

· 特邀综述 ·

基于整形飞秒激光脉冲的三维微纳制备

乔玲玲¹, 储蔚^{1,2*}, 王哲^{1,3}, 程亚^{1,2**}

¹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;

²华东师范大学物理与材料科学学院极端光机电实验室, 上海 200241;

³上海科技大学物质科学与技术学院, 上海 200031

摘要 飞秒激光脉冲加工具有热效应小、加工精度突破衍射极限、三维内部加工能力等特性,在微纳制备领域独具优势。综述了利用飞秒激光脉冲整形技术结合飞秒激光三维直写进行透明介质中微纳制备的最新进展,这些技术有望在新型集成光学和微纳光学中发挥重要的作用。

关键词 物理光学; 光学器件; 飞秒激光; 脉冲整形; 微加工

中图分类号 O437

文献标识码 A

doi: 10.3788/AOS201939.0126012

Three-Dimensional Microfabrication by Shaped Femtosecond Laser Pulses

Qiao Lingling¹, Chu Wei^{1,2*}, Wang Zhe^{1,3}, Cheng Ya^{1,2**}

¹State Key Laboratory of High Field Laser Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China;

²The Extreme Optoelectromechanics Laboratory, School of Physics and Materials Science, East China Normal University, Shanghai 200241, China;

³School of Physical Science and Technology, ShanghaiTech University, Shanghai 200031, China

Abstract Femtosecond laser micromachining has been widely used in laser material processing because of its unique advantages of low thermal effects, high precision and three-dimensional processing capability inside materials. The recent advances of the application of femtosecond laser microfabrication combined with femtosecond laser pulse shaping to micro-nanofabrication in transparent materials are reviewed. These techniques possess an important application prospect in novel integrated optics and micro- and nano-optics.

Key words physical optics; optical devices; femtosecond laser; pulse shaping; micromachining

OCIS codes 260.1960; 230.4000; 320.5540

1 引 言

近年来,超快激光技术日趋成熟,为诸多领域提供了新型原理、技术和应用^[1-2]。对于材料加工而言,飞秒激光的出现为微纳制备提供了诸多解决方案。在飞秒激光脉冲与物质相互作用的过程中,载流子激发在数百飞秒内即可完成,远远短于振荡波辐射、热扩散以及重固化等热效应的时间尺度^[2]。因此,飞秒激光加工几乎完全抑制了热效应,极大提升了加工质量^[3-4]。此外,由于飞秒激光与材料的相互作用具有高度非线性特征,作用区域出现明显的局域化阈值效应^[5-7]。利用这种性质,飞秒激光微纳

加工的精度可延伸到亚微米甚至纳米量级,并且实现了真正意义上的三维(3D)加工^[8-12]。

传统的飞秒激光 3D 直写系统由飞秒激光器、高数值孔径(NA)物镜以及 3D 加工平台构成,这种加工方式已经在微纳加工领域得到了广泛的应用。但是,为了进一步实现高效率、高精度和跨尺度激光加工,需要对飞秒激光进行空域和时域的相干操控。由于飞秒激光与材料介质的相互作用具有高度非线性,飞秒激光加工的空间分辨率对焦点处光强的空间分布非常敏感。因此,对激光-材料相互作用区超快光场的精确操控尤为关键,例如对飞秒激光脉冲进行整形可实现对聚焦光斑的亚波长量级的操

收稿日期: 2018-08-30; 修回日期: 2018-10-08; 录用日期: 2018-10-16

基金项目: 国家自然科学基金(61327902,61590934,11734009,11674340,11604351)、中科院先导(XDB 16000000)

* E-mail: chuwei0818@qq.com; ** E-mail: ya.cheng@siom.ac.cn

控^[13]。此外,由于飞秒激光具有很宽的光谱范围,因此可以在亚周期时间量级上对飞秒激光脉冲进行时域整形^[14-15]。本文介绍了空间整形技术在飞秒激光直写形貌控制、加工效率提升等方面的应用,同时总结和归纳了飞秒激光时空聚焦技术用于材料加工和制备的新原理、新现象,最后介绍了无衍射光加工在材料处理中的应用。

2 飞秒激光整形技术及应用

2.1 狭缝整形技术

在典型的飞秒激光 3D 加工过程中,飞秒激光脉冲一般由显微物镜聚焦到材料内部,以形成局域化的改性区域。飞秒激光的焦点区域光强分布可表示为

$$I_e = \frac{1}{[1 + (z^2/z_0^2)]} \exp\left[\frac{-2(x^2 + y^2)}{w_0^2(1 + z^2/z_0^2)}\right], \quad (1)$$

式中: $w_0 = \lambda/(\pi NA)$; $z_0 = kw_0^2/2$ 。 $2w_0$ 为艾里斑的直径,它与 NA 成反比;焦深 $2z_0$ 与物镜的 NA 的平方成反比。

由此可见,激光聚焦焦点处光场在横向(焦斑半径方向)和轴向(激光传播方向)的分布通常情况下并不平衡。除此之外,由于飞秒激光与材料作用的极端非线性,激光脉冲的自聚焦在轴向会更进一步使得改性区域的轴向尺寸远大于横向,这就造成了激光材料加工、光学成像等领域中横向和轴向分辨率不对称的问题^[16]。例如:通过在石英玻璃材料内部扫描紧聚焦的飞秒激光焦点,可以在激光作用区域诱导折射率提高,从而获得光学导波效应^[17]。然而,由于横向和轴向加工不对称,光波导的横截面呈现自然的椭圆形,从而无法支持单模导波传输。

近年来,研究人员一直致力于探索该问题的解决方案,而狭缝整形正是解决该问题最为有效的技术手段之一^[18]。如图 1 所示,该方法通过在物镜上方放置一个衍射狭缝,进行横向直写,狭缝的方向平行于激光的直写方向,获得纵向与横向间平衡的光学分辨率。该方法目前被广泛运用于飞秒激光直写三维光波导^[19-21]。利用这种方法制备出的光波导具有圆形对称的截面,能够有效支持单模传输。

狭缝整形技术的原理是降低聚焦光束在垂直于直写方向的 NA ,增加该方向上激光焦斑的尺寸,并拓宽激光作用区域的宽度。将通过狭缝后的高斯光束近似看作椭圆高斯光束,则焦点处的光强可表示为

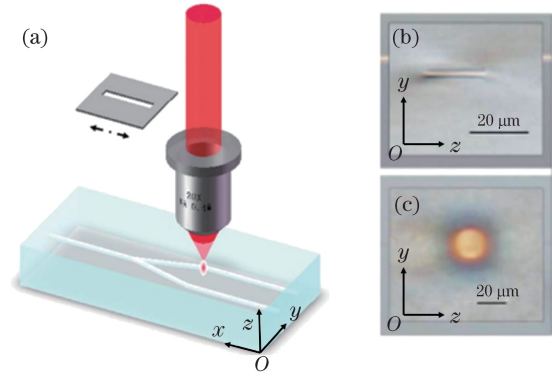


图 1 (a)飞秒激光狭缝整形直写的实验装置示意图; (b)传统方式聚焦直写的波导截面;(c)狭缝整形直写的波导截面^[18]

Fig. 1 (a) Experimental setup for femtosecond laser direct writing with slit shaping; (b) cross section of waveguide fabricated by conventional focusing direct writing; (c) cross section of waveguide fabricated by direct writing with slit shaping^[18]

$$I_e = \frac{1}{[1 + (z^2/z_0^2)]^{1/2}} \frac{1}{[1 + (z^2/z_0'^2)]^{1/2}} \times \exp\left\{\frac{-2x^2}{w_0^2[1 + (z^2/z_0^2)]}\right\} \exp\left\{\frac{-2x^2}{w_0'^2[1 + (z^2/z_0'^2)]}\right\}, \quad (2)$$

式中: $w_0' = (R_x/R_y)w_0$,其中 R_x 和 R_y 分别为椭圆高斯光束的长轴和短轴半径; $z_0' = kw_0'^2/2$ 。计算得到的焦点处光强分布如图 2 所示,可以看出,插入狭缝后激光作用区域的形貌有了明显改善,这与图 1 中实验得到的结果十分吻合。2009 年,飞秒激光直写被应用于光量子芯片的制备与集成^[22]。利用重复频率为 1 kHz、中心波长为 800 nm、脉宽为 120 fs 的飞秒激光进行狭缝整形直写,可在高纯度熔石英材料中成功制备出波导截面为圆形的定向耦合器,芯片插入损耗为 3 dB。在制备过程中采用狭缝整形的方法可实现光束整形。利用该器件演示的双光子和三光子非经典干涉实验表明飞秒激光直写可以制备出高品质的量子信息器件。

将狭缝整形技术做进一步改进,可以高效制备出模场可控、偏振无关的透明材料内光波导。采用飞秒激光在透明材料中直写的光波导可分为两类^[23]: 1)激光辐照后,被辐照区域的折射率增加,光被限制在辐照区域,该方法形成的波导被称为 I 类光波导;2)在更大通量的激光辐照后,激光辐照的区域相对其周围区域折射率降低,形成波导的包层,从而实现导光,这种波导被称为 II 类光波导。II 类光波导大多数在晶体或者 ZBLAN 玻璃中制备获

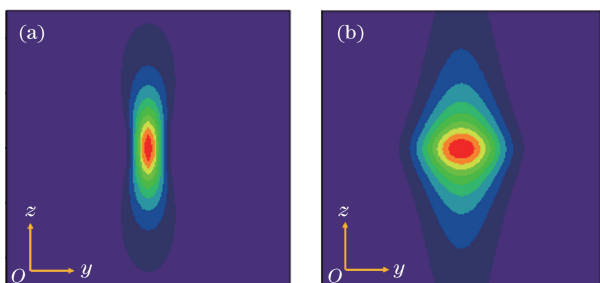


图 2 (a)传统聚焦模式和(b)经狭缝整形后焦点附近的模拟光强^[18]

Fig. 2 Simulated light intensity distributions around focal spot with (a) conventional focusing scheme and (b) slit shaped focusing^[18]

得,一般而言,Ⅱ类光波导可通过两种方式实现: 1)利用高 NA 物镜逐步点扫围成波导包层^[24-25]; 2)利用低 NA 物镜在材料内部同一深度直写出两道平行的痕迹^[26-28]。第一种方法需经过冗长的扫描

过程,效率很低,而且由于高倍物镜工作距离较短,其制备深度有限。由于激光轴向分辨率远低于横向分辨率,第二种方法能够在材料内部形成两条折射率降低的竖线,可作为波导的两侧壁包层,利用这种方法制备的光波导由于上下开口,光传输损耗较大,且只能支持一种偏振的光传输。基于狭缝整形技术的飞秒直写为Ⅱ类光波导的制备提供了全新的高效解决途径。利用空间光调制器(SLM)加载有相位分布的闪耀光栅狭缝,当飞秒激光脉冲经过光栅后产生衍射强度分布,通过空间滤波将一级衍射光滤出,并通过物镜聚焦进行直写^[29]。模拟得到的光场截面分布如图 3 所示,可以看出,将基于狭缝整形技术的飞秒直写与上述的第二种直写方式相结合,可以在材料中高速制备出四面合围的“口”字型环状光波导,且通过调节狭缝大小,能够实现波导的模场变换。

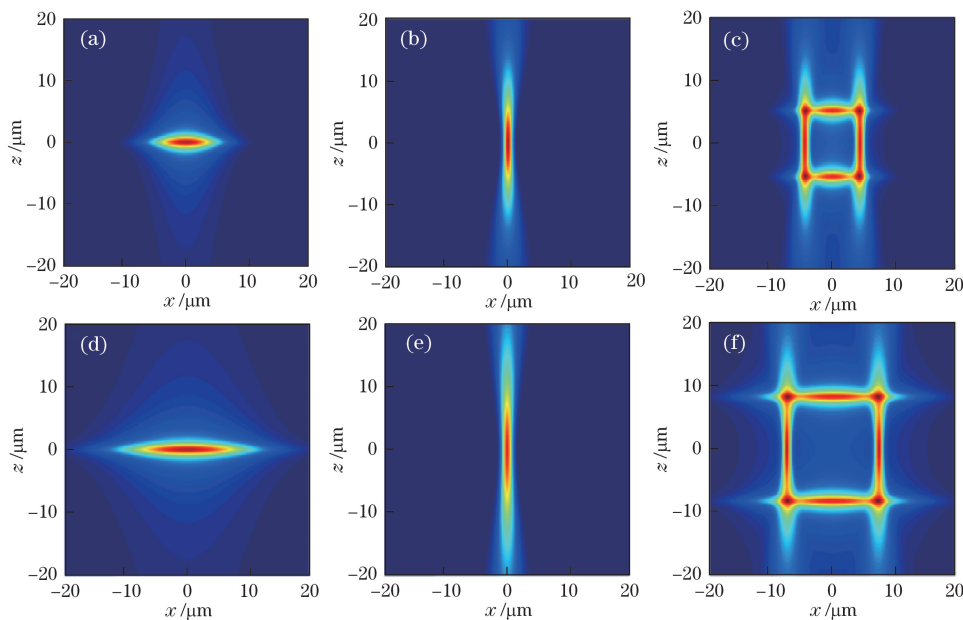


图 3 狭缝整形脉冲聚焦得到的焦点处光场分布。(a) 200 μm 狭缝;(b) 2000 μm 狭缝;(c) 6 μm 边长“口”字型;(d) 160 μm 狭缝;(e) 2400 μm 狭缝;(f) 12 μm 边长“口”字型^[29]

Fig. 3 Laser intensity distributions at focus of slit-shaped beams. (a) Slit width of 200 μm ; (b) slit width of 2000 μm ; (c) mouth type with side length of 6 μm ; (d) slit width of 160 μm ; (e) slit width of 2400 μm ; (f) mouth type with side length of 12 μm ^[29]

实验中,在 ZABLAN 玻璃和铌酸锂(LN)晶体中均实现了这种“口”字型环状光波导的制备。图 4(a)所示为环状波导直写的实验装置示意图。这种波导不仅可同时支持不同偏振类型的光传导,还能够实现模场调控。s 偏振光和 p 偏振光在波导中的单模传输损耗分别降低至 2.15 dB 和 6.04 dB^[30]。基于端面耦合系统进行损耗测量,其主要来源是波导的传输损耗。辅以球差矫正,该方法可以在 LN 晶体

表面以下 1.4 mm 深处制备同一类型的光波导,如图 4(b)所示。s 偏振和 p 偏振光的传输损耗分别为 3.2 dB 和 3.9 dB,接近偏振无关光传输,如图 4(c)、(d)所示^[31]。

狭缝整形技术实现简单,操作灵活,缺点在于造成了较大的激光能量损失。此外,狭缝整形只能提供一维方向的整形,例如:狭缝沿 y 方向放置,聚焦光场在 xOz 平面的光斑形貌近似为圆形,而在 yOz

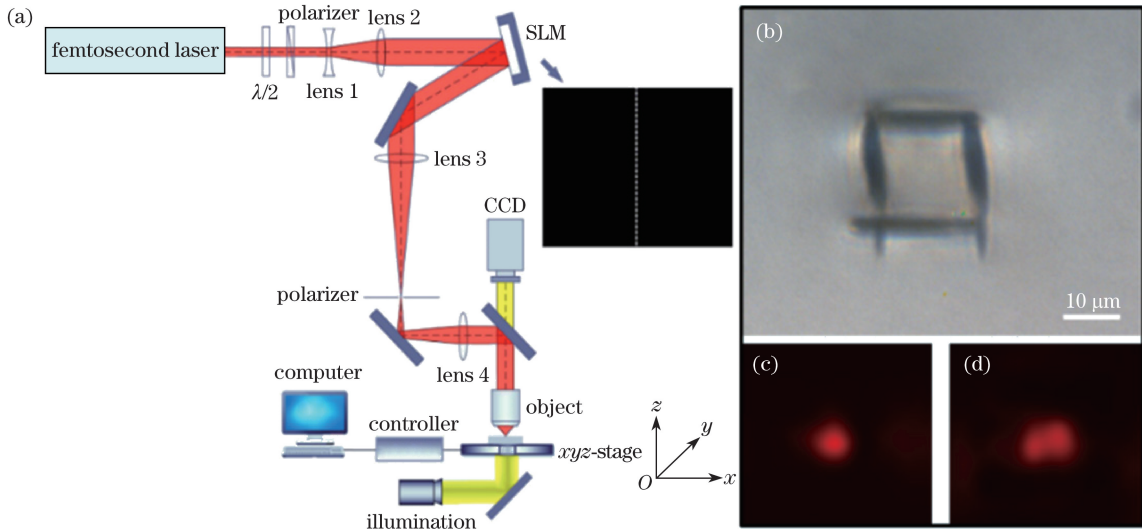


图 4 (a)实验装置示意图;(b)环状光波导;(c) s 偏振光和(d) p 偏振光在波导中传输的近场模场光强分布^[29-31]

Fig. 4 (a) Schematic of experimental setup; (b) square-shaped waveguide; near-field mode light intensity distributions of (c) s-polarized beam and (d) p-polarized beam in the waveguide^[29-31]

平面的光斑依然不对称。因此，整个焦点的光场分布在 3D 空间内依然不对称。

2.2 时空聚焦技术

为了抑制宽场双光子荧光显微中的背景噪声，2005 年 Zhu 等^[32-33] 提出时空聚焦技术，以实现宽场 3D 层析成像。在飞秒激光加工领域，基于点聚焦的直写扫描加工方式更受欢迎，该技术于 2010 年被改进并引入飞秒激光微纳加工领域^[34]，在改善飞秒激光直写横截面形貌中取得了成功应用^[34-36]，并随后被拓展到飞秒激光非互易直写^[37-38]、三维光刻^[39]、飞秒激光 3D 打印^[40] 等领域，多个研究小组也研究了时空聚焦飞秒激光在空气、水、生物组织等物质中的传输规律及其与物质相互作用的新现象^[41-44]。

时空聚焦技术的原理如图 5 所示。飞秒激光脉冲通过光栅对后形成具有空间色散的光束，为了补偿光栅对带来的负啁啾，需要对入射飞秒激光进行正啁啾补偿。随后，利用透镜聚焦具有空间色散的光束。在空域上，色散开的不同频谱成分通过聚焦物镜后，仅在焦平面上各频率分量同时到达，形成傅里叶变换极限的最短脉冲，而在焦平面外，脉冲在时域上被展宽。

时空聚焦飞秒激光脉冲聚焦光场的光强分布可以利用菲涅耳-基尔霍夫衍射理论进行描述，假设入射脉冲的时间啁啾是预补偿的，即入射的光谱相位 $\varphi_{2in}(\omega) = 0$ ，透射镜入口口径处空间上分散脉冲归一化的光场可表示为

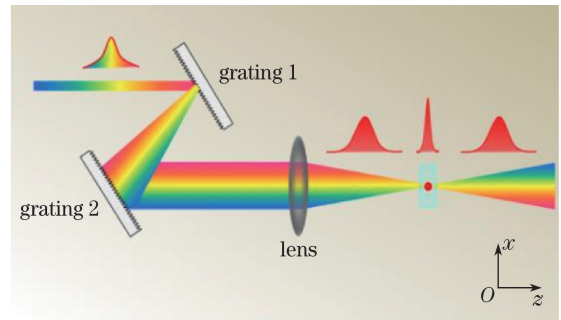


图 5 时空聚焦原理示意图^[34]

Fig. 5 Schematic of simultaneous spatial and temporal focusing^[34]

$$E_1(x, y, z, \omega) = A_0 \exp\left[-\frac{(\omega - \omega_0)^2}{\Delta\omega^2} + i\frac{1}{2}\varphi_{2in}(\omega - \omega_0)^2\right] \times \exp\left\{-\frac{[x - \alpha(\omega - \omega_0)]^2 + y^2}{\omega_{in}^2}\right\}, \quad (3)$$

式中： A_0 为恒定电场振幅； ω_0 为载波频率； $\Delta\omega$ 为脉冲的带宽； ω_{in} 为沿高斯光束的束腰半径； $\alpha(\omega - \omega_0)$ 为物镜入口口径处各频谱分量的线性位移量。对于光栅对色散系统，忽略高阶色散，关于 α 的解析表达式的详细推导可参考文献^[35]。

激光透过透镜并传输距离 z 后，其场分布为

$$E_2(x, y, z, \omega) = \frac{\exp(ikz)}{i\lambda z} \iint_{-\infty}^{+\infty} E_1(\xi, \eta, \omega) \times \exp\left(-ik\frac{\xi^2 + \eta^2}{2f}\right) \exp\left[ik\frac{(x - \xi)^2 + (y - \eta)^2}{2z}\right] d\xi d\eta, \quad (4)$$

式中: k 为波数; f 为透镜的焦距。在时域上的强度分布可以通过(4)式的傅里叶逆变换得到:

$$I_{TF}(x, y, z, t) = |E_2(x, y, z, t)|^2 = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} E_2(x, y, z, \omega) \exp(-i\omega t) d\omega \right|^2. \quad (5)$$

空间色散的光束在 xOy 和 yOz 平面上聚焦的光强分布可以由(5)式得到。在数值模拟中,假设傅里叶变换极限的脉冲宽度为 40 fs,光谱半峰全宽约为 25 nm,中心波长为 800 nm,光栅对(1200 line/mm, 入射角为 45°)为 180 mm,输入激光的束腰直径 $2w_m = 5$ mm,令 $\alpha = 0$ 可得到传统聚焦的焦点处光强分布,如图 6(a)所示。图 6(b)、(c)分别为聚焦物镜 $NA = 0.46$ 条件下时空聚焦得到的 xOy 和 yOz 平面焦点处的光强分布。可以清楚地看到,传统聚

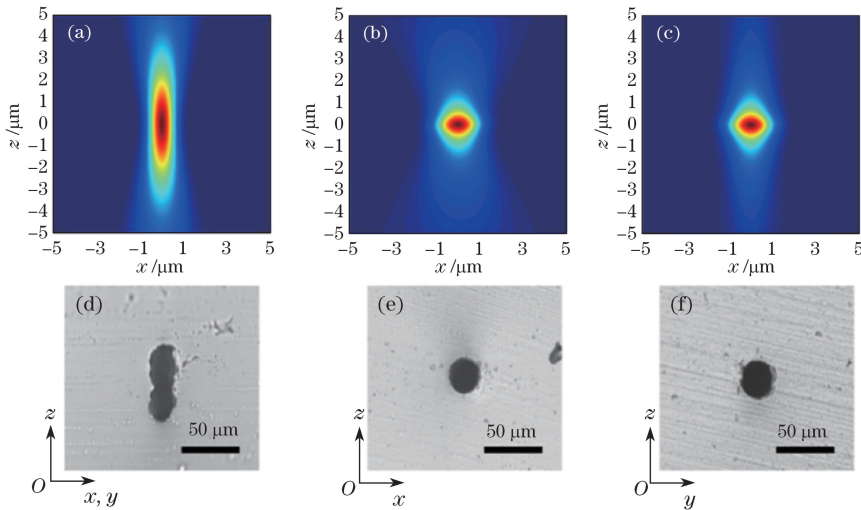


图 6 (a)~(c)焦点处模拟光强分布;(d)~(f)激光直写的微流体通道横截面光学显微图像^[34]

Fig. 6 (a)-(c) Simulated light intensity distributions at focus; (d)-(f) cross-sectional optical micrographs of microfluidic channels fabricated by femtosecond laser direct writing^[34]

在大维度、高通量加工的应用场景中,需要较长工作距离的物镜,以保证加工通量和成型高度。然而,低 NA 物镜虽然具有较长的工作距离,但是其聚焦焦点形状为极端不对称的椭球形。此外,加工过程中空气和材料折射率不匹配带来的球差效应使焦点光强分布的横向和轴向尺度更加不平衡,且在不同深度有不同的影响效果^[45-46]。当飞秒激光脉冲通过低 NA 物镜聚焦在很深的材料内部时,自聚焦、成丝等超快非线性效应也会导致焦点形态的不平衡性增加和不可控^[47],限制了飞秒激光微纳制备的应用范围。时空聚焦技术操控焦点附近的脉冲宽度和峰值功率的变化,能够极大程度地提升纵向分辨率,降低非线性效应,实现飞秒激光大尺度 3D 微

焦具有狭长的焦斑,而利用时空聚焦能够在焦点处得到近似球形、3D 对称的光强分布。

进一步通过实验验证时空聚焦直写在截面形貌控制中的有效性,具体是利用飞秒激光直写结合湿法化学腐蚀的方法在石英玻璃里制作 3D 微流体通道。激光功率和扫描速度分别选择 3.5 mW 和 $50 \mu\text{m/s}$,其他参数的选择与上述仿真计算中是一致的。激光照射后,将样品置于质量浓度为 10% 的氢氟酸水溶液中并辅以超声波水浴进行 150 min 的湿化学腐蚀,最后通过切割和抛光样品来检查通道的横截面形貌。微流体通道的横截面光学显微图像如图 6(d)、(f)所示。可以发现,与传统聚焦相比,激光聚焦直写出来的微流通道结构无论是在 xOy 平面还是 yOz 平面均接近圆形,这也表明了利用时空聚焦可实现 3D 各向同性直写。

纳加工。实验上利用 $NA = 0.35$ 的低倍物镜在光敏 Foturan 玻璃中进行直写,传统的飞秒激光直写方式在玻璃内部的改性区域极端不对称,这给玻璃内部的高通量 3D 加工带来了困难。而利用时空聚焦的飞秒激光脉冲操控脉冲的时空域传输特性,可以实现 3D 对称的球状改性区域,其焦斑尺度约为 $80 \mu\text{m}$,如图 7(a)、(b)所示。利用这种技术在 Foturan 玻璃内部直写的中国馆结构如图 7(c)所示,整个加工过程仅需 6 min,其加工效率相比传统的飞秒激光加工点扫有很大的提升^[36]。

时空聚焦光场整形也被拓展至飞秒激光双光子 3D 打印中^[40]。基于时空聚焦技术的 3D 打印设备可以大幅拓展双光子聚合打印的最终尺寸,并且可

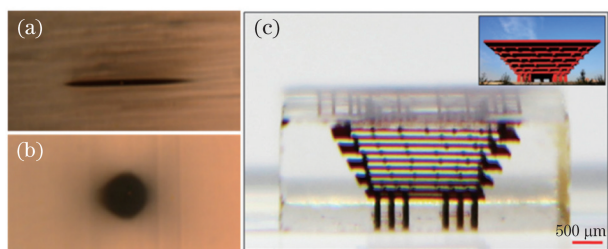


图 7 Foturan 玻璃中(a)传统聚焦和(b)时空聚焦点的截面显微图像;(c)利用时空聚焦系统在 Foturan 玻璃内部直写的中国馆结构^[36]

Fig. 7 Cross-sectional optical micrographs in Foturan glass with (a) conventional focusing scheme and (b) simultaneous spatial and temporal focusing (SSTF) scheme; (c) China Pavilion structure written in Foturan glass with SSTF scheme^[36]

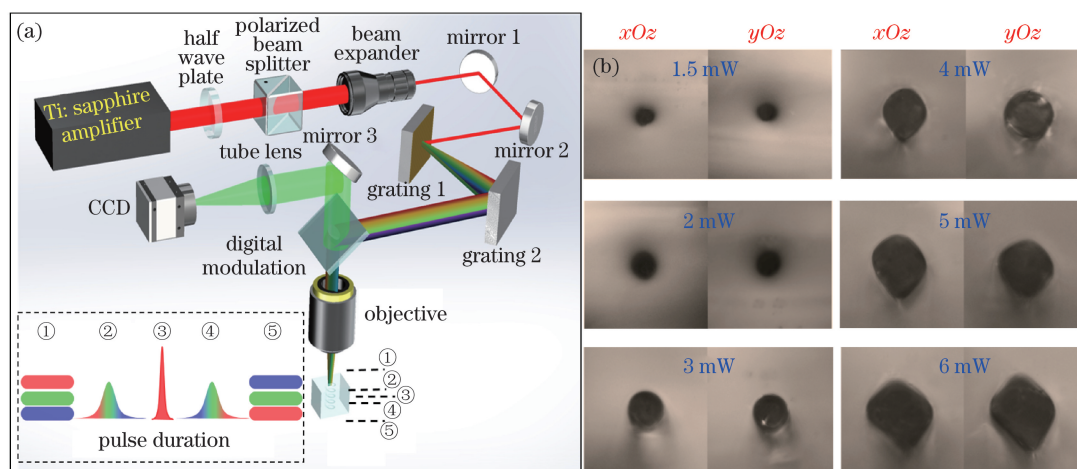


图 8 (a)飞秒激光时空聚焦 3D 打印装置;(b)时空聚焦 3D 打印分辨率控制^[40]

Fig. 8 (a) Schematic of setup for femtosecond laser SSTF 3D printing; (b) resolution control in SSTF 3D printing

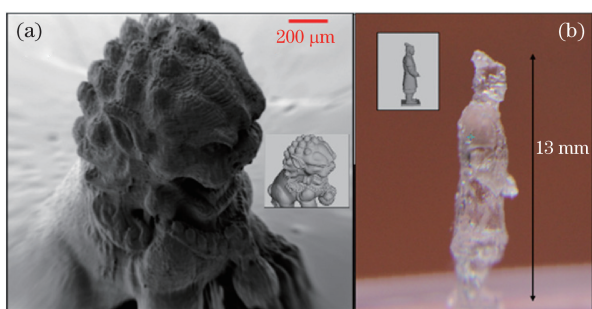


图 9 飞秒激光时空聚焦双光子打印图像。(a) 2 mm 高的中国狮子扫描电子显微镜 (SEM) 图;(b) 13 mm 高的兵马俑模型照片^[40]

Fig. 9 Two-photon printed image obtained by femtosecond laser SSTF. (a) Scanning electron microscope (SEM) image of 2 mm high Chinese lion sculpture; (b) digital photo of 13 mm high Terra Cotta Warrior sculpture^[40]

模型图进行对比,可以看出模型细节在打印中均得

实现打印精度与成型尺度的有效兼顾。飞秒激光 3D 打印是利用飞秒激光诱导在光敏树脂中发生的双光子聚合,形成特定的 3D 结构^[48-49]。利用飞秒激光束时空聚焦脉冲,能够有效操控激光焦点形态,从而控制双光子聚合区域的形状。仅通过调节飞秒激光入射功率,就能实现 3D 对称打印分辨率的连续可调。飞秒激光时空聚焦 3D 打印装置如图 8(a)所示。由图 8(b)可以看出,激光功率从 1.5 mW 调节到 6.0 mW,聚合出的直线端面直径可从 9 μm 调节至 40 μm,并且在 xOz 和 yOz 平面内基本保持一致。

利用这种特点,可以在同一打印过程中实现不同尺度、不同分辨率的 3D 打印。图 9(a)显示了飞秒激光功率为 1.5 mW、层高为 6 μm 打印得到的总高度为 2 mm 的微型中国狮子雕像。将打印图像与

以重复,表明该方法具有较好的成型质量。进一步将激光功率提升至 5 mW,以获得尺寸更大的 3D 对称分辨率,并进行时空聚焦双光子 3D 打印,以实现高度为 13 mm 的兵马俑模型的打印,如图 9(b)所示,这一结果大大提升了双光子聚合 3D 打印的成型尺度。图 9 中的插图为原模型。

最近,超快激光脉冲的时空域控制可以实现石英玻璃内部的无像差 3D 加工^[50]。通过色散元件对初始飞秒激光脉冲进行时域整形,使其获得巨大的啾啾量,脉冲宽度被展至数十皮秒。利用该激光脉冲进行石英玻璃中的直写,能够得到 3D 对称的改性区域,如图 10(a)所示,直写深度为 250 μm。即使在接近物镜工作距离的深处,如距离石英玻璃表面 9 mm 处,改性区域的形貌基本不变,如图 10(b)所示。传统飞秒激光直写形成的改性区域如图 10(c)、(d)所示,可以看出,在这种情况下,改性

区域不仅呈现出极端不对称性,并且在材料内部深处受到了像差的影响。随后,利用化学湿法腐蚀得到了啁啾脉冲直写 1 mm 长的微流通道,如图 10(e)、(f)所示,通道截面同样呈对称的圆形,说明这项技术有望在微流控芯片制备中发挥重要的作用。上述效应可能与超快激光脉冲在石英玻璃中的非线性传输有关,其背后的物理机制尚需进一步研究阐明。

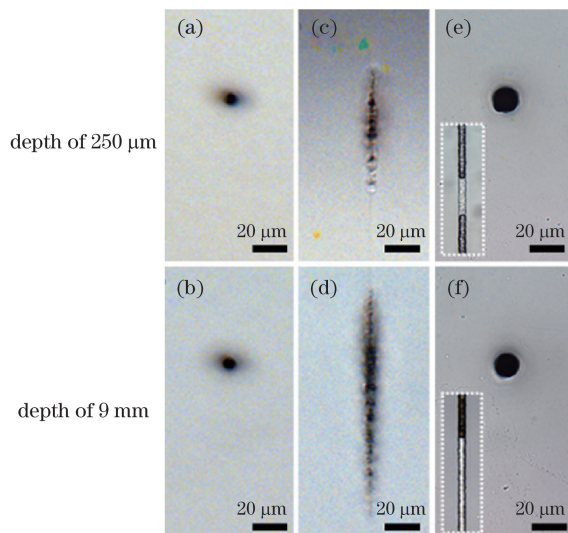


图 10 (a)(b)啁啾脉冲直写截面照片;(c)(d)传统聚焦直写截面照片;(e)(f)腐蚀得到的微流通道截面图和俯视图^[50]

Fig. 10 (a)(b) Cross-sectional images with chirped pulse direct writing; (c)(d) cross-sectional images with conventional focusing direct writing; (e)(f) cross-sectional images and top views of corroded microcirculation channel^[50]

2.3 贝塞尔光束整形

Durnin 等^[51]于 1987 年提出了无衍射光的概念,这种光束的光强分布在横向上具有贝塞尔函数的分布特征,因此又被称为贝塞尔光束。理想的贝塞尔光束的能量是无穷大的,因此在自然界中是不存在的,在实验中通常利用轴棱锥将高斯光束转化为准贝塞尔光。与高斯光束相比,贝塞尔光束具有极长的焦深,近年来在生物成像和激光加工等领域引起了人们的广泛关注^[52]。

飞秒激光贝塞尔光束在制备高深径比的通道中具有很好的效果^[53]。如图 11(a)所示,飞秒激光高斯光束通过轴棱锥镜后生成了贝塞尔-高斯光束,在沿轴传输过程中能够维持较长的传输距离和较好的光强稳定性。将这一光束聚焦于玻璃样品背面,仅通过高强度的单发飞秒脉冲就可以在玻璃样品中制

备出直径在 200~800 nm 范围内且深径比超过 100 的纳米通道,如图 11(b)所示。

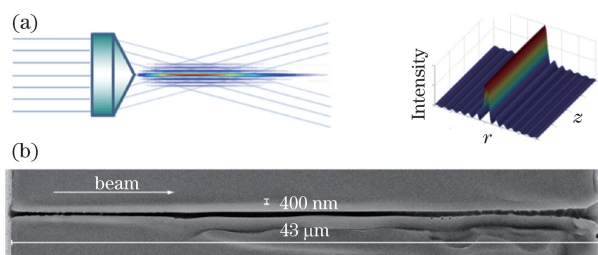


图 11 (a)角锥棱镜产生的贝塞尔光束及其光强分布示意图;(b)使用贝塞尔光束在玻璃中制备高深径比的纳米通道 SEM 图像^[53]

Fig. 11 (a) Bessel beam generated with an axicon and its intensity distribution; (b) high aspect ratio nanochannel SEM image fabricated in glass with Bessel beam^[53]

贝塞尔光束虽然具有无衍射特性,但它具有较大比例的旁瓣。一般而言,一级旁瓣的强度约为为中心光束的 16%,这些旁瓣也会给样品带来不必要的损伤,特别是在加工吸收较强的材料时。此外,在生物成像中,旁瓣还会造成分辨率的降低。因此,如何抑制贝塞尔光束的旁瓣成为微纳加工和生物成像领域中的关键性问题。通过将光学相位板引入贝塞尔光束整形,能够在一定范围内有效抑制贝塞尔光束的旁瓣,在硅通孔(TSV)加工应用中取得较好的效果。如图 12 所示,仅需要在角锥棱镜前放置一片通过优化设计的相位板(BPP),即可获得旁瓣比仅为 0.6%的剪切贝塞尔光束^[54],虽然相比传统的贝塞尔光束,其焦深有一定程度的牺牲,但仍然远大于相同横向尺寸高斯光束的焦深,且能够满足绝大部分贝塞尔光束的激光加工和生物成像应用。

3 总 结

综上所述,利用整形飞秒激光脉冲直写技术在不同介电材料内部实现了一系列 3D 功能微结构和复杂大尺寸结构。相比于传统的飞秒激光直写技术,基于整形飞秒激光脉冲的 3D 制备技术给人们带来了更多的实现可能和更丰富的可操控性,而本文仅展示了这种技术的一个层面。从应用角度而言,整形飞秒激光脉冲加工技术在微流控、光子集成、太赫兹光学、3D 打印等方面均有望发挥及其重要的作用,解决关键性的科学问题。同时,新颖的光场操控手段和器件也在不断促进整形飞秒激光加工技术的发展。目前,该技术已经日趋成熟,逐渐具备从实验室走向实际应用的能力。可以预见,在未来

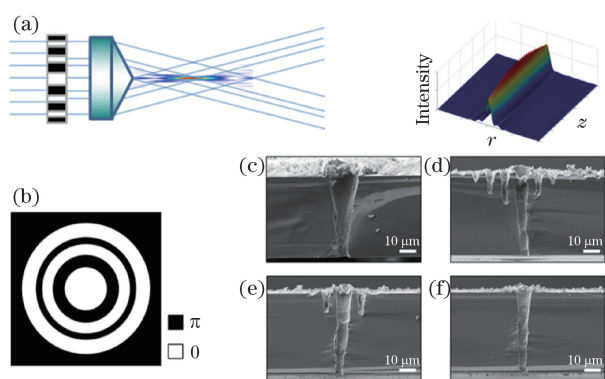


图 12 (a)相位板整形贝塞尔光束及其光强分布;(b)相位板结构示意图;分别使用(c)高斯光束、(d)传统贝塞尔光束、(e) BPP 1 整形后的贝塞尔光束和 (f) BPP 2 整形后的贝塞尔光束进行 TSV 加工的截面 SEM 图^[54]

Fig. 12 (a) Phase plate shaped Bessel beam and its light intensity distribution; (b) structural diagram of phase plate; cross-sectional SEM images of TSV fabricated with (c) Gaussian beam, (d) conventional Bessel beam, (e) BPP 1-shaped Bessel beam by and (f) BPP 2-shaped Bessel beam^[54]

的科学研究和工业应用中,基于整形飞秒激光脉冲的 3D 制备将成为激光精密微加工领域最重要、最前沿的技术手段之一,并推动智能制造向前发展。

参 考 文 献

- [1] Sugioka K, Cheng Y, Ultrafast lasers: reliable tools for advanced materials processing[J]. *Light: Science & Applications*, 2014, 3: e149.
- [2] Gattass R R, Mazur E. Femtosecond laser micromachining in transparent materials[J]. *Nature Photonics*, 2008, 2(4): 219-225.
- [3] Chichkov B N, Momma C, Nolte S, *et al.* Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids[J]. *Applied Physics A*, 1996, 63(2): 109-115.
- [4] Momma C, Chichkov B N, Nolte S, *et al.* Short-pulse laser ablation of solid targets[J]. *Optics Communications*, 1996, 129(1/2): 134-142.
- [5] Kawata S, Sun H B, Tanaka T, *et al.* Finer features for functional microdevices[J]. *Nature*, 2001, 412(6848): 697-698.
- [6] Joglekar A P, Liu H H, Meyhöfer E, *et al.* Optics at critical intensity: applications to nanomorphing[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2004, 101(16): 5856-5861.
- [7] Sugioka K, Cheng Y. Fundamentals of femtosecond laser processing[M]//Femtosecond laser 3D micromachining for microfluidic and optofluidic applications. London: Springer 2014: 19-33.
- [8] Nolte S, Will M, Burghoff J, *et al.* Femtosecond waveguide writing: a new avenue to three-dimensional integrated optics[J]. *Applied Physics A*, 2003, 77(1): 109-111.
- [9] Glezer E N, Milosavljevic M, Huang L, *et al.* Three-dimensional optical storage inside transparent materials[J]. *Optics Letters*, 1996, 21(24): 2023-2025.
- [10] Watanabe W, Sowa S, Tamaki T, *et al.* Three-dimensional waveguides fabricated in poly (methyl methacrylate) by a femtosecond laser[J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2006, 45(29): L765-L767.
- [11] Sugioka K, Cheng Y. Femtosecond laser three-dimensional micro-and nanofabrication[J]. *Applied Physics Reviews*, 2014, 1(4): 041303.
- [12] Liao Y, Song J X, Li E, *et al.* Rapid prototyping of three-dimensional microfluidic mixers in glass by femtosecond laser direct writing[J]. *Lab on a Chip*, 2012, 12(4): 746-749.
- [13] Gan Z, Cao Y, Evans R A, *et al.* Three-dimensional deep sub-diffraction optical beam lithography with 9 nm feature size[J]. *Nature Communications*, 2013, 4: 2061.
- [14] Shverdin M Y, Goda S N, Yin G Y, *et al.* Coherent control of laser-induced breakdown[J]. *Optics Letters*, 2006, 31(9): 1331-1333.
- [15] Dachraoui H, Husinsky W. Thresholds of plasma formation in silicon identified by optimizing the ablation laser pulse form[J]. *Physical Review Letters*, 2006, 97(10): 107601.
- [16] Sahl S J, Hell S W, Jakobs S. Fluorescence nanoscopy in cell biology[J]. *Nature Reviews Molecular Cell Biology*, 2017, 18(11): 685.
- [17] 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.
- [18] 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.
- [19] Beresna M, Gecevičius M, Kazansky P G. Ultrafast laser direct writing and nanostructuring in transparent materials[J]. *Advances in Optics and Photonics*, 2014, 6(3): 293-339.
- [20] Sowa S, Watanabe W, Tamaki T, *et al.* Symmetric waveguides in poly (methyl methacrylate) fabricated

- by femtosecond laser pulses[J]. *Optics Express*, 2006, 14(1): 291-297.
- [21] Ams M, Marshall G D, Spence D J, *et al.* Slit beam shaping method for femtosecond laser direct-write fabrication of symmetric waveguides in bulk glasses[J]. *Optical Express*, 2005, 13(15): 5676-5681.
- [22] Marshall G D, Politi A, Matthews J C F, *et al.* Laser written waveguide photonic quantum circuits[J]. *Optics Express*, 2009, 17(15): 12546-12554.
- [23] Burghoff J, Nolte S, Tünnermann A. Origins of waveguiding in femtosecond laser structured LiNbO₃ [J]. *Applied Physics A*, 2007, 89(1): 127-132.
- [24] Okhrimchuk A G, Shestakov A V, Khrushchev I, *et al.* Depressed cladding, buried waveguide laser formed in a YAG:Nd³⁺ crystal by femtosecond laser writing[J]. *Optics Letters*, 2005, 30(17): 2248-2250.
- [25] Lancaster D G, Gross S, Ebendorff-Heidepriem H, *et al.* Fifty percent internal slope efficiency femtosecond direct-written Tm³⁺:ZBLAN waveguide laser[J]. *Optics Letters*, 2011, 36(9): 1587-1589.
- [26] Long X W, Bai J, Zhao W, *et al.* Stressed waveguides with tubular depressed-cladding inscribed in phosphate glasses by femtosecond hollow laser beams[J]. *Optics Letters*, 2012, 37(15): 3138-3140.
- [27] Beckmann D, Schnitzler D, Schaefer D, *et al.* Beam shaping of laser diode radiation by waveguides with arbitrary cladding geometry written with fs-laser radiation[J]. *Optics Express*, 2011, 19(25): 25418-25425.
- [28] Caulier O, Le Coq D, Bychkov E, *et al.* Direct laser writing of buried waveguide in As₂S₃ glass using a helical sample translation[J]. *Optics Letters*, 2013, 38(20): 4212-4215.
- [29] Liao Y, Qi J, Wang P, *et al.* Transverse writing of three-dimensional tubular optical waveguides in glass with a slit-shaped femtosecond laser beam[J]. *Scientific Reports*, 2016, 6: 28790.
- [30] Qi J, Wang P, Liao Y, *et al.* Fabrication of polarization-independent singlemode waveguides in lithium niobate crystal with femtosecond laser pulses[J]. *Optical Materials Express*, 2016, 6(8): 2554-2559.
- [31] Wang P, Qi J, Liu Z M, *et al.* Fabrication of polarization-independent waveguides deeply buried in lithium niobate crystal using aberration-corrected femtosecond laser direct writing[J]. *Scientific Reports*, 2017, 7: 41211.
- [32] Zhu G, Van Howe J, Durst M, *et al.* Simultaneous spatial and temporal focusing of femtosecond pulses[J]. *Optics Express*, 2005, 13(6): 2153-2159.
- [33] Oron D, Tal E, Silberberg Y. Scanningless depth-resolved microscopy[J]. *Optics Express*, 2005, 13(5): 1468-1476.
- [34] 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.
- [35] He F, Cheng Y, Lin J T, *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.
- [36] 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.
- [37] Vitek D N, Block E, Bellouard Y, *et al.* Spatiotemporally focused femtosecond laser pulses for nonreciprocal writing in optically transparent materials[J]. *Optics Express*, 2010, 18(24): 24673-24678.
- [38] 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.
- [39] Kim D, So P T C. High-throughput three-dimensional lithographic microfabrication[J]. *Optics Letters*, 2010, 35(10): 1602-1604.
- [40] 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.
- [41] 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.
- [42] Li G H, Ni J L, Xie H Q, *et al.* Second harmonic generation in centrosymmetric gas with spatiotemporally focused intense femtosecond laser pulses[J]. *Optics Letters*, 2014, 39(4): 961-964.
- [43] 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.
- [44] 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: e169.
- [45] 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.
- [46] Jesacher A, Booth M J. Parallel direct laser writing in three dimensions with spatially dependent aberration correction [J]. *Optics Express*, 2010, 18 (20): 21090-21099.
- [47] Couairon A, Mysyrowicz A. Femtosecond filamentation in transparent media[J]. *Physics Reports*, 2007, 441(2/3/4): 47-189.
- [48] Zhang Y L, Chen Q D, Xia H, *et al.* Designable 3D nanofabrication by femtosecond laser direct writing[J]. *Nano Today*, 2010, 5(5): 435-448.
- [49] Malinauskas M, Farsari M, Piskarskas A, *et al.* Ultrafast laser nanostructuring of photopolymers: a decade of advances[J]. *Physics Reports*, 2013, 533(1): 1-31.
- [50] 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.
- [51] Durnin J, Miceli Jr J J, Eberly J H. Diffraction-free beams[J]. *Physical Review Letters*, 1987, 58(15): 1499.
- [52] Duocastella M, Arnold C B. Bessel and annular beams for materials processing[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2012, 6(5): 607-621.
- [53] Bhuyan M K, Courvoisier F, Lacourt P A, *et al.* High aspect ratio nanochannel machining using single shot femtosecond Bessel beams[J]. *Applied Physics Letters*, 2010, 97(8): 081102.
- [54] He F, Yu J J, Tan Y X, *et al.* Tailoring femtosecond 1.5- μm Bessel beams for manufacturing high-aspect-ratio through-silicon vias[J]. *Scientific Reports*, 2017, 7: 40785.