

基于动态多焦点双光子聚合的微螺旋结构制备

谢辰*, 孙世贤, 贾而稽, 胡明列

天津大学精密仪器与光电子工程学院超快激光研究室 & 光电信息技术教育部重点实验室, 天津 300072

摘要 微螺旋结构在微机器人、手性超材料中有重要应用,不同的应用对螺旋结构有着不一样的要求。基于飞秒激光双光子聚合技术可以直写任意三维微结构,然而,单焦点逐点直写的效率较低。基于结构光场的单步曝光方案能够实现高效制备,但目前受限于复杂而专业的光场调控技术,仅能制备较有限的微螺旋结构。针对微尺度多螺旋结构,本文提出了一种基于动态多焦点的制备方案。该方案将光斑的螺旋运动轨迹分解为由动态全息图控制的圆周运动和由 z 轴位移台控制的线性扫描,最终成功制备了直径、螺线数、螺距与手性等特征灵活可控的多重微螺旋结构。所提微螺旋结构制备方案兼具经济性及高效灵活的优势,对于微机器人、手性超材料和生物工程等领域的相关研究具有较大的参考价值。

关键词 激光技术; 微螺旋; 双光子聚合; 多焦点; 空间光调制器

中图分类号 O436 文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL230772

1 引言

飞秒激光双光子聚合技术可以实现特征尺寸在亚微米量级的真三维加工^[1-2],非常适合制备具有复杂形貌的三维微结构。利用这项技术制备的微螺旋机器人可以在磁场驱动下旋转游动,从而对目标物体进行装载、运输和释放操作^[3-5];利用这项技术制备的由微螺旋组成的手性超材料具有高消光比、大带宽的优良特性^[6-8]。上述应用对螺旋结构的尺寸、形貌有较多要求,从而使得螺旋结构的高效、灵活制备面临一定挑战。

基于微纳尺度体元^[9-11]堆叠组成微结构是飞秒激光双光子聚合的基本加工方式,然而由于单焦点直写复杂三维微结构比较耗时,而且需要昂贵、精密的运动控制系统配合,即使优化扫描策略也难以大幅提高加工效率,这些因素限制了这项技术的实用性。近年来,光场调控技术的快速发展丰富了激光加工的手段:一方面,利用光场调制器产生多焦点^[12-13]、马修光束^[14]、贝塞尔光束^[15]等结构光场用于加工,丰富了体元形态;另一方面,动态加载全息图可以在不依赖精密运动控制系统的条件下实现焦点扫描^[16-21]。研究人员通过对多种螺旋形光场进行整形来制备微螺旋结构^[22-26],如:2017年,刘力谱等^[22]采用叠加的拉盖尔-高斯光束制备了双螺旋微结构;2021年,倪劲成等^[23]采用叠加的涡旋光束制备了双螺旋微结构;2022年,Cheng等^[25]采用定制化调制叠加的高阶贝塞尔光束制备了螺距可调的单螺旋微结构。这类方法可以一次成型微螺旋结构,

而且制备通量高,但所设计的螺旋光场的调控性有限,可制备的微螺旋结构形貌单一。此外,胡衍雷等^[27]于2020年巧用毛细力将微柱阵列快速组装为多瓣螺旋微结构,但该方案只能实现对简单分立结构的自组装。上述方案难以灵活控制微螺旋结构的直径、螺线数、螺距、手性和高度等参数。

笔者提出了一种基于空间光调制器(SLM)动态加载多焦点全息图制备微螺旋结构的方案。其中,多焦点加工光斑在 x - y 平面内的圆周运动通过动态加载全息图控制,在 z 轴方向的线性运动则由位移台控制。基于此方案的制备技术能够灵活控制微螺旋单体结构的直径、螺距、螺线数、手性和高度等参数,并且能够通过 x - y 平面内的简单平移运动快速制备微螺旋阵列,大幅降低了对高精度运动控制系统的依赖。此外,笔者分析了制备过程中螺旋结构倒塌变形的原因,并提出了提高结构稳定性的措施。最后,通过优化实验参数成功制备了结构丰富的高质量微螺旋结构,总的制备时间与微螺旋结构的螺线数、直径无关,仅正比于其高度和数量。

2 基本原理

2.1 实验装置

图1为飞秒激光双光子聚合加工系统示意图(未包含光源与倍频部分)。光源为自行搭建的掺镱光纤飞秒激光系统^[28],其以1 MHz的重复频率输出中心波长位于1046 nm、脉宽为150 fs的激光脉冲。该激光经

收稿日期: 2023-03-08; 修回日期: 2023-04-12; 录用日期: 2023-05-22; 网络首发日期: 2023-05-30

基金项目: 国家自然科学基金(62275191, 61605142, 61827821)、天津市杰出青年基金(17JCJQC43500)

通信作者: *xie_chen@tju.edu.cn

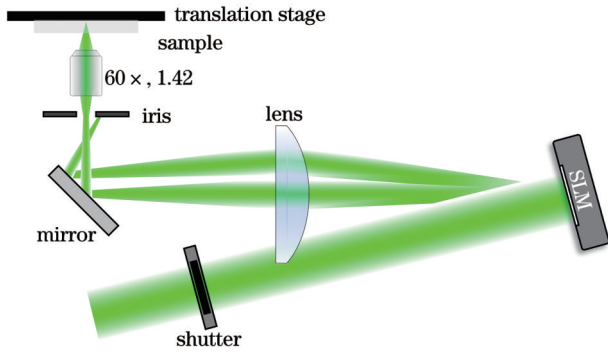


图 1 飞秒激光双光子聚合加工系统示意图

Fig. 1 Schematic of femtosecond laser two-photon polymerization fabrication system

过 BBO 晶体转变为 中心波长位于 523 nm 的二次谐波,再经准直扩束后照射到反射式 SLM 上(光斑的半峰全宽为 8 mm)。以长焦透镜(焦距为 1 m)和显微物镜(60 倍,数值孔径为 1.42)构成 4f 系统,用于缩束和聚焦,并在长焦透镜的后焦面位置设置光阑,以滤除不含调制信息的光场。由 x - y 二维电控位移台和 z 轴压电陶瓷位移台组成三维位移台,由中性密度滤光片控制激光能量,由计算机控制 SLM 的相位加载、位移台的运动以及快门曝光。在双光子聚合加工中使用的是

负性光刻胶 SU-8。

2.2 基于 G-S 算法产生多焦点

结合传统 G-S 算法对图 1 所示的加工系统光路进行改进,如图 2(a)所示。通过引入角谱传递函数进行迭代计算,对应的正/逆向角谱传递函数分别为

$$H(f_x, f_y, z) = \exp\left(i2\pi z \sqrt{\frac{1}{\lambda^2} - f_x^2 - f_y^2}\right), \quad (1)$$

$$H^{-1}(f_x, f_y, z) = \exp^{-1}\left(i2\pi z \sqrt{\frac{1}{\lambda^2} - f_x^2 - f_y^2}\right), \quad (2)$$

式中: f_x, f_y 为空间频率变量; z 为轴向传播距离; λ 为波长。在图 2(a)所示的算法流程图中, $E_{i,0}$ 表示入射光场, $A_{i,0}$ 表示入射光场的振幅(呈高斯分布), $\varphi_{i,0}$ 表示初始相位(为随机相位), $E_{i,n}, A_{i,n}, \varphi_{i,n}$ 分别表示入射面第 n 次迭代的光场及其振幅和相位, $A_{z,0}$ 为 z 位置处的目标振幅分布, $E_{z,n}, A_{z,n}, \varphi_{z,n}$ 分别表示 z 位置处第 n 次迭代的光场及其振幅和相位。改进的 G-S 算法可以在 SLM 后任意位置产生二维目标光场。图 2(b)、(c)以双焦点型目标光场为例,给出了 $z=2$ mm 时,光场经 4f 系统缩束后的仿真与实验结果。可见,二者高度一致,初步验证了方案的可行性。

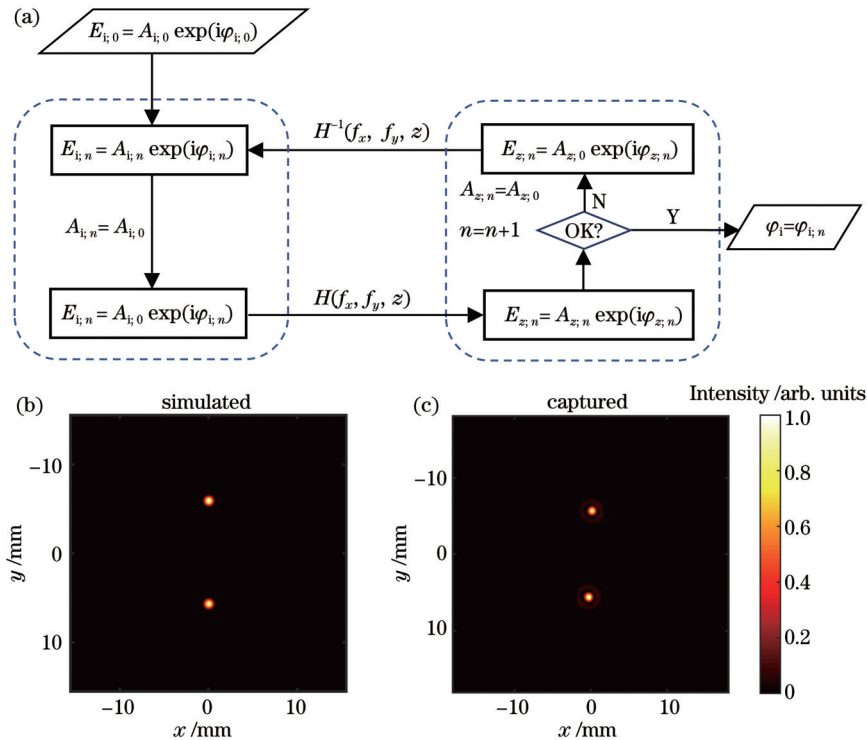


图 2 双焦点光斑的生成。(a)改进 G-S 算法的流程图; (b)双焦点光斑的仿真结果; (c)双焦点光斑的实验结果

Fig. 2 Generation of the double-focus beam. (a) Flow chart of improved G-S algorithm; (b) simulated double-focus beam; (c) experimental double-focus beam

2.3 基于动态多焦点的螺旋结构制备方案

传统飞秒激光双光子聚合直写通常须先对 3D 结构模型进行切片,获取所需扫描位置的坐标集,然后据此逐点扫描、曝光完成结构的制备。这种方案在制备

以多组螺线数为特征的多重螺旋结构时,位移台须沿大量重复的 3D 螺旋轨迹进行匀速运动,因此对位移台运动控制的精度、稳定性等要求严苛。在制备由多重螺旋单元构成的大面积阵列时,上述方案的时间成本

大幅升高。为解决这类问题,笔者提出了动态多焦点直写方案。该方案将螺旋轨迹运动分解为 x - y 平面内的圆周运动和 z 轴的线性运动,圆周运动由 SLM 动态加载多焦点全息图实现, z 轴的线性运动由压电位移台实现。SLM 动态加载不同全息图的时间完全相同,位移台只要沿 z 轴作简单的直线协同运动即可完成螺旋直写,既免去了 3D 螺旋扫描对运动系统的严苛要求,又节省了重复轨迹的曝光时间。

采用所提方案设计的螺旋结构如图 3(a) 所示,左图为左旋双螺旋的三维模型,其中绿色椭圆体代表正在曝光的双焦点,银灰色部分代表已完成直写的结构,椭圆线圈表示预设直写位置,主要的参数为螺旋直径

d 和螺距 h 。图 3(a) 右上插图为该模型的俯视图,旋转角 $\Delta\theta$ 为相邻体元相对圆心的夹角,其值由体元间距 d_{voxel} 和螺旋直径 d 决定。图 3(a) 右下插图是左视图的一部分,其中标注出了相邻体元的水平间距 d_{voxel} 以及轴向间距 d_z , d_z 的值决定了压电位移台的移动步长。上述几个制备参数间的关系为

$$\Delta\theta = \frac{2d_{\text{voxel}}}{d}, \quad (3)$$

$$n_{\pi} = \frac{\pi}{\Delta\theta} = \frac{\pi d}{2d_{\text{voxel}}}, \quad (4)$$

$$d_z = \frac{h}{n_{\pi}} = \frac{2hd_{\text{voxel}}}{\pi d}. \quad (5)$$

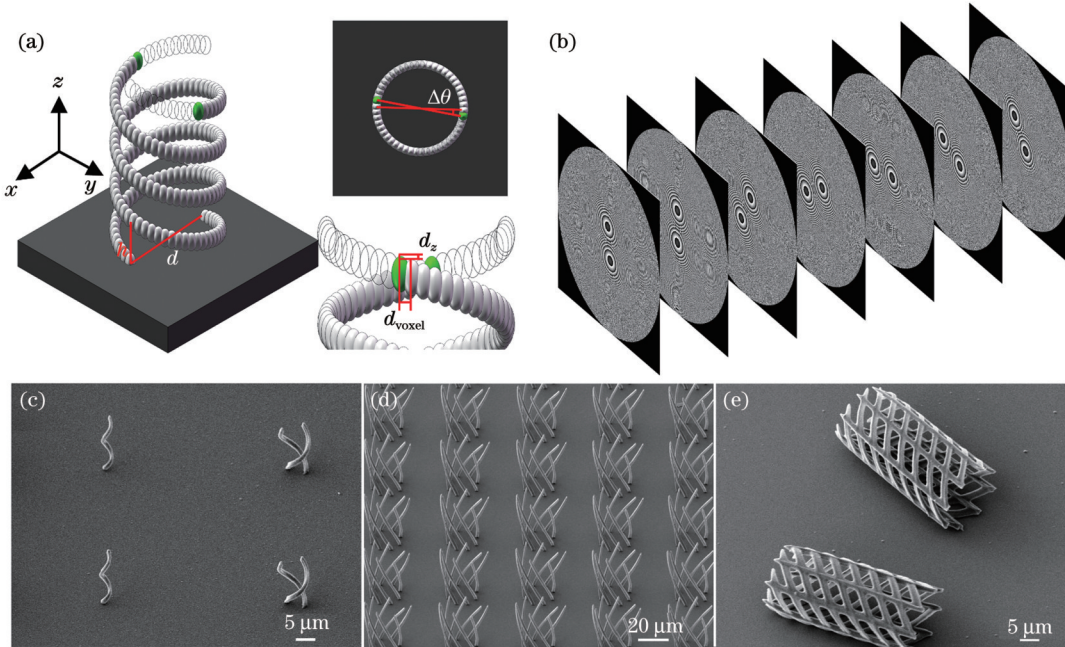


图 3 螺旋结构设计和电镜结果。(a) 双螺旋结构模型; (b) 动态加载双焦点全息图; (c) 右旋的单螺旋和双螺旋; (d) 左旋的八重螺旋; (e) 带支撑柱的右旋八重螺旋

Fig. 3 Design and SEM results of micro-helices. (a) Model of the double-helix; (b) double-focus holograms dynamically loaded on SLM; (c) right-hand single-helices and double-helices; (d) left-hand octuple-helices; (e) right-hand octuple-helices with ribs

采用式(3)计算旋转角 $\Delta\theta$ 的值,用于生成旋转相位;采用式(4)计算双焦点旋转 π 弧度时得到的旋转全息图的数量;采用式(5)计算螺距和体元轴向间距之间的关系。确定合适的曝光功率后,在 SLM 上依次动态加载如图 3(b) 所示的全息图序列,配合 z 轴位移台步进移动,对每张全息图曝光合适的剂量,即可制备如图 3(c) 所示的双螺旋微结构。此外,灵活运用上述设计方案,还能够制备如图 3(c)~(e) 所示的更为丰富的单螺旋和八重微螺旋结构,相关制备细节将在下文详述。特别地,对比单焦点 3D 扫描方式,多焦点全息图方案在制备 N 重螺旋结构方面具有更高的效率。以 60 ms 体元曝光时间和 0.25 μm 体元轴向间距的加工参数为例,采用 120 张全息图加工高度为 30 μm 的 N 重微螺旋单元时,每个单元的总耗时约为 12 s,并且不随 N 变化。若采用以上相同的体元堆叠及曝光参数,

即使不考虑电控位移台的移动耗时,单焦点 3D 扫描方案加工每个单螺旋结构的累计耗时也超过了 7.2 s,至多仅在加工单螺旋结构时具备微弱优势。因此,采用单焦点 3D 扫描方案加工 N 重螺旋结构的耗时将随 N 的增大而快速增加,多焦点全息图方案的加工效率也由此凸显,进一步优化可将其加工效率提升 N 倍。

3 实验结果及分析

3.1 多焦点体元

多焦点体元是组成多重螺旋结构的基本单元,其形貌和尺寸由光斑形貌以及曝光剂量决定。这里使用上升扫描法^[9]对均匀分布在直径为 9.6 μm 的圆周上的四焦点进行了体元的标定。图 4(a) 给出了 5 ms 曝光时间下体元尺寸随曝光功率的变化;图 4(b) 给出了 0.02 mW 和 0.04 mW 曝光功率下,不同曝光时间所对

应的体元尺寸。对于四焦点体元来说,5 ms 曝光时间下的功率阈值为 0.04 mW,随着曝光功率增大和曝光时间延长,体元直径 w 和轴向尺寸 l 都在增大,但直径增长得相对缓慢,体元长径比大于 1。图 4(c)、(d) 展示了在 0.02 mW 功率下曝光 65 ms 后,站立和倒塌的四焦点体元的电镜图。可以看到此时的体元

呈椭圆形,4 个体元尺寸基本一致。体元在两个正交方向上的间距分别为 $9.31 \mu\text{m}$ 和 $9.34 \mu\text{m}$,两距离偏差 0.32%,与设计值 $9.6 \mu\text{m}$ 的偏差分别为 3.02% 和 2.71%。4 个体元的尺寸均匀性良好,焦点距离与设计值基本相符,因此可以根据体元尺寸确定相应的制备参数。

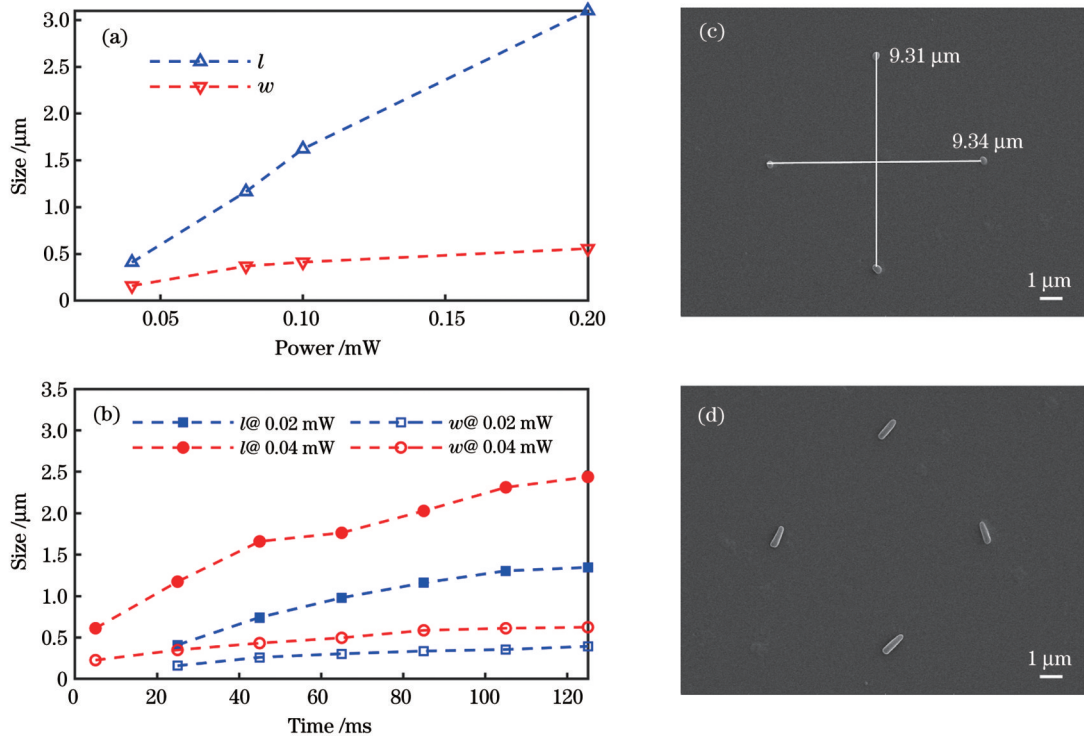


图 4 不同曝光条件下的体元。(a) 曝光时间为 5 ms 时,不同曝光功率下的体元尺寸;(b) 曝光功率为 0.02 mW 和 0.04 mW 时,不同曝光时间下的体元尺寸;(c) 站立的四焦点体元;(d) 倒塌的四焦点体元

Fig. 4 Voxels under various exposure conditions. (a) Voxel sizes under various exposure powers for 5 ms exposure time; (b) voxel sizes under 0.02 mW and 0.04 mW exposure power for various exposure time; (c) standing quadruple-focus voxel; (d) toppled quadruple-focus voxel

3.2 结构与衬底的黏附性

依据上述方案确定合适的参数后,即可经过曝光→显影流程制备微螺旋结构。然而,实验中多次出现如图 5(a)所示的结构完全从衬底上脱离并漂浮在显影液中的情况。微螺旋结构具有大的长径比,且与

衬底只保持较小面积的连接,因而极易受到显影过程中外力的影响而倒塌。如图 5(a)所示,结构从衬底上脱离,说明结构与衬底之间的黏附力小,可以通过选择合适的衬底、使用增附剂^[29]、增大接触面积等方式增强黏附力。笔者采用了添加黏附层^[30-31]的方式,即:先在

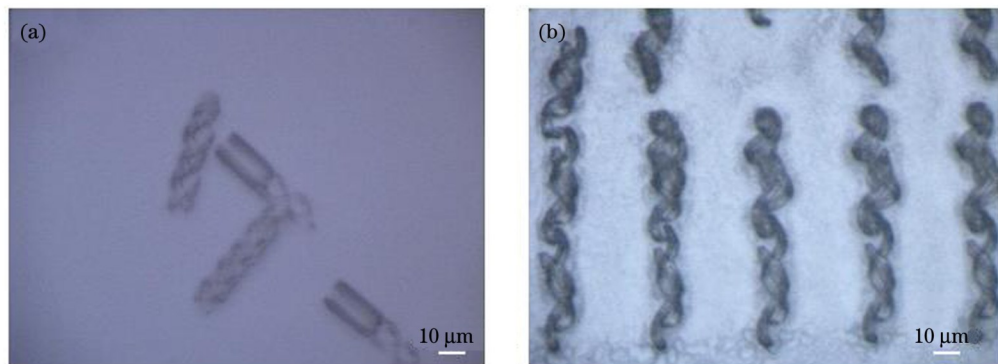


图 5 倒塌结构的光学显微镜照片。(a) 脱离衬底;(b) 与衬底相连

Fig. 5 Optical microscopic images of collapsed microstructures. (a) Detached from the substrate; (b) adhered to the substrate

衬底上用 SU-8 2002 甩一层薄胶,利用紫外灯对整个区域曝光,形成固化的聚合物黏附层,随后在黏附层上进行 SU-8 2035 的后续操作。表 1 给出了两种光刻胶的工艺参数。

图 5(b) 是添加黏附层后的结果,可以看到结构

虽能保持与衬底的连接,但在显影液干燥后向一侧倒塌,这种倒塌源于显影液挥发时在其与微结构的三相界面处所产生的毛细力的影响。因此,显影后使用 CO_2 临界干燥仪进行干燥处理,即可排除毛细力的影响^[32-33]。

表 1 SU-8 2002 和 SU-8 2035 的工艺参数

Table 1 Processing parameters of SU-8 2002 and SU-8 2035

Photoresist	Spin speed / ($\text{r} \cdot \text{min}^{-1}$)	Soft bake time@95 °C /min	Exposure method	Post bake time@95 °C /min
SU-8 2002	1000	3	UV lamp	3
SU-8 2035	2000	20	Femtosecond laser	5

3.3 螺旋结构的制备

在采取措施提高结构的稳定性后,笔者制备了高度为 $12 \mu\text{m}$ 的具有不同特征的微螺旋结构,如图 6 所示。每种螺旋结构均由 38 张全息图循环加载进行曝光,对应的螺旋手性由全息图加载顺序控制。使用 5 种多焦点光场分别直写了一重、二重、四重、六重、八重微螺旋结构,单焦点曝光功率的平均值为 0.01 mW 。螺旋结构的直径分别为 $2.4, 4.8, 9.6, 14.4, 19.2 \mu\text{m}$, 体元水平间距 d_{voxel} 固定为 $0.2 \mu\text{m}$, 轴向间距 d_z 分别为 $0.5, 0.25, 0.125 \mu\text{m}$ 。图 6(a) 展示了 d_z 为 $0.25 \mu\text{m}$ 的微螺旋结构,体元的曝光时间从上至下依次为 20、

40、60、80、100 ms; 图 6(b) 所示体元的曝光时间为 20 ms; 图 6(c)~(e) 所示体元的曝光时间为 60 ms。

对比图 6(a) 中不同曝光时间下的螺旋结构可以发现,当体元曝光时间为 20 ms 时,结构基本不能维持。在相同的 20 ms 的曝光时间下,笔者尝试采用体元间距减半(即 d_z 为 $0.125 \mu\text{m}$)的方案进行加工,结果发现微螺旋结构仍难以自支撑,倒塌变形严重。通过实验发现,体元曝光时间的延长能够提高螺线聚合的机械强度和微螺旋结构的保形率:40 ms 的曝光时间下有个别结构倒塌,但超过 60 ms 的曝光时间能够保证微结构稳定地“站”在衬底上。

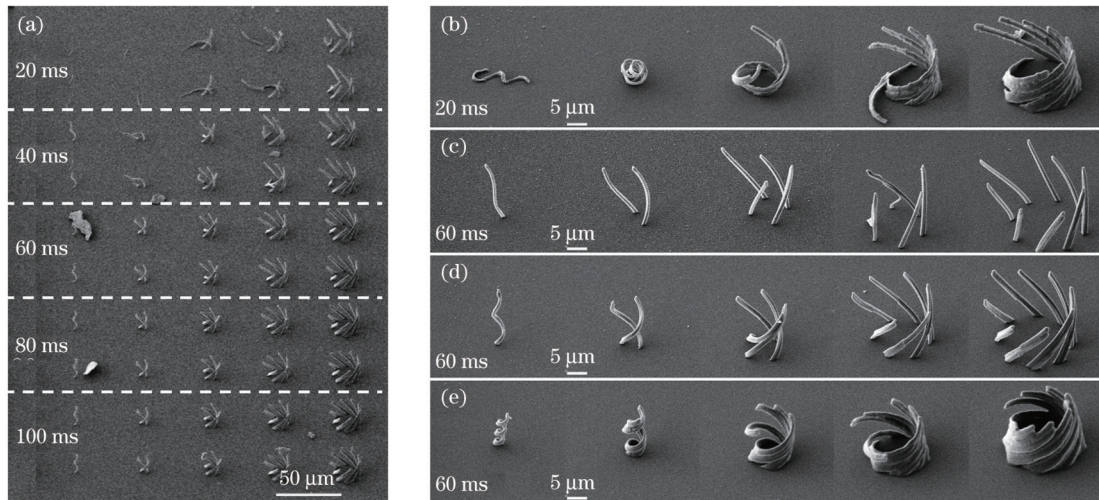


图 6 不同特征的微螺旋结构的电镜图。(a) $d_z=0.25 \mu\text{m}$, 体元曝光时间为 20~100 ms; (b) $d_z=0.125 \mu\text{m}$, 体元曝光时间为 20 ms; (c) $d_z=0.5 \mu\text{m}$, 体元曝光时间为 60 ms; (d) $d_z=0.25 \mu\text{m}$, 体元曝光时间为 60 ms; (e) $d_z=0.125 \mu\text{m}$, 体元曝光时间为 60 ms

Fig. 6 SEM images of micro-helices with different characteristics. (a) $d_z=0.25 \mu\text{m}$, exposure time of voxels is 20~100 ms; (b) $d_z=0.125 \mu\text{m}$, exposure time of voxels is 20 ms; (c) $d_z=0.5 \mu\text{m}$, exposure time of voxels is 60 ms; (d) $d_z=0.25 \mu\text{m}$, exposure time of voxels is 60 ms; (e) $d_z=0.125 \mu\text{m}$, exposure time of voxels is 60 ms

图 6(c)~(e) 展示了在 60 ms 的体元曝光时间下采用 3 组逐渐减小的体元间距所制备的微螺旋结构,其中各单焦点的平均曝光功率仍固定为 0.01 mW , 因此单独的曝光体元尺寸保持不变。然而,即使固定了曝光体元尺寸,从图中也可以明显看出螺线本身的宽度随着体元轴向间距的减小而变宽。其背后有两大主要原因:1) 椭球体元堆叠方案本身会因体元轴向间距减小而导致螺线几何结构参数增宽(见后文图 8 分

析); 2) 过小的体元间距也会引起过小的螺距,从而导致在制备过程中出现重叠的聚合区域,甚至还会出现如图 6(e) 所示的相邻螺线粘连的问题。此外,从图 6 中还可以观察到多重螺旋结构更容易发生变形,难以获得结构参数稳定的多重微螺旋结构。分析认为,由于所设计的多重螺旋结构的螺线重数正比于直径,更高重数微螺旋结构的单根螺线将承受自重引起的更大力矩,因此对螺线机械强度的要求更高。

为了解决图 6(e)所示的多重螺线之间的粘连缠绕问题,实现稳定制备更高的微螺旋结构,在结构中加入如图 7 所示的支撑柱结构来分担力矩,其中的支撑柱由静态多焦点沿 z 轴扫描曝光得到。实验用到的曝光参数同图 6(c)~(e)参数一致。立柱结构为螺线提供了稳定的支撑,从图 7 中可以看到螺线牢固地绕着立柱旋转上升,即便高度达到 $32\ \mu\text{m}$,微螺旋

结构也可以稳定地维持。对比图 7(c)和图 6(e)可以看到小螺距情况下螺线之间的粘连缠绕问题得到了解决。图 7(a)中微螺旋结构顶端发生收缩形变是由于顶端螺线和立柱没有连接,干燥过程导致了此处的收缩。图 7(a)~(c)中三组结构的螺距测量值分别为 18.2 、 9.3 、 $4.5\ \mu\text{m}$,与设计值 18.8 、 9.4 、 $4.7\ \mu\text{m}$ 基本一致。

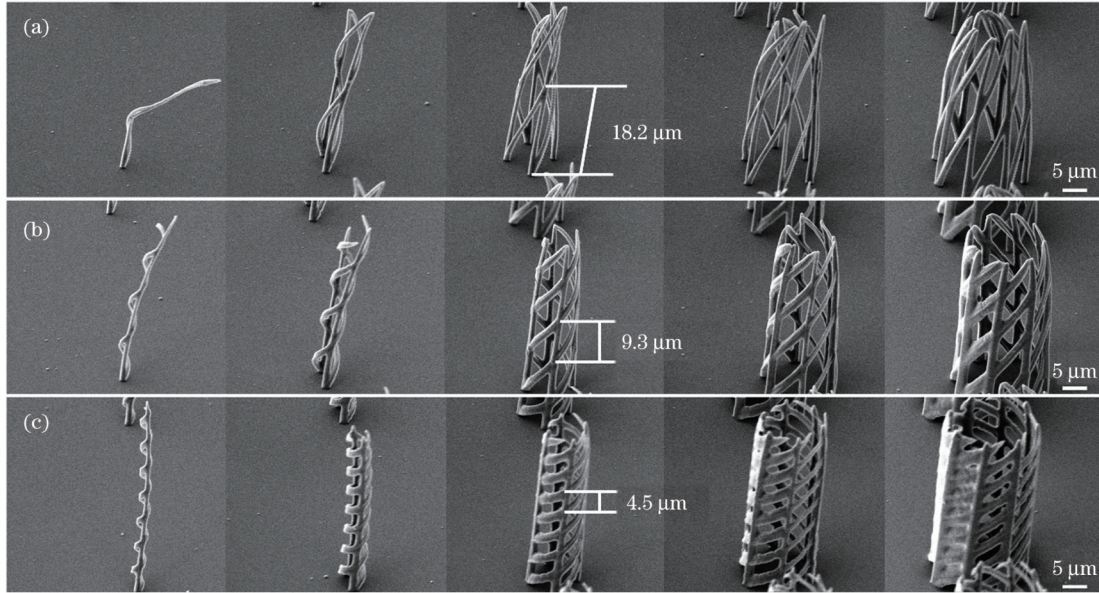


图 7 带支撑柱的微螺旋结构的电镜图。(a) $d_z=0.5\ \mu\text{m}$; (b) $d_z=0.25\ \mu\text{m}$; (c) $d_z=0.125\ \mu\text{m}$

Fig. 7 SEM images of micro-helices with supported ribs. (a) $d_z=0.5\ \mu\text{m}$; (b) $d_z=0.25\ \mu\text{m}$; (c) $d_z=0.125\ \mu\text{m}$

纵向对比图 7 中的三组螺旋还可以发现随着螺距减小螺线变粗的现象。以四重螺旋结构为例,图 7(a)~(c)中螺线宽的测量值分别为 0.92 、 1.57 、 $2.35\ \mu\text{m}$ 。图 8(a)给出了相邻椭球体元在不同轴向偏移下堆叠的示意图,可以看到由于体元呈椭球状(长径比大于 1),体元堆叠的轴向间距越小,螺线越宽。为方便计算,将 $0.04\ \text{mW}$ 和 $60\ \text{ms}$ 曝光剂量下的体元近似为矩形(宽 w 为 $0.5\ \mu\text{m}$,长 l 为 $1.76\ \mu\text{m}$),并令 b 为螺线宽度, α 为相邻体元堆叠构成的倾斜角,则根据公式

$$\tan \alpha = \frac{d_z}{d_{\text{voxel}}}, \quad (6)$$

$$b = \left(l + \frac{w}{\tan \alpha} \right) \cdot \cos \alpha, \quad (7)$$

可以计算得到图 7(a)~(c)中的螺线宽度分别为 0.73 、 1.35 、 $2.17\ \mu\text{m}$ 。图 8(b)给出了实验测量和模型计算的螺线宽度的对比,可以看到随着体元轴向间距增大,螺线宽度的实验测量值和计算值都以相同的趋势减小。这可以半定量地解释不同螺距下螺线宽度不同的现象。

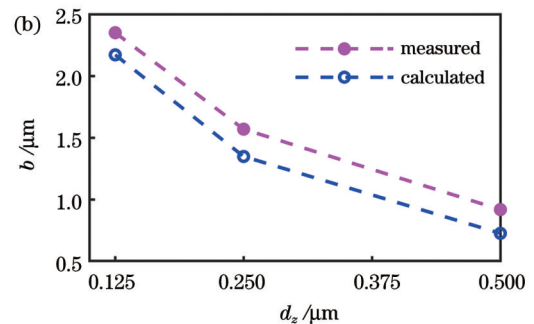
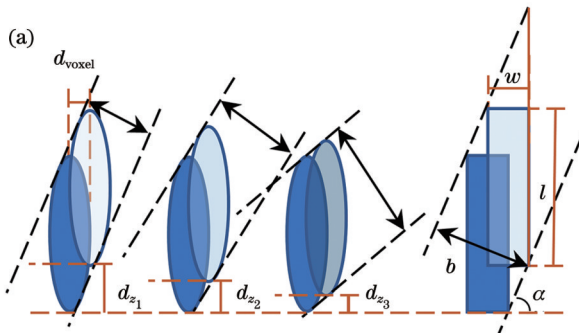


图 8 螺线宽度随体元轴向间距变化的分析。(a)体元堆叠示意图;(b)不同体元轴向间距下螺线宽度的测量值与计算值

Fig. 8 Analysis of the variations of the helical thread width with axial voxel spacing. (a) Schematic of piled-up voxels; (b) measured and calculated results of helical thread width under various axial voxel spacings

4 结 论

笔者基于 SLM 动态加载多焦点全息图,将光斑的螺旋运动分解为全息图控制的圆周运动和位移台控制的线性运动,成功制备了直径、螺线数、螺距和手性灵活可控的微螺旋结构。针对显影过程中微螺旋的倒塌问题,采取了增强黏附力和减小毛细力的措施,并在微螺旋结构中加入支撑柱,以增强结构的稳定性。相比单焦点逐点扫描的方式,该方案不需要昂贵精密的运动控制系统作复杂的螺旋轨迹扫描,而且多焦点并行直写的效率随着螺线数 N 的增加呈现 N 倍提升。相比螺旋线型结构光场单步曝光和毛细力辅助自组装方案,该方案灵活可控,可直写出任意形貌的多重微螺旋结构。

致谢 感谢天津大学胡小龙教授在微螺旋结构制备后处理方面给予的大力支持与协助。

参 考 文 献

- Maruo S, Nakamura O, Kawata S. Three-dimensional microfabrication with two-photon-absorbed photopolymerization[J]. *Optics Letters*, 1997, 22(2): 132-134.
- Kawata S, Sun H B, Tanaka T, et al. Finer features for functional microdevices[J]. *Nature*, 2001, 412(6848): 697-698.
- Tottori S, Zhang L, Qiu F M, et al. Magnetic helical micromachines: fabrication, controlled swimming, and cargo transport[J]. *Advanced Materials*, 2012, 24(6): 811-816.
- Huang T Y, Qiu F M, Tung H W, et al. Cooperative manipulation and transport of microobjects using multiple helical microcarriers[J]. *RSC Advances*, 2014, 4(51): 26771-26776.
- Xu H F, Medina-Sánchez M, Schmidt O G. Magnetic micromotors for multiple motile sperm cells capture, transport, and enzymatic release[J]. *Angewandte Chemie (International Ed. in English)*, 2020, 59(35): 15029-15037.
- Gansel J K, Thiel M, Rill M S, et al. Gold helix photonic metamaterial as broadband circular polarizer[J]. *Science*, 2009, 325(5947): 1513-1515.
- Kaschke J, Wegener M. Gold triple-helix mid-infrared metamaterial by STED-inspired laser lithography[J]. *Optics Letters*, 2015, 40(17): 3986-3989.
- Johannes K, Martin W. Optical and infrared helical metamaterials[J]. *Nanophotonics*, 2016, 5(4): 510-523.
- Sun H B, Tanaka T, Kawata S. Three-dimensional focal spots related to two-photon excitation[J]. *Applied Physics Letters*, 2002, 80(20): 3673-3675.
- Sun H B, Takada K, Kim M S, et al. Scaling laws of voxels in two-photon photopolymerization nanofabrication[J]. *Applied Physics Letters*, 2003, 83(6): 1104-1106.
- Manousidaki M, Papazoglou D G, Farsari M, et al. Abruptly autofocusing beams enable advanced multiscale photopolymerization[J]. *Optica*, 2016, 3(5): 525-530.
- Kelemen L, Ormos P, Vizsnyiczai G. Two-photon polymerization with optimized spatial light modulator[J]. *Journal of the European Optical Society: Rapid Publications*, 2011, 6: 11029.
- 王洪庆, 温积森, 杨臻垚, 等. 高速并行双光子激光直写光刻系统[J]. *中国激光*, 2022, 49(22): 2202009.
- Wang H Q, Wen J S, Yang Z Y, et al. High-speed parallel two-photon laser direct writing lithography system[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2022, 49(22): 2202009.
- Wang C W, Yang L A, Hu Y L, et al. Femtosecond mathieu beams for rapid controllable fabrication of complex microcages and application in trapping microobjects[J]. *ACS Nano*, 2019, 13(4): 4667-4676.
- Li R, Jin D D, Pan D, et al. Stimuli-responsive actuator fabricated by dynamic asymmetric femtosecond Bessel beam for *in situ* particle and cell manipulation[J]. *ACS Nano*, 2020, 14(5): 5233-5242.
- Obata K, Koch J, Hinze U, et al. Multi-focus two-photon polymerization technique based on individually controlled phase modulation[J]. *Optics Express*, 2010, 18(16): 17193-17200.
- Vizsnyiczai G, Kelemen L, Ormos P. Holographic multi-focus 3D two-photon polymerization with real-time calculated holograms[J]. *Optics Express*, 2014, 22(20): 24217-24223.
- Geng Q, Wang D E, Chen P F, et al. Ultrafast multi-focus 3-D nano-fabrication based on two-photon polymerization[J]. *Nature Communications*, 2019, 10: 2179.
- Manousidaki M, Papazoglou D G, Farsari M, et al. 3D holographic light shaping for advanced multiphoton polymerization[J]. *Optics Letters*, 2019, 45(1): 85-88.
- Ren M D, Lu W P, Shao Q, et al. Aberration-free large-area stitch-free 3D nano-printing based on binary holography[J]. *Optics Express*, 2021, 29(26): 44250-44263.
- Zhang L R, Liu B R, Wang C W, et al. Functional shape-morphing microarchitectures fabricated by dynamic holographically shifted femtosecond multifoci[J]. *Nano Letters*, 2022, 22(13): 5277-5286.
- 刘力谱, 张世杰, 杨宏, 等. 双螺旋微结构的双光子聚合制备[J]. *中国激光*, 2017, 44(1): 0102006.
- Liu L P, Zhang S J, Yang H, et al. Fabrication of double-helix microstructures by two-photon polymerization[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2017, 44(1): 0102006.
- Ni J C, Hu Y L, Liu S L, et al. Controllable double-helical microstructures by photonic orbital angular momentum for chiroptical response[J]. *Optics Letters*, 2021, 46(6): 1401-1404.
- 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]. *Advanced Functional Materials*, 2022, 32(4): 2106917.
- Cheng H, Golvari P, Xia C, et al. High-throughput microfabrication of axially tunable helices[J]. *Photonics Research*, 2022, 10(2): 303-315.
- Wen J S, Sun Q Y, Luo M D, et al. Fabrication of chiral 3D microstructure using tightly focused multiramp helico-conical optical beams[J]. *Micromachines*, 2022, 13(10): 1771.
- Hu Y L, Yuan H W, Liu S L, et al. Chiral assemblies of laser-printed micropillars directed by asymmetrical capillary force[J]. *Advanced Materials*, 2020, 32(31): 2002356.
- Song H Y, Liu B W, Li Y, et al. Practical 24-fs, 1- μ J, 1-MHz Yb-fiber laser amplification system[J]. *Optics Express*, 2017, 25(7): 7559-7566.
- Izard A G, Garcia E P, Dixon M, et al. Enhanced adhesion in two-photon polymerization direct laser writing[J]. *AIP Advances*, 2020, 10(4): 045217.
- Kim K, Park D S, Lu H M, et al. A tapered hollow metallic microneedle array using backside exposure of SU-8[J]. *Journal of Micromechanics and Microengineering*, 2004, 14(4): 597-603.
- Liu J S, Song D F, Zong G G, et al. Fabrication of SU-8 moulds on glass substrates by using a common thin negative photoresist as an adhesive layer[J]. *Journal of Micromechanics and Microengineering*, 2014, 24(3): 035009.
- Namatsu H, Yamazaki K, Kurihara K. Supercritical drying for nanostructure fabrication without pattern collapse[J]. *Microelectronic Engineering*, 1999, 46(1/2/3/4): 129-132.
- Maruo S, Hasegawa T, Yoshimura N. Single-anchor support and supercritical CO₂ drying enable high-precision microfabrication of three-dimensional structures[J]. *Optics Express*, 2009, 17(23): 20945-20951.

Fabrication of Micro-Helix Structures via Two-Photon Polymerization Based on Dynamic Multi-Focus Holograms

Xie Chen*, Sun Shixian, Jia Erse, Hu Minglie

Ultrafast Laser Laboratory, Key Laboratory of Opto-Electronic Information Science and Technology Ministry of Education, College of Precision Instruments and Opto-Electronics Engineering, Tianjin University, Tianjin 300072, China

Abstract

Objective Micro-helices are applied in microrobots and chiral metamaterials and require various features for structure fabrication in diverse applications. The femtosecond laser direct writing (FsLDW) technology can fabricate three dimensional (3D) microstructures based on two-photon polymerization (2PP) with sub-diffraction-limited resolution. This technology is used to fabricate micro-helix structures using the widely used point-by-point writing scheme with a single focus. However, this is relatively inefficient because of the repetitive scans along many helical trajectories in the fabrication process. Recently, one-step exposure with structured light has allowed the rapid fabrication of micro-helices, wherein helical beams are specially designed with vortex phases. However, state-of-the-art schemes can only produce microstructures with limited patterns owing to the complex and professional light manipulation techniques. To efficiently fabricate micro-helix structures with flexible features such as diameter, thread number, pitch, and chirality, we propose a scheme based on dynamic multi-focus patterns to fabricate multiple helical microstructures.

Methods Micro-helix structures were fabricated by piling up the multi-focal voxels along helical trajectories. The helical motion of the voxels was divided into two components: a circular motion manipulated by dynamic holograms loaded on the spatial light modulator (SLM), and a linear motion controlled by a z -axis translation stage (Fig. 3). Based on our in-house fabrication system, we adapted the Gerchberg-Saxton (G-S) algorithm to compute dynamic multi-focus holograms on the SLM iteratively. Subsequently, the tightly focused femtosecond multi-focal beam patterns induced polymerization of the photoresist (SU-8). In this method, the diameter and thread number of the micro-helices were determined by the parameters of the hologram alone under fixed exposure conditions. The dynamic holograms with the z -axis translation stage allowed flexible control of the pitch and chirality.

Results and Discussions The improved G-S algorithm adapted in our setup generates a well-defined multi-focus in the experiments, showing good consistency with the simulation (Fig. 2). These multi-focused beam patterns allow the flexible fabrication of various micro-helices by piling up the multi-focus voxels in a single helical motion (Fig. 3). Using a four-focus beam as an example, the geometric features of the corresponding voxels in 2PP are experimentally characterized in terms of their diameters and axial sizes (Fig. 4). In this experiment, the threshold power is determined as 0.01 mW for every single focus under 5 ms exposure time. Micro-helices are fabricated under the aforementioned exposure conditions. However, insufficient adhesion leads to the detachment of these microstructures with high aspect ratios from the silicon substrates (Fig. 5). To address this issue, another polymerized thin film is deposited on the substrate, which is cured using a UV lamp before proceeding with 2PP. This process significantly enhances the adhesion between the microstructures and substrate. Additionally, the capillary forces occurring during the developing step of post-processing distort the microstructures by pulling down the helical threads (Fig. 5). This issue is resolved by drying the micro-helices in supercritical carbon dioxide. Finally, five sets of dynamic multi-focus holograms are used to fabricate the micro-helices with different features (Fig. 6). The spiral diameter of these microhelices ranges from 2.4 to 19.2 μm as the number of threads increases from one to eight, with adjustable chirality and pitch. Introducing supporting micro-ribs also significantly enhances the stiffness of the micro-helices, which enables the height of the micro-helices to be up to 30 μm (Fig. 7). A possible reason for the different thread widths under different pitches in the voxel-stacking model is analyzed (Fig. 8).

Conclusions In this paper, we propose a dynamic hologram scheme to fabricate micro-helices using 2PP. In our scheme, the helical motion of the focus in conventional direct laser writing can be divided into linear and circular motions. Linear axial motion is controlled by a mechanical translation stage, and circular motion is manipulated by a set of dynamically programmable holograms. We also prove that the improved G-S algorithm is effective in generating multi-focus femtosecond laser patterns with flexibly controlled parameters to achieve circular motion. Therefore, well-defined dynamic multi-focus patterns in combination with axial mechanical motion can allow the fabrication of micro-helices with flexible control over diameters, thread numbers, pitches, and chiralities. Compared with the FsLDW method based on the single focus, the multi-focus parallel writing scheme can increase the fabrication efficiency by N times for micro-helices with N threads. Additionally, this hologram-based scheme offers advantages in terms of system cost, as it eliminates the need for an expensive motion controller for sophisticated spiral mechanical movements. The proposed flexible and economical method of micro-helix fabrication holds great potential for various applications, such as microrobots, chiral metamaterials, and bioengineering.

Key words laser technique; micro-helix; two-photon polymerization; multi-focus; spatial light modulator