

激光与光电子学进展

超快激光在铌酸锂内部诱导微纳光子结构研究进展(特邀)

张博*, 王梓权, 王卓, 邱建荣**

浙江大学光电科学与工程学院, 浙江 杭州 310027

摘要 铌酸锂晶体(LN)凭借优异的光学特性,已经成为构建新一代集成光电器件和光学系统的关键性基础材料。基于强场-物质相互作用的超快激光选择性材料修饰技术使得在三维空间中按需创建LN基功能化微结构成为可能,为探索LN光子学、发展LN先进加工技术、构建集成光子器件和光学系统提供了有力的工具。本文聚焦近年来国内外研究团队所取得的重要进展,从超快激光修饰LN基本原理出发,重点介绍了超快激光在LN内部诱导微纳光子结构的新现象、新机制和新应用,包括超快激光直写光波导、制备非线性光子晶体、操控铁电畴、多维光存储等前沿领域的最新成果。最后,对超快激光赋能LN光子学进行了展望。

关键词 超快激光; 激光诱导; 铌酸锂; 光子结构

中图分类号 TN249

文献标志码 A

DOI: 10.3788/LOP232676

Advancements in Ultrafast-Laser-Inducing Micro-Nanophotonic Structures Inside Lithium Niobate (Invited)

Zhang Bo*, Wang Ziquan, Wang Zhuo, Qiu Jianrong**

College of Optical Science and Engineering, Zhejiang University, Hangzhou 310027, Zhejiang, China

Abstract Lithium niobate has become an essential fundamental material for constructing next-generation integrated optoelectronic devices and optical systems because of its excellent optical properties. The technique for strong field-material interaction-based ultrafast-laser-selective material modification enables the on-demand construction of functionalized lithium niobate micro-nanostructures in three-dimensional space, providing a powerful tool for the development of lithium niobate photonics, advanced processing techniques, and integrated photonic devices and optical systems. In this review, we focused on the recent milestone progress achieved by research teams worldwide. Starting from the fundamental principles of ultrafast laser modification in lithium niobate, we introduced new phenomena, mechanisms, and applications of ultrafast-laser-induced micro-nanophotonic structures inside lithium niobate crystals, including ultrafast laser direct writing of optical waveguides, nonlinear photonic crystal preparation, ferroelectric domain manipulation, and multidimensional data storage. Finally, we presented a perspective on the prospects of ultrafast-laser-empowered lithium niobate photonics.

Key words ultrafast laser; laser induction; lithium niobate; photonic structures

1 引言

后摩尔时代,以光子为主要载体的新一代信息高速传输处理策略在全球范围内受到广泛关注,并引发了人们对集成光子学的研究热潮。目前,用于构建集成光子器件的基础材料主要为能够有效约束和传输光波的无机电介质或聚合物,包括各类玻璃、晶体、光刻胶等^[1-3]。其中,铌酸锂晶体(LN)在透明窗口、非线性

光学、电光、声光、热光效应和调制速度等方面表现出显著的综合优势,具有优异的物理化学稳定性,且容易进行离子掺杂,为各种先进光电器件和大规模片上光子集成提供了重要平台,被誉为光量子时代的“光学硅”^[4-7]。为了将LN应用于光子器件构建,人们相继开发了化学刻蚀^[8]、离子注入^[9]、离子束加工^[10]、化学气相沉积^[11]等加工手段,以实现在表面或近表面区域的微纳光子结构制备。未来,要实现更高层次的片上光子集

收稿日期: 2023-12-14; 修回日期: 2023-12-21; 录用日期: 2023-12-22; 网络首发日期: 2023-12-29

基金项目: 国家重点研发计划(2021YFB2802001)、国家自然科学基金(12304349)、国家资助博士后研究人员计划(GZB20230628)

通信作者: *zhangbob@zju.edu.cn; **qjr@zju.edu.cn

成,就必须有效利用基质的纵向空间,将材料修饰由二维表面扩展到三维空间,实现微纳光子结构的真三维加工。然而,由于 LN 固有的光学特性和高损伤阈值,传统光刻工艺很难在 LN 内部进行有效的三维微纳加工。

超快激光是 20 世纪最重要的科技突破之一,其具有脉冲持续时间极短、峰值功率极高的特性,经过聚焦后能够在透明电介质内部激发非线性光吸收,从而实现高精度的空间选择性材料修饰^[12-16]。一般而言, LN 对超快激光具有良好的透明性,这允许将超快激光聚焦到其内部的任意位置并在焦点区域激发光场与材料的非线性相互作用,从而利用纵向空间维度实现更加复杂的集成光学系统。在过去 10 年里,人们对超快激光在 LN 内部诱导的局部材料改性进行了大量系统性的研究,不仅实现了经典光子器件的高质量制备,还发现了一批全新的超快激光修饰机制和微纳光子结构^[17-19],为实现更高密度、更复杂的片上三维光子集成提供了全新思路。在这一背景下,本文总结了超快激光在 LN 内部诱导微纳光子结构的基本原理和类型,重点介绍了近年来国内外研究者取得的最新进展,讨论了不同技术方案当前存在的问题和面临的挑战,最后对其在信息时代的发展前景进行展望。

2 超快激光在 LN 内部选择性修饰的基本原理及类型

超快激光在 LN 内部诱导的局部选择性修饰过程与大多数无机透明电介质类似,本质上是基于强场-物质相互作用原理,其核心机制包括非线性光吸收、能量传递和物质改性。当超快激光脉冲辐照材料时,价带电子可以通过多光子电离、隧穿效应、雪崩电离等多种非线性过程被激发到导带,所激发的电子随后将其能量传递给周围的晶格,引起辐照区域的物质结构或化学组成变化,使材料在光学、电学和声学等方面呈现新的性质^[20-24]。值得注意的是,在超快激光与物质相互作用过程中,能量的激发和传递过程可能导致辐照区物理化学性质发生瞬态变化,如介电、透射、散射、吸收和非线性光学特性^[25-26],这会影响辐照区与后续入射脉冲的相互作用。同时,超快激光与 LN 的相互作用还受到超快激光参数(如脉冲能量、重复频率、脉冲宽度等)和材料特性(如晶轴取向、晶体缺陷等)的影响,涉及诸多高度复杂的物理化学过程。迄今为止,超快激光在 LN 内部诱导材料改性的物理机制远未得到完全澄清。即便如此,人们已经通过调控超快激光加工工艺参数在 LN 内部获得了多种不同类型的修饰,其中典型的例子包括折射率变化^[27]、内部空腔^[28]、局部非晶化^[29]、铁电畴反转^[30]等,这为制备更复杂的微纳光子器件和光学系统奠定了基础。

2.1 超快激光诱导折射率变化

超快激光诱导 LN 局部折射率变化是研究最多、最普遍的修饰类型之一^[31-33],可用于形成光波导结构,从而在 LN 内部三维空间中有效约束和调制光的传

播,在制造大规模集成光路系统方面有良好的应用前景。一般而言,根据辐照区域超快激光强度和透明电介质光损伤阈值的相对关系,可以通过两种方式诱导局部折射率变化。在低强度激光照射下,可以直接在焦点区域诱导正折射率变化(Type-I 修饰),而在高强度激光照射下,超快激光会诱导焦点区域发生局部晶格膨胀,从而在辐照区域诱导负折射率变化(Type-II 修饰)^[31, 34]。对于 Type-I 修饰,其优势在于只需设计扫描路径即可直接写入具有各种几何形状的三维光波导结构,如光分束器、定向耦合器、波导阵列等^[35-36],具有工艺简单、制造过程灵活的特点,为直接制造三维光子器件提供了一种极为便捷的方法[图 1(a)]。然而,这种机制诱导的折射率变化在导波时具有显著的偏振依赖性,且由于修饰区与正折射率变化区重叠,在诱导折射率变化的同时会引入晶格损伤,这可能削弱光子器件的光学性能,如非线性和电光效应^[37],难以充分利用 LN 基质的优异特性。此外,由 Type-I 修饰产生的折射率变化的热稳定性也较差^[31, 38],不利于构建高鲁棒性的微纳光子器件。对于 Type-II 修饰,其本身是高强度超快激光诱导的局部晶格膨胀,表现为负折射率变化,但在辐照区周围存在由晶格膨胀导致的应力区,具有更高的折射率^[31]。利用这一特性,通过诱导两个平行的 Type-II 修饰区,并合理设计间距,则可以在它们中间形成良好的正折射率变化[图 1(b)],即双线结构^[34, 39]。与基于 Type-I 修饰的单线结构相比,Type-II 修饰能够在双线结构中产生更高的正折射率变化(Type-I 单线结构的折射率变化 $\Delta n < 10^{-3}$, Type-II 双线结构的 $\Delta n > 5 \times 10^{-3}$)^[34, 40],具有更好的折射率可控性。由于修饰区和正折射率变化区不重叠,该机制能够有效保留正折射率变化区域 LN 基质的光电特性,所生成的光子结构在热稳定性方面亦具有相当大的优势^[40]。然而,这种双线策略也存在一些问题。首先,双线结构芯部尺寸受到限制($< 20 \mu\text{m}$),因此无法有效约束长波;其次,双线结构像单线结构一样受到偏振相关性的影响,这使得双线结构难以用于实现一些非线性光子器件的灵活制备,如非线性频率转换器。

为了解决这些问题,人们在 Type-II 修饰的基础上,进一步提出了凹陷包层结构^[41],这种结构由许多低折射率扫描线包围而成,形成准封闭截面[图 1(c)]。这些扫描线具有极小的间距(几微米),能构造出准连续的低折射率区,实现对光波的约束。所形成的导波区域与修饰区同样相互不重叠,因此能够继承双线结构的大部分优点。同时,凹陷包层结构的芯径灵活可调,能够实现从单模到高度多模,覆盖可见到中红外波段的光引导。值得注意的是,凹陷包层结构在横截面上表现出独特的二维光引导,对横向电偏振(TE)模式和横向磁偏振(TM)模式都显示出低传输损耗^[42],这使得其可以在双折射相位匹配中同时引导基频光和倍频光,从而用于片上频率转换^[43],在构建非线性微纳光

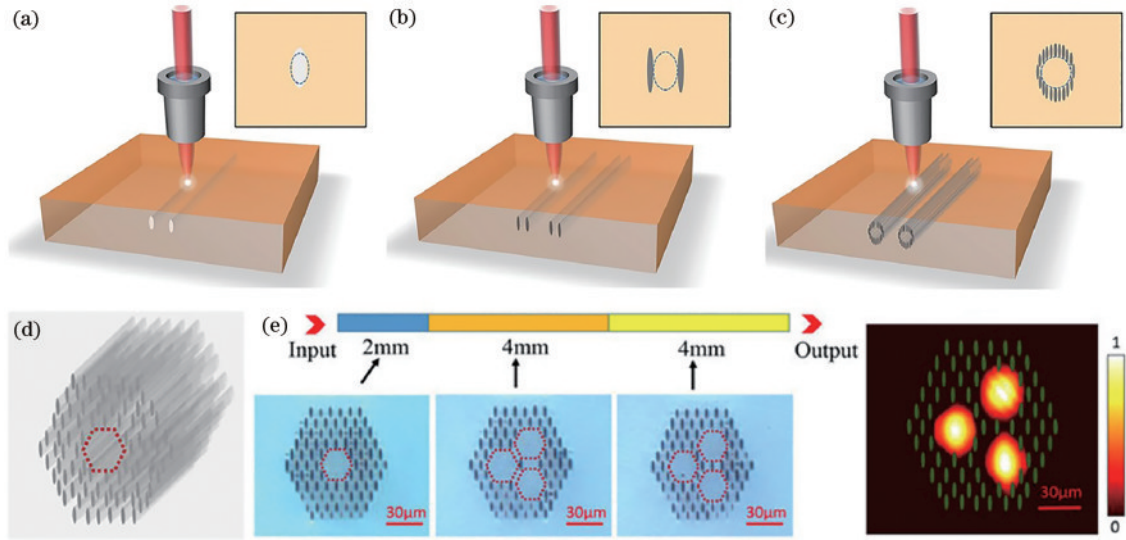


图 1 超快激光在 LN 内部诱导折射率变化的基本模式^[31-32]。(a)基于 Type-I 修饰的单线结构；(b)基于 Type-II 修饰的双线结构；(c)凹陷包层结构；(d)光子晶格包层结构；(e)由光子晶格构成的 1×3 分束器
 Fig. 1 Fundamental modes of ultrafast laser induced refractive index change in LN^[31-32]. (a) Single-line structure based on Type-I modification; (b) double-line structure based on Type-II modification; (c) depressed-cladding structure; (d) optical-lattice cladding structure; (e) 1×3 splitter made of optical-lattice cladding structures

子器件方面有巨大的应用潜力。随着研究的深入,更多超快激光局部调控 LN 折射率的方案被提出,例如通过诱导周期性排布的低折射率扫描线阵列,可以制备光子晶格包层结构[图 1(d)],从而实现更灵活的光引导和光操控[图 1(e)],极大提升了人们在 LN 内部按需定制波导类光子结构的能力^[32]。

从单线结构到光子晶格,越来越复杂的修饰区逐渐成为超快激光加工的挑战。除单线结构外,其他方案的正折射率调制区与激光修饰区域均不重叠,因此在制造复杂光子结构时通常需要对扫描线进行特殊设计,这容易导致粗糙度增大,从而引起较大的散射损耗,尤其是在制造具有更高集成度的三维弯曲、分支、耦合导波结构方面,还需要进行更多研究来确定加工质量和加工效率的最佳平衡点。

2.2 超快激光诱导空腔结构

当超快激光束在透明电介质内部紧密聚焦时,多

光子吸收会激发高度局域化的等离子体,等离子体在晶格中的快速扩散可能引发微爆炸,将材料从焦点中心喷射出来,在晶体内部形成由致密区包裹的空腔结构[图 2(a)]^[44-45]。2005 年,Deshpande 等^[46]通过使用扫描电子显微镜(SEM)、聚焦离子束切片(FIB)、透射电子显微镜(TEM)和拉曼光谱等手段系统性研究了超快激光在 LN 内部诱导的空腔结构,发现其与超快激光在 LN 表面诱导的修饰存在显著区别[图 2(b)]。实验结果表明, LN 内部空腔结构是多种机制协同作用的产物,包括局部爆炸熔化、快速淬火和非晶化等。拉曼光谱的研究结果表明,辐照区的结晶度有所下降。通过 TEM 观察,可以看到空腔被非晶化层和晶格缺陷层包裹[图 2(c)]。俄歇电子能谱和电子色散光谱(EDS)显示,在非晶层中观察到明显的氧缺失,而空腔与非晶层的界面处氧浓度较高,表明空腔形成过程中存在氧释放和元素偏析。这些结果提供

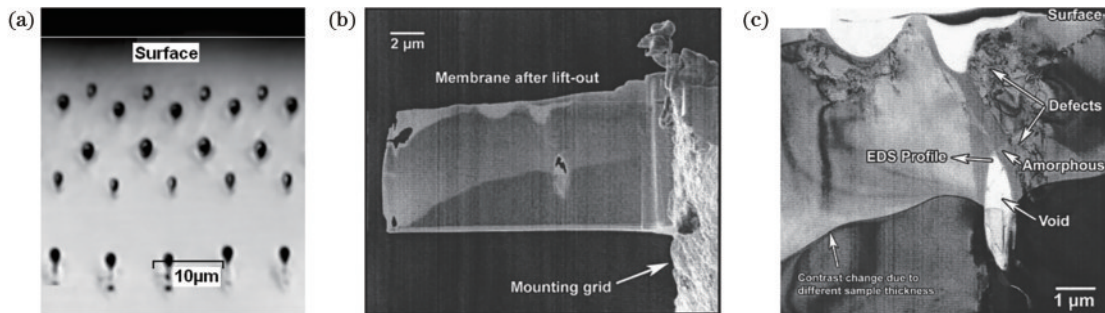


图 2 超快激光在 LN 内诱导的空腔结构^[44-45]。(a)空腔结构光学照片；(b)空腔结构 FIB 切片的 SEM 图像；(c)空腔结构的明场 TEM 图像
 Fig. 2 Ultrafast laser-induced void structures in LN^[44-45]. (a) Optical image of void structures; (b) SEM image of a FIB-slice of a void structure; (c) bright-field TEM image of a void structure

了超快激光诱导空腔结构过程中发生的物理和形态变化的直接观察证据,有助于深入理解空腔形成的机制。这种修饰类型具有以下几个优势:1)它能够在 LN 内构建巨大的折射率差,这是传统 Type-I 和 Type-II 修饰所无法实现的,因此可以被用来实现全无机介质光子晶体和三维光存储^[47-48];2)利用空间光调制技术设计特殊激光束,如贝塞尔光束,还可以实现对内部空腔结构的操控,诱导微爆炸使材料从表面喷出,这可以被用于生成高长径比的孔洞^[49];3)该机制可以与液体辅助加工、化学刻蚀、热处理等工艺相结合^[50-52],获得较高的表面质量,从而用于制造更加精密的微纳光子器件。

值得注意的是, LN 是一种具有高折射率的非线性双折射晶体,因此在超快激光微加工过程中光焦点会发生畸变^[53],这需要通过一系列光束整形措施进行补偿^[54]。此外,超快激光诱导空腔结构的微加工涉及 LN 的破坏性修饰,自由电子等离子体将其能量转移到晶格时发生的各种复杂强场-物质相互作用物理机制和动力学过程仍不完全清楚,未来需要进一步的理论和实验研究予以阐明。

2.3 超快激光诱导非晶化

在超快激光诱导 LN 内部空腔结构的研究中,人们已经直接观察到局部非晶化现象^[44, 55-56]。原则上,通过精细调控激光参数,超快激光能够在 LN 内部形成完全

由非晶相填充的修饰区。2009年,Ródenas等^[55]通过超快激光在稀土掺杂 LN 中诱导了由非晶相构成的纳米级分辨率的低折射率体素[图 3(a)],并表征了其结构特征[图 3(b)]。在此基础上,通过将非晶态体素在空间上周期性排布得到了三维 LN 光子晶体[图 3(c)],并利用其光子带隙实现了对 LN 中稀土离子自发发射(SE)调控,这项工作展示了非晶化结构在 LN 内部进行光调制的巨大潜力。传统上,超快激光诱导和操控局部非晶化需要多脉冲相互作用,这无疑限制了加工效率的提升。2023年,Wang等^[17]发现一种全新的超快激光脉冲内耦合加工机制,该机制能够以单个低能量脉冲诱导 LN 非晶相。具体而言,由于晶体具有双折射特性,单个入射的超快激光脉冲会在 LN 内部自发分为 o 光脉冲和 e 光脉冲。其中,e 光脉冲在 LN 中的传播速度高于 o 光脉冲,会先到达焦点处,对聚焦区域进行预修饰,该过程不会产生非晶化,但会在辐照区产生大量活性缺陷[图 3(d)],这就极大提升了材料对随后到达的 o 光脉冲的非线性吸收系数(提升可达 10 倍以上),从而以极低的脉冲能量诱导 LN 非晶化[图 3(e)]。实验表明,仅需脉冲能量为 30 nJ 的单个超快激光脉冲即可诱导出非晶化结构。这种机制的优势在于 o 光脉冲和 e 光脉冲的协同修饰作用是在 LN 内自发激活的,无需任何外部脉冲操控,真正实现了非晶化体素的单脉冲诱导,因此可以通过空间光调制器(SLM)进一步将单个高能量脉冲分

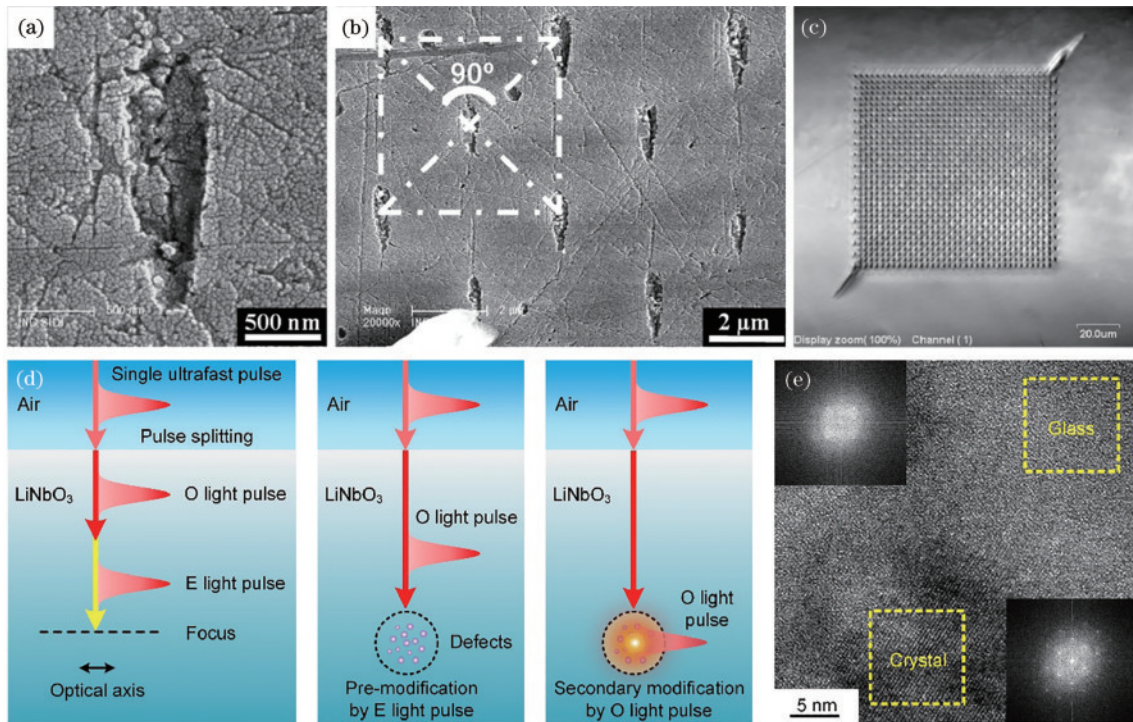


图 3 超快激光在 LN 内诱导的非晶化结构^[17, 55]。(a)经过腐蚀的非晶化区域的 SEM 图像;(b)非晶化体素阵列 SEM 图像;(c)非晶化体素构成的光子晶体结构;(d)单脉冲超快激光诱导 LN 非晶化原理示意图;(e)非晶化区域的 TEM 图像和选区电子衍射图像
Fig. 3 Ultrafast laser-induced amorphous structures in LN^[17, 55]. (a) SEM image of etched amorphous region; (b) SEM image of amorphous voxel array; (c) photonic crystal structure made of amorphous voxels; (d) schematic of single-pulse ultrafast laser-induced LN amorphization mechanism; (e) TEM image and selected area electron diffraction pattern of amorphous region

成多个子脉冲,从而成倍提高非晶化加工效率,在超高速光学信息写入方面有着显著的优势。

超快激光诱导的非晶化修饰能够选择性擦除 LN 晶格结构,使辐照区域完全失去原有的光学特性[如 $\chi(2)$ 的擦除]^[29],并具有新的物理化学性质(如各向同性),同时仍保留较好的透光能力。值得注意的是,超快激光直写技术灵活的真三维加工能力,使得局部非晶化修饰可以在 LN 内部空间任意排布,这允许对 LN 本身的非线性、双折射等效应进行人为调控,将人工光子结构与基质材料的优异特性有机结合,从而实现前所未有的光电器件,这将在未来激发更多开创性的工作。

2.4 超快激光诱导畴反转

在三维空间中实现灵活可控的非线性晶体铁电畴反转对于构建基于准相位匹配(QPM)的高效频率转换光电系统具有重要意义^[57-60]。长期以来,畴反转的产生主要依赖于电场极化策略,而电场极化适用的结构普遍局限在二维表面,并且分辨率仅为微米级,因此无法用于构建具有灵活几何形状的高精度微纳光子器件或系

统。相比之下,光场能够在透明电介质内部,以更高的分辨率(达到衍射极限)进行畴反转诱导,这是全光极化(AOP)策略近年来得到快速发展的重要原因。虽然早期 AOP 使用聚焦紫外超快激光束诱导矫顽场或热电场调制^[61],但是铁电材料对紫外光强烈的线性吸收使得畴反转尺寸仅限于亚微米级。后续的研究表明,由于铁电体在近红外波段普遍具有良好的透明性,近红外超快激光 AOP 在畴操控方面更有前景^[62-63],尤其是利用近红外超快激光在 LN 内部按需诱导铁电畴反转已经成为研究热点^[64]。在这一过程中,聚焦近红外超快激光通过多光子吸收引起材料局部加热,使得超快激光诱导的内部电场能够超过焦点处被降低的矫顽场,从而引发局部畴反转。通过适当的热处理,能够在 LN 内部制造超大长径比的畴反转结构^[65],为进一步在 LN 内部灵活定制三维畴反转结构奠定了基础。2022 年, Xu 等^[57]通过进一步系统性优化近红外激光参数,证明了通过调控激光写入方向可以在 LN 中实现 $\chi(2)$ 反转和 $\chi(2)$ 擦除,这种机制被认为是激光诱导的不同方向的热电场分量与 LN 基质及畴结构相互作用的结果[图 4(a)~(c)]。具体而

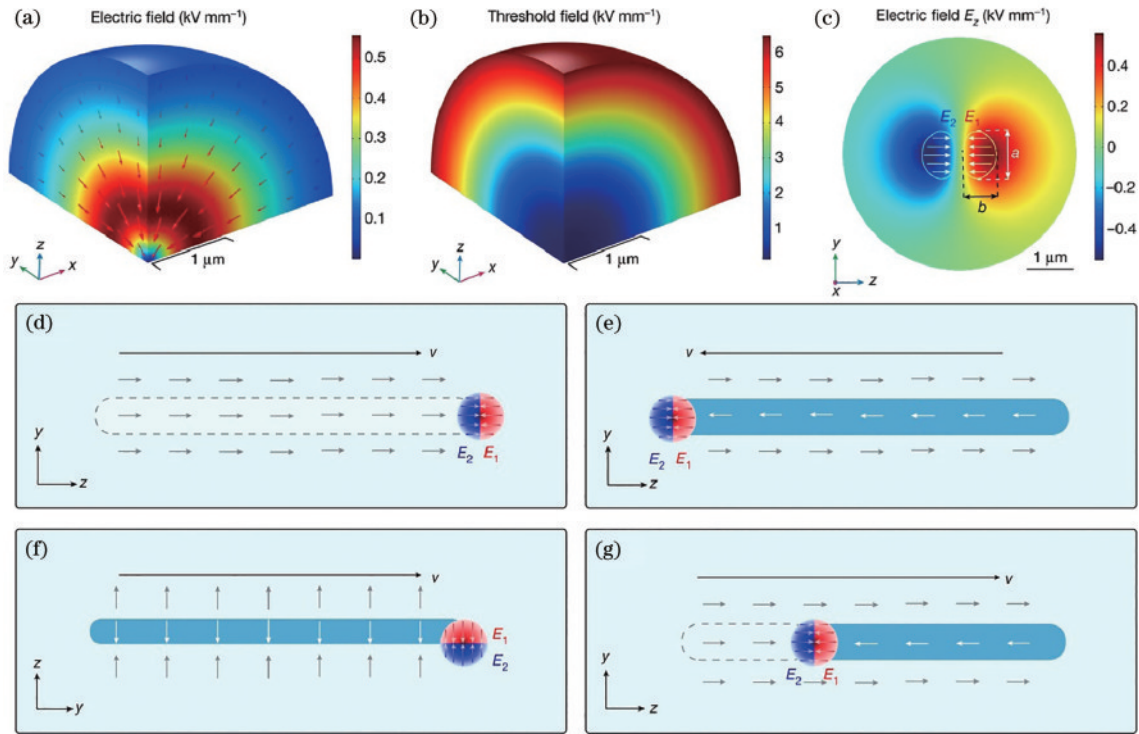


图 4 超快激光在 LN 内部诱导畴反转和擦除原理^[57]。(a)高斯激光束激发的热电场;(b) LN 畴反转的阈值电场;(c)激发热电场的 Z 方向分量;(d)当激光沿 LN 自发极化方向(+Z 方向)扫描时, E_1 诱导的畴反转会被 E_2 擦除,最终不会诱导畴结构;(e)当激光沿 LN 自发极化的反方向(-Z 方向)扫描时,会诱导畴结构;(f)当激光沿 +Y 或 -Y 方向扫描时,可以部分诱导畴结构;(g)通过沿 LN 自发极化方向(+Z 方向)扫描的激光擦除已经诱导的畴结构

Fig. 4 Mechanism of ultrafast laser-induced domain inversion/erasure^[57]. (a) Simulated thermoelectric field excited by a Gaussian laser beam; (b) threshold electric field for LN domain inversion; (c) Z-component of the excited thermoelectric field; (d) when the laser scans along +Z direction, the domain inversion induced by E_1 will be erased by E_2 , and thus no domain structure will be induced; (e) when the laser scans along the -Z direction, domain structure will be induced; (f) when the laser scans along the +Y/-Y direction, domain structure can be partially induced; (g) erasing the induced domain structure by a laser scanning along +Z direction

言:当激光沿 LN 自发极化方向(+Z 方向)扫描时,不能诱导畴反转[图 4(d)];当激光束沿着 LN 的 -Z 方向扫描时,可以诱导畴反转结构[图 4(e)]。值得注意的是,激光沿着 +Y 或 -Y 方向扫描可以部分诱导畴反转[图 4(f)],在不调整激光参数的情况下,沿 +Z 方向扫描可以有效擦除已经反转的畴结构[图 4(g)],这种方法允许制造远超近红外激光衍射极限的纳米级任

意 3D 畴结构[图 5(a)]。例如,通过将激光擦除方向调整为与 -Z 方向成一定角度,可以连续改变所诱导的铁电畴的线宽,从而实现宽度仅 30 nm 的超精细畴结构[图 5(b)]。这项工作实现了 LN 内部纳米级三维畴结构的按需 AOP 诱导,为开发面向先进非线性光学和光电子应用的三维集成纳米光子器件开辟了新的可能性。

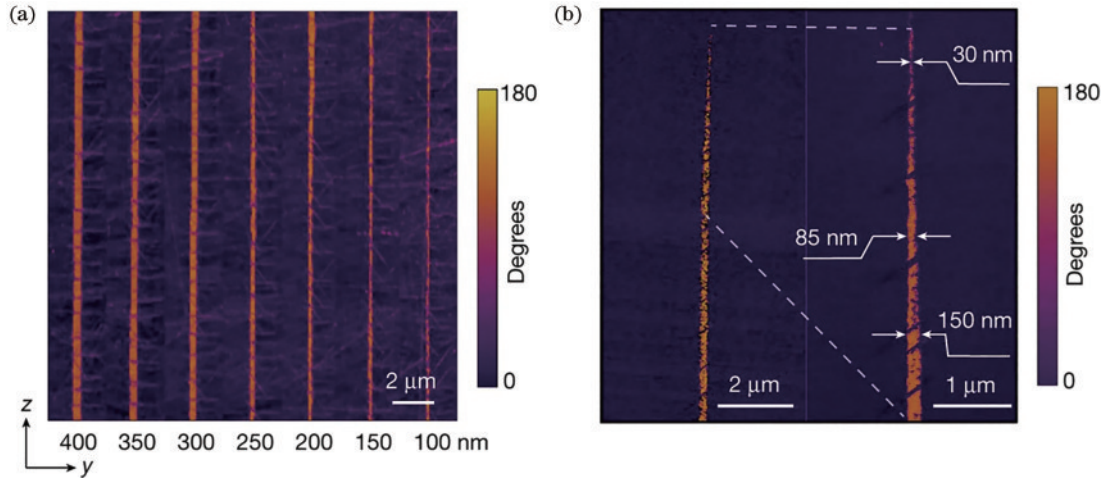


图 5 超快激光在 LN 中诱导的纳米级畴结构^[57]。(a)具有不同线宽的畴;(b)通过激光擦除制备的具有 30 nm 线宽的畴尖

Fig. 5 Ultrafast laser-induced nanoscale domain structures in LN^[57]. (a) Domain structures with different widths; (b) a domain tip of 30 nm width fabricated by applying laser erasure

综上所述,利用近红外超快激光 AOP 诱导 LN 畴反转可以获得更高的分辨率和自由度,实现对铁电材料畴结构的多维度精确控制。通过规划激光扫描路径,可以实现不同方向和形状的畴结构,还可以选择性擦除已经诱导的畴反转,实现纳米级畴结构制备,这无疑为定制各种非线性材料提供了强有力的工具。作为一种新兴的技术,未来仍需要进一步提升畴结构的形貌规整度、加工效率,并探索与成熟光电系统一体化集成的能力,从而最大限度地挖掘超快激光纳米畴工程的应用潜力。

3 超快激光在 LN 内部制备光子器件

超快激光在 LN 内部诱导的一系列材料修饰,提供了超越二维表面的空间自由度,而基于非线性吸收的加工原理能够有效提高内部微结构的制造精度。重要的是,这些内部修饰具有多样性,允许在三维空间中对 LN 的原始光电特性进行二次调制,从而实现前所未有的光学性能。尤其是近年来,随着更多强场-物质相互作用新现象、新机理陆续被发现,超快激光在 LN 内部制备微纳光子器件的研究也逐渐走上快车道,呈现出百花齐放的趋势。本节将简要介绍超快激光在 LN 构建的经典光子器件,并重点关注新出现的开创性工作。

3.1 波导类光子器件

超快激光诱导的局部折射率变化,使得在 LN 内

部的三维空间中有效约束和引导光波成为可能,结合激光直写技术高度灵活的加工能力,可以制备各种波导类光子结构,如单线波导、双线波导、凹陷包层波导等,从而在三维空间实现各种典型的光学操控,包括分束器^[66-67]、耦合器^[68-69]、电光调制器^[70]、布拉格光栅^[71]等。在此基础上,通过合理规划和设计这些基础结构在 LN 中的位置关系,充分利用 LN 的优异特性,或者与成熟的 LN 光电器件集成,还可以构建更复杂的功能化光子器件。

Burghoff 等^[72]利用超快激光在 X 切 LN 内部制备了基于 Type-II 型修饰的双线波导,并利用 LN 双折射相位匹配实现了 1064 nm 激光的高效倍频。在 9.3 mm 长的样品中,转换效率可达 49%。这项研究观察并讨论了不同激光参数下不同类型的改性,展现了该结构对 LN 非线性材料特性的高效利用。Kroesen 等^[73]通过在 LN 中诱导不同类型的材料修饰实现了混合光子器件的设计[图 6(a)]。具体而言,利用 Type-II 型修饰构建了凹陷包层波导,并通过多次扫描 Type-I 型修饰在波导内部进一步构建了基于周期性折射率调制的布拉格光栅[图 6(b)~(d)],这种混合设计在实验上表现出低损耗、偏振对称光引导、良好的模式保真度和通信波段的可调谐窄带反射,保持了对 LN 电光系数的有效利用,充分展示了通过超快激光诱导不同类型修饰来实现光子集成并充分利用介质优异光学特性的巨大潜力。2022 年,Zhang 等^[74]通过超快激光在周期性

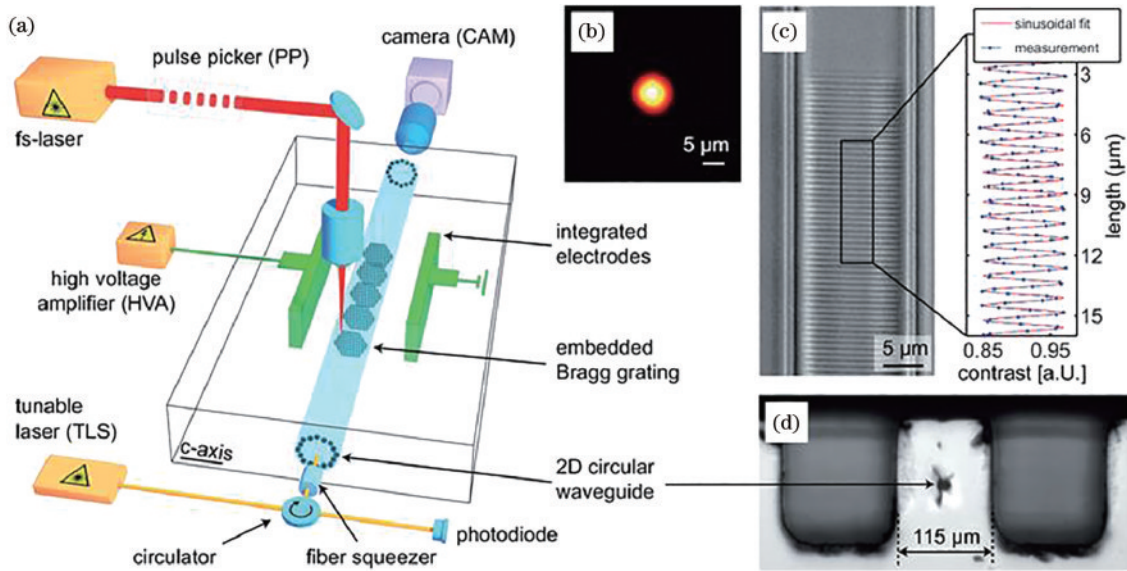


图 6 由不同修饰构成的混合光子器件^[73]。(a)LN 内部直接集成布拉格光栅波导示意图；(b)波导中的非寻常偏振模式；(c)周期为 704 nm 的布拉格光栅的俯视图；(d)带集成电极的布拉格光栅波导的横截面
 Fig. 6 Hybrid photonic devices constructed from different modifications^[73]. (a) Direct integration of waveguide and embedded Bragg gratings in LN; (b) extraordinary polarized mode in the waveguide; (c) top view of Bragg grating with a period of 704 nm; (d) cross section of a Bragg grating waveguide with integrated electrodes

极化铌酸锂 (PPLN) 内部制备了凹陷包层波导 [图 7(a)], 并采用三阶 QPM 实现了 1064 nm 激光的二次谐波 (SHG) 产生。实验表明, 在最佳 QPM 温度 (约 94.9 °C) 下, 可以获得约 0.075% 的频率转换效率。此

外, 可以通过改变波导的横截面来操控倍频信号的模式分布 [图 7(b)~(d)]。这项作为超快激光诱导 LN 微纳光子结构与成熟 LN 器件有机结合提供了新思路。

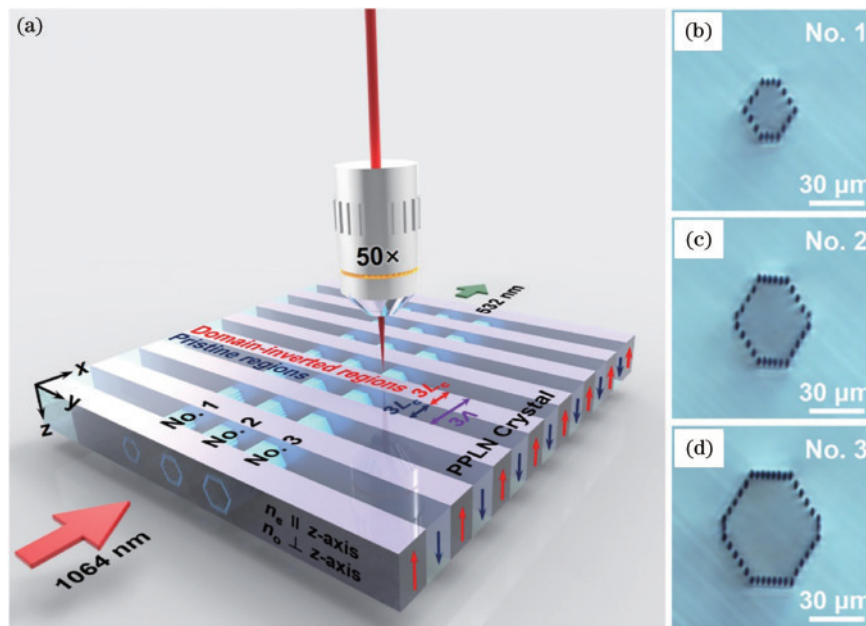


图 7 超快激光在 PPLN 内制备凹陷包层波导^[74]。(a)加工方案示意图；(b)~(d)写入的具有不同截面尺寸的凹陷包层波导
 Fig. 7 Ultrafast laser fabrication of depressed cladding waveguides in PPLN^[74]. (a) Schematic of processing scheme; (b)~(d) written depressed cladding waveguides with different cross-section sizes

除了器件开发, 人们在优化 LN 内部经典导波结构方面也取得了进展。例如, 凹陷包层波导具有保留基质非线性特性以及引导水平和垂直偏振模式等优点, 但制造效率受到限制, 并且很难通过倏逝场重叠耦

合在不同凹陷包层波导中传播的模式。为此, Zhang 等^[75]利用 SLM 多焦点直写演示了仅通过单次扫描制备凹陷包层波导的方法, 在 LN 内部构建了 2×2 定向光耦合器, 并在耦合器两侧集成了微电极以操控光耦

合。所制造的器件对 1550 nm 的两个正交偏振表现出良好的单模引导,通过对微电极施加电压,还成功实现了分光比的主动调控,为最大限度发挥 LN 内部波导类光子器件的优势性能奠定了基础。

超快激光在 LN 中诱导的波导类光子器件具有极高的灵活性和可集成性,通过设计其结构特征和空间形态,并与内部嵌入或表面涂覆的功能材料耦合,未来可能会出现更多新颖的功能器件,在非线性光学、光传感、光通信等领域有着广阔的应用前景。目前,超快激光在 LN 内制备的波导类器件大多为单一和简单的基础性元件,实现复杂大规模三维集成光路系统的构建仍然具有挑战性,未来需要更多涉及机理和工艺的深入研究。

3.2 非线性光子晶体

非线性光子晶体(NPC)在频率转换、光束整形和空间光调制等方面发挥着至关重要的作用^[76-78]。LN 材料因具有极其优异的非线性光学特性,近年来已成为

开展 NPC 研究和工程应用的重要平台。例如,用于高效产生 SHG 的 PPLN 就是一种典型的 NPC^[79]。长期以来,在 LN 内部自由构建高精度定制化 NPC 都被认为是一个巨大的挑战。2015 年,Chen 等^[63]演示了由红外超快激光在 LN 内部诱导的铁电畴反转。实验表明,畴反转过程可以仅通过紧聚焦超快激光来实现,而无需施加任何外部电场,是一种典型的 AOP 过程。随后,他们进一步利用这种方法在 LN 波导中制备了可用于 QPM 的周期性畴反转结构[图 8(a)~(c)],在 10 mm 的波导长度上获得了 17.45% 的最大转换效率^[30]。由于大多数铁电晶体在红外波段都具有良好的透明性,因此 AOP 方法允许在铁电晶体内部定制铁电畴图案,从而用于制造三维 NPC。除畴反转外,超快激光诱导的非晶化修饰能够选择性擦除 LN 晶格结构,使辐照区失去原有的光学特性,这允许对 LN 本身的非线性效应进行调制,通过在 LN 内部诱导特定空间排布的非晶化体素,理论上也能构建三维 NPC。

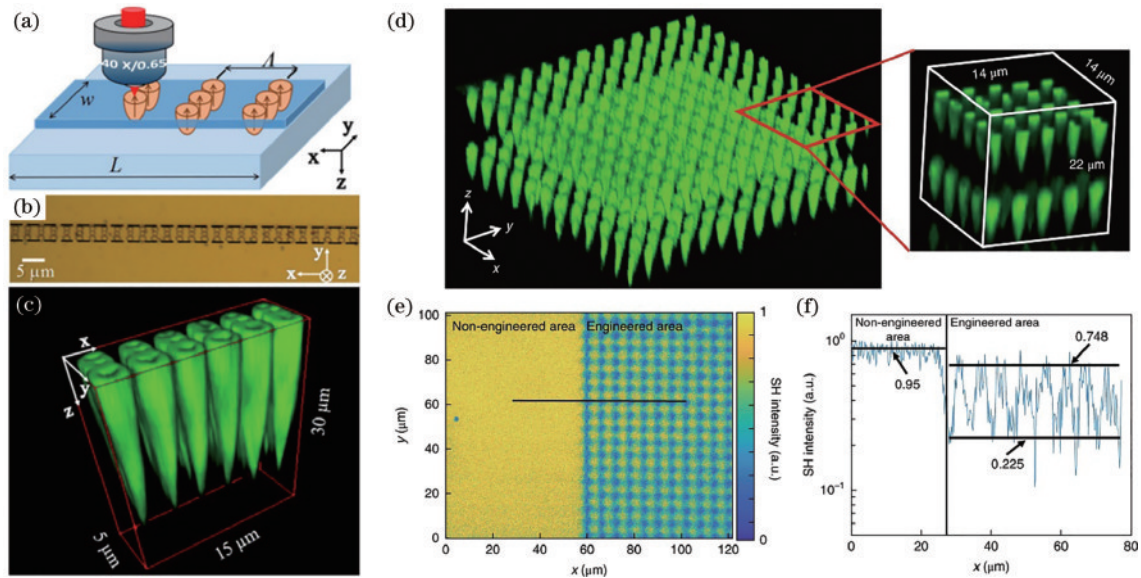


图 8 超快激光在 LN 内制备 NPC^[29-30]。(a)超快激光在 LN 波导中直写铁电畴示意图;(b)二维光极化畴图案的光学显微图像;(c)切连科夫二次谐波显微镜获得的反转畴的三维轮廓;(d)切连科夫二次谐波显微镜获得的三维 NPC 结构图像;(e)XY 平面上 NPC 的二次谐波图像;(f)沿(e)中黑线的二次谐波强度分布,修饰区二次谐波强度远低于非修饰区,证实了激光辐照引起的非线性系数大幅降低

Fig. 8 Ultrafast laser prepared NPC in LN^[29-30]. (a) Schematic of ultrafast laser direct writing ferroelectric domains in an LN waveguide; (b) optical micrograph of two-dimensional patterns of optically poled domain; (c) three-dimensional profile of inverted domains obtained by Cherenkov second-harmonic microscopy; (d) Cherenkov second-harmonic microscopic image of a three-dimensional NPC; (e) second harmonic image of NPC in the XY plane; (f) distribution of second harmonic intensities along the black line in (e), the intensity of the second harmonic in the modified region is much lower than that in the non-modified region, confirming the significant reduction of the nonlinear coefficient caused by laser irradiation

2018 年, Xu 等^[64]和 Wei 等^[30]分别报道了基于畴反转的 NPC 和基于非晶化的 NPC。前者通过超快激光诱导的局部电场超过钛酸钙钡晶体矫顽场,实现 $\chi(2)$ 符号反转,后者则通过选择性地消除 LN 的非线性 $[\chi(2)$ 擦除],使 NPC 具有所需的三维非线性特征,从而用于频率转换[图 8(d)~(f)]。值得注意的是,

激光诱导畴反转和非晶化方法制备 NPC 基于完全不同的物理机制,因此它们的工艺参数和适用的材料体系有很大不同。在此基础上,Wei 等^[30]利用 $\chi(2)$ 擦除方法进一步制备了 LN 内部的三维叉形光栅 NPC [图 9(a)],并用于实现高效非线性光束整形。在这项工作中,叉形光栅 NPC 被周期性排列以同时满足

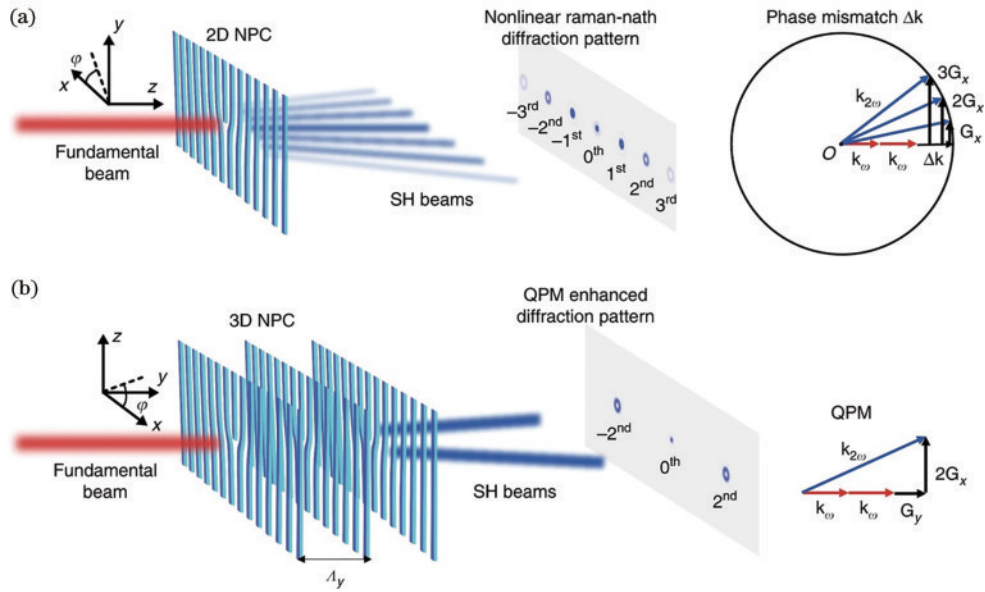


图9 LN内的非线性光束整形器件制备^[80]。(a)二维叉形光栅NPC用于非线性光束整形;(b)三维叉形NPC用于大幅提高非线性光束整形的转换效率

Fig. 9 Fabrication of nonlinear beam shaping devices in LN^[80]. (a) Two-dimensional fork-grating nonlinear NPC for nonlinear beam shaping; (b) three-dimensional fork-grating nonlinear NPC applied to greatly improve conversion efficiency of nonlinear beam shaping

非线性波前整形和准相位匹配要求[图9(b)],在数十微米长的三维NPC中,转换效率相对于传统二维结构提升了两个数量级。这些工作为非线性和集成光学领域的研究和应用提供了一个多功能平台,有望推动光通信^[81]、先进成像^[82]和量子纠缠^[83]等技术的进步。

3.3 多维光存储器件

随着大数据时代的到来,人类社会产生的数据总量呈现爆炸式增长,现有存储技术如磁存储、半导体存储等已经难以满足未来海量数据的长期保存要求^[84-85],因此亟需开发新一代高密度、低能耗和高稳定性的数据存储技术。利用超快激光在全无机透明介质内部诱导微纳光子结构以实现多维信息复用已经被证实为一种极具前景的大数据存储策略,这是因为它能够以极高的数据密度和近乎无限的存储寿命保存光学信息^[86-88]。LN材料在先进光存储方面的贡献始于全息存储^[89-91],该方法利用了LN的光折变特性^[92]。然而,光折变光栅的不稳定性使得LN全息数据在保存或读取过程中容易丢失^[93],在实现超长存储寿命方面受到限制。

对于更稳定的LN介质光存储,早在1995年,Kawata等^[94]便利用氩离子激光器在LN内部演示了折射率数据点阵的写入,并在1998年进一步利用超快激光(782 nm 钛蓝宝石激光器,脉宽为130 fs)在LN中实现类似的数据记录^[95]。2006年,Zhou等^[44]在研究超快激光诱导LN内部微腔时提出,该结构也可用于实现只读的数据存储,相对于折射率变化修饰,空腔结构能够带来更高的折射率对比度,使得数据点更容易被识别。然而,折射率变化和空腔结构光存储

的数据维度都停留在三维,难以实现更高维度的信息复用。折射率点阵存在信噪比低的问题,影响数据读取速度和精确度,而空腔结构的诱导需要较大的脉冲能量^[44],数据点尺寸难以缩小,影响存储密度,形貌质量亦难以保证,这是LN用于多维光存储的瓶颈问题。

2023年,Wang等^[17]基于超快激光诱导的非晶化修饰和LN本身的双折射特性,提出一种高效的多维光存储技术。正如前面所介绍的,超快激光在LN内部会分裂为o光脉冲和e光脉冲,通过利用这两个子脉冲诱导的双重修饰(脉冲内耦合作用),可以大幅提升材料对光能量的非线性吸收,从而以单个低能量脉冲实现LN局部非晶化。对于数据的读取,非晶化选择性擦除了LN晶格结构,使得修饰区具有不同于晶体基质的各向同性光学特性。当使用白光光源照明样品时,o光和e光会在非晶化区出现相位差突变。利用晶体色偏振效应,可以实现LN内部的三维像素级结构色[图10(a)],从而用于光存储。这种信息记录方式具有诸多优势,如数据点的写入只需要单个低能量脉冲,支持极高的数据写入速度。在色偏振模式下,背景信号被有效抑制,数据信号具有极高的信噪比,通过复用数据点的色彩和强度信号,可以在三维空间坐标的基础上实现五维光存储[图10(b)、(c)]。值得注意的是,在晶体基质的保护下,LN中的非晶态数据点阵具有极高的稳定性,可以适应高温、强酸、辐射和机械损伤等恶劣环境。加速老化实验表明,其室温存储寿命可达上万亿年($>10^{13}$ 年),这项工作为实现大规模数据的高密度、低能耗永久存储开辟了全新的技术路线。

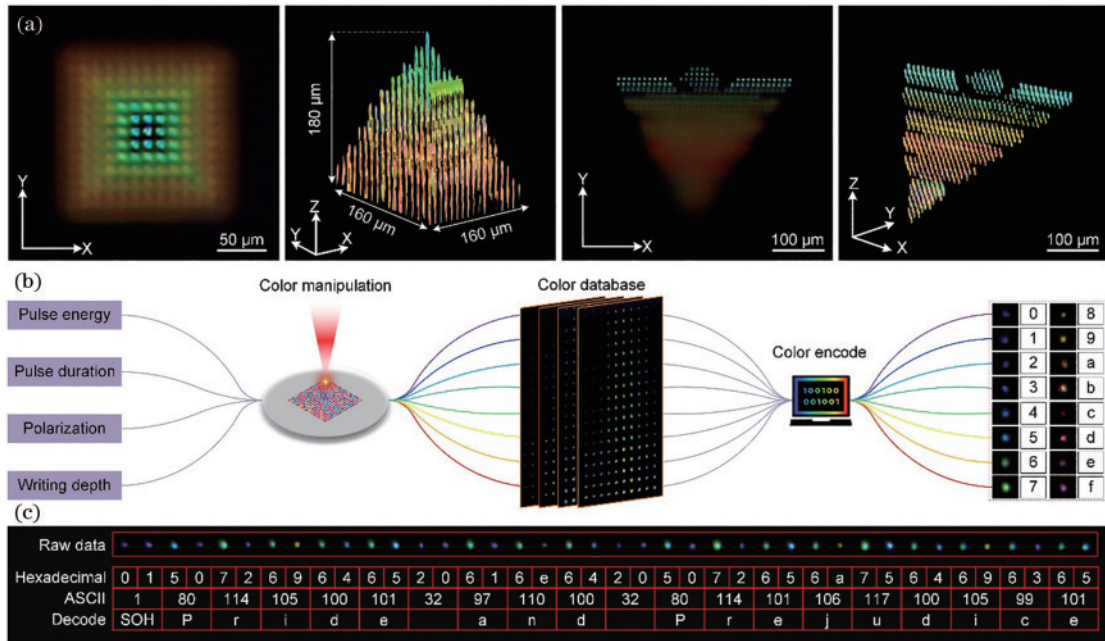


图 10 超快激光诱导非晶化用于多维光存储^[17]。(a)超快激光在LN内部写入的三维像素级结构色;(b)通过复用色彩和强度信号实现五维数据编码;(c)基于图像识别的五维数据读取

Fig. 10 Ultrafast laser-induced amorphization for multi-dimensional optical data storage^[17]. (a) Three-dimensional pixelated structural colors written inside LN by ultrafast laser; (b) five-dimensional data encoding by multiplexing color and intensity signals; (c) five-dimensional data readout by image recognition

4 总结与展望

凭借优异的综合性能, LN材料已成为最重要的光学介质之一, 有望在新一代光子技术的研发浪潮中占据核心地位。利用超快激光在LN内部诱导微纳光子结构为研究强场-物质相互作用、开发先进制造技术提供了极佳的平台, 并催生了一批新现象、新机制和新应用, 为诸多具有挑战性的问题贡献了有竞争力的解决方案, 包括量子技术、大数据存储、先进光调制和通信技术。可以预见, 超快激光在LN内部诱导微纳光子结构将成为强场物理和集成光学领域的研究热点, 并带来更多令人振奋的发现。

本文梳理了超快激光在LN内部诱导微纳光子结构的里程碑事件和最新进展, 重点讨论了该方法在实现各种先进光子器件方面所取得的巨大进步, 这些成就得益于LN优异物理化学性质与超快激光强大加工能力的有机结合。然而, 受限于对超快激光修饰LN底层物理机制的理解和认识, 目前在LN内部诱导的光子结构仍然相对简单, 无论是集成度、复杂度, 还是制造精度, 其与广泛应用的片上LN光子器件相比仍存在较大差距。因此, 未来需要开展大量的基础性研究工作, 了解超快激光诱导LN局部材料性质变化的过程和操控方法, 提升加工质量、效率和分辨率, 从而充分发挥LN内部光子器件的维度优势。近年来快速发展的先进超快动力学表征技术, 如超快摄影^[96]和超快成像技术^[97]将有助于突破这些瓶颈。值得注意的

是, 随着越来越多超快激光与透明介质相互作用的普适性物理机制被发现^[98], 可用于LN内部三维结构化的工具也在增加。例如, 超快激光诱导的自组织过程已经在LN中得到了验证^[99], 这使得高效构建更加复杂的LN基光子结构成为可能, 研究并利用好这些新机制, 将有望激发更多开创性的应用。

综上所述, 超快激光在LN内部诱导微纳光子结构将很快发展成一个广泛且复杂的研究领域。因此, 未来的研究应该是多学科交叉的, 注重与物理、材料、机械工程和计算机科学等的内在联系。积极与前沿跨学科技术相融合, 从而发展出一系列具有普遍意义的新原理、新工艺和新产品, 使得超快激光赋能的LN光子学真正成为下一轮科技革命的推动者, 将是本领域的发展方向。

参 考 文 献

- [1] 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.
- [2] Annadhasan M, Basak S, Chandrasekhar N, et al. Next-generation organic photonics: the emergence of flexible crystal optical waveguides[J]. *Advanced Optical Materials*, 2020, 8(21): 2000959.
- [3] Vazimali M G, Fathpour S. Applications of thin-film lithium niobate in nonlinear integrated photonics[J]. *Advanced Photonics*, 2022, 4(3): 034001.
- [4] Kong Y F, Bo F, Wang W W, et al. Recent progress in lithium niobate: optical damage, defect simulation, and

- on-chip devices[J]. *Advanced Materials*, 2020, 32(3): e1806452.
- [5] Chen G Y, Li N X, Da Ng J, et al. Advances in lithium niobate photonics: development status and perspectives [J]. *Advanced Photonics*, 2022, 4(3): 034003.
- [6] 孙军, 郝永鑫, 张玲, 等. 铌酸锂晶体及其应用概述[J]. *人工晶体学报*, 2020, 49(6): 947-964.
Sun J, Hao Y X, Zhang L, et al. Brief review of lithium niobate crystal and its applications[J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2020, 49(6): 947-964.
- [7] 高博锋, 任梦昕, 郑大怀, 等. 铌酸锂的耄耋之路: 历史与若干进展[J]. *人工晶体学报*, 2021, 50(7): 1183-1199.
Gao B F, Ren M X, Zheng D H, et al. Long-lived lithium niobate: history and progress[J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2021, 50(7): 1183-1199.
- [8] Wu R B, Zhang J H, Yao N, et al. Lithium niobate micro-disk resonators of quality factors above 10^7 [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(17): 4116-4119.
- [9] Chen F, Wang L, Wang X L, et al. Channel waveguide array in Ce-doped potassium sodium strontium Barium niobate crystal fabricated by He^+ ion implantation[J]. *Applied Physics Letters*, 2006, 89(19): 191102.
- [10] Lacour F, Courjal N, Bernal M P, et al. Nanostructuring lithium niobate substrates by focused ion beam milling[J]. *Optical Materials*, 2005, 27(8): 1421-1425.
- [11] Li Z H, Wang R N, Lihachev G, et al. High density lithium niobate photonic integrated circuits[J]. *Nature Communications*, 2023, 14: 4856.
- [12] Zhang B, Wang Z, Tan D Z, et al. Ultrafast laser-induced self-organized nanostructuring in transparent dielectrics: fundamentals and applications[J]. *Photonix*, 2023, 4(1): 24.
- [13] Zhang B, Liu X F, Qiu J R. Single femtosecond laser beam induced nanogratings in transparent media-mechanisms and applications[J]. *Journal of Materiomics*, 2019, 5(1): 1-14.
- [14] Zhang X L, Yu F, Chen Z G, et al. Non-Abelian braiding on photonic chips[J]. *Nature Photonics*, 2022, 16(5): 390-395.
- [15] Xu S, Fan H, Li Z Z, et al. Ultrafast laser-inscribed nanogratings in sapphire for geometric phase elements[J]. *Optics Letters*, 2021, 46(3): 536-539.
- [16] Sun K, Tan D Z, Fang X Y, et al. Three-dimensional direct lithography of stable perovskite nanocrystals in glass[J]. *Science*, 2022, 375(6578): 307-310.
- [17] Wang Z, Zhang B, Wang Z Q, et al. 3D imprinting of voxel-level structural colors in lithium niobate crystal[J]. *Advanced Materials*, 2023, 35(47): 2303256.
- [18] Wang X L, Cao Q, Wang R N, et al. Domain growth driven by a femtosecond laser in lithium niobate crystal [J]. *Optics Letters*, 2023, 48(3): 566-569.
- [19] Imbrock J, Szalek D, Laubrock S, et al. Thermally assisted fabrication of nonlinear photonic structures in lithium niobate with femtosecond laser pulses[J]. *Optics Express*, 2022, 30(22): 39340-39352.
- [20] Osellame R, Cerullo G, Ramponi R. Femtosecond laser micromachining: photonic and microfluidic devices in transparent materials[M]. Berlin: Springer, 2012.
- [21] Tan D Z, Sharafudeen K N, Yue Y Z, et al. Femtosecond laser induced phenomena in transparent solid materials: fundamentals and applications[J]. *Progress in Materials Science*, 2016, 76: 154-228.
- [22] Tan D Z, Zhang B, Qiu J R. Ultrafast laser direct writing in glass: thermal accumulation engineering and applications[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2021, 15(9): 2000455.
- [23] Gattass R R, Mazur E. Femtosecond laser micromachining in transparent materials[J]. *Nature Photonics*, 2008, 2(4): 219-225.
- [24] 张博, 王卓, 孙轲, 等. 超快激光在玻璃内部诱导选择性晶化技术研究进展[J]. *硅酸盐学报*, 2022, 50(4): 1033-1045.
Zhang B, Wang Z, Sun K, et al. Recent research progress on ultrafast laser-induced selective crystallization in glasses[J]. *Journal of the Chinese Ceramic Society*, 2022, 50(4): 1033-1045.
- [25] Garcia-Lechuga M, Siegel J, Hernandez-Rueda J, et al. Imaging the ultrafast Kerr effect, free carrier generation, relaxation and ablation dynamics of lithium niobate irradiated with femtosecond laser pulses[J]. *Journal of Applied Physics*, 2014, 116(11): 113502.
- [26] Zhang B, Tan D Z, Wang Z, et al. Self-organized phase-transition lithography for all-inorganic photonic textures [J]. *Light: Science & Applications*, 2021, 10: 93.
- [27] Gui L, Xu B X, Wu D J, et al. Refractive index change in lithium niobate induced by focused femtosecond laser [J]. *Proceedings of SPIE*, 2004, 5355: 22-32.
- [28] Zhou G Y, Gu M. Anisotropic properties of ultrafast laser-driven microexplosions in lithium niobate crystal[J]. *Applied Physics Letters*, 2005, 87(24): 241107.
- [29] Chen X, Karpinski P, Shvedov V, et al. Quasi-phase matching via femtosecond laser-induced domain inversion in lithium niobate waveguides[J]. *Optics Letters*, 2016, 41(11): 2410-2413.
- [30] Wei D Z, Wang C W, Wang H J, et al. Experimental demonstration of a three-dimensional lithium niobate nonlinear photonic crystal[J]. *Nature Photonics*, 2018, 12(10): 596-600.
- [31] 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.
- [32] Lü J M, Cheng Y Z, de Aldana J R V, et al. Femtosecond laser writing of optical-lattice-like cladding structures for three-dimensional waveguide beam splitters in LiNbO_3 crystal[J]. *Journal of Lightwave Technology*, 2016, 34(15): 3587-3591.
- [33] Gui L, Xu B X, Chong T C. Microstructure in lithium niobate by use of focused femtosecond laser pulses[J]. *IEEE Photonics Technology Letters*, 2004, 16(5): 1337-1339.
- [34] Burghoff J, Nolte S, Tünnermann A. Origins of waveguiding in femtosecond laser-structured LiNbO_3 [J].

- Applied Physics A, 2007, 89(1): 127-132.
- [35] Gross S, Withford M J. Ultrafast-laser-inscribed 3D integrated photonics: challenges and emerging applications[J]. Nanophotonics, 2015, 4(3): 332-352.
- [36] Ams M, Dekker P, Gross S, et al. Fabricating waveguide Bragg gratings (WBGs) in bulk materials using ultrashort laser pulses[J]. Nanophotonics, 2017, 6(5): 743-763.
- [37] Burghoff J, Hartung H, Nolte S, et al. Structural properties of femtosecond laser-induced modifications in LiNbO₃[J]. Applied Physics A, 2007, 86(2): 165-170.
- [38] Osellame R, Lobino M, Chiodo N, et al. Femtosecond laser writing of waveguides in periodically poled lithium niobate preserving the nonlinear coefficient[J]. Applied Physics Letters, 2007, 90(24): 241107.
- [39] Heinrich M, Szameit A, Dreisow F, et al. Evanescent coupling in arrays of type II femtosecond laser-written waveguides in bulk *x*-cut lithium niobate[J]. Applied Physics Letters, 2008, 93(10): 101111.
- [40] Thomas J, Heinrich M, Zeil P, et al. Laser direct writing: enabling monolithic and hybrid integrated solutions on the lithium niobate platform[J]. Physica Status Solidi (a), 2011, 208(2): 276-283.
- [41] He R Y, An Q, Jia Y C, et al. Femtosecond laser micromachining of lithium niobate depressed cladding waveguides[J]. Optical Materials Express, 2013, 3(9): 1378-1384.
- [42] Nguyen H D, Ródenas A, Vázquez de Aldana J R, et al. Low-loss 3D-laser-written mid-infrared LiNbO₃ depressed-index cladding waveguides for both TE and TM polarizations[J]. Optics Express, 2017, 25(4): 3722-3736.
- [43] Zhang B, Li L Q, Wang L, et al. Second harmonic generation in femtosecond laser written lithium niobate waveguides based on birefringent phase matching[J]. Optical Materials, 2020, 107: 110075.
- [44] Zhou G Y, Gu M. Void generation and three-dimensional photonic crystal fabrication in a lithium niobate crystal by use of micro-explosion[C]//Pacific International Conference on Applications of Lasers and Optics, March 23-25, 2010, Melbourne, Australia. New York: Laser Institute of America, 2006.
- [45] Glezer E N, Mazur E. Ultrafast-laser driven micro-explosions in transparent materials[J]. Applied Physics Letters, 1997, 71(7): 882-884.
- [46] Deshpande D C, Malshe A P, Stach E A, et al. Investigation of femtosecond laser assisted nano and microscale modifications in lithium niobate[J]. Journal of Applied Physics, 2005, 97(7): 074316.
- [47] Zhou G Y, Gu M. Fabrication of 3D photonic crystals in lithium niobate by use of femtosecond laser-induced microexplosion[C]//2006 Conference on Lasers and Electro-Optics and 2006 Quantum Electronics and Laser Science Conference, May 21-26, 2006, Long Beach, CA. New York: IEEE Press, 2008.
- [48] Gu M, Jia B H, Li J F, et al. Fabrication of three-dimensional photonic crystals in quantum-dot-based materials[J]. Laser & Photonics Reviews, 2010, 4(3): 414-431.
- [49] 孙伟高, 季凌飞, 郑锦灿, 等. 飞秒贝塞尔光束直写铌酸锂高深径比光子晶体结构[J]. 中国激光, 2022, 49(10): 1002503.
- Sun W G, Ji L F, Zheng J C, et al. High-aspect-ratio photonic-crystal structure of lithium niobate fabricated via femtosecond Bessel beam direct writing[J]. Chinese Journal of Lasers, 2022, 49(10): 1002503.
- [50] 燕超月, 孙盛芝, 刘小峰, 等. 飞秒激光减材法制备透明材料内部三维微纳连通结构研究进展[J]. 激光与光电子学进展, 2023, 60(21): 2100001.
- Yan C Y, Sun S Z, Liu X F, et al. Research progress on preparation of three-dimensional micro-nano connected structures in transparent materials by femtosecond laser material reduction method[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2023, 60(21): 2100001.
- [51] Ródenas A, Gu M, Corrielli G, et al. Three-dimensional femtosecond laser nanolithography of crystals[J]. Nature Photonics, 2019, 13(2): 105-109.
- [52] Lin J T, Xu Y X, Fang Z W, et al. Fabrication of high-Q lithium niobate microresonators using femtosecond laser micromachining[J]. Scientific Reports, 2015, 5: 8072.
- [53] Zhou G Y, Gu M. Direct optical fabrication of three-dimensional photonic crystals in a high refractive index LiNbO₃ crystal[J]. Optics Letters, 2006, 31(18): 2783-2785.
- [54] Cumming B P, Jesacher A, Booth M J, et al. Adaptive aberration compensation for three-dimensional micro-fabrication of photonic crystals in lithium niobate[J]. Optics Express, 2011, 19(10): 9419-9425.
- [55] Ródenas A, Zhou G Y, Jaque D, et al. Rare-earth spontaneous emission control in three-dimensional lithium niobate photonic crystals[J]. Advanced Materials, 2009, 21(34): 3526-3530.
- [56] Stach E A, Radmilovic V, Deshpande D, et al. Nanoscale surface and subsurface defects induced in lithium niobate by a femtosecond laser[J]. Applied Physics Letters, 2003, 83(21): 4420-4422.
- [57] Xu X Y, Wang T X, Chen P C, et al. Femtosecond laser writing of lithium niobate ferroelectric nanodomains [J]. Nature, 2022, 609(7927): 496-501.
- [58] Shur V Y, Akhmatkhanov A R, Baturin I S. Micro- and nano-domain engineering in lithium niobate[J]. Applied Physics Reviews, 2015, 2(4): 040604.
- [59] Sun D H, Zhang Y W, Wang D Z, et al. Microstructure and domain engineering of lithium niobate crystal films for integrated photonic applications[J]. Light: Science & Applications, 2020, 9: 197.
- [60] Hu X P, Zhang Y, Zhu S N. Nonlinear beam shaping in domain engineered ferroelectric crystals[J]. Advanced Materials, 2020, 32(27): e1903775.
- [61] Valdivia C E, Sones C L, Mailis S, et al. Ultrashort-pulse optically-assisted domain engineering in lithium niobate[J]. Ferroelectrics, 2006, 340(1): 75-82.
- [62] Thomas J, Hilbert V, Geiss R, et al. Quasi phase matching in femtosecond pulse volume structured *x*-cut

- lithium niobate[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2013, 7(3): L17-L20.
- [63] Chen X, Karpinski P, Shvedov V, et al. Ferroelectric domain engineering by focused infrared femtosecond pulses[J]. *Applied Physics Letters*, 2015, 107(14): 141102.
- [64] Xu T X, Switkowski K, Chen X, et al. Three-dimensional nonlinear photonic crystal in ferroelectric Barium calcium titanate[J]. *Nature Photonics*, 2018, 12(10): 591-595.
- [65] Imbrock J, Hanafi H, Ayoub M, et al. Local domain inversion in MgO-doped lithium niobate by pyroelectric field-assisted femtosecond laser lithography[J]. *Applied Physics Letters*, 2018, 113(25): 252901.
- [66] Lü J M, Cheng Y Z, Yuan W H, et al. Three-dimensional femtosecond laser fabrication of waveguide beam splitters in LiNbO₃ crystal[J]. *Optical Materials Express*, 2015, 5(6): 1274-1280.
- [67] Ajates J G, Vázquez de Aldana J R, Chen F, et al. Three-dimensional beam-splitting transitions and numerical modelling of direct-laser-written near-infrared LiNbO₃ cladding waveguides[J]. *Optical Materials Express*, 2018, 8(7): 1890-1901.
- [68] Presti D A, Guarepi V, Videla F, et al. Design and implementation of an integrated optical coupler by femtosecond laser written-waveguides in LiNbO₃[J]. *Optics and Lasers in Engineering*, 2020, 126: 105860.
- [69] Lü J M, Li G, Ma Y J, et al. Femtosecond laser writing of low-loss three-dimensional waveguide coupler in LiNbO₃ crystal[J]. *Chinese Optics Letters*, 2023, 21(11): 112201.
- [70] Lin J, Farajollahi S, Fang Z, et al. Electro-optic tuning of a single-frequency ultranarrow linewidth microdisk laser[J]. *Advanced Photonics*, 2022, 4(3): 036001.
- [71] Horn W, Kroesen S, Herrmann J, et al. Electro-optical tunable waveguide Bragg gratings in lithium niobate induced by femtosecond laser writing[J]. *Optics Express*, 2012, 20(24): 26922-26928.
- [72] Burghoff J, Grebing C, Nolte S, et al. Efficient frequency doubling in femtosecond laser-written waveguides in lithium niobate[J]. *Applied Physics Letters*, 2006, 89(8): 081108.
- [73] Kroesen S, Horn W, Imbrock J, et al. Electro-optical tunable waveguide embedded multiscan Bragg gratings in lithium niobate by direct femtosecond laser writing[J]. *Optics Express*, 2014, 22(19): 23339-23348.
- [74] Zhang B, Li L Q, Lu Q M, et al. Frequency doubling in PPLN depressed-cladding waveguides written by femtosecond laser[J]. *Optical Materials*, 2022, 125: 112074.
- [75] Zhang Q, Li M, Xu J, et al. Reconfigurable directional coupler in lithium niobate crystal fabricated by three-dimensional femtosecond laser focal field engineering[J]. *Photonics Research*, 2019, 7(5): 503-507.
- [76] Liu S, Switkowski K, Xu C L, et al. Nonlinear wavefront shaping with optically induced three-dimensional nonlinear photonic crystals[J]. *Nature Communications*, 2019, 10: 3208.
- [77] Zhu B, Liu H G, Chen Y P, et al. High conversion efficiency second-harmonic beam shaping via amplitude-type nonlinear photonic crystals[J]. *Optics Letters*, 2019, 45(1): 220-223.
- [78] Liu H G, Zhao X H, Li H, et al. Dynamic computer-generated nonlinear optical holograms in a non-collinear second-harmonic generation process[J]. *Optics Letters*, 2018, 43(14): 3236-3239.
- [79] Broderick N G R, Ross G W, Offerhaus H L, et al. Hexagonally poled lithium niobate: a two-dimensional nonlinear photonic crystal[J]. *Physical Review Letters*, 2000, 84(19): 4345-4348.
- [80] Wei D Z, Wang C W, Xu X Y, et al. Efficient nonlinear beam shaping in three-dimensional lithium niobate nonlinear photonic crystals[J]. *Nature Communications*, 2019, 10: 4193.
- [81] Li M X, Ling J W, He Y, et al. Lithium niobate photonic-crystal electro-optic modulator[J]. *Nature Communications*, 2020, 11: 4123.
- [82] Zhu B, Liu H G, Liu Y A, et al. Second-harmonic computer-generated holographic imaging through monolithic lithium niobate crystal by femtosecond laser micromachining[J]. *Optics Letters*, 2020, 45(15): 4132-4135.
- [83] Jin H, Xu P, Luo X W, et al. Compact engineering of path-entangled sources from a monolithic quadratic nonlinear photonic crystal[J]. *Physical Review Letters*, 2013, 111(2): 023603.
- [84] Gu M, Zhang Q M, Lamon S. Nanomaterials for optical data storage[J]. *Nature Reviews Materials*, 2016, 1: 16070.
- [85] Gu M, Li X P, Cao Y Y. Optical storage arrays: a perspective for future big data storage[J]. *Light: Science & Applications*, 2014, 3(5): e177.
- [86] 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.
- [87] Shimotsuma Y, Sakakura M, Kazansky P G, et al. Ultrafast manipulation of self-assembled form birefringence in glass[J]. *Advanced Materials*, 2010, 22(36): 4039-4043.
- [88] Wang Z, Zhang B, Tan D Z, et al. Ostensibly perpetual optical data storage in glass with ultra-high stability and tailored photoluminescence[J]. *Opto-Electronic Advances*, 2023, 6(1): 220008.
- [89] Chen F S, LaMacchia J T, Fraser D B. Holographic storage in lithium niobate[J]. *Applied Physics Letters*, 1968, 13(7): 223-225.
- [90] Buse K, Adibi A, Psaltis D. Non-volatile holographic storage in doubly doped lithium niobate crystals[J]. *Nature*, 1998, 393(6686): 665-668.
- [91] Mok F H. Angle-multiplexed storage of 5000 holograms in lithium niobate[J]. *Optics Letters*, 1993, 18(11): 915-917.
- [92] Chen F S. Optically induced change of refractive indices

- in LiNbO₃ and LiTaO₃[J]. *Journal of Applied Physics*, 1969, 40(8): 3389-3396.
- [93] 郑大怀, 王烁琳, 陈俊镔, 等. 铌酸锂晶体: 从全息存储到三维显示[J]. *中国激光*, 2023, 50(18): 1813001.
Zheng D H, Wang S L, Chen J K, et al. Lithium niobate crystals: from holographic storage to 3D display[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2023, 50(18): 1813001.
- [94] Kawata Y, Ueki H, Hashimoto Y, et al. Three-dimensional optical memory with a photorefractive crystal [J]. *Applied Optics*, 1995, 34(20): 4105-4110.
- [95] Kawata Y, Ishitobi H, Kawata S. Use of two-photon absorption in a photorefractive crystal for three-dimensional optical memory[J]. *Optics Letters*, 1998, 23(10): 756-758.
- [96] Gao L, Liang J Y, Li C Y, et al. Single-shot compressed ultrafast photography at one hundred billion frames per second[J]. *Nature*, 2014, 516(7529): 74-77.
- [97] Yang C S, Qi D L, Cao F Y, et al. Single-shot receive-only ultrafast electro-optical deflection imaging[J]. *Physical Review Applied*, 2020, 13(2): 024001.
- [98] Zhang B, Wang Z, Tan D Z, et al. Ultrafast laser inducing continuous periodic crystallization in the glass activated via laser-prepared crystallite-seeds[J]. *Advanced Optical Materials*, 2021, 9(8): 2001962.
- [99] Karpinski P, Shvedov V, Krolikowski W, et al. Laser-writing inside uniaxially birefringent crystals: fine morphology of ultrashort pulse-induced changes in lithium niobate[J]. *Optics Express*, 2016, 24(7): 7456-7476.