

飞秒激光直写诱导PMN-PT晶体表面LIPSS结构相变特性

陈志翔,杨全鑫,刘洪亮

引用本文:

陈志翔,杨全鑫,刘洪亮.飞秒激光直写诱导PMN–PT晶体表面LIPSS结构相变特性[J].光电工程,2023,**50**(3): 220275.

Chen Z X, Yang Q X, Liu H L. Phase transition properties of the LIPSS induced by femtosecond laser direct writing on PMN-PT crystal[J]. *Opto-Electron Eng*, 2023, **50**(3): 220275.

https://doi.org/10.12086/oee.2023.220275

收稿日期: 2022-10-25; 修改日期: 2022-12-27; 录用日期: 2022-12-30

相关论文

Circular cladding waveguides in Pr:YAG fabricated by femtosecond laser inscription: Raman, luminescence properties and guiding performance

Quanxin Yang, Hongliang Liu, Shan He, Qingyu Tian, Bin Xu, Pengfei WuOpto-Electronic Advances2021, 4(2): 200005doi: 10.29026/oea.2021.200005

Liquid vortexes and flows induced by femtosecond laser ablation in liquid governing formation of circular and crisscross LIPSS

Dongshi Zhang, Xinzhuo Li, Yao Fu, Qinghe Yao, Zhuguo Li, Koji Sugioka Opto-Electronic Advances 2022, **5**(2): 210066 doi: 10.29026/oea.2022.210066

光电科学 2022, 1(6): 220005 doi: 10.29026/oes.2022.220005

Femtosecond laser direct writing of flexibly configured waveguide geometries in optical crystals: fabrication and application

Yuechen Jia, Shixiang Wang, Feng Chen Opto-Electronic Advances 2020, **3**(10): 190042

doi: 10.29026/oea.2020.190042

更多相关论文见光电期刊集群网站







http://cn.oejournal.org/oee



激光微纳加工专题



DOI: 10.12086/oee.2023.220275

飞秒激光直写诱导 PMN-PT 晶体 表面 LIPSS 结构相变特性

陈志翔¹,杨全鑫^{1*},刘洪亮^{1,2*} ¹南开大学电子信息与光学工程学院微尺度光学 信息技术科学重点实验室,天津 300350; ²山东大学晶体材料国家重点实验室,山东 济南 250100



摘要:本文提出一种由飞秒激光直写技术诱导的基于弛豫铁电体 PMN-PT 晶体的表面周期结构 (LIPSS),通过不同激 光参数的改变,实现了 LIPSS 结构周期从 750 nm 到 3 µm 的变化。最后,通过升高温度探究了 LIPSS 结构的相变 特性。对比基底的相变特性,飞秒激光诱导的 LIPSS 结构的居里温度有明显的降低,这一特性将会为基于 PMN-PT 晶体的温控调制器的制备提供新思路。

关键词: 飞秒激光直写; 表面周期结构; PMN-PT 晶体; 相变 中图分类号: TP212 文献

文献标志码: A

陈志翔,杨全鑫,刘洪亮. 飞秒激光直写诱导 PMN-PT 晶体表面 LIPSS 结构相变特性 [J]. 光电工程,2023,**50**(3): 220275 Chen Z X, Yang Q X, Liu H L. Phase transition properties of the LIPSS induced by femtosecond laser direct writing on PMN-PT crystal[J]. *Opto-Electron Eng*, 2023, **50**(3): 220275

Phase transition properties of the LIPSS induced by femtosecond laser direct writing on PMN-PT crystal

Chen Zhixiang¹, Yang Quanxin^{1*}, Liu Hongliang^{1,2*}

¹College of Electronic Information and Optical Engineering, Tianjin Key Laboratory of Micro-scale Optical Information Science and Technology, Nankai University, Tianjin 300350, China;

² State Key Laboratory of Crystal Materials, Shandong University, Jinan, Shandong 250100, China

Abstract: In this paper, we propose a femtosecond laser-induced surface periodic structure (LIPSS) based on relaxed ferroelectric PMN-PT crystals. By changing the applied laser parameters, the period of the LIPSS structure is varied from 750 nm to 3 μ m. Finally, the phase transition properties of the LIPSS structure are investigated by increasing the temperature. Compared to the phase transition properties of the substrate, the Curie temperature of the LIPSS structure is significantly reduced, and this will provide a possible new idea for the preparation of temperature-controlled modulators based on PMN-PT crystals.

Keywords: femtosecond laser direct writing; LIPSS; PMN-PT crystal; phase transition

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (12274236)

版权所有©2023 中国科学院光电技术研究所

收稿日期: 2022-10-25; 修回日期: 2022-12-27; 录用日期: 2022-12-30

^{*}通信作者:杨全鑫,qxyang@mail.nankai.edu.cn;刘洪亮,drliuhl@nankai.edu.cn。

1 引 言

在现代制造业中,微纳米级光学器件逐渐成为支 撑集成光学领域的支柱,为了制备出性能优良的微纳 光学器件,许多的微纳制备技术被发明出来,比如: 光刻掩膜、机械加工、纳米压印、激光直写技术等。 其中飞秒激光直写技术是一种近些年被广泛应用于科 学研究与制造的三维精密微纳器件制备技术,相比于 传统加工工艺具有更高的精细度;而相比于光刻掩膜 与纳米压印等传统技术来说,其具有制备流程简单、 加工结构灵活等优点[1-3]。除此之外,飞秒激光直写技 术还拥有超高的峰值功率以及超短的持续时间,可以 实现超精细的"冷"加工。由于飞秒激光加工过程中, 对相互作用的材料带隙能量不具有明显的依赖性,这 样对于绝大多数的光学材料而言此方法均具有适用性, 其中在光学玻璃、光学晶体、光学薄膜、陶瓷材料、 聚合物等中的应用逐年来不断被报道[4-6]。随着飞秒激 光直写技术不断被应用,在不同的材料中不同种类与 功能的光学器件也被制备出来,常见的有定向耦合分 支器、布拉格光栅、光学波导、激光器等^[7-9]。这一微 纳器件制备技术在不断被广泛应用的同时,更小的尺 度与更为精细的结构也逐渐成为许多科研工作者追求 的目标,许多百纳米甚至几十纳米的结构与器件被制 备出来,并应用于光学存储、微型机器人等领域^[10-12]。

激光诱导的表面周期性结构 (Laser induce periodic surface structure, LIPSS)研究在飞秒激光制 备微纳结构的发展史中是十分重要的一个课题。激光 诱导表面周期微纳结构在 1965 年首次由 M.Bimbaum 在激光辐照半导体的实验中发现[13],之后,在许多学 者的努力下,不同波长、不同脉冲宽度的激光照射在 如金属、半导体、电介质等材料的表面,都相继发现 了类似的周期条纹结构^[14-16]。随着锁模技术、调Q技 术等激光技术的不断发展,激光脉冲的功率更高、脉 冲更短,这使得激光诱导的周期性条纹更加规则、多 样化。目前,按照表面周期性结构的波纹空间周期 Λ 的不同,LIPSS 可以分为三种类型:1) 低空间频率 LIPSS(LSFL),这种周期性结构的特点是其空间周期 Λ 近似或略小于波长 (λ/2<Λ<λ), 又称近波长结构; 2) 高空间频率 LIPSS(HSFL),其特点是空间周期 A 明 显小于激光波长 (1<λ/2),又称亚波长结构;3) 超波 长周期结构 (SWPSS),其空间周期 A 远大于激光波 长 (2λ<Λ)。除此之外, 按照 LIPSS 的空间取向与入射 光偏振方向的关系, LIPSS 可以分为两种类型:一种 是正常的 LIPSS[LIPSS(⊥)],即 LIPSS 的空间取向与 入射光的偏振方向相互垂直;另外一种是异常的 LIPSS[LIPSS(//)],即 LIPSS 的空间取向与入射光的 偏振方向平行。在不同的激光参数以及实验条件下, 材料表面会形成形貌各异的 LIPSS 结构,这些 LIPSS 功能结构结合材料本身的性质变化,会使得材料获得 抗反射率、彩色标记、润湿性等应用特征,被广泛研 究用于金属、半导体的永久着色,以及超疏水仿生材 料开发等领域^[17-19]。

铁电材料由于其独特的非线性光学效应等功能特性,在近年来逐步发展起来,其在光电子、集成光学等领域出现广泛的应用与研究^[20-22]。近年来,弛豫铁电材料铌镁酸铅钛酸铅((1-x)Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})-xPbTiO₃, PMN-PT,其中 x 指晶体中 PbTiO₃的含量)因其巨大的压电系数 (*d*₃₃>2000 pC/N)以及机电耦合系数 (*k*₃₃> 0.92)等独特的物理特性而受到广泛研究。此外, PMN-PT 单晶还具有优秀的电光效应与声光效应,材料的性质稳定,可广泛应用于近红外波段与中红外波 段的光电子器件的制备,被证明是换能器、热释电探 测器、非线性光学器等光电器件的优良载体,在遥感 测控、激光制导、光电对抗等军事领域具有极大的应 用价值^[23-25]。

本文主要介绍了利用飞秒激光直写技术在 PMN-PT 单晶表面制备的 LIPSS 结构,在不同激光参数下 LIPSS 的形貌特征有所改变,同时利用 PMN-PT 单晶 作为铁电材料所具有的相变特性,分析了在飞秒激光 改性的 LIPSS 结构对比未改性区域的相变特点,为基 于 PMN-PT 单晶温控相变微纳器件的制备提供了经验。

2 飞秒激光制备过程与理论模型

如图 1(a) 所示, 在加工过程中, 我们使用的飞秒激光器是 Integra-HE 飞秒激光啁啾脉冲放大器, 它的中心波长是 800 nm, 重复频率是 1 kHz, 加工时使用的脉冲宽度为 140 fs。在六维电动平移台的精确控制下, 飞秒激光通过聚焦物镜 (50×, N.A. =0.55) 以直写直线的方式诱导 PMN-PT 晶体表面 LIPSS 结构分布, 同时, 飞秒激光的偏振方向是与加工方向平行的。

对于飞秒激光在 PMN-PT 晶体中直写的 LIPSS 结构,可以利用 Sipe 模型^[26] 结合表面等离子体理论 进行定性的分析。当激光入射到 PMN-PT 晶体表面时,表面电磁波与晶体的粗糙表面之间作用,结合其可能 激发的表面等离子体,进而在 PMN-PT 晶体表面形成

陈志翔, 等. 光电工程, 2023, 50(3): 220275



图 1 飞秒激光加工示意图。(a) 飞秒激光直写 PMN-PT 晶体 LIPSS 结构示意图,红色箭头代表激光扫描的方向, 蓝色箭头代表激光的偏振方向;(b) 飞秒激光诱导 LIPSS 结构原理图

Fig. 1 Schematic diagram of femtosecond laser processing. (a) Schematic diagram of LIPSS in the PMN-PT crystal by femtosecond laser direct writing, the red arrow represents the direction of laser scanning, the blue arrow represents the direction of polarization of the laser; (b) Schematic diagram of the femtosecond laser-induced LIPSS

周期性条纹。如图 1(b),表面粗糙层被限制在厚度 *l*_s内,当入射激光以一定的入射角 θ 入射时,入射激 光具有在水平方向的分量的波矢量 κ_i,而激光诱导表 面周期条纹结构的波矢量为 κ。对于激光入射后的表 面非均匀能量分布为

$$I(\boldsymbol{\kappa}) \propto \eta(\boldsymbol{\kappa}; \boldsymbol{\kappa}_{\rm i}) |b(\boldsymbol{\kappa})|, \qquad (1)$$

其中: $\eta(\kappa, \kappa_i)$ 为填充系数,代表了不均匀电磁能量 作用在粗糙表面时在其波矢量为 κ 处的吸收效率,而 条纹的周期则由其峰值的波矢量 κ 所决定; $|b(\kappa)|$ 则表示了在波矢量 κ 处的表面粗糙度的幅值。而波矢 量 κ 受到诸多参数如激光参数 (激光波长 λ 、入射角 度 θ)、材料参数 (介电常数 ε)和材料表面参数 (形貌 因子 s 和填充因子 f)的影响。而根据表面等离子体 理论,LIPSS 结构的周期可以表示为

$$\Lambda = \lambda_{\rm sp} = \frac{\lambda}{\sqrt{\frac{\varepsilon_1 \varepsilon_2(\omega)}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2(\omega)} + \sin\theta}},$$
 (2)

$$\varepsilon_2(N_{\rm e}) = \varepsilon_0 - \frac{W_{\rm p}^2(N_{\rm e})}{\omega^2 \left(1 + \frac{{\rm i}\nu}{\omega}\right)},\tag{3}$$

$$\omega_{\rm p} = \sqrt{\frac{N_{\rm e}(x,t){\rm e}^2}{m^*\varepsilon_0}}\,,\tag{4}$$

其中: ε_1 为空气的介电常数, ε_2 为诱导后 PMN-PT 晶体的介电常数, ω 为入射激光的角频率, ε_0 为常态下 PMN-PT 晶体的介电常数, ω_0 等离子体频率, m^* 为电

子的有效质量, v 为阻尼系数, N_e 为电子密度。

当飞秒激光诱导 PMN-PT 晶体形成 LIPSS 结构 时,受改性区域的介电常数发生变化从而影响 LIPSS 结构的周期以及其形成的高度。

3 LIPSS 表面形貌分析

3.1 SWPSS 结构的分析

图 2 中的结构是利用飞秒激光直写技术诱导的超 波长周期的表面 LIPSS 结构,由于飞秒激光诱导的方 向与光的偏振方向相互平行,所以很容易形成超波长 周期的表面周期结构。图 2(a) 到图 2(c) 的结构均是 由单脉冲能量为1092 nJ的飞秒激光写制,写制的速 度分别为 5 mm/s、3 mm/s 和 2 mm/s。其中, 以 图 2(a) 为例,从左向右依次是 SWPSS 结构的显微图 像、轮廓仪表征图像以及其宽高对比图像。当飞秒激 光直写速度为 5 mm/s 时, SWPSS 结构的周期平均在 3 µm。随着速度的减小, SWPSS 的周期在逐渐减小, 在 3 mm/s 和 2 mm/s 时,周期分别平均减小到 2.4 μm和2μm。在图2中不同速度下SWPSS平均周期 宽度与高度的对比图反映了当速度从 3 mm/s 降至 2 mm/s 时, SWPSS 的高度会有明显的下降,并且从 图 2(c) 的显微图像中也可以看出有部分 SWPSS 结构 出现"联结"的现象。

这种现象的出现可能是由于 SWPSS 的周期大于 二倍的激光波长,即大于 1600 nm,但当速度降低至

https://doi.org/10.12086/oee.2023.220275



图 2 飞秒激光诱导的 SWPSS 结构的表面形貌。 (a)~(c) 速度分别为 5 mm/s、3 mm/s 和 2 mm/s 时的 SWPSS 结构 Fig. 2 Morphology of SWPSS induced by femtosecond laser. (a)~(c) SWPSS at velocities of 5 mm/s, 3 mm/s, and 2 mm/s respectively

2 mm/s 时, SWPSS 的周期降低到 2 μm, 在逐渐接 近 1600 nm, 从而无法形成周期均匀质量较好的 SWPSS, 所以在 SWPSS 的高度上会有明显的下降, 同时会出现局部区域的周期分辨不清楚的现象。由于 这一原因, 速度为 2 mm/s 时的 SWPSS 的高度分布明 显没有速度为 5 mm/s 和 3 mm/s 时均匀, 图 2(a) 和 2(b) 也显示此时的 SWPSS 结构是质量更为优良、更 为典型的。

3.2 LSFL 的结构分析与激光参数对 LIPSS 形成的周期的影响

为了进一步探究速度与能量对 LIPSS 形成的影响, 我们将能量降低至 625 nJ 对 PMN-PT 晶体进行 LIPSS 结构的制备,在三种不同的速度下诱导的 LIPSS 结构 的横截面图显示在图 3(a)中。图中显示的 LIPSS 结 构与图 2 中的结构截然不同,其高度与周期更小,其 中周期仅在与波长相当的范围,是空间取向与光的偏



图 3 (a) 速度为 0.7 mm/s、0.8 mm/s 和 0.9 mm/s 的 LSFL 表面形貌; (b) LIPSS 结构周期与激光参数的关系 Fig. 3 (a) Morphology of the LSFL with velocities of 0.7 mm/s, 0.8 mm/s, and 0.9 mm/s respectively; (b) Period of LIPSS in relation to laser parameters

振方向相平行的异常的 LSFL(//)。在同一能量下,0.9 mm/s 诱导的 LSFL 结构的平均周期为 900 nm,随着 速度的降低,周期降为在 0.8 mm/s 时周期是 800 nm,与波长相同,在 0.7 mm/s 时平均周期为 750 nm,小于波长是典型的 LSFL 结构。相比于同样是空间取向 平行于光的偏振方向的 SWPSS 来说,LSFL 结构的 高度会限制在 10 nm 以内,这是被所诱导的激光能量 所限制的。

图 3(b) 是改变能量与速度的周期变化图像。在合适的能量范围内可以得到从 LSFL 结构到 SWPSS 结构的连续变化过程。但是,较高的激光能量更有利于 SWPSS 的形成,对于比较精细的 LSFL 结构的能量。更高的能量对于较为精细的 LSFL 结构可能造成较为严重的烧蚀作用,起不到诱导的效果;而较低的能量则不足以引起 SWPSS 结构的改性。如图 3(b)中 1092 nJ 的激光能量就更容易诱导典型的 SWPSS 结构,而 341 nJ 的激光能量则更容易诱导典型的 LSFL 结构。同时,在能量取中间值 625 nJ 时,则对于诱导周期偏大的 LSFL 结构以及周期较小的 SWPSS 结构均适用,但是此时诱导的两种 LIPSS 结构均不具备较好的质量。

4 PMN-PT 单晶中 LIPSS 升温相变 特点

图 4 显示了 SWPSS 结构在升温过程中的相变特点。弛豫铁电体 PMN-PT 单晶是典型的钙钛矿结构, PMN 是典型的 ABO₃ 结构,其中 A 位由 Pb²⁺占据, B 位有 Mg²⁺和 Nb⁵⁺按理论比 1:2 占据, O²⁻位于六个 面心。PT 也是典型的 ABO₃ 结构, B 位由 Ti⁴⁺占据。 当 PMN 和 PT 形成固溶体后, Pb^{2+} 依旧占据 A 位, O^2 同样占据面心位置,而 B 位则由 Mg²⁺、Nb⁵⁺和 Ti⁴⁺共同占据。PMN-PT 晶体在从室温到完全变为顺 电相的升温过程中,存在两次相变过程:一次是由铁 电相下三方相到铁电相下的四方相的相变;一次是由 铁电相下四方相到顺电相下立方相的相变。如图 4(a) 所示, LIPSS 结构的拉曼曲线变化反映了其相变过 程,其中,绿色虚线所标识的位置是150 cm⁻¹ 的拉曼 特征峰,这一特征峰的消失标志着 PMN-PT 晶体从单 斜相转为四方相,是铁电相到铁电相的相变过程,其 相变温度大约为100℃。图中蓝色虚线和灰色虚线分 别代表位于50 cm⁻¹ 和 570 cm⁻¹ 处的拉曼峰,在 570 cm⁻¹处的峰代表着 Nb-O-Nb 键的扭曲振动, 也是 PMN-PT 晶体由铁电相向顺电相相变的标志;而在波 数为 50 cm^{-1} 处的拉曼峰对应于 Pb-O 键的变化,这 一拉曼峰在图中出现了明显的红移现象, 红移现象的 出现同时也标志着晶体由铁电时的四方相变为顺电时 的立方相结构;而图中红色虚线表明的处于 420 cm⁻¹ 处的拉曼峰在升温过程中没有明显的变化, 代表着 Mg-O-Mg键的变化在相变过程中对结构的影响比较 微弱。

上述的分析说明了,在 PMN-PT 晶体表面形成的 LIPSS 结构虽然是飞秒激光改性过的区域,但是其晶格结构并没有被破坏,反而在升温过程中具有良好的相变的特征。图 4(b)和 4(c)分别代表了 PMN-PT



图 4 (a) LIPSS 结构随温度变化的拉曼曲线变化图,插图为拉曼位移为 50 cm⁻¹ 位置附近的拉曼曲线变化图; (b) PMN-PT 晶体随温度变化的拉曼信号强度变化图; (c) LIPSS 结构随温度变化的拉曼信号强度变化图

Fig. 4 (a) Raman spectra of the LIPSS with the variation of temperature, the inset shows the variation of the Raman spectra at the Raman shift near the 50 cm⁻¹; (b) Intensity of Raman signal of the PMN-PT crystal with the variation of temperature;
(c) Intensity of Raman signal of the LIPSS with the variation of temperature

晶体未改性区域和 LIPSS 区域在升温过程中拉曼光谱 的变化图,其中根据 50 cm⁻¹和 570 cm⁻¹处拉曼峰的 变化可以看出,未改性区域的居里温度约为 190 ℃ 附近,而 LIPSS 结构的居里温度约为 180 ℃ 左右。 结合拉曼光谱的变化,可以得到,在飞秒激光作用 于 PMN-PT 晶体形成 LIPSS 结构的时候,对于 Pb-O 键以及 Nb-O-Nb 键的拉伸具有促进作用,从而轻微 降低了 LIPSS 结构处的居里温度。

LIPSS 结构通过对晶格的作用从而降低了 PMN-PT 晶体的居里温度,使其在更低的温度就可以发生 相变过程,可以在一定程度上简化将来对 PMN-PT 晶 体相变特性研究的实验条件。同时,LIPSS 结构类似 于表面光栅结构,具有色散的特性,其本身具有在结 构光、抗反射等方面的应用,结合 PMN-PT 晶体的相 变特性,有望在日后的实验探索中实现在温度场调控 下的结构色的变化等应用。

5 结 论

本文通过飞秒激光直写技术,在弛豫铁电体 PMN-PT 晶体表面成功诱导了 LIPSS 结构,通过不同 激光参数的调控,实现了周期从 750 nm 到 3 µm 结构 的制备并对其进行了相应的表征。同时,通过升温的 拉曼光谱测试,实现了 PMN-PT 晶体以及其表面 LIPSS 结构的铁电相下三方相到铁电相下四方相的相 变和由铁电相下四方相到顺电相下立方相的相变。研 究结果为将来基于温控 LIPSS 结构的 PMN-PT 晶体 相变器件的设计与飞秒激光直写制备工作提供了实验 依据和经验。

利益冲突:所有作者声明无利益冲突

参考文献

- Jia Y C, Wang S X, Chen F. Femtosecond laser direct writing of flexibly configured waveguide geometries in optical crystals: fabrication and application[J]. *Opto-Electron Adv*, 2020, 3(10): 190042.
- [2] Li L Q, Kong W J, Chen F. Femtosecond laser-inscribed optical waveguides in dielectric crystals: a concise review and recent advances[J]. *Adv Photonics*, 2022, 4(2): 024002.
- [3] Li L Q, Li Z Q, Nie W J, et al. Femtosecond-laser-written Scurved waveguide in Nd: YAP crystal: fabrication and multigigahertz lasing[J]. *J Light Technol*, 2020, **38**(24): 6845–6852.
- [4] Tan D Z, Sun X Y, Li Z L, et al. Effectively writing low propagation and bend loss waveguides in the silica glass by using a femtosecond laser[J]. Opt Lett, 2022, 47(18): 4766–4769.
- [5] Yang Q X, Liu H L, He S, et al. Circular cladding waveguides in

Pr: YAG fabricated by femtosecond laser inscription: Raman, luminescence properties and guiding performance[J]. *Opto-Electron Adv*, 2021, **4**(2): 200005.

- [6] Xu X Y, Wang T X, Chen P C, et al. Femtosecond laser writing of lithium niobate ferroelectric nanodomains[J]. *Nature*, 2022, 609(7927): 496–501.
- [7] Wu P F, Jiang X R, Zhang B, et al. Mode-controllable waveguide fabricated by laser-induced phase transition in KTN[J]. Opt Express, 2020, 28(17): 25633–25641.
- [8] Zhang Q, Li M, Xu J, et al. Reconfigurable directional coupler in lithium niobate crystal fabricated by three-dimensional femtosecond laser focal field engineering[J]. *Photonics Res*, 2019, 7(5): 503–507.
- [9] Lv H Y, Chu L R, Wang S X, et al. Layer-dependent nonlinear optical properties of two-dimensional InSe and its applications in waveguide lasers[J]. *Opt Express*, 2022, **30**(13): 23986–23999.
- [10] 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.
- [11] Chen W L, Yan Z, Tian J, et al. Flexible four-dimensional optical data storage enabled by single-pulse femtosecond laser irradiation in thermoplastic polyurethane[J]. *Opt Lett*, 2021, 46(13): 3211–3214.
- [12] Lei Y H, Sakakura M, Wang L, et al. High speed ultrafast laser anisotropic nanostructuring by energy deposition control via near-field enhancement[J]. *Optica*, 2021, 8(11): 1365–1371.
- [13] Birnbaum M. Semiconductor surface damage produced by ruby lasers[J]. J Appl Phys, 1965, 36(11): 3688–3689.
- [14] Li Y N, Wu Q, Yang M, et al. Uniform deep-subwavelength ripples produced on temperature controlled LiNbO₃: Fe crystal surface via femtosecond laser ablation[J]. *Appl Surf Sci*, 2019, 478: 779–783.
- [15] Zhang D S, Li X Z, Fu Y, et al. Liquid vortexes and flows induced by femtosecond laser ablation in liquid governing formation of circular and crisscross LIPSS[J]. *Opto-Electron Adv*, 2022, **5**(2): 210066.
- [16] Zhang Y C, Jiang Q L, Long M Q, et al. Femtosecond laserinduced periodic structures: mechanisms, techniques, and applications[J]. Opto-Electron Sci, 2022, 1(6): 220005.
- [17] Ren Y Y, Zhang L M, Romero C, et al. Femtosecond laser irradiation on Nd: YAG crystal: surface ablation and high-spatialfrequency nanograting[J]. *Appl Surf Sci*, 2018, **441**: 372–380.
- [18] Huang J, Jiang L, Li X W, et al. Fabrication of highly homogeneous and controllable nanogratings on silicon via chemical etching-assisted femtosecond laser modification[J]. *Nanophotonics*, 2019, 8(5): 869–878.
- [19] Cho D H, Hong S H, Lee W J, et al. Colorful solar cells utilizing off-axis light diffraction via transparent nanograting structures[J]. *Nano Energy*, 2021, 80: 105550.
- [20] Fang Z, Jiang X D, Tian X, et al. Ultratransparent PMN-PT electro-optic ceramics and its application in optical communication[J]. Adv Opt Mater, 2021, 9(13): 2002139.
- [21] Deng C G, Ye L X, He C J, et al. Reporting excellent transverse piezoelectric and electro-optic effects in transparent rhombohedral PMN-PT single crystal by engineered domains[J]. Adv Mater, 2021, 33(43): 2103013.
- [22] Li Q, Liu Y B, Liu J F, et al. Enhanced piezoelectric properties and improved property uniformity in Nd-doped PMN-PT relaxor ferroelectric single crystals[J]. *Adv Funct Mater*, 2022, **32**(25): 2201719.
- [23] Piredda G, Stroj S, Ziss D, et al. Micro-machining of PMN-PT crystals with ultrashort laser pulses[J]. *Appl Phys A*, 2019, **125**(3): 201.

陈志翔, 等. 光电工程, 2023, 50(3): 220275

- [24] Chen X, Liu D W, Liu S, et al. Optical induction and erasure of ferroelectric domains in tetragonal PMN-38PT crystals[J]. Adv Opt Mater, 2022, 10(4): 2102115.
- [25] Shen T L, Si J H, Chen T, et al. Fabrication of microgrooves in PMN-PT using femtosecond laser irradiation and acid etching[J]. *Appl Opt*, 2022, **61**(21): 6234–6240.
- [26] Sipe J E, Young J F, Preston J S, et al. Laser-induced periodic

作者简介



陈志翔 (1997-),男,硕士研究生,目前就读于 南开大学,主要的研究方向为飞秒激光加工晶 体微纳光学器件。

E-mail: zhxchen@mail.nankai.edu.cn



【通信作者】刘洪亮(1987-),男,博士研究生, 副教授,2016年毕业于山东大学物理学院, 2021年聘为南开大学电子信息与光学工程学院 副教授,主要研究方向包括激光与物质相互作 用,涡旋光束产生与传输调控,离子束调控铁 电畴结构及微纳米集成光子器件。

E-mail: drliuhl@nankai.edu.cn

surface structure. I. Theory[J]. *Phys Rev B*, 1983, **27**(2): 1141-1154.



【通信作者】杨全鑫(1996-),男,博士研究生。 目前就读于南开大学,研究方向包括飞秒激光 与离子束改性晶体材料、铁电材料的临界态光 学特性等。

E-mail: qxyang@mail.nankai.edu.cn

团队介绍

南开大学现代光学研究所刘洪亮副教授课题组连续在多个研究方向取得了突破性的研究成果,获得山东省自然科学二等奖。课题组的研究方向包括弛豫铁电材料特性、微纳光学功能器件、飞秒激光微加工、离子束改性材料、激光光谱探测和成像等。近年来,组内老师和研究生连续在国内外高水平刊物上发表 30 余篇文章,包括 Acta Materialia、Nanophotonics、Opto-Electronic Advances、Crystal Growth & Design、Journal of Alloys and Compounds、Optics Express、Applied Physical Letters、Applied Surface Science、Optics Letters等,其中数篇文章 被遴选为 Editor's Pick、Supplementary Cover、Back Cover 文章,目前取得多项相关专利授权。







Phase transition properties of the LIPSS induced by femtosecond laser direct writing on PMN-PT crystal

Chen Zhixiang¹, Yang Quanxin^{1*}, Liu Hongliang^{1,2*}



Morphology of LIPSS induced by femtosecond laser

Overview: With the development of modern manufacturing, the size of optical devices is gradually developing towards miniaturization, and integrated optics is also developing to become a topical area of research for many scholars. One of the methods used for producing micro/nano optical devices is femtosecond laser direct writing, a fine three-dimensional processing technique that has been extensively studied by many scholars for its applicability to most materials and can be applied to the fabrication of a wide range of optical devices. Micro/nano-optical devices prepared by femtosecond laser direct writing in crystals have been applied in a broad range of applications in different wavelengths. PMN-PT crystal with relaxed ferroelectric has attracted much attention in recent years for its superior piezoelectric property and large electromechanical coupling coefficient, and its application in the infrared band is more prominent, so the fabrication of the optical devices based on PMN-PT crystal has gradually become a relevant research hotspot. The LIPSS is one of the micro/nano-structures that can be processed by femtosecond laser direct writing. The LIPSS is prevalent in many materials and has been found in metals, semiconductors, dielectrics, etc. Similarly, LIPSS can be induced by femtosecond lasers in PMN-PT crystal. The LIPSS has a wide range of applications in the fields of anti-reflectivity, permanent coloration, and wettability. Nevertheless, the physical processes and the mechanisms involved in the formation of LIPSS have different interpretations in different materials. In this paper, we describe the LIPSS induced by femtosecond laser on the surface of the PMN-PT crystal and characterize it theoretically. We have achieved a change in the period of the LIPSS from 750 nm to 3000 nm after experimenting with different laser parameters. Afterward, we simultaneously obtained the phase transition of the LIPSS in PMN-PT crystal through temperature modulation, and this phase transition can be analyzed by the variation of the Raman spectra. At the same time, we have obtained the Curie temperature for the LIPSS structure that is approximately 10 °C lower than that of the PMN-PT crystal and have analyzed the phase transition process through the structural properties of the PMN-PT crystal. The results of our experiments and analyzes on the LIPSS in PMN-PT crystal reported in this paper can provide some experience for the subsequent development of the optical devices related to the LIPSS in PMN-PT crystal.

Chen Z X, Yang Q X, Liu H L. Phase transition properties of the LIPSS induced by femtosecond laser direct writing on PMN-PT crystal[J]. *Opto-Electron Eng*, 2023, **50**(3): 220275; DOI: 10.12086/oee.2023.220275

¹College of Electronic Information and Optical Engineering, Tianjin Key Laboratory of Micro-scale Optical Information Science and Technology, Nankai University, Tianjin 300350, China; ²State Key Laboratory of Crystal Materials, Shandong University, Jinan, Shandong 250100, China

Foundation item: National Natural Science Foundation of China (NSFC) (12274236).

^{*} E-mail: qxyang@mail.nankai.edu.cn; drliuhl@nankai.edu.cn