飞秒激光制备多晶金刚石微结构阵列

黄建衡^{1,2},梁国文¹,李 冀^{1*},郭宝平¹

1深圳大学光电工程学院光电子器件与系统教育部重点实验室,广东省光电子器件与系统重点实验室,

广东 深圳 518060;

²深圳大学信息工程学院,广东 深圳 518060

摘要 飞秒激光加工是一种冷加工技术,能克服热效应的影响,使加工材料的边缘非常整齐和精确,对高熔点和硬 脆材料的微细加工具有显著优势。为制备一种由金属靶和金刚石构成的 X 射线源微结构阵列阳极,提出采用飞秒 激光加工技术加工金刚石微结构阵列,通过实验研究了飞秒脉冲激光加工多晶金刚石材料的工艺参量,重点分析 了激光聚焦物镜、激光脉冲能量、重复扫描次数对金刚石微结构形貌和尺寸的影响,得到了符合制作要求的加工参 量,并依据加工参量制作出了槽宽为 20 μm,槽深达 45 μm 的高质量多晶金刚石微结构阵列,测得其表面可承受电 子束轰击的最大功率密度为 12 W/mm²。该阵列将可用于制备微阵列阳极 X 射线源,为实现 X 射线大视场相衬成 像提供关键的光源器件。

关键词 激光技术;X射线光学;多晶金刚石微结构;飞秒激光微加工;X射线相衬成像

中图分类号 O439 文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201744.0302007

Femtosecond Laser Processing of Polycrystalline Diamond Micro-Structure Array

Huang Jianheng^{1,2}, Liang Guowen¹, Li Ji¹, Guo Baoping¹

¹Key Laboratory of Optoelectronic Devices and Systems of the Ministry of Education, Guangdong Provincial Key Laboratory of Optoelectronic Devices and Systems, College of Optoelectronic Engineering, Shenzhen University, Shenzhen, Guangdong 518060, China;

²College of Information Engineering, Shenzhen University, Shenzhen, Guangdong 518060, China

Abstract Femtosecond laser micromachining is a kind of cold working technology, which can overcome the influence of thermal effect. The advantage of this technology in micromachining of the hard brittle materials with high melting point is very obvious, because the edges of the processed materials are very neat and precise. A processing technique of polycrystalline diamond micro-structure by femtosecond laser is proposed to fabricate an X-ray source micro-structure array anode, which consists of metallic target and polycrystalline diamond. The micromachining parameters of polycrystalline diamond by femtosecond laser are studied experimentally. The effect of laser pulse energy, focus objective and scanning number on the morphology and dimension of ablated area is analyzed in detail. Finally, high quality polycrystalline diamond micro-structure arrays with a width of 20 μ m and a depth of 45 μ m are fabricated by femtosecond laser, and the maximum power density of permissable electron beam on its surface is 12 W/mm². The polycrystalline diamond micro-structure array can be used for X-ray source with a micro-structure array anode, and can be utilized in X-ray phase contrast imaging for large field of view.

Key words laser technique; X-ray optics; polycrystalline diamond micro-structure; femtosecond laser micromachining; X-ray phase contrast imaging

OCIS codes 140.3390; 320.7090; 340.7440; 230.6080

收稿日期: 2016-10-08; 收到修改稿日期: 2016-10-21

基金项目:国家重大科研仪器设备研制专项(61227802)、国家自然科学基金青年基金(61605119)、中国博士后面上基金(2016M592529)、中央财政支持地方高校发展基金(000022070142)

作者简介:黄建衡(1985—),男,博士,主要从事 X 射线相衬成像器件研制和飞秒激光加工方面的研究。

E-mail: xianhuangjianheng@163.com

* 通信联系人。E-mail: liji@szu.edu.cn

1 引 言

自伦琴发现 X 射线以来, X 射线成像技术便被广泛地应用于探测物质内部结构。相较传统的吸收成像, X 射线相衬成像对轻元素组成的生物软组织样品或聚合物等物体的密度变化分辨率要高三个数量级以上,具有明显的优势^[1]。轻元素组成的物质种类很多,包括碳纤维、硅、有机材料等,还包括血管、生物体软组织及其所构成的器官。因此, X 射线相衬成像技术可广泛应用于材料科学、生命科学、医学等基础研究领域,还可应用于工业无损检测、安全检查、生物考古等领域。

由于 X 射线相衬成像技术对光源的相干性和亮度提出很高要求,大部分方法需要使用同步辐射源或微 焦斑源才能实现,限制了该技术的实际应用^[2-4]。2006年,Pfeiffer等^[5]根据泰伯-劳(Talbot-Lau)原理,利 用普通 X 射线源和吸收光栅构成的阵列源实现了光栅相衬成像实验,摆脱了同步辐射源和微焦斑源的限 制,让人们看到光栅相衬成像走向实际应用的希望。然而,该成像技术发展至今仍然未能真正走向实际应 用,其主要原因是受到 X 射线光学器件的限制。成像中必需的光栅器件制作工艺复杂、成本高昂,尤其是吸 收光栅器件,目前工艺水平所制作的光栅深度有限,不能完全阻挡高能 X 射线,从而导致图像质量下降^[6-8]。 于是,有研究小组提出了结构阳极 X 射线源。早期制作的基于斜面靶的结构阳极 X 射线源,其发射体阵列 的轴向长度导致相衬图像视场受限^[9-11]。近年提出的基于垂直靶的微结构阳极 X 射线源采用金属靶和金刚 石构成的微结构阵列阳极,使高能电子轰击在靶上后形成亮暗分明的 X 射线阵列源,可以克服上述局限,应 用于 X 射线大视场光栅相衬成像^[12-13]。

飞秒激光的脉宽极窄,可以在相对较低的脉冲能量下得到极高的功率密度,使得其加工机理不同于以往的长脉冲激光加工^[14-16]。采用飞秒激光加工材料时,由于激光的持续时间远远小于晶格热传导时间,在其与物质相互作用时,能量吸收严格限制在极小范围内,并在极短时间内使电子温度达到极高,使物质从固体变为等离子态迅速以喷射形态脱离加工体,而周围物质仍处于冷状态。因此,飞秒激光加工是一种冷加工技术,能克服热效应的影响,使加工材料的边缘非常整齐和精确,对高熔点和硬脆材料的微细加工优势显著^[17-19]。早在90年代初,国外就有关于飞秒激光对金刚石加工的研究报道。1992年,Reitze等^[20]报道了利用中心波长 620 nm、脉冲宽度 90 fs 的飞秒激光烧蚀金刚石的能量密度阈值。1998年,Shirk等^[21]综合比较了纳秒激光和飞秒激光对金刚石加工的不同,与利用长脉冲激光相比,使用飞秒脉冲激光加工有多方面优势,如横向热损伤小,能显著提高烧蚀表面结构纯度等。2002年,Jeschke等^[22]建立了飞秒激光烧蚀金刚石的理论模型,理论计算了烧蚀阈值与激光脉宽的相互关系。相比国外,国内开展飞秒激光加工金刚石薄膜的研究较晚。2015年,董志伟等^[23]实验研究了利用纳秒激光和飞秒激光加工金刚石的差异,并给出了飞秒激光加工更优的结论,但是并未就飞秒激光加工进行深入研究。为制备一种由金属靶和金刚石构成的 X 射线源微微结构阵列阳极,本文提出采用飞秒激光微加工技术加工金刚石微结构阵列,依据结构阳极 X 射线源对金刚石微结构阵列的要求,通过实验研究飞秒脉冲激光微细加工金刚石材料的工艺参量,重点分析激光脉冲能量、激光聚焦物镜、重复扫描次数等对加工结构形貌和尺寸的影响,以获得符合制作要求的加工参量。

2 实验材料与方法

实验前先利用热丝化学气相沉积工艺在两块钨靶上沉积一层金刚石薄层^[24],其中一块钨靶为半圆形薄 片,作为飞秒激光在金刚石薄层上进行激光加工实验的样片,可以从侧面观测到不同工艺参量的加工结果。 另外一块钨靶是圆形薄片,待工艺参数确定后按制作要求在其中心位置加工金刚石微结构阵列。

采用的飞秒激光微加工系统如图 1 所示,主要由飞秒激光系统、光学传输及控制系统和三维精密数控平 台组成。激光器采用的是美国光谱物理公司的 Solstice Ace-Ascend 40,其输出光束中心波长为 800 nm,脉 冲宽度为 100 fs,重复频率为 1 kHz,输出脉冲能量为 4 mJ。由半波片及格兰棱镜构成的能量衰减单元可以 对激光能量进行调节,电子快门用于控制激光的通断。激光束经过显微物镜聚焦垂直入射到样品表面,样品 固定在一个高精度的三维数控工作台上,重复定位精度为 70 nm,通过软件控制样品移动速度并且可以按照 设定的图案进行加工。通过与显微目镜相连的 CCD 实时观测飞秒激光加工的过程,并采用扫描电镜对加工 后的金刚石微结构进行形貌分析和尺寸测量。在探索工艺参量的实验中,兼顾加工效率与加工质量的前提 下,扫描速度设置为 50~200 μm/s,采用放大倍数分别是 10×和 20×的两种显微物镜进行激光束聚焦,选 取激光脉冲能量为 20~50 μJ,重复扫描次数为 2~5 次。



图 1 飞秒激光加工系统示意图

Fig. 1 Schematic of femtosecond laser micromachining system

3 实验结果与讨论

随着激光聚焦物镜、激光脉冲能量和重复扫描次数的变化,金刚石微结构的形貌和尺寸会产生变化。利用扫描电镜对加工结果进行观察测量,分析金刚石微结构槽形、槽宽和槽深与加工参量的关系。

3.1 金刚石微结构槽形与加工参量的关系

根据多次激光加工的实验结果,首先分析加工所得金刚石微结构侧面槽形与加工参量的关系。图2和 图3分别是采用10×和20×放大倍数的聚焦物镜加工所得金刚石微结构侧面的扫描电镜图,激光脉冲能量 与扫描次数标于图中。



图 2 不同激光脉冲能量和重复扫描次数条件下 10×聚焦物镜加工得到金刚石微结构侧面的扫描电镜图 Fig. 2 Scanning electron microscope (SEM) images of the polycrystalline diamond micro-structure processed at different pulse energies and different scanning times with 10× objective lens



图 3 不同激光脉冲能量和重复扫描次数条件下 20×聚焦物镜加工得到金刚石微结构侧面的扫描电镜图 Fig. 3 SEM images of the polycrystalline diamond micro-structure processed at different pulse energies and different scanning times with 20× objective lens

从图 2 和图 3 中所显示的微结构侧面形状可以得到,金刚石微结构槽形与使用聚焦物镜的放大倍数相 关,使用 10×放大倍数的物镜其槽形为倒梯形,而使用 20×放大倍数的物镜时槽形接近 U 形。随着激光能 量从 20 μJ 增加到 30 μJ,重复扫描次数从 2 次增加到 3 次,微结构槽的宽度和深度增加,但其侧面形状变化 不大。考虑到进一步制备 X 射线源阵列结构阳极的需要,由于大部分电子轰击靶面的入射方向与靶面不是 完全垂直的,使用金刚石 U 形槽只能使其中的部分电子轰击到微结构槽内,而倒梯形槽则可以使大部分不 是垂直入射的电子轰击到微结构槽内。因此选择 10×物镜来加工金刚石微结构阵列,得到的倒梯形槽可以 使更多不同方向入射的电子轰击到金刚石微结构槽内。

3.2 金刚石微结构槽宽与加工参量的关系

图 4 是从实验结果中测量得到的金刚石微结构槽宽(即槽口宽度)与激光脉冲能量的关系曲线图,图中 用不同的曲线表示不同重复扫描次数的结果。实验中使用了 10×放大倍数的聚焦物镜,设置了 50,100, 200 μ m/s三种扫描速度。从图 4 中可以看到,金刚石微结构槽宽随激光脉冲能量的提高而变大,但槽宽随 激光脉冲能量的变化不是简单的线性关系。以图 4(b)中扫描速度为 100 μ m/s 的结果为例,激光脉冲能量 从 20 μ J 增加到 30 μ J,槽宽的变化在 5 μ m 左右;激光脉冲能量从 30 μ J 增加到 40 μ J,槽宽的变化在 3 μ m 左右;激光脉冲能量从 40 μ J 增加到 50 μ J,槽宽的变化在 2 μ m 左右。由此可知,槽宽与激光脉冲能量的关 系不是线性的,而是随着激光脉冲能量的提高,槽宽的增加速度越来越慢。相反,金刚石微结构槽宽随扫描 速度的增大而减小,扫描速度从 50 μ m/s 增加到 100 μ m/s,槽宽减少量约为 5 μ m,扫描速度从 100 μ m/s 增 加到 200 μ m/s,槽宽减少量为 2 μ m。另外还可以看到,激光重复扫描次数从 3 次增加到 5 次,槽宽的增量 非常小,基本保持在 1 μ m 以内的变化,可见激光重复扫描次数对金刚石微结构槽宽的影响不大,可以忽略 不计。因此,在选定聚焦物镜的情况下,金刚石微结构槽宽主要由激光脉冲能量和扫描速度决定,要得到槽 宽尺寸合适的金刚石微结构阵列,就要依据上述实验结果选取对应的激光脉冲能量和扫描速度进行加工。





3.3 金刚石微结构槽深与加工参量的关系

图 5 是从实验结果中测量得到金刚石微结构槽深与激光脉冲能量的变化曲线图,图中用不同的曲线表示不同重复扫描次数的结果。实验中仍然使用 10×放大倍数的聚焦物镜,并设置了 50,100,200 µm/s 三种 扫描速度。从图 5 中可以看到,金刚石微结构槽深与激光脉冲能量、扫描速度和重复扫描次数都有关,随着 激光脉冲能量增大、扫描速度减小和重复扫描次数增加,槽深都有显著增加。以图 5(b)中扫描速度为 100 µm/s的结果进行分析,激光脉冲能量从 20 µJ 增加到 50 µJ,当重复扫描次数为 2 次时,槽深从 24 µm 增 加到 50 µm 左右;当重复扫描次数为 3 次时,槽深从 37 µm 增加到约 70 µm;当重复扫描次数为 4 次时,槽深 从 50 µm 增加到约100 µm。实验中使用的金刚石薄层最大厚度为 50 µm,当加工槽深超过 50 µm 时图中槽深

尺寸包括了基底的槽深尺寸。在保证可以按制作要求实现金刚石微结构槽宽和槽深的情况下,要实现高效加工,应当尽量增大扫描速度,减少重复扫描次数,选择适当的激光脉冲能量来完成金刚石微结构阵列的加工。



图 5 不同扫描速度下金刚石槽深与激光脉冲能量的关系曲线图.(a) 50 μm/s; (b) 100 μm/s; (c) 200 μm/s Fig. 5 Variation of groove of depth of polycrystalline diamond micro-structure with pulse energy at different scanning speeds. (a) 50 μm/s; (b) 100 μm/s; (c) 200 μm/s

3.4 金刚石微结构阵列的制备

依据上述实验分析结果,选择使用 10×的聚焦物镜来加工金刚石微结构阵列,得到的倒梯形微槽可以 使更多不同方向入射的电子轰击到槽内。选择使用激光脉冲能量为 30 μJ,扫描速度为 100 μm/s,重复扫描 次数为 3 次,以获得槽口宽度为 20 μm,槽深为45 μm金刚石微结构。在圆形金刚石样片的中心位置制作微 结构阵列,制作过程中设定激光扫描速度为 100 μm/s,最后得到面积为 3 mm×3 mm 的金刚石微结构阵列 如图 6 所示。





图 6 金刚石微结构阵列的扫描电镜图。(a)面积为 3 mm×3mm 的微结构阵列;(b)微结构阵列的局部形貌图 Fig. 6 SEM images of polycrystalline diamond micro-structure array. (a) 3 mm×3 mm micro-structure array; (b) local morphology of the micro-structure array

把金刚石微结构阵列样片放进真空室中,利用高压加速电子枪出射的电子形成高能电子束,使高能电子 束轰击在金刚石微结构上,对金刚石微结构样片可承受电子束轰击的最大功率密度进行测试。设置高压为 8 kV,调整样片表面电子束斑大小为 2 mm×2 mm,逐步提高电子束流大小,观察表面金刚石微结构的变 化,得到金刚石微结构阵列可承受电子束轰击的最大功率密度为 12 W/mm²。

4 结 论

用飞秒脉冲激光加工金刚石微结构阵列,采用脉宽为100 fs、重复频率为1 kHz、中心波长为800 nm的 飞秒脉冲激光进行实验,通过实验分析了激光聚焦物镜、激光脉冲能量、重复扫描次数等参量对金刚石微结 构槽形、槽宽和槽深的影响。金刚石微结构槽形与激光聚焦物镜的放大倍数相关,使用10×物镜时得到微 结构侧面槽形为倒梯形,而使用 20×物镜时得到微结构侧面槽形接近 U 形。在选定聚焦物镜和扫描速度的 情况下,金刚石微结构槽口宽度主要由激光脉冲能量决定,而随着激光脉冲能量增大和重复扫描次数增加, 槽深会有显著增加。根据实验结果,选择使用 10×物镜聚焦,采用 30 μJ 激光脉冲能量,100 μm/s 扫描速 度,重复扫描 3 次,制作了面积为 3 mm×3mm 的金刚石微结构阵列,得到微结构槽宽为 20 μm,槽深达 45 μm,测得其表面可承受电子束轰击的最大功率密度为 12 W/mm²。下一步将在此基础上制备由金属靶 和金刚石构成的 X 射线源阵列结构阳极,实现微结构阵列阳极 X 射线源用于 X 射线大视场光栅相衬成像。

参考文献

- [1] Henke B L, Gullikon E M, Davis J C, *et al*. X-ray interactions: photoabsorption scattering transmission and reflection at E = 50-30000 eV, Z = 1-92[J]. Atomix Data and Nuclear Data Tables, 1993, 54(2): 181-342.
- [2] Momose A. Demonstration of phase-contrast X-ray computed tomography using an X-ray interferometer [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 1995, 352(3): 622-628.
- [3] Bonse U, Hart M. An X-ray interferometer[J]. Applied Physics Letters, 1965, 6(8): 155-156.
- [4] Davis T J, Gao D, Gureyev T E, et al. Phase-contrast imaging of weakly absorbing materials using hard X-rays[J]. Nature, 1995, 373(6515): 595-598.
- [5] Pfeiffer F, Weitkamp T, Bunk O, *et al*. Phase retrieval and differential phase-contrast imaging with low-brilliance X-ray sources[J]. Nature Physics, 2006, 2(4): 258-261.
- [6] Rutishauser S, Bednarzik M, Zanette I, et al. Fabrication of two dimensional hard X-ray diffraction gratings [J]. Microelectronic Engineering, 2013, 101: 12-16.
- [7] Lei Y H, Du Y, Li J, et al. Fabrication of X-ray absorption gratings via micro-casting for grating-based phase contrast imaging [J]. Journal of Micromechanics and Microengineering, 2014, 24(1): 015007.
- [8] Huang J, Lei Y, Du Y, et al. Quantitative analysis of fringe visibility in grating-based X-ray phase-contrast imaging
 [J]. Journal of the Optical Society of America A, 2016, 33(1): 69-73.
- [9] Liu X, Guo J C, Niu H B. A new method of detecting interferogram in differential phase-contrast imaging system based on special structured X-ray scintillator screen[J]. Chinese Physics B, 2010, 19(7): 070701.
- [10] Du Y, Lei Y H, Liu X, et al. Non-absorption grating approach for X-ray phase contrast imaging[J]. Optics Express, 2011, 19(23): 22669-22674.
- [11] Du Y, Huang J, Lin D, et al. Analysis of field of view limited by a multi-line X-ray source and its improvement for grating interferometry[J]. Analytical and Bioanalytical Chemistry, 2012, 404(3): 793-797.
- [12] Takayoshi S, Morimoto N, Fujino S, et al. Hard X-ray phase contrast imaging using a tabletop Talbot-Lau interferometer with multiline embedded X-ray targets[J]. Optics Letters, 2013, 38(2): 157-159.
- [13] Morimo N, Fujino S, Ohshima K, et al. X-ray phase contrast imaging by compact Talbot-Lau interferometer with a single transmission grating[J]. Optics Letters, 2014, 39(15): 4297-4300.
- [14] Chichkov B N, Momma C, Nolte S, et al. Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids [J]. Applied Physics A, 1996, 63(2): 109-115.
- [15] Yang Jianjun. Femtosecond laser "cold" micro-machining and its advanced applications [J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2004, 41(3): 42-52.

杨建军.飞秒激光超精细"冷"加工技术及其应用[J].激光与光电子学进展,2004,41(3):42-52.

- [16] Zhu Jiangfeng, Wei Zhiyi. Femtosecond laser micro-nano fabrication[J]. Physics, 2006, 35(8): 679-683.
 朱江峰,魏志义.飞秒激光精密微纳加工的研究进展[J].物理, 2006, 35(8): 679-683.
- [17] Yang Xichen, Wang Gang, Zhao Youbo, et al. Femtosecond laser processing of arrayed micro holes of metal filtration membrane[J]. Chinese J Lasers, 2007, 34(8): 1155-1158.

杨洗陈, 汪 刚, 赵友博, 等. 飞秒激光制备阵列孔金属微滤膜[J]. 中国激光, 2007, 34(8): 1155-1158.

[18] Wang Ying, Li Yuhua, Wang Xinlin, et al. Study on arts and crafts of stainless steel micro-cantilever prepared with femtosecond laser[J]. Laser Technology, 2010, 34(3): 347-350.

王 英,李玉华,王新林,等.飞秒激光加工不锈钢微型悬臂梁的工艺研究[J].激光技术,2010,34(3):347-350.

- [19] Xing Songling, Liu Lei, Zou Guisheng, et al. Effects of femtosecond laser parameters on hole drilling of silica glass
 [J]. Chinese J Lasers, 2015, 42(4): 0403001.
- 邢松龄,刘 磊,邹贵生,等.飞秒激光参数对石英玻璃微孔加工的影响[J].中国激光,2015,42(4):0403001.
- [20] Reitze D H, Ahn H, Downer M C, et al. Optical properties of liquid carbon measured by femtosecond spectroscopy

[J]. Physical Review B, 1992, 45(6): 2677-2693.

- [21] Shirk M D, Molian P A, Malshe A P. Ultrashort pulsed laser ablation of diamond[J]. Journal of Laser Applications, 1998, 10(2): 64-70.
- [22] Jeschke H O, Garcia M E. Theoretical description of the ultrafast ablation of diamond and graphite: dependence of thresholds on pulse duration[J]. Applied Surface Science, 2002, 197-198:107-113.
- [23] Dong Zhiwei, Zhang Weibin, Zheng Liwei, et al. Processing of diamond applying femtosecond and nanosecond laser pulses[J]. Infrared and Laser Engineering, 2015, 44(3): 893-896.
 董志伟,张伟斌,郑立威,等.利用飞秒激光和纳秒激光脉冲加工金刚石[J].红外与激光工程, 2015, 44(3): 893-896.
- [24] Song Fanghong, Chen Ming, Zhang Zhiming, *et al*. Studies on fabrication and test of high quality CVD diamond-coated thin film tools[J]. Chinese Journal of Mechanincal Engineering, 2003, 39(7): 101-106.
 孙方宏,陈 明,张志明,等. 高性能 CVD 金刚石薄膜涂层刀具的制备和试验研究[J]. 机械工程学报, 2003, 39(7): 101-106.