

DOI: 10.12086/oe.2022.210320

基于激光诱导表面周期结构的微纳防伪结构色

欧阳旭¹, 谢子健¹, 张孟瑞¹, 杨清帅¹, 李晨辉¹,
曹耀宇¹, 徐毅², 李向平^{1*}

¹暨南大学光子技术研究院, 广东省光纤传感与通信技术
重点实验室, 广东广州 510632;

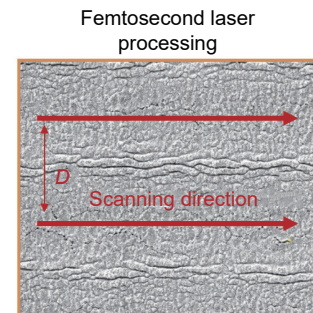
²广东工业大学先进光子技术研究院, 广东广州 510006

摘要: 激光诱导表面周期结构由于其周期相关的光栅衍射特性在明场下显示出鲜艳的结构色, 备受研究人员的广泛关注, 而微纳结构在显微镜暗场显示的颜色通常容易被忽略。本文报道通过飞秒激光对氧化铟锡薄膜加工形成双周期光栅结构, 利用其在明场和暗场的观察下具有不同的颜色特性实现图像加密应用。通过控制飞秒激光的偏振、脉冲能量和扫描速度在氧化铟锡薄膜上形成与偏振和波长相关的亚波长周期光栅, 通过控制激光加工线条间距形成大周期光栅。本文研究了激光加工能量和加工线条之间的间距对其形成双周期结构在明场和暗场显色的影响, 利用不同加工参数结构在明场和暗场下显示不同的颜色实现图像加密。激光直写加工可以快速制备大面积区域, 有望在商品防伪、图案装饰、超表面设计等方面发挥潜在的应用价值。

关键词: 结构色; 激光诱导表面周期结构; 信息防伪; 激光加工

中图分类号: TB34; TN249

文献标志码: A



欧阳旭, 谢子健, 张孟瑞, 等. 基于激光诱导表面周期结构的微纳防伪结构色 [J]. 光电工程, 2022, 49(1): 210320

Ouyang X, Xie Z J, Zhang M R, et al. Laser-induced periodic surface structure for microscale anti-counterfeiting structural colors[J]. *Opto-Electron Eng*, 2022, 49(1): 210320

Laser-induced periodic surface structure for microscale anti-counterfeiting structural colors

Ouyang Xu¹, Xie Zijian¹, Zhang Mengrui¹, Yang Qingshuai¹, Li Chenhui¹,
Cao Yaoyu¹, Xu Yi², Li Xiangping^{1*}

¹Guangdong Provincial Key Laboratory of Optical Fiber Sensing and Communications, Institute of Photonics Technology, Jinan University, Guangzhou, Guangdong 510632, China;

²Advanced Institute of Photonics Technology, Guangdong University of Technology, Guangzhou, Guangdong 510006, China

Abstract: The vivid color appearance of laser-induced periodic surface structures (LIPSS) has received intense research interests. The vibrant structural color associated with the periodicity of LIPSS is normally concerned under bright -field illumination, while the colors of structures under dark-field illumination are commonly overlooked. In this paper, we report an image encryption method based on laser-induced dual-period grating structures in indium tin

收稿日期: 2021-09-30; 收到修改稿日期: 2022-01-06

基金项目: 广东省珠江人才计划创新团队资助项目 (2016ZT06D081)

*通信作者: 李向平, xiangpingli@jnu.edu.cn。

版权所有©2022 中国科学院光电技术研究所

oxide thin films, exhibiting different colors under bright-field and dark-field illumination. Following the standard laser recipe by judiciously controlling the polarization, pulse energy and scanning speed, subwavelength period LIPSS can be fabricated. By controlling the space between the fabricated lines, another grating with a larger periodicity can be formed. Consequently, the dual-period grating structure displays different colors under bright-field and dark-field illumination depending on the laser recipe with different pulse energies and line spaces. Leveraging this effect, information can be encoded in the color image, which displays the same color appearance under bright-field illumination while revealing different colors under dark-field illumination has been demonstrated. Combining the flexibility and scalability of laser fabrication, we envisage the potential applications in anti-counterfeiting, pattern decoration, metasurface, etc.

Keywords: structural color; laser induced periodic surface structure; anti-counterfeiting; laser processing

1 引言

激光加工在数据存储^[1-3]、周期微纳结构制备^[4-5]等方面具有重要的应用。其中激光诱导周期性表面结构(laser induced periodic surface structures, LIPSS)是一种普遍现象^[6-8],在超快激光的照射下,几乎大部分金属、半导体、绝缘体材料都能形成周期性结构^[9-13]。LIPSS的结构有高空间频率周期条纹、低空间频率周期条纹、凹槽等形状^[14],LIPSS的形成会受激光波长、偏振方向、能量、脉冲数、脉宽等参数影响^[15-18]。通常认为LIPSS的形成是入射光波与物体粗糙表面的散射光波干涉导致,但随着在材料上制备出了突破衍射极限的高空间频率光栅,使用该模型就很难解释清楚这种现象。到目前为止,为了解释这种突破衍射极限的高空间频率周期条纹,相继提出了表面等离子体模型、自组织模型、库伦爆炸模型等^[19-23]。然而对于高空间频率周期条纹的解释依然存在较多争议,这些模型并没有普适性,依然需要进一步研究。

LIPSS在表面增强的拉曼散射、抗菌表面、仿生表面及结构色等^[7-8,24-28]方面具有重要的应用。结构色的产生主要依赖于LIPSS的形成,如Dusser等人^[25]在不锈钢表面加工得到小于激光波长的波纹,可以使材料显示颜色。此外LIPSS也可以在铝、铂、钛等材料上实现结构色,结构色的空间尺度既可以是微纳量级,也可以是肉眼可见的毫米量级。结构色在标记、装饰、加密和防伪等方面具有重要的作用,如Hu等人^[29]利用激光加工形成的结构在不同观察角度下显示不同颜色这一原理,实现信息的防伪。由于结构周期性带来的光栅效应,其在明场颜色鲜艳受到广泛关注,而暗场颜色容易被忽略。

本文报道了一种飞秒激光制备的双周期结构,其在明场和暗场显示不同颜色实现信息加密技术。如

图1所示,图1(a)为加工过程的示意图,飞秒激光(脉宽40 fs,波长800 nm,重复频率1 kHz)以线扫描方式对制备在玻璃衬底上氧化铟锡(Indium tin oxide, ITO)薄膜加工,扫描次数为加工结构宽度除以间距 D 。研究了激光加工中脉冲能量、加工线条之间的间距(D)及扫描速度等参数对加工之后微光栅的形成和结构色的影响。图1(b)为加工产生结构色示意图,当扫描速度和间距 D 固定时,使用不同的激光能量加工形成的结构在反射式显微镜的观察下,其明场暗场显示的颜色不一样,明场颜色主要为蓝色、红色以及两者的合成色,暗场颜色基本可以覆盖整个色域范围,该结果在表面装饰、数据存储等方面具有潜在应用价值。图1(c)为防伪加密技术的示意图,当扫描速度以及激光加工能量不变时,改变扫描线条的间距 D 可以使加工结构在明场显色相同,但暗场显示的颜色不一样,只有在明场颜色和暗场颜色同时满足要求时,才能得到正确的信息,从而实现信息的防伪。

2 实验

实验中我们采用自建飞秒激光加工系统,如图1(a)所示,其中超快飞秒激光器(脉宽40 fs,波长800 nm,垂直偏振)光斑直径为5 mm,衰减片用于调节激光能量,光开关控制激光传输时的逻辑状态,扫线加工时,光开关处于打开状态,激光照射到样品上。激光通过低数值孔径0.25的物镜(N PLAN EPI, 10 \times , Leica Co.)聚焦到样品上,样品固定在电控三维位移台上,通过控制位移台的移动加工不同形状图案。样品的制备使用磁控溅射将ITO镀在玻璃衬底上,ITO薄膜厚度为180 nm左右。

样品形成的颜色使用暗场散射显微镜(Olympus, BX53, Olympus Co.)通过彩色相机获取样品的图案。照明光源为卤素白光光源,光源通过物镜(MPlanFL N,

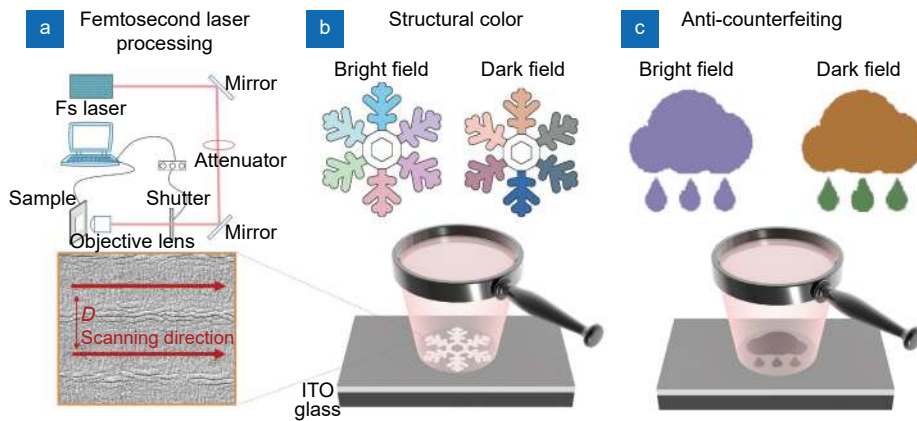


图 1 激光加工双周期 LIPSS 过程与图像加密应用示意图。

- (a) 飞秒激光线扫描在 ITO 薄膜加工的示意图, 红色箭头代表激光扫描的移动方向。 D 为扫描线条之间的距离;
- (b) 结构加工之后产生结构色的示意图, 其明场与暗场会显示不同的颜色, 并且具有丰富的颜色;
- (c) 微纳防伪结构色示意图, 其结构明场显示的颜色一样, 但暗场显示的颜色不一样

Fig. 1 Schematic diagrams of dual-period LIPSS and its application.

- (a) Sketch of femtosecond laser line scanning in ITO thin films. The red arrows represent the moving direction of the laser beam. D is the distance between two fabricated lines; (b) Sketch of structural colors. The structures will show different colors under bright-field and dark-field illumination; (c) Sketch of anti-counterfeiting based on structure colors from dual-period LIPSS. The LIPSS structures display the same color under bright-field illumination and different colors under dark-field illumination

5×/0.15 BD, Olympus Co.) 聚焦到样品, 之后再通过相同的物镜收集样品反射的信号到彩色相机。本文彩色相机拍摄的图案都为数值孔径是 0.15 的物镜拍摄。光谱采集使用高数值孔径 0.8 的物镜 (MPlanFL N, 50×, Olympus Co.), 散射光谱在暗场显微镜模式下直接通过光谱仪 (SR-500i-D2-R-1F1, Andor Co.) 采集。采集反射光谱时先采集光源在全反射银镜的反射光谱, 之后采集加工区域的反射谱除以银镜的反射光谱得到归一化的反射率。

3 结果分析

实验中主要研究激光加工能量以及扫描线条之间的间距对样品加工形成结构的影响, 不同加工参数对结构显示颜色的变化趋势, 并利用扫描电子显微镜 (scanning electron microscope, SEM) 观察结构。图 2 是激光扫描速度为 0.5 mm/s 时激光加工能量和扫描线条间距 D 对结构显示颜色的影响及结构的变化趋势。当速度为 0.5 mm/s 时, 图 2(a), 2(b) 为彩色相机拍摄的明场和暗场图片, 加工的矩形区域为 $100\ \mu\text{m} \times 40\ \mu\text{m}$ 。当 D 为 $1\ \mu\text{m}$, 加工能量为 1 mW 到 1.2 mW 时, 明场颜色呈现蓝色到红色的变化趋势, 暗场颜色为红色到蓝色的变化趋势, 但此时暗场的颜色偏暗。从扫描电子显微镜的结果可以看出, 此时加工得到的结构以条纹为主, 该波纹垂直激光的偏振, 随着加工能量的增加, 出现波纹数量减少、波纹呈现明显到不

明显的变化趋势。加工能量为 1.3 mW 时, 此时明场的颜色为浅灰色, 暗场为黑色, 说明此时已经将样品从表面剥离掉。从 SEM 图可以发现, 当 D 为 $1.5\ \mu\text{m}$ 时, 波纹的变化趋势与 D 为 $1\ \mu\text{m}$ 时类似。但 D 为 $2\ \mu\text{m}$ 和 $2.5\ \mu\text{m}$ 时, 此时明场的颜色主要以暗蓝色为主, 但暗场的颜色分别以橙色和暗红色为主。其原因主要为 D 为 $1\ \mu\text{m}$ 和 $1.5\ \mu\text{m}$ 时, 激光的光斑大于线条之间的距离, 加工时部分区域会重叠。当激光加工能量为 1.2 mW 时, 随着 D 增大, 明场颜色为红色到蓝色的变化趋势, 暗场颜色为蓝色到暗红色的变化。当激光加工能量为 1.1 mW 时, 随着 D 增大, 此时明场的颜色以蓝色为主, 但暗场的颜色变化趋势为紫色到红色。

通过以上研究发现, 扫描间距 D 和激光能量对结构显示的颜色具有重要的影响。为了得到丰富的明场与暗场颜色, 这时可以将 D 固定为 $1.5\ \mu\text{m}$ 以改变激光的加工能量为主。对于防伪方面的应用, 可以将激光的加工能量固定, 改变 D 使结构明场颜色一样, 暗场颜色不一样进而达到防伪的效果。

为了进一步研究结构色的形成机制, 使用傅里叶变换和有限时域差分法对结构进行分析。图 3(a) 的 SEM 形貌图是 D 为 $1.5\ \mu\text{m}$, 加工能量为 1.1 mW 的结果, 图 3(b) 为对应的傅里叶变换结果, 从图中可以看出加工得到的结构具有较好的周期性, 该周期主要体现于扫描线条间距 D 。由于加工形成的结构呈无序的分布, 因此本文建立了简化的物理模型研究结构与光

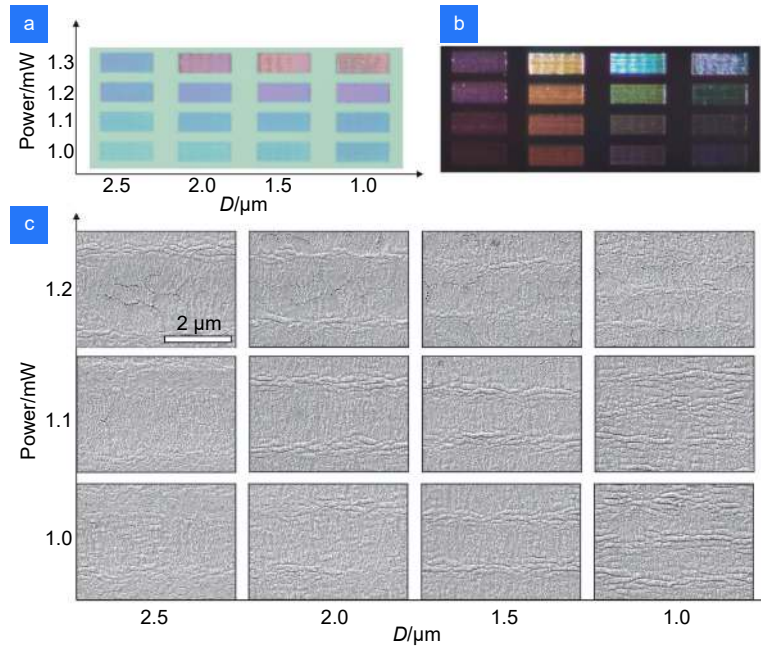


图 2 激光扫描速度与扫描线条间距对加工结构的影响。

激光扫描速度为 0.5 mm/s 时, 激光扫描线间距 D 与激光加工能量对应的明场显微镜图 (a) 和暗场显微镜图 (b) 的彩色相机拍摄结果, 矩形的大小为 $40 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$; (c) 加工形成结构的 SEM 形貌图

Fig. 2 The effect of laser energy and the distance between fabricated lines.

When the laser scanning speed is 0.5 mm/s, the images of bright-field (a) and dark-field (b) corresponding to different laser scanning line spaces D and processing energy. The size of the rectangle is $40 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$; (c) The SEM image of processed structures

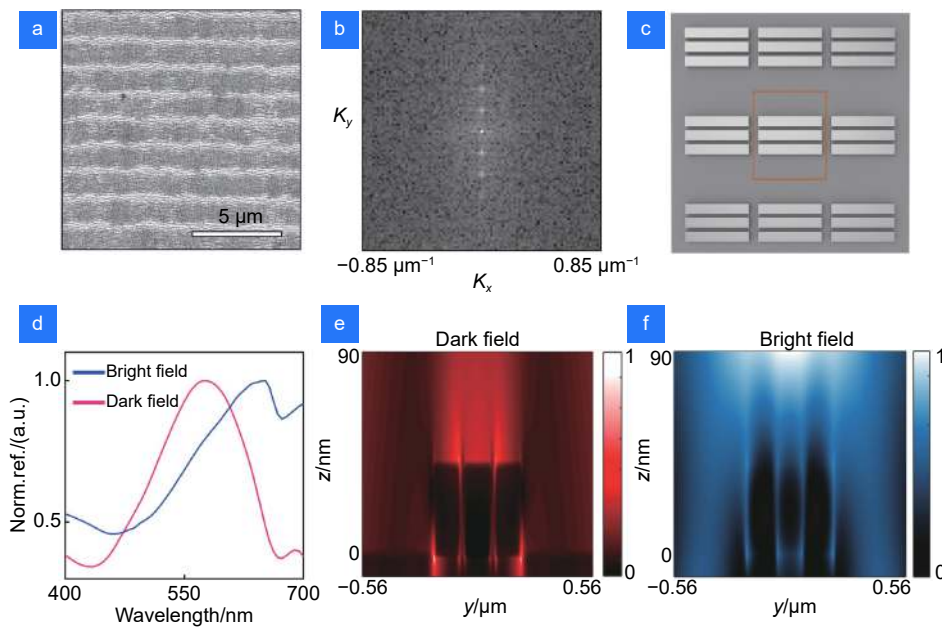


图 3 结构色形成机制分析。

(a) D 为 $1.5 \mu\text{m}$ 时加工得到结构的 SEM 形貌图; (b) 为 (a) 傅里叶变换的结果; (c) 加工结构简化的物理模型示意图; (d) 计算的明场和暗场反射曲线; (e), (f) 分别为暗场和明场计算的电场强度分布图

Fig. 3 Analysis of structural color formation.

(a) The SEM image of the structures when D is $1.5 \mu\text{m}$; (b) The result of the Fourier transformation of (a); (c) Schematic diagram of the simplified physical model of the LIPSS structures; (d) Simulated bright-field and dark-field reflection spectra; (e), (f) are the simulated electric field intensity distributions under dark-field and bright-field illumination, respectively

波的作用机制。如图 3(c) 所示, 根据 SEM 结果设置长方体的长宽高为 $800\text{ nm} \times 120\text{ nm} \times 40\text{ nm}$ 。XY 平面使用周期边界条件, 如图中的橙色矩形区域所示, 每个周期单元大小为 $860\text{ nm} \times 1500\text{ nm}$, 单个周期单元由三个长方体组成, 长方体中心之间的距离为 150 nm 。利用有限时域差分法计算, 通过设置光源正入射, 在光源后方设置探测器, 仿真明场结构的反射谱; 通过设置斜入射光源, 类比得到结构在暗场条件下反射的光谱^[30]。本文明场计算使用平面波作为光源, 水平偏振光正入射, 偏振方向与结构中的长方体长轴平行, 暗场计算时将光源入射角设置为 70° (数值孔径为 0.4)。图 3(d) 为归一化的反射光谱, 蓝色和红色分别代表明场和暗场计算的结果, 从反射曲线可以看出在明场和暗场下具有不同的共振峰, 证明了结构在明场和暗场显示不同的颜色, 需要指出的是由于实际结构的高度、

形貌等具有强的无序性, 而仿真使用了简化的模型, 导致仿真计算的光谱与实际测量的光谱存在差异, 该模拟证明双周期光栅结构在明场和暗场下会显示不同的颜色。图 3(e), 3(f) 分别为暗场和明场计算结构在 YZ 面在共振峰处的电场强度分布图, 对应的波长分别为 560 nm 和 650 nm 。结构之间的间距和高度将会影响其在明场和暗场显示的颜色, 当结构在明场和暗场条件照射时, 形成不同的电场分布模式^[30-31]。我们的计算结果可以看出, 电场强度的分布在暗场显示的颜色主要为亚波长光栅结构之间的相互耦合作用, 电场最强处主要集中在亚波长光栅之间, 而明场下电场最强处分布在大周期光栅上方。

根据以上结果, 为了获得更多明场与暗场颜色, 实验中使用了更小的加工能量间隔并且测量了结构在明场和暗场下的反射光谱。图 4 为激光加工速度为

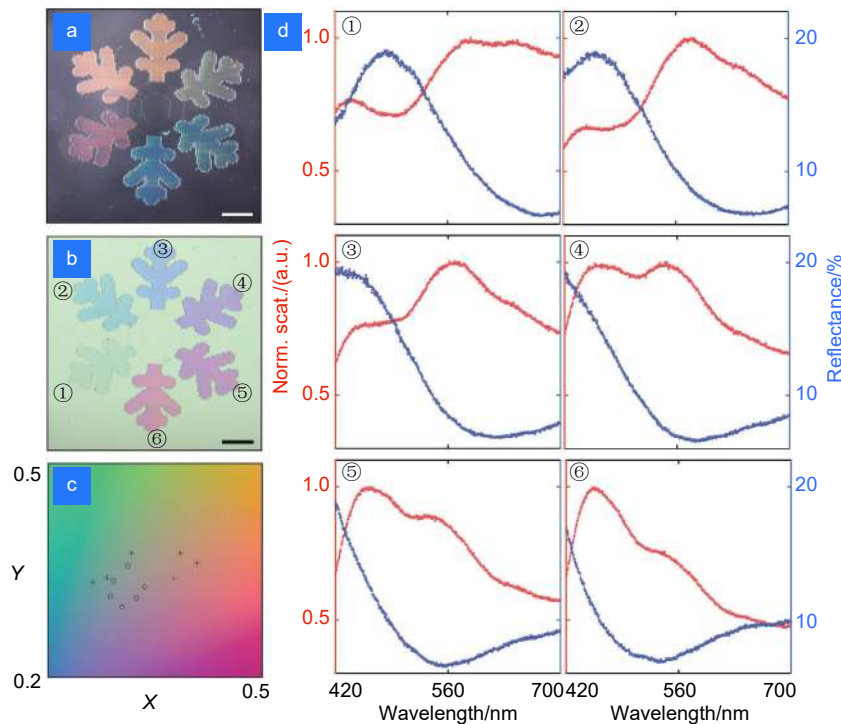


图 4 结构色的表征。

激光的扫描速度为 0.5 mm/s , 线条之间间距为 $1.5\text{ }\mu\text{m}$, 使用不同的激光能量加工雪花图案得到的暗场 (a) 和明场 (b) 显微图片, (b) 中编号 ①~⑥ 对应的激光加工能量为 $0.95\text{ mW} \sim 1.25\text{ mW}$, 能量间隔为 0.06 mW ; (c) 明场暗场颜色在色度图 CIE 1976 上的对应关系, “+” 为明场对应的颜色, “o” 为暗场对应的颜色; (d) 中红色曲线和蓝色曲线分别代表实验测量的散色光谱和反射光谱, ①~⑥ 与明场中的编号对应。

Fig. 4 Characterization of structural colors.

The scanning speed of the laser beam is 0.5 mm/s , the space between lines is $1.5\text{ }\mu\text{m}$. The dark-field (a) and bright-field (b) micrographs are obtained by processing the snowflake pattern with different laser energy, and the numbers ①~⑥ in (b) correspond to the laser processing energy: $0.95\text{ mW} \sim 1.25\text{ mW}$, the energy interval is 0.06 mW ; (c) The correspondence of bright-field and dark-field colors on the chromaticity diagram CIE 1976, “+” is the color corresponding to bright-field, and “o” is the color corresponding to dark-field; (d) The red and blue curves represent the experimentally measured scattered and reflected spectra, respectively, and ①~⑥ correspond to the numbers in the bright-field image

0.5 mm/s、间距 D 为 1.5 μm 时, 改变激光加工能量的实验结果。图 4(a), 4(b) 分别为 5 倍物镜观察的暗场与明场图片, 4(b) 中①~⑥对应的激光加工能量为 0.95 mW~1.25 mW, 间隔为 0.06 mW。从结果可以看出, 明场暗场具有丰富的色彩。4(c) 为图 4(a), 4(b) 中的颜色在色度图上的对应关系, 色度图为 CIE1976, “+” 和 “o” 分别代表明场和暗场观察下对应的颜色。4(d) 采集每个颜色的局部区域的光谱信息, 图像中的标号与图 4(b) 中的标号对应, 红色曲线代表样品的归一化散射光谱, 蓝色曲线代表样品的反射光谱, 采集的波长范围为 420 nm~700 nm, 可以覆盖整个可见光范围。从光谱信息中可以看出, 随着激光加工能量的增大, 散射光谱的共振峰会往短波移动, 可以很好地与其显示的颜色相对应。对于反射光谱, 在短波处始

终存在共振峰, 随着激光加工能量的增加, 短波处的共振峰会逐渐减弱, 而长波 670 nm 处的共振会逐渐增强, 其结果与明场对应的颜色能够很好的吻合。

通过对激光加工能量的优化可使结构在明场和暗场下显示丰富的颜色, 此外还可以对激光加工能量和扫描间距控制使结构在明场显示相同的颜色而在暗场显示不同的颜色进而实现微纳防伪结构色的应用。如图 5 所示, 根据图 2 的实验结果, 图 5 (a)~(c) 和 5(d), 5(e) 的激光加工能量分别选择 1.2 mW 和 1.1 mW, 加工速度为 0.5 mm/s, 云朵和雨滴图案加工使用的 D 分别为 2 μm 和 1.5 μm 。图 5 (a), 5(d) 和 5(b), 5 (e) 分别为明场和暗场的图像, 图 5 (c), 5(f) 为 SEM 的结果, 左边和右边分别对应云朵和雨滴结构里面的部分区域。从结果可以看出, 当加工能量和速度一致时,

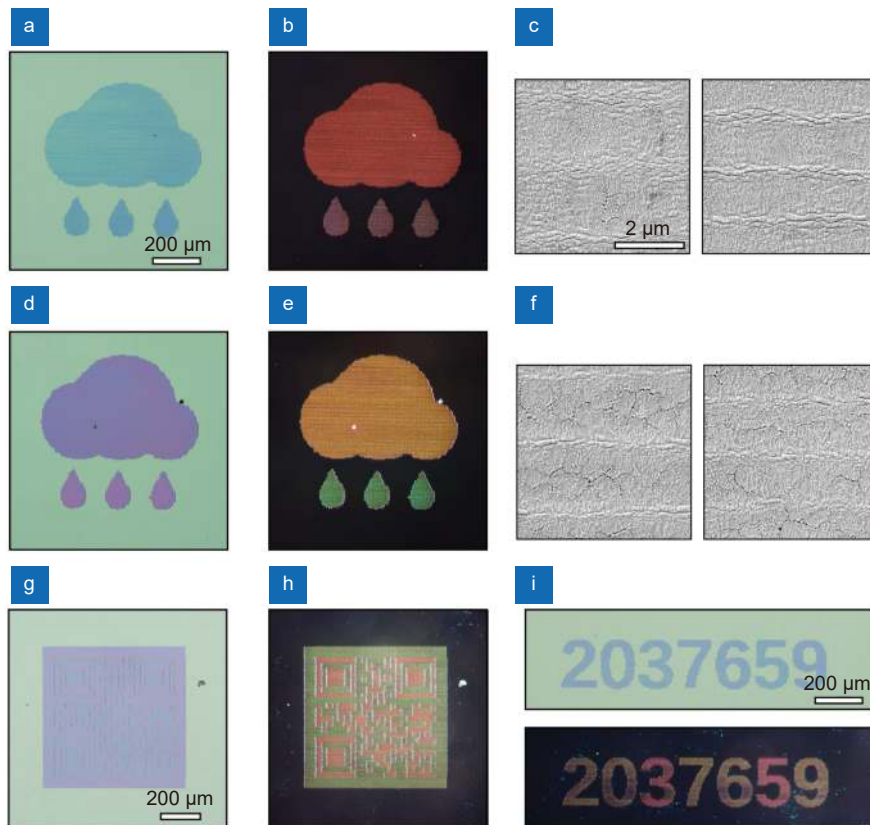


图 5 微纳防伪结构色的实验结果。

(a)~(f) 中, 激光扫描速度为 0.5 mm/s, “云朵”的扫描线条间距 D 为 2 μm , “雨滴”的扫描线条间距 D 为 1.5 μm 。(a)~(c)、(d)~(f) 的加工能量分别为 1.0 mW 和 1.2 mW, (a, d), (b, e), (c, f) 分别为明场、暗场和 SEM 形貌结果, SEM 的左图和右图分别为云朵和雨滴里面的部分结构; (g), (h) 对二维码隐藏的实验结果; (i) 引入干扰信息的实验结果

Fig. 5 Experimental results of microscale anti-counterfeiting structural colors.

In (a)~(f), the laser scanning speed is 0.5 mm/s, the scanning line space D of the pattern “clouds” is 2 μm , and the scanning line space D of raindrops is 1.5 μm . The processing energy of (a)~(c), (d)~(f) are 1.0 mW and 1.2 mW, respectively. In the figure, (a, d), (b, e), (c, f) are bright-field, dark-field and SEM image results, respectively, and the left and right images of the SEM show part of the structure inside the pattern “clouds” and “raindrops”, respectively; (g) and (h) are the experimental results of QR code hiding;

(i) is the experimental result after introducing disturbance information

改变 D 可以使明场显示的颜色一样, 暗场显示的颜色不一样, 利用这一特点, 可以对二维码和信息进行加密。如图 5(g), 5(h) 所示, 对二维码黑白两个区域分别使用 $2\ \mu\text{m}$ 和 $1.5\ \mu\text{m}$ 的扫描间距加工, 其在明场下显示的颜色基本一致, 其区分度很低, 这时候基本识别不了二维码的信息, 但在暗场观察时, 二维码的两个区域会呈现橙色和淡绿色, 此时的图像具有很高的区分度, 这时候可以很好识别二维码的信息。图 5(i) 的实验为信息加密的示例, 当传递一组信号“20769”时, 可以在其中间添加一组干扰信息将其变为“2037659”, 此时明场观察下得到错误的信息, 只有当数字暗场颜色为橙色时, 才可以得到正确的信息。这样可以利用结构在暗场下展示不同的颜色, 引入暗场颜色作为信息加密的维度, 对信息实现加密以及防伪。

4 总 结

在本文中, 研究了飞秒激光对氧化铜锡薄膜加工形成双周期表面光栅结构, 通过控制飞秒激光的偏振、脉冲能量和扫描速度, 研究对明场和暗场结构色的关系。实验结果得到了广色域的明场暗场显微图像, 并且明场和暗场显示颜色与激光加工能量和加工线条间距相关。利用不同加工参数结构在明场和暗场下显示不同的颜色, 实现了图像加密应用。引入暗场颜色作为数据加密的一个通道, 明场观察时可以将密钥信息隐藏, 只有在暗场观察下才可以得到正确信息, 还可以对信息添加干扰信号, 需要明场信号与暗场信号对应时才可以提取有效的信息。该研究有望在商标装饰、商品防伪水印、数据加密等方面发挥潜在的应用价值。

参考文献

[1] Ouyang X, Xu Y, Xian M C, et al. Encoding disorder gold nanorods for multi-dimensional optical data storage[J]. *Opto-Electron Eng*, 2019, 46(3): 180584.
欧阳旭, 徐毅, 洗铭聪, 等. 基于无序金纳米棒编码的多维光信息存储[J]. *光电工程*, 2019, 46(3): 180584.

[2] Ouyang X, Xu Y, Feng Z W, et al. Polychromatic and polarized multilevel optical data storage[J]. *Nanoscale*, 2019, 11(5): 2447–2452.

[3] Ouyang X, Xu Y, Xian M C, et al. Synthetic helical dichroism for six-dimensional optical orbital angular momentum multiplexing[J]. *Nat Photonics*, 2021, 15(12): 901–907.

[4] Li X J, Bai Z C, Peng M, et al. Surface plasma enhanced fluorescence of CdSe quantum dots induced by laser on a grating surface[J]. *Opto-Electron Eng*, 2019, 46(5): 180464.
黎显继, 白忠臣, 彭嫄, 等. 激光诱导光栅表面等离子体增强CdSe

量子点荧光[J]. *光电工程*, 2019, 46(5): 180464.

[5] Yang H, Cao Y, Li F P, et al. Research progress in superhydrophobic surfaces fabricated by laser[J]. *Opto-Electron Eng*, 2017, 44(12): 1160–1168.
杨焕, 曹宇, 李峰平, 等. 激光制备超疏水表面研究进展[J]. *光电工程*, 2017, 44(12): 1160–1168.

[6] Van Driel H M, Sipe J E, Young J F. Laser-induced periodic surface structure on solids: a universal phenomenon[J]. *Phys Rev Lett*, 1982, 49(26): 1955–1958.

[7] Bonse J, Gräf S. Maxwell meets Marangoni—a review of theories on laser-induced periodic surface structures[J]. *Laser Photonics Rev*, 2020, 14(10): 2000215.

[8] Bonse J, Höhm S, Kirner S V, et al. Laser-induced periodic surface structures—A scientific evergreen[J]. *IEEE J Sel Top Quantum Electron*, 2017, 23(3): 9000615.

[9] Birnbaum M. Semiconductor surface damage produced by ruby lasers[J]. *J Appl Phys*, 1965, 36(11): 3688–3689.

[10] Vorobyev A Y, Makin V S, Guo C L. Periodic ordering of random surface nanostructures induced by femtosecond laser pulses on metals[J]. *J Appl Phys*, 2007, 101(3): 034903.

[11] Tsukamoto M, Asuka K, Nakano K, et al. Periodic microstructures produced by femtosecond laser irradiation on titanium plate[J]. *Vacuum*, 2006, 80(11–12): 1346–1350.

[12] Ashkenasi D, Rosenfeld A, Varel H, et al. Laser processing of sapphire with picosecond and sub-picosecond pulses[J]. *Appl Surf Sci*, 1997, 120(1–2): 65–80.

[13] Rohloff M, Das S K, Höhm S, et al. Formation of laser-induced periodic surface structures on fused silica upon multiple cross-polarized double-femtosecond-laser-pulse irradiation sequences[J]. *J Appl Phys*, 2011, 110(1): 014910.

[14] Bonse J, Kirner S V, Griepentrog M, et al. Femtosecond laser texturing of surfaces for tribological applications[J]. *Materials*, 2018, 11(5): 801.

[15] Nivas J J J, He S T, Rubano A, et al. Direct femtosecond laser surface structuring with optical vortex beams generated by a q-plate[J]. *Sci Rep*, 2015, 5: 17929.

[16] Liang F, Vallée R, Chin S L. Pulse fluence dependent nanograting inscription on the surface of fused silica[J]. *Appl Phys Lett*, 2012, 100(25): 251105.

[17] Forster M, Kautek W, Faure N, et al. Periodic nanoscale structures on polyimide surfaces generated by temporally tailored femtosecond laser pulses[J]. *Phys Chem Chem Phys*, 2011, 13(9): 4155–4158.

[18] Lin Z Y, Hong M H. Femtosecond laser precision engineering: from micron, submicron, to nanoscale[J]. *Ultrafast Sci*, 2021, 2021: 9783514.

[19] Reif J, Varlamova O, Uhlig S, et al. On the physics of self-organized nanostructure formation upon femtosecond laser ablation[J]. *Appl Phys A*, 2014, 117(1): 179–184.

[20] Garrelie F, Colombier J P, Pigeon F, et al. Evidence of surface Plasmon resonance in ultrafast laser-induced ripples[J]. *Opt Express*, 2011, 19(10): 9035–9043.

[21] Le Harzic R, Dörr D, Sauer D, et al. Generation of high spatial frequency ripples on silicon under ultrashort laser pulses irradiation[J]. *Appl Phys Lett*, 2011, 98(21): 211905.

[22] Dong Y Y, Molian P. Coulomb explosion-induced formation of highly oriented nanoparticles on thin films of 3C–SiC by the femtosecond pulsed laser[J]. *Appl Phys Lett*, 2004, 84(1): 10–12.

[23] Bhardwaj V R, Simova E, Rajeev P P, et al. Optically produced arrays of planar nanostructures inside fused silica[J]. *Phys Rev Lett*, 2006, 96(5): 057404.

- [24] Zhao Y Z, Su Y L, Hou X Y, et al. Directional sliding of water: biomimetic snake scale surfaces[J]. *Opto-Electron Adv*, 2021, 4(4): 210008.
- [25] Dusser B, Sagan Z, Soder H, et al. Controlled nanostructures formation by ultra fast laser pulses for color marking[J]. *Opt Express*, 2010, 18(3): 2913-2924.
- [26] Li H, Hu D J, Qin F, et al. Principle and application of metasurface optical field modulation of atomic layer thickness[J]. *Chin Opt*, 2021, 14(4): 851-866.
李昊, 胡德骄, 秦飞, 等. 原子层厚度超表面光场调控原理及应用[J]. *中国光学*, 2021, 14(4): 851-866.
- [27] Lu Y D, Hu D J, Zhang M S, et al. Laser printing based on curvature-driven shape transition of aluminum nanodiscs[J]. *Chin Opt Lett*, 2021, 19(5): 053602.
- [28] Li G Q, Li J W, Hu Y L, et al. Femtosecond laser color marking stainless steel surface with different wavelengths[J]. *Appl Phys A*, 2015, 118(4): 1189-1196.
- [29] Hu D J, Lu Y D, Cao Y Y, et al. Laser-splashed three-dimensional plasmonic nanovolcanoes for steganography in angular anisotropy[J]. *ACS Nano*, 2018, 12(9): 9233-9239.
- [30] Wang W, Rosenmann D, Czaplewski D A, et al. Realizing structural color generation with aluminum plasmonic V-groove metasurfaces[J]. *Opt Express*, 2017, 25(17): 20454-20465.
- [31] Zeng B B, Gao Y K, Bartoli F J. Ultrathin nanostructured metals for highly transmissive plasmonic subtractive color filters[J]. *Sci Rep*, 2013, 3: 2840.

作者简介



欧阳旭(1993-), 男, 博士研究生, 主要从事光存储、激光加工的研究。

E-mail: 270709831@qq.com



【通信作者】李向平(1979-), 男, 博士, 研究员, 博士生导师, 主要从事高密度数据存储、超分辨、超表面等领域的研究。

E-mail: xiangpingli@jnu.edu.cn

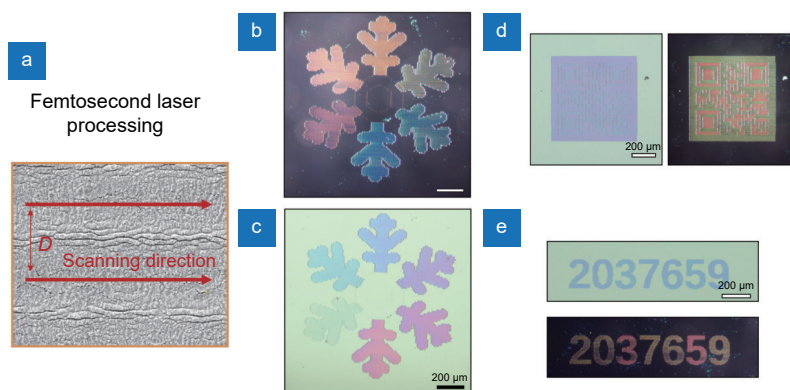
团队介绍



李向平教授带领的暨南大学纳米光子及器件课题组团队成员包括曹耀宇、秦飞、张天悦、邓子兰、王思聪、宋世超以及三十多名研究生。该团队致力于微纳光子信息技术及器件包括光存储、超构表面、超分辨成像等方向的研究。利用表面等离子激元、电介质材料构成的超表面实现多自由度光场调控; 等离子激元纳米结构的全彩显示及其在多维复用光数据存储、光信息加密等方面的实际应用; 基于结构光束、超振荡透镜、受激辐射损耗显微镜 (STED) 等超分辨光学技术的成像和加工应用。

Laser-induced periodic surface structure for microscale anti-counterfeiting structural colors

Ouyang Xu¹, Xie Zijian¹, Zhang Mengrui¹, Yang Qingshuai¹,
Li Chenhui¹, Cao Yaoyu¹, Xu Yi², Li Xiangping^{1*}



(a) Sketch of femtosecond laser processing in Indium tin oxide thin films. The red arrows represent the moving direction of the laser beam. D is the distance between fabricated lines, and the picture shows the structure topography measured by scanning electron microscope; (b) and (c) are the experimental results of structural colors. The structure will show different colors in the brightfield and darkfield; (d) The experimental result of QR code encryption. The QR code in the brightfield cannot be recognized. On the contrary, the QR code in the darkfield shows distinct color appearances; (e) The experimental result of introducing disturbance information in the encryption. The correct result "20769" can be obtained when the brightfield color is blue while the darkfield color is orange.

Overview: The vivid color appearance of laser-induced periodic surface structures (LIPSS) has received intense research interests. The vibrant structural color associated with the periodicity of LIPSS is normally concerned under bright-field illumination, while the colors of the structures under dark-field illumination are commonly overlooked. In this paper, we report an image encryption method based on laser-induced dual-period grating structures in indium tin oxide (thickness 180 nm) thin films, exhibiting different colors under bright-field and dark-field illumination. Following the standard laser recipe by judiciously controlling the polarization, pulse energy and scanning speed, subwavelength period LIPSS can be fabricated. By controlling the space between the fabricated lines, another grating with a larger periodicity can be formed. Leveraging this effect, we studied the effect of laser processing energy and the distance (D) between fabricated lines on the color appearance of the structures under bright-field and dark-field illumination. The experimental results indicate that the structures formed by different laser processing energies have rich colors under the bright-field and dark-field when the scanning speed is 0.5 mm/s and the distance D between scanning lines is 1.5 μm . When the laser energy and laser scanning speed are constant, using different distances D between laser fabricated lines can make the structures display the same color under bright-field illumination while different colors under dark-field illumination. This feature can be used for image hiding such as the QR code. The colors displayed under bright-field illumination is the same, and the QR code cannot be recognized. In contrast, the QR code shows distinct colors under dark-field illumination. Furthermore, it is possible to introduce disturbance information under bright-field illumination image to realize data encryption. Only concealed information can be clearly distinguished under dark-field illumination. Combining the flexibility and scalability of laser fabrication, we envisage the potential applications in anti-counterfeiting, pattern decoration, metasurface, etc.

Ouyang X, Xie Z J, Zhang M R, et al. Laser-induced periodic surface structure for microscale anti-counterfeiting structural colors[J]. *Opto-Electron Eng*, 2022, 49(1): 210320; DOI: 10.12086/oe.2022.210320

Foundation item: Guangdong Provincial Innovation and Entrepreneurship Project (2016ZT06D081)

¹Guangdong Provincial Key Laboratory of Optical Fiber Sensing and Communications, Institute of Photonics Technology, Jinan University, Guangzhou, Guangdong 510632, China; ²Advanced Institute of Photonics Technology, Guangdong University of Technology, Guangzhou, Guangdong 510006, China

* E-mail: xiangpingli@jnu.edu.cn