

# 基于飞秒激光时空聚焦技术的三维微纳加工

井晨睿<sup>1,2</sup>, 王朝晖<sup>2,3</sup>, 程 亚<sup>2\*</sup>

<sup>1</sup>洛阳师范学院物理与电子信息学院, 河南 洛阳 471000;

<sup>2</sup>中国科学院上海光学精密机械研究所强场激光物理国家重点实验室, 上海 201800;

<sup>3</sup>中国航空工业集团公司洛阳电光设备研究所, 河南 洛阳 471000

**摘要** 介绍飞秒激光时空聚焦技术的基本原理,回顾了该技术在改善飞秒激光加工的分辨率、抑制加工过程中的非线性效应以及提高材料加工质量等方面的应用。重点讨论了脉冲前沿倾斜(PFT)、光强平面倾斜等时空聚焦飞秒激光脉冲的独特光场特性及其对材料加工产生的影响。介绍了时空聚焦技术在强场物理领域中的应用,并对该技术的适用范围进行了讨论。最后对该技术的特点和应用进行总结,并指明了未来的研究方向。

**关键词** 激光光学; 三维微纳加工; 时空聚焦技术; 加工分辨率; 脉冲前沿倾斜; 光强平面倾斜; 非互逆直写; 非线性光电离

中图分类号 TN249 文献标识码 A

doi: 10.3788/LOP54.040005

## Three-Dimensional Micro- and Nano-Machining Based on Spatiotemporal Focusing Technique of Femtosecond Laser

Jing Chenrui<sup>1,2</sup>, Wang Zhaohui<sup>2,3</sup>, Cheng Ya<sup>2</sup>

<sup>1</sup> College of Physics and Electronic Information, Luoyang Normal University, Luoyang, Henan 471000, China;

<sup>2</sup> State Key Laboratory of High Field Laser Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China;

<sup>3</sup> Luoyang Institute of Electro-Optical Devices, Aviation Industry Corporation of China, Luoyang, Henan 471000, China

**Abstract** The fundamental principle of spatiotemporal focusing technique of femtosecond laser is introduced in this paper, and applications of this technique on improving the resolution of femtosecond laser fabrication, suppressing the nonlinear effect of the fabricating process, and improving the materials fabrication quality are reviewed. Discussion is emphasized on the unique optical field characteristics of spatiotemporally focused femtosecond laser pulses including pulse front tilt (PFT) and intensity plane tilt, and their influence on material processing. Moreover, the applications of spatiotemporal focusing technique on high field physics and its scope of applications are introduced. Lastly, we summarize the principles and applications of spatiotemporal focusing technique, and suggest several directions for the future research.

**Key words** laser optics; three-dimensional micro- and nano-machining; spatiotemporal focusing technique; fabrication resolution; pulse front tilt; intensity plane tilt; non-reciprocal writing; nonlinear photo ionization

**OCIS codes** 140.3460; 220.4000; 220.4241; 320.5540

## 1 引言

近年来,飞秒激光三维微加工技术在微流体、微光学、微电子学和光流控等诸多研究领域中的应用引起

收稿日期: 2016-08-17; 收到修改稿日期: 2016-11-21

基金项目: 国家自然科学基金(11304330)、河南省高等学校重点科研项目(17A140023)、洛阳师范学院国家级培育基金(2015-PYJJ-001)

作者简介: 井晨睿(1989—),女,博士,讲师,主要从事飞秒激光成丝方面的研究。E-mail: jing1989111@sina.com

\* 通信联系人。E-mail: ya.cheng@siom.ac.cn

了人们广泛的关注<sup>[1-9]</sup>。当飞秒激光脉冲被紧聚焦于透明材料内部时,多光子电离、隧穿电离等非线性相互作用被有效地限制在焦点处,可以选择性地对透明材料内部改性,使得飞秒激光具有对透明材料进行三维加工的能力<sup>[10-13]</sup>。对于三维微纳加工来说,加工的纵向分辨率(沿着脉冲传播方向的分辨率)与横向分辨率对加工的效果起着同样重要的作用。在透明材料内部直写光波导或者制备三维微流体结构等应用往往需要获得三维各向同性的加工分辨率。然而对于传统聚焦的飞秒激光来说,焦点的瑞利距离总是大于横向的焦斑,使得加工的横向分辨率总是优于纵向分辨率。为此,人们发明了多种脉冲整形技术,包括像散整形<sup>[14]</sup>、狭缝整形<sup>[15]</sup>、交叉光束整形<sup>[16]</sup>和飞秒激光时空聚焦技术<sup>[17]</sup>等来改善飞秒激光加工的纵向分辨率。

在诸多脉冲整形技术中,飞秒激光时空聚焦技术一经提出,立刻引起了人们广泛的关注。迄今为止,飞秒激光时空聚焦技术是唯一一种利用单个聚焦物镜即可获得三维各向同性加工分辨率的脉冲整形技术,这一优势已经被应用于在不同的直写方向上制备具有圆形截面的微流通道<sup>[17-18]</sup>。在进一步的研究中,人们发现在聚焦的数值孔径(NA)相同的情况下,利用时空聚焦技术可以有效地抑制焦点以外的非线性效应<sup>[19]</sup>,因此可以改善聚焦数值孔径较低时飞秒激光对材料的加工质量。这一特征也已经被应用于对玻璃、生物组织等多种材料的加工中<sup>[19-22]</sup>。

在最近的研究中,人们发现时空聚焦飞秒激光脉冲的焦点具有脉冲前沿倾斜(PFT)<sup>[23]</sup>、光强平面倾斜等独特的光场特性<sup>[24]</sup>,这使其在与透明材料相互作用的过程中会产生许多有趣的现象。例如,当时空聚焦的飞秒激光脉冲在透明材料中直写时会产生非互逆直写现象<sup>[23]</sup>,而当其聚焦于中心对称的气体介质中时会产生高信噪比的二次谐波<sup>[25]</sup>。现在,时空聚焦飞秒激光脉冲的特性及其与材料相互作用的完整物理图像仍处于不断的探索中。与此同时,飞秒激光时空聚焦技术已经被应用于飞秒激光成丝<sup>[26]</sup>、远程探测<sup>[27]</sup>等诸多领域中,其应用领域仍在不断得到拓展。

本文简单介绍了飞秒激光时空聚焦技术的原理和应用的最新研究进展。首先介绍了时空聚焦技术的光学系统、基本原理以及基本的光场特征,并回顾其在微纳加工领域中的应用;其次介绍了时空聚焦的飞秒激光脉冲的特殊光场特性及其对材料加工产生的影响;最后介绍了该技术在强场物理领域中的应用,并对该技术的适用范围进行讨论。

## 2 飞秒激光时空聚焦技术简介

### 2.1 基本原理

飞秒激光时空聚焦技术的基本原理为<sup>[17]</sup>:先利用一对光栅使脉冲的不同频率分量在空间上展开,引入一定的空间啁啾,再利用物镜进行聚焦。只有在物镜的焦点处,脉冲的不同频率分量在空间上才是重合的,可以达到傅里叶变换极限的最短脉冲宽度,峰值光强也最高。在偏离几何焦点的位置,由于不同频率分量在空间上分开造成脉冲宽度的展宽,峰值光强会迅速下降。其基本原理如图1所示,可以看出时空聚焦具有在时间域和空间域同时聚焦的效果。值得注意的是,在飞秒激光脉冲进入光栅对(G1-G2)之前,需要引入一定的正啁啾来补偿光栅对引入的负啁啾。

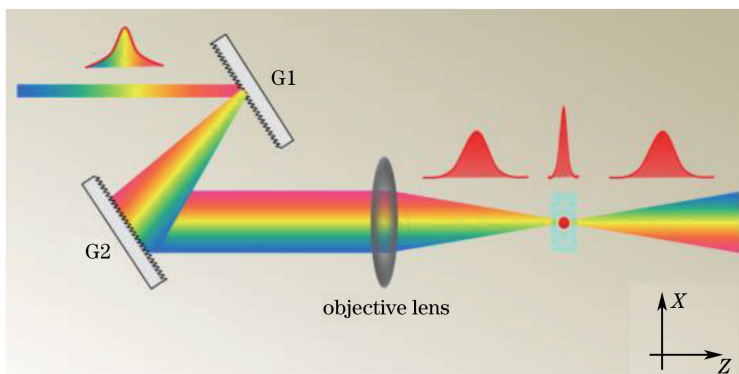


图1 飞秒激光时空聚焦原理示意图<sup>[28]</sup>

Fig. 1 Schematic illustration of femtosecond laser spatiotemporal focusing<sup>[28]</sup>

## 2.2 时空聚焦脉冲的基本特征

在实际应用中,常利用菲涅耳衍射理论来模拟时空聚焦脉冲的光场特征。在聚焦物镜之前,飞秒激光脉冲在  $x$  方向上有一定的空间啁啾,其频率域光场可写为<sup>[17-18]</sup>

$$E_1(x, y, \omega) = E_0 \exp\left[-\frac{(\omega - \omega_0)^2}{\Delta\omega^2}\right] \exp\left\{-\frac{[x - \alpha(\omega - \omega_0)]^2 + y^2}{\omega_{in}^2}\right\}, \quad (1)$$

式中,  $E_0$  是光场的振幅,  $\omega_0$  是载波频率,  $\Delta\omega$  是带宽 ( $1/e^2$  处半宽),  $\omega_{in}$  是初始的束腰尺寸 ( $1/e^2$  处半宽),  $\alpha(\omega - \omega_0)$  是不同频率分量的线性偏移量。在经过物镜之后,其光场分布为

$$E_2(x, y, \omega) = E_1(x, y, \omega) \exp\left(-ik \frac{x^2 + y^2}{2f}\right), \quad (2)$$

式中,  $k$  为波矢,  $f$  为物镜的焦距。在近轴近似下,焦点附近的光场分布可写为

$$E_2(x, y, z, \omega) = \frac{\exp(ikz)}{i\lambda z} \iint_{-\infty}^{\infty} E_2(\xi, \eta, \omega) \exp\left[-ik \frac{(x - \xi)^2 + (y - \eta)^2}{2z}\right] d\xi d\eta, \quad (3)$$

式中,  $\xi, \eta$  分别为积分变量,  $z$  为经过物镜传播的距离。对(3)式做傅里叶变换,即可得到时间域中的光场:

$$I(x, y, z, t) = |E_3(x, y, z, t)|^2 = \left| \int_{-\infty}^{\infty} E_2(x, y, z, \omega) \exp(-i\omega t) d\omega \right|^2. \quad (4)$$

时空聚焦的飞秒激光脉冲在焦点附近光轴上的脉冲宽度的变化如图 2 所示<sup>[27]</sup>,可以看出脉冲宽度强烈依赖于空间位置。在物镜的几何焦点处,脉冲宽度最短,一旦偏离几何焦点,脉冲宽度迅速被展宽。图 3 给出了在聚焦的数值孔径相同的情况下,传统聚焦[图 3(a)]和时空聚焦[图 3(b)和(c)]在焦点处光强分布的理论模拟结果<sup>[17]</sup>,从图中可以看出,两种聚焦方式的焦斑大小完全相同。而采用时空聚焦技术时,偏离几何焦点的位置由于脉宽的展宽光强下降得更剧烈,与传统聚焦方式相比可以使沿着光轴方向的焦深有大幅度的缩短。更重要的是,利用飞秒激光时空聚焦技术可以在  $xy$  和  $xz$  平面同时获得近似圆形的光强分布,说明其焦点处的光强分布近似为球形。

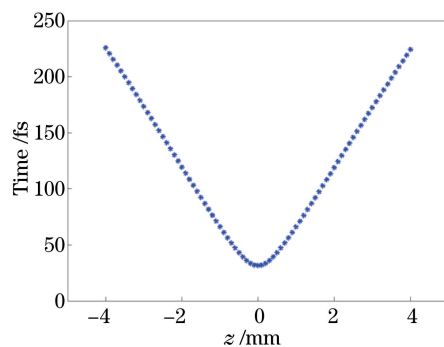


图 2 时空聚焦飞秒激光脉冲在几何焦点附近光轴上脉冲宽度的变化<sup>[27]</sup>

Fig. 2 Pulse duration change in the vicinity of the geometric focus optical axis for spatiotemporally focused femtosecond laser pulses<sup>[27]</sup>

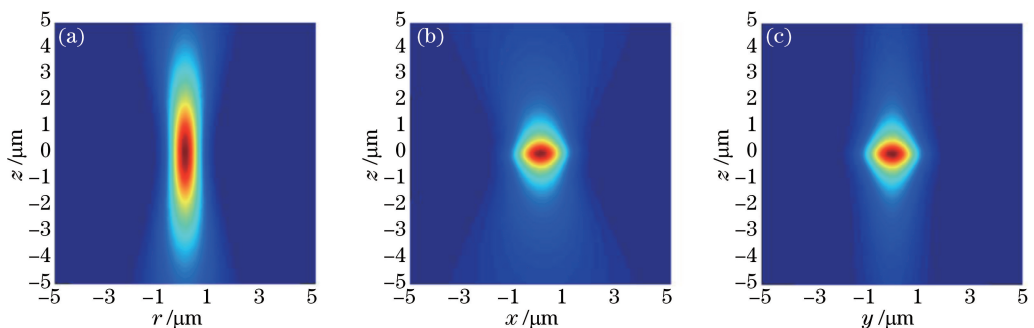


图 3 (a)传统聚焦和(b)、(c)时空聚焦在焦点处的光强分布<sup>[17]</sup>

Fig. 3 Intensity distributions at the focal point (a) with conventional focusing technique and (b), (c) with spatiotemporal focusing technique<sup>[17]</sup>

### 3 时空聚焦技术在飞秒激光微加工领域中的应用

#### 3.1 获得各向同性的加工分辨率

利用飞秒激光时空聚焦技术可以有效地解决飞秒激光微加工中纵向和横向加工分辨率不对称的问题,这一点已经被应用于沿不同的直写方向制备具有圆形截面的微流通道<sup>[17]</sup>。图4给出了利用时空聚焦技术在石英玻璃内部直写并辅以化学腐蚀得到的微流通道截面图。通过调整时空聚焦飞秒激光脉冲的参数,可以使微流通道截面的纵横比在0.8~1.7范围内逐渐变化。在合适的实验参数下,无论沿 $x$ 方向或 $y$ 方向直写均可获得具有圆形截面的微流通道,如图4(c)和(g)所示,说明利用该技术可以实现通过采用单个物镜聚焦获得各向同性的加工分辨率。与狭缝整形或像散整形等光束整形技术相比,该技术不用考虑直写方向,可以在透明材料内部加工出截面为圆形的任意复杂的三维微结构,因而在微流体、微光子学、三维光流集成等研究领域中有广阔的应用前景。

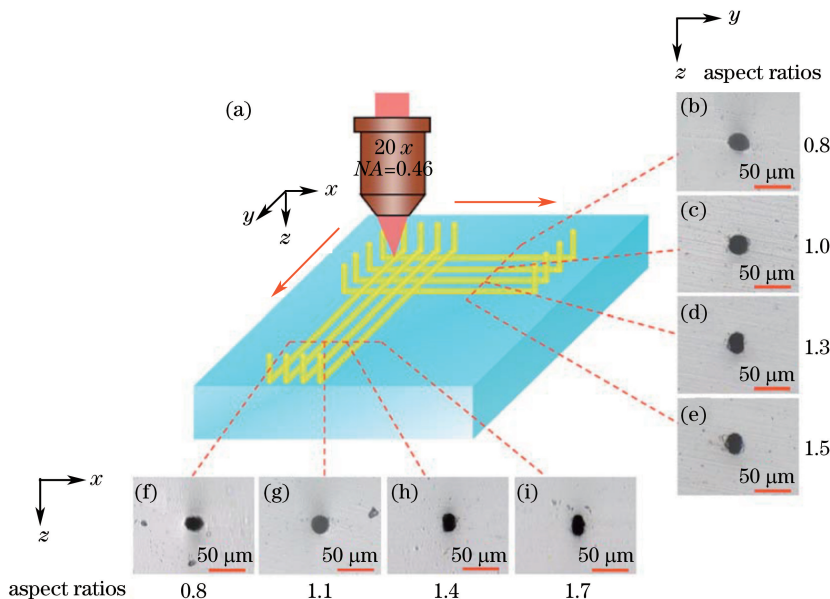


图4 利用时空聚焦的飞秒激光脉冲在玻璃内部直写制备微流通道的横截面图<sup>[17]</sup>

Fig. 4 Cross sections of microfluidic channels fabricated by spatiotemporally focused femtosecond laser pulses in glass<sup>[17]</sup>

#### 3.2 抑制低数值孔径加工的非线性效应

在传统聚焦的情况下,利用低数值孔径聚焦的情况下实现对较厚透明材料的加工通常是非常困难的。这是由于当焦斑尺寸较大时,其焦深也较长,因而很容易在焦点以外产生自聚焦等非线性效应。从图5(a)可以看出在数值孔径为0.05的聚焦条件下,60 fs、50  $\mu$ J的飞秒激光脉冲在6 mm厚的石英玻璃中传播时,由于自聚焦等非线性效应,飞秒激光脉冲会在玻璃中形成很强的超连续谱<sup>[19]</sup>。利用时空聚焦技术可以有效地抑制在低数值孔径聚焦的情况下,脉冲在透明材料内部传播过程中产生的非线性效应<sup>[19]</sup>。从图5(b)中可

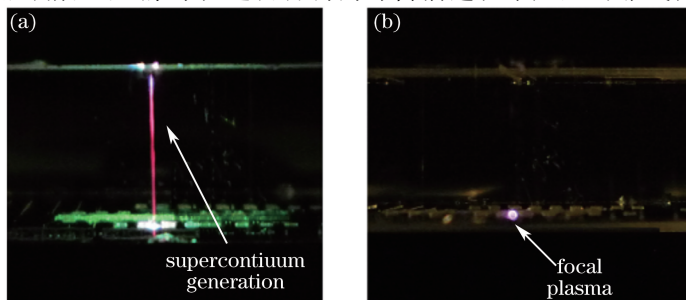


图5 采用(a)传统聚焦以及(b)时空聚焦方案,在石英玻璃内部产生的自聚焦效应和超连续白光<sup>[19]</sup>

Fig. 5 Self-focusing and supercontinuum white light generation inside silica glass (a) with conventional focusing scheme and (b) spatiotemporal focusing scheme<sup>[19]</sup>



可以看出,在保持脉冲宽度、脉冲能量和焦斑大小不变时,时空聚焦的脉冲可以在玻璃样品的后表面诱导电离,而在材料中传播的过程中不与材料发生非线性相互作用。时空聚焦技术的这一优势为低数值孔径条件下对较厚的透明材料进行三维加工提供了有力手段。

### 3.3 生物组织的精密切割

利用飞秒激光对人体组织进行精密切割手术是目前飞秒激光微加工最为重要的商业应用之一。利用时空聚焦技术可以有效地提高飞秒激光对生物组织的烧蚀精度<sup>[20]</sup>。图 6(a)、(b)和(e)、(f)给出了利用时空聚焦的飞秒激光对动物晶状体组织烧蚀的效果,其中图 6(e)、(f)分别为图 6(a)、(b)的局部放大图。而图 6(c)、(d)和(g)、(h)给出了利用完全相同参数的传统聚焦飞秒激光对动物晶状体组织的烧蚀效果。从图中可以看出,当利用传统聚焦的飞秒激光对样品烧蚀时,切口的纵向深度达到了 1 mm,而且切口深入到了晶状体的内部,这对于其表面的精密切割是十分不利的。而利用时空聚焦技术时,切口的纵向深度仅为 200  $\mu\text{m}$ 。由于时空聚焦技术可以抑制焦点外的非线性效应,切口被限制于晶状体的表面,样品的内部完全没有被破坏,因此飞秒激光时空聚焦技术可以有效地提高飞秒激光对生物组织烧蚀的精度,将来有望被应用于人体组织的精密切割手术等医学领域。

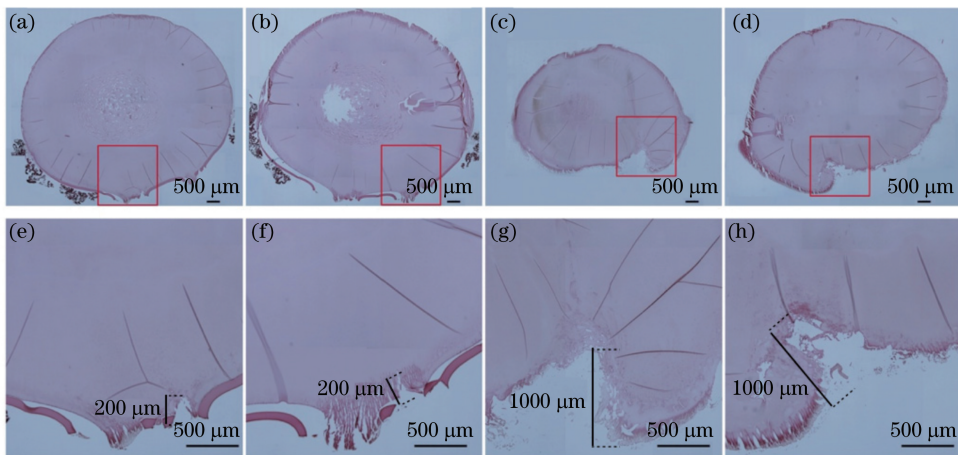


图 6 利用(a)、(b)时空聚焦和(c)、(d)传统聚焦的飞秒激光对动物晶状体表层的烧蚀效果<sup>[20]</sup>。

(e)~(h)为(a)~(d)的局部放大图

Fig. 6 Histological tissue slices of the laser-treated porcine lens ablated with (a), (b) spatiotemporal focusing scheme and (c), (d) conventional focusing scheme<sup>[20]</sup>. (e)-(h) are the local magnification of (a)-(d), respectively

## 4 时空聚焦光场的特殊性质及其对材料加工的影响

最近的研究表明,时空聚焦的飞秒激光脉冲在焦点处具有一些独特的光场特征,包括脉冲前沿倾斜<sup>[23]</sup>和光强平面倾斜<sup>[24]</sup>。与此同时,人们发现这些独特的光场特征会影响脉冲与介质相互作用过程而产生许多新奇的现象,例如在透明材料中会产生非互逆直写效应<sup>[23]</sup>,在中心对称的气体介质中会产生高强度的二次谐波信号等<sup>[25]</sup>。本节主要介绍时空聚焦飞秒激光脉冲的特殊光场特征及其对材料加工造成的影响。

### 4.1 脉冲前沿倾斜及其测量

脉冲前沿倾斜指的是飞秒激光脉冲的群延时与横向空间位置有关,即对于不同的空间位置,脉冲的到达时间不同。2010年,Vitek等<sup>[23]</sup>发现了时空聚焦的飞秒激光脉冲在焦点处有很强的脉冲前沿倾斜。

为了理解脉冲前沿倾斜的本质,可以将时空聚焦焦点处的光场表达为<sup>[29]</sup>

$$E(x, y, z, \omega) = A(x, y, z, \omega) \exp[i\phi(x, y, z, \omega)], \quad (5)$$

式中, $A(x, y, z, \omega)$ 为振幅, $\phi(x, y, z, \omega)$ 为光谱相位,聚焦之前的空间啁啾沿  $x$  方向,光轴为  $z$  方向。其中,光谱相位可以表示为

$$\phi(x, y, z, \omega) = k_0 x \sin \theta_x + k_0 z (1 - 1/2 \sin^2 \theta_x) - \eta(z) + k_0 \frac{(x - z \sin \theta_x)^2 + y^2}{2R(z)}, \quad (6)$$

式中, $k_0$ 为波矢, $\theta_x = \alpha(\omega - \omega_0)/f$ 为不同频率分量在焦点处的倾角, $\alpha(\omega - \omega_0)$ 是物镜前脉冲不同频率分量

的空间线性偏移量,  $\eta(z)$  为 Gouy 相位,  $R(z)$  为波前曲率半径。

若将光谱相位展开为关于  $\omega_0$  的一次项, 可以将脉冲的群延时表示为

$$\phi_1(x, z) = z/c + x \frac{\alpha\omega_0}{cf} \left[ 1 - \frac{z}{R(z)} \right] + \frac{x^2}{2cR(z)}, \quad (7)$$

式中,  $c$  为光速。令  $z=0$ , 得到焦平面上的群延时为

$$\phi_1(x) = -\omega_0(\alpha x)/(cf)。 \quad (8)$$

从(8)式中可以看出焦平面的群延时与  $x$  方向的空间位置成线性关系。在焦平面  $x>0$  的位置, 群延时较小, 脉冲先到; 而对于  $x<0$  的位置, 群延时较大, 脉冲后到。当引入相反方向的空间啁啾时, 会在焦点处得到相反方向的脉冲前沿倾斜。脉冲前沿倾斜的程度与聚焦之前脉冲的空间啁啾成正比, 与物镜的焦距成反比。对于时空聚焦的飞秒激光脉冲, 常用啁啾率(有空间啁啾方向与无空间啁啾方向上的光斑尺寸之比)来表征物镜之前的空间啁啾大小<sup>[23, 29]</sup>。图 7(a) 给出了焦点处脉冲前沿倾斜的模拟结果, 图 7(b) 给出了脉冲前沿倾斜程度与入射脉冲啁啾率之间的关系<sup>[23]</sup>。因此只需调整物镜前空间啁啾的大小, 即可有效地控制焦点处脉冲前沿倾斜的程度。

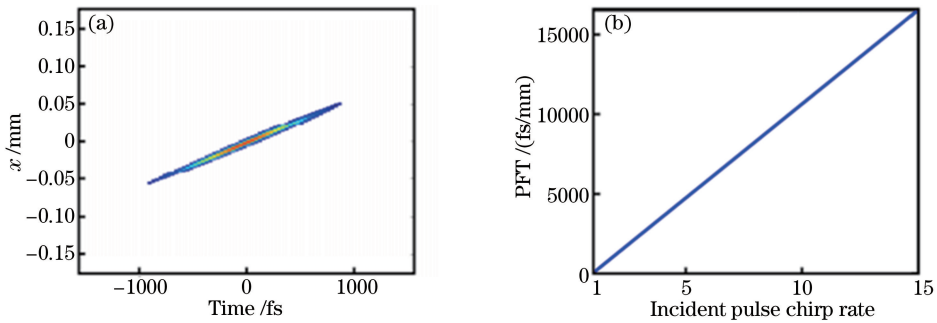


图 7 (a) 时空聚焦飞秒激光脉冲在焦平面的脉冲前沿倾斜; (b) 脉冲前沿倾斜的程度与入射脉冲啁啾率之间的关系<sup>[23]</sup>

Fig. 7 (a) Pulse front tilt of the spatiotemporally focused femtosecond laser pulses at the focal plane;

(b) relationship between pulse front tilt and incident pulse chirp rate<sup>[23]</sup>

引入传统聚焦的参考脉冲与时空聚焦脉冲在焦点处发生干涉, 并观察干涉条纹的空间位移与两个脉冲的相对延时之间的关系, 可以从实验上实现对焦点处脉冲前沿倾斜的精确测量<sup>[30]</sup>, 图 8 为测量原理示意图。当飞秒激光脉冲利用传统聚焦的方式进行聚焦时, 不产生脉冲前沿倾斜, 在测量中被用作参考脉冲。在焦点处, 时空聚焦脉冲会以一定的速度扫过焦平面, 其扫描速度与脉冲前沿倾斜的程度成反比。在测量中, 首先使时空聚焦脉冲和传统聚焦脉冲的焦平面在空间上完全重合。两个脉冲在时间和空间上同时重合的区域会发生干涉并产生一个带状的干涉条纹。如果调节两个脉冲之间的相对延时( $\Delta t$ ), 其在时间上重合的区域会随之移动, 造成干涉条纹在空间上移动, 如图 8(a)~(c) 所示, 其中 TF 为时空聚焦脉冲, CF 为传统聚焦脉冲。通过测量干涉条纹的移动与时间延时之间的线性关系, 就可以得到时空聚焦脉冲扫过焦点的速度, 也就是脉冲前沿倾斜的程度。实验表明该测量方法能以很高的精度测量焦点处的脉冲前沿倾斜, 而且可以实现空气以及透明材料内部, 脉冲前沿倾斜的测量。

#### 4.2 光强平面倾斜

2014 年, He 等<sup>[24]</sup> 将时空聚焦的飞秒激光脉冲聚焦于荧光素溶液中, 发现所激发的双光子荧光强度分布相对于光轴呈现出倾斜的分布, 这种现象被称为光强平面倾斜。图 9(a)、(c)、(e) 分别给出了焦距为 1000, 500, 250 mm 的时空聚焦脉冲激发的双光子荧光图像, 图 9(b)、(d)、(f) 分别为相应的模拟结果。不同于传统聚焦的情况, 时空聚焦焦点处光强分布与光轴呈一定的倾角。而且焦距越短, 光强平面倾斜的程度越大。

光强平面倾斜现象出现的原因: 在焦点处, 脉冲宽度最短的位置并非与几何焦平面完全重合, 而是与焦平面呈一定的倾角。将(6)式给出的光谱相位展开为关于  $\omega_0$  的二次项, 可以将脉冲的啁啾表示为<sup>[24]</sup>

$$\phi_2(x, z) = \left( \frac{x}{\omega_0} \frac{\tau_0 \beta}{\omega_0} - \frac{z}{z_R} \frac{\tau_0^2 \beta^2}{4} \right) \left( \frac{n}{1 + z^2/z_R^2} \right), \quad (9)$$

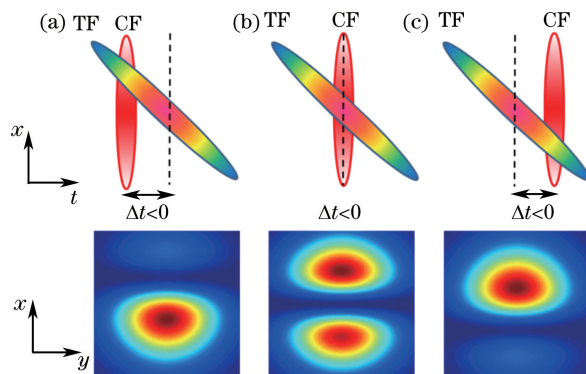


图 8 时空聚焦飞秒激光脉冲焦点处脉冲前沿倾斜的干涉测量原理示意图<sup>[30]</sup>

Fig. 8 Schematic illustration of the concept of interferometric measurement of pulse front tilt of spatiotemporally focused femtosecond laser pulses<sup>[30]</sup>

式中,  $\omega_0$  为入射光斑的半径,  $\tau_0$  为傅里叶极限脉宽,  $\beta$  为啁啾率,  $z_R$  为聚焦光斑的瑞利距离,  $n$  为材料的折射率。当  $\phi_2 = 0$  时, 表示啁啾为 0, 也就是脉冲宽度达到最短, 此时有:

$$z(x) = \frac{2nf}{\alpha\omega_0}x, \quad (10)$$

因此脉冲宽度最短的平面与  $z$  轴呈一定的角度, 其倾斜角为

$$\tan \theta = \frac{\alpha\omega_0}{2nf}, \quad (11)$$

从(11)式中看出脉宽最短的平面与  $z$  轴的倾角与聚焦之前的空间啁啾成正比, 与聚焦系统的焦距成反比, 这与双光子荧光激发实验中观察到的现象一致。

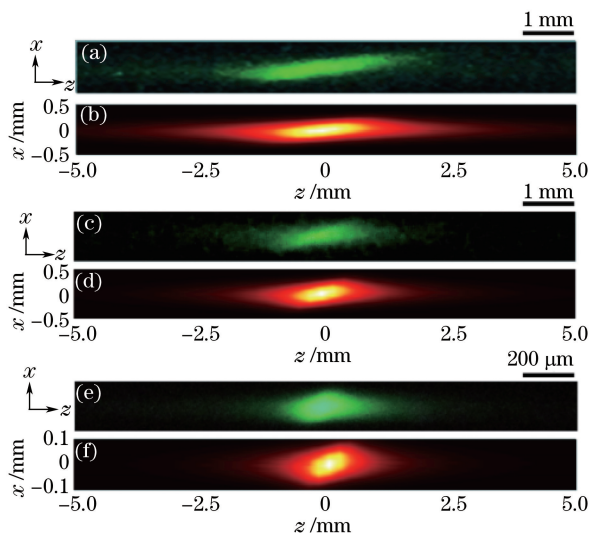


图 9 时空聚焦的飞秒激光脉冲在荧光素溶液中激发的双光子荧光图像, 所用的焦距分别为

(a) 1000 mm、(c) 500 mm 和 (e) 250 mm。(b)、(d)、(f) 分别为 (a)、(c)、(e) 相应的理论计算结果<sup>[24]</sup>

Fig. 9 Two-photon fluorescence excitation images of spatiotemporally focused femtosecond laser pulses in fluorescein solution with the focal lengths of (a) 1000 mm, (c) 500 mm and (e) 250 mm, respectively.

(b), (d), (f) are theoretical results<sup>[24]</sup> corresponding to (a), (c), (e)

图 10(a) 给出了利用时空聚焦的飞秒激光脉冲在多孔玻璃内部诱导的纳米光栅结构截面图<sup>[31]</sup>。由于光强平面倾斜的影响, 纳米光栅呈现出不对称的空间分布, 右侧的纳米光栅略低于左侧。而利用传统聚焦的飞秒激光脉冲诱导的纳米光栅则不存在这种现象[图 10(b)]。

#### 4.3 非互逆直写现象

非互逆直写现象指的是利用飞秒激光在各向同性的透明材料中直写时, 直写方向的不同会造成完全不

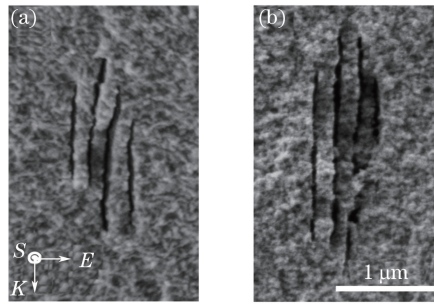


图 10 利用(a)时空聚焦和(b)传统聚焦飞秒激光脉冲直写得到的纳米光栅截面图<sup>[31]</sup>。

图中  $K$ 、 $E$ 、 $S$  分别为激光的入射方向、偏振方向和直写方向

Fig. 10 Cross-sectional morphologies of nanogratings written with (a) spatiotemporally focused femtosecond laser pulse and (b) conventionally focused femtosecond laser pulse<sup>[31]</sup>.  $K$ ,  $E$ ,  $S$  are incident direction, polarization direction and writing direction of the laser, respectively

同的加工效果<sup>[32]</sup>。这种现象近年来引起了人们的广泛关注,其与焦点处的脉冲前沿倾斜的关系在最近的研究中已多次得到证实。Kazansky 等<sup>[32]</sup>对非互逆直写现象做出了定性的解释:当自由电子在具有光强梯度的激光场中振动时,会受到有质动力的作用。脉冲前沿倾斜会在焦点处形成较高的光强梯度,而激光场对自由电子的俘获和驱动作用是由脉冲前沿倾斜方向和直写方向共同决定的,因此改变直写方向也会造成不同的加工效果。

2010 年, Vitek 等<sup>[23]</sup>利用时空聚焦的飞秒激光在石英玻璃内部直写发现了非互逆直写现象。利用时空聚焦技术可以在数值孔径较低(0.03)的情况下获得较高的脉冲前沿倾斜,能在  $500 \mu\text{m}$  厚的样品的后表面产生非互逆直写现象。图 11 给出了利用时空聚焦的飞秒激光脉冲对石英玻璃的加工效果与直写方向之间的关系。可以看出当直写的方向平行于脉冲前沿倾斜方向时,相反的直写方向会造成完全不同的加工效果;而当直写的方向垂直于脉冲前沿倾斜的方向时,加工效果与直写的方向无关。

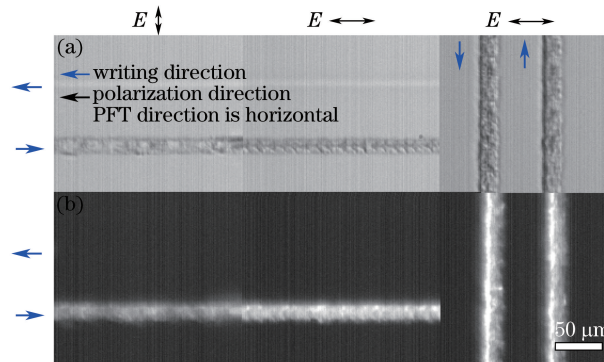


图 11 利用时空聚焦的飞秒激光脉冲在石英玻璃中诱导的非互逆直写现象<sup>[23]</sup>。

(a) 明场照明条件下的显微图像; (b) 偏光显微镜下成像的显微图像

Fig. 11 Nonreciprocal writing effect generated in silica glass caused by spatiotemporally focused femtosecond laser pulses<sup>[23]</sup>. (a) Microscopic image under bright field illumination; (b) microscopic image under polarizing microscope

#### 4.4 时空聚焦的飞秒激光脉冲在透明材料内部诱导的等离子体特征

在飞秒激光与材料的相互作用过程中,材料的非线性光电离产生高密度等离子体是最为基础的过程。为了从本质上理解时空聚焦的飞秒激光脉冲与透明材料的非线性相互作用过程中产生的非互逆直写现象,需要对脉冲在透明材料内部诱导的等离子体的产生与演化过程进行研究。

飞秒激光抽运-探测阴影成像技术是研究脉冲在透明材料内部诱导的等离子体性质的常用手段,可以对等离子体的产生与演化的动态过程进行直接观察<sup>[33]</sup>。图 12 给出了利用该技术获得的时空聚焦飞秒激光脉冲在熔融石英内部诱导的等离子体在数百个飞秒内的演化过程<sup>[34]</sup>,  $\Delta t$  为相对时间延时。从图中可以看出,等离子体的轨迹在传播过程中被折弯,物镜的光轴与等离子体的轨迹之间形成了约为  $8^\circ$  的偏折角。进一步



的研究表明电离越强,等离子体的偏折角越大。等离子体偏折的原因是:由于脉冲前沿倾斜的存在,电离前沿快速地扫过焦点;电离前沿的快速移动造成等离子体膨胀的不对称,会引起电子密度分布的不均匀;这种不均匀的等离子体分布会引起焦点处不均匀的折射率分布,最终造成脉冲沿着偏折的方向传播。

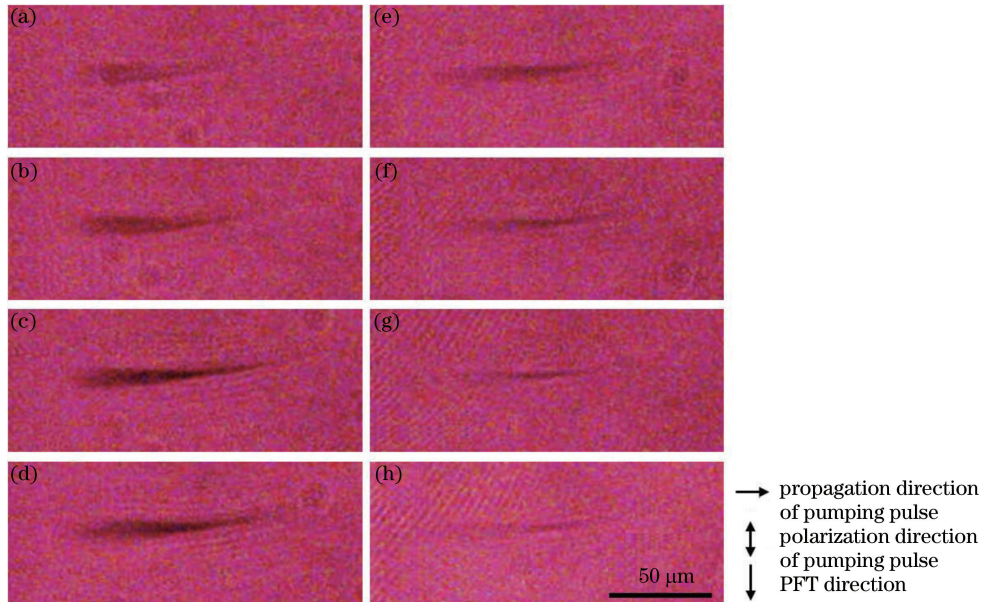


图 12 时空聚焦脉冲在熔融石英玻璃内部诱导瞬态等离子体的时间分辨阴影成像<sup>[34]</sup>。

(a) 0 fs; (b) 100 fs; (c) 200 fs; (d) 300 fs; (e) 400 fs; (f) 500 fs; (g) 600 fs; (h) 700 fs

Fig. 12 Time-resolved shadowgraphs of transient plasma induced by the spatiotemporally focused pulses inside fused silica glass<sup>[34]</sup>. (a) 0 fs; (b) 100 fs; (c) 200 fs; (d) 300 fs; (e) 400 fs; (f) 500 fs; (g) 600 fs; (h) 700 fs

## 5 飞秒激光时空聚焦技术在强场物理领域中的应用

近年来,飞秒激光时空聚焦技术在三维微纳加工领域中的应用引起了人们广泛的关注。与此同时,该技术也被推广应用于飞秒激光成丝<sup>[26]</sup>、操控原子分子气体中等离子体动力学过程<sup>[25]</sup>等强场物理领域。本节简单介绍该方向的最新研究进展。

### 5.1 飞秒激光成丝

飞秒激光成丝技术在远程探测、脉冲压缩、相干频率转换和太赫兹辐射等许多研究领域中有巨大的应用价值<sup>[35]</sup>。在飞秒激光成丝的过程中,由光学克尔效应引起的自聚焦和电离产生的等离子体散焦达到动态平衡,即使增大入射脉冲的能量,成丝中的光强几乎保持不变,这就是所谓的光强钳制效应。光强钳制效应会在很大程度上限制跟光强相关的非线性效应的产生,从而限制了许多与成丝相关的应用发展。研究表明,采用飞秒激光时空聚焦技术,可以有效地提高飞秒激光成丝中的峰值光强<sup>[25]</sup>。

在传统聚焦方式下,克尔自聚焦效应出现得较早,从而使光强钳制也较早产生。当采用时空聚焦技术对飞秒激光进行聚焦时,由于在焦点以外脉冲宽度迅速展宽引起峰值光强迅速下降,只在焦点附近光强最强的位置发生克尔自聚焦,因此可以有效缩短光丝的长度,提高丝内的光强。图 13(a)、(b)给出了两种聚焦方式下空气中的光丝图像。从图中可以看出,与时空聚焦方式相比,时空聚焦产生的光丝缩短了 25 倍。图 13(c)给出了两种聚焦方式轴上的光强与入射脉冲能量之间的关系。当采用时空聚焦技术时,可以将丝内的峰值光强提高 1 倍左右。将飞秒激光时空聚焦技术应用于远程成丝诱导固体靶击穿的实验中,在 22 m 远处的铁材质固体靶上诱导的荧光信号比传统聚焦的情况增强了 5 倍<sup>[27]</sup>。

### 5.2 在中心对称的气体中产生高信噪比的二次谐波

利用时空聚焦光场,可以在远距离的中心对称的气体介质中产生高信噪比的二次谐波信号<sup>[25]</sup>。图 14 给出了时空聚焦光场在氩气中产生的二倍频光谱,其中 FM 为基频光, SF-PX 为偏振方向与空间啁啾平行的时空聚焦脉冲, SF-PY 为偏振方向与空间啁啾垂直的时空聚焦脉冲, CF-PX 为传统聚焦脉冲,  $\lambda_{SH}$  为二倍

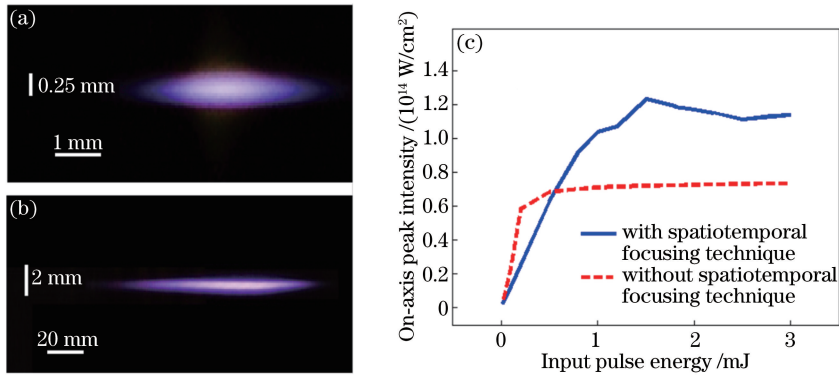


图 13 利用(a)时空聚焦和(b)传统聚焦方式在空气中成丝的光丝照片;(c)时空聚焦和传统聚焦情况下丝内的峰值光强与入射脉冲能量之间的关系曲线<sup>[25]</sup>

Fig. 13 Profiles of filament generated by (a) spatiotemporal focusing method and (b) conventional focusing method; (c) peak intensity as a function of the input pulse energy with and without using spatiotemporal focusing technique<sup>[25]</sup>

频波长。可以看出,二次谐波的强度强烈依赖于入射脉冲的偏振方向。当激光偏振与入射脉冲的空间啁啾平行时,二次谐波的转化效率明显高于垂直的情况。而对于传统聚焦的情况,则无法观察到明显的二倍频信号。产生这种现象的原因是,当激光偏振与空间啁啾平行时,由于焦点处的脉冲前沿倾斜较强,气体电离产生的自由电子被有质动力强烈地推向焦点的一侧,造成焦点处等离子体分布不均匀。非均匀分布的等离子体密度在二次谐波产生的过程中起到了关键的作用。因此,飞秒激光时空聚焦技术不仅为在中心对称的介质中产生二次谐波提供了新的手段,也为等离子体的超快操控提供了有力的工具。

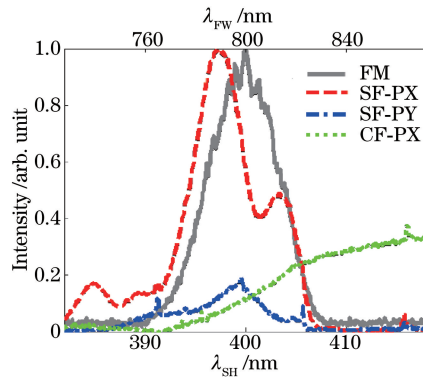


图 14 时空聚焦光场在氩气中产生二倍频的光谱信息<sup>[25]</sup>

Fig. 14 Second harmonic spectra generated in argon gas by spatiotemporally focused optical field<sup>[25]</sup>

## 6 飞秒激光时空聚焦技术的适用范围探讨

前面已经介绍了时空聚焦相对于传统聚焦可以有效地缩短焦深,抑制低数值孔径聚焦情况下的非线性效应<sup>[17-22]</sup>。这个结论成立的前提是两种聚焦方式有相同的焦斑尺寸,也就是相同的有效数值孔径。值得注意的是,在时空聚焦的装置中,为了保证脉冲在进入聚焦物镜之前有足够大的空间啁啾,必须缩小入射光斑的尺寸,聚焦系统的有效数值孔径也会随之减小,如图 15(b)所示。在前面介绍的应用中,针对时空聚焦和传统聚焦的对比总是在数值孔径相同的情况下,也就是传统聚焦的入射光斑尺寸也缩小到了与时空聚焦相同的尺寸,此时物镜的数值孔径没有被充分利用[图 15(c)]。而对于传统聚焦,只有在物镜的孔径得到最充分利用时,聚焦最紧,同时焦深也最短[图 15(a)]。文献[29]中的理论模拟表明,在线性传输的条件下,当传统聚焦的数值孔径被充分利用时,其焦深总是比时空聚焦的情况更短。因此,如果只考虑纵向分辨率而不考虑焦斑尺寸的大小,满数值孔径的传统聚焦的纵向分辨率总是会优于时空聚焦的情况。

文献[36]利用图 15 中的实验装置,对比了三种聚焦方式在空气中产生自聚焦时的阈值光强。实验结果表明,图 15(a)~(c)所示的三种聚焦方式自聚焦产生时焦点处的阈值光强分别为  $1.9 \times 10^{16}$ ,  $0.4 \times 10^{16}$ ,

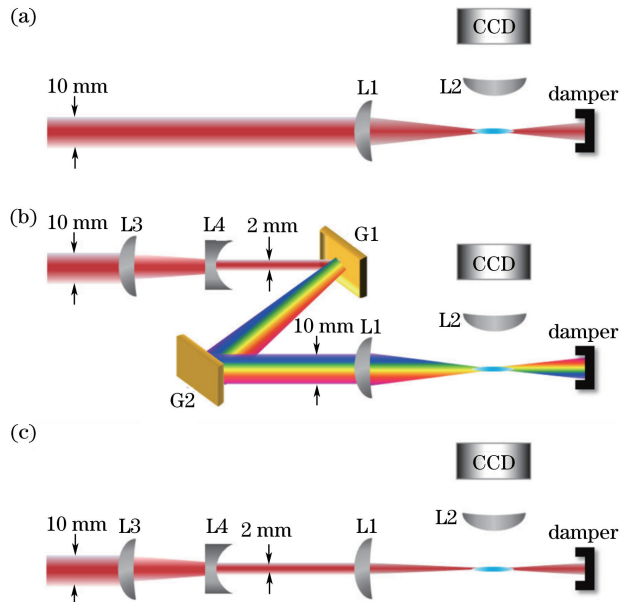


图 15 不同聚焦方式的光学系统。(a)满数值孔径的传统聚焦;(b)时空聚焦;(c)与时空聚焦相同数值孔径的传统聚焦<sup>[36]</sup>

Fig. 15 Optical system with different focusing methods. (a) Conventional focusing with a full-size NA; (b) spatiotemporal focusing; (c) conventional focusing with the same NA as spatiotemporal focusing<sup>[36]</sup>

$0.096 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$ 。满数值孔径的传统聚焦产生自聚焦的阈值光强最高,而低数值孔径时阈值光强最低。这也就意味着,相对于低数值孔径的传统聚焦,采用相同数值孔径的时空聚焦和满数值孔径的传统聚焦都有抑制非线性自聚焦的效果,而满数值孔径的传统聚焦的效果优于时空聚焦。因此,对于仅需要获得最优纵向分辨率的应用,满数值孔径的传统聚焦是最佳的聚焦方式。而对于所需的焦斑较大,同时需要较高纵向分辨率的应用,时空聚焦是一种理想的聚焦方式。

## 7 总结与展望

尽管飞秒激光时空聚焦技术发明至今仅有数年的时间,却已经成为一个获得广泛关注的研究领域。本研究主要对时空聚焦技术的最新研究进展进行回顾,首先介绍了时空聚焦技术的原理及其在飞秒激光微加工领域中的应用。其次介绍了时空聚焦的飞秒激光脉冲独特的光场特性及其对材料加工产生的影响。最后介绍了时空聚焦技术在强场物理领域中的应用,并对该技术的适用范围进行讨论。

自飞秒激光脉冲时空聚焦提出后,人们对时空聚焦脉冲的光场特性已经有了比较全面的理解。近年来,该技术在飞秒激光微纳加工领域中的应用已经趋于成熟;值得注意的是,在三维复杂结构加工时,由于时空聚焦的飞秒激光脉冲与透明材料介质作用过程中非互逆直写效应的出现,会产生不同加工方向加工质量的差异,因此利用时空聚焦的飞秒激光脉冲进行三维复杂结构加工,需要克服非互逆直写因素对飞秒激光加工效果的不利影响。目前非互逆直写效应产生机制的研究大多为定性分析,要阐明非互逆直写效应的产生机制,需要考虑等离子体膨胀、有质动力等效应影响,建立理论模型进行计算。而在实际激光微加工应用中避免非互逆直写效应技术手段的提出,值得未来进一步从理论上和实验上进行研究和讨论。

相信随着飞秒激光时空聚焦技术研究的不断深入,时空聚焦的飞秒激光脉冲具有的光场特征将进一步被发掘,其与透明材料相互作用的完整物理图像将被澄清。时空聚焦技术的加工优势将在高通量的三维材料加工、高速三维生物成像等需要大焦斑的研究领域中凸显出来。除此之外,时空聚焦技术作为一种新颖有效的控制激光光场的技术手段,也必将在飞秒激光成丝、等离子体的超快操控、极端非线性光学、远程遥感等领域中获得更多新的进展与突破。

## 参 考 文 献

[1] Gattass R R, Mazur E. Femtosecond laser micromachining in transparent materials[J]. Nature photonics, 2008, 2(4):

219-225.

- [2] Sugioka K, Cheng Y. Ultrafast lasers-reliable tools for advanced materials processing [J]. *Light: Science & Applications*, 2014, 3(4): e149.
- [3] Osellame R, Hoekstra H J W M, Cerullo G, *et al.* Femtosecond laser microstructuring: an enabling tool for optofluidic lab-on-chips[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2011, 5(3): 442-463.
- [4] Beresna M, Gecevicius M, Kazansky P G. Ultrafast laser direct writing and nanostructuring in transparent materials [J]. *Advances in Optics and Photonics*, 2014, 6(3): 293-339.
- [5] Ams M, Marshall G D, Dekker P, *et al.* Ultrafast laser written active devices[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2009, 3(6): 535-544.
- [6] Chen F, Aldana J R. Optical waveguides in crystalline dielectric materials produced by femtosecond - laser micromachining[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2014, 8(2): 251-275.
- [7] Gong Min, Dai Ye, Song Juan, *et al.* Influence of electron density distribution induced by single beam femtosecond laser doubly-periodic nanogratings[J]. *Acta Optica Sinica*, 2016, 36(5): 0514001.  
公民, 戴 晔, 宋 娟, 等. 单光束飞秒激光诱导的电子态密度分布对双周期纳米光栅的影响[J]. *光学学报*, 2016, 36(5): 0514001.
- [8] Dai Ye, Qiu Jianrong. Research progress of single beam femtosecond laser direct writing self-organized nanogratings in fused silica[J]. *Laser & Optoelectronic Progress*, 2013, 50(12): 120002.  
戴 晔, 邱建荣. 单光束飞秒激光诱导石英玻璃内部纳米光栅的研究进展[J]. *激光与光电子学进展*, 2013, 50(12): 120002.
- [9] Jia Yuechen, Chen Feng. Advances in dielectric crystal waveguides produced by direct femtosecond laser writing[J]. *Laser & Optoelectronic Progress*, 2016, 53(1): 010001.  
贾曰辰, 陈 峰. 飞秒激光直写介电晶体光波导的研究进展[J]. *激光与光电子学进展*, 2016, 53(1): 010001.
- [10] Davis K M, Miura K, Sugimoto N, *et al.* Writing waveguides in glass with a femtosecond laser[J]. *Optics Letters*, 1996, 21(21): 1729-1731.
- [11] Kawata S, Sun H B, Tanaka T, *et al.* Finer features for functional microdevices[J]. *Nature*, 2001, 412(6848): 697-698.
- [12] Liao Y, Cheng Y, Liu C, *et al.* Direct laser writing of sub-50 nm nanofluidic channels buried in glass for three-dimensional micro-nanofluidic integration[J]. *Lab on a Chip*, 2013, 13(8): 1626-1631.
- [13] 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.
- [14] 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.
- [15] Cheng Y, Sugioka K, Midorikawa K, *et al.* Control of the cross-sectional shape of a hollow microchannel embedded in photostructurable glass by use of a femtosecond laser[J]. *Optics Letters*, 2003, 28(1): 55-57.
- [16] Sugioka K, Cheng Y, Midorikawa K, *et al.* Femtosecond laser microprocessing with three-dimensionally isotropic spatial resolution using crossed-beam irradiation[J]. *Optics Letters*, 2006, 31(2): 208-210.
- [17] He F, Xu H, Cheng Y, *et al.* Fabrication of microfluidic channels with a circular cross section using spatiotemporally focused femtosecond laser pulses[J]. *Optics Letters*, 2010, 35(7): 1106-1108.
- [18] He F, Cheng Y, Lin J, *et al.* Independent control of aspect ratios in the axial and lateral cross sections of a focal spot for three-dimensional femtosecond laser micromachining[J]. *New Journal of Physics*, 2011, 13(8): 083014.
- [19] Vitek D N, Adams D E, Johnson A, *et al.* Temporally focused femtosecond laser pulses for low numerical aperture micromachining through optically transparent materials[J]. *Optics Express*, 2010, 18(17): 18086-18094.
- [20] Block E, Greco M, Vitek D, *et al.* Simultaneous spatial and temporal focusing for tissue ablation[J]. *Biomedical Optics Express*, 2013, 4(6): 831-841.
- [21] Kammel R, Ackermann R, Thomas J, *et al.* Enhancing precision in fs-laser material processing by simultaneous spatial and temporal focusing[J]. *Light: Science & Applications*, 2014, 3(5): e169.
- [22] Tangeysh B, Moore Tibbetts K, Odhner J H, *et al.* Gold nanoparticle synthesis using spatially and temporally shaped femtosecond laser pulses: post-irradiation auto-reduction of aqueous  $[\text{AuCl}_4]^-$  [J]. *The Journal of Physical Chemistry*



- C, 2013, 117(36): 18719-18727.
- [23] Vitek D N, Block E, Bellouard Y, *et al.* Spatio-temporally focused femtosecond laser pulses for nonreciprocal writing in optically transparent materials[J]. *Optics Express*, 2010, 18(24): 24673-24678.
- [24] He F, Zeng B, Chu W, *et al.* Characterization and control of peak intensity distribution at the focus of a spatiotemporally focused femtosecond laser beam[J]. *Optics Express*, 2014, 22(8): 9734-9748.
- [25] Li G, Ni J, Xie H, *et al.* Second harmonic generation in centrosymmetric gas with spatiotemporally focused intense femtosecond laser pulses[J]. *Optics Letters*, 2014, 39(4): 961-964.
- [26] Zeng B, Chu W, Gao H, *et al.* Enhancement of peak intensity in a filament core with spatiotemporally focused femtosecond laser pulses[J]. *Physical Review A*, 2011, 84(6): 063819.
- [27] Zeng B, Wang T J, Hosseini S, *et al.* Enhanced remote filament-induced breakdown spectroscopy with spatiotemporally chirped pulses[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2012, 29(12): 3226-3230.
- [28] He F, Wang Z, Zeng B, *et al.* Extraordinary characteristics of spatiotemporally focused laser pulses and their roles in precision materials processing[C]. *Conference on Lasers and Electro-Optics/Pacific Rim*, Optical Society of America, 2015: 26B2\_3.
- [29] Durfee C G, Greco M, Block E, *et al.* Intuitive analysis of space-time focusing with double-ABCD calculation[J]. *Optics Express*, 2012, 20(13): 14244-14259.
- [30] Wang Z, He F, Ni J, *et al.* Interferometric characterization of pulse front tilt of spatiotemporally focused femtosecond laser pulses[J]. *Optics Express*, 2014, 22(21): 26328-26337.
- [31] Wang Z, Liao Y, Wang P, *et al.* Formation of in-volume nanogratings in glass induced by spatiotemporally focused femtosecond laser pulses[J]. *Advanced Optical Technologies*, 2016, 5(1): 81-85.
- [32] Kazansky P G, Yang W, Bricchi E, *et al.* "Quill" writing with ultrashort light pulses in transparent materials[J]. *Applied Physics Letters*, 2007, 90(15): 151120.
- [33] Sun Q, Jiang H, Liu Y, *et al.* Measurement of the collision time of dense electronic plasma induced by a femtosecond laser in fused silica[J]. *Optics Letters*, 2005, 30(3): 320-322.
- [34] Wang Z, Zeng B, Li G, *et al.* Time-resolved shadowgraphs of transient plasma induced by spatiotemporally focused femtosecond laser pulses in fused silica glass[J]. *Optics Letters*, 2015, 40(24): 5726-5729.
- [35] Chin S L. *Femtosecond laser filamentation*[M]. New York: Springer, 2010.
- [36] Cheng Y, Xie H, Wang Z, *et al.* Onset of nonlinear self-focusing of femtosecond laser pulses in air: conventional vs spatiotemporal focusing[J]. *Physical Review A*, 2015, 92(2): 023854.