飞秒激光诱导自组织纳米光栅偏振散射特性研究

薛 军¹ 杨 勇² 李 晨² 李冬娟²*

1 中国人民武装警察部队工程大学理学院,陕西 西安 710086

(2) 中国科学院西安光学精密机械研究所瞬态光学与光子技术国家重点实验室,陕西西安 710119/

摘要 实验证实飞秒激光在透明材料内部诱导的周期性纳米条纹具有特殊的光学特性。采用时域有限差分方法 (FDTD)分别对单元纳米光栅和纳米光栅阵列的散射特性进行研究,分析结果显示纳米光栅的散射对入射激光的 偏振方向敏感;散射强度与入射激光波长相关,波长越长、散射越弱。对于纳米光栅阵列,平行于纳米光栅的散射 强度比垂直于纳米光栅的散射强度小两万倍。最后从理论上验证了Ⅱ类波导和纳米光栅偏振导光是由纳米光栅 的散射引起的而不是双折射效应。

Research on Polarized Scattering of Self-Organized Nanogratings Induced by Femtosecond Laser

Xue Jun¹ Yang Yong² Li Chen² Li Dongjuan²

 $^{\rm 1}$ School of Natural and Applied Sciences , Engineering University , Armed Police Force ,

Xi'an, Shaanxi 710086, China

² States Key Laboratory of Transient Optics and Photonics, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Xi'an, Shaanxi 710119, China

Abstract Experiments confirm that the femtosecond laser induced periodic nanogratings in a transparent material represents the novel optical properties. The scattering characteristics of nanogratings and nano-grating array are studied in detail by experiments and finite-difference time-domain (FDTD) respectively. Analysis result shows that scattering characteristics of nanogratings are sensitive to the polarization of the incident laser. For arrays of nanogratings, the scattering intensity in the laser polarization perpendicular to the nanograting is 20000 times larger than that in the laser polarization parallel to the nanograting. Morerover, the scattering intensity is dependent on the incident laser wavelength. The longer the wavelength is, the weaker the scattering intensity will be. The simulation results demonstrate that type II waveguide and the light polarized guide mechanism of nanograting are based on scattering characteristics of nanograting instead of birefringence effect theoretically.

Key words laser technique; femtosecond laser; waveguide; nanograting; polarization scattering OCIS codes 320.7090; 230.7370; 220.4241

1 引

飞秒激光与物质相互作用过程中伴随各种复杂的非线性效应,这与飞秒激光的特性有关,也与材料本身的特性有关,这些综合因素会产生复杂而有趣

的飞秒现象。当近红外飞秒激光聚焦在石英玻璃内 部时,在较低的激光能量水平下,会使石英分子结构 体系产生改变,形成各向同性的折射率增加,可以形 成低损耗光波导;当飞秒激光脉冲宽度较宽或者脉

E-mail: xuejunlaoshi@126.com

言

收稿日期: 2013-10-03; 收到修改稿日期: 2013-12-02

基金项目:中国科学院国家外国专家局创新团队国际合作伙伴计划(0283457671)

作者简介: 薛 军(1967—),男,副教授,主要从事大学物理理论与实验教学及光学方面的研究。

^{*} 通信联系人。E-mail: lidongjuan@opt.cn

冲能量较大时,会产生与激光波长和偏振相关的纳 米光栅,由于纳米光栅的双折射效应,它的有效折射 率低于基底材料;当脉冲能量继续增加时,会在石英 内部极小的范围内诱导微爆炸,产生中心空心外围 密度增加的腔型结构。虽然飞秒激光诱导的纳米光 栅的形成机制尚在研究当中,但随着研究的深入,人 们开始逐步了解到更多纳米光栅的结构特征和光学 性质。1999年,Sudrie等^[1]第一次报道了石英玻璃 中较高能量飞秒激光写入的一种轨迹具有双折射特 性;2002年,Mills等^[2]说明了这种双折射可能由垂 2003年,Shimotsuma 等^[3]首次采用透射式扫描电 镜(SEM)观察到纳米光栅的详细结构特征,它由较 低折射率的各向同性窄层和较高折射率各向同性宽 层交替组成,窄层的宽度约为10 nm 左右,折射率 为1.1 左右,宽层的折射率比基质略高,周期为λ/2n (λ为写入激光的波长, n为石英玻璃的折射率); 2006年,Bhardwai 等^[4]借助酸刻蚀,观察到更清晰 的结构,实验还得到了比较准确的双折射大小,依据 纳米光栅的双折射特性,一些有价值的应用也被广 泛尝试,如波导相位延迟片、径向偏振光产生器等。 2009年, Cheng 等^[5]首次观察到纳米光栅的偏振散 射特性;利用偏振散射特性,可以制作低损耗单偏振 波导器件。国内对于光刻纳米技术的机理与应用也 展开了广泛的研究[6-7],然而,对于此类光刻纳米光 栅的偏振散射机理未能明确解释。简单地根据散射 体尺寸判断,纳米光栅小于入射波长,该类散射应该 属于瑞利散射的范畴,而目前的理论体系很少涉及非 轴对称物体的散射,也未曾涉及散射体的偏振效应。

为了更清晰地研究分析纳米光栅偏振依赖散射 机理,本文首先从实验上进一步完善了偏振散射的 测试手段,理论上对纳米光栅进行三维建模,然后用 时域有限差分方法(FDTD)计算了纳米光栅的散射 强度和散射截面,理论分析结果证实了纳米光栅的 偏振散射来源于纳米光栅的非对称散射。该结果有 助于优化 II 类波导器件以及基于纳米光栅偏振散射 特性器件的性能。

2 实验和结果

实验中光源是掺钛蓝宝石飞秒激光放大系统产 生的 800 nm 光脉冲,脉宽为 350 fs,重复频率为 100 kHz。抛光的熔融石英样品(Corning, 5 mm× 15 mm×30 mm)装在 XYZ 位移平台上,位移平台 能够沿着平行或者垂直于激光束传播方向平移。使 用长工作距离(Mitutoyo)显微镜物镜(20×,工作距 离 22 mm,数值孔径 0.42)把激光束聚焦到样品里 面,距离表面 200 μm。采用纵向写入的方式使得制 作的光波导具有圆对称性,即样品平移方向平行于 激光束方向。为了分析纳米条纹,在写入Ⅱ类波导 后,切掉500 um,之后使用石英粉末对样品进行抛 光,用氢氟酸(HF)对样品进行蚀刻,然后在表面镀 上一层导电金膜,最后在扫描电镜下成像。实验中 为了避免氧化铈和二氧化硅产生微弱的化学反应使 扫描电镜照片质量下降,未采用常规抛光粉氧化铈进 行抛光;另外,为了得到规则性好且填充区域大的纳 米光,将激光脉冲宽度调至 350 fs;为了使散射更加明 显,用光束旋转的方法,写入了一个长 1.5 mm 的管 状结构,外围直径为28 µm,图1为整个管状结构横 截面的 SEM 图片和局部的 SEM 图片,纳米光栅的 结构尺寸与过去的文献报道的参数一致,条纹方向 与激光偏振垂直。这种纳米光栅表现出形序双折射 特性,类似于负单轴晶体,光轴垂直于纳米层[8-10]。





图 1 (a)飞秒激光在石英玻璃内部写入的管状波导横截面自组织纳米条纹 SEM 图;(b)图(a)右侧框线局部放大图 Fig. 1 (a) SEM image of cross-sectional of self-organizing nano-stripes in quartz glass tubular waveguide written by femtosecond laser; (b) partial enlarged view of the right side of Fig. (a)

为了进一步观察偏振散射现象,将单模 He-Ne 激光(波长 632.8 nm)注入到管状结构的中心,发现 电场方向平行于纳米光栅的偏振光能够低损耗通过, 相反,垂直于纳米条纹的偏振光将遭受到高损耗。

在关于光刻纳米光栅的偏振导光机理的研究 中[7],已明确证实纳米光栅散射方向和耦合光偏振 方向保持正交,考虑到纳米光栅与写入光束偏振方 向的关系,对于纳米光栅的散射强度与注入光束的 偏振方向进行了实验研究。实验中在管状波导的侧 面用物镜、CCD 探测散射光的强弱。实验结果表明 对于垂直于纳米平面方向的散射,耦合光偏振平行 于纳米平面时比耦合光垂直于纳米平面时更强,如 图 2 所示。波导由 10 mW,水平偏振,1 kHz 激光 脉冲在1 um/s 速度下写入,波导长度为1.5 mm。 图 2(a) 是利用相位对比显微镜 (PCM) 观察到的管状 波导侧面的透射显微照片,由于是弧形,两侧部分图 片不在焦平面上;图 2(b)是水平偏振光注入时整个 波导长度的散射强度图;不改变注入条件,用 $\lambda/2$ 波 片旋转注入光偏振方向到垂直,散射强度如图 2(c)所 示,可以看出,图 2(c)的强度明显小于图 2(b)的强 度;图 2(d)显示了散射强度随 z 的变化,字母 HH 表 示写入方向和耦合偏振方向均为水平方向,HV 表示 写入方向为水平方向,耦合方向为垂直方向。



图 2 在垂直方向探测到的 II 类波导的偏振依赖 散射强度

Fig. 2 Polarization dependent scattering intensity maps of type II waveguides detected in the vertical direction 对于平行于纳米平面方向的散射,耦合光偏振垂 直于纳米平面时比耦合光平行于纳米平面时更强,如 图 3 所示,所用波导参数与图 2 相同。图 3(a)表示 II 类波导的 PCM 顶视图;图 3(b)是水平偏振光注入波 导后的散射强度图;同样地,不改变注入条件,用λ/2 波片旋转注入光偏振方向到垂直,散射强度如图 3(c) 所示,可以看出,图 3(c)的强度明显小于图 3(b)的 强度;图 3(d)显示了散射强度随 z 的变化,字母 VH 表示写入方向为垂直方向,耦合偏振方向为水 平方向,VV 表示写入方向和耦合方向均为垂直 方向。



图 3 在垂直方向探测到的 II 类波导的偏振依赖 散射强度

Fig. 3 Polarization dependent scattering intensity maps of type II waveguides detected in the vertical direction

3 理论分析

将纳米光栅看作由许多嵌入的纳米粒子构成, 这些纳米粒子沿着垂直于写入激光电场方向排布。 单粒子被考虑成扁平的立方体,这与实际情况比较 接近。使用软件 FDTD Solutions (version 6.5)来 进行三维 FDTD 模拟^[11]。在 FDTD 模拟中,使用 的是平面波总场散射场(TFSF)源。中间方框表面 为 TFSF 边界,在方框内只能获取总场,而在方框外 只能获得散射场,在最大方框表面上放置 6 个功率 监视器来测量散射场,而在最小方框表面上放置 6 个功率监视器来测量总场。散射截面定义为^[12-16]

 $\sigma_{
m scat}(\omega) = P_{
m scat}(\omega)/I_{
m source}(\omega)$,

式中 *P*_{scat}(ω) 为总的散射功率, *I*_{source}(ω) 为入射光强。 模拟中,立方体折射率为 1.1,并且假定在 750~ 850 nm之间无色散,背景折射率为 1.45。*x*y 平面内 散射截面如图 4 所示。

散射模拟与瑞利散射理论相一致,散射强度随着 波长的增加而减弱。对于所有的波长,入射光偏振方



图 4 采用 FDTD 方法计算出的单个扁平立方体粒子的 散射截面随波长的变化关系

Fig. 4 Total scattering cross-section of an oblate cuboid as a function of wavelength by the FDTD method

向垂直于纳米平面时的散射比入射光偏振方向平行 于纳米平面时的散射更强。800 nm处的散射截面 分别为 3.18253 nm² 和 1.80742 nm²。单粒子散射 贡献于纳米光栅的总散射。单粒子散射的方向性与 实验观察到的纳米光栅的散射方向性相一致。由于 实验装置限制,不能测量纳米光栅的总散射,但是通 过以下的模拟结果可以间接得出偏振垂直于纳米光 栅的光相对于偏振平行于纳米光栅的光散射更强。

将纳米光栅看作均匀的长方体,同样使用上述 方法来模拟由 10 个周期纳米光栅组成的阵列,其中 纳米光栅的周期为 250 mm。在 FDTD 模拟中,基 底材料选择石英玻璃,立方体的折射率为 1.1,厚度 10 nm,长度 1500 nm,入射光波长 800 nm。

从图 5 可以看出,对于垂直于纳米平面方向上 的散射,入射光偏振方向平行于纳米平面时比入射 光偏振方向垂直于纳米平面时更强。对于平行于纳 米平面方向上的散射,入射光偏振方向垂直于纳米 平面时比入射光偏振方向平行于纳米平面时更强, 这与之前的实验结果吻合。





Fig. 5 Scattering field strength of cubes by FDTD. (a) Top view of cubes; (b) perspective view of cubes

为了更进一步探究纳米光栅的偏振导光机理, 对纳米光栅中光束偏振方向与其垂直和平行的光的 折射率的大小进行了模拟测试,模拟中设定纳米光 栅平行于 YOZ 面,如图 6 所示,其中图 6(a)表示偏 振方向垂直于纳米光栅中光的折射率,图 6(b)表示 偏振方向平行于纳米光栅中光的折射率。

模拟结果显示,在纳米光栅中,偏振方向垂直于 纳米光栅的光相比于偏振方向平行于纳米光栅的光 折射率更小,也就是说在纳米光栅中,偏振方向垂直 于纳米光栅的光相对于偏振方向平行于纳米光栅的 光更容易导通,损耗更小。

为了更进一步验证纳米光栅的偏振导光特性与 光束偏振方向的关系,验证了纳米光栅中坡印亭矢 量与光束偏振方向之间的关系。 模拟结果如图 7 所示,纳米光栅平行于 YOZ 平 面,图 7(a)为光束偏振方向垂直于 XOZ 面,也就是 光束偏振方向平行于光栅面的模拟结果,可以看出 坡印亭矢量的最大值为 0.004,图 7(b)为光束偏振 方向平行于 XOZ 面,也就是光束偏振方向垂直于 光栅面的模拟结果显示,其坡印亭矢量的最大值为 965,远远大于光束偏振方向平行于光栅面的结果。

上述模拟结果都证实了纳米光栅具有偏振依赖 散射性,光束偏振方向垂直于纳米光栅面的散射强 度要远远大于平行与纳米光栅平面的方向上。在进 行上述模拟之后对纳米光栅的波导进行了平面波散 射场(TFSF)分析,所用模型与图 5 相同,模拟结果 如图 8 所示。



图 6 采用 FDTD 方法计算出的纳米光栅中的光的折射率大小。(a)偏振方向垂直于纳米平面; (b)偏振方向平行于纳米平面

Fig. 6 Calculating results of the index in nanograting by FDTD. (a) Polarization direction perpendicular to nano plane; (b) polarization direction parallel to nano plane



图 7 采用 FDTD 方法计算出的纳米光栅中坡印廷矢量的大小。(a)偏振方向垂直于纳米平面; (b)偏振方向平行于纳米平面

Fig. 7 Calculating results of the Poynting vector in nanograting by FDTD. (a) Polarization direction perpendicular to nano plane; (b) polarization direction parallel to nano plane



图 8 采用 FDTD 方法计算出的含纳米光栅的波导出射端的 3.8 μm 范围内的电场分布。(a)偏振方向 平行于纳米平面;(b)偏振方向垂直于纳米平面

Fig. 8 Calculating results of the electric field distribution with nanograting at the exit end of the 3.8 μm range by FDTD.(a) Polarization direction perpendicular to nano plane; (b) polarization direction parallel to nano plane

图 8(a)为光束偏振方向平行于光栅面的模拟 结果,可以看出纳米平面横截面出射端中心处电场 的最大值为1.35,图8(b)为光束偏振方向垂直于光 栅面的模拟结果,其波导出射端中心处电场的最大 值为430,远远大于平行于光栅面的结果。

综合上述模拟结果可见,光束偏振方向垂直于 纳米光栅的光相对于偏振方向平行于纳米光栅的光 散射更强,而光束偏振方向平行于纳米光栅的光相 对于偏振方向平行于纳米光栅的光散射要弱,也就 说明飞秒激光在石英玻璃内产生的自组织纳米光栅 的偏振导光是由纳米光栅的散射所引起的,这与图 2 的观察结果以及参考文献[5]中实验结果一致。

4 结 论

在实验中观察到纳米光栅的偏振依赖导光现象 之后,重点从理论上分析了纳米光栅的偏振导光机 理,采用 FDTD 方法研究了飞秒激光在石英玻璃内 诱导自组织纳米光栅的偏振散射机理,发现纳米光 栅的偏振依赖导光性是由纳米光栅的偏振依赖散射 引起的;激光偏振方向垂直于纳米平面的光散射强, 而平行于纳米平面的散射弱;模拟结果与目前观察 到的多种散射结果完全一致。该模拟结果能够很好 地解释飞秒光刻 II 类波导的偏振导光特性,以及单 偏振波导的工作原理,同时有助于对微小物体瑞利 散射偏振特性研究的理解。

参考文献

- 1 L Sudrie, M Franco, B Prade, et al.. Writing of permanent birefringent microlayers in bulk fused silica with femtosecond laser pulses [J]. Opt Commun, 1999, 171(4-6): 279-284.
- 2 J D Mills, P G Kazansky, E Bricchi, *et al.*. Embedded anisotropic microreflectors by femtosecond laser micromachining [J]. Appl Phys Lett, 2002, 81(2): 196-198.
- 3 Y Shimotsuma, P Kazansky, J Qiu, *et al.*. Self-organized nanogratings in glass irradiated by ultrashort light pulses [J]. Phys Rev Lett, 2003, 91(24): 247405.
- 4 V R Bhardwaj, E Simova, P P Rajeev, *et al*.. Optically produced arrays of planar nanostructures inside fused silica [J]. Phys Rev Lett, 2006, 96(5): 057404.

- 5 G Cheng, K Mishchik, C Mauclair, *et al.*. Ultrafast laser photoinscription of polarization sensitive devices in bulk silica glass [J]. Opt Express, 2009, 17(12): 9515-9525.
- 6 Lin Ling, Yang Xiaojun, Bai Jing, *et al.*. Femtosecond laser photoinscription of waveguide polarizer [J]. Acta Photonica Sinica, 2011, 40(6): 818-822.

林 灵,杨小君,白 晶,等. 飞秒激光光刻波导偏振器[J]. 光 子学报, 2011, 40(6): 818-822.

7 Li Dongjuan, Lin Ling, Lü Baida, et al.. Polarization-dependent optical guiding in low repetition frequency femtosecond laser photowritten type II fused silica waveguides [J]. Acta Optica Sinica, 2013, 33(5): 0532001
李冬娟,林 灵,吕百达,等. 低重复频率飞秒激光在石英玻璃

内写入的 II 类波导的偏振依赖导光性研究[J]. 光学学报, 2013, 33(5): 0532001.

- 8 P G Kazansky, Y Shimotsuma. Self-assembled sub-wavelength structures and form birefrigence created by femtosecond laser writing in glass: properties and applications [J]. J Ceram Soc Japan, 2008, 116(358): 1052-1062.
- 9 R Taylor, C Hnatovsky, E Simova. Applications of femtosecond laser induced self-organized planar nanocracks inside fused silica glass [J]. Laser and Photon Rev, 2008, 2(1-2): 26-46.
- 10 M Born, E Wolf. Principles of Optics (7th ed) [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 1999.
- 11 Ge Debiao, Pan Yubo. Finite-Difference Time-Domain Method for Electromagnetic Waves [M]. Xi' an: Xidian University Press, 2002.

葛德彪, 闫玉波. 电磁波时域有限差分方法[M]. 西安: 西安电子科技大学出版社, 2002.

- 12 K S Yee. Numerical solution of initial boundary value problems involving Maxwell equations in isotropic media [J]. IEEE Trans Antennas Propagat, 1966. AP-14(3): 302-307.
- 13 G Mur. Absorbing boundary conditions for the finite-difference approximation of the time-domainelectromagnetic field equations [J]. IEEE Trans Electromagn Compat, 1981, EMC-23(4): 377 382.
- 14 J P Berenger. A perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves [J]. J Comput Phys, 1994, 114(2): 185 -200.
- 15 J P Berenger. Three-dimensional perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves [J]. J Comput Phys, 1996, 127(2): 363-379.
- 16 J P Berenger. Perfectly matched layer for the FDTD solution of wave-structure interaction problem [J]. IEEE Trans Antennas Propagation, 1996, 44(1): 110-117.

栏目编辑: 宋梅梅