

光电工程

Opto-Electronic Engineering

中文核心期刊 中国科技核心期刊
Scopus CSCD

基于飞秒激光的高速双光子刻写技术

杨顺华, 丁晨良, 朱大钊, 杨臻垚, 刘勇, 匡翠方, 刘旭

引用本文:

杨顺华, 丁晨良, 朱大钊, 等. 基于飞秒激光的高速双光子刻写技术[J]. *光电工程*, 2023, 50(3): 220133.

Yang S H, Ding C L, Zhu D Z, et al. High-speed two-photon lithography based on femtosecond laser[J]. *Opto-Electron Eng*, 2023, 50(3): 220133.

<https://doi.org/10.12086/oe.2023.220133>

收稿日期: 2022-06-19; 修改日期: 2022-07-29; 录用日期: 2022-08-09

相关论文

Two-photon absorption and stimulated emission in poly-crystalline Zinc Selenide with femtosecond laser excitation

Qianliang Li, Walter Perrie, Zhaoqing Li, Stuart P Edwardson, Geoff Dearden

Opto-Electronic Advances 2022, 5(1): 210036 doi: [10.29026/oea.2022.210036](https://doi.org/10.29026/oea.2022.210036)

3D imaging lipidometry in single cell by in-flow holographic tomography

Daniele Pirone, Daniele Sirico, Lisa Miccio, Vittorio Bianco, Martina Mugnano, Danila del Giudice, Gianandrea Pasquinelli, Sabrina Valente, Silvia Lemma, Luisa Iommarini, Ivana Kurelac, Pasquale Memmolo, Pietro Ferraro

Opto-Electronic Advances 2023, 6(1): 220048 doi: [10.29026/oea.2023.220048](https://doi.org/10.29026/oea.2023.220048)

激光直写制备金属与碳材料微纳结构与器件研究进展

周伟平, 白石, 谢祖武, 刘明伟, 胡安明

光电工程 2022, 49(1): 210330 doi: [10.12086/oe.2022.210330](https://doi.org/10.12086/oe.2022.210330)

双光束超分辨激光直写纳米加工技术

曹耀宇, 谢飞, 张鹏达, 李向平

光电工程 2017, 44(12): 1133 doi: [10.3969/j.issn.1003-501X.2017.12.001](https://doi.org/10.3969/j.issn.1003-501X.2017.12.001)

更多相关论文见光电期刊集群网站 

 **光电工程**
Opto-Electronic Engineering

<http://cn.ojournal.org/oe>



 OE_Journal



Website

DOI: 10.12086/oe.2023.220133

基于飞秒激光的高速双光子刻写技术

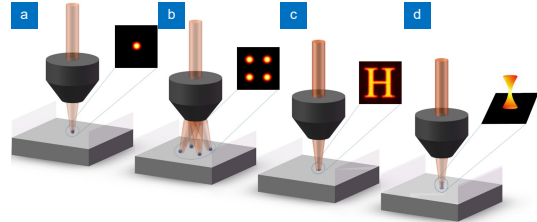
杨顺华¹, 丁晨良^{1*}, 朱大钊¹, 杨臻垚¹,
刘勇^{1,3}, 匡翠方^{1,2,4*}, 刘旭^{1,2}

¹之江实验室智能芯片与器件研究中心, 浙江 杭州 311121;

²浙江大学光电科学与工程学院极端光学技术与仪器全国重点实验室, 浙江 杭州 310027;

³上海电力大学电子与信息工程学院, 上海 200090;

⁴浙江大学杭州国际科创中心, 浙江 杭州 311200



摘要: 基于飞秒激光的双光子聚合 (two-photon polymerization, TPP) 加工技术一直是三维微纳加工技术中的研究热点。随着生命科学、材料工程、微纳光学等领域对复杂、大面积微型三维器件制备需求的提升, TPP 加工效率不足的问题日益严重, 加工时间过长不仅造成加工结构的不稳定, 更是严重阻碍这些重要三维器件的进一步推广应用。本文以 TPP 加工效率提升方面的研究工作为主线, 分别从单光束刻写、并行多光束刻写、面曝光和体曝光四个方式进行总结与对比, 阐述相应的光学系统设计、刻写策略、刻写精度与通量等方面的研究情况, 总结各种技术的优势与劣势, 同时展望未来发展趋势。

关键词: 飞秒激光直写; 双光子光刻; 单光束扫描; 多焦点并行; 面曝光; 体曝光

中图分类号: O646.5

文献标志码: A

杨顺华, 丁晨良, 朱大钊, 等. 基于飞秒激光的高速双光子刻写技术 [J]. 光电工程, 2023, 50(3): 220133

Yang S H, Ding C L, Zhu D Z, et al. High-speed two-photon lithography based on femtosecond laser[J]. *Opto-Electron Eng*, 2023, 50(3): 220133

High-speed two-photon lithography based on femtosecond laser

Yang Shunhua¹, Ding Chenliang^{1*}, Zhu Dazhao¹, Yang Zhenyao¹, Liu Yong^{1,3},
Kuang Cuifang^{1,2,4*}, Liu Xu^{1,2}

¹Research Center for Intelligent Chips and Devices, Zhejiang Lab, Hangzhou, Zhejiang 311121, China;

²State Key Laboratory of Extreme Photonics and Instrumentation, College of Optical Science and Engineering, Zhejiang University, Hangzhou, Zhejiang 310027, China;

³College of Electronics and Information Engineering, Shanghai University of Electric Power, Shanghai 200090, China;

⁴ZJU-Hangzhou Global Scientific and Technological Innovation Center, Hangzhou, Zhejiang 311200, China

收稿日期: 2022-06-19; 修回日期: 2022-07-29; 录用日期: 2022-08-09

基金项目: 国家重点研发计划资助项目 (2021YFF0502700); 国家自然科学基金/青年基金资助项目 (62205304, 52105565, 62105298); 浙江省自然科学基金重大资助项目 (LD21F050002); 之江实验室重大资助项目 (2020MC0AE01); 浙江省自然科学基金/青年基金资助项目 (LQ22F050015, LQ22F050017); 中国博士后科学基金面上资助项目 (2020M671823)

*通信作者: 丁晨良, dingcl@zhejianglab.com; 匡翠方, cfkuang@zju.edu.cn.

版权所有©2023 中国科学院光电技术研究所

Abstract: Two-photon polymerization (TPP) based on femtosecond laser has been a research hotspot in 3D micro/nano writing technology. With the increasing demand for processing complex and large-scale miniaturized 3D devices in the fields of life science, material engineering, micro and nano optics, and etc., the issue of low processing efficiency of TPP is becoming increasingly serious. During the long fabrication period, many disturbances can be introduced in the processing, causing the quality deterioration of the structure and seriously hindering the further popularization and application of these crucial 3D devices. This paper respectively compares the four approaches of single-beam writing, parallel multi-beam writing, pattern projection, and 3D projection exposure based on the TPP lithography efficiency. Moreover, the researches on the optical design of system, the writing accuracy, the fabrication throughput, the writing strategy, and etc. of each approach are also described. And the advantages and disadvantages of these four methods are summarized simultaneously. Finally, we also made a brief prospect to the developing trend of TPL efficiency improvement in the future.

Keywords: femtosecond laser direct writing; two-photon lithography; single-beam scanning; multi-focus parallelism; pattern projection; 3D projection exposure

1 引言

与传统的激光光源相比, 飞秒激光光源最大的特点是其超短脉宽 ($\sim 10^{-15}$ s) 和超高峰值功率密度 (10^{22} W/cm²)。基于飞秒激光的独特属性, 飞秒激光从根本上改变了激光与物质相互作用的方式, 展现出微纳加工方面的独特优势, 成为微纳加工技术的研究热点: 1) 飞秒激光脉宽极短, 与材料相互作用的过程瞬态响应, 光子能量未及扩散便高效作用于电子激发, 因此热影响低, “冷加工”得到的结构质量更高^[1]; 2) 在加工多种材料方面, 由于飞秒激光极高的峰值功率密度可激发隧道电离效应和多光子吸收效应, 因此飞秒激光可同时应用于非透明材料和透明材料的加工, 如在金属、陶瓷、聚合物等材料上进行高质量高精度的微纳加工等^[2-6]; 3) 飞秒激光还能聚焦到透明材料内部, 只在焦点中心附近峰值功率密度足够高的区域发生聚合反应, 基于该原理的双光子刻写可突破衍射极限, 达到百纳米量级的分辨率, 且大多采用近红外飞秒脉冲激光, 因此聚焦光斑可深入材料内部实现真正的三维结构加工^[7-8]; 4) 飞秒激光直写可在大气、溶剂、水溶液等常见环境条件下实现, 无须电子束和离子束直写所依赖的高真空等特殊加工环境, 对环境要求低, 因而具有更好的工业化应用前景^[9]。

1997年, Maruo等科学家采用飞秒激光实现了双光子聚合 (two-photon polymerization, TPP), 该成果的发表标志着双光子加工领域的诞生^[10]。此后, 针对飞秒激光双光子光刻 (two-photon lithography, TPL) 的研究成果层出不穷, 不同于曝光光刻技术, 双光子聚合无需掩模版, 具有3D加工能力, 且可以直接将电脑

端设计的结构进行加工 (自定义结构), 是目前硅光芯片、新型传感器、人工智能、新型材料等新兴领域迫切需要的微纳加工技术。在光子芯片领域, 相比于依赖电子进行数据传输的集成电路, 光子芯片利用在波导中传播的光进行数据传输, 而打造这类芯片的关键之处在于对光传播过程进行有效的控制。光传播的控制则依赖于特殊的光波导结构, 特别是光子芯片制备过程中的芯片互联、光通讯、光子引线键合等元件的结构^[11-12], 需要具有三维、高精度、复杂、大面积的微纳加工能力的装备作为支撑; 在新型传感器领域, 传感器正朝着微型化、集成化多功能、分布式高灵敏和智能化的方向发展, 2016年哈佛大学 Capasso 教授团队提出的超透镜技术^[13], 利用纳米加工技术制备的新型透镜能够做到比普通镜片薄 10 万倍, 并且具有易生产、成本低等优势, 颠覆了传统的透镜设计思路, 成为当年 *Science* 的十大进展之一, 同时也对微纳加工能力提出了更高的要求; 在人工智能领域, 高新技术的发展也催生人们追求更为极端的感知能力, 拓展对客观世界的认知, 并进一步催生了现代微电子、光电子混合技术的发展, 使得金属、半导体、介质混合器件日益增加, 光电混合效应、MEMs 器件、甚至生物器件层出不穷^[14-15]; 在新型材料领域, 如何制备出仿生微纳米结构, 从而实现师法自然和超越自然的目标, 是材料与制造领域的重大课题之一。

相比目前运用广泛的曝光光刻技术, TPL 技术的劣势在于加工精度与加工效率的严重不足, 因此, 提升 TPL 技术的精度与效率是众多科研人员研究的重点。如何缩小聚焦光斑在径向与轴向的尺寸是提升三

维刻写精度的关键, 根据显微系统聚焦光斑计算公式, 激光波长的减小与物镜数值孔径的增加是最为有效的方法, 因此采用更短波长的飞秒激光光源, 使用数值孔径较大的物镜, 同时减小曝光功率以及曝光时间等^[16], 可以有效提升刻写精度。然而, 由于透镜等材料对波长小于 400 nm 的光源吸收非常强烈, 并且采用的物镜的数值孔径也已经接近极限, 因此径向分辨率难以减小至 200 nm 以下。

光刻胶材料与激光的非线性作用是目前众多团队提升刻写精度的研究重点^[17-27], 因为根据双光子吸收机理, 只要系统足够精确与稳定, 通过优化光刻胶的成分配比, 将双光子吸收区域缩小至聚焦光斑非常小的区域, 刻写精度在理论上可以达到无限小^[28]。但是, 实际刻写过程中由于环境中众多因素的存在, 包括光源能量波动、指向抖动等, 使该技术难以实现稳定的刻写结构。另一部分科研团队, 则尝试从刻写光斑调制的角度入手, 科研人员将 1994 年德国物理学家 Hell 所提出的受激发射损耗 (stimulated emission depletion, STED) 技术^[29] 运用在飞秒双光子刻写中, 在飞秒激发光外围叠加涡旋光进行边缘抑制 (peripheral photoinhibition, PPI), 将光反应限制在光焦点中心极小区域, 此方法使系统具备稳定获得高精度刻写结构的能力 (极限可接近 50 nm)。同样, 科研人员也将抑制原理运用于轴向刻写尺寸的缩小, 在轴向获得了超衍射极限的刻写线宽。此外, 针对轴向精度的提升, 科研人员将数字微镜器件 (digital mirror device, DMD) 的二维光栅属性与飞秒宽带光源相结合, 利用飞秒激光不同波长在出射 DMD 后具有的角色散, 经成像系统在物镜焦面实现时空同步聚焦, 刻写线宽在

轴向可缩小至 175 nm^[30]。

相对于刻写精度, 刻写效率的提升更为关键。飞秒激光加工的三维加工能力, 使其加工数据量远远多于二维加工, 加工效率问题一直束缚着其在各领域中的运用。一方面, 加工时间长使其加工效率非常低下, 难以大范围推广; 另一方面, 加工时间段内的不确定因素会对刻写精度造成影响, 长时间的加工难以获得高质量结构。因此, 加工效率低的问题难以解决, 使得飞秒激光加工只能局限于实验室研究。传统的单点扫描技术已经非常成熟。微纳加工领域市场带领者——德国 Nanoscribe 公司, 其基于双光子聚合的飞秒激光直写系列产品, 可以实现几乎任意复杂形状且具有亚微米精度的聚合物结构; 该公司的 Photonic Professional GT 系列快速高分辨系统能够达到约 160 nm 的刻写精度与 10 mm/s 的刻写速度, 但在加工 1 mm×1 mm×20 μm 的简单木堆光子晶体结构时, 采用最快的振镜扫描方式也需要 30 min, 在实际应用时, 如加工 10 mm 口径的晶圆时长可达到 6 个月之久。

科研人员尝试从多方面 (化学、工程及光学手段等) 着手进一步提升双光子刻写速度。化学方法采用对材料进行改良以减少曝光剂量等方式^[31-38]; 工程手段采用优化扫描策略、基于振镜或转镜的扫描速度提升、增加激光功率、采用更短波段的飞秒激光等方式; 光学方法采用多焦点并行直写、面曝光、体曝光等方式来提升刻写速度, 如图 1 所示。上述刻写方式虽然能大幅度提升刻写速度, 但往往以牺牲刻写精度为代价, 单光束刻写的分辨率更高, 但刻写速度相对较低。为推进飞秒双光子光刻技术在科

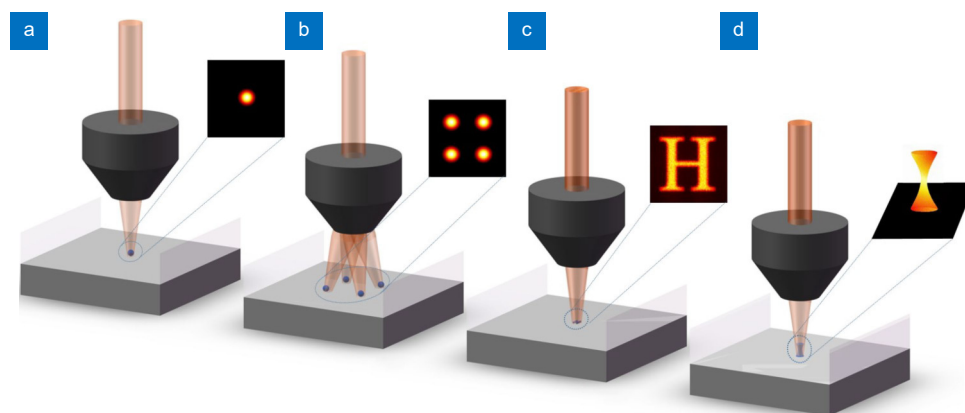


图 1 双光子刻写吞吐量提升的光学方法。(a) 单光束刻写; (b) 多焦点并行刻写; (c) 二维面曝光; (d) 三维体曝光

Fig. 1 Optical methods of improving the TPL throughput. (a) Single-beam writing; (b) Multi-foci parallel lithography; (c) Pattern projection; (d) 3D projection exposure

研和产业中的实际应用, 必须解决其加工效率受限的问题。因此, 如何在保证刻写精度的基础上进一步提升刻写速度, 仍是当前飞秒激光双光子直写技术面临的重大挑战。

本文从飞秒双光子刻写出发, 以刻写效率为主线, 阐述了科研人员针对飞秒双光子刻写效率提升进行的研究工作。具体地, 分别从几个代表性的光学曝光手段, 即单光束扫描、并行多光束刻写、面曝光和体曝光四个模块进行总结与对比, 并对各项研究工作所涉及的光学参数、材料组分、曝光策略等进行相关阐述, 给出了相应技术所能实现的刻写精度与通量以及可能的应用场景, 同时对比各项技术的优势与劣势, 并展望了未来的发展趋势。

2 不同刻写方式的双光子直写研究

2.1 基于不同扫描方法的单光束刻写研究

单光束刻写是目前飞秒激光直写的主流刻写方式, 主要依赖于扫描器件的速率。其优势在于系统简单, 刻写光束的质量好, 并且容易结合多种效应, 如边缘光抑制效应、非简并效应等进一步提升刻写分辨率^[39-41]; 劣势则是刻写效率问题, 特别是运用在三维结构刻写当中, 往往花费数小时来刻写一个三维结构。

因此, 众多研究围绕单光束扫描速度提升的方法展开。如图 2 所示, 基于位移台扫描是最为常用的刻写方式, 刻写速度可以达到 m/s 的量级, 支持大面积结构的刻写, 并且重复精度可以达到百纳米以下(小范围情况下可以达到纳米量级)。然而, 其刻写速度与刻写精度无法兼具, 即当刻写速度快时, 刻写精度显著下降。并且通过位移台扫描的方式来实现刻写, 会带来诸多问题, 例如样品台扫描中存在加速与减速过程, 会对纳米加工线宽产生严重影响, 刻写过程中

需要对这部分进行消除处理, 并且速度越快, 加减速导致无法使用的区域越大。此外, 快速加减速会对部分刻写材料造成影响, 如液态光刻胶材料, 刻写过程中极易出现甩离现象。

基于振镜的扫描刻写方式是另一种常用的方式, 其中振镜的扫描速度较快, 可达 kHz 量级, 扫描精度为 μrad 量级^[42]。可分为模拟振镜与数字振镜, 相对来说, 数字振镜在精度与稳定性上更具优势, 可以避免模拟振镜中出现的波浪状抖动、电机失控等问题。利用振镜扫描的策略一般都是光栅式扫描策略, 这种扫描策略的优点在于实现简单、数据处理容易^[43]。然而缺点也较为明显, 首先是扫描速度与稳定性提升困难; 其次光学系统的视场为圆形, 而光栅式的扫描区域为方形, 未能有效利用系统的视场。此外, 振镜刻写区域受到系统视场限制, 无法应对大面积刻写需求。

为了有效提升激光直写的刻写速度, 研究人员利用转镜来进一步提升刻写效率。转镜由多个平面反射镜组成, 通过旋转实现快速光束扫描, 是一种以稳定速度沿一个方向高速旋转的多面体反射镜。转镜拥有 m/s 以上的扫描速度^[44], 刻写精度优于位移台的扫描方式, 并且采用对光束进行扫描, 不存在移动刻写材料所引起的一系列问题。相比于振镜扫描方式, 转镜不仅拥有更快的扫描速度, 并且没有加减速的过程, 因此可以具备更长的有效行程和更高的速度稳定性^[45]。不过, 转镜在快速工作中所引入的噪声较大, 使系统的稳定性下降, 进而导致刻写精度的下降, 并且其扫描方式较为单一, 在应对结构少、尺寸大的加工需求时, 其效率不一定具有优势。

声光偏转器 (Acousto-optic deflector, AOD) 也可对激光进行扫描, 其原理基于光束的衍射效应, 通过控制不同输入频率的声信号, 使输入激光束偏转到不

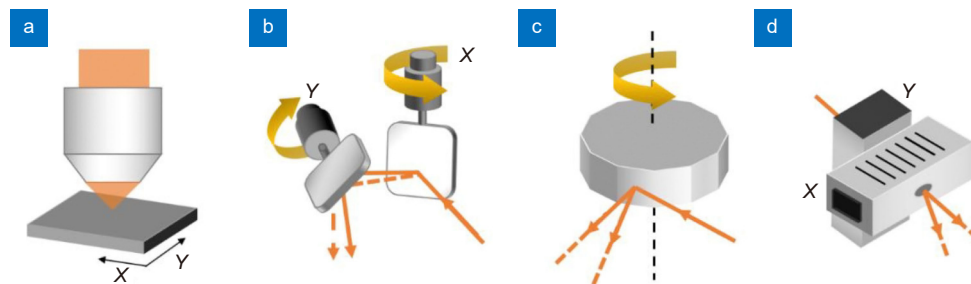


图 2 单光束刻写的主要扫描方案。(a) 位移台扫描; (b) 振镜扫描; (c) 转镜扫描; (d) 声光偏转器 AOD 扫描

Fig. 2 The scanning scheme for single-beam writing based on (a) motorized stage, (b) galvo, (c) polygon laser scanner, and (d) acousto-optic deflector (AOD)

同的方向^[46-47]。虽然相比于传统扫描器件 AOD 在进行全场扫描时的速度并不占优势, 但具有无机械惯性以及快速的定点随机扫描能力等特点, 可根据激光器本身参数以及对应的声光偏转器, 实现超过 250 kHz 的扫描频率, 并且在所有扫描位置具有均匀的衍射激光功率。不过, 在双光子激发光刻系统中, 所采用的飞秒激光宽带光源经过 AOD 后会引入角色散, 导致脉冲宽度展宽与光斑畸变, 使刻写精度与均一性大幅下降。为了尽可能消除 AOD 引起的角色散, 科研人员通过前置衍射光栅、声光调制器 (acoustic optical modulator, AOM) 等进行角色散预补偿^[48-49], 进一步通过棱镜对等来提供反向角色散量, 压缩被展宽的脉冲^[50-51]。此外采用声光偏转器的系统, 需要考虑其能量透过率, 因为单个 AOD 的透过效率在 70% 左右, 如果是二维系统, 则能量效率更低, 并且通常 AOD 的扫描角度有限, 在实际应用中须根据具体情况判断是否运用。

2.2 多焦点并行刻写研究

科研人员希望在保证聚焦光束质量的基础上增加飞秒激光焦点数量进而提升刻写效率, 因此通过分光、光束调制等手段来实现多光束并行刻写, 让刻写速度得到成倍的提升。根据已报道的文献, 目前通过产生

多焦点进行双光子非接触式光刻的方法主要有: 基于干涉的大面积焦点阵列并行刻写、采用微透镜阵列 (microlens array, MLA) 或衍射光学元件 (diffractive optical element, DOE) 进行分束、基于液晶空间光调制器 (liquid crystal spatial light modulator, LC-SLM) 或数字微镜器件 DMD 的多光束产生 (微球体颗粒接触式激光并行刻写在本文暂不讨论)。

2.2.1 基于干涉的大面积焦点阵列并行刻写

为了增加焦点数量, 科研人员首先想到激光束的干涉现象, 因其可以在保证良好的时间和空间重叠基础上, 提供相对均匀的一维干涉条纹或二维干涉点阵, 进而实现大规模线或点阵列的刻写。

1999 年, Stone 研究小组首次采用干涉的方法进行大面积双光子刻写实验, 但只采用双光束干涉形成条纹进行线曝光^[52]。2002 年, Kondo 等人进一步研究了干涉点阵产生及并行刻写情况, 仿真了三光束及四光束干涉的点阵分布情况, 并利用衍射分束器 (diffractive beam splitter, DBS) 将 800 nm 飞秒激光进行分束, 如图 3(a) 所示, 子光束通过透镜 L1 和 L2 成像到样品进行重叠干涉, 同时两个透镜之间的傅里叶平面上放置一个小孔阵列, 以选择所需的子光束, 该团队通过该装置首次利用干涉点阵的方法进行多光

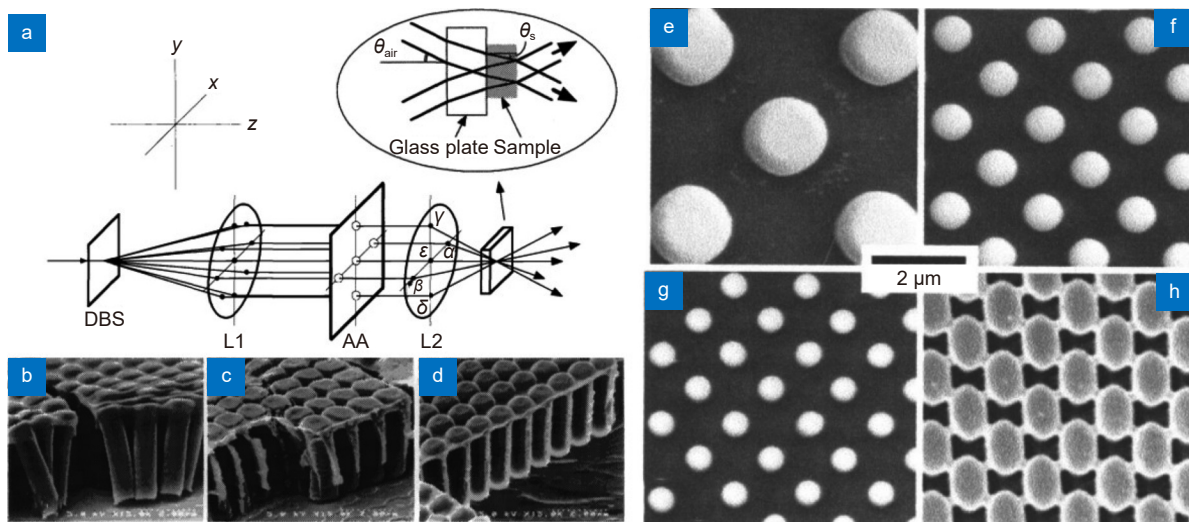


图 3 (a) 基于 DBS 分束进行多光束干涉的并行刻写系统结构; (b)~(d) 通过四束 800 nm/1 kHz 飞秒激光干涉形成点阵进行刻写的周期性结构, 曝光时间分别为 30 s、80 s 和 120 s; (e)~(g) 四光束在不同干涉角下所制备的结构, 干涉角分别为 10.8°、21.9° 和 33.6°; (h) 三光束干涉点阵刻写阵列结构^[53-55]

Fig. 3 (a) Configuration of the parallel writing system based on diffractive beam splitter (DBS) and multi-beam interference; (b)~(d) The periodic structures written by the foci array generated via the interference of four femtosecond laser beams (800 nm/1 kHz). The exposure time is 30 s, 80 s, and 120 s, respectively; (e)~(g) The dot array structures fabricated by the foci lattice generated via four-beam interference with different interference angles of 10.8°, 21.9°, and 33.6°, respectively; (h) The periodic lattice structure written by the foci array generated via three-beam interference^[53-55]

子聚合, 得到如图 3(b)~3(d) 的微米级二维周期性结构^[53]。2003 年, 该研究小组基于该装置, 继续研究了干涉角和干涉光束数量 (三束及四束飞秒激光) 对刻写结构周期、厚度及形状的影响, 并在样品 SU-8 中进行结构制备, 得到如图 3(e)~3(h) 所示的微米级二维周期性结构^[54]。2006 年, 该团队又进一步采用五束飞秒激光得到更为复杂的点阵结构, 制备了三维的周期性介电结构^[55]。

2011 年, Stankevičius 等人采用负性光刻胶 SZ2080, 利用如图 4(a) 所示的系统结构, 采用 DOE 将入射的飞秒脉冲 (1030 nm/ ~290 fs/200 kHz) 分为四束光进行干涉, 并通过单次曝光进行多光子聚合, 实现如图 4(b)~4(c) 所示的微米级大面积周期性结构^[56]。

除了采用衍射光学元件对激光进行分束, 将单光束分为多光束进行干涉的方法还有很多, 如基于半波片和偏振分束棱镜组合^[57-58]、空间光调制器 SLM^[59-61]、光栅衍射^[62] 等。基于干涉点阵的并行刻写技术能实现更大尺寸的并行光束阵列产生, 激光直写效率的提升更为显著, 具有原理简单、设计成熟、低成本、大面积及高效率刻写等优势, 已广泛应用于科学研究和

工业生产中; 但其缺点也同样突出, 由于光斑无法单独控制, 因此只能加工单一重复结构, 且点阵分布均匀性、强度均匀性及点阵光斑质量等难以保证, 加工周期性结构的均匀性误差较大, 加工精度都在微米量级。

2.2.2 基于微透镜阵列 MLA 的飞秒激光并行刻写

并行制造的其中一种方法是使用微透镜阵列 MLA 产生多个焦点。相对于干涉方法, MLA 能够获得质量更高、分布更均匀、更加稳定、能量利用率更高的并行刻写点阵。MLA 由一系列形状相同的小透镜按一定规律排列而成。当 MLA 包含 $N \times N$ 个微透镜, 准直的飞秒脉冲激光经过 MLA 后可产生 $N \times N$ 个焦点。对特定的光刻胶而言, 单个焦点诱导其聚合的激光功率阈值一定, 要使 MLA 产生的 $N \times N$ 个焦点都能诱导双光子聚合, 则需要在单焦点功率的基础上, 将激光功率提升 $N \times N$ 倍, 使其每个焦点都可用于刻写三维微纳结构, 因此相对于单光束逐点扫描的刻写方式, 该方法理论上可将刻写速度提升 $N \times N$ 倍, 因此基于 MLA 的并行刻写方式具有高并行数、高加工效率的特点。

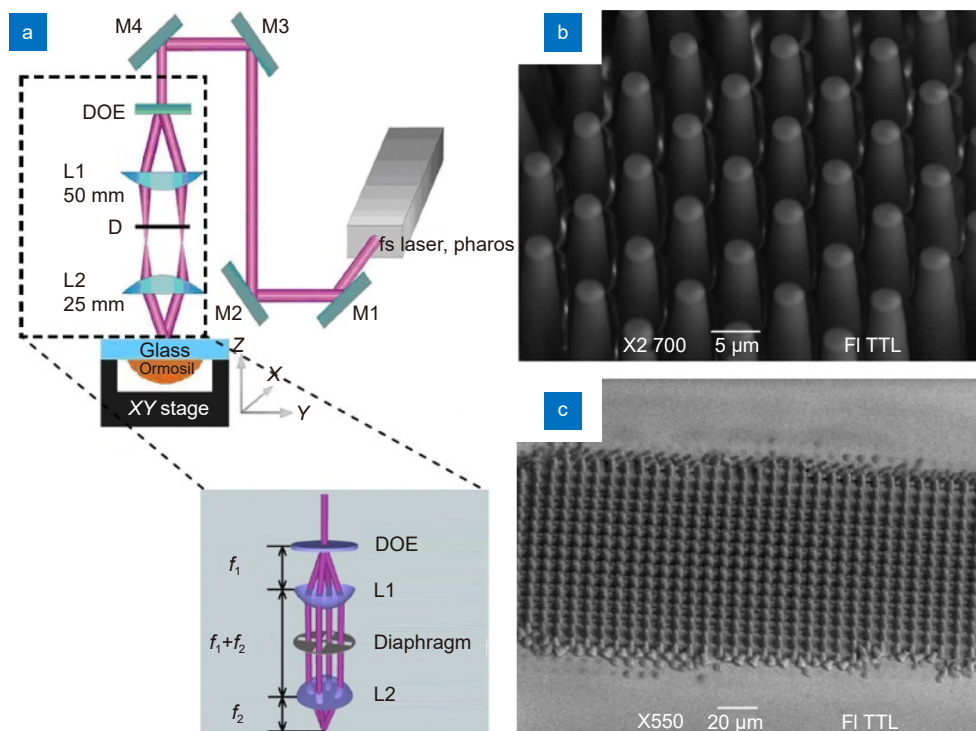


图 4 (a) 基于四光束干涉的多光子聚合刻写系统; (b) 单次曝光 (1 s) 加工的支柱阵列, 周期 7.5 μm , 高度 20 μm ,

支柱直径 3 μm ; (c) 连续单次曝光加工的大面积周期性结构, 其中单次曝光的激光焦点阵列直径为 $\sim 80 \mu\text{m}$ ^[56]

Fig. 4 (a) Configuration of the multi-photon writing system based on four-beam interference; (b) Pillar array fabricated by once laser exposure (1 s), period 7.5 μm , height 20 μm , and diameter 3 μm ; (c) Large-scale periodic structure fabricated by continuously shifting the once-exposure position of foci array with diameter of $\sim 80 \mu\text{m}$ ^[56]

典型的 MLA 飞秒激光并行直写主要有以下两类：一类通过 MLA 产生焦点阵列直接进行刻写^[63]，一类将 MLA 产生的焦点阵列成像到物镜焦平面进行刻写^[64]，如图 5 所示。通过微透镜阵列产生焦点阵列最初应用于成像。2005 年，Kato 等人^[65]首次将 MLA 应用到飞秒双光子聚合，通过包含 41×41 微透镜的

MLA，产生多个焦点阵列同时进行刻写，如图 6 所示，28 个像素同时曝光，每次曝光 200 ms，227 个二维“N”字母阵列可在 5 min 内完成刻写，通过 150 个像素同时加工高 8 μm/内径 1 μm/外径 5 μm 的三维微弹簧阵列结构，需耗时 30 min。

2006 年，Kawata 等人采用直径 300 μm、50×50

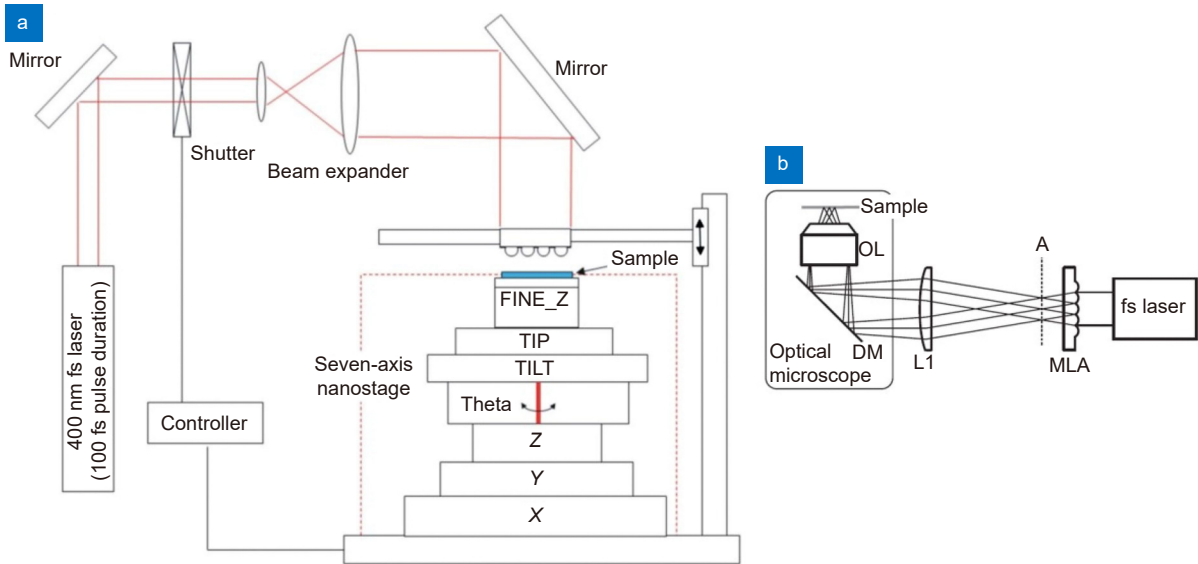


图 5 基于 MLA 的飞秒激光并行直写系统。(a) MLA 焦点阵列直接刻写；(b) MLA 焦点阵列成像到物镜焦平面刻写^[63-64]

Fig. 5 Femtosecond laser parallel direct writing system based on MLA. (a) Direct writing using MLA foci array; (b) Multi-foci writing by imaging the MLA foci array to the focal plane of the objective^[63-64]

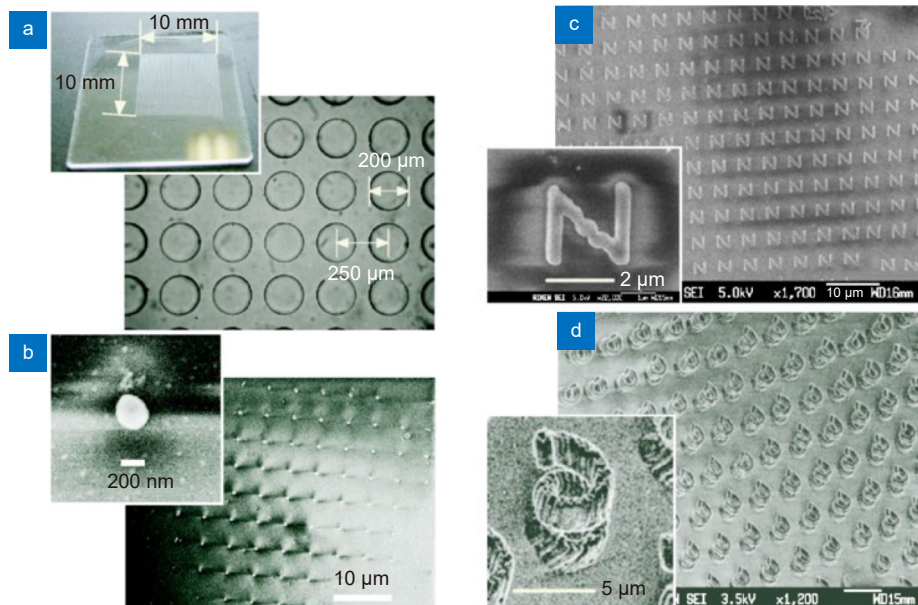


图 6 (a) 所采用 MLA 外观及其光学显微图像；(b) 在玻璃基板上产生的光聚合树脂体素扫描电子显微镜 SEM 图像；(c) 采用 28 个曝光点制作的 227 个二维“N”字母阵列；(d) 三维加工微弹簧阵列^[65]

Fig. 6 (a) The overall appearance and optical microscopic image of MLA; (b) SEM of the photopolymerized resin voxels on glass substrate; (c) The 2D array structure of 277 'N' microletters fabricated by 28 foci; (d) The fabricated 3D microspring array^[65]

的 MLA, 同时结合 138 fs/1 kHz 飞秒放大脉冲, 在疏水性镀膜玻璃表面进行加工, 利用 700 个光点在 40 min 内实现了 $78\ \mu\text{m}\times 58\ \mu\text{m}$ 的大面积双光子并行刻写; 如图 7 所示, 700 多个聚合物微结构被同时写入, 总共耗时 40 min, 其中单个聚合物由 $2\ \mu\text{m}$ 的立方体支撑高 $2.2\ \mu\text{m}$ 内径 $700\ \text{nm}$ 的线圈组成, 并在随后通过对加工结构进行化学镀银实现金属化^[66]。

基于 MLA 的飞秒激光并行刻写方法也存在缺点。首先, 受限于激光能量, 一般飞秒激光振荡器只能支撑几百个刻写激光焦点, 要得到成千甚至更高数量的激光刻写点, 则需要更高功率的飞秒激光放大器, 这将大幅度增加整个系统的成本。其次, 由于 MLA 由相同微透镜按一定规律排列而成, 因此基于 MLA 的并行直写只能用于刻写重复性单一结构。最后, 在使用 MLA 产生焦点阵列过程中, 光斑强度不均导致焦点阵列强度差异, 使得刻写结构不均匀, 同时像差的引入还会导致焦点位置偏差等问题。基于以上因素, MLA 的使用在最初发明之后并没有得到广泛的推广应用。

2.2.3 基于衍射分光元件 DOE 的飞秒激光并行刻写

衍射光学元件 DOE 是通过表面的浮雕结构对入射光相位进行调制, 在输出面得到任意形状光斑的一类光学器件。DOE 表面结构的制作借助计算机辅助设计, 并采用超大规模集成电路制造工艺在基片上或传统光学器件表面刻蚀出台阶或连续浮雕结构而形成。DOE 每个衍射单元可以有特定的形貌、折射率等, 对激光波前相位分布进行精细调控。激光经过每个衍射单元后发生衍射, 并在一定距离 (通常为无穷远或

透镜焦平面) 处产生干涉, 形成特定的光强分布。

衍射光学元件广泛应用于激光分束领域, 满足激光器对高衍射效率、高均匀性的要求。通过合理设计 DOE 表面的浮雕结构, 可生成多光束阵列, 每个光束具有原始光束的特性 (功率和传播角度除外)。相对于干涉点阵及微透镜阵列产生周期性点阵的方法, 利用 DOE 产生的多光束可以根据设计分布在任意位置。激光分束器 DOE 的典型应用包括: 激光划线、激光切割、激光穿孔、医疗/美容应用、三维传感和投影等^[67-71]。同样, DOE 在飞秒激光并行刻写中也已得到充分应用。2007 年, Dong 等人通过定制的衍射分束器 DBS 产生特定分布的多光束激光, 并应用在图 8(a) 所示的飞秒激光刻写系统中, 使入射 $780\ \text{nm}/80\ \text{fs}/80\ \text{MHz}$ 飞秒激光光源经 DBS 后分为 9 束。9 束光按照图 8(b) 所示的位置进行分布 (8 束光围绕中心的 1 束光), 并通过双振镜扫描方式进行并行双光子刻写。其中, 外围单光束刻写的横向精度在功率分别为 $10\ \text{mW}/11\ \text{mW}$ 时可达 $120\ \text{nm}/130\ \text{nm}$, 中心光束可达 $160\ \text{nm}$ (功率 $15\ \text{mW}$); 利用 9 光束并行刻写得到图 8(c) 所示的二维 logo 标志; 在进行三维加工时, 采用 $100\ \mu\text{m}/\text{s}$ 的速度进行快速扫描, 得到图 8(d)~8(f) 所示的三维复杂结构^[72]。

2020 年, Hahn 等人设计了一套基于 DOE 的并行加工系统, 实现了远超以往的三维加工速度。如图 9(a)~9(d) 所示, 通过设计特定浮雕结构的 DOE, 使激光分束产生 3×3 的激光刻写阵列; 科研人员将该 DOE 用于图 9(e) 所示的飞秒激光双光子三维打印装置, 以 $0.4\ \text{mm}/\text{s}$ 的速度同时扫描 9 个焦点, 完成

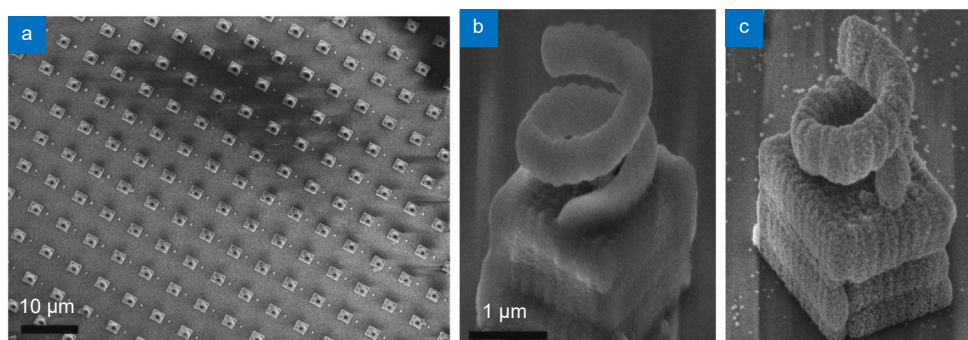


图 7 (a) 在疏水镀膜玻璃表面制备三维周期性镀银结构的电子显微镜图; (b) 由一个立方体支撑一个线圈组成的单个未镀层聚合物结构的近景; (c) 化学镀银后单个结构的近景^[66]

Fig. 7 (a) SEM of 3D periodic structures coated with silver fabricated on a hydrophobic coated glass surface; (b) Enlarged view of a single uncoated polymerized structure composed of a spring on top of a cube;

(c) The polymerized structure of (b) with coated silver^[66]

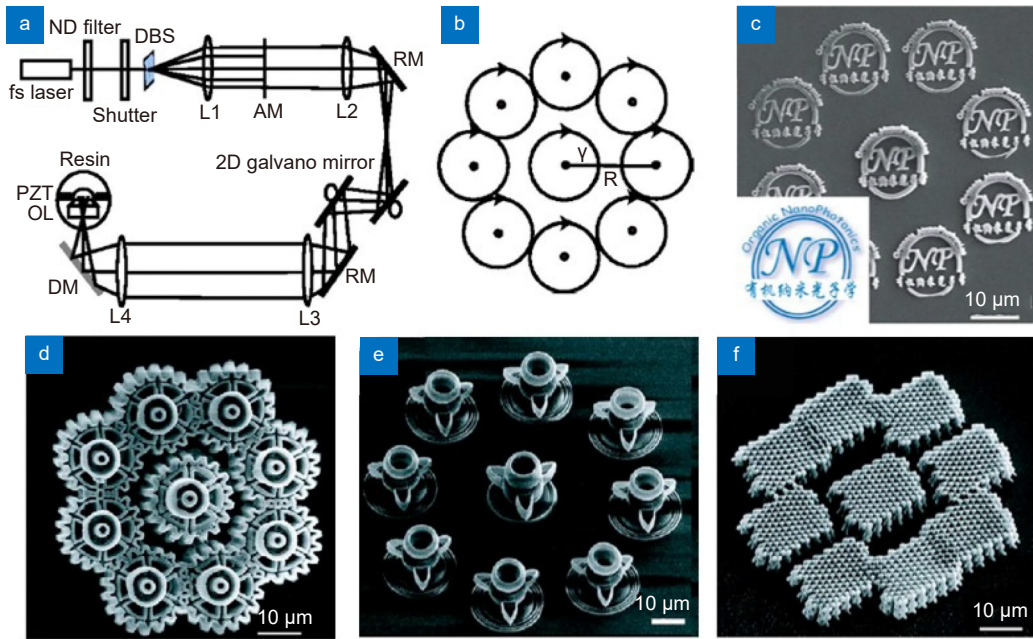


图 8 (a) 基于 DBS 的多光束并行飞秒多光子加工系统; (b) 利用 DBS 产生的多光束结构; (c)~(f) 通过图 (a) 装置并行加工得到的 Logo 标志、集成齿轮 (直径 22 μm)、微风扇及六边形结构光子晶体^[72]
 Fig. 8 (a) DBS-based multi-photon processing system with multiple femtosecond laser beams; (b) Multi-foci pattern generated by DBS; (c)~(f) The structures of designed Logo, assembled microgear set (diameter 22 μm), 3D microfans, and assembled microgear set fabricated with the optical setup of (a)^[72]

了 2.4 mm×2.4 mm×9.6 mm 手性超材料样品的打印, 如图 9(g) 所示, 该样品包含 3×10^{11} 个体素 (其中体素横向和纵向的间距分别为 200 nm、500 nm), 最高打印速度可达到 9×10^7 体素/s, 整体结构耗时 2 天。该样品由 108000 个图 9(f) 所示的三维单元结构组成, 而此前三维单元结构最高值不超过一千。图 9(h) 为该样品的扫描电镜图^[73]。

对 DOE 表面结构进行灵活设计, 可以实现特定分布的焦点阵列, 但 DOE 的定制成本较高, 且加工系统复杂, 仅限科学研究; 此外, DOE 所能产生的焦点数量较少, 对刻写速度的提升效果有限, 且 DOE 所产生的焦点阵列分布无法改变, 只能加工重复性结构。

2.2.4 基于 SLM 动态编码的多光束并行刻写

上述产生多光束的技术都为静态分束, 存在无法对单一光束进行独立控制、缺乏控制灵活性、系统结构复杂等缺点, 因此难以实现灵活可控的高效、高精度多光束并行加工。空间光调制器 SLM 的出现, 使得上述问题在很大程度上得以解决。SLM 可以对激光光束的振幅、相位或偏振等光学参数进行调控, 配合光路设计, 可得到任意的光场强度分布。近年来,

随着高损伤阈值 SLM 的出现及超快激光器的发展, 更多的研究通过将 SLM 与超快激光结合来实现高效、高精度且灵活可控的并行加工技术。

基于空间光调制器 SLM 进行动态编码, 可以将一束光进行分束, 实现多焦点产生。基于 SLM 的并行加工原理如下: 激光束入射到 SLM 的光学表面后, 通过算法设计生成计算全息图 (computer-generated hologram, CGH), 将该全息图从计算机发送至 SLM, 当光束从 SLM 反射后, 光束中不同位置波前的强度和相位发生改变, 随后在自由空间发生衍射, 再经过其后的傅里叶透镜, 在透镜的焦平面处光束将不再单点聚焦, 而是聚焦为更复杂的点阵列。其中, 计算全息图的生成算法尤为关键, 此类的算法有很多, 其中以 GS (Gerchberg-Saxton) 算法最为经典。GS 算法是一种迭代算法, 首先, 将激光的光源场强分布和随机相位组合作为输入的复振幅, 经过傅里叶变换之后得到焦点处的复振幅, 将其相位信息保留, 强度信息用目标光场的强度替换得到新的复振幅分布, 然后进行反向傅里叶变换得到前焦面的复振幅分布, 同样, 保留相位信息, 强度信息用激光光源的场强分布进行替换, 接着进行下一轮的计算, 如此迭代一定次数后,

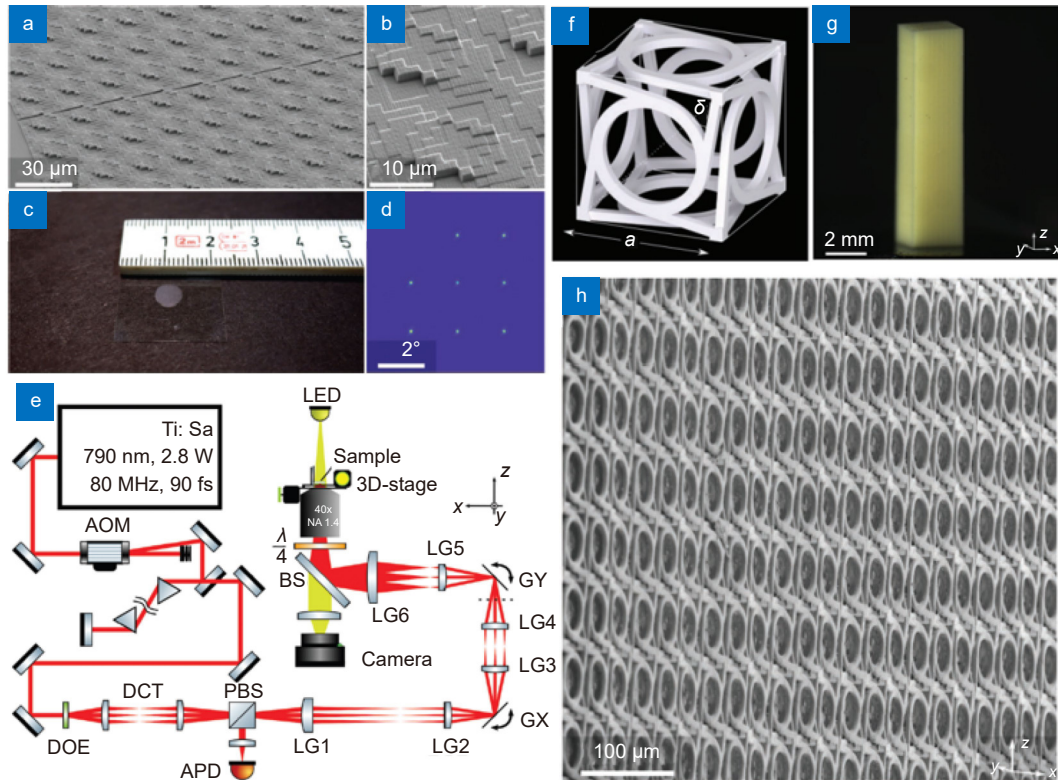


图 9 基于 DOE 分束的飞秒激光并行刻写。(a) DOE 扫描电镜图; (b) DOE 表面浮雕结构特写镜头; (c) DOE 拍摄实物图; (d) CMOS 相机对 DOE 进行归一化伪色强度测量; (e) 基于 DOE 生成的 3×3 焦点阵列的并行三维双光子打印装置方案; (f) 手性三维超材料立方体单元结构设计模型, 尺寸 a 为 80 μm ; (g) 由 $30 \times 30 \times 120 = 108000$ 个 (f) 所示的单元结构组成的 $2.4 \text{ mm} \times 2.4 \text{ mm} \times 9.6 \text{ mm}$ 手性超材料加工结构; (h) 图 (g) 手性机械超材料斜侧面的扫描电子显微镜图^[73]

Fig. 9 DOE-based multi-beam parallel femtosecond laser writing. (a) SEM of the DOE surface; (b) Enlarged view of (a); (c) Overall appearance of the DOE; (d) Normalized false-color intensity measurement of the DOE using a CMOS-camera; (e) Parallel 3D two-photon fabricating system based on 3×3 foci generated by DOE; (f) Designed model of the chiral 3D metamaterial cubic cell, $a=80 \mu\text{m}$; (g) $2.4 \text{ mm} \times 2.4 \text{ mm} \times 9.6 \text{ mm}$ chiral metamaterial structure consisting of $30 \times 30 \times 120 = 108000$ 3D cubic cells of (f); (h) Oblique side-view SEM of the structure in (g)^[73]

反向傅里叶变换之后得到的相位分布就是 GS 算法生成的全息图, 将该全息图加载到 SLM 上, 即可产生所设计的结构光场, 包括多焦点阵列、特定结构的面积光场等。后续涌现的其他很多算法也都是由 GS 算法演变而来, 如 AA (adaptive-additive algorithm) 算法、GSW (weighted Gerchberg-Saxton) 算法、DWGS (doubly weighted Gerchberg-Saxton) 算法、GSW-DIA (weighted Gerchberg-Saxton double iterative algorithm) 算法等。

2011 年, Chichkov 团队利用 SLM 对入射的 780 nm/140 fs 飞秒激光进行调制, 实现多焦点阵列产生, 结合振镜扫描进行微结构阵列双光子刻写, 如图 10 所示, 通过 SLM 产生 4×4 焦点阵列, 每个焦点平均功率在 8 mW~12 mW 之间, 通过 100×/1.4 NA 的油浸物镜聚焦后, 在基于丙醇锆的树脂中以 1 mm/s 的速度对该 4×4 个焦点进行扫描, 在 45 s 内完成了 16

个微维纳斯结构的制造; 同时, 该研究工作也是首次利用多焦点双光子刻写技术加工功能性医学装置, 采用 4 个焦点 (~52.5 mW/焦点) 进行并行加工, 在直写速度 2.5 mm/s 的情况下, 加工单层图 10(c) 所示的细胞培养组织支架只需要 7.5 min; 此外, 该研究小组还利用四个焦点加工了图 10(d) 所示的 36 个微针阵列, 其扫描速度为 200 $\mu\text{m/s}$ ^[74]。

相比于通过 SLM 生成周期性 $n \times n$ 焦点阵列进行并行刻写的方式, 2015 年, BorisN. Chichkov 团队进一步通过 SLM 产生焦点数量及焦点位置分布可调的飞秒激光点阵, 实现了双光子加工通量及灵活性的大幅度提升。如图 11 所示, 通过产生 3 焦点、7 焦点及 4×4 焦点刻写微透镜阵列, 以及通过排列成线的 10 个焦点完成木柴堆结构的刻写; 此外, 通过图 11(j) 所示的多焦点及三维平台螺旋型方式扫描,

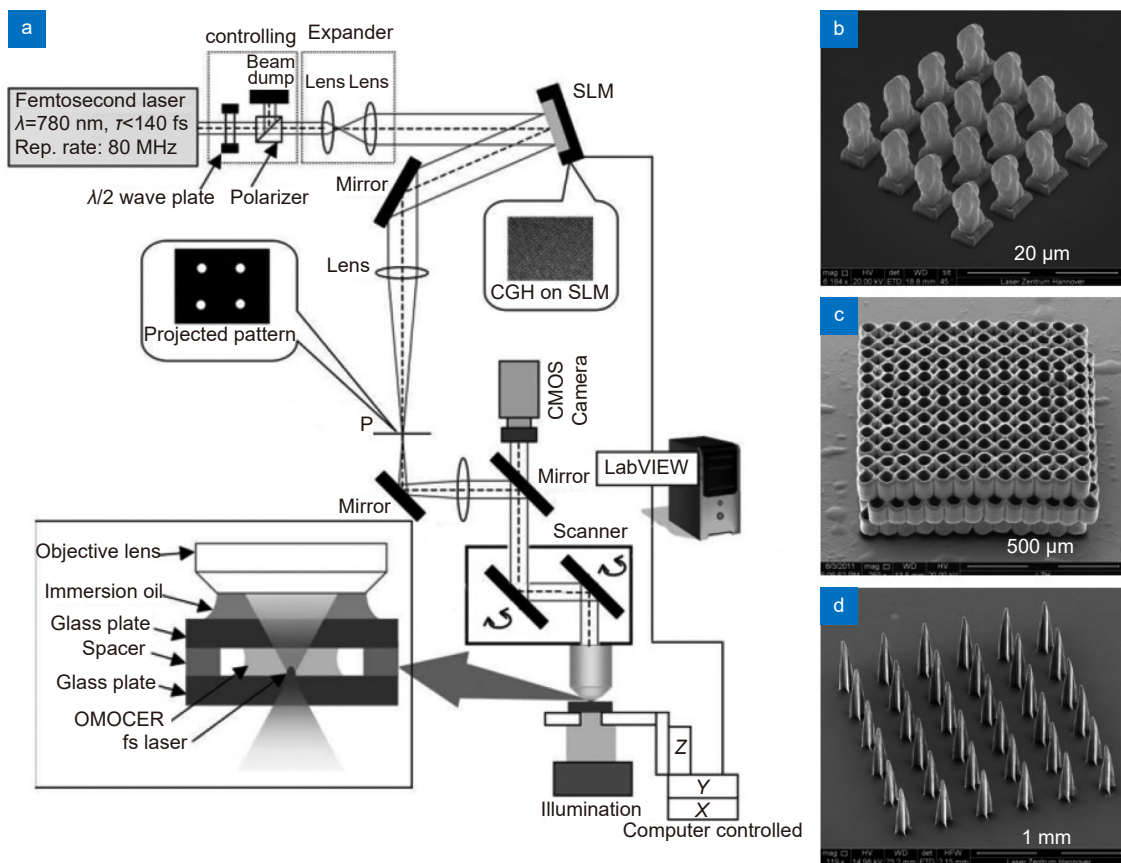


图 10 (a) 基于 SLM 产生多焦点阵列进行飞秒双光子刻写的装置结构; (b) 产生 4×4 焦点同时进行刻写生成的“维纳斯雕塑”; (c) 4 焦点并行刻写而成的细胞培养组织支架; (d) 4 焦点同时刻写产生的 36 个微针^[74]

Fig. 10 (a) The SLM-based multi-foci femtosecond two-photon lithography system; (b) The Venus sculptures fabricated by 4×4 foci; (c) The scaffold for cell cultivation fabricated by 4 foci; (d) 36 microneedles processed by 4 foci^[74]

采用 45、60 和 52 个焦点分别加工了图 11(k)~11(m) 所示的螺旋型三维光子晶体结构—字母“L”、“Z”和“H”，耗时 60 s^[75]。

基于 SLM 动态编码的多光束并行刻写还能有效结合 PPI 效应，在增加刻写焦点的同时提升刻写精度。2015 年，顾敏团队采用两同步 SLM 的相位调制方案，将 PPI 技术与多焦点并行技术相结合，生成三维分布且独立调控的四光束 PPI 阵列，其具体实现方案如下：利用两个同步空间光调制器 SLM 分别对入射的激发光 (800 nm 飞秒光) 和抑制光 (532 nm 连续光) 同时进行相位调制，如图 12(a) 所示。从两个 SLM 出射的激发光和抑制光的一级衍射光束均投影到物镜的后焦面，通过两个 SLM 精确相位调制，使在物镜焦面分别产生激发光实心点阵和抑制光涡旋阵列，并实现每个实心焦点和每个涡旋光在空间上的重叠与对准，形成超分辨率多焦点 PPI 阵列，如图 12(b) 所示。采用该 PPI

阵列刻写的纳米点阵结构，如图 12(d) 所示，其尺寸均匀性达到 90%，且在抑制光功率分别为 245 mW 及 210 mW 情况下，点的最小尺寸及点间隔可以分别达到 100 nm 和 200 nm，其动态刻写不同图案的结果如图 12(e) 所示，四个焦点分别用于刻写“S”、“W”、“I”、“N”四个字母；同时还进一步控制焦点分布在轴向不同位置进行三维刻写，如图 12(f)~12(g) 所示，每层 6×6 焦点阵列，层间隔 1.5 μm，在三维空间内实现了单点尺寸 80 nm 及点间距 200 nm 的高均匀性点阵结构刻写。该技术可以刻写几十纳米且尺寸均匀的三维点阵，可用于实现 30 TB 超高容量及千兆/秒超高数据速率 (提升 2 个数量级) 的光刻录^[76]。

基于 SLM 的多焦点双光子并行刻写技术逐渐成熟后，科研人员也在不断探索其在更多领域的应用。如 2016 年，Bing Xu 等人在光敏玻璃基板上刻蚀 Y 型微通道，随后在该基板上涂上光刻胶，通过 SLM

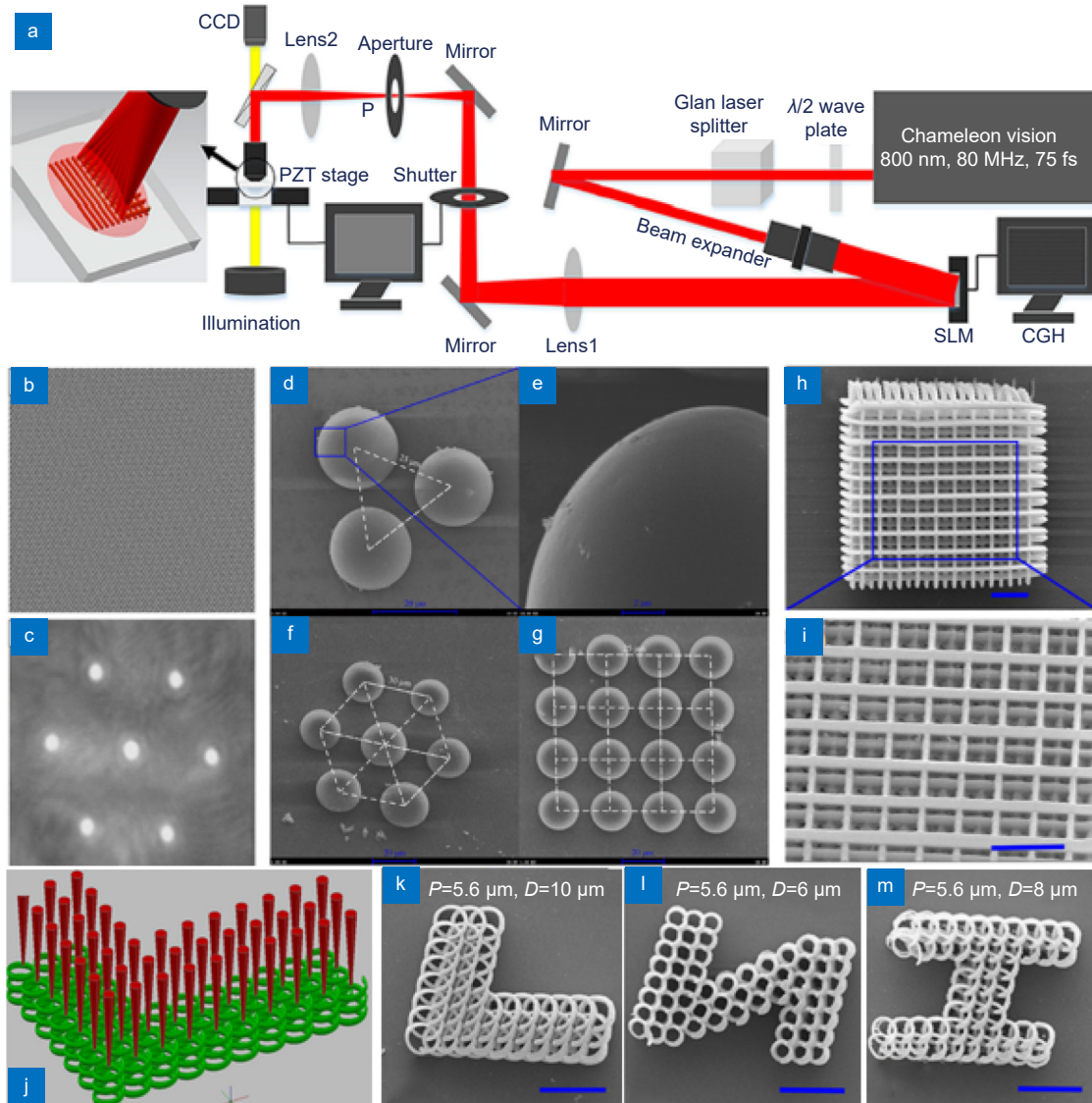


图 11 (a) 通过 SLM 将飞秒激光调制成多光束进行并行刻写的装置示意图; (b)~(c) SLM 加载全息图及生成的 7 焦点阵列; (d)~(g) 通过 SLM 产生 3 焦点、7 焦点及 4×4 焦点分别制备的微透镜阵列; (h)~(i) 利用 10 焦点并行加工木柴堆结构及其放大图; (j) 多焦点并行螺旋型扫描方式加工示意图; (k)~(m) 通过 (j) 方法加工三维螺旋型光子晶体“L”、“Z”、“H”，其中激光焦点间距 $P=5.6\ \mu\text{m}$ ，螺旋扫描直径分别为 $10\ \mu\text{m}$ 、 $6\ \mu\text{m}$ 和 $8\ \mu\text{m}$ ^[75]

Fig. 11 (a) The SLM-based multi-foci femtosecond laser parallel writing system; (b)~(c) The hologram loaded in SLM and the generated 7 foci pattern, respectively; (d)~(g) Microlens arrays fabricated by SLM with 3 foci, 7 foci, and 4×4 foci respectively; (h)~(i) The overall image and enlarged view of the 3D woodpile photonic structure fabricated by 10 foci; (j) Illustration of the multi-foci parallel fabrication process with the spiral scanning strategy; (k)~(m) 3D spiral photonic structures of 'L', 'Z', and 'H' fabricated by the multi-beam scanning way of (j). The foci pitch is $5.6\ \mu\text{m}$ and the diameters of scanning spiral are $10\ \mu\text{m}$, $6\ \mu\text{m}$, and $8\ \mu\text{m}$, respectively^[75]

将入射 800 nm/75 fs/80 MHz 飞秒脉冲激光调制成 3×3 焦点阵列，并在涂层上进行飞秒激光并行刻写，从而在给定 Y 形微通道内集成微结构，如图 13 所示，同时利用 9 个焦点分别在表面及 Y 型通道内刻写“LOC”、“十字”和“万字符”结构。该研究首次在微芯片内快速集成 3D 微型装置，大大减少了制造时间，还通过对预焙时间、激光功率和显影时间等实验条件

的定量优化，保证了各种二维/三维微结构的高质量集成^[71]。

此外，2020 年，Hu 等人通过 SLM 进行多焦点并行加工，通过产生多个飞秒光束 (包括 4、5、6、8 和 12 束) 进行微米柱阵列加工，产生的微米柱阵列在蒸发所形成的毛细作用力下，形成微米柱自组装结构，其原理如图 14(b) 所示，通过预先设计的 CGH 灵活

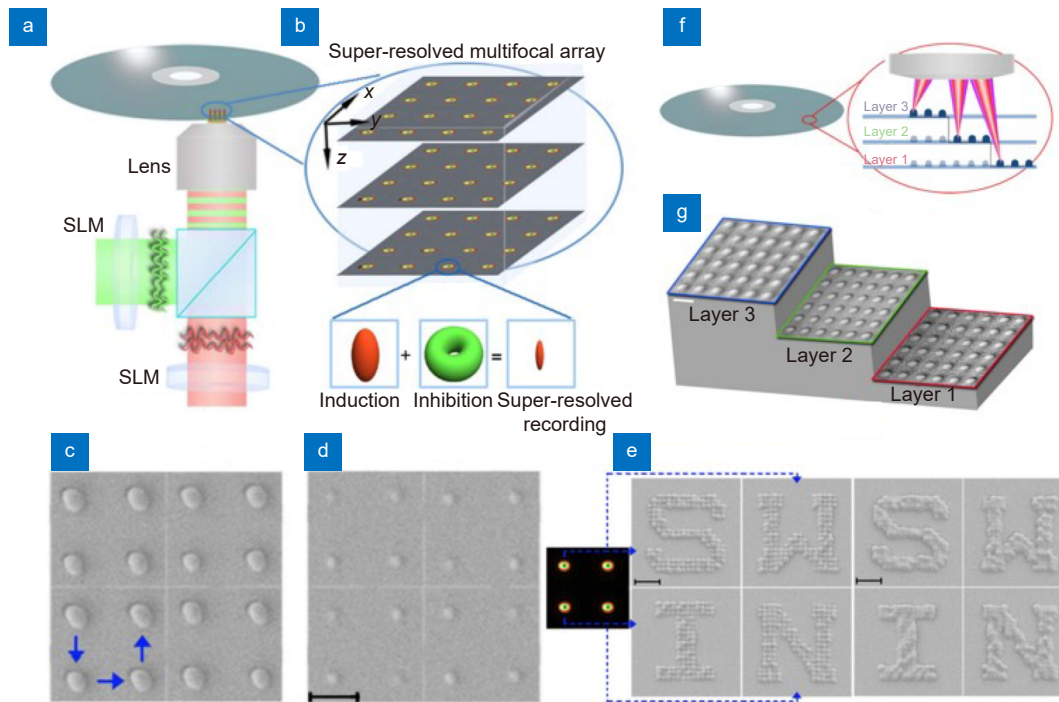


图 12 (a) 基于两同步 SLM 的相位调制方案; (b) 通过复制 2×2 并行 PPI 焦斑形成三维 PPI 焦点阵列示意图; (c) 无抑制光飞秒激光焦点刻写的点阵结构, 蓝色箭头指示刻写路径; (d) 叠加抑制光后 PPI 焦斑刻写的点阵结构, 抑制光功率为 210 mW。比例尺为 500 nm; (e) 通过 PPI 焦点阵列 (左) 和激发光点阵 (右) 刻写的字母结构, 各字母分别由 2×2 焦点阵列中的一个焦点完成刻写, 比例尺为 1 μm ; (f) PPI 焦斑分布在不同刻写层的三维并行刻写方案, 层间距为 1.5 μm ; (g) 通过 PPI 阵列三维刻写的三层点阵结构, 点间距为 200 nm, 单点尺寸为 80 nm^[76]

Fig. 12 (a) Phase modulation scheme based on two synchronized SLMs; (b) Illustration of the 3D PPI array through duplicating the 2×2 parallel PPI foci; (c) The dot array fabricated with femtosecond foci. The blue arrows indicate the scanning route; (d) The dot array fabricated by PPI foci with inhibition power of 210 mW. Scale bar: 500 nm; (e) SEM of the fabricated letters by 2×2 PPI foci (left) and the femtosecond multifocal array (right). Each letter is processed respectively by one focus of the 2×2 multifocal array. Scale bars: 1 μm ; (f) The scheme for parallelized PPI 3D writing on different layers with interval of 1.5 μm ; (g) 3D dots with interval of 200 nm and size of 80 nm on three different layers which are fabricated by the PPI multifocal array^[76]

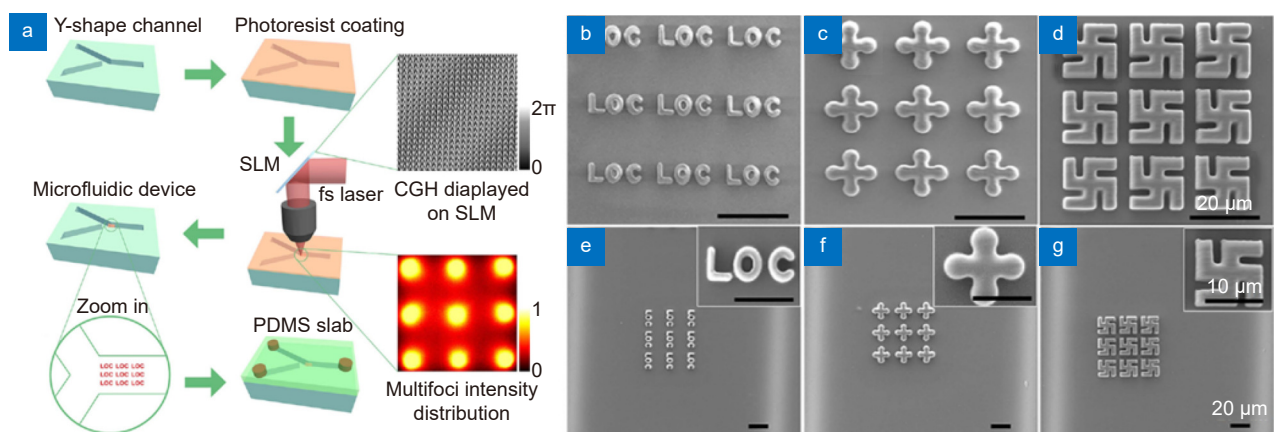


图 13 (a) “Y”形微通道内飞秒激光多焦点并行加工集成微结构示意图;

(b)~(g) 在表面 (b)~(d) 及通道内 (e)~(g) 刻写“LOC”、“十字”、“万字符”结构^[77]

Fig. 13 (a) Illustration of fabricating integrated miniaturized structure inside a ‘Y’ shape microchannel by parallel femtosecond multiple foci; (b)~(g) the structures with patterns of ‘LOC’ characters, ‘Cross’ and ‘Svastika’ fabricated on the substrate surface (b)~(d) and in the channel (e)~(g) respectively^[77]

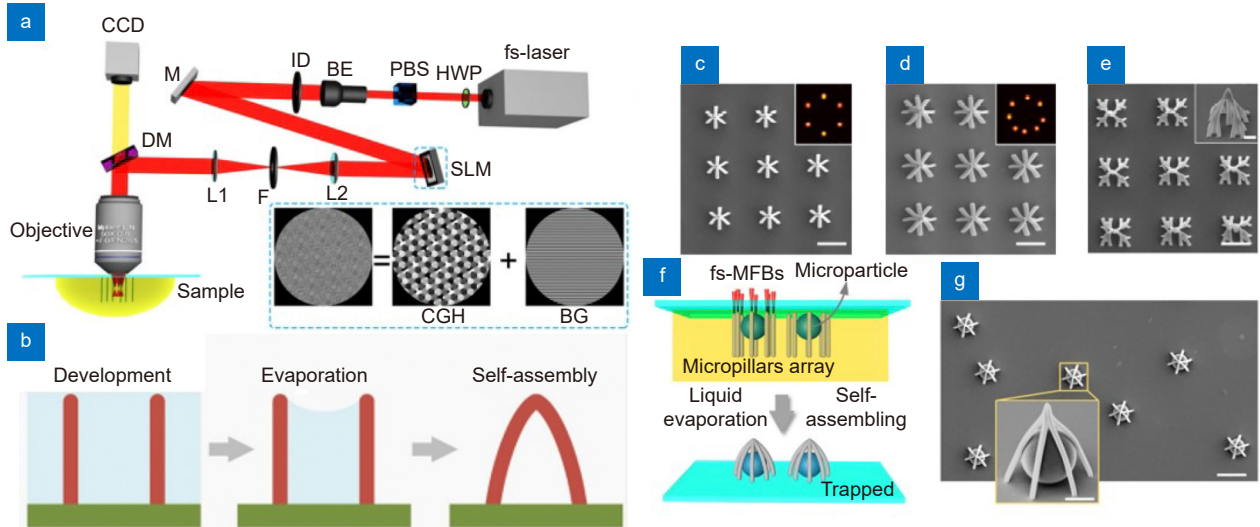


图 14 (a) 基于 SLM 产生多焦点进行微米柱加工的实验光路图, 子图为 CGH 设计图; (b) 微米柱在蒸发所引起的毛细作用下所形成自组装结构的原理示意图; (c)~(e) 利用不同焦点数量和空间分布的激光焦点阵列加工不同的微米柱集成结构, 每个集成微结构分别包含 6、8、12 个微米柱, 比例尺: 2 μm ; (f)~(g) 通过 6 焦点加工的微米柱自组装结构用于原位捕捉微球^[78]

Fig. 14 (a) The configuration of SLM-based multi-foci parallel writing system for micropillar fabrication. The inset illustrates the design of CGH; (b) The schematic diagram of self-assembly structure formation by capillary force on micropillars; (c)~(e) Diverse micro-assemblies with 6, 8, and 12 micropillars respectively fabricated by foci array with different beam quantity and distribution. Scale bar: 2 μm ; (f)~(g) In-situ trapping of microparticles by the micro-assemblies fabricated with six-foci beams^[78]

控制焦点的数量及位置分布, 加工特定几何结构和空间分布的微米柱, 从而通过蒸发作用实现所需的微米柱自组装结构, 图 14(c)~14(e) 所示即为通过 6、8 及 12 个焦点分别加工的不同微米柱集成结构, 该结构可用于原位捕捉任意位置的微球, 如图 14(f)~14(g) 所示^[78]。

与前几种相比, SLM 实现了一种完全不同的多焦点产生方法, 其优点主要在于, 可通过快速更换相位图对光进行动态调制, 实现各光束的灵活独立控制, 焦点阵列分布结构可根据需要进行更改。但目前基于 SLM 的并行光刻技术所产生的焦点数量有限, 在加工复杂结构时依然是限制加工速度的短板, 且 SLM 的刷新频率慢, 进一步限制了刻写速度的提升。

2.2.5 基于 DMD 的飞秒多光束并行刻写

同 SLM 一样, 数字微镜器件 (DMD) 也可对飞秒激光进行相位调制产生多焦点。通过快速切换 DMD 内存里的二值全息图片, 可生成多个焦点, 并实现对各光束的独立控制, 使多个焦点在三维空间内以任意轨迹进行扫描。目前虽然实现的焦点数量较少, 但相比于 SLM, 其刷新频率更快 (32 kHz),

刻写速度更高。DMD 是一种常用的振幅型空间光调制器件, 由数百万个微反射镜组成, 每个微反射镜都可以铝铰链为旋转轴旋转 $10^{\circ}\sim 12^{\circ}$, 通过机电方式可独立控制各微镜小幅度摆动, 从而控制该微镜出射光在特定方向上的开关, 实现空间光场图案化。DMD 在空间光调制时具有分辨率高、对比度高、响应速度快、控制灵活等突出优点。此外, 由于 DMD 各微镜呈二维周期性排列, 因此兼具二维光栅的特性, 飞秒光经过 DMD 后的衍射光具有角色散, 将 DMD 用于产生飞秒多焦点阵列时一般须通过光栅对该角色散进行预补偿。

2019 年, 香港中文大学陈世祈团队利用二进制全息技术, 通过 DMD (22.7 kHz) 产生一到几十个飞秒焦点用于纳米加工, 如图 15 所示。刻写结构的纵向分辨率分别可达到 130 nm 和 270 nm; 独立控制各焦点沿不同路径扫描, 进行复杂三维结构加工, 具有 ~ 500 nm 的加工分辨率, 实现了当时最高的双光子直写速度^[79]。

2.3 飞秒激光图形化光场面曝光研究

多焦点并行激光加工的方法, 突破了双光子直写技术在加工效率方面的限制。飞秒激光还可进一步被

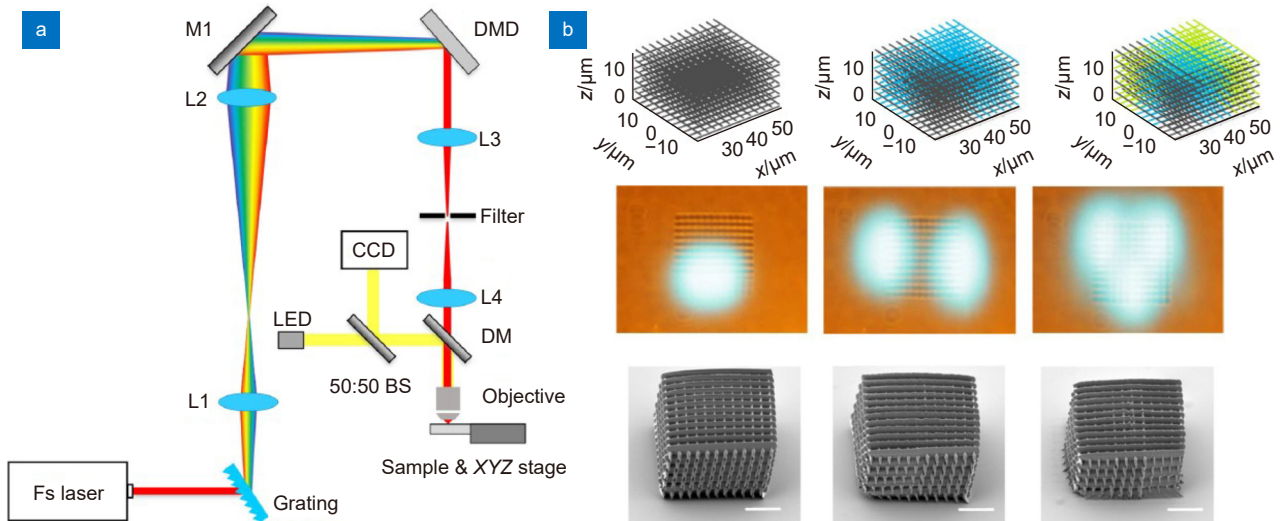


图 15 (a) 基于 DMD 的飞秒激光多焦点并行直写系统; (b) 单焦点、双焦点、三焦点的激光扫描路径、刻写过程图及加工木柴堆结构, 比例尺: 10 μm ^[79]

Fig. 15 (a) Optical configuration of DMD-based multi-foci femtosecond laser parallel writing system; (b) Designed laser scanning trajectories, laser writing process, and SEMs of the fabricated woodpile structures with single-focus, two-foci, and three-foci writing respectively. Scale bar: 10 μm ^[79]

调制成线形甚至是面形光场进行高效加工, 只需单次曝光即可完成任意图案的微结构加工, 无需进行整个二维图案的扫描, 可进一步提高飞秒激光直写的加工效率。

通过数字微镜器件 DMD、液晶空间光调制器 LC-SLM 等光学调制元件, 可将平行入射的激光光斑调制为目标图案, 当激光功率密度足够高时, 通过单次曝光就可得到所需要的刻写结构。基于 DMD、LC-SLM 的图形化光场加工方法不需要传统掩模, 因此也被称为无掩模光刻。基于该方法的飞秒双光子光刻具有加工效率高、工序简单、无需掩模、结构灵活等

优点, 但这种方法对结构化光场的均一性、边缘质量要求极高, 极少量的噪声也会导致加工结构质量的下降。

2013 年, Mills 等人首先将 DMD 投影加工的模式引入到多光子聚合加工系统中, 对基于 DMD 投影的多光子光刻技术的可行性进行了验证。如图 16(a) 所示, 将光斑匀化后的 800 nm 飞秒激光入射到 DMD, 利用 DMD 对光场进行振幅调制, 产生结构为字母“ORC”的光场, 将该光场成像到物镜焦面进行曝光, 单次曝光即可得到如图 16(b) 的字母“ORC”微结构, 每个结构的加工时间仅为 5 ms^[80]。

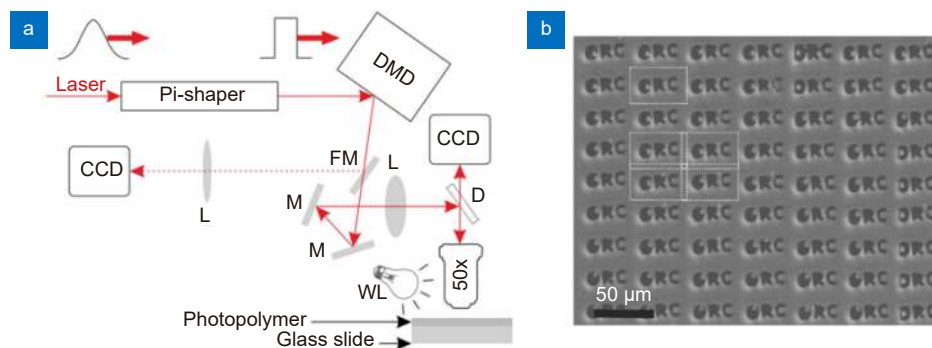


图 16 (a) 基于 DMD 调制的飞秒激光面曝光投影光刻装置; (b) 利用 DMD 单次曝光加载的大面积“ORC”字母微结构^[80]

Fig. 16 (a) Schematic diagram of the DMD-based femtosecond laser projection lithography system; (b) Large-scale periodic microstructures of 'ORC' letters fabricated by DMD once projection^[80]

2019年, 香港中文大学陈世祈团队等人利用DMD的二维光栅衍射效应, 在DMD面曝光的基础上利用宽带飞秒激光的时空同步聚焦特性, 得到横向分辨率及纵向分辨率分别为130 nm~140 nm和175 nm的纳米线结构, 将体元纵横比缩小到1.25; 此外, 该DMD投影方案如图17(a)所示, 每次曝光约一百万个像素, 最大投影面积达到165 μm×165 μm, 可将加工通量提升3个数量级, 其中层厚度范围在<1 μm~4 μm, 单层曝光时间3 ms, 每投影层间隔时间20 ms, 其加工的多种复杂结构如图17(b)所示^[30]。

空间光调制器SLM也可将飞秒激光调制成本空间特定分布的面形光场, 实现以面为基本加工单元的刻写。通过GS算法产生计算全息CGH, 在空间光调制器上加载对应目标图案的计算全息图, 飞秒激光通过SLM调制后形成结构化光场, 依次将多张图形加载到SLM, 进行不同图案结构的连续加工, 结合Z轴方向的位移器件, 实现三维结构的快速制备。

早期基于SLM的曝光方式依赖于多焦点扫描方式, 因为在面曝光系统中, 调制光场的均匀性和连续性是实现高质量和可重复性刻写的关键, 然而, 运用常规算法时, 当目标图案由连续的点组成时, 相邻点之间会发生随机干扰, 这种干扰会产生散斑噪声。由于散斑噪声的存在, 重建后的目标光场具有不均匀性

和不连续性, 降低了图案面曝光的质量^[81], 因此相关的研究工作侧重于优化相位恢复算法, 如图18所示。2014年, 中国科技大学教授黄文浩团队提出了多次曝光方法, 在不损失效率的前提下, 显著提高了光学均匀性^[82]。当然, 不同科研团队也陆续提出了多种优化方法进一步提升面曝光质量, 包括基于时间平均^[83]、交错图案全息^[84]、多波长曝光^[85]等方法, 然而, 对于高精度结构的刻写, 目前数字面曝光技术还难以实现。

液晶空间光调制器LC-SLM相比于DMD器件虽然刷新速度慢, 但其本身具有一些独特的优势。首先, DMD通过控制表面微镜的开和关来控制光路的通断, 这意味着只有从开状态微镜上反射的光才能被有效利用, 当关状态的微镜较多时, 大部分激光能量被损耗, 不能得到充分利用, 而LC-SLM对光束进行纯相位调制, 对于入射到调制器的光能量损失更小, 能量效率更高; 飞秒激光诱导双光子聚合, 要求激光功率达到一定的阈值, 当刻写系统中所采用的飞秒激光功率过高, 会极大缩短DMD的使用寿命, 而SLM的损伤阈值更高, 可承受更高的飞秒激光功率密度; 另外, DMD仅能作为动态模板将光束调制成二维图案, 而SLM可将激光束调制成三维图案, 在三维立体投影方面, SLM相对具有更大的潜力。

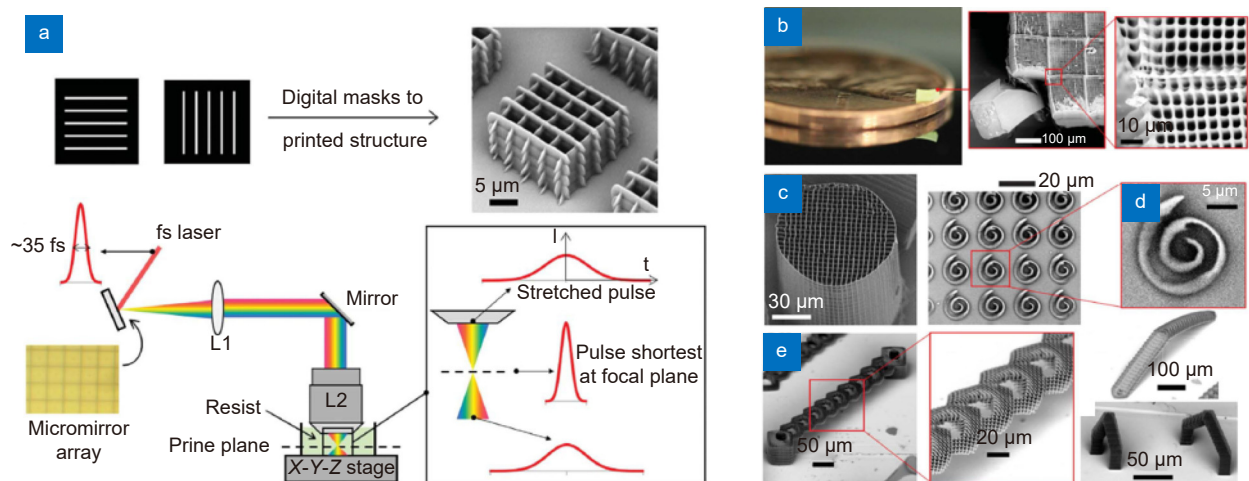


图 17 (a) 基于飞秒时空同步聚焦特性的 DMD 数字掩模投影面曝光方案; (b) 一美分硬币上 2.2 mm×2.2 mm×0.25 mm 立方体结构, 刻写耗时 8 min 20 s; (c) 二维刻写层堆叠而成的三维微柱结构; (d) 单层螺旋结构, 耗时几毫秒; (e) 三维悬伸结构^[30]

Fig. 17 (a) Schematic diagram of DMD-based projection system using the spatial and temporal focusing of femtosecond laser; (b) 2.2 mm×2.2 mm×0.25 mm cube supported on a U.S. penny fabricated in 8 min 20 s; (c) Fabricated 3D micropillar stacked with 2D layers; (d) Spiral structures through once projection within several millisecond; (e) Overhanging 3D structures^[30]

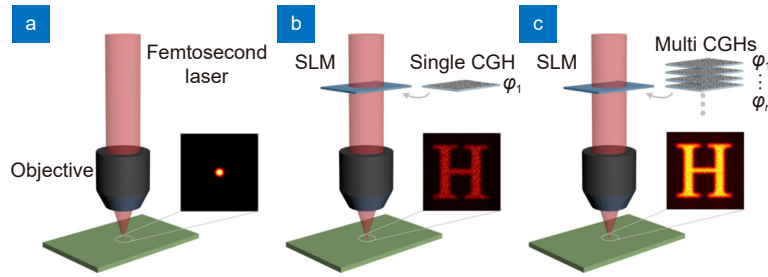


图 18 (a) 飞秒激光直写原理图, 光强在焦平面上呈圆形分布; (b) 单曝光全息飞秒激光打印。离焦面处的光强分布是由计算全息设计的“H”图案结构。然而, 这种方法信噪比低, 导致微/纳米结构制造的表面质量低; (c) 多次曝光全息飞秒激光打印, 在离焦面处的光强分布是由多个不同相位全息图所组成的“H”图案结构。由于对策略的改进, 强度分布具有更高的信噪比, 从而实现高质量的微/纳米结构^[81-82]

Fig. 18 (a) Schematic diagram of femtosecond laser direct writing. The optical intensity distribution at the focal plane is a round point; (b) Schematic diagram of single-exposure holographic femtosecond laser direct patterning. The optical intensity distribution at the defocused plane is a complex pattern 'H' designed by computer generated hologram (CGH). However, the distribution shows low signal-to-noise and leads to low surface quality in fabricating micro/nanostructures; (c) Multiexposure holographic femtosecond laser direct patterning. The optical intensity distribution at the defocused plane is a complex pattern 'H' designed by multi-CGH with different phases. Due to the improved strategy, the distribution shows high signal-to-noise and thus high quality micro/nanostructures will be realized^[81-82]

2.4 基于体曝光刻写效率提升方面的研究

毫无疑问, 体曝光刻写是 3D 刻写测量中效率最高的方式, 不过也是最具挑战的方式, 因此, 众多科研团队在此方向上努力, 尝试推动该技术的进一步发展。2019 年, 吉林大学王磊团队利用单次超短激光脉冲实现微透镜的制备, 可调控光束质量来控制微透镜的直径和数值孔径^[86], 并且可以利用空间光调制器实现微透镜阵列的超快速制备。对于更加复杂的三维结构, 中国科学技术大学吴东团队提出利用空间光调制器调制出的三维涡旋光场进行单次快速曝光或三维空间扫描加工, 如图 19 所示, 用于高效制备空心管状和锥形螺旋结构^[87-89], 相比于传统的激光直写加工, 加工速度最快提高了

600 倍。除此之外, 利用该方法也可以灵活可控地加工出不同参数的管状与螺旋结构, 大大提高了复杂三维结构的加工能力。2021 年, 该团队将该技术结合多个平行涡旋光束的干涉效应及毛细力辅助自组装技术^[90], 可实现稳定的三维手性微结构的制备, 制造效率提高 100 倍以上, 并且手性微观结构的高度、直径、旋转角度和旋向均可灵活调节, 如图 20 所示。

体曝光刻写拥有最快三维刻写的潜力, 是解决纳米三维结构快速刻写最有效的手段, 然而, 目前的研究成果只能制备相对简单的三维结构如球状、环状等, 难以应对更加复杂结构的制备, 在实际运用中还需要更多、更深入的研究。

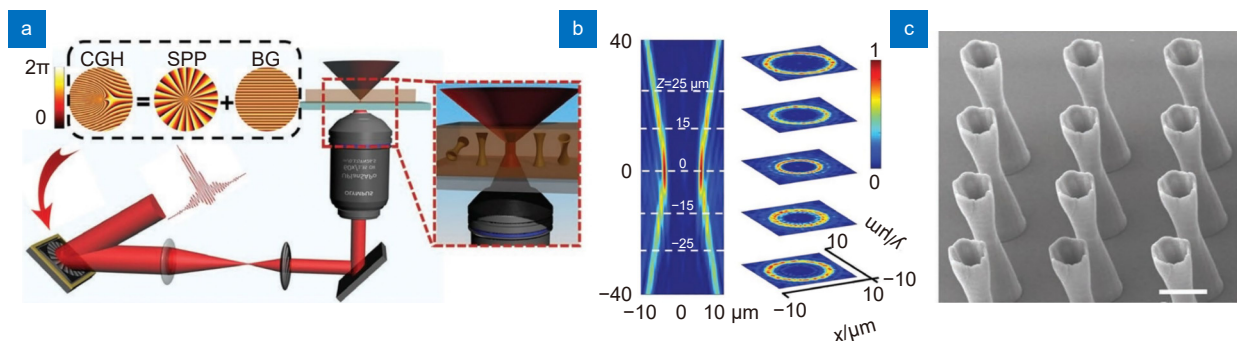


图 19 (a) 单次曝光制备微管的实验装置; (b) 传播方向上焦区的光强分布仿真与分析; (c) 刻写微管的电镜成像图^[89]

Fig. 19 (a) Experimental setup for single exposure fabrication of microtubes; (b) Calculated light intensity distribution at the focal region in the propagation direction; (c) SEM of microtubes^[89]

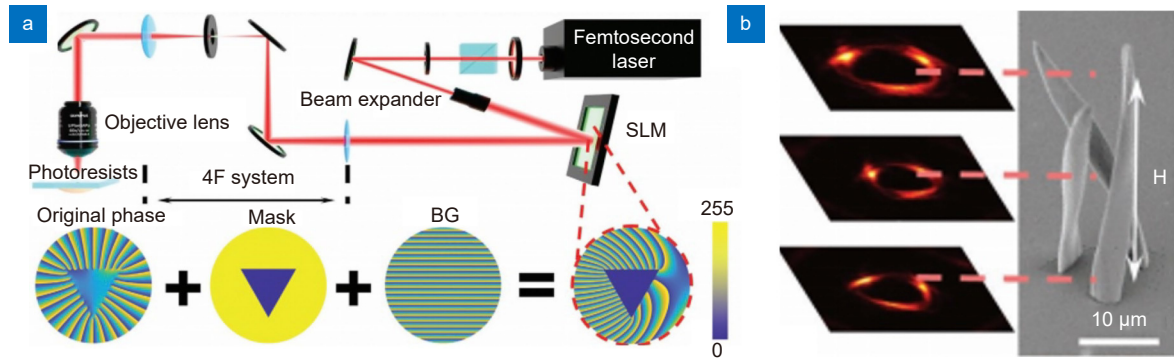


图 20 (a) 单次曝光制备三维手性微结构的实验装置; (b) 调制光束的空间强度分布及刻写结果的电镜图^[90]

Fig. 20 (a) Experimental setup for the fabrication of 3D chiral microstructures by single exposure; (b) The spatial intensity distribution of the modulated beam and the electron microscopy of the writing results^[90]

3 总结与展望

综上所述, 飞秒激光直写凭借其高分辨加工能力、低热影响性、加工材料广泛、环境要求低、具有真三维加工能力等特点, 可以打破传统微纳制备的局限, 实现特殊材料、复杂结构的三维制备, 已在生命科学、材料工程、微纳光学、微流体、微机械等领域展现出独特的优势。

近年来, 飞秒激光加工技术得到了飞速的发展, 加工精度也提升至几十纳米。本文总结了科研人员为提升 TPP 加工效率而在不同刻写方式上所做出的研究工作。单光束刻写是目前飞秒激光直写的主流刻写方式, 主要依赖于扫描器件的速率。其优势在于系统简单, 刻写光束的质量好, 并且容易结合多种效应, 主要包括基于位移台、振镜、转镜与 AOD 的扫描方式, 各种方式都有利弊, 但从扫描速度来对比, 转镜与 AOD 具有相对较快的刻写速率。并行多光束刻写方式可以有效提升刻写效率, 实现数十倍乃至成千上万倍的提升, 主要包括基于空间光调制器 SLM 或数字微镜器件 DMD 的多光束产生、采用微透镜阵列 MLA 或衍射分光元件 DOE 进行分束、基于干涉的大面积焦点阵列非接触式并行刻写。其中基于 SLM 的飞秒多光束并行刻写方式运用最为广泛, 因为其兼具高效率与单点可独立调控的能力, 在面向复杂结构制备中更具有优势, 不过 SLM 的刷新速率仍然不足; 基于 DMD 的加工方式其光斑并行数有待进一步提升, 以获得更高的刻写效率。图形化光场面曝光刻写方式可进一步提高飞秒激光直写的加工效率, 然而, 对于高精度结构的刻写, 目前数字面曝光技术还难以实现。基于体曝光的刻写方式将是未来最为高效的刻

写方式, 特别是在三维器件加工方面, 将大幅缩减刻写时间。不过, 目前研究成果只能直接加工简单的三维结构, 进一步研究复杂结构的体曝光加工方式将有效促进各个领域的科学研究。

随着各个领域对微纳结构加工需求的不断提升, 基于目前的研究成果, 未来飞秒双光子加工技术将可能朝着以下几个方面进一步发展: 在保证高刻写效率的同时实现刻写精度的进一步提升; 根据刻写结构的特征, 采用多种刻写方式混合的模式来提升刻写效率, 如体曝光来刻写结构的大致轮廓, 结合并行多点刻写方式完成剩余高精度结构的刻写, 进而提升整体刻写效率。笔者相信在众多科研工作者的努力下, 飞秒激光加工技术能够进一步发挥其优势, 解决三维微纳加工技术中刻写效率低的难题, 进而推动生命科学、材料工程、微纳光学等领域的发展。

参考文献

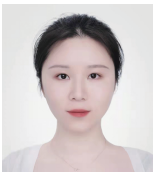
- [1] Fang L M, Qiao Z, Zhang J, et al. Study on micromachining of femtosecond laser biomedical polymer materials[J]. *Key Eng Mater*, 2020, **852**: 109–118.
- [2] Huang R T, Knox W H. Quantitative photochemical scaling model for femtosecond laser micromachining of ophthalmic hydrogel polymers: effect of repetition rate and laser power in the four photon absorption limit[J]. *Opt Mater Express*, 2019, **9**(3): 1049–1061.
- [3] Balbus G H, Echlin M P, Grigorian C M, et al. Femtosecond laser rejuvenation of nanocrystalline metals[J]. *Acta Mater*, 2018, **156**: 183–195.
- [4] Kudryashov S I, Levchenko A O, Danilov P A, et al. Direct femtosecond-laser writing of optical-range nanoscale metagratings/metacouplers on diamond surfaces[J]. *Appl Phys Lett*, 2019, **115**(7): 073102.
- [5] Li W J, Zheng J Q, Zhang Y P, et al. Temperature and depth evaluation of the in vitro effects of femtosecond laser on oral soft tissue, with or without air-cooling[J]. *Lasers Med Sci*, 2019,

- 34(4): 649–658.
- [6] Wang L, Chen Q D, Cao X W, et al. Plasmonic nano-printing: large-area nanoscale energy deposition for efficient surface texturing[J]. *Light Sci Appl*, 2017, 6(12): e17112.
- [7] Sugioka K, Cheng Y. Femtosecond laser three-dimensional micro-and nanofabrication[J]. *J Appl Phys*, 2014, 1(4): 041303.
- [8] Baldacchini T. *Three-Dimensional Microfabrication Using Two-Photon Polymerization*[M]. 2nd ed. Norwich: William Andrew, 2020.
- [9] Ahmed K M T, Grambow C, Kietzig A M. Fabrication of micro/nano structures on metals by femtosecond laser micromachining[J]. *Micromachines*, 2014, 5(4): 1219–1253.
- [10] Maruo S, Nakamura O, Kawata K. Three-dimensional microfabrication with two-photon-absorbed photopolymerization [J]. *Opt Lett*, 1997, 22(2): 132–134.
- [11] Blaicher M, Billah M R, Kemal J, et al. Hybrid multi-chip assembly of optical communication engines by in situ 3D nanolithography[J]. *Light Sci Appl*, 2020, 9(1): 71.
- [12] Rhee H W, Shim J, Kim J Y, et al. Direct optical wire bonding through open-to-air polymerization for silicon photonic chips[J]. *Opt Lett*, 2022, 47(3): 714–717.
- [13] Khorasaninejad M, Chen W T, Devlin R C, et al. Metalenses at visible wavelengths: diffraction-limited focusing and subwavelength resolution imaging[J]. *Science*, 2016, 352(6290): 1190–1194.
- [14] Agrawal L, Saidani M, Guillaud L, et al. Development of 3D culture scaffolds for directional neuronal growth using 2-photon lithography[J]. *Mater Sci Eng C*, 2021, 131: 112502.
- [15] Jayne R K, Karakan M Ç, Zhang K H, et al. Direct laser writing for cardiac tissue engineering: a microfluidic heart on a chip with integrated transducers[J]. *Lab Chip*, 2021, 21(9): 1724–1737.
- [16] Sanli U T, Messer T, Weigand M, et al. High-resolution kinoform X-ray optics printed via 405 nm 3D laser lithography[J]. *Adv Mater Technol*, 2022, doi: 10.1002/admt.202101695.
- [17] Fischer J, von Freymann G, Wegener M. The materials challenge in diffraction-unlimited direct-laser-writing optical lithography[J]. *Adv Mater*, 2010, 22(32): 3578–3582.
- [18] Fischer J, Wegener M. Three-dimensional direct laser writing inspired by stimulated-emission-depletion microscopy [Invited][J]. *Opt Mater Express*, 2011, 1(4): 614–624.
- [19] Müller P, Müller R, Hammer L, et al. STED-inspired laser lithography based on photoswitchable spirothiopyran moieties[J]. *Chem Mater*, 2019, 31(6): 1966–1972.
- [20] Sankaranarayanan J, Muthukrishnan S, Gudmundsdottir A D. Photoremovable protecting groups based on photoenolization[J]. *Adv Phys Org Chem*, 2009, 43: 39–77.
- [21] Cao C, Liu J T, Xia X M, et al. Click chemistry assisted organic-inorganic hybrid photoresist for ultra-fast two-photon lithography[J]. *Addit Manuf*, 2022, 51: 102658.
- [22] Cao C, Qiu Y W, Liu J T, et al. Polyvinylpyrrolidone hybrid photoresist for two-color sensitive direct laser writing[J]. *Acta Polym Sin*, 2022, 53(6): 608–616.
曹春, 邱毅伟, 刘建亭, 等. 聚乙烯吡咯烷酮杂化双色光敏激光直写光刻胶研究[J]. *高分子学报*, 2022, 53(6): 608–616.
- [23] Mueller P, Zieger M M, Richter B, et al. Molecular switch for sub-diffraction laser lithography by photoenol intermediate-state Cis-trans isomerization[J]. *ACS Nano*, 2017, 11(6): 6396–6403.
- [24] Netto-Ferreira J C, Scaiano J C. A laser flash photolysis study of the mechanism of the photocyclization of *o*-chloro-*o*-methylacetophenones[J]. *J Am Chem Soc*, 1991, 113(15): 5800–5803.
- [25] Gruending T, Oehlenschlaeger K K, Frick E, et al. Rapid UV light-triggered macromolecular *click* conjugations via the use of *o*-quinodimethanes[J]. *Macromol Rapid Commun*, 2011, 32(11): 807–812.
- [26] Kathan M, Hecht S. Photoswitchable molecules as key ingredients to drive systems away from the global thermodynamic minimum[J]. *Chem Soc Rev*, 2017, 46(18): 5536–5550.
- [27] Bertrand O, Gohy J F. Photo-responsive polymers: synthesis and applications[J]. *Polym Chem*, 2017, 8(1): 52–73.
- [28] Ding C L, Zhu D Z, Wei Z, et al. A compact and high-precision method for active beam stabilization system[J]. *Opt Commun*, 2021, 500: 127328.
- [29] Hell S W, Wichmann J. Breaking the diffraction resolution limit by stimulated emission: stimulated-emission-depletion fluorescence microscopy[J]. *Opt Lett*, 1994, 19(11): 780–782.
- [30] Saha S K, Wang D E, Nguyen V H, et al. Scalable submicrometer additive manufacturing[J]. *Science*, 2019, 366(6461): 105–109.
- [31] Pawlicki M, Collins H A, Denning R G, et al. Two-photon absorption and the design of two-photon dyes[J]. *Angew Chem Int Ed*, 2009, 48(18): 3244–3266.
- [32] Gu J, Yulan W, Chen W Q, et al. Carbazole-based 1D and 2D hemicyanines: synthesis, two-photon absorption properties and application for two-photon photopolymerization 3D lithography[J]. *New J Chem*, 2007, 31(1): 63–68.
- [33] Xing J F, Chen W Q, Gu J, et al. Design of high efficiency for two-photon polymerization initiator: combination of radical stabilization and large two-photon cross-section achieved by *N*-benzyl 3, 6-bis (phenylethynyl) carbazole derivatives[J]. *J Mater Chem*, 2007, 17(14): 1433–1438.
- [34] Cao X B, Jin F, Li Y F, et al. Triphenylamine-modified quinoxaline derivatives as two-photon photoinitiators[J]. *New J Chem*, 2009, 33(7): 1578–1582.
- [35] Holzer B, Lunzer M, Rosspeintner A, et al. Towards efficient initiators for two-photon induced polymerization: fine tuning of the donor/acceptor properties[J]. *Mol Syst Des Eng*, 2019, 4(2): 437–448.
- [36] Chi T, Somers P, Wilcox D A, et al. Tailored thioxanthone-based photoinitiators for two-photon-controllable polymerization and nanolithographic printing[J]. *J Polym Sci Part B Polym Phys*, 2019, 57(21): 1462–1475.
- [37] Hu P, Qiu W W, Naumov S, et al. Conjugated bifunctional carbazole-based oxime esters: efficient and versatile photoinitiators for 3D printing under one-and two-photon excitation[J]. *Chem Photo Chem*, 2020, 4(3): 224–232.
- [38] Li Z Q, Pucher N, Cicha K, et al. A straightforward synthesis and structure-activity relationship of highly efficient initiators for two-photon polymerization[J]. *Macromolecules*, 2013, 46(2): 352–361.
- [39] He M F, Zhang Z M, Cao C, et al. 3D sub-diffraction printing by multicolor photoinhibition lithography: from optics to chemistry[J]. *Laser Photonics Rev*, 2022, 16(2): 2100229.
- [40] Chen S, Zheng M L, Dong X Z, et al. Nondegenerate two-photon absorption in a zinc blende-type ZnS single crystal using the femtosecond pump-probe technique[J]. *J Opt Soc Am B*, 2013, 30(12): 3117–3122.
- [41] Chen S, Zheng Y C, Zheng M L, et al. Nondegenerate two-photon absorption properties of a newly synthesized carbazole

- derivative[J]. *J Mater Chem C*, 2017, **5**(2): 470–475.
- [42] Yoo H W, Ito S, Schitter G. High speed laser scanning microscopy by iterative learning control of a galvanometer scanner[J]. *Control Eng Pract*, 2016, **50**: 12–21.
- [43] Tang J B. Three dimensional confocal imaging based on beam scanning technology[D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2011.
唐建波. 基于光束扫描的共焦显微三维测量技术研究[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2011.
- [44] De Loor R. Polygon scanner system for ultra short pulsed laser micro-machining applications[J]. *Phys Procedia*, 2013, **41**: 544–551.
- [45] Schille J, Schneider L, Streek A, et al. High-throughput machining using a high-average power ultrashort pulse laser and high-speed polygon scanner[J]. *Opt Eng*, 2016, **55**(9): 096109.
- [46] Iyer V, Hoogland T M, Saggau P. Fast functional imaging of single neurons using random-access multiphoton (RAMP) microscopy[J]. *J Neurophysiol*, 2006, **95**(1): 535–545.
- [47] Grewe B F, Langer D, Kasper H, et al. High-speed *in vivo* calcium imaging reveals neuronal network activity with near-millisecond precision[J]. *Nat Methods*, 2010, **7**(5): 399–405.
- [48] Lechleiter J D, Lin D T, Sieneart I. Multi-photon laser scanning microscopy using an acoustic optical deflector[J]. *Biophys J*, 2002, **83**(4): 2292–2299.
- [49] Roorda R D, Hohl T M, Toledo-Crow R, et al. Video-rate nonlinear microscopy of neuronal membrane dynamics with genetically encoded probes[J]. *J Neurophysiol*, 2004, **92**(1): 609–621.
- [50] Iyer V, Losavio B E, Saggau P. Compensation of spatial and temporal dispersion for acousto-optic multiphoton laser-scanning microscopy[J]. *J Biomed Opt*, 2003, **8**(3): 460–471.
- [51] Salomé R, Kremer Y, Dieudonné S, et al. Ultrafast random-access scanning in two-photon microscopy using acousto-optic deflectors[J]. *J Neurosci Methods*, 2006, **154**(1–2): 161–174.
- [52] Kirkpatrick S M, Baur J W, Clark C M, et al. Holographic recording using two-photon-induced photopolymerization[J]. *Appl Phys A*, 1999, **69**(4): 461–464.
- [53] Matsuo S, Kondo T, Juodkazis S, et al. Fabrication of three-dimensional photonic crystals by femtosecond laser interference[J]. *Proc SPIE*, 2002, **4655**: 327–334.
- [54] Kondo T, Matsuo S, Juodkazis S, et al. Multiphoton fabrication of periodic structures by multibeam interference of femtosecond pulses[J]. *Appl Phys Lett*, 2003, **82**(17): 2758–2760.
- [55] Kondo T, Juodkazis S, Mizeikis V, et al. Fabrication of three-dimensional periodic microstructures in photoresist SU-8 by phase-controlled holographic lithography[J]. *New J Phys*, 2006, **8**(10): 250.
- [56] Stankevičius E, Malinauskas M, Gedvilas M, et al. Fabrication of periodic micro-structures by multi-photon polymerization using the femtosecond laser and four-beam interference[J]. *Mater Sci*, 2011, **17**(3): 244–248.
- [57] Girsault A, Meller A. Sub-second, super-resolved imaging of biological systems using parallel EO-STED[J]. *Opt Lett*, 2020, **45**(10): 2712–2715.
- [58] Bergermann F, Alber L, Sahl S J, et al. 2000-fold parallelized dual-color STED fluorescence nanoscopy[J]. *Opt Express*, 2015, **23**(1): 211–223.
- [59] Yang B, Fang C Y, Chang H C, et al. Polarization effects in lattice-STED microscopy[J]. *Faraday Discuss*, 2015, **184**: 37–49.
- [60] Li D, Shao L, Chen B C, et al. Extended-resolution structured illumination imaging of endocytic and cytoskeletal dynamics[J]. *Science*, 2015, **349**(6251): 527.
- [61] Förster R, Lu-Walther H W, Jost A, et al. Simple structured illumination microscope setup with high acquisition speed by using a spatial light modulator[J]. *Opt Express*, 2014, **22**(17): 20663–20677.
- [62] Chmyrov A, Keller J, Grotjohann T, et al. Nanoscopy with more than 100, 000 'doughnuts'[J]. *Nat Methods*, 2013, **10**(8): 737–740.
- [63] Tang M, Chen Z C, Huang Z Q, et al. Maskless multiple-beam laser lithography for large-area nanostructure/microstructure fabrication[J]. *Appl Opt*, 2011, **50**(35): 6536–6542.
- [64] Matsuo S, Juodkazis S, Misawa H. Femtosecond laser microfabrication of periodic structures using a microlens array[J]. *Appl Phys A*, 2005, **80**(4): 683–685.
- [65] Kato J I, Takeyasu N, Adachi Y, et al. Multiple-spot parallel processing for laser micronanofabrication[J]. *Appl Phys Lett*, 2005, **86**(4): 044102.
- [66] Formanek F, Takeyasu N, Tanaka T, et al. Three-dimensional fabrication of metallic nanostructures over large areas by two-photon polymerization[J]. *Opt Express*, 2006, **14**(2): 800–809.
- [67] Račiukaitis G, Stankevičius E, Gečys P, et al. Laser processing by using diffractive optical laser beam shaping technique[J]. *JLMN-J Laser Micro/Nanoeng*, 2011, **6**(1): 37–43.
- [68] Hilton P A, Lloyd D, Tyrer J R. Use of a diffractive optic for high power laser cutting[J]. *J Laser Appl*, 2016, **28**(1): 012014.
- [69] Kuchmizhak A A, Porfiev A P, Syubaev S A, et al. Multi-beam pulsed-laser patterning of plasmonic films using broadband diffractive optical elements[J]. *Opt Lett*, 2017, **42**(14): 2838–2841.
- [70] Kwon H H, Yang S H, Cho Y J, et al. Comparison of a 1064-nm neodymium - doped yttrium aluminum garnet picosecond laser using a diffractive optical element vs. a nonablative 1550-nm erbium-glass laser for the treatment of facial acne scarring in Asian patients: a 17-week prospective, randomized, split-face, controlled trial[J]. *J Eur Acad Dermatol Venereol*, 2020, **34**(12): 2907–2913.
- [71] Vandenhouten R, Hermerschmidt A, Fiebelkorn R. Design and quality metrics of point patterns for coded structured light illumination with diffractive optical elements in optical 3D sensors[J]. *Proc SPIE*, 2017, **10335**: 1033518.
- [72] Dong X Z, Zhao Z S, Duan X M. Micronanofabrication of assembled three-dimensional microstructures by designable multiple beams multiphoton processing[J]. *Appl Phys Lett*, 2007, **91**(12): 124103.
- [73] Hahn V, Kiefer P, Frenzel T, et al. Rapid assembly of small materials building blocks (voxels) into large functional 3D metamaterials[J]. *Adv Funct Mater*, 2020, **30**(26): 1907795.
- [74] Gittard S D, Nguyen A, Obata K, et al. Fabrication of microscale medical devices by two-photon polymerization with multiple foci via a spatial light modulator[J]. *Biomed Opt Express*, 2011, **2**(11): 3167–3178.
- [75] Yang L, El-Tamer A, Hinze U, et al. Parallel direct laser writing of micro-optical and photonic structures using spatial light modulator[J]. *Opt Lasers Eng*, 2015, **70**: 26–32.
- [76] Li X P, Cao Y Y, Tian N, et al. Multifocal optical nanoscopy for big data recording at 30 TB capacity and gigabits/second data rate[J]. *Optica*, 2015, **2**(6): 567–570.

- [77] Xu B, Du W Q, Li J W, et al. High efficiency integration of three-dimensional functional microdevices inside a microfluidic chip by using femtosecond laser multifoci parallel microfabrication[J]. *Sci Rep*, 2016, **6**(1): 19989.
- [78] Hu Y L, Feng W F, Xue C, et al. Self-assembled micropillars fabricated by holographic femtosecond multi-foci beams for *in situ* trapping of microparticles[J]. *Opt Lett*, 2020, **45**(17): 4698–4701.
- [79] Geng Q, Wang D E, Chen P F, et al. Ultrafast multi-focus 3-D nano-fabrication based on two-photon polymerization[J]. *Nat Commun*, 2019, **10**(1): 2179.
- [80] Mills B, Grant-Jacob J A, Feinaeugle M, et al. Single-pulse multiphoton polymerization of complex structures using a digital multimirror device[J]. *Opt Express*, 2013, **21**(12): 14853–14858.
- [81] Aagedal H, Schmid M, Beth T, et al. Theory of speckles in diffractive optics and its application to beam shaping[J]. *J Mod Opt*, 1996, **43**(7): 1409–1421.
- [82] Zhang C C, Hu Y L, Li J W, et al. An improved multi-exposure approach for high quality holographic femtosecond laser patterning[J]. *Appl Phys Lett*, 2014, **105**(22): 221104.
- [83] Aharoni T, Shoham S. Phase-controlled, speckle-free holographic projection with applications in precision optogenetics[J]. *Neurophotonics*, 2018, **5**(2): 025004.
- [84] Wang Z P, Li X W, Jiang L, et al. High-quality micropattern printing by interlacing-pattern holographic femtosecond pulses[J]. *Nanophotonics*, 2020, **9**(9): 2895–2904.
- [85] Nomura T, Okamura M, Nitani E, et al. Image quality improvement of digital holography by superposition of reconstructed images obtained by multiple wavelengths[J]. *Appl Opt*, 2008, **47**(19): D38–D43.
- [86] Fan H, Cao X W, Wang L, et al. Control of diameter and numerical aperture of microlens by a single ultra-short laser pulse[J]. *Opt Lett*, 2019, **44**(21): 5149–5152.
- [87] Yang L, Hu Z J, Xin C, et al. One-step synthesis of three-dimensional microtubes with single exposure of structured femtosecond optical vortices[J]. *Proc SPIE*, 2018, **10522**: 105221H.
- [88] Xin C, Yang L, Li J W, et al. Conical hollow microhelices with superior swimming capabilities for targeted cargo delivery[J]. *Adv Mater*, 2019, **31**(25): 1808226.
- [89] Yang L, Chen X X, Wang L, et al. Targeted single - cell therapeutics with magnetic tubular micromotor by one - step exposure of structured femtosecond optical vortices[J]. *Adv Funct Mater*, 2019, **29**(45): 1905745.
- [90] Pan D, Liu S L, Li J W, et al. Rapid fabrication of 3D chiral microstructures by single exposure of interfered femtosecond vortex beams and capillary-force-assisted self-assembly[J]. *Adv Funct Mater*, 2022, **32**(4): 2106917.

作者简介



杨顺华 (1992-), 女, 博士, 博士后。主要从事飞秒激光并行直写纳米光刻技术研究工作。

E-mail: yangshunhua@zhejianglab.com



【通信作者】匡翠方 (1977-), 男, 博士, 教授, 博士生导师。长期从事高通量激光纳米直写、超分辨荧光成像、光电检测等方面的研究工作, 主持国家重大科研仪器研制等研究项目 20 多项, 累计发表论文 140 余篇, 荣获得 2019 年中国技术发明二等奖、2019 年王大珩光学奖等多个奖项。

E-mail: cfkuang@zju.edu.cn



【通信作者】丁晨良 (1990-), 男, 博士, 副研究员, 主要从事激光纳米直写与成像、高精度光束指向稳定调控方面的研究工作。主持国家自然科学基金青年基金、浙江省自然科学基金探索青年等多个项目。

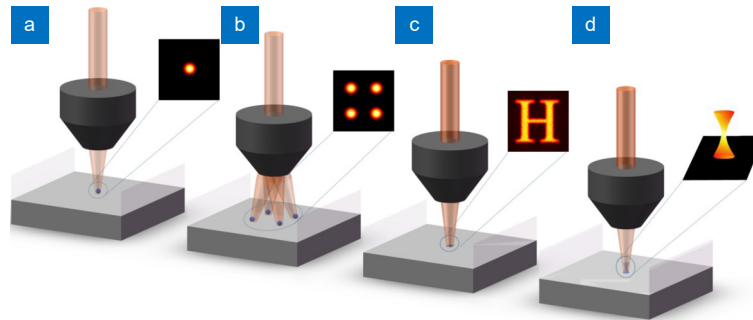
E-mail: dingcl@zhejianglab.com



扫描二维码, 获取PDF全文

High-speed two-photon lithography based on femtosecond laser

Yang Shunhua¹, Ding Chenliang^{1*}, Zhu Dazhao¹, Yang Zhenyao¹,
Liu Yong^{1,3}, Kuang Cuifang^{1,2,4*}, Liu Xu^{1,2}



Optical methods of improving the throughput of TPL. (a) Single-beam writing; (b) multi-foci parallel lithography; (c) 2D projection exposure; (d) 3D projection exposure

Overview: Two-photon lithography (TPL) has been a research hotspot in 3D micro/nano writing technology due to its characteristics of high resolution, low thermal influence, a wide range of processed materials, low environmental requirements, and 3D processing capability. It has shown unique advantages in the fields of life science, material engineering, micro/nano optics, microfluidic, micro machinery, and so on. This paper summarizes the research works done by researchers on different writing methods to improve TPL processing efficiency. Single-beam writing is the main method for TPL, which mainly depends on the speed of the scanning device. Single-beam writing has the advantages of simple system and high-quality beam, and it is easy to combine various effects to improve writing results. It mainly includes scanning modes based on the translation stage, galvo, polygon laser scanner, and acousto-optic deflector (AOD) (Fig. 2). All these modes have advantages and disadvantages. As for the scanning speed comparison, polygon laser scanner and AOD have relatively faster writing rates (faster than m/s). Multi-foci parallel lithography can obviously promote efficiency, elevating the speed by dozens or even hundreds of thousands of times, mainly based on spatial light modulator (SLM), digital micromirror device (DMD), microlens array (MLA), diffractive optical elements (DOE), multi-beam interference, and so on (Figs. 3-15). Multi-foci parallel lithography based on SLM is most widely used owing to its high efficiency and ability to flexible and independent control of each single beam, but the refresh rate is still insufficient. DMD has a higher refreshing rate (32 kHz), but the state-of-the-art beam parallelism realized by DMD is severely limited. More parallel beams are further required for improving the processing efficiency. The 2D pattern exposure method based on SLM or DMD can further improve the TPL efficiency with the superiority of generating flexibly designed pattern (Figs. 16-18). However, the 2D projection exposure technology is still difficult to achieve high writing precision, especially the axial resolution. An available method to improve the axial precision is spatially and temporally focusing an ultrafast laser to implement a strong intensity gradient at the spatial focal plane that restricts polymerization within a thin layer. The 3D projection method will be the most efficient writing method in the future, especially in 3D device processing (Figs. 19-20). Researchers used this technique to make hollow tubular and conical helices structures, increasing the processing speed by 600 times. However, the research results show that the current 3D projection can only process simple 3D structures. Further researches on 3D exposure processing of complex structures are expected, which will effectively expand its application in various fields. Authors believe that with the effort of researchers on efficiency improvement gradually, TPL can further highlight its advantages to promote the development of life science, materials engineering, micro-nano optics, and many other fields.

Yang S H, Ding C L, Zhu D Z, et al. High-speed two-photon lithography based on femtosecond laser[J]. *Opto-Electron Eng*, 2023, 50(3): 220133; DOI: 10.12086/oe.2023.220133

Foundation item: National Key Research and Development Program of China (2021YFF0502700), National Natural Science Foundation of China (62205304, 52105565, 62105298), Zhejiang Provincial Natural Science Foundation (LD21F050002), Key Project of Zhejiang Laboratory (2020MC0AE01), Zhejiang Provincial Natural Science Foundation (LQ22F050015, LQ22F050017), and China Postdoctoral Science Foundation (2020M671823).

¹Research Center for Intelligent Chips and Devices, Zhejiang Lab, Hangzhou, Zhejiang 311121, China; ²State Key Laboratory of Extreme Photonics and Instrumentation, College of Optical Science and Engineering, Zhejiang University, Hangzhou, Zhejiang 310027, China; ³College of Electronics and Information Engineering, Shanghai University of Electric Power, Shanghai 200090, China; ⁴ZJU-Hangzhou Global Scientific and Technological Innovation Center, Hangzhou, Zhejiang 311200, China

* E-mail: dingcl@zhejianglab.com; cfkuang@zju.edu.cn