

飞秒脉冲激光的时空变换影响纳米光栅直写过程的研究进展

李跃东, 尹唯一, 戴晔*

上海大学物理系, 上海 200444

摘要 超短脉冲的时空特性已经展示了对材料改性的重要影响, 在过去十几年迅速成为飞秒激光微加工领域的研究热点。为此, 简要地从飞秒脉冲时空耦合的基本概念出发, 回顾了实验中观察到的时空耦合效应及基于时空耦合的时空聚焦技术, 介绍了时空聚焦技术在加工领域的应用, 重点讨论了时空耦合对透明材料内部的非互逆性直写及不对称纳米光栅结构的影响。

关键词 激光光学; 飞秒激光; 时空耦合; 纳米光栅; 脉冲前沿倾斜; 非互逆性直写

中图分类号 TN241

文献标志码 A

doi: 10.3788/LOP57.111403

Research Progress on Spatio-Temporal Coupling of Femtosecond Pulse Laser for Direct-Writing Nanograting

Li Yuedong, Yin Weiyi, Dai Ye*

Department of Physics, Shanghai University, Shanghai 200444, China

Abstract Spatio-temporal characteristics of ultrashort pulse has shown a vital impact on the material modification, and have gradually become a research hotspot in the field of femtosecond laser micromachining in the last decades. According to the basic concepts of the spatiotemporal coupling of femtosecond pulses, the effects of spatio-temporal coupling as well as spatio-temporal focusing techniques are reviewed briefly. Then it introduces a few applications of spatio-temporal focusing technology on material processing, and especially discusses the influence of spatio-temporal coupling on the non-reciprocal direct writing and the asymmetric nanograting structure in transparent materials.

Key words laser optics; femtosecond laser; spatio-temporal coupling; nanograting; pulse front tilt; non-reciprocal writing

OCIS codes 140.3325; 220.4000; 320.2250

1 引言

飞秒脉冲激光与长脉冲($\tau > 10$ ps)或连续激光相比, 在光与材料相互作用领域具有能量吸收快、热影响区小和加工精度高显著优势, 引起了业界极大的兴趣^[1-12]。特别是其在玻璃等透明材料中展现出强大的三维(3D)微纳加工能力^[13-15], 如光波导、微流体通道、微光学元件、高密度数据存储^[16-20]等。许多研究表明, 透明材料的结构改性是入射激光脉冲波长、能量、持续时间和脉冲数等共同作用的结

果。以飞秒脉冲辐照石英玻璃为例, 诱导结构的种类主要取决于激光强度的级别, 通常定性地分为三种类型^[21-25], 即在低强度下诱导材料的折射率改变, 可形成光波导结构^[21-22]; 在高强度下焦点区域的材料电离成超高密度等离子体, 甚至引起相位爆炸, 产生孔洞和裂缝^[23]; 中等强度的辐照条件下, 焦点区域的材料先形成等离子体膨胀, 随后稀化收缩成纳米孔洞^[15, 24-25], 而且在多脉冲连续辐照下能够在熔融石英内产生周期尺度小于 20 nm 的高度有序纳米光栅, 这是一种可直接光调控的自组织嵌入式功

收稿日期: 2020-02-28; 修回日期: 2020-04-26; 录用日期: 2020-04-27

基金项目: 国家自然科学基金(11774220)

* E-mail: yedai@shu.edu.cn

能结构。这类纳米光栅具有特殊的各向异性光学性质,因此除了三个空间坐标维度外,还具有慢轴取向(第4维,由偏振方向控制)和光程延迟量(第5维,由脉冲强度控制)两个自由度,可用于光学信息的5维编码,极大地提升了单位体积内信息存储容量。除了偏振依赖性外,纳米光栅还具有出色的热稳定性,可以承受1000 °C以上的温度而不发生明显的结构衰变^[26]。根据 Arrhenius 模型,在室温下,纳米光栅的寿命估计为300 亿亿年^[20],因此在作为未来的云信息存储技术方面具有巨大的潜力。最近微软公司与英国南安普敦大学 Kazansky 教授实验室之间的合作项目 Project Silica,通过纳米光栅直写技术对经典故事片《超人》进行数字编码后存储在75 mm×75 mm×2 mm 尺寸的石英玻璃内,这为该技术应用下一代云存储提供了案例验证。

对于诸如写入光波导和制造微通道的许多应用,传统聚焦(CF)飞秒激光直写技术中由于像差^[27]、克尔自聚焦和等离子散焦^[28]等效应,降低了纵向分辨率,因此需要发展提升三维各向同性分辨率的技术。此外对于纳米光栅来说,提升其写入效率也是一个亟待解决的问题,根据其多脉冲辐照形成的特点,如何有效提升单个脉冲的电离率是当前关注的焦点。目前研究来看,通过时空聚焦技术对飞秒脉冲进行调控是解决上述两问题的有效手段。例如,Oron 等^[29-30]于2005年为了改善多光子显微镜成像提出基于时空耦合的聚焦技术,He 等^[31]首次将时空聚焦(SSTF)技术用于微加工,抑制自聚焦自散焦等非线性效应,将能量限制在焦点区域,有效的提升写入区域的电离率,实现单光束3D各向同性分辨率。但是,当前人们对时空耦合飞秒脉冲直写透明材料内部的作用机制的理解仍然不清晰。其代表性的难题是如何理解非互逆性直写现象和玻璃材料的光敏各向异性^[32-34],这种现象被认为源于时空耦合脉冲中存在的脉冲前沿倾斜(PFT)^[35-39],但其产生及作用的过程还有待深入调查。此外另一类常见的脉冲时空耦合效应称为波前旋转(WFR),它表现为脉冲波前在光束传播时不断进行旋转^[40],因此可用于高次谐波的产生,以及在激光等离子体中实现连续阿秒脉冲的角度分离^[41-43]。近期发现通过对时空耦合脉冲并行直写加工透明材料^[44],可以明显地提升写入速率和加工效果,控制飞行焦点也大大地增加了纵向加工距离^[45],因此对时空耦合的调控在未来产业化加工中具有广泛研究意义和应用前景。

本文介绍了飞秒脉冲时空耦合现象和时空聚焦在微加工领域的应用,然后介绍了近年来一些研究小组用其在非互逆直写、非对称纳米光栅形成以及相关理论机制的解释等方面的进展,并进一步分析了该课题面临的挑战。

2 飞秒激光时空耦合介绍

2.1 时空耦合定义

超快光学的一个主要假设:时间和空间是非耦合变量,这意味着超短脉冲可以描述为时间相关的脉冲形状与空间相关的光束轮廓的乘积^[46]。理论上,脉冲形状在空间中的每个点都处处相同,因此简化了描述脉冲的方式。但这种假设通常是不准确的,例如,未对准的棱镜或光栅压缩器或畸变的光学系统可以扭曲脉冲时空^[47],从而导致时间和空间变量之间产生耦合。此外,随着越来越短的脉冲可用于实验,这种耦合变得越来越难以避免。超快激光具有一定的谱带宽度,其脉冲相位容易受到色散介质或自相位调制的干扰,引入了群延迟色散(GDD),导致脉冲强度的明显变化。因此,超短脉冲表现出空间和时间坐标的相互依赖关系,被称为时空耦合。传统的入射脉冲在透镜后电场分布如下^[40]

$$E(x, t) = E_0 \exp \left[- \left(\frac{1}{w^2} + \frac{ik}{2R} \right) x^2 - \left(\frac{1}{\tau^2} - i\beta \right) t^2 \right], \quad (1)$$

式中: w 是光束半径; R 是光束前曲率(最初 $R = \infty$); k 是波矢; τ 是脉宽; β 是时间啾啾。当该脉冲经过像光栅对那样的色散元件时,可以引入如空间啾啾(SC)或角色散(AD)这样的时空特征变化量,这将极大地改变电场分布。然后,在时间和空间之间具有耦合项的电场表达式为^[40]

$$E(x, t) = E_0 \exp \left[- \left(\frac{1}{w^2} + \frac{ik}{2R} \right) x^2 - \left(\frac{t - px}{\tau} \right)^2 + i\beta t^2 \right], \quad (2)$$

式中: p 是耦合项,它是一个复数,实部表示脉冲前沿倾斜,虚部表示波前旋转^[40]。

2.2 角色散、时空啾啾和脉冲前沿倾斜

牛顿在1704年首次观察到材料对光的分散性。他观察到白光经过棱镜传播,导致构成白光的频率成分以不同的角度离开棱镜。介质的折射率取决于波长,因此使得由 Snell 定律控制的折射角在每个界面处基于波长而变化。通过棱镜、光栅或其

他色散介质的光以不同波长分量的角度分离的度量被称为角色散。AD 等于相对于波长变化的偏离角的变化率,表示为

$$\varphi_{AD} = \frac{d\theta}{d\omega}. \quad (3)$$

如图 1(b)所示,经过角度色散的光束在垂直于传播方向的空中进行了频率分离,导致所谓的空间啁啾,反平行排列的第二棱镜或光栅则消除了角色散,但仍然存在显著的 SC^[48-49]。SC 可由两种方式定义,第一种是测量激光脉冲的每个空间切片的

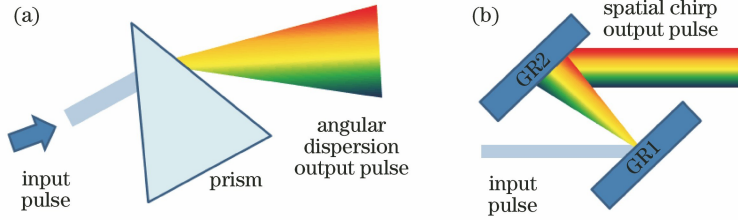


图 1 引入角色散和空间啁啾。(a)棱镜;(b)光栅

Fig. 1 Introduction of AD and SC. (a) Prism; (b) grating

当光束通过色散介质传播时,某些分量将比其他分量传播得更快,导致脉冲宽度发生变化,称为时间啁啾(TC)。TC 定义了其瞬时频率的时间依赖性,可以在时域或频域中表征。在时域中,频率啁啾(FCH)是瞬时频率相对于时间的导数^[48]。在频域中,GDD 是群延迟相对于频率的导数^[48]。一般意义上,它是脉冲被拉伸多少的度量,其中符号表示脉冲的高频部分或低频部分是否正在引导(图 2)。

$$\varphi_{FCH} = -\frac{d\omega_0}{dt}, \quad (6)$$

$$\varphi_{GDD} = \frac{dt_0}{d\omega}. \quad (7)$$

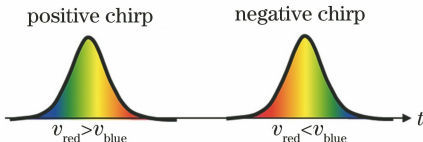


图 2 时间啁啾

Fig. 2 Temporal chirp

激光脉冲中的 AD 和 SC 可导致强度前沿相对于相位前沿的倾斜,这种现象称为脉冲前沿倾斜^[33,49]。PFT 通常来自时空耦合,而超快激光中的时空操作有相当大的控制度^[47,49-50]。如图 3 所示,在下列两种情况下会产生 PFT,最常见的是 AD,因为它来自于使用棱镜或光栅,这些棱镜或光栅用于大多数超快激光实验。当光行进通过色散介质时,光束的不同频率分量将以不同的角度传播。这可以通过

中心频率 ω_0 ,这产生了位置相关的频率函数 $\omega_0(x)$ 。所述函数相对于位置的斜率称为频率梯度(FRG)^[48-49]。另一种定义是找到每个频率分量的波束中心位置 x_0 ,产生函数 $x_0(\omega)$,该函数的斜率将为 SC 提供有效的度量,称为空间色散(SD)^[48,49],分别表示为

$$v_{FRG} = \frac{d\omega_0}{dx}, \quad (4)$$

$$\zeta_{SD} = \frac{dx_0}{d\omega}. \quad (5)$$

使用平行棱镜或光栅对来减轻,但是如果仍然存在任何未对准或光束发散,则剩余的 PFT 和 AD 将保留。此外,当没有 AD 的空间啁啾脉冲进入色散介质时,由于介质中的群速度色散,同样可以导致 PFT。因此,PFT 可以量化为两部分之和^[49],表示为

$$T_{PFT} = (v_{FRG} \cdot \varphi_{GDD}) + (\varphi_{AD} \cdot k_0). \quad (8)$$

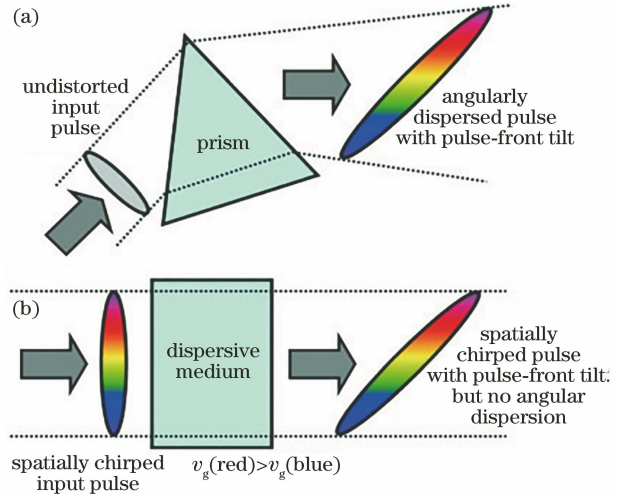


图 3 脉冲前沿倾斜的两个来源。(a)角色散;(b)空间和时间啁啾的组合^[49]

Fig. 3 Two sources of pulse-front tilt. (a) Angular dispersion; (b) combination of spatial and temporal chirp^[49]

另一种常见的时空耦合 WFR 则描述了时间与角度的关系,即随时间旋转的波前^[40]。当光束具有 PFT 并被发送到聚焦光学元件时,倾斜的前沿将使

脉冲的一侧先于另一侧到达聚焦光学元件,这导致光束的初始相交部分比后者先到达焦点,这意味着光扫过焦点的方向,导致了时间上的旋转。对于 SC 光束,激光脉冲的中心频率在光束中增加或减少,这导致相位沿横轴演化得更快或更慢,导致波前随时间推移而旋转。基于 SC 和 PFT 的结合,WFR 可以被量化^[40]。这些时空耦合现象表明激光场的空间和时间光谱之间是相互依赖、不可分离的,并且情况会随着光束传播而发展,变得更加复杂。特别是当激光束通过物镜聚焦时,由于几何限束效应会使这种动力学更加明显。

2.3 基于时空耦合的聚焦技术

在飞秒激光微加工领域,需要特别注意控制脉冲的相位,这可能受到色散介质或自相位调制的干扰,并导致脉冲强度的显著降低,通常被视为负面影响。然而,一种称为啁啾脉冲放大的方法清楚地表明,可以利用对光谱成分的操纵,通过在增益介质之前临时拉伸一个脉冲,减轻增益介质因瞬时高功率而受损的问题。然后将放大的脉冲以与其拉伸相同的方式再压缩回原始脉冲宽度,使激光从太瓦提升到拍瓦强度^[51]。人们发现,通过调节时空耦合特性后的激光脉冲,可以实现在达到焦点附近的临界功率时克服非线性副作用,减小能量在传播过程中的损失。空间和时间共聚焦的技术最初是为了多光子显微镜成像而提出^[29,30]。该技术的原理是在聚焦激光脉冲之前,入射激光的频谱分量在空间中分离,形成准直的空间啁啾光束(图 4),并增加了脉宽。在聚焦时,随着空间分量开始重叠,整个带宽被逐渐恢复,压缩回初始脉宽,因此脉冲可实现的最大强度仅在焦点处得到满足,将所有激光与材料的非线性相互作用限制在焦点体积上。近年来,SSTF 技术不仅在材料修饰^[31,52],还在显微术、组织消融^[53-54]和大气传播^[55]等

方面显示出在达到聚焦附近临界功率时克服非线性副作用的影响。此外时空共聚焦后的脉冲在焦点有很强 PFT,可达到 10^4 fs/mm^[33],其在传统的飞秒激光系统中是十分罕见的。

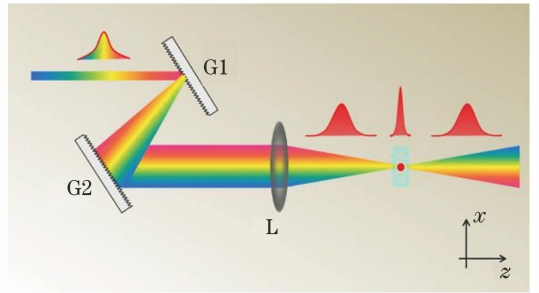


图 4 飞秒激光时空聚焦技术的原理^[56]

Fig. 4 Principle of femtosecond laser SSTF technology^[56]

3 飞秒激光时空聚焦技术在微加工中的应用

3.1 抑制加工过程中的非线性效应

在微加工领域中,超快激光诱导材料改性的关键参数之一是聚焦条件。根据应用选择正确的数值孔径(NA)是十分重要的。然而,当使用低 NA 或高脉冲能量时,如自聚焦、丝化或超连续谱等非线性现象导致的副作用会极大地降低改性质量^[57-59]。如图 5(a)所示,传统聚焦(NA 为 0.05)条件下,60 fs、50 μ J 的飞秒激光由于自聚焦等非线性效应,在石英玻璃中传输时形成了超连续谱^[28]。相反,通过飞秒激光时空聚焦,在相同的脉冲能量、持续时间和焦斑大小的情况下,能够选择性地烧蚀样品的背面,并且脉冲在传输的过程中不与材料发生非线性作用,如图 5(b)所示,时空聚焦技术可以将非线性效应有的效抑制在焦区,使得能量更加集中,从而具有更高的电离效率。

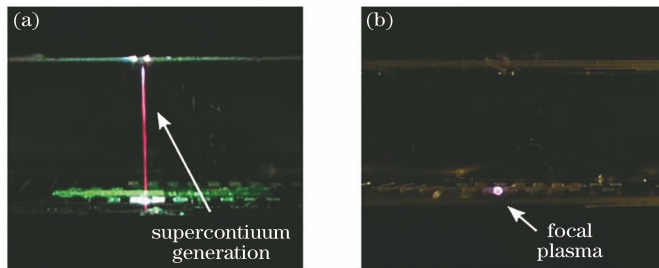


图 5 传统聚焦和时空聚焦条件下飞秒脉冲的非线性效应作用区域对比。(a)在没有空间啁啾脉冲的情况下,自聚焦和超连续谱的产生导致了聚焦强度的损失;(b)利用空间啁啾脉冲,自聚焦和连续谱产生被抑制^[28]

Fig. 5 Comparison of nonlinear effect at different areas between common focusing and spatio-temporal focusing conditions.

(a) Without spatially chirped pulses, self-focusing and supercontinuum generation result in a loss of intensity at the focus; (b) with spatially chirped pulses, self-focusing and continuum generation are suppressed^[28]

3.2 3D 打印技术上的探索改进

激光的 3D 打印技术是当前的一项技术热点。实现高精度激光 3D 打印普遍思路是:利用激光将光敏胶逐层曝光固化,层层叠加后成为一个整体。显然,这种方式制备的工件分辨率与每层的胶体厚度有关,结构的精细程度上有一定的限制。基于双光子聚合的 3D 打印方式可以制备出更精细的结构,但需要使用高数值孔径的物镜达到一定的加工精度,由于高数值孔径会限制焦点位置的深度,这种方法加工的工件尺寸通常小于毫米尺度。Chu 等^[60]提出了一种双光子聚合方式下利用飞秒激光脉冲时空聚焦制造高精度的三维结构的想法。他们

利用飞秒激光时空聚集,分别制作了高度在毫米和厘米级别的三维结构,图 6 是高度为 2 mm 狮子的实物图,可以很清晰地看到狮子的表面细微结构。

通过 SSTF 技术可以提高双光子聚合 3D 打印的精度和打印尺寸。飞秒脉冲传输过程中在空间上和时间上同时聚焦,在焦点上可以同时达到最短的脉冲宽度和最高的峰值光强,远离焦点位置的峰值强度迅速下降,避免了聚焦前的非线性自聚焦,从而提高了分辨率。而且在时空聚焦方案下,即使是低倍率物镜也能有合适的轴向分辨率,摆脱尺寸的限制。此外,通过调节入射激光的光强可以实现打印分辨率的连续调节,适用于不同结构的需要。

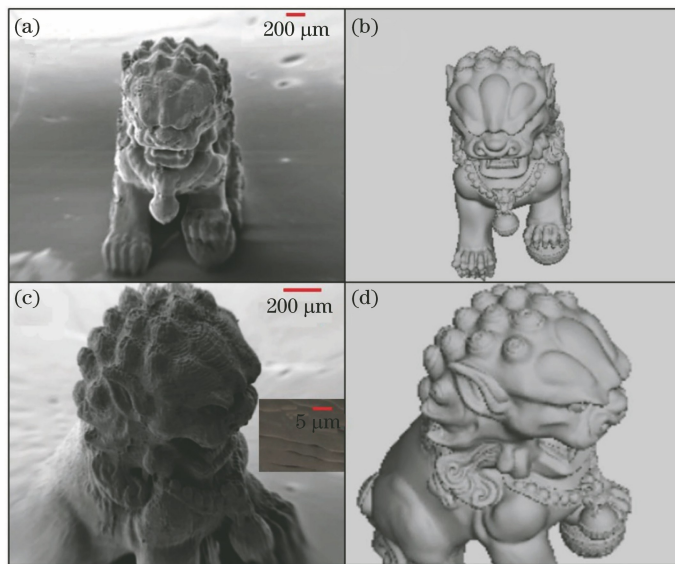


图 6 2 mm 高的狮子雕塑图像。(a)雕塑正面的 SEM 图像;(b)原始模型的前视图;(c)制作的狮头 SEM 图像;(d)原始模型的头部从相同的视角展示^[60]

Fig. 6 Image of 2 mm height lion sculpture. (a) SEM image in the front view of sculpture; (b) front view of the original model; (c) SEM image of the head of fabricated lion; (d) head of the original model exhibited from the same angle of view^[60]

3.3 SSTF 的并行化直写技术

多焦点并行化直写已经是使用传统聚焦以提高诸如多光子显微镜和激光制造等技术处理速度的一种有效手段。当生成这种复杂的焦点分布时,连续的强度分布通常显示出较差的轴向分辨率,但是通过对脉冲频谱分散后对光进行全息整形^[44],可以限制焦点处的轴向位置。如图 7(a)所示,通过空间光调制器(SLM)调制所有光谱分量的相位,并且每个光谱分量都会被调制到固定的微小区域,沿着几个不同的光束路径传播到焦点区域,每个焦点都包含所有的频率分量,可以创建如图 7(b)所示的 SSTF 光斑的二维和三维阵列。此外,在这种配置中使用全息图可提供对光场更高维度的控制,结合与

SSTF 点相关的 PFT 特性来重叠相邻的焦点,以使单个脉冲的多个点在空间上重叠,但在时间上是分开的。因此,这项技术可以同时控制四个维度上的强度分布:三个空间和一个时间,来克服传统技术中由于相互干扰而导致的全息光点间距的限制,例如基于 SSTF 中产生的 PFT 来生成均匀的“平顶”强度扩展线聚焦^[44]。

4 时空耦合飞秒脉冲激光对纳米光栅结构的影响

4.1 非互逆性直写现象

近年来,研究人员在飞秒激光直写透明材料的研究中,观察到辐照材料的改性过程依赖于光束书

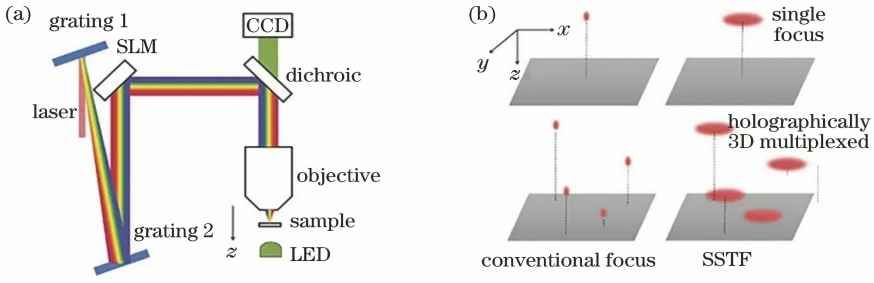


图 7 四维光场整形光路示意图。(a)实验光路系统;(b)常规聚焦与 SSTF、单聚焦与全息 3D 复用之间的关系^[44]
 Fig. 7 Schematic of four-dimensional optical shaping. (a) Optical experimental setup; (b) relationship between conventional focus and SSTF, as well as single focus and holographic 3D multiplexed^[44]

写方向,这类现象被称为非互逆性直写。一般来说,在各向同性均匀介质中,反转激光写入方向不应影响材料加工结构。然而,2007 年 Kazansky 等^[32]在熔融石英玻璃中通过扫描方式直写纳米光栅时发现,其结构及周期依赖于飞秒激光扫描方向。从图 8(a)中可以看出,当扫描方向垂直于偏振方向时,纳米光栅的双折射强度出现明显的不同,即在一个方向上具有明

显的双折射信号,而且纳米结构是平滑的,在相反的方向几乎观察不到双折射信号,并产生粗糙的纳米结构纹理,这种差异可以从书写结构横截面的 SEM 图像清楚看到。这种非互逆性直写现象归因于脉冲时空畸变产生的 PFT 的存在,导致激光束的对称性破坏,因此,PFT 被认为是飞秒微加工技术中一个新的自由度,并在许多后继的研究中被证实^[32-39]。

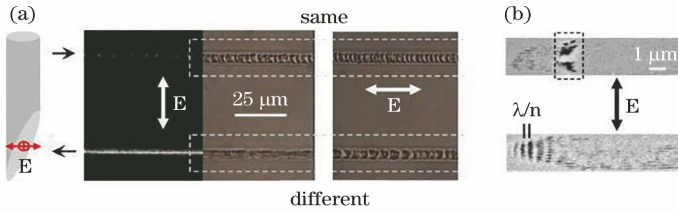


图 8 非互逆性直写现象。(a)用正交偏振法书写直线的正交偏振和差分干涉图像;(b)书写方向垂直于偏振的横截面的 SEM 图像^[32]

Fig. 8 Nonreciprocal direct writing phenomenon. (a) Orthogonal polarization and differential interference images of the lines written with orthogonal polarizations; (b) SEM images of cross sections of lines written with polarization perpendicular to writing direction^[32]

PFT 源于脉冲前沿强度分布的倾斜,因此强度梯度被认为提供了对所激发的自由载流子的有质动力,即非均匀振荡电磁场对带电粒子上的非线性力。这种强度梯度力沿着倾斜前沿方向将自由电子从高强度区域排出,并进一步沿着运动方向捕获和移动电子^[32]。这个过程无疑会影响辐照区域等离子体的形成,从而使得光束的正反向移动形成不同特征的纳米光栅。

美国科罗拉多矿业大学 Vitek 等^[33]用一组光栅对改变飞秒脉冲的 SC,在焦点处得到了接近 16000 fs/mm 的 PFT 数值。他们利用带有 PFT 的激光通过低数值孔径(NA 为 0.03)物镜聚焦在玻璃内部,实验结果如图 9 所示,在不同偏振态下改变扫描方向得到不同改性效果。当扫描方向平行于 PFT 方向时[图 9(b)和(c)],在不同偏振态下正反写都存在明显的非对称差异,这种差异在偏振方向

平行于扫描方向时更加明显;当扫描方向垂直于 PFT 的方向时[图 9(d)],这种书写方向引起的双折射信号随扫描方向改变的依赖现象消失。该小组认为改变脉冲的 PFT 特性,可以实现在牙齿和骨头等生物材料上精准切割和打孔^[33]。

4.2 非对称的纳米光栅结构

2012 年 Dai 等^[61-62]发现单光束的飞秒脉冲激光可以诱导纳米光栅的三维旋转。经典的理论表明,飞秒激光诱导的纳米光栅其方位面仅取决于入射光的偏振方向,但是使用具有 PFT 特征的脉冲入射熔融石英玻璃,然后通过调节偏振方位角 θ 从 10° 到 190° 旋转,发现诱导的纳米光栅能实现 3D 旋转,如图 10 所示。引起这种现象的原因是入射脉冲的时空畸变使电场平面从相位前沿转变到强度前沿,这样原先二维的电场因为具有了纵向的分量,使得形成的纳米光栅在纵向横截面中旋转。

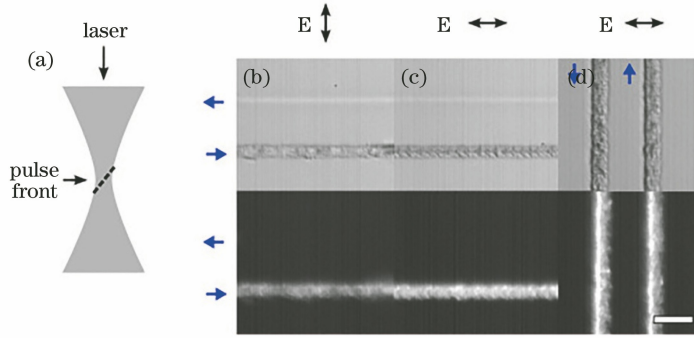


图 9 PFT 影响下的玻璃改性。(a)脉冲前沿在焦平面上的倾斜方向(虚线);蓝色箭头表示书写方向,E 表示偏振方向,分别在图(b)~(d)中标出,每组反平行线用明场(上)和正交偏振照明(下)成像;标度尺为 $50\ \mu\text{m}$ ^[33]

Fig. 9 Glass modification under the influence of PFT. (a) Orientation of the pulse front tilt at the focal plane (dashed line); blue arrow is the writing direction, E is the polarization direction, in Fig. (b)-(d), each set of anti-parallel lines was imaged with bright field (top) and cross-polarized illumination (bottom); scale bar is $50\ \mu\text{m}$ ^[33]

此外,选取了偏振方向分别为 $10^\circ, 90^\circ$ 和 170° 的三个横截面图像。当沿着 PFT 方向扫描时,观察电镜可以看到纳米光栅的 3D 旋转,而沿着相反方向扫描时,则光栅取向维持原先的特征,该现象具有明显的书写方向依赖性。我们推测该现象是由于前序脉冲扫描时在前沿处诱导了一定密度的低电离阈值的自陷激子(STE)或晶格缺陷,沿着 PFT 扫描可以在辐照区域的前沿不断累积缺陷,使得后序脉冲能激发出更高密度的等离子体。而且由于用于材料电离的能量消耗减

少,更多的脉冲能量可转化为有质动力,压迫纳米光栅产生旋转。如果沿相反的方向书写,则缺乏 STE 或者缺陷的积累效应,电离出的等离子体不产生受迫形变,从而恢复原始取向。该过程提供了新路径来控制纳米光栅从二维(2D)到 3D 空间的转换。

时空耦合不仅在诱导纳米光栅 3D 旋转起到重要作用,同样在诱导其他微纳结构上起到一定的调控作用。Wang 等^[63]使用泵浦-探测阴影成像技术观察由 SSTF 脉冲引起的瞬态等离子体轨迹时,发

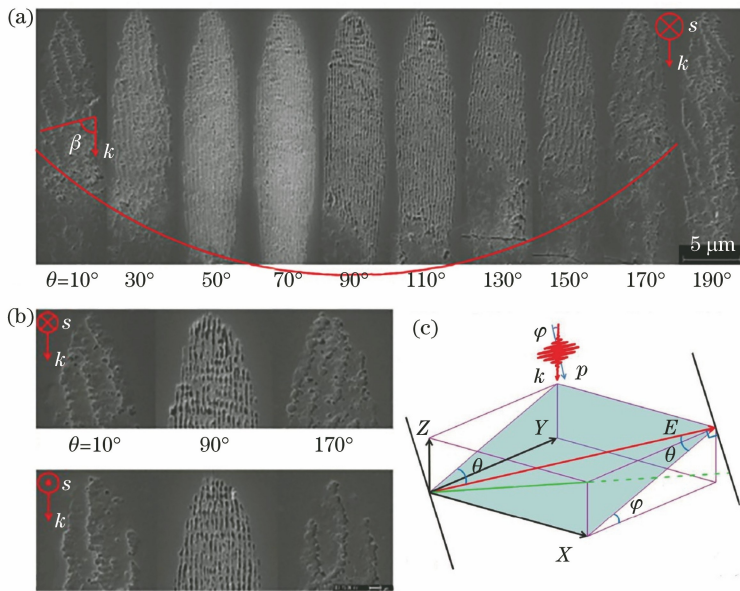


图 10 飞秒激光的 PFT 对纳米光栅空间取向的影响。(a)旋转入射脉冲偏振方向的纳米光栅的 SEM 图像(红色曲线突出了纳米光栅纵向长度的变化趋势);(b)具有两个相反扫描方向的纳米光栅 SEM 图像;(c)纳米光栅的三维旋转示意图^[62]

Fig. 10 Dependence of orientation of induced nanogating on PFT of femtosecond laser. (a) SEM images of self-organized nanogratings in transversal cross-section of the written lines with varied polarization plane azimuth (red curve highlights the varying trend for the longitudinal length of nanogratings); (b) SEM images of the written nanogratings in the transversal cross-section with two opposite scan directions; (c) schematic of 3D rotation of nanogratings^[62]

现在焦点区域形成的等离子体明显弯曲,这种现象归因于沿 PFT 平面的不对称载流子密度分布。Guan 等^[64]通过三次谐波产生显微镜观察飞秒激光直写波导的横截面,发现了折射率变化区域是弯曲的,这和诱导的等离子体弯曲具有十分类似的机制。

最近,我们通过分别调节飞秒脉冲的 SC 和 TC,进一步探索了 PFT 对非互逆性直写现象的影响,并对其调控微纳结构倾斜方向提出了解释^[39]。从图 11 (a)的实验结果来看,A 是飞秒脉冲传统聚焦诱导的微纳结构,可以看出,整体结构沿着入射方向的,而在时空耦合的飞秒脉冲入射状态下,当扫描方向垂直于

激光的 SC 方向时,通过观察书写线的横截面,发现了具有头部倾斜的弯曲结构。在保持 SC 方向不变的情况下,通过调节 TC 改变 PFT 的大小和方向,仅能改变纳米结构的倾斜角度,而不改变倾斜方向,但是在加入道威棱镜翻转 SC 方向后,倾斜结构发生了翻转,这有可能意味着在控制 PFT 的两个变量中,SC 的方向是决定纳米结构倾斜方向的主要因素。同时,还分析了诱导结构的倾斜角对入射脉冲 GDD 的依赖性,发现即使物镜前的 PFT 符号随着引入的 GDD 的增加而翻转,倾斜方向仍保持不变,而且数值模拟结果还表明,焦点处的 PFT 不受初始 PFT 的影响^[39]。

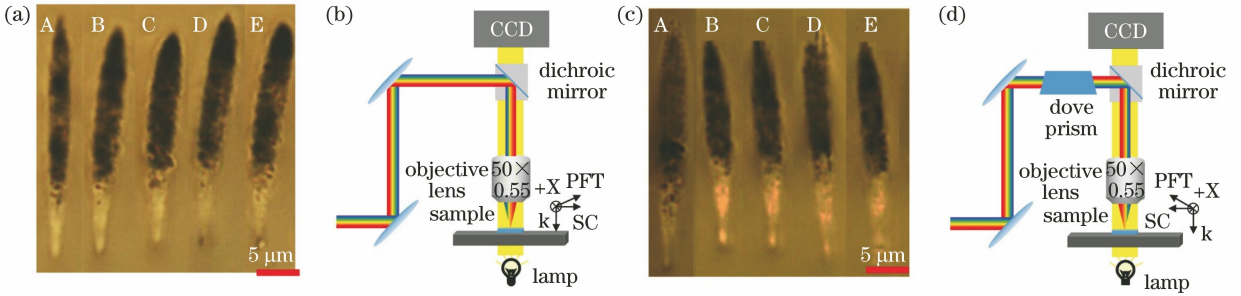


图 11 空间啁啾脉冲在石英玻璃内诱导的非对称微结构。(a)(c)入射激光脉冲诱导的倾斜微结构的横截面光学图像;对应加工示意图(b)没有道威棱镜和(d)有道威棱镜^[39]

Fig. 11 Asymmetric microstructures induced by spatially chirped pulse in fused silica. (a)(c) Optical images of transverse sections of the asymmetric microstructures with tilted heads induced by the laser pulses; corresponding to the processing diagram (b) without a Dove prism and (d) with a Dove prism^[39]

已有的实验充分证实,时空耦合脉冲可以在材料中诱导非对称的微纳结构,因此一些小组也试图从理论方面解释这有趣的现象。Zhukov 等^[65]基于非线性麦克斯韦方程,并辅以自由电子等离子体的流体动力学方程,提出了飞秒脉冲在熔融石英内焦点区域的 2D 能流分布模型。该入射光场表达式为

$$E_x(z=0) = E_0 \exp \left[- \left(\frac{1}{\omega^2} + \frac{ik}{2R} \right) x^2 - \frac{(t - p_{\text{Re}}x - ip_{\text{Im}}x)^2}{\tau^2} + i\beta t^2 \right], \quad (9)$$

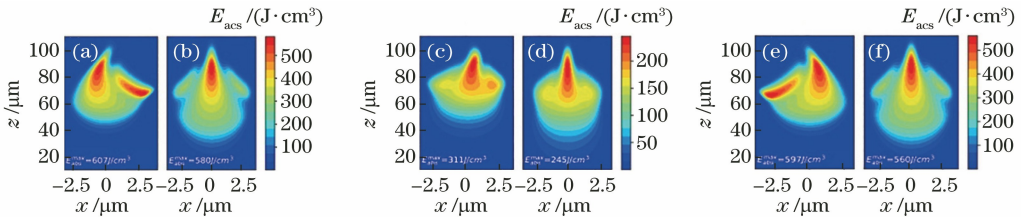


图 12 不同耦合条件下焦点区域的能流分布图。(a)(c)(e)耦合参数分别为 $p = (14 + 0.7i) \text{ fs}/\mu\text{m}$, $p = (0.2 + 2i) \text{ fs}/\mu\text{m}$, $p = (-13.8 - 3.7i) \text{ fs}/\mu\text{m}$; (b)(d)(f)相应的参照组^[67]

Fig. 12 Different laser fluence distributions at the focus with varied coupling parameters. (a)(c)(e) Coupling parameter, respectively $p = (14 + 0.7i) \text{ fs}/\mu\text{m}$, $p = (0.2 + 2i) \text{ fs}/\mu\text{m}$, and $p = (-13.8 - 3.7i) \text{ fs}/\mu\text{m}$; (b)(d)(f) corresponding control group^[52]

模拟条件,实验中观察到的材料改性后的非对称结构应该归因于 PFT 的存在。

4.3 飞秒激光时空耦合诱导特殊结构的应用探讨

尽管飞秒激光的表征技术已经得到了一定的发展^[66-68],但是缺乏对纳米光栅形成过程的直接观察手段。到目前为止,非互逆性直写效应和非对称纳米光栅形成背后的物理图像并没有统一的定论,多为定性研究,但是已在多个实验中证实其与 PFT 的直接联系。因此需要在理论上,考虑 PFT、WFR 等时空耦合效应,并考虑到等离子体吸收、等离子体散焦以及多光子吸收等非线性效应,建立理论模型进行计算。

在激光微加工产业中,应避免非互易性直写现象和非对称纳米光栅结构的产生对精密三维加工造成负面影响。但是,PFT 作为一种新的调控方式为提高材料电离率和加工维度提供了新的思路,我们预计,通过调节 PFT 实现对光线的控制,可以促进材料处理、光学操纵和数据存储的进步。操纵飞秒脉冲时空耦合在各向同性材料(熔融石英玻璃)中产生的“各向异性纳米光栅”,用来生产传感器、偏振器、光学隔离器和滤光器等光学器件,在纳米光栅 5 维编码存储的基础上^[20],实现 6 维编码(第 6 维,纳米光栅倾斜调控),进一步提升纳米光栅存储能力。相信,随着对飞秒激光时空变换技术控制能力的提升和研究的深入,非互逆性直写效应和非对称纳米光栅形成背后的物理图像会得到完善,其在激光微加工产业中将会得到广泛的应用。

5 结束语

本文对飞秒脉冲时空耦合效应用于微加工的研究进行了回顾,重点介绍了其对石英玻璃内纳米光栅结构的影响。通过研究非互逆性直写和纳米光栅 3D 旋转等现象,证明了脉冲的 PFT 是决定非对称纳米结构的主要因素。调节飞秒脉冲时空啾啾可以实现对 PFT 的主动控制,研究内容包括探索 PFT 对焦点区域材料非线性电离、非对称光场和受激等离子体耦合调制过程,以及有质动力场与等离子体之间的强相互作用等物理机制。综上所述,PFT 可作为一个新的调控自由度去促进纳米光栅快速生长,为提升三维光存储写入速度和快速制作偏振光学波片提供高效的解决方案。

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. Femtosecond laser processing for optofluidic fabrication[J]. Lab on a Chip, 2012, 12(19): 3576-3589.

[3] Chen F, de Aldana J R V. Optical waveguides in crystalline dielectric materials produced by femtosecond-laser micromachining [J]. Laser & Photonics Reviews, 2014, 8(2): 251-275.

[4] Sugioka K, Cheng Y. Ultrafast lasers: reliable tools for advanced materials processing[J]. Light: Science & Applications, 2014, 3(4): e149.

[5] Liu K J, Li X H, Xie C X, et al. Formation of sub-200 nm nanostructure on Fe film irradiated by femtosecond laser[J]. Optics & Laser Technology, 2017, 94: 28-33.

[6] Manzoli A, de Almeida G F B, Filho J A, et al. Femtosecond laser ablation of gold interdigitated electrodes for electronic tongues[J]. Optics & Laser Technology, 2015, 69: 148-153.

[7] Wu P C, Zhang C C, Yang L, et al. Femtosecond laser dual-mode rapid fabrication based on spatial light modulator[J]. Chinese Journal of Lasers, 2018, 45(10): 1001005.

吴培超, 张晨初, 杨亮, 等. 基于空间光调制器的飞秒激光双模式快速加工[J]. 中国激光, 2018, 45(10): 1001005.

[8] Liu M N, Li M T, Sun H B. 3D femtosecond laser nanoprinting[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2018, 55(1): 011410.

刘墨南, 李木天, 孙洪波. 3D 飞秒激光纳米打印[J]. 激光与光电子学进展, 2018, 55(1): 011410.

[9] Zhang F T, Nie Z G, Qiu J R. Realization of optical modulation in germanium oxide glass by femtosecond laser direct writing [J]. Chinese Journal of Lasers, 2018, 45(12): 1202006.

张芳腾, 聂兆刚, 邱建荣. 飞秒激光直写实现氧化锗玻璃内部光调制[J]. 中国激光, 2018, 45(12): 1202006.

[10] Qiao L L, Chu W, Wang Z, et al. Three-dimensional microfabrication by shaped femtosecond laser pulses [J]. Acta Optica Sinica, 2019, 39(1): 0126012.

乔玲玲, 储蔚, 王哲, 等. 基于整形飞秒激光脉冲的三维微纳制备[J]. 光学学报, 2019, 39(1): 0126012.

[11] Gong M, Dai Y, Song J, et al. Influence of electron density distribution induced by single beam femtosecond laser on 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.
- [12] Dai Y, Qiu J R. Research progress of single beam femtosecond laser direct writing self-organized nanogratings in fused silica [J]. *Laser & Optoelectronics 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.
- [13] Zhang F T, Cerkauskaite A, Drevinskas R, et al. Microengineering of optical properties of GeO₂ glass by ultrafast laser nanostructuring [J]. *Advanced Optical Materials*, 2017, 5(23): 1700342.
- [14] Tan Y X, Wang Z H, Chu W, et al. High-throughput in-volume processing in glass with isotropic spatial resolutions in three dimensions[J]. *Optical Materials Express*, 2016, 6(12): 3787-3793.
- [15] Dai Y, Patel A, Song J, et al. Void-nanograting transition by ultrashort laser pulse irradiation in silica glass[J]. *Optics Express*, 2016, 24(17): 19344-19353.
- [16] Salter P S, Woolley M J, Morris S M, et al. Femtosecond fiber Bragg grating fabrication with adaptive optics aberration compensation[J]. *Optics Letters*, 2018, 43(24): 5993-5996.
- [17] Lu J F, Dai Y, Li Q, et al. Fiber nanogratings induced by femtosecond pulse laser direct writing for in-line polarizer[J]. *Nanoscale*, 2019, 11(3): 908-914.
- [18] He F, Cheng Y, Qiao L L, et al. Two-photon fluorescence excitation with a microlens fabricated on the fused silica chip by femtosecond laser micromachining[J]. *Applied Physics Letters*, 2010, 96(4): 041108.
- [19] Sun X Y, Cui D M, Hu Y W, et al. Thermal process of silica glass microchannels fabricated by femtosecond laser ablation [J]. *Chinese Optics Letters*, 2018, 16(10): 101402.
- [20] Zhang J Y, Gecevičius M, Beresna M, et al. Seemingly unlimited lifetime data storage in nanostructured glass[J]. *Physical Review Letters*, 2014, 112(3): 033901.
- [21] 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.
- [22] Mishchik K, Cheng G, Huo G, et al. Nanosize structural modifications with polarization functions in ultrafast laser irradiated bulk fused silica[J]. *Optics Express*, 2010, 18(24): 24809-24824.
- [23] Glezer E N, Mazur E. Ultrafast-laser driven micro-explosions in transparent materials [J]. *Applied Physics Letters*, 1997, 71(7): 882-884.
- [24] Smelser C W, Mihailov S J, Grobnc D. Formation of Type I-IR and Type II-IR gratings with an ultrafast IR laser and a phase mask [J]. *Optics Express*, 2005, 13(14): 5377-5386.
- [25] Lu P, Grobnc D, Mihailov S J. Characterization of the birefringence in fiber Bragg gratings fabricated with an ultrafast-infrared laser [J]. *Journal of Lightwave Technology*, 2007, 25(3): 779-786.
- [26] Bricchi E, Kazansky P G. Extraordinary stability of anisotropic femtosecond direct-written structures embedded in silica glass[J]. *Applied Physics Letters*, 2006, 88(11): 111119.
- [27] Wang P, Chu W, Li W B, et al. Aberration-insensitive three-dimensional micromachining in glass with spatiotemporally shaped femtosecond laser pulses[J]. *Optics Letters*, 2018, 43(15): 3485-3488.
- [28] 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.
- [29] Oron D, Tal E, Silberberg Y. Scanningless depth-resolved microscopy[J]. *Optics Express*, 2005, 13(5): 1468-1476.
- [30] Zhu G H, van Howe J, Durst M, et al. Simultaneous spatial and temporal focusing of femtosecond pulses [J]. *Optics Express*, 2005, 13(6): 2153-2159.
- [31] 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.
- [32] Kazansky P G, Yang W J, Bricchi E, et al. "Quill" writing with ultrashort light pulses in transparent materials [J]. *Applied Physics Letters*, 2007, 90(15): 151120.
- [33] 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.

- [34] Kazansky P G, Shimotsuma Y, Sakakura M, et al. Photosensitivity control of an isotropic medium through polarization of light pulses with tilted intensity front[J]. *Optics Express*, 2011, 19(21): 20657-20664.
- [35] Salter P S, Booth M J. Dynamic control of directional asymmetry observed in ultrafast laser direct writing [J]. *Applied Physics Letters*, 2012, 101(14): 141109.
- [36] Poumellec B, Lancry M, Desmarchelier R, et al. Parity violation in chiral structure creation under femtosecond laser irradiation in silica glass? [J]. *Light: Science & Applications*, 2016, 5(11): e16178.
- [37] Jing C R, Wang Z H, Cheng Y. Characteristics and applications of spatiotemporally focused femtosecond laser pulses [J]. *Applied Sciences*, 2016, 6(12): 428.
- [38] Song H, Dai Y, Song J, et al. Femtosecond laser-induced structural difference in fused silica with a non-reciprocal writing process [J]. *Applied Physics A*, 2017, 123(4): 255.
- [39] Li Q, Li W B, Chu W, et al. Effect of spatio-temporal coupling on ultrafast laser direct writing in glass [J]. *Chinese Optics Letters*, 2019, 17(8): 081402.
- [40] Akturk S, Gu X, Gabolde P, et al. The general theory of first-order spatio-temporal distortions of Gaussian pulses and beams [J]. *Optics Express*, 2005, 13(21): 8642-8661.
- [41] Wheeler J A, Borot A, Monchocé S, et al. Attosecond lighthouses from plasma mirrors [J]. *Nature Photonics*, 2012, 6(12): 829-833.
- [42] Vincenti H, Quéré F. Attosecond lighthouses: how to use spatiotemporally coupled light fields to generate isolated attosecond pulses [J]. *Physical Review Letters*, 2012, 108(11): 113904.
- [43] Quéré F, Vincenti H, Borot A, et al. Applications of ultrafast wavefront rotation in highly nonlinear optics [J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2014, 47(12): 124004.
- [44] Sun B S, Salter P S, Roider C, et al. Four-dimensional light shaping: manipulating ultrafast spatiotemporal foci in space and time [J]. *Light: Science & Applications*, 2018, 7(1): 17117.
- [45] Froula D H, Turnbull D, Davies A S, et al. Spatiotemporal control of laser intensity [J]. *Nature Photonics*, 2018, 12(5): 262-265.
- [46] Walmsley I, Waxer L, Dorrer C. The role of dispersion in ultrafast optics [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2001, 72(1): 1-29.
- [47] Fiorini C, Sauteret C, Rouyer C, et al. Temporal aberrations due to misalignments of a stretcher-compressor system and compensation [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1994, 30(7): 1662-1670.
- [48] Gu X, Akturk S, Trebino R. Spatial chirp in ultrafast optics [J]. *Optics Communications*, 2004, 242(4/5/6): 599-604.
- [49] Akturk S, Gu X, Zeek E, et al. Pulse-front tilt caused by spatial and temporal chirp [J]. *Optics Express*, 2004, 12(19): 4399-4410.
- [50] Gorunski N, Dimitrov N, Dreischuh A, et al. Pulse-front tilt created in misaligned dispersionless optical systems and correct interferometric autocorrelation [J]. *Optics Communications*, 2010, 283(24): 5192-5198.
- [51] Perry M D, Mourou G. Terawatt to petawatt subpicosecond lasers [J]. *Science*, 1994, 264(5161): 917-924.
- [52] 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.
- [53] Durst M E, Zhu G, Xu C. Simultaneous spatial and temporal focusing in nonlinear microscopy [J]. *Optics Communications*, 2008, 281(7): 1796-1805.
- [54] 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.
- [55] McCabe D J, Tajalli A, Austin D R, et al. Spatio-temporal focusing of an ultrafast pulse through a multiply scattering medium [J]. *Nature Communications*, 2011, 2: 447.
- [56] He F, Wang Z H, Zeng B, et al. Extraordinary characteristics of spatiotemporally focused laser pulses and their roles in precision materials processing [C] // 2015 11th Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim (CLEO-PR), August 24-28, 2015. Busan, Korea (South). IEEE, 2015.
- [57] Sudrie L, Couairon A, Franco M, et al. Femtosecond laser-induced damage and filamentary propagation in fused silica [J]. *Physical Review Letters*, 2002, 89(18): 186601.
- [58] Chekalin S V, Kandidov V P. From self-focusing light beams to femtosecond laser pulse filamentation

- [J]. *Physics-Uspekhi*, 2013, 56(2): 123-140.
- [59] Brodeur A, Chin S L. Ultrafast white-light continuum generation and self-focusing in transparent condensed media[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 1999, 16(4): 637-650.
- [60] Chu W, Tan Y X, Wang P, et al. Centimeter-height 3D printing with femtosecond laser two-photon polymerization [J]. *Advanced Materials Technologies*, 2018, 3(5): 1700396.
- [61] Dai Y, Wu G R, Lin X, et al. Femtosecond laser induced rotated 3D self-organized nanograting in fused silica[J]. *Optics Express*, 2012, 20(16): 18072-18078.
- [62] Dai Y, Ye J Y, Gong M, et al. Forced rotation of nanograting in glass by pulse-front tilted femtosecond laser direct writing [J]. *Optics Express*, 2014, 22(23): 28500-28505.
- [63] Wang Z H, Zeng B, Li G H, 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.
- [64] Guan J, Liu X, Booth M J. Ultrafast laser writing quill effect in low loss waveguide fabrication regime [J]. *Optics Express*, 2018, 26(23): 30716-30723.
- [65] Zhukov V P, Akturk S, Bulgakova N M. Asymmetric interactions induced by spatio-temporal couplings of femtosecond laser pulses in transparent media[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2019, 36(6): 1556-1564.
- [66] Gu X, Akturk S, Shreenath A, et al. The measurement of ultrashort light pulses-simple devices, complex pulses [J]. *Optical Review*, 2004, 11(3): 141-152.
- [67] Akturk S, Gu X, Bowlan P, et al. Spatio-temporal couplings in ultrashort laser pulses [J]. *Journal of Optics*, 2010, 12(9): 093001.
- [68] Wang Z H, He F, Ni J L, et al. Interferometric characterization of pulse front tilt of spatiotemporally focused femtosecond laser pulses [J]. *Optics Express*, 2014, 22(21): 26328-26337.