

飞秒激光直写太赫兹波段二维金属亚波长孔阵列

汪月容 李毅 何书通 毛鹏程 胡明列

(天津大学精密仪器与光电子工程学院超快激光研究室, 光电信息技术科学教育部重点实验室, 天津 300072)

摘要 利用中心波长为 775 nm、重复频率为 1 kHz、脉宽为 130 fs 的飞秒激光脉冲对厚度为 200 μm 的铜片进行微加工, 制作了适用于太赫兹 (THz) 波段 (0.1~4 THz) 的二维金属亚波长孔阵列。实验中, 分别固定激光能量和加工时间, 研究烧蚀孔直径随激光功率及加工时间的变化规律, 发现激光偏振态是引起烧蚀缺口的主要原因。利用数值模拟软件 (CST) 计算出适用于 THz 波段的金属孔阵列结构参数, 根据以上实验结果选择合适的激光参数制作了孔阵列。

关键词 激光技术; 飞秒激光微纳加工; 打孔; 二维金属亚波长孔阵列

中图分类号 TN249 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/LOP48.051402

Femtosecond Laser Directly Writing Two Dimensional Metal Sub-wavelength Hole Array Applicable to Terahertz Band

Wang Yuerong Li Yi He Shutong Mao Pengcheng Hu Minglie

(Key Laboratory of Optoelectronic Information Technical Science, Ministry of Education, Ultrafast Laser Laboratory, College of Precision Instruments and Optoelectronics Engineering, Tianjin University, Tianjin 300072, China)

Abstract Two dimensional metal sub-wavelength hole array applicable to THz band (0.1~4 THz) has been made by using femtosecond laser pulses at 775 nm centre wavelength, 1 kHz repetition rate and 130 fs pulse width micromachining copper sheets with thickness up to 300 μm . The diameters of processed hole have been measured as a function of the laser power and the processing time while the processing time and the laser power are fixed respectively. The polarization of the laser radiation is the main cause of the ablation gaps. By using numerical computer simulation technology (CST), the suitable metal hole array structure parameters applicable to THz band have been calculated. According to the above experimental results, the appropriate laser parameters have been chosen to fabricate the hole array.

Key words laser technique; femtosecond laser micromachining; drilling; two dimensional metal sub-wavelength hole array

OCIS codes 140.3390; 140.7090; 320.2250

1 引言

二维金属亚波长孔(孔的直径不超过入射光波长的一半)阵列(TDMSHA)^[1]的增强透射与滤波特性具有重要的应用前景,如近场光学成像^[2]、制作 TDMSHA 生物与化学传感器^[3]等,从而引起研究者极大的兴趣,其中以 T. W. Ebbesen 为首的研究小组在理论^[4~6]和实践^[7~9]两方面都做出了大量富有成果的研究,本课题组在增强透射现象产生机理方面^[10]也作了大量工作。传统的 TDMSHA 制作采用光刻蚀技术^[11,12],需要借助光致抗蚀剂、模版曝光和腐蚀洗涤等一系列光刻程序,非常复杂且自由度相对较低。激光直接刻写技术具有快速成型且可自由设计等优势^[13],可随时根据实验需要对微孔结构进行调整和再加工,相对要简单

收稿日期: 2010-12-10; 收到修改稿日期: 2010-12-23

基金项目: 国家大学生创新性实验计划项目(081005607)资助课题。

作者简介: 汪月容(1988—),女,硕士研究生,主要从事飞秒激光微纳加工方面的研究。E-mail: wangyr99@tju.edu.cn

作者简介: 胡明列(1978—),男,教授,博士生导师,主要从事光子晶体光纤及超短脉冲激光技术等方面的研究。

E-mail: huminglie@tju.edu.cn

很多^[14]。尤其是飞秒激光具有脉冲时间短、功率密度高以及可实现冷加工等特点^[15],能够在亚微米级精度实现多种材料的精细加工及器件制备^[16]。通过电脑控制平移台和激光能量,可以很快的一次成型所需要的结构。

国内外在这方面的相关研究已经有报道^[17],本文侧重于飞秒激光单脉冲能量和作用脉冲数量对铜片样品烧蚀穿孔的影响,系统研究了飞秒激光功率、加工时间及偏振态对烧蚀孔直径及加工质量的作用,得到制作特定参数孔阵列的最佳实验数据;讨论了加工样品对太赫兹波的调制作用,并制作适用于太赫兹(THz)波段的二维金属亚波长孔阵列。

2 实验装置

激光加工实验装置如图 1 所示,飞秒激光加工系统(Clark inc.)主要由三部分组成:飞秒激光光源系统,飞秒激光加工定位系统,CCD 监控系统。飞秒激光光源输出的脉冲中心波长为 775 nm,脉冲宽度为 150 fs,重复频率为 1 kHz,输出最大平均功率为 1.1 W,水平偏振输出。输出激光传输至加工平台,经过物镜聚焦到待加工样品表面。实验选取 5× 的聚焦物镜,其数值孔径(NA)为 0.14,工作距离为 37.5 mm。输出激光功率可以通过控制抽运源电流进行实时调节。通过程序可以控制加工平台的运动及快门的开关,从而完成所设计结构的加工。在加工过程中,通过 CCD 监控系统可以监控加工效果,从而实现对加工过程的实时调整。飞秒激光定位系统的最小加工速度为 1 μm/s,最大分辨率为 1 μm,定位精度为 ±0.1 μm。

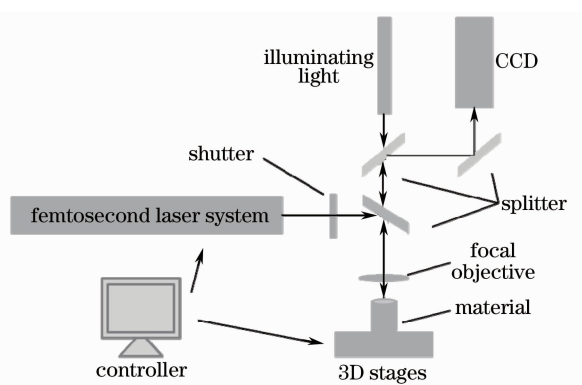


图 1 飞秒激光微加工系统示意图

Fig. 1 Femtosecond laser micromachining experimental setup

3 实验结果及分析

实验中选取了 300 μm 厚的铜片样品,先经过机械抛光,然后进行微细打孔。抛光后铜片厚度为 200 μm。全部实验均在空气中进行。用光学显微镜观测加工结果的基本形貌,再采用扫描电镜对加工后的样品进行微观形貌分析与加工效果检测。

3.1 加工时间对孔直径的影响

研究了加工时间对烧蚀孔的影响。固定激光功率,改变加工时间,测量烧蚀孔的直径,可得到特定激光功率下孔直径随加工时间的变化关系。图 2 为激光功率分别为 110, 420, 620 和 780 mW 时烧蚀孔的直径与加工时间的关系图。由图可知,固定脉冲功率,孔直径在一定范围内随加工时间呈增大趋势,最终趋于一个稳定值。由于脉冲累积效应,孔的直径随脉冲数增加而增大,但当脉冲数达到一定数量时,脉冲累积效应不再起作用,因而孔直径最终趋向于稳定值。

在光学显微镜下观察烧蚀孔的形状,发现孔的形状呈现不规则。通过比较同一功率不同加工时间下的加工结果图,发现在给定功率的条件下,对应有最优化的加工时间,在这种条件下得到的孔效果最好,即孔最圆,没有不规则现象。如加工功率较高时($P=780$ mW),对应最佳加工时间约为 0.2 s;加工功率适中时($P=420$ mW、 $P=620$ mW),对应最佳加工时间约为 1 s;加工功率较小($P=110$ mW),对应最佳加工时间约为 2 s。如图 3

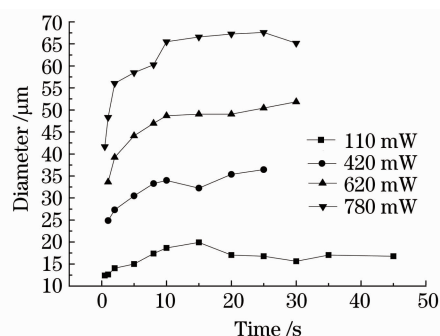


图 2 孔直径与加工时间的关系图

Fig. 2 Hole diameter D as a function of the processing time

所示,列举了部分具有代表性的烧蚀孔。

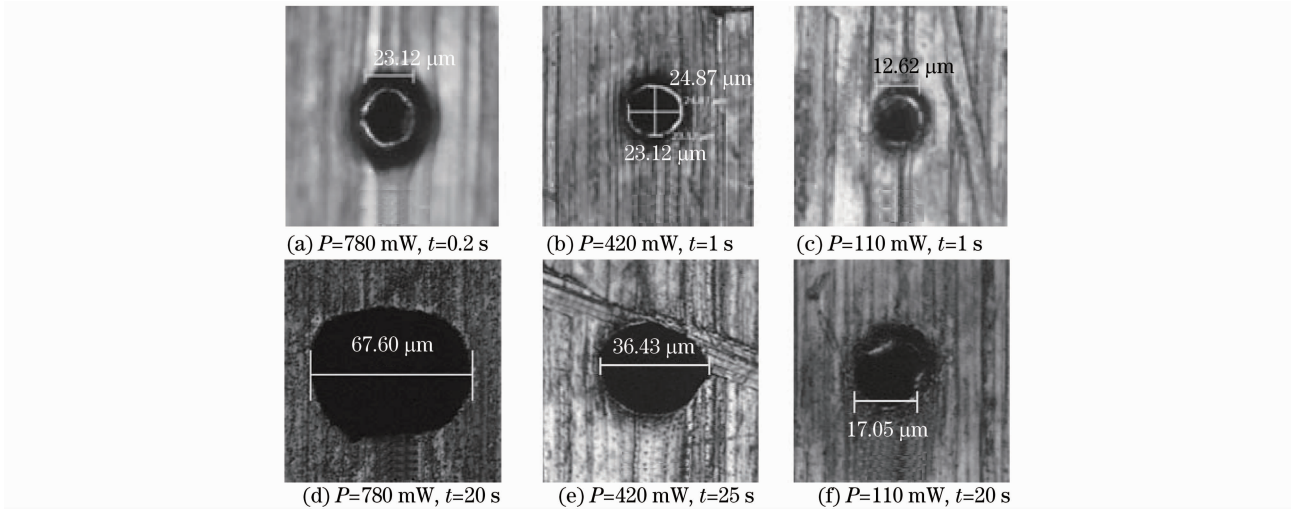


图 3 不同功率对应最佳加工时间得到孔形状图, (a)~(c)为加工边缘较规则图, (d)~(f)为加工边缘不规则的孔

Fig. 3 Holes produced at the optimum time for different laser powers, the edge of the holes of (a)~(c) are regular; the edge of the holes of (d)~(f) are irregular

观察烧蚀孔结果,同时可以发现部分烧蚀孔呈椭圆形。为研究孔直径与加工时间关系的实验中,用 $P=1029\text{ mW}$ 的激光进行实验的结果,如图 4 所示。这是激光本身模式分布造成的,实验利用光束质量分析仪对脉冲的分布进行了测量分析,证实了上述现象的产生原因。

3.2 激光功率对孔直径的影响

在保持其他条件不变的情况下,进一步研究了飞秒激光输出功率对烧蚀孔的影响。在此实验中选择加工时间为 1 s,变化输出功率,探索烧蚀孔直径随激光功率的变化情况。

经简单推导可得烧蚀孔直径与激光能流密度的关系由 $D^2 = 2\omega_0^2 \ln(\phi_0/\phi_{th})$ 决定,类比此关系式,做出 D^2 与激光功率的关系图如图 5 所示。由 $\phi(r) = 2E_p/\pi\omega_0^2$, 峰值能流密度与脉冲能量成正比,而在固定脉宽时,脉冲能量由脉冲平均功率除以重复频率得到,重复频率一定时,脉冲能量与平均功率成正比,所以此处 ϕ_0 和 P 两个量是等价的。

由 $D^2 = 2\omega_0^2 \ln(\phi_0/\phi_{th})$ 可以看出烧蚀孔直径的平方与激光能量密度的对数成线性关系,即 $D^2 \propto \ln(\phi_0)$,因而也应有 $D^2 \propto \ln(P_0)$ 。然而由图 5 可以看出,此处定义的激光功率的对数与 D^2 不成线性关系,而近似是分段线性的,分段拟合结果如图 5 所示。

对于 X 偏振光加工结果, $\ln(P) = 5.54$ 处近似为分界点,即 $P=255\text{ mW}$ 处。

(1) $\ln(P) < 5.5$ 时, $D^2 = 104.7 \cdot \ln(P) - 177.4$ 。令 $D^2 = 0$; 解得 $\ln(P_{th}) = 1.69$, 所以 $P_{th} = 5.42\text{ mW}$ 。可以得到加工时间为 1 s 时,将 300 μm 厚的铜片打穿的阈值功率为 5.42 mW。

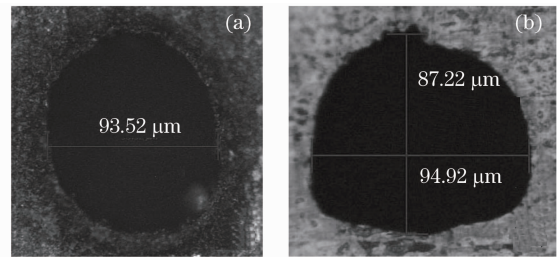


图 4 P 为 1029 mW, t 为 45 s 时的加工结果, (a) 孔的正面图, (b) 孔的背面图

Fig. 4 Pictures of the holes drilled with a power of 1029 mW at 45 s processing time. (a) front of the hole, (b) back of the hole

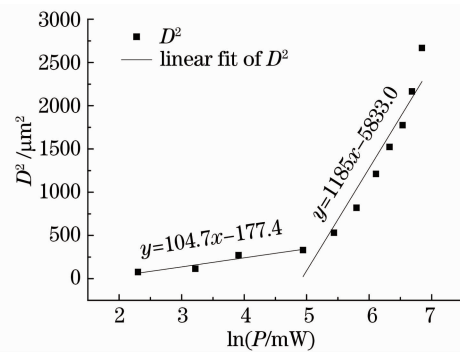


图 5 烧蚀孔直径平方与激光功率的对数的关系图
Fig. 5 Square of the processed hole diameter D^2 as a function of the logarithm of the laser power

(2) $\ln P > 5.5$ 时, $D^2 = 1185.0 \ln P - 5833.0$ 。同理,可解得加工时间为 1 s 时,将 300 μm 厚的铜片打穿后,发生更明显的烧蚀现象的阈值功率为 134.29 mW。

由以上关系式,在给定功率时,可以近似求出对应的烧蚀孔直径。

3.3 烧蚀孔形状不规则原因分析

在光学显微镜下观察烧蚀孔的背面时,可发现孔的边缘呈现不规则,甚至部分孔有明显的凸起结构,此处定义为烧蚀缺口,如图 6(a),(b)中用圆标出。排除铜片本身纹理导致应力不均引起缺口,进一步分析显示脉冲的偏振态是产生缺口的原因。

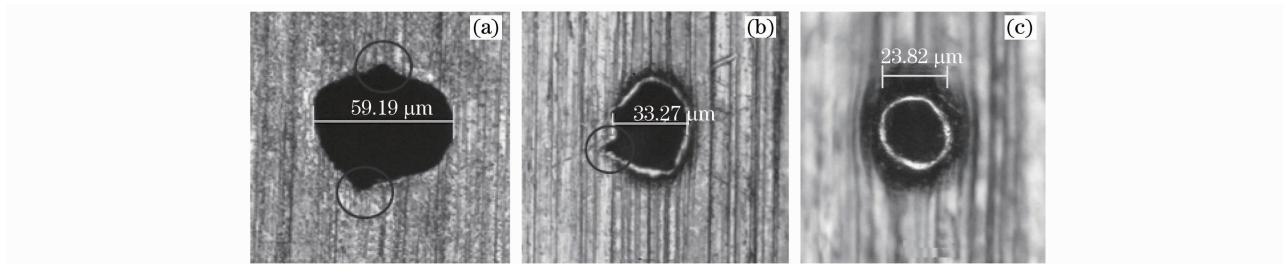


图 6 烧蚀孔缺口图,(a),(b)和(c)分别为 X,Y 和圆偏振得到的烧蚀孔

Fig. 6 Gaps of the processed holes, (a), (b) and (c) are holes processed by X, Y and circularly polarized laser beam

参照文献[18],可通过分析闭孔底部的光强分布来得到烧蚀孔背面不规则甚至出现缺口的原因。首先,利用菲涅耳公式计算 s,p 分量的反射率。菲涅耳公式为

$$r_s = \frac{E_{ors}}{E_{ois}} = \frac{\sqrt{n^2 - \sin^2 \theta} - \cos \theta}{1 - n^2}, \quad (1)$$

$$r_p = \frac{E_{orp}}{E_{oip}} = \frac{n^2 \cos \theta - \sqrt{n^2 - \sin^2 \theta}}{n^2 \cos \theta + \sqrt{n^2 - \sin^2 \theta}}, \quad (2)$$

式中 θ 是入射光线与入射平面法线的夹角;对于金属铜, $n = 0.62 + 2.57i$ 。分量反射率即为

$$R_s = |q_{rs}|^2, R_p = |q_{rp}|^2. \quad (3)$$

由此,可绘制出 s,p 分量的反射率图,如图 7 所示。

假设平行入射光为对称分布的平行光,选取典型的入射角 85° 。此时 s 偏振光的反射率达到 97.45%,而 p 偏振光反射率为 80.25%。由于主要的吸收和主要的烧蚀发生在孔的底部,主要考虑这个部分的光强。对于某处的光强由墙壁反射光和直接入射光相加得到,由于平行于偏振方向反射率低于垂直于偏振方向的反射率,因而平行于偏振方向的反射光强要小于垂直于偏振方向的反射光强,总体来说就有垂直于偏振方向光强大于平行于偏振方向的光强。

越强的光强入射,将引起越多的材料被烧蚀,如垂直于偏振方向。因而,发生了非均匀的烧蚀,导致了更复杂的结构和孔内的多次反射,这使得当孔进一步加深时,实际光强分布的模型化非常困难。然而由简单讨论可定性得出,孔将产生凸起并具有椭圆的形状,倾向垂直于激光偏振方向。实验中利用圆偏光进行了加工,则可基本消除缺口现象。

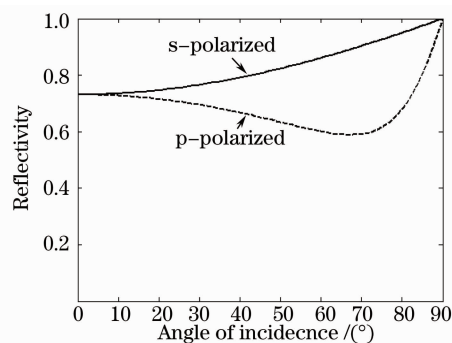


图 7 铜片 s,p 光的反射率与激光入射角度的关系图

Fig. 7 Reflectivity of s / p-polarized pulses as a function of the angle of incidence on copper sheets

4 二维金属亚波长孔阵列的制作

4.1 参数选取

为制作适用于 THz 波段的滤波器,即金属结构的透射峰位于 THz 波段,首先利用基于时域积分算法 (FITD) 的数值模拟软件 CST 计算了样品铜片不同结构参数(孔直径和孔阵列周期)下孔阵列的透射谱,选

择透射峰位于 THz 波段的结构参数作为加工标准。

模拟结果显示,小孔直径为 $60\ \mu\text{m}$,孔阵列周期为 $300\ \mu\text{m}$ 时,透射峰恰位于 THz 波段,CST 软件仿真模拟的结果如图 8 所示。此结构的孔阵列在 THz 波段有多处明显的透射峰。故实验选取了结构参数为:孔直径为 $60\ \mu\text{m}$,孔阵列周期为 $300\ \mu\text{m}$,孔阵列面积为 $12\ \text{mm}\times 12\ \text{mm}$ 。值得注意的是,由于此处定义透射光强与总入射光强之比等于孔面积与总阵列面积之比时透射率为 1,即 $I_{\text{trans}}/I_{\text{total}} = S_{\text{holes}}/S_{\text{total}}$ 时透射率为 1,所以图中透射率、反射率与透射率之和大于 1 并不表示能量不守恒。

根据前面实验结果可知,快门打开时间越长、激光功率越高,得到孔的直径越大。要完成以上所述的周期结构需要打 1600 个孔,综合考虑时间因素和激光器功率的限制,实验选择功率最高为 $1.1\ \text{mW}$,快门打开时间为 $1\ \text{s}$ 。

4.2 制作结果

利用光学显微镜观察实验打孔的结果,选择性地观察了孔阵列中具有代表性的孔的结构,并测量了这些孔的直径。然后利用扫描电子显微镜观察孔阵列的精细结构。如图 9 为孔阵列的扫描电子显微镜下观察到的精细结构,孔阵列整体效果较好。表 1 为孔阵列直径表,表中数据位置与阵列相应位置孔对应。由表可知,孔的直径有一定的起伏,这是铜片不平,在加工过程中有一定程度的离焦引起的。然而孔阵列中心处的小孔直径较为稳定,波动不大。

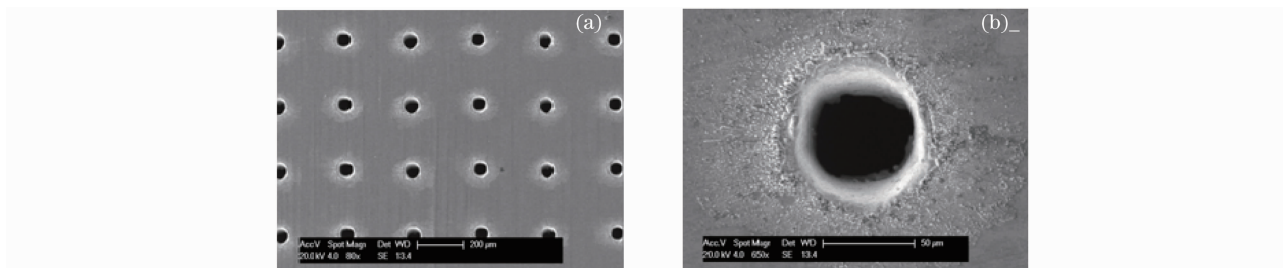


图 9 孔阵列的扫描电镜图。(a)孔阵列整体图,(b)中心孔图

Fig. 9 Scanning electron micrographs of the hole array. (a) Figure of the whole hole array; (b) figure of the center hole of the array

表 1 孔阵列直径表

Table 1 Diameters of the hole array

Diameters					Diameters						
Frant	76.36	74.61	72.31	72.53	73.55	Back	58.36	57.63	54.26	57.69	58.63
	69.70	72.50	71.45	71.45	74.96		50.33	55.69	53.59	57.79	60.60
	58.49	72.15	70.75	75.66	87.57		45.20	51.49	53.94	54.64	65.55
	58.84	72.53	71.45	80.91	98.42		43.26	49.39	53.94	66.55	66.90
	59.89	73.20	74.13	79.16	92.31		45.59	50.03	52.36	65.56	65.23

5 结 论

实验利用飞秒激光在铜片上打孔,制作二维金属亚波长孔阵列。固定激光功率,烧蚀孔直径先随加工时间增加而增大,然后逐渐趋于稳定值;固定加工时间,烧蚀孔直径平方与激光功率平方对数成分段线性;加工中,线偏振光将导致加工孔出现缺口现象,采用圆偏振光进行加工,将大大改善加工效果。利用实验结果选

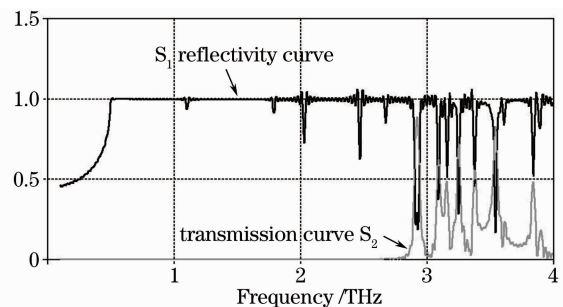


图 8 直径 $60\ \mu\text{m}$,阵列周期 $300\ \mu\text{m}$ 孔阵列的反射透射谱上一条曲线表示反射谱,下面一条表示透射谱

Fig. 8 Reflectivity and transmissivity curves of the hole array with diameter of $60\ \mu\text{m}$ and period of $300\ \mu\text{m}$, the upper curve stands for reflectivity, and the lower curve stands for transmissivity

择合适加工参数,加工出了所设计的孔阵列结构。在下一步实验中,将采用更薄更平坦的铜片进行实验,改善加工效果的同时将大幅度缩短加工时间,制作适用于 THz 波段的传输与控制器件。

参 考 文 献

- 1 T. W. Ebbesen, H. J. Lezec, H. F. Ghaemi *et al.*. Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays[J]. *Nature*, 1998, **391**(6668): 667~669
- 2 A. Bitzer, M. Walther. Terahertz near-field imaging of metallic subwavelength holes and hole arrays[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2008, **92**(23): 231101
- 3 S. M. Williams, K. R. Rodriguez, S. Teeters-Kennedy *et al.*. Scaffolding for nanotechnology: extraordinary infrared transmission of microarrays for stacked sensors and surface spectroscopy [J]. *Nanotechnology*, 2004, **15**(10): S495~S503
- 4 J. Bravo Abad, A. Degiron, F. Przybilla *et al.*. How light emerges from an illuminated array of subwavelength holes[J]. *Nature Phys.*, 2006, **2**(2): 120~123
- 5 Y. M. Streltsov, D. J. Bergman. Optical transmission through metal films with a subwavelength hole array in the presence of a magnetic field[J]. *Phys. Rev. B*, 1999, **59**(20): R12763~R12766
- 6 E. Popov, M. Neviere, S. Enoch *et al.*. Theory of light transmission through subwavelength periodic hole arrays[J]. *Phys. Rev. B*, 2000, **62**(23): 16100~16108
- 7 S. H. Chang, S. Gray, G. Schatz. Surface plasmon generation and light transmission by isolated nanoholes and arrays of nanoholes in thin metal films [J]. *Opt. Express*, 2005, **13**(8): 3150~3165
- 8 E. S. Kwak, J. Henzie, S. H. Chang *et al.*. Surface plasmon standing waves in large-area subwavelength hole arrays[J]. *Nano. Lett.*, 2005, **5**(10): 1963~1967
- 9 S. M. Williams. Use of the extraordinary infrared transmission of metallic subwavelength arrays to study the catalyzed reaction of methanol to formaldehyde on copper oxide[J]. *J. Phys. Chem. B*, 2004, **108**(31): 11833~11837
- 10 Wang Changlei, Gu Jianqiang, Han Jianguang *et al.*. Role of mode coupling on transmission properties of subwavelength composite hole-patch structures[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2010, **96**(25): 251102
- 11 Wang Yuanyuan, Cai Hong, Ma Jinlong *et al.*. Extraordinary transmission characteristics on THz band of two-dimensional metallic sub-wavelength hole arrays[J]. *Acta Physica Sinica*, 2009, **58**(10): 6884~6888
王媛媛,彩虹,马金龙等. 亚波长孔阵列的太赫兹波异常透射研究[J]. *物理学报*, 2009, **58**(10): 6884~6888
- 12 Tian Zhen. Surface Plasmon Polaritons Active Control and Sensing Application at Terahertz Frequencies[D]. Tianjin: Tianjin University, 2010. 40~42
田震. THz 波段表面等离激元波的主动控制和传感应用[D]. 天津: 天津大学, 2010. 40~42
- 13 He Fei, Cheng Ya. Femtosecond laser micromachining: frontier in laser precision micromachining[J]. *Chinese J. Lasers*, 2007, **34**(5): 595~622
何飞,程亚. 飞秒激光微加工: 激光精密加工领域的新前沿[J]. *中国激光*, 2007, **34**(5): 595~622
- 14 Qi Heng, Wang Xiansong, Chen Tao *et al.*. Fabrication and application of PMMA continuous-flow PCR microfluidic chip with CO₂ laser direct-writing ablation micromachining technique[J]. *Chinese J. Lasers*, 2009, **36**(5): 1239~1245
祁恒,王贤松,陈涛等. PMMA 基连续流式 PCR 微流控芯片的 CO₂ 激光直写加工与应用[J]. *中国激光*, 2009, **36**(5): 1239~1245
- 15 Rafael R. Gattass, Eric Mazur. Femtosecond laser micromachining in transparent materials[J]. *Nature Photonics*, 2008, **2**(4): 219~225
- 16 Zhu Shaoji, Zou Haixing, Bao Xuechang *et al.*. Diffraction grating[M]. Beijing: China Machine Press, 1986. 244~245
祝绍箕,邹海兴,包学诚等. 衍射光栅[M]. 北京: 机械工业出版社, 1986. 244~245
- 17 Zhou Ming, Yuan Dongqing, Li Jian *et al.*. Micro-and nano-structures on metal induced by femto second laser radiation[J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2009, **29**(6): 1454~1458
周明,袁冬青,李健等. 飞秒激光辐射诱导金属表面微纳结构研究[J]. *光谱学与光谱分析*, 2009, **29**(6): 1454~1458
- 18 S. Nolte, C. Momma, G. Kamlage *et al.*. Polarization effects in ultrashort-pulse laser drilling[J]. *Appl. Phys. A*, 1999, **68**(5): 563~567