

激光化学气相沉积石墨烯聚焦光斑测量研究

刘婷婷 张建寰 林 坤 李珊文
(厦门大学航空航天学院 福建 厦门 361005)

摘要: 激光化学气相沉积(Laser Chemical Vapor Deposition, LCVD) 石墨烯制备受聚焦光斑影响很大。实时检测光斑, 可实现石墨烯 LCVD 法可控制备。设计聚焦光斑测量光学系统, 提出一种基于圆拟合的改进算法检测光斑中心和半径, 计算、标定光斑面积。该方法在圆拟合基础上加入了二值化、形态学处理及连通性判别等预处理方法。实验表明, 该方法测得圆心位置与真值误差平均为 5.58 pixel, 光斑面积与真值误差平均为 $1.93 \times 10^{-9} \text{ m}^2$, 优于传统的重心法和霍夫检测法, 具有较快的计算速度和检测精度, 可实现 LCVD 法制备石墨烯实验中聚焦光斑的非接触式测量, 且对其他激光加工工艺的质量控制有借鉴意义。

关键词: 激光化学; 圆拟合; 聚焦光斑; 石墨烯

中图分类号: O644.18; TP391.41 文献标识码: A DOI: 10.3969/j.issn.1001-5078.2017.04.009

Focus facula measurement in graphene preparation by laser chemical vapor deposition

LIU Ting-ting ZHANG Jian-huan LIN Kun LI Shan-wen
(School of Aeronautics and Astronautics, Xiamen University, Xiamen 361005, China)

Abstract: The preparation of graphene by laser chemical vapor deposition(LCVD) is highly affected by the focal spot. Real-time measurement of light spot can be realized controllable preparation of graphene by LCVD method. The measuring optical system of focal facula was designed, and an improved method based on circle fitting method was presented to detect center and radius of focal spot, then focal spot area was calculated and calibrated. This method introduces some pretreatment methods, such as binaryzation, morphology processing, connectivity discrimination. Experiments show that the measured center position has average error of 5.58 pixel with true value, spot area has average error of with true value. It is better than the traditional gravity method and Hough algorithm and has faster computing speed and precision, which can realize non-contact measurement of the focus facula, and this study is of significance for quality control of other laser processing technology.

Key words: laser chemistry; circle fitting; focus facula; graphene

1 引言

石墨烯(Graphene)是 sp^2 碳原子堆积形成的二维原子晶体, 物理、化学性质优异, 理论比表面积高达 $2630 \text{ m}^2/\text{g}^{[1]}$, 具有高透光性(单层石墨烯可见光吸收仅 2.3%^[2])、高载流子迁移率和导热率(热导

系数高达 $5000 \text{ W/mK}^{[3]}$), 高机械强度和良好的化学稳定性^[4-6]。LCVD 法作为一种新型的石墨烯制备方式, 可实现高质量石墨烯的图案化制备、微区沉积、3D 制备等, 但 LCVD 法制备装置存在聚焦激光光斑质量、大小、基底位置分布等无实时检测、使石

基金项目: 国家自然科学基金项目(No. 61575165); 福建省科技计划重大专项(No. 2015HZ002-1)资助。

作者简介: 刘婷婷(1992-), 女, 硕士研究生, 主要从事光机电一体化技术、超精密光学非接触测量技术方面的研究。
E-mail: 1144894966@qq.com

通讯作者: 张建寰(1966-), 男, 教授, 硕士生导师, 主要从事光机电一体化技术、微小型光学系统应用技术、光电信息技术、传感技术等研究。E-mail: aeolus@xmu.edu.cn

收稿日期: 2016-08-19

墨烯制备质量不可控的问题。

针对上述问题,本文对 LCVD 法制备石墨烯装置上结合 CCD 相机加入聚焦光斑光学测量单元,在不影响基底温度场的情况下,可对石墨烯制备过程中激光聚焦光斑进行实时图像采集,通过图像算法定量得到光斑中心位置和面积大小,是研究 LCVD 法石墨烯制备工艺的关键技术;针对 LCVD 法制备石墨烯过程中光斑噪声较大的特点,在拟合前对图像进行预处理去除干扰因素,克服了 Hough 算法、重心法、圆拟合算法及阈值法等缺点,从而提高算法的检测精度和稳定性。

2 LCVD 法石墨烯制备系统

本文设计的 LCVD 法石墨烯制备系统包括工艺主体和工艺配套两部分。其中,工艺主体由激光聚焦单元、真空可视反应腔、聚焦光斑测量单元组成;工艺配套包含反应源气体及控制单元、三维移动平台单元、型材支架,实验装置示意如图 1 所示。LCVD 法沉积石墨烯过程需要真空度在 10 mTorr 以下真空环境,针对真空条件限制,设计了主要由腔体、石英玻璃观察窗(JGS2)、卡紧装置、进气门和出气门组成的真空可视反应腔。为满足此真空度下反应腔刚度及强度要求,设计腔体内径仅为 46.4 mm,石英观察窗直径仅为 32.4 mm,反应基板置于腔内。

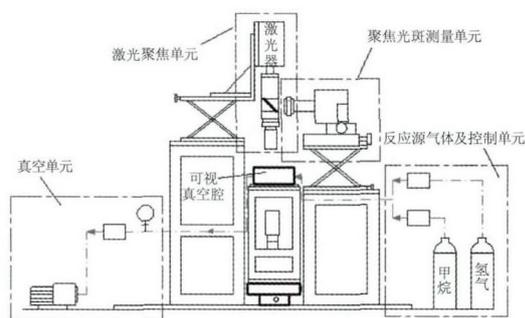


图1 LCVD法制备石墨烯装置示意图

Fig. 1 Schematic of LCVD graphene preparation

在 LCVD 法沉积石墨烯过程中,激光聚焦光斑直径决定了石墨烯纳米带的宽度,光斑移动路径决定了石墨烯纳米带的生长路径。基于反应腔大小限制、基底温度场易受外界干扰且激光聚焦光斑需实时监测的特点,本文在装置中设计了聚焦光斑光学测量单元,用以光斑图像采集处理。图 2 为聚焦光斑测量单元光路图,选择波长 532 nm、最大功率为 3 W 的连续型固体激光器作为热源,出

射光束依次通过准直扩束镜、分光镜、聚焦物镜,在基底材料表面形成聚焦光斑对基底材料聚焦加热,作用气相反应物,高温诱导其分解,反应得到石墨烯材料。装置采用 Basler 工业相机(acA2500-14 gm)对聚焦光斑进行同步采集,通过镜头成像于相机感光靶面,通过 USB 连接至上位机,对图像进行采集存储、分析处理,完成对光斑图像的实时检测。避免了传统的激光功率计直接测量对基底温度场的影响,可实现激光光斑实时监测,辅助 LCVD 实验的稳定进行。

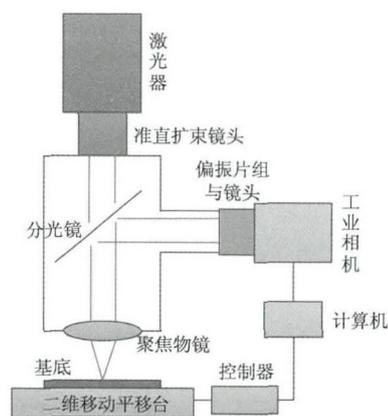


图2 聚焦光斑测量单元光路图

Fig. 2 Optical path of focus spot measurement

3 改进圆拟合算法提取光斑中心

上述 Basler 相机其图像传感器尺寸为 1/2.5 in,像元尺寸为 $2.2 \mu\text{m} \times 2.2 \mu\text{m}$,像素个数为 500 万,采集光斑图像如图 3 所示。本文在基于最小二乘法圆拟合的基础上加入二值化、形态学处理、连通域分析等预处理算法,对已有算法进行改进。改进的算法流程图如图 4 所示。



图3 激光光斑图像

Fig. 3 Laser spot image

3.1 二值化及形态学处理

采集到的原始光斑图像边缘较模糊,本文首先采用阈值选取法对图像进行二值化处理,处理后的图像仅含黑白两色,结果如图 5(a) 所示。

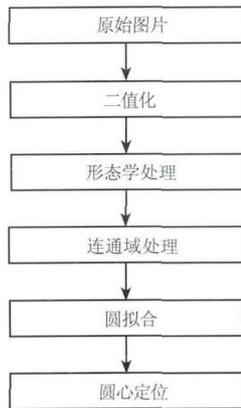
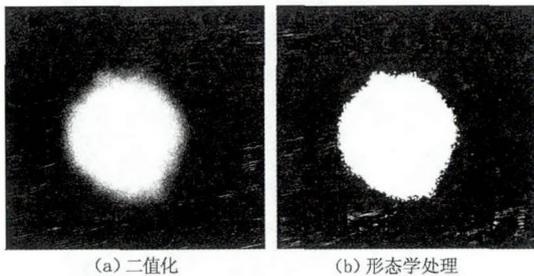


图4 改进的算法流程图

Fig.4 Improved algorithm flowchart



(a) 二值化 (b) 形态学处理

图5 处理过程

Fig.5 Image processing

二值化后光斑周围仍然存在未消除的噪声点,利用形态学膨胀、腐蚀原理将其去除。腐蚀操作将边界噪声点逐渐变小和主光斑分离,膨胀操作恢复主轮廓形状。为避免操作过多对主轮廓的形状产生较大影响,需确定腐蚀和膨胀的量^[9]。将形态学操作定义为 Q , Q 表示如下:

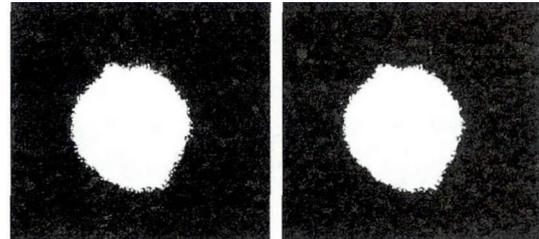
$$Q = \text{Dilate}^n(\text{Erode}^n(A)) \quad (1)$$

其中, n 为操作次数。通过选取不同参数 n 测试效果,实验表明,当 $n = 3$ 时效果理想。结果如图 5 (b) 所示。

3.2 连通域分析

观察光斑二值图像发现除主光斑外,光斑边缘处还存在多个微小连通域,影响后续边缘提取。因此,需要对图像进行扫描分析得到连通域数目并对其进行等级划分,本文采用基于像素的 2 次连通域标记算法对连通域进行标记^[10]。第 1 次扫描获得所有像素点的临时标号,第 2 次扫描是替换已标记

图像中等价的临时标号。通过统计不同标号数目,对最大连通域进行判断,对除最大连通域外其余连通域进行像素的再次赋值,将其归于背景。结果如图 6 所示。



(a) 处理前 (b) 处理后

图6 连通域处理

Fig.6 Region identification

3.3 圆拟合

在圆拟合前采用 Canny 算子对处理后的光斑图像提取边缘点,如图 7 所示。根据提取的边界点进行圆拟合处理。采用基于最小二乘原理(残差平方和最小),用圆来逼近激光光斑轮廓^[11-13]。圆方程为:

$$(x - a)^2 + (y - b)^2 = r^2 \quad (2)$$

取残差 ε_i 为:

$$\varepsilon_i = (x_i - a)^2 + (y_i - b)^2 - r^2 \quad (3)$$

其中, $i \in E$, E 表示所有边界的集合; (x_i, y_i) 为图像的边界坐标。残差平方和函数为:

$$Q = \sum_{i \in E} \varepsilon_i^2 = \sum_{i \in E} [(x_i - a)^2 + (y_i - b)^2 - r^2]^2 \quad (4)$$

根据最小二乘法原理,应有:

$$\begin{cases} \frac{\partial Q}{\partial a} = 2 \sum_{i \in E} [(x_i - a)^2 + (y_i - b)^2 - r^2] (-2)(x_i - a) = 0 \\ \frac{\partial Q}{\partial b} = 2 \sum_{i \in E} [(x_i - a)^2 + (y_i - b)^2 - r^2] (-2)(x_i - b) = 0 \\ \frac{\partial Q}{\partial c} = 2 \sum_{i \in E} [(x_i - a)^2 + (y_i - b)^2 - r^2] (-2)r = 0 \end{cases} \quad (5)$$

假设所有边界的点个数为 N , $N = \sum_{i \in E} 1$, 令:

$$\overline{x^m y^m} = \frac{1}{N} \sum_{i \in E} x_i^m y_i^m \quad (6)$$

拟合出的圆心坐标 a , b 和半径 r 表达式为:

$$\begin{cases} a = \frac{(\overline{x^2 x} + \overline{x y^2} - \overline{x^3} - \overline{x y^3})(\overline{y^2} - \overline{y^3}) - (\overline{x^2 y} + \overline{y y^2} - \overline{x^2 y^3} - \overline{y^3})(\overline{x y} - \overline{x y^2})}{2(\overline{x^2} - \overline{x^3})(\overline{y^2} - \overline{y^3}) - 2(\overline{x y} - \overline{x y^2})^2} \\ b = \frac{(\overline{x^2 y} + \overline{y y^2} - \overline{x^2 y^3} - \overline{y^3})(\overline{x^2} - \overline{x^3}) - (\overline{x^2 x} + \overline{x y^2} - \overline{x^3} - \overline{x y^3})(\overline{x y} - \overline{x y^2})}{2(\overline{x^2} - \overline{x^3})(\overline{y^2} - \overline{y^3}) - 2(\overline{x y} - \overline{x y^2})^2} \\ r = \sqrt{a^2 - 2\overline{x a} + b^2 - 2\overline{y b} + \overline{x^2} + \overline{y^2}} \end{cases} \quad (7)$$

根据公式(7)进行圆拟合。该算法对边缘点循环一次就可计算出参数,时间复杂度为 $O(n)$,圆半径只在计算出中心参数 a, b 后计算一次,计算速度快。进行多次拟合以减小所得光斑中心误差,提高精度。拟合结果如图8所示,拟合得到光斑圆心的位置为(576.47, 598.58),半径 r 为337.45(单位:像素)。

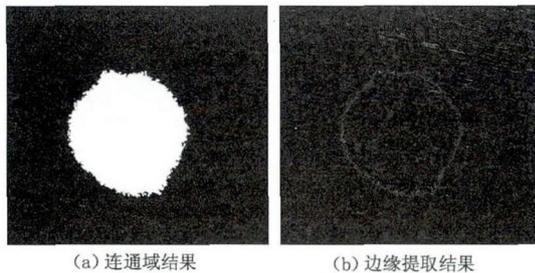


图7 边缘提取
Fig.7 Edge extract spot

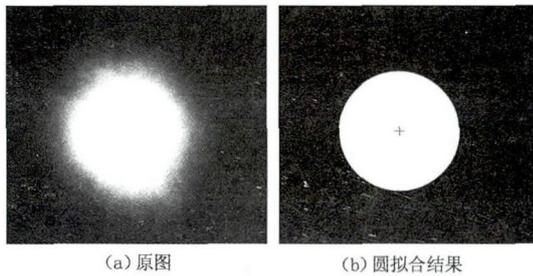


图8 圆拟合对比图

Fig.8 Comparison chart after circle fitting

3.4 面积计算

在LCVD法制备石墨烯实验过程中,激光作为石墨烯生长的热源,当聚焦物镜的工作距离不一致时,激光在基底材料表面形成的光斑大小也不同。采用基于图像处理的方法对激光聚焦光斑面积进行测量可避免实验中用肉眼对光斑大小进行误判,减小由于工作距离及焦距的测量产生的人为误差。实验采用波长为532 nm的连续型固体激光器作为石墨烯生长热源对基底材料表面进行聚焦加热时,光斑区域内的激光能量呈高斯分布,即能量的分布从中心向边缘递减。由文献可知,高斯型或近高斯型光束的空间分布具有圆对称性^[14]。令光斑面积为 S ,圆面积计算公式:

$$S = \pi r^2 = \pi (ar)^2 \quad (8)$$

可计算得到基底聚焦光斑的面积。其中, a 为标定所得的像素当量。

3.5 像素当量标定

采用标准位移法对光斑面积进行标定。利用双频激光干涉仪(Agilent 5529A)获取标志物移动的高

精度位移,实验装置如图9所示,系统由位移测量装置、平行导轨、标志物组成。位移测量装置包括激光器、线性干涉镜、测量反射镜、温度传感器、湿度/压强传感器,如图10所示。平行导轨上的底板为标志物,可沿导轨移动,测量反射镜固定于底板上,随底板移动。调整双频激光干涉仪,使光轴方向与导轨方向平行;调整底板位置,使底板的前边缘方向与导轨垂直。采集底板前边缘图像后将其沿导轨方向移动一段距离,用双频激光干涉仪记录底板移动距离 D 。用图像法求出底板前边缘移动的像素距离 d 。两位移之比为所求的像素当量 a , $a = D/d$ 。

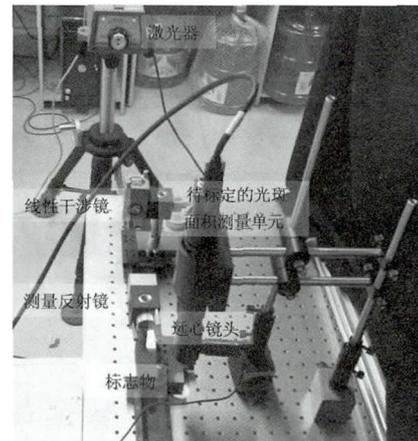


图9 标定实验装置

Fig.9 Calibration experiment device



图10 双频激光干涉仪

Fig.10 Laser measurement system

相机像素尺寸为 $2.2 \mu\text{m} \times 2.2 \mu\text{m}$,远心镜头放大倍数各向同性,即系统 X 轴像素当量等于 Y 轴像素当量,只需对一个方向的像素当量求解即可。标定工作条件为:镜头放大倍数2倍,工作距离65 mm。计算得底板前边缘像素距离 $d = 1647.33$ 像素,底板前边缘移动距离 $D = 3534.21 \mu\text{m}$ 。故标定像素当量 $a = D/d = 2.15 \mu\text{m}/\text{pixel}$ 。光斑面积为 $1.64 \times 10^{-6} \text{m}^2$ 。

4 结果分析

为验证本文算法的检测精度及稳定性,生成标准圆图像如图 11 所示。

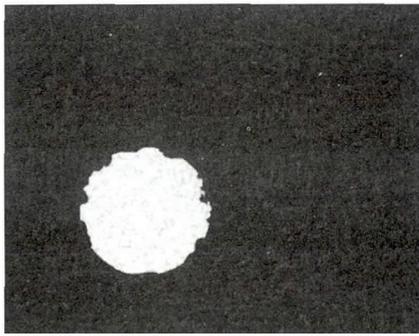


图 11 人工光斑图像

Fig. 11 Manual image with a disturbed circle

圆心位置为(166.00 248.00) 半径为 77 pixel,并在圆边界引入干扰。针对生成图像,采用上述算法计算得到圆心位置及半径,同时采用重心法、Hough 法进行检测。检测结果如图 12 所示,A 表示

标准圆心位置 B 表示本文改进后圆拟合算法检测到的圆心位置坐标为(168.83 252.40),C 表示重心法检测到的圆心位置坐标为(164.18 262.54),D 为传统霍夫检测法检测到的圆心位置坐标为(170.14 240.71)。几种方法的比较如表 1 所示,由表可知,本文方法计算所得圆心位置及面积与真值的误差均小于其余两种方法,且时间复杂度低。

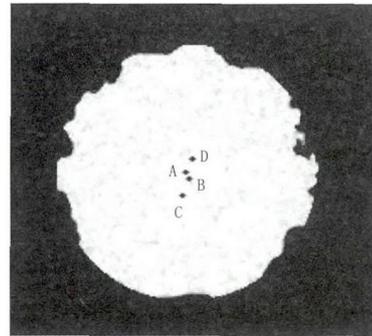


图 12 圆心位置

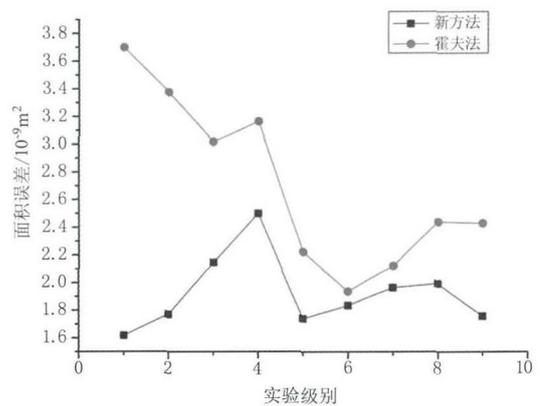
Fig. 12 Position of the center point

表 1 各方法与本文方法比较

Tab. 1 The comparison between gravity model and circle fitting

方法	圆心位置	半径/pixel	圆心误差/pixel	面积误差/($\times 10^{-9} \text{ m}^2$)	是否检测半径	时间复杂度
理论真值	(166.00 248.00)	77.00	-	-	-	-
本文方法	(168.83 252.40)	76.27	5.23	1.62	是	$O(n)$
重心法	(164.18 262.54)	-	14.65	-	否	$O(n^2)$
霍夫检测法	(170.14 240.71)	75.32	8.38	3.72	是	$O(n^4)$

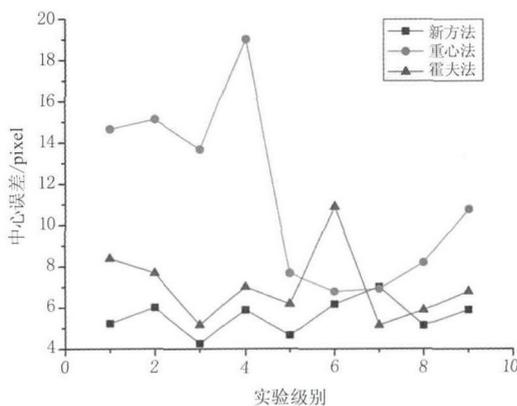
为进一步验证本文算法的稳定性和精确度,本文生成了多组标准光斑图像进行算法检验,图像边缘引入不同程度的干扰,同时对图像引入不同的噪声,分别得到各算法检测所得圆心位置与真值误差、光斑面积与真值误差,比较结果如图 13 所示。由图可知,本文方法所得圆心位置与真值误差平均为 5.23 pixel,重心法为 14.65 pixel, Hough 法为 8.38 pixel。



(b) 光斑面积误差比较

图 13 不同方法与本文方法比较

Fig. 13 The comparison



(a) 光斑中心位置误差比较

本文方法所得面积与真值误差平均为 $1.62 \times 10^{-9} \text{ m}^2$,重心法无法计算,Hough 法所得面积与真值误差平均为 $3.72 \times 10^{-9} \text{ m}^2$ 。分析结果可知,本文方法优于重心法和传统 Hough 法,具有较高的检测精度和稳定性。

5 结 论

本文在 LCVD 法制备石墨烯原理上进行装置设计,并对装置进行创新,加入了聚焦光斑光学测量单元用以实时检测基底光斑聚焦形态和大小,为监控石墨烯生长状态提供了有效的途径。同时,结合改进的圆拟合算法对聚焦光斑光学测量单元采集所得的光斑进行图像处理,实现了光斑中心位置的准确提取、半径及面积的有效计算。通过实验分析,本文算法相较于重心法,传统的 Hough 法,本文算法具有较高的检测精度和较低的时间复杂度,可用于实时 LCVD 法制备石墨烯实验中激光光斑的非接触式测量。

参考文献:

- [1] Stoller M D ,Park S ,Zhu Y ,et al. Graphene - based ultra-capacitors [J]. Nano letters 2008 ,8(10) : 3498 - 3502.
- [2] Nair R R ,Blake P ,Grigorenko A N ,et al. Fine structure constant defines visual transparency of graphene [J]. Science 2008 ,320(5881) : 1308.
- [3] Morozov S V ,Novoselov K S ,Katsnelson M I ,et al. Giant intrinsic carrier mobilities in graphene and its bilayer [J]. Physical Review Letters 2008 ,100(01) : 145 - 150.
- [4] Balandin A A ,Ghosh S ,Bao W ,et al. Superior thermal conductivity of single - layer graphene [J]. Nano Letters , 2008 ,8(3) : 902 - 907.
- [5] KIM T Y ,JUNG G ,YOO S ,et al. Activated graphene - based carbons as supercapacitor electrodes with macro - and mesopores [J]. American Chemical Society Nano , 2013 ,7(08) : 6899 - 6905.
- [6] CHEN Yongqing ,ZHANG Chentao ,ZHANG Jianhuan. Simulation of temperature field of graphene substrate fabricated by laser chemical vapor deposition [J]. Laser Technology 2015 ,39(5) : 648 - 653. (in Chinese)
陈永庆 张陈涛 张建寰. 激光化学气相沉积石墨烯的基底温度场仿真 [J]. 激光技术 ,2015 ,39(5) : 648 - 653.
- [7] WANG Zhengzhou ,XU Ruihua ,HU Bingliang. Algorithm of semicircular laser spot detection based on circle fitting [J]. Laser & Infrared 2013 ,43(6) : 708 - 711. (in Chinese)
王拯洲 许瑞华 胡炳樑. 基于圆拟合的非完整圆激光光斑中心检测算法 [J]. 激光与红外 ,2013 ,43(6) : 708 - 711.
- [8] JIAO Shengxi ,XIAO Dejun ,QUE Yifan. The application research of Hough transform algorithm on circle center vision positioning [J]. Science Technology and Engineering 2013 ,13(14) : 4089 - 4093. (in Chinese)
焦圣喜 肖德军 阙一凡. 霍夫变换算法在圆心视觉定位中的应用研究 [J]. 科学技术与工程 2013 ,13(14) : 4089 - 4093.
- [9] ZHANG Yujin. Image project (media) ,image analysis [M]. 2nd ed. Beijing: Tsinghua University Press ,2005: 222 - 223. (in Chinese)
章毓晋. 图像工程图像分析(中册) [M]. 2 版. 北京: 清华大学出版社 ,2005: 222 - 223.
- [10] GAO Hongbo ,WANG Weixing. New connected component labeling algorithm for binary image [J]. Computer Applications 2007 ,27(11) : 2776 - 2777. (in Chinese)
高红波 王卫星. 一种二值图像连通区域标记的新算法 [J]. 计算机应用 2007 ,27(11) : 2776 - 2777.
- [11] KONG Bing ,WANG Zhao ,TAN Yushan. Algorithm of laser spot detection based on circle fitting [J]. Infrared and Laser Engineering 2002 ,36(3) : 276 - 279. (in Chinese)
孔兵 王昭 谭玉山. 基于圆拟合的激光光斑中心检测算法 [J]. 红外与激光工程 2002 ,36(3) : 276 - 279.
- [12] WU Zekai ,LI Gongqiang ,WANG Wentao ,et al. Laser spot center detection based on improved circle fitting algorithm [J]. Laser & Infrared 2016 ,46(3) : 346 - 350. (in Chinese)
吴泽楷 李恭强 王文涛 ,等. 基于改进圆拟合算法的激光光斑中心检测 [J]. 激光与红外 ,2016 ,46(3) : 346 - 350.
- [13] JIA Wen ,TANG Huijun ,YAN Manqi ,et al. A new method for calculation of the low contrast laser spot center [J]. Laser & Infrared ,2008 ,38(10) : 1056 - 1058. (in Chinese)
贾文 唐慧君 闫曼奇 ,等. 一种低对比度激光光斑中心定位新方法 [J]. 激光与红外 ,2008 ,38(10) : 1056 - 1058.
- [14] YANG Jinxin ,ZHUANG Yifei ,SHEN Weixin ,et al. Precise measurement of the effective area of laser spot [J]. High Power Laser and Partical Beams ,2004 ,16(10) : 1263 - 1266. (in Chinese)
杨镜新 庄亦飞 沈卫星 ,等. 激光光斑有效面积的准确测定 [J]. 强激光与粒子束 ,2004 ,16(10) : 1263 - 1266.