

引用格式: LIU Yang, ZHU Xiangping, JIN Chuan, et al. High-quality Subwavelength Grating Structures Fabrication on Fused Silica Surfaces by Femtosecond Laser[J]. Acta Photonica Sinica, 2023, 52(7):0752307

刘洋,朱香平,靳川,等. 融石英表面高质量亚波长光栅结构的飞秒激光加工[J]. 光子学报, 2023, 52(7):0752307

融石英表面高质量亚波长光栅结构的 飞秒激光加工

刘洋,朱香平,靳川,张笑墨,赵卫

(1 中国科学院西安光学精密机械研究所,西安 710119)

(2 瞬态光学与光子技术国家重点实验室,西安 710119)

(3 中国科学院大学,北京 100049)

摘要:采用钛蓝宝石飞秒激光加工系统在融石英表面诱导表面周期性微纳结构,研究了激光诱导表面周期结构的形成过程以及激光能量密度、脉冲数、光斑大小和脉冲的空间间隔对融石英表面激光诱导表面周期结构的形貌的影响。实验结果表明,飞秒激光在融石英表面可以诱导出周期性的亚波长结构,主要以垂直于激光偏振方向的光栅状结构为主,其周期在百纳米量级且具有更好的可复现性。在激光光斑控制在 $1\ \mu\text{m}$ 附近时,所得到的形貌具有较高的规则性。根据实验结果设计了聚焦高斯光斑低通量的加工方式。所制备的光栅结构具有 $200\sim 300\ \text{nm}$ 的周期,平均深度约为 $300\ \text{nm}$ 。

关键词:飞秒激光加工;表面形貌;亚波长结构;融石英;周期性结构

中图分类号:TN249

文献标识码:A

doi:10.3788/gzxb20235207.0752307

0 引言

源于仿生学的“蛾眼”微纳结构在信息科学、生物医学和工业应用等领域具有很高的应用价值和发展前景^[1-4]。譬如在光学镜头表面制造特定的微纳结构,可使光在表面多次反射,达到“光陷”的效果,从而降低其界面由于菲涅尔反射导致的透过率损失^[5]。

自飞秒激光器发明以来,利用飞秒脉冲构造材料表面的方式在基础研究与实际应用中引起广泛关注^[6-7]。飞秒激光诱导周期表面结构(Laser-Induced Periodic Surface Structures, LIPSS)为大规模表面微纳结构的制造提供了稳健、灵活、非接触、简单和低成本的方法。通过使用超短激光脉冲,可以在几乎所有材料上单步生成周期显著低于激光波长的微纳结构^[8-9]。除了可在光学元件中实现对光的调制,近年来,激光诱导表面周期结构的应用价值已广泛延伸至各领域^[10-11]。在工业生产领域,它被用于一些材料的表面着色工艺,这种着色技术无需使用任何额外的化学物质或涂层技术。在信息技术领域,LIPSS的不规则性使得以该形式存储的信息难以被复制,因此可被开发为一种新的加密和防伪技术。在生物医疗领域,LIPSS结构可用于抵抗细菌膜对医疗器械表面的污染^[12]。LIPSS在大多数情况下表现为垂直于激光偏振方向的周期性结构,偶尔有平行于偏振方向的LIPSS的报道^[12-13]。一些学者根据LIPSS结构周期的尺度将其大致分为在原诱导激光波长 $\lambda/2$ 附近的高空间频率LIPSS(High-Spatial-Frequency LIPSS, HSLF)和与 λ 相仿的低空间频率LIPSS(Low-Spatial-Frequency LIPSS, LSLF),但是现实中LIPSS形貌的特征要更复杂,种类和形式更加多样化。且在不同材料上的LIPSS区别十分显著^[10],因此对LIPSS的总结研究工作仍有很长的路要走。

基金项目:国家自然科学基金国家重大科研仪器研制项目(No. 52127817),中国科学院重大科研仪器设备研制项目(No. ZDKYYQ20220007)

第一作者:刘洋, liuyang@opt.cn

通讯作者:赵卫, weiz@opt.ac.cn

收稿日期:2023-04-06; **录用日期:**2023-06-21

<http://www.photon.ac.cn>

关于LIPSS结构的形成机制目前尚无统一意见。目前主流的解释包括表面等离子体干涉^[13]、纳米等离子体激发^[14]、二次谐波激发^[15]、自组织^[16]等。但研究人员普遍认为,LIPSS形成的过程中伴随着表面等离子体(Surface Plasmon, SP)的参与。目前关于LIPSS结构的研究主要集中在金属和半导体材料领域。而关于在融石英表面的LIPSS的报道较为稀少^[17]。2019年,PAPADOPOULOS A等使用1 026 nm的飞秒激光在融石英上诱导出亚波长纳米柱结构^[18],使样品的透射率在全部入射方向上均有不同程度的提升。融石英作为光学元件所用的最常见材料,在其表面制造光学微纳结构具有重要的意义。尽管LIPSS结构更容易在表面具有大量自由电子的金属材料中观察到,但非金属材料在超短脉冲激光的作用下可以在材料表面激发出大量电子,使表面具有暂时的金属化行为,从而获得与金属表面相似的周期性结构^[19]。在实际操作中,对LIPSS形貌形成的控制非常困难。LIPSS形成的过程对材料类型、加工参数甚至外界氛围均高度敏感^[20],这阻碍了周期结构的再现性和均匀性。

本文通过使用钛蓝宝石飞秒激光加工系统,研究了飞秒激光在融石英窗口上诱导LIPSS形貌的一般规律。通过设计实验,研究了不同的激光参数如能量密度、重频、脉冲数、光斑尺寸以及脉冲的空间间隔对融石英材料表面LIPSS形貌的影响。最终采用优化的加工方案制备光栅状结构。

1 实验

采用武汉优光科技有限责任公司的融石英窗口片(未镀膜)作为样品进行实验,具体参数如表1。

表1 实验用融石英玻璃相关参数
Table 1 Parameters of fused silica in experiment

Parameters	Values
Optical homogeneity	$<8 \times 10^{-6}$
Coefficient of thermal expansion	$0.58 \times 10^{-6}/\text{K}$ (0 °C to 200 °C)
Density	2.201 g/cm ³
Dimension (radius)	100 mm
Thickness	1 mm \pm 0.05 mm

将融石英窗口片分割成若干10 mm \times 10 mm的样品块,放置在超声清洗机内超声清洗10 min以去除表面杂质和污渍,使用Spectra-Physics商用钛蓝宝石激光器系统产生中心波长为800 nm的线偏振激光,单次脉冲为100 fs,重复频率在10~1 000 Hz范围内可调节,具体参数见表2。

表2 飞秒激光加工系统参数
Table 2 Parameters of femtosecond laser micromachining system

Parameters	Values
Centre wavelength	800 nm
Pulse duration	100 fs
Repetition frequency	10~1 000 Hz
Maximum power	5.4 W
Beam quality	$M^2 \leq 1.24$

实验所用加工系统为试验室自己搭建的一套激光加工平台,其组成如图1所示,使用可调节光圈控制入瞳,利用衰减片控制入射激光的功率,并利用THORLABS激光功率计在输出端对显微物镜聚焦后的光斑进行功率标定,结合光斑大小计算能量密度。使用显微物镜聚焦激光光斑,物镜参数见表3。使用激光器控制程序改变重频,用电控三维高精度加工台控制加工的扫描速度,通过沿Z轴移动样品控制焦点与样品表面相对位置来控制光斑大小。使用同步机械快门控制曝光时间。所有实验均在23 °C下进行,最终加工过的样品使用扫描电子显微镜(Scanning Electron Microscope, SEM)进行表征。

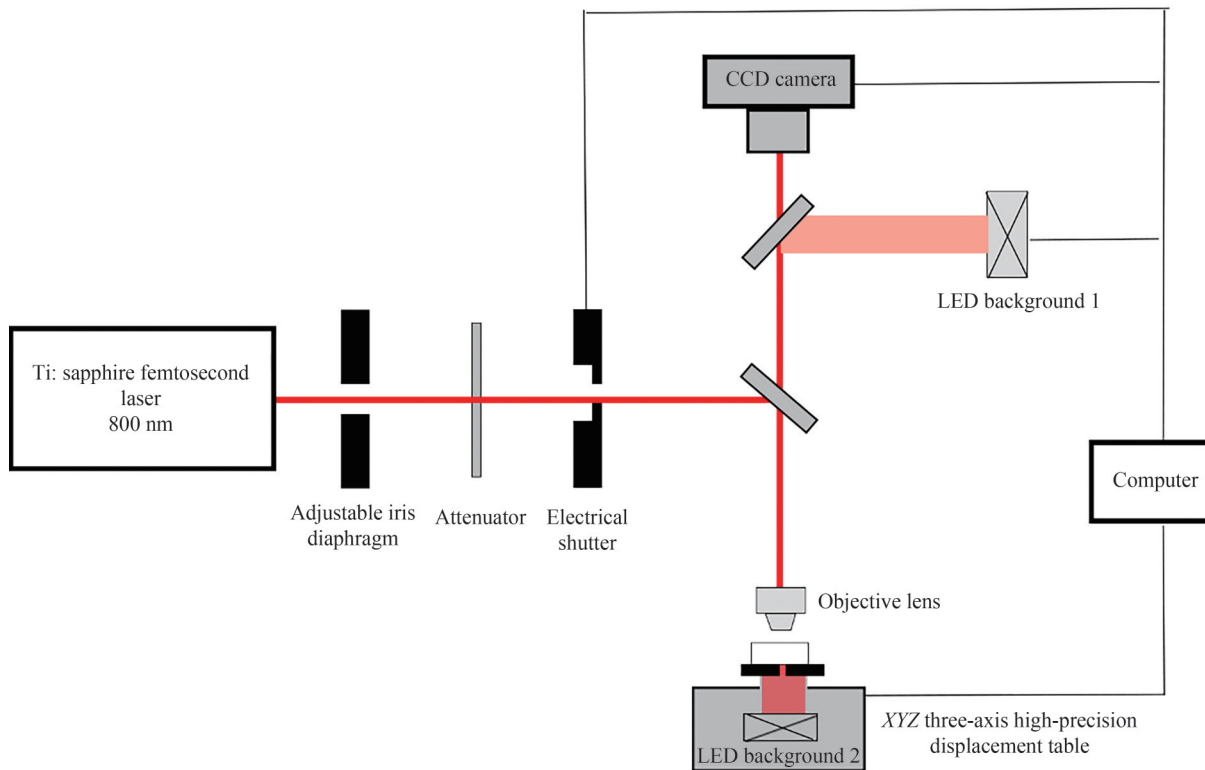


图1 飞秒激光高精度加工系统

Fig.1 Femtosecond laser high-precision machining system

表3 加工物镜参数

Table 3 Parameters of objective

Parameters	Values
Wavelength range	Visible to NIR
Magnification	20×
Working distance	2.1 mm
Numerical aperture	0.5
Cover glass thickness	0.17 mm

2 实验结果

2.1 能量密度对形貌的影响

合适的能量密度(Fluence, F_1)是构筑LIPSS的最重要因素,过低的能量密度无法超过材料的阈值,无法使材料表面暂时金属化,因此无法诱导出LIPSS结构。将超声清洗后的样品固定于XYZ三维控制台上,调平样品表面使之垂直于Z轴,首先控制光斑直径(D)在 $8\ \mu\text{m}$ 。为了便于快门控制,设定重复频率(f_{rep})为100 Hz,单次曝光时间为100 ms,即脉冲数(N)为10。能量密度由THORLABS光功率计测量后结合光斑大小计算得。

实验选取的能量密度(Fluence, F_1)分别为 $2.5\ \text{J}/\text{cm}^2$ 、 $5\ \text{J}/\text{cm}^2$ 、 $26\ \text{J}/\text{cm}^2$ 、 $7\ \text{J}/\text{cm}^2$ 、 $8\ \text{J}/\text{cm}^2$ 。表征结果如图2所示。在激光能量密度小于本体阈值时出现两种情况,在能量密度为 $2.5\ \text{J}/\text{cm}^2$ 时,表面无明显形貌变化(见图2(a)),在能量密度为 $5\ \text{J}/\text{cm}^2$ 时,此时低于材料阈值,但表面形貌发生了变化,产生不规则的纳米柱状结构,这是由于脉冲激光的孵化效应导致(见图2(b)),孵化效应在纳秒脉冲激光烧蚀金属期间首次观察到,是指通过连续多次飞秒或皮秒脉冲作用于样品表面,使其价带和导带之间形成电子缺陷,从而改变局部的结构与性质并降低其烧蚀阈值^[21]。在激光能量高于阈值时,随着能量密度的增加,光斑影响区的中心逐渐出现不同的形貌,主要为光栅状,垂直于激光的偏振方向,周期约为400 nm。随着能量密度升高,中心区的条纹状周期结构占比变高,同时伴随着周期增加的趋势(见图3)。

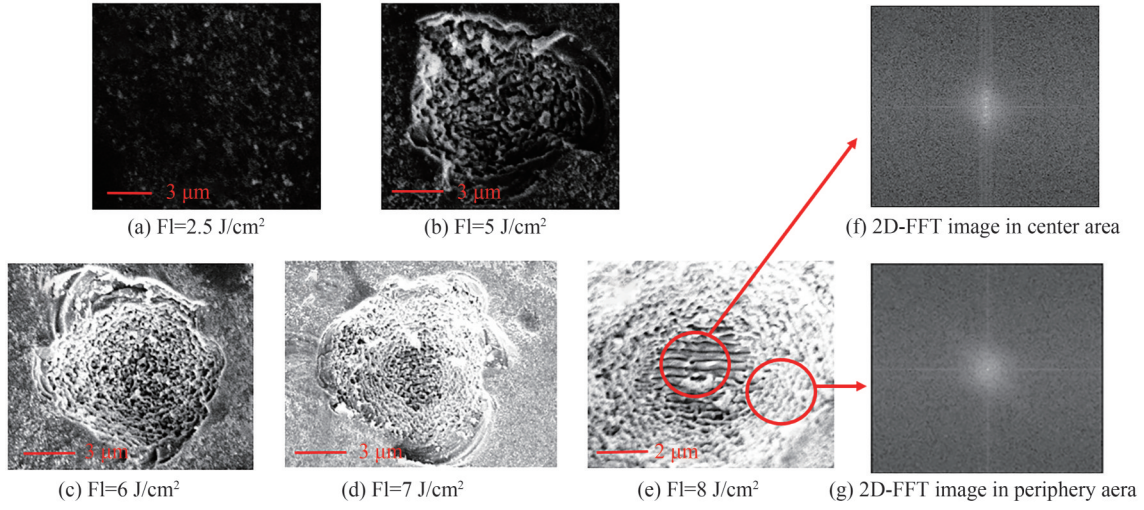


图2 不同能量密度下的LIPSS形貌
Fig.2 LIPSS morphology under different laser fluence

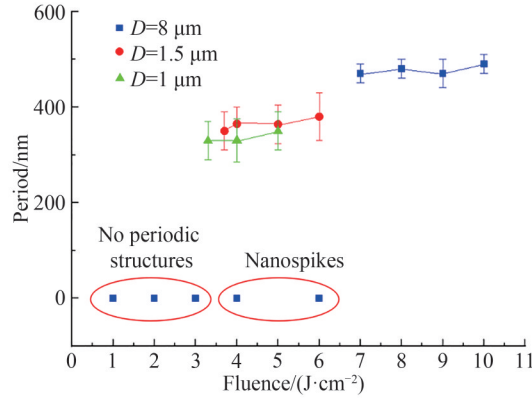


图3 能量密度与周期的关系
Fig.3 The dependence of period on laser fluence

根据LIPSS结构产生的激光-等离子体相互作用理论模型,表面被激发的等离子体与入射激光相干矢量为^[22]

$$G = k_i - k_s \quad (1)$$

式中, k_i 为入射激光的波矢, k_s 为表面等离子体的波矢。在界面处,可得到^[22]

$$\Lambda = \frac{\lambda}{\frac{\lambda}{\lambda_s} \pm \sin\theta} \quad (2)$$

式中, $\Lambda = 2\pi|G|^{-1}$,入射激光的波长 $\lambda = 2\pi|k_i|^{-1}$, $\lambda_s = 2\pi|k_s|^{-1}$,空气与材料的界面处的干涉公式为^[23]

$$\lambda_s = \lambda \left(\frac{\epsilon' + \epsilon_d}{\epsilon' \epsilon_d} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3)$$

式中, ϵ' 为被激光激发的材料表面介电常数的实部(对于高激发表面,应满足金属化条件 $\epsilon' < -1$), ϵ_d 为介质的介电常数。

根据Lorentz-Drude模型,受激发表面的等效介电常数表示为^[24]

$$\epsilon^* = \epsilon + \Delta\epsilon_d = \epsilon - \frac{e^2 \cdot N_e}{\epsilon_0 \cdot m_{opt} \cdot m_e \cdot \omega^2 \left(1 + \frac{i}{\omega \cdot \tau_D} \right)} \quad (4)$$

式中, ϵ 表示未激发材料的介电常数, $\Delta\epsilon_d$ 表示介电常数受到激发时的修正部分, e 表示基本电荷, ϵ_0 为真空介

电常数, $m_{opt}=0.49$ 为载流子的光学有效质量, m_e 为电子的有效质量, ω 为激光角频率, $\tau_D=0.4$ fs 为 Drude 阻尼时间, N_e 表示激光激发的载流子密度, 在 BONSE J 等提出的近似模型中^[25](仅考虑材料中线性双光子吸收), 有

$$N_e \approx \frac{F(1-R) \left[\frac{\alpha + \beta F(1-R)}{2\sqrt{2\pi\tau}} \right]}{h\nu} \quad (5)$$

式中, α 为线性吸收系数, R 为表面反射率, β 为双光子吸收系数, $h\nu$ 表示光子的能量。对于 $\epsilon' < -1$, 随着 N_e 的降低, $|\epsilon|$ 减小, λ_s 减小, 在正入射时得到减小的 Δ 。

2.2 光斑大小对形貌的影响

较大的光斑难以控制 LIPSS 的形貌。通过对金属表面 LIPSS 的研究发现^[18], 较小光斑诱导的 LIPSS 形貌更加规则, 这是由于在小的照射区域上可以更容易地保持激发表面波的空间相干性。基于此, 本文研究了降低光斑尺寸对融石英表面 LIPSS 形貌的影响。高斯光束的光强分布呈现中间能量集中, 边缘能量较低的特性。为了使光强的分布更加均匀, 利用阈值效应的原理, 如图 4 所示, 使光斑边缘能量分散的区域远低于融石英的阈值从而不改变材料的形貌, 使光斑能量集中区域大于阈值, 改变材料的形貌。不仅如此, 通过阈值效应可以进一步将光斑尺寸降低到衍射极限以下。因此在光斑直径聚焦至 $2 \mu\text{m}$ 左右的衍射极限后, 所述的光斑直径是以实际上多次脉冲后明确产生形貌变化的区域的直径来衡量, 实际上是指光斑影响区, 而非传统的以光强降至峰值的 $1/e^2$ 位置为直径定义的光斑。

实验通过沿 z 轴上下移样品台的方式控制光斑尺寸, 并结合降低激光能量的方式, 将光斑尺寸降低到衍射极限以下。根据样品的表征结果(见图 5), 随着光斑尺寸降低, LIPSS 结构的质量明显提高, 体现出较强的周期性, 没有大光斑高阈值时的不规则轮廓且结构较为单一, 在光斑影响区缩小至 $1 \mu\text{m}$ 时, 仅出现较窄平行的数条条带状 LIPSS, 周期约为 $200 \sim 300$ nm。

为了验证 2.1 节的结论, 在小光斑尺寸的情况下研究了不同的能量密度对形貌的影响。选取 $D=1.5 \mu\text{m}$ 和 $D=1 \mu\text{m}$ 两种情况, 分别对比了提高能量密度前后 LIPSS 结构的变化。表征结果如图 6 所示, 增大能量密度后 LIPSS 结构的中心区域被破坏, 烧蚀出现一个凹坑, 同时伴随着结构的周期的增大(此处周期变大的原因与 2.1 节能量密度与周期的关系一致)。在此光斑尺寸下, 保持条纹结构不会被破坏的 F1 大约为

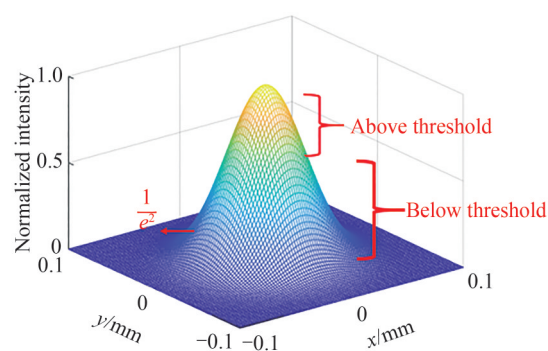


图 4 阈值效应加工原理示意图

Fig.4 Schematic diagram of threshold effect processing principle

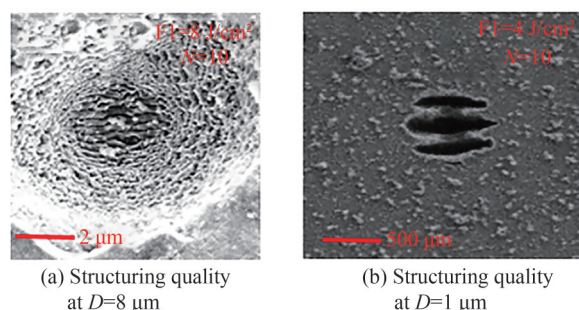


图 5 不同光斑大小下的 LIPSS 质量

Fig.5 LIPSS quality under different spot sizes

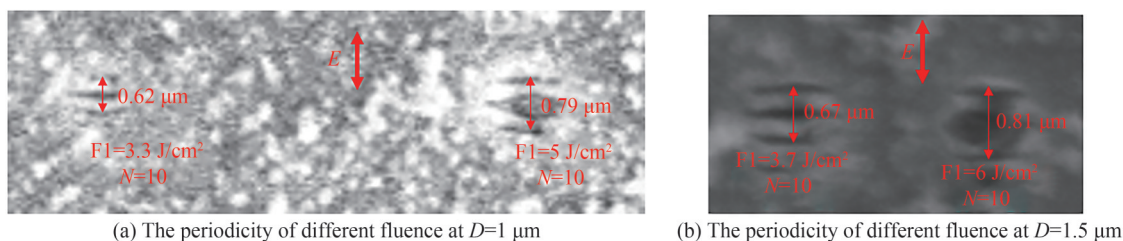


图 6 小光斑、低能量密度条件下的 LIPSS 周期与能量密度的关系

Fig.6 The relationship between LIPSS period and laser fluence under small spot size and low laser fluence conditions

4 J/cm²左右(此处条纹结构不会被破坏的含义指结构仍可以用“条纹”来描述,中心条纹没有被烧蚀出凹坑)。为了便于对比,将此处整理后的实验数据整合在图3。

2.3 小光斑条件下LIPSS形貌随脉冲数的演化

在2.2节的实验基础上,实验研究了结构随脉冲数量的演化。 D 设置为1 μm ,选取了脉冲数(N)为1、3、5、10时得到的LIPSS结构。扫描电镜表征的结果见图7,随着脉冲数的增加,条纹状结构周期性逐渐显现,在 $N=5$ 时可以看出明显的周期性条纹状结构。 $N=10$ 时条纹的周期明显降低,条纹结构更加规则,整体质量得到提升。整合大量实验数据后得到了一般性规律,即LIPSS的周期随着脉冲数量的增加而降低,见图8。

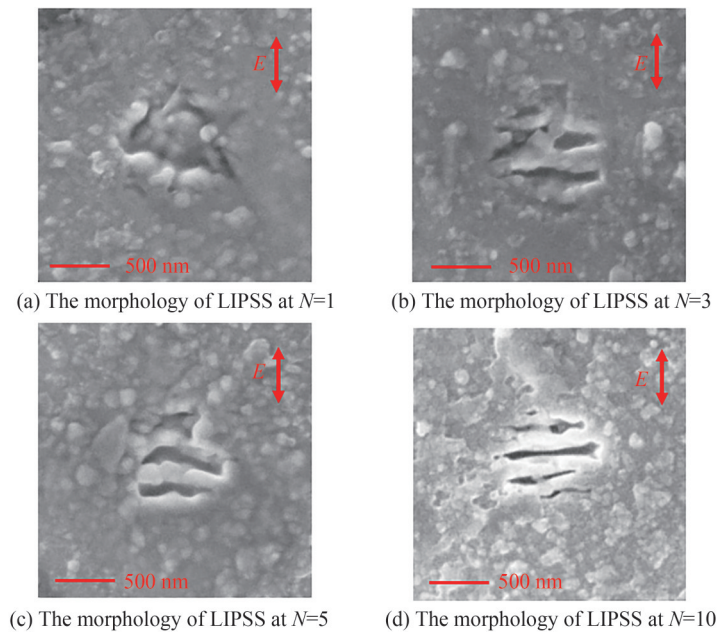


图7 不同脉冲数的LIPSS形貌

Fig.7 LIPSS morphology with different pulse number

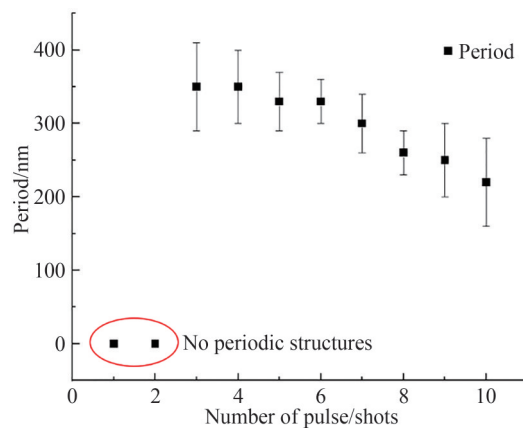


图8 脉冲数与LIPSS周期的相关趋势

Fig.8 The correlation trend between pulse number and LIPSS period

2.4 重复频率对形貌的影响

实验中将激光重复频率(f_{rep})由100 Hz提升至1 000 Hz, $N=10$, $D=1 \mu\text{m}$ 。经过反复实验对比发现, f_{rep} 在100 Hz和1 000 Hz时得到的LIPSS无论是周期还是形貌质量并无明显变化,如图9。因此在实际生产过程中,通过提高脉冲激光的重复频率来提高LIPSS结构的加工效率是可行方案之一。

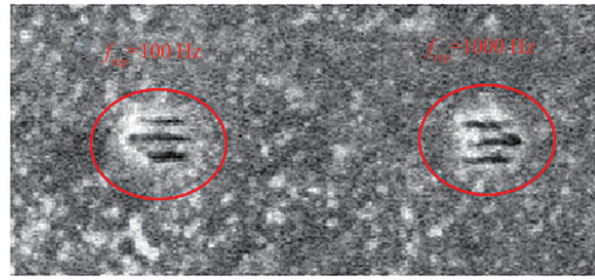


图9 不同重复频率的LIPSS形貌
Fig.9 LIPSS morphology under different laser repetition

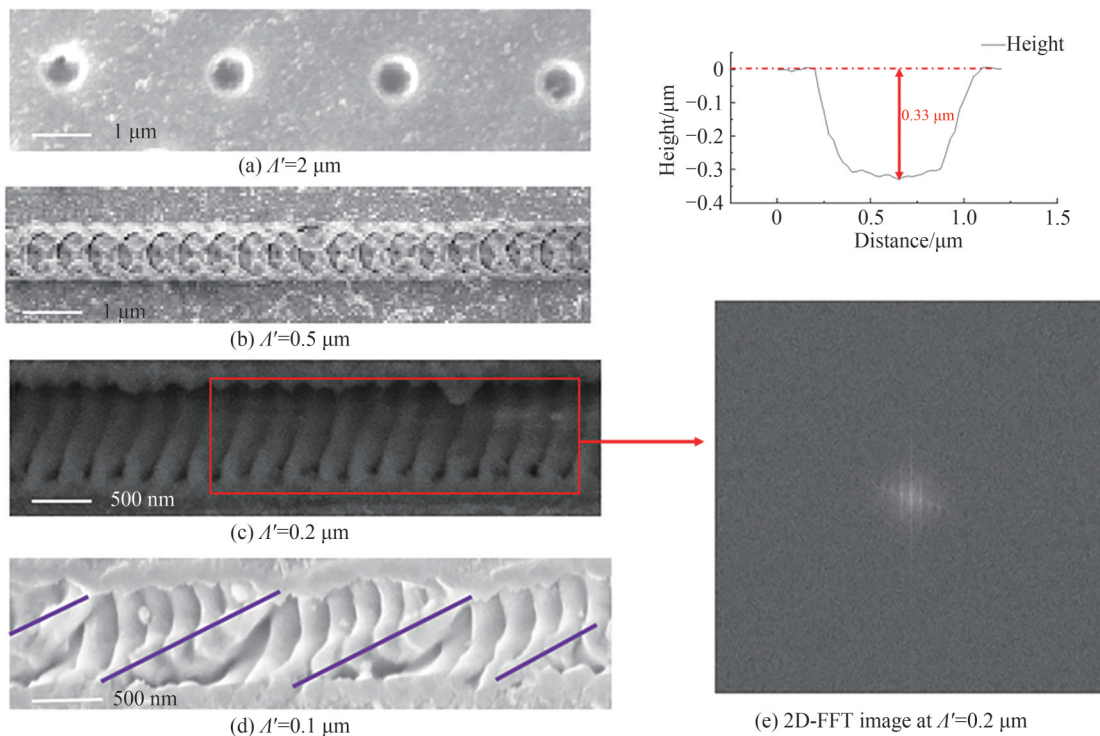
2.5 扫描脉冲间隔对形貌的影响

基于上述实验发现,要在实际生产中高质量地制造LIPSS结构,需要在低通量、小光斑的条件下进行。同时,注意到在线扫描加工的过程中,每发单脉冲会随着扫描方向上的速度在空气中经历相同的飞行时间分别到达材料的不同部位,脉冲之间的间隔 Δ' 可表示为

$$\Delta' = \frac{v_s}{f_{\text{rep}}} \quad (6)$$

式中, v_s 为激光的扫描速度, f_{rep} 为激光的重复频率。在实验中,可以通过控制扫描速度与重复频率来控制脉冲间隔。由于多脉冲的原位加工可以被视为 $\Delta' = 0$ 的极限情况,而 Δ' 较大时表面仅能观察到分立的凹坑,见图10(a),因此推断 Δ' 与LIPSS的周期之间应当存在某种联系。

实验得到的LIPSS的周期约为200~300 nm。实验中通过改变激光的扫描速度来控制脉冲的空间间隔,线扫方向平行于激光偏振方向。电镜表征结果如图10所示。当 Δ' 过大时,被扫描区域仅出现分立脉冲所形成的独立凹坑,不会出现条纹状或光栅状LIPSS。当 Δ' 与LIPSS的周期相仿时,被扫描区域出现整齐的、周期性较强的长程排列的LIPSS结构带,方向垂直于激光的偏振方向,结构的二维快速傅里叶变换(Two Dimensional Fast Fourier Transform, 2D-FFT)图展示了其周期性。当 Δ' 过小时,结构质量下降,周期性被破坏,出现了另一个叠加的周期结构,见图10(d),周期约为1 μm ,且周期方向不再垂直于激光偏振方向。目前关于这个叠加的周期结构成因尚不明确,将作为后续工作的重点进一步研究。最终实验在 $v_s = 20 \mu\text{m/s}$,重复



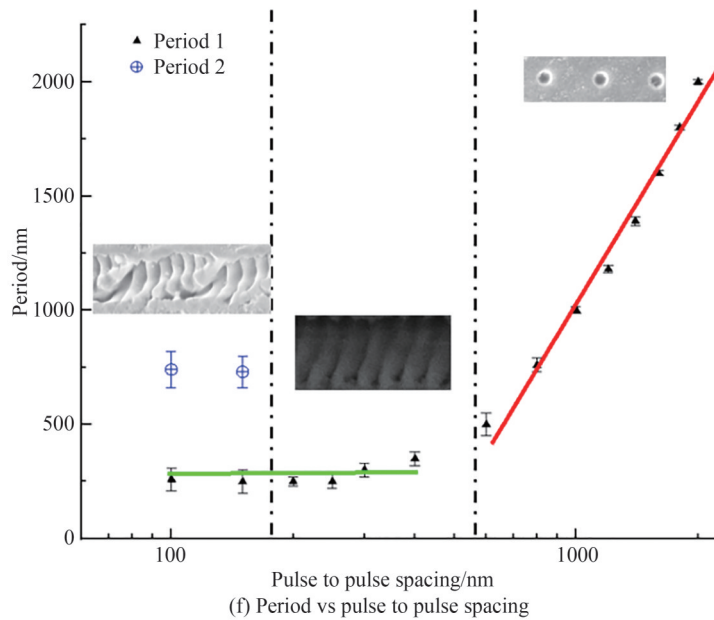


图10 不同的脉冲空间间隔与周期的对比

Fig.10 Comparison of different pulse to pulse spacing and periods

频率为 100 Hz, 光斑直径为 $1\ \mu\text{m}$, 能量密度为 $4.2\ \text{J}/\text{cm}^2$ 的条件下, 得到了周期约为 200~300 nm, 平均深度为 300 nm 的长程的高质量 LIPSS, 周期性较强且具有较高的可控性。

3 结论

本文使用 800 nm、100 fs 的钛蓝宝石飞秒激光加工系统在融石英表面诱导 LIPSS 结构, 并通过扫描电镜对其形貌进行了表征。实验研究了激光的能量密度、重复频率、加工的光斑大小、脉冲数量以及脉冲的空间间隔对 LIPSS 结构的影响。实验结果表明, 合适的能量密度与较小的光斑是在融石英表面诱导高质量 LIPSS 的重要条件。同时 LIPSS 的周期会随着能量密度的降低以及脉冲数的增加而降低。实验中仅激光重复频率的改变并不会对形貌产生影响。扫描速度对激光扫描加工 LIPSS 有至关重要的影响。固定的重复频率下, 扫描速度影响到达融石英表面的脉冲的空间间隔, 对 LIPSS 的形成产生至关重要的影响。实验发现, 当脉冲的空间间隔与 LIPSS 结构相仿时, 激光扫描区域出现高质量、长程分布的光栅状 LIPSS。最后在能量密度为 $4.2\ \text{J}/\text{cm}^2$, 光斑大小为 $1\ \mu\text{m}$, 扫描速度为 $20\ \mu\text{m}/\text{s}$ 的参数条件下, 得到了平均周期 200~300 nm, 平均深度为 300 nm 的高质量的长程光栅结构。研究结果对于推动融石英表面增透、增反等微纳光学结构的发展具有参考意义。

参考文献

- [1] MÜLLER F A, KUNZ C, GRÄF S. Bio-inspired functional surfaces based on laser-induced periodic surface structures [J]. *Materials*, 2016, 9(6): 476.
- [2] PIMPIN A, SRITURAVANICH W. Review on micro- and nanolithography techniques and their applications [J]. *Engineering Journal*, 2011, 16: 37-56.
- [3] SEISYAN R. Nanolithography in microelectronics: a review [J]. *Technical Physics*, 2011, 56: 1061-1073.
- [4] FU Yuegang, OUYANG Mingzhao, WU Jinshuang. Anti-reflective micro-nano surface technology based on "moth-eye" inspiration [J]. *Flight Control & Detection*, 2018, 1(2): 1-10.
付跃刚, 欧阳名钊, 吴锦双. 基于“蛾眼”灵感的抗反射微纳结构表面技术 [J]. *飞控与探测*, 2018, 1(2): 1-10.
- [5] BUSSE L E, FRANTZ J A, SHAW L B, et al. Review of antireflective surface structures on laser optics and windows [J]. *Applied Optics*, 2015, 54(31): F303-F310.
- [6] SUGIOKA K, CHENG Y. Ultrafast lasers-reliable tools for advanced materials processing [J]. *Light: Science & Applications*, 2014, 3(4): e149.
- [7] OSELLAME R, HOEKSTRA H J W M, CERULLO G, et al. Femtosecond laser microstructuring: an enabling tool for optofluidic lab-on-chips [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2011, 5(3): 442-463.

- [8] LIN Z, HONG M. Femtosecond laser precision engineering: from micron, submicron, to nanoscale[J]. *Ultrafast Science*, 2021, 2021: 9783514.
- [9] BONSE J, KRÜGER J, HÖHM S, et al. Femtosecond laser-induced periodic surface structures[J]. *Journal of Laser Applications*, 2012, 24(4): 042006.
- [10] BONSE J, KIRNER S V, KRÜGER J. Laser-Induced Periodic Surface Structures (LIPSS)[J]. *Handbook of Laser Micro-and Nano-engineering*, 2020: 1-59.
- [11] ZHANG Y, JIANG Q, LONG M, et al. Femtosecond laser-induced periodic structures: mechanisms, techniques, and applications[J]. *Opto-Electronic Science*, 2022, 1(6): 220005.
- [12] LUTEY A H A, GEMINI L, ROMOLI L, et al. Towards laser-textured antibacterial surfaces[J]. *Scientific Reports*, 2018, 8(1): 1-10.
- [13] SIPE J E, YOUNG J F, PRESTON J S, et al. Laser-induced periodic surface structure. I. Theory[J]. *Physical Review B*, 1983, 27(2): 1141.
- [14] LIANG F, VALLÉE R, CHIN S L. Mechanism of nanograting formation on the surface of fused silica [J]. *Optics Express*, 2012, 20(4): 4389-4396.
- [15] DUFFT D, ROSENFELD A, DAS S K, et al. Femtosecond laser-induced periodic surface structures revisited: a comparative study on ZnO[J]. *Journal of Applied Physics*, 2009, 105(3): 034908.
- [16] REIF J, COSTACHE F, HENYK M, et al. Ripples revisited: non-classical morphology at the bottom of femtosecond laser ablation craters in transparent dielectrics[J]. *Applied Surface Science*, 2002, 197: 891-895.
- [17] HÖHM S, ROSENFELD A, KRÜGER J, et al. Femtosecond laser-induced periodic surface structures on silica [J]. *Journal of Applied Physics*, 2012, 112(1): 014901.
- [18] PAPAPOPOULOS A, SKOULAS E, MIMIDIS A, et al. Biomimetic omnidirectional antireflective glass via direct ultrafast laser nanostructuring[J]. *Advanced Materials*, 2019, 31(32): 1901123.
- [19] RUDENKO A, COLOMBIER J P, HÖHM S, et al. Spontaneous periodic ordering on the surface and in the bulk of dielectrics irradiated by ultrafast laser: a shared electromagnetic origin[J]. *Scientific Reports*, 2017, 7(1): 12306.
- [20] GNILITSKYI I, DERRIEN T J Y, LEVY Y, et al. High-speed manufacturing of highly regular femtosecond laser-induced periodic surface structures: physical origin of regularity[J]. *Scientific Reports*, 2017, 7(1): 1-11.
- [21] NISO F D, GAUDIUSO C, SIBILLANO T, et al. Role of heat accumulation on the incubation effect in multi-shot laser ablation of stainless steel at high repetition rates[J]. *Optics Express*, 2014, 22: 12200-12210.
- [22] HUANG M, ZHAO F, CHENG Y, et al. Origin of laser-induced near-subwavelength ripples: interference between surface plasmons and incident laser[J]. *ACS Nano*, 2009, 3(12): 4062-4070.
- [23] RAETHER H. Plasmons on smooth and rough surfaces and on gratings[J]. *Springer Tracts in Modern Physics*, 1988: 10.
- [24] GRÄF S, KUNZ C, ENGEL S, et al. Femtosecond laser-induced periodic surface structures on fused silica: The impact of the initial substrate temperature[J]. *Materials*, 2018, 11(8): 1340.
- [25] BONSE J, ROSENFELD A, KRÜGER J. On the role of surface plasmon polaritons in the formation of laser-induced periodic surface structures upon irradiation of silicon by femtosecond-laser pulses[J]. *Journal of Applied Physics*, 2009, 106(10): 104910.

High-quality Subwavelength Grating Structures Fabrication on Fused Silica Surfaces by Femtosecond Laser

LIU Yang^{1,2,3}, ZHU Xiangping^{1,2,3}, JIN Chuan^{1,2,3}, ZHANG Xiaomo^{1,2,3}, ZHAO Wei^{1,2,3}
(1 *Xi'an Institute of Optics and Precision Machinics, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710119, China*)
(2 *State Key Laboratory of Transient Optics and Photonics Technology, Xi'an 710119, China*)
(3 *University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

Abstract: The “moth eye” micro-nano structure has recently attracted much attentions due to its high potential value in scientific, biomedical, and industrial applications. For example, by manufacturing specific micro-nanostructures on the surface of an optical device, the incident light would be reflected multiple times on its surface, which lets the surface achieve the co-called “light trap effect”, reducing the transmission loss caused by Fresnel reflection at the interface. Laser Induced Periodic Surface Structures (LIPSS) provide a robust, flexible, non-contact, simple, and low-cost potential method for the fabrication of large-scale surface micro-nanostructures. As the most frequently used material on optical

devices, it is of great significance to study the fabrication of optical micro-nanostructures on fused silica surfaces.

In this paper, by using Ti:sapphire femtosecond laser processing system, the general laws of femtosecond laser induced LIPSS morphology on fused silica samples have been studied. Through designed experiments, the effects of different laser fluence and repetition frequency, pulse number, spot size, and pulse spatial interval on the morphology of LIPSS on fused silica surface were studied. We also focus on how to obtain the high-quality LIPSS, which can have a great impact on the final performance of the device.

Different fluences were first set in the experiments. It was found that at a laser fluence of 5 J/cm^2 , irregularly arranged nanospikes were densely distributed in the crater, and at 7 J/cm^2 , ripple-like structures appeared in the center of the crater. After that, as the laser fluence increased, the periodicity increased, accompanied by an increase in proportion. A laser surface plasma interference model is used to explain the relationship between periodicity and laser fluence, which is in good agreement with the observed phenomena.

In order to investigate the effect of laser spot size (or the influence area size of laser spot) on the morphology of LIPSS, diminished laser spot sizes were set to observe the changes. To further reduce the size of laser spot, the concept of threshold effect was adapted. The results show that by the reduction of laser spot size, the LIPSS stripe becomes more regular. A grating-like LIPSS with good quality can be obtained under the $1 \mu\text{m}$ diameter of laser spot when the laser fluence is set around 3.7 J/cm^2 .

The effects of pulse number and laser repetition rate on LIPSS were also studied in this work. The results showed that only some defects could be observed on the surface when the pulse number was set to 1. As the pulse number increased, the ripple-like structures gradually appeared, but were irregular. When the pulse number was set to be 10, relatively intact fringes showed up. It is found that the periodicity of the fringes showed a decreasing trend with the increase of the pulse number. It is also found that changing the laser repetition rate alone has no significant impact on the morphology of LIPSS.

Considering that laser fabrication is a line scanning process, there is a certain spatial distance between pulses. Therefore, we studied the effect of pulse spatial interval on the morphology of LIPSS. The results showed that when the spatial interval of pulses is similar to the periodicity that the LIPSS structure under current parameter conditions, high-quality, regular, long-range arrayed grating structures can be obtained. Specifically, we adopt the following parameters, $1 \mu\text{m}$ diameter of laser spot, a scanning speed of $20 \mu\text{m/s}$, repetition rate 100 Hz , and laser fluence 4.2 J/cm^2 , and a highly regular long range aligned nanograting structure was fabricated, with a period of $200\sim 300 \text{ nm}$ and the depth of about 300 nm . The results found in this work may be conducive to promoting the development of surface micro-nano optical structures on fused silica.

Key words: Femtosecond laser processing; Surface morphology; Subwavelength structures; Fused silica; Periodic structure

OCIS Codes: 320.7090; 050.6624; 160.6030