniaturization and reduce the cost of optical devices. Optical devices based on the special electromagnetic properties of subwavelength structures can perform functions that cannot be achieved using ordinary optical devices. Moreover, with high integration, they have remarkably broad application prospects in the field of integrated optics. Lithium niobate (LiNbO₃) is an artificial ferroelectric crystal that exhibits remarkable photoelectricity, optical refraction, and nonlinear optical effects. It also has desirable material properties such as a high refractive index, good high-temperature resistance, good corrosion resistance, and a wide transparency window, making it a material of choice for integrated optical circuit applications. To realize the excellent functionality of lithium niobate optics and achieve efficient integration, preparing subwavelength structures on the surface of lithium niobate is an ideal way to showcase the potential of their optical properties. However, preparing subwavelength lithium niobate structures by using methods such as focused ion beam etching, laser etching, and wet etching is not simple, economical, or efficient. A micro- or nanoprocessing technique that does not require the use of templates offers a simple and economic method to prepare subwavelength structures on a large scale. The development of such a method can play an important role in research on the application of lithium niobate optical devices.

Methods In this study, the subwavelength structure on a lithium niobate surface was designed and prepared using simulation and experiment. Finite element method-based simulations were performed using COMSOL software, while the subwavelength structure on the lithium niobate surface was prepared using a low-energy ion-beam etching method. The transmissivity, roughness, longitudinal height of the nanostructures, and surface morphology of the etched lithium niobate samples were analyzed using a Lambda950 spectrophotometer and atomic force microscope, respectively. By simulating and analyzing the optical properties of the fabricated lithium niobate surface, the influence of the subwavelength conical structure and structural parameters on the optical properties of lithium niobate was analyzed.

Results and Discussion The transmissivity curves obtained from COMSOL are consistent with experimental data, and both

show a significant increase in the surface transmissivity of lithium niobate with increasing nanostructure height. Upon comparing the experimental data with the simulations, the results for the transmissivity of the lithium niobate primary wafer are found to be consistent (Fig. 11), and the height and RMS roughness of the conical subwavelength structure on the lithium niobate surface increase with an increase in the incident energy, etching time, and ion beam current. When the incident energy is 1000 eV, ion beam current is 40 mA, incident angle is 70° , and etching time is 120 min, the prepared structure appears to have a tapered geometry with a longitudinal height of 143.5 nm (Fig. 7). The peak transmissivity of this lithium niobate crystal sample is 83.5% in the visible wavelength range, which is approximately 12.5 percentage points higher than that of unmodified lithium niobate (Fig. 9).

Conclusions The transmissivity of nanostructures generated on the lithium niobate surface at an incident angle of 70° , incident energy of 1000 eV, ion beam current of 40 mA, and different etching time were simulated using COMSOL. The simulated transmissivity curves are consistent with the measured curves, and as the nanostructure height increases, the surface transmissivity of lithium niobate increases significantly. When the ion beam incident angle is 70° , the incident energy of the ion beam is greater than 600 eV, ion beam current is greater than 40 mA, and etching time is greater than 60 min, a large number of conical nanostructures can be formed on the surface of lithium niobate, and the height and RMS roughness of the conical nanostructure increase with the increase in incident energy, etching time, and ion beam current. The transmissivity measurements of lithium niobate crystals etched with different ion beam parameters were performed separately via spectrophotometry. The results show that the higher the nanostructure on the surface of lithium niobate, the more evident the effect of increasing transmittance in the visible band; when the incident energy is 1000 eV, ion beam current is 40 mA, incident angle is 70° , etching time is 120 min, longitudinal height of 143.5 nm appears on the surface of lithium niobate. At this time, the peak transmissivity of the lithium niobate crystal sample is 83.5% in the visible wavelength range, which is approximately 12.5 percentage points higher than that of the original lithium niobate.

Key words optics at surfaces; lithium niobate; subwavelength structure; optical properties; ion beam sputtering; transmissivity