

# 飞秒激光烧蚀 $\text{LiNbO}_3$ 晶体的形貌特征与机理研究<sup>\*</sup>

余本海 戴能利 王 英 李玉华 季玲玲 郑启光 陆培祥<sup>†</sup>

(华中科技大学 武汉光电国家实验室激光科学与技术部, 光电子科学与工程学院, 武汉 430074)

(2007 年 1 月 4 日收到, 2007 年 2 月 4 日收到修改稿)

采用了不同能量的单脉冲和多脉冲飞秒激光对  $\text{LiNbO}_3$  晶体进行烧蚀, 并刻蚀了表面衍射型光栅. 通过扫描电镜和原子力显微镜观察了烧蚀点的形貌特征, 首次发现利用单束飞秒激光脉冲对  $\text{LiNbO}_3$  晶体烧蚀, 可以得到超衍射极限的烧蚀点, 当聚焦光斑直径约为  $2 \mu\text{m}$ 、能量为 170 nJ 的单脉冲飞秒激光作用时, 烧蚀点的直径约为 400 nm, 100 nJ, 17 个脉冲作用时烧蚀点的直径约为 800 nm. 同时可以观察到在能量较低的多脉冲飞秒激光作用下,  $\text{LiNbO}_3$  晶体呈现出大约 200 nm 周期性分布的波纹状结构. 实验结果表明, 选择合适参数的飞秒激光脉冲可以对  $\text{LiNbO}_3$  晶体进行超衍射极限加工, 这对于利用飞秒激光制作  $\text{LiNbO}_3$  基质的微纳光电子器件有十分重要的意义.

关键词: 飞秒激光,  $\text{LiNbO}_3$  晶体, 衍射极限, 烧蚀阈值

PACC: 4255R, 4262A, 4265

## 1. 引 言

近年来, 利用飞秒激光的非线性效应对透明材料的烧蚀与改性研究受到极大关注<sup>[1-9]</sup>, 并已经应用于制作光波导<sup>[10, 11]</sup>、光耦合<sup>[12]</sup>、光存储<sup>[13]</sup>等光电子器件领域. 利用飞秒激光双光子微加工技术可以在  $\text{SU-8}$ <sup>[14]</sup>、 $\text{Polymer}$ <sup>[15]</sup>等材料上进行超衍射极限加工, 为飞秒激光在纳米光信息存储、纳米光刻以及制作微机械等应用开辟了光明的前景.

铌酸锂( $\text{LiNbO}_3$ )晶体是一种优良的多功能晶体材料, 可用于压电、电光、声光、非线性光学和光折变等技术领域. 利用  $\text{LiNbO}_3$  和掺杂  $\text{LiNbO}_3$  晶体的特性, 可用来制做压电换能器、声表面波器件、光波导器件、全息存储器件、传感器件和隔离器、循环器件等<sup>[16, 17]</sup>. 近年来, 随着飞秒激光微纳精密加工的发展, 利用飞秒激光烧蚀、改性  $\text{LiNbO}_3$  晶体制作光波导器件和光存储器件已经成为热点<sup>[18-21]</sup>, 但所报道的烧蚀点的尺寸均大于衍射极限. 如 Zhou 等人采用 740 nm 飞秒激光,  $1.4 \times$  油浸物镜(衍射极限约为 640 nm)得到的烧蚀点直径约为  $1.2 \mu\text{m}$ <sup>[18]</sup>.

本工作实验研究了飞秒激光脉冲与  $\text{LiNbO}_3$  晶体的相互作用, 采用不同能量的单脉冲和多脉冲飞

秒激光对  $\text{LiNbO}_3$  晶体进行烧蚀, 以 50 nJ 的单脉冲能量、300  $\mu\text{m/s}$  的速率、5  $\mu\text{m}$  的线间距在  $\text{LiNbO}_3$  晶体表面刻蚀了  $2 \text{mm} \times 2 \text{mm}$  的表面衍射型光栅. 通过场发射扫描电镜和原子力显微镜观察了烧蚀点的形貌特征, 首次发现利用单束飞秒激光作用透明晶体材料, 只要激光脉冲的能量和数量选择合适, 都可以得到小于衍射极限的烧蚀点. 本实验是直接利用单束飞秒激光作用透明晶体材料实现超衍射极限加工, 这对于利用飞秒激光制作微纳光电子器件有着十分重要的意义.

## 2. 实 验

实验装置如图 1 所示, Ti:Sapphire 激光系统输出激光的脉冲宽度为  $50 \pm 5 \text{fs}$ , 中心波长为 800 nm, 重复频率为 1000 Hz, 激光脉冲能量在 0—2 mJ 连续可调, 与  $\text{LiNbO}_3$  晶体作用的脉冲数量通过机械快门控制, 并通过数值孔径为 0.5 的 20 倍物镜聚焦在样品上表面. 根据光斑直径  $D$  与激光波长  $\lambda$  和聚焦物镜数值孔径  $NA$  (numerical aperture) 的关系:  $D = 1.22 \times \frac{\lambda}{NA}$ , 聚焦后照射在样品表面的束斑直径约为  $2 \mu\text{m}$ . 三维控制平台在  $X$ 、 $Y$  轴的控制精度为

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金(批准号: 30574050)和高等学校博士学科点专项科研基金(批准号: 20060487006)资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯联系人. E-mail: lupeixiang@mail.hust.edu.cn

$0.03 \mu\text{m}$ , 在  $Z$  轴的控制精度为  $1 \mu\text{m}$ . 实验使用的样品为  $z$  切  $\text{LiNbO}_3$  晶体, 尺寸为  $10 \text{ mm} \times 5 \text{ mm} \times 0.5 \text{ mm}$ , 熔点为  $1650^\circ\text{C}$ , 密度为  $4.70 \text{ g/cm}^3$ . 实验中, 可通过 CCD 成像技术观察到飞秒激光对  $\text{LiNbO}_3$  的烧蚀过程, 并可对烧蚀点进行成像观察, 如图 2 所示.

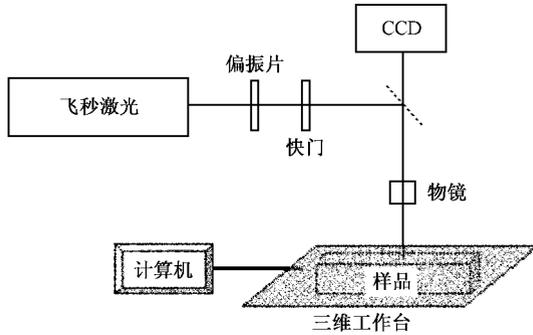


图 1 飞秒激光烧蚀  $\text{LiNbO}_3$  的实验装置

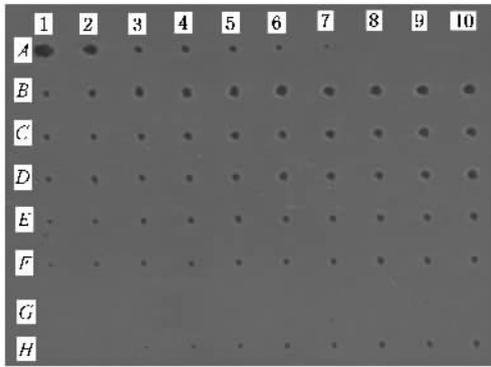


图 2 不同参数的飞秒脉冲烧蚀后的 CCD 照片

### 3. 结果与讨论

#### 3.1. 单脉冲作用

实验中分别采用不同能量的单脉冲对  $\text{LiNbO}_3$  进行烧蚀, 结果如图 2 所示. 场发射扫描电镜 (SEM) 观察到样品的损伤形貌如图 3 所示. 实验结果表明, 在单脉冲能量为  $60 \text{ nJ}$  时, 仍然可以观察到  $\text{LiNbO}_3$  有损伤, 而脉冲能量低于  $60 \text{ nJ}$  时无损伤点, 因此  $\text{LiNbO}_3$  在单脉冲作用下的能量损伤阈值为约  $60 \text{ nJ}$ . 由图 3(a)(b) 可以看出, 在单脉冲激光作用下, 能量较高时烧蚀点的面积较大, 而且烧蚀区域有明显的裂纹. 随着激光能量的降低, 烧蚀点的面积逐渐减小. 在能量为  $470 \text{ nJ}$  单脉冲飞秒激光作用下的烧蚀点直径与衍射极限近似相同 (见图 3(c)), 当能量为  $170 \text{ nJ}$  时, 烧蚀点的直径约为  $400 \text{ nm}$  (见图 3(f)), 已经远小于衍射极限的值. 图 4 为  $230 \text{ nJ}$  单脉冲作用  $\text{LiNbO}_3$  的烧蚀形貌与烧蚀点轮廓原子力显微镜图, 烧蚀点的直径约为  $720 \text{ nm}$ , 深度约为  $60 \text{ nm}$ .

#### 3.2. 多脉冲作用

图 5 为不同脉冲能量和不同脉冲数量烧蚀  $\text{LiNbO}_3$  晶体的整体 SEM 图, 从上到下, 行 1 至行 7 的单脉冲能量分别为  $700, 470, 230, 180, 100, 60$  和  $50 \text{ nJ}$ , 从左到右, 列 1 至列 10 的脉冲数量分别为  $2, 4, 8, 17, 33, 67, 125, 250, 500, 1000$ . 图 6 为部分烧蚀

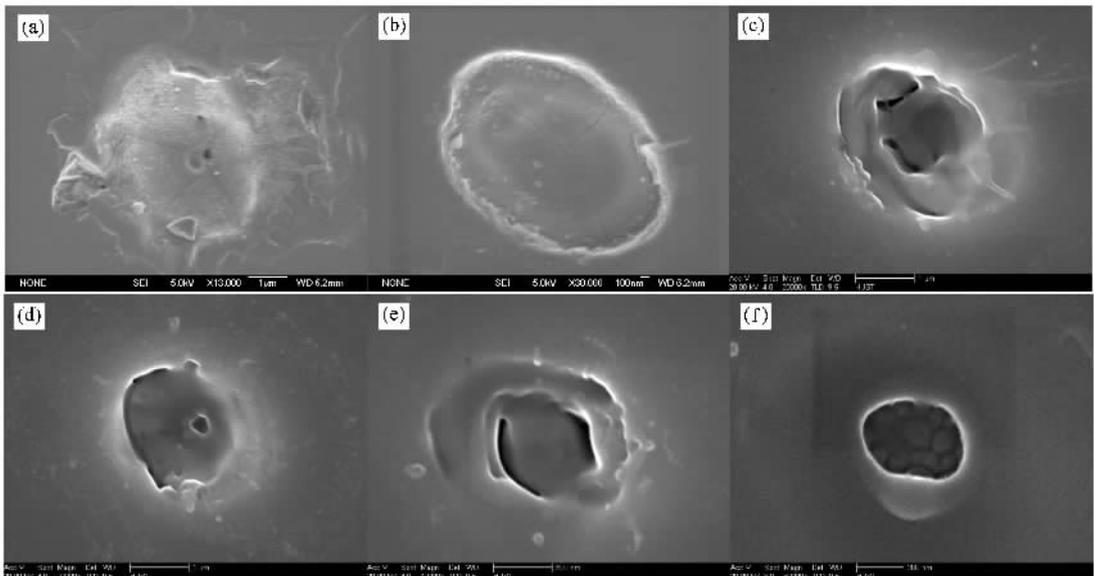


图 3 不同脉冲能量烧蚀  $\text{LiNbO}_3$  的扫描电子显微镜图 (a)  $0.75 \mu\text{J}$  (b)  $0.88 \mu\text{J}$  (c)  $470 \text{ nJ}$  (d)  $350 \text{ nJ}$  (e)  $230 \text{ nJ}$  (f)  $170 \text{ nJ}$

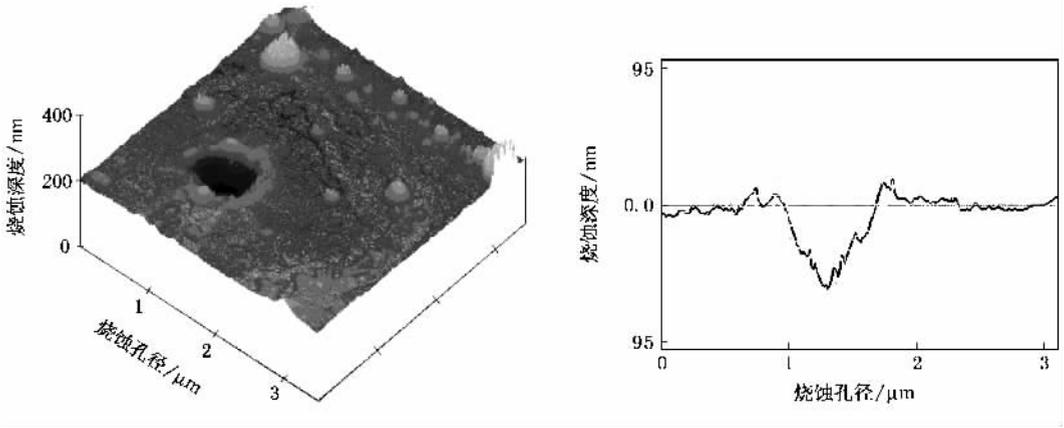


图 4 230 nJ,单脉冲作用  $\text{LiNbO}_3$  的烧蚀形貌与烧蚀点轮廓图

点的 SEM 图.从图 5 和图 6 可以看出,随着能量的增大和脉冲数量的增多,烧蚀点的面积和深度都增大,在能量较低时烧蚀点周围的溅射物质较少,而能量高时烧蚀点周围的溅射物质较多.同时由图 6 中的(c)(d)(g)(h)可以看出,在能量较低或脉冲数量较少的飞秒激光作用下, $\text{LiNbO}_3$  晶体呈现大约 200 nm 周期性分布的波纹状结构,Shimotsuma 等人<sup>[22]</sup>在研究石英玻璃时也发现了类似的纳米结构,并认为是由于入射波和近面散射波的干涉造成的结果.我们在  $\text{KTP}$ <sup>[23]</sup>晶体和  $\text{MgAl}_2\text{O}_3$ <sup>[24]</sup>晶体中也发现了类似的纳米结构,我们分析认为除了干涉的原因使飞秒激光与透明晶体材料相互作用产生纳米波纹结构外,可能还与晶体的周期性结构有关.这也是本工作进一步研究的重点.图 7 为 100 nJ,17 个飞秒激光脉冲作用  $\text{LiNbO}_3$  的烧蚀形貌与烧蚀点轮廓原子力显微镜图,烧蚀点的直径约为 800 nm,深度约为

320 nm.

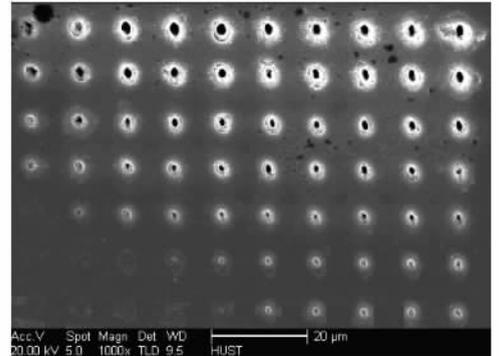


图 5 不同脉冲能量和不同脉冲数量烧蚀  $\text{LiNbO}_3$  晶体后的整体 SEM 图

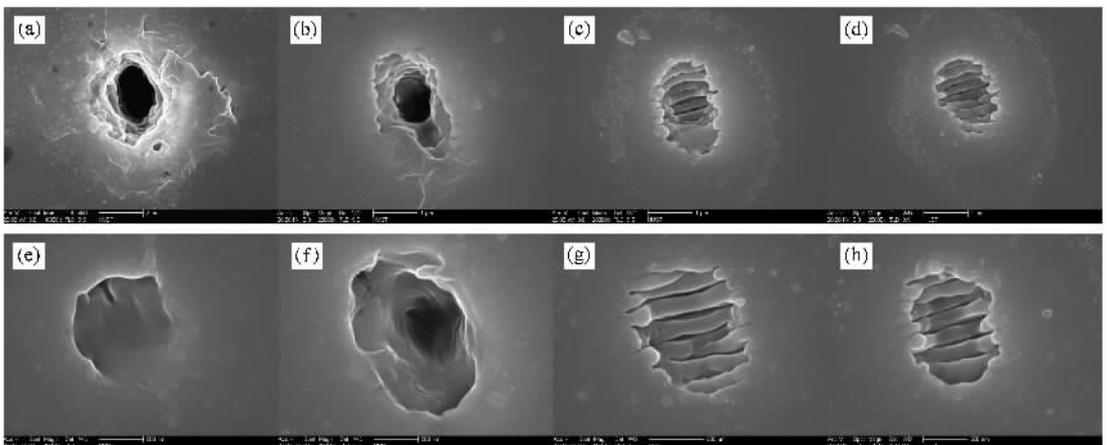


图 6 不同参数的飞秒脉冲烧蚀后的 SEM 图 (a)470 nJ,1000 脉冲;(b)100 nJ,1000 脉冲;(c)60 nJ,1000 脉冲;(d)50 nJ,1000 脉冲(e)100 nJ,17 脉冲;(f)100 nJ,17 脉冲;(g)60 nJ,33 脉冲;(h)50 nJ,67 脉冲

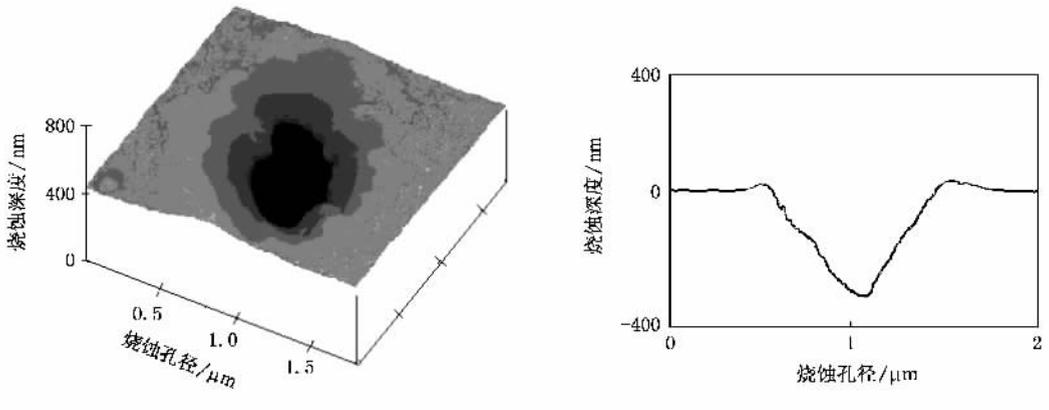


图 7 100 nJ, 17 个脉冲作用 LiNbO<sub>3</sub> 的烧蚀形貌与烧蚀点轮廓图

### 3.3. 刻蚀光栅

以 50 nJ 的能量、300 μm/s 的速率、5 μm 的线间距在 LiNbO<sub>3</sub> 晶体表面刻蚀 2 mm × 2 mm 光栅,图 8 (a) 为部分光栅 CCD 照片,图 8 (b) 为 632 nm He-Ne

激光透过光栅的衍射图样,图 8 (c) (d) 分别为光栅烧蚀较宽处和较窄处的 SEM 图. 光栅烧蚀线在较宽处烧蚀较深,宽度约为 1.2 μm,而在较窄处宽度小于 800 nm,因此通过选择合适的加工参数,可以利用飞秒激光在 LiNbO<sub>3</sub> 晶体上进行超衍射极限加工.

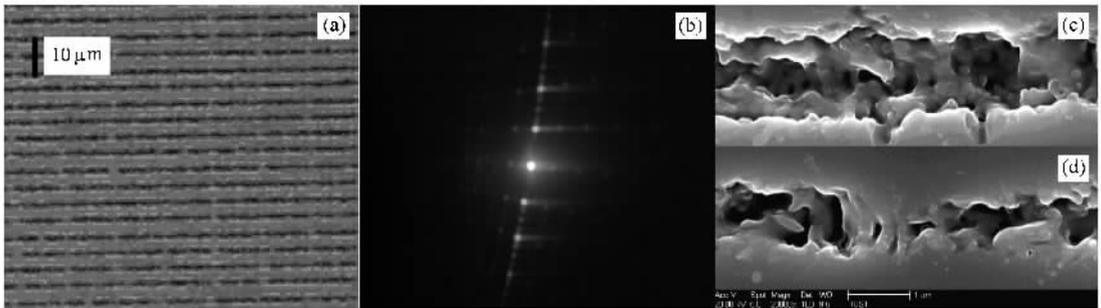


图 8 光栅的 CCD 照片、衍射图样和 SEM 图 (a) 光栅的 CCD 照片;(b) 光栅的衍射图样;(c) 光栅较宽处的 SEM 图;(d) 光栅较窄处的 SEM 图

### 3.4. 作用机理

激光烧蚀透明介电材料时,如果激光的功率密度较低,则透明材料会具有很高的透过率,当激光的功率密度超过透明材料的“损伤阈值”以后,透明材料对激光能量的非线性吸收较强.一般认为,飞秒激光对透明材料的损伤原因是在激光照射下,大量的价带电子转变为导带电子,使其密度迅速增加,当其密度超过等离子体密度时,材料开始大量吸收激光能量,从而导致材料的破坏.从价带电子到导带电子的转变途径有多光子电离过程和碰撞电离过程,研究表明<sup>[25,26]</sup>,飞秒激光烧蚀石英玻璃、氧化铝等透明材料主要是多光子电离起重要作用.相对于单光子吸收而言,利用双光子吸收实现微加工的尺寸

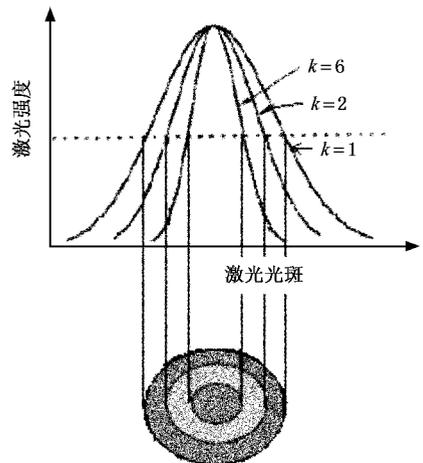


图 9 多光子电离下自由电子强度分布

要小得多<sup>[14,15,27]</sup>,在多光子电离过程中,随着光子数量  $k$  的增加,飞秒激光光斑内自由电子的密度也越集中<sup>[28]</sup>,进而微加工的尺寸也会更小,实现超衍射极限加工,如图 9 所示。

比较图 3 与图 4 可以看出,在相同的脉冲能量下,多脉冲烧蚀点的面积比单脉冲的大,而且烧蚀点的面积随着脉冲数量的增加而增大,还可以看出,多脉冲烧蚀点的形貌与单脉冲烧蚀点的形貌也有较大的区别,这主要是由于开始作用的脉冲改变了 LiNbO<sub>3</sub> 晶体表面的形貌和显微结构,增加了晶体对后续飞秒激光脉冲能量的吸收率。飞秒激光高斯光束对烧蚀形貌的影响如图 10 所示, $\Phi_1$ 、 $\Phi_2$  和  $\Phi_3$  分别为烧蚀区、再沉积区和改性区的直径。在飞秒激光光束中心(光束半径  $r < \Phi_1/2$ )激光强度最大,当激光强度大于 LiNbO<sub>3</sub> 晶体的烧蚀阈值时,该区域将被

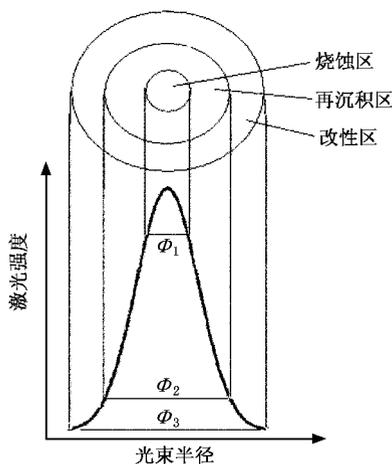


图 10 飞秒激光光束对烧蚀点形貌的影响示意图

烧蚀;在  $\Phi_2/2 < r < \Phi_1/2$  区域,激光强度高于 LiNbO<sub>3</sub> 晶体的改性阈值但低于其烧蚀阈值, LiNbO<sub>3</sub> 晶体将被飞秒激光作用后重新沉积;在  $\Phi_3/2 < r < \Phi_2/2$  区域,激光强度相对较低,仅高于 LiNbO<sub>3</sub> 晶体的改性阈值,只使其形貌和显微结构发生改性。从图 6 中的 (c)(d)(g)(h) 可以明显地看出飞秒激光对 LiNbO<sub>3</sub> 晶体作用后的烧蚀区、再沉积区和改性区。选择合适的脉冲能量,使激光强度在烧蚀阈值附近,那么可以使烧蚀点的半径较小,达到衍射极限以下。

## 4. 结 论

利用脉冲宽度为 50 fs、中心波长为 800 nm、重复频率为 1000 Hz 的飞秒激光脉冲对 LiNbO<sub>3</sub> 晶体进行烧蚀,通过扫描电镜和原子力显微镜观察了烧蚀点的形貌特征,首次发现利用单束飞秒激光脉冲对 LiNbO<sub>3</sub> 晶体烧蚀,可以得到超衍射极限的烧蚀点,当聚焦光斑直径约为  $2 \mu\text{m}$ 、能量为 470 nJ 的单脉冲飞秒激光作用时,烧蚀点的直径与衍射极限近似相同,能量为 170 nJ 的单脉冲烧蚀点的直径仅为 400 nm,100 nJ、17 个脉冲烧蚀点的直径约为 800 nm,50 nJ、100 个脉冲烧蚀点的直径约为  $1 \mu\text{m}$ ,均远小于衍射极限。同时可以观察到在能量较低的多脉冲飞秒激光作用下, LiNbO<sub>3</sub> 晶体呈现出大约 200 nm 周期性分布的波纹状结构,这与入射波和近面散射波的干涉以及 LiNbO<sub>3</sub> 晶体的结构都有关系。实验结果表明,选择合适参数的飞秒激光脉冲可以对 LiNbO<sub>3</sub> 晶体进行超衍射极限加工,这对于利用飞秒激光制作 LiNbO<sub>3</sub> 基质的微纳光电子器件有十分重要的意义。

[1] Jonas B, Christian G, Stefan N, Andreas T 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 081108

[2] Saliminia A, Nguyen N T, Chin S L, Vallee R 2004 *Opt. Commun.* **241** 529

[3] Chen B, Yu B K, Yan X N, Qiu J R, Jiang X W, Zhu C S 2004 *Chin. Phys.* **13** 0968

[4] Sikorski Y, Rablau C, Dugan M, Said A A, Bado P, Beholz L G 2006 *Appl. Opt.* **45** 7519

[5] Schaffer C B, Jamison A O, Mazur E 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 1441

[6] Chen J W, Huser T R, Risbud S H, Hayden J S, Krol D M 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 2371

[7] Li H Y, Hyungson K 2006 *J. Appl. Phys.* **100** 104907

[8] Li H Y, Jie W Q, Zhang S A, Sun Z R, Xu K W 2006 *Chin. Phys.* **15** 2407

[9] Li C B, Jia T Q, Sun H Y, Li X X, Xu S Z, Feng D H, Wang X F, Ge X C, Xu Z Z 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 217 (in Chinese) [李成斌, 贾天卿, 孙海轶, 李晓溪, 徐世珍, 冯东海, 王晓峰, 葛晓春, 徐至展 2006 物理学报 **55** 217]

[10] Efimov O M, Glebov L B, Richardson K A, Stryland E V, Cardinal T, Park S H, Couzi M, Bruneel J L 2001 *Opt. Mater.* **17** 379

[11] Hirao K, Miura K 1998 *J. Non-Crystalline Solids* **239** 91

[12] Fukuda T, Ishikawa S, Fujii T, Sakuma K, Hosoya H 2004 *Proc. of SPIE* **5339** 524

[13] Qiu J R, Mitsuru S, Takayuki N, Si J H, Jiang X W, Zhu C S, Kazuyuki H 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 3040

- [ 14 ] Teh W H , Dürig U , Salis G , Harbers R , Drechsler U , Mahrt R F , Smith C G , Güntherodt H J 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 4095
- [ 15 ] Liguda C , Bottger G , Kuligk A , Eich M , Roth H , Kunert J , Morgenroth W , Elsner H , Meyer H G 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 2434
- [ 16 ] Busacca A C , Sones C L , Apostolopoulos V , Eason R W , Mallis S 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 4946
- [ 17 ] Robert W E , Alexander J B , Sakellaris M , Peter G R S 2001 *Opt. Commun.* **197** 201
- [ 18 ] Zhou G Y , Gu M 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 241107
- [ 19 ] Jonas B , Christian G , Stefan N , Andreas T 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 081108
- [ 20 ] Wu Q , Xu J J , Zhang G Q , Zhao L J , Zhang X Z , Qiao H J , Sun Q , Lu W Q , Zhang G Y , Volk R T 2003 *Opt. Mater.* **23** 277
- [ 21 ] Zhou G Y , Gu M 2006 *Opt. Lett.* **31** 2783
- [ 22 ] Shimotsuma Y , Kazansky P G , Qiu J R , Hirao K 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 247405
- [ 23 ] Li Y H , Lu P X , Dai N L , Long H , Wang Y , Yu B H 2006 *Appl. Surf. Sci.* **253** 1443
- [ 24 ] Yu B H , Dai N L , Li Y H , Zheng Q G , Lu P X 2007 *J. Inorg. Mater.* **22** 328 ( in Chinese ) [ 余本海、戴能利、李玉华、郑启光、陆培祥 2007 无机材料学报 **22** 328 ]
- [ 25 ] Deng Y P , Jia T Q , Leng Y X , Lu H H , Li R X , Xu Z Z 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2216 ( in Chinese ) [ 邓蕴沛、贾天卿、冷雨欣、陆海鹤、李儒新、徐至展 2004 物理学报 **53** 2216 ]
- [ 26 ] Li X X , Jia T Q , Feng D H , Xu Z Z 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2154 ( in Chinese ) [ 李晓溪、贾天卿、冯东海、徐至展 2004 物理学报 **53** 2154 ]
- [ 27 ] Sun H B , Kawata S 2003 *J. Lightwave Tech.* **21** 624
- [ 28 ] Ma L , Shi S X , Cheng G H , Zhao W , Chen G F 2006 *Proc. of SPIE* **6149** 614935

## Morphology and mechanism of femtosecond laser-induced structural changes in lithium niobate crystal<sup>\*</sup>

Yu Ben-Hai Dai Neng-Li Wang Ying Li Yu-Hua Ji Ling-Ling Zheng Qi-Guang Lu Pei-Xiang<sup>†</sup>

( Wuhan National Laboratory for Optoelectronics and College of Optoelectronics Science & Engineering ,  
Huazhong University of Science and Technology , Wuhan 430074 , China )

( Received 4 January 2007 ; revised manuscript received 4 February 2007 )

### Abstract

The morphology and mechanism of lithium niobate ( LiNbO<sub>3</sub> ) crystal ablated by a femtosecond laser pulse have been studied. The ablated spots and surface diffraction grating have been examined by means of scanning electron microscopy ( SEM ) and atom force microscopy ( AFM ). Sub-diffraction limit spots in LiNbO<sub>3</sub> crystal ablated by femtosecond laser have been obtained. The diameters of ablation spots are 400 nm and 800 nm when 170 nJ single pulse and 100 nJ 17 pulses are used , respectively. There are ripples with about 200 nm periodic on the bottom surfaces of the spots at low laser energy. The result shows that the sub-diffraction limit structures may be formed by the multi-photon excitation , and the femtosecond laser ablation is an innovative tool for manufacturing LiNbO<sub>3</sub>-based optical devices.

**Keywords** : femtosecond laser , lithium niobate crystal , diffraction limit , ablation threshold

**PACC** : 4255R , 4262A , 4265

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 10574050 ) and the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education , China ( Grant No. 20060487006 ).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail : lupeixiang@mail.hust.edu.cn