

45. Методы характеристики метал/оксидных решеток, формируемых методами прямой лазерной записи

В. П. Корольков, Д. А. Белоусов, А. В. Достовалов, С. Л. Микерин, В. Н. Хомутов

Институт автоматики и электрометрии Сибирского отделения Российской академии наук, Новосибирск, Россия

Задача исследования формирования метал/оксидных решеток возникает как при исследовании термохимических лазерно-индуцированных периодических поверхностных структур (ТЛИППС), так и при исследовании периодических структур, записанных методом однократной прямой лазерной записи. Сформированные структуры могут представлять собой оксидные дорожки, выращенные за счет теплового воздействия лазерного излучения на металлической пленке, либо дорожки оксида между металлическими дорожками. Характеризация структуры может производиться с помощью электронной и оптической микроскопии, фотоэлектрических измерений и дифрактометрии. Работа посвящена обсуждению конфигурации измерительных схем и обработке изображений периодических и квазипериодических структур с целью получения количественных параметров, характеризующих их упорядоченность.

Ключевые слова: Метал/оксидные решетки, Лазерно-индуцированные периодические поверхностные структуры, ТЛИППС, Тонкие пленки металлов, Характеризация периодических структур.

Цитирование: Корольков, В. П. Методы характеристики метал/оксидных решеток, формируемых методами прямой лазерной записи / В. П. Корольков, Д. А. Белоусов, А. В. Достовалов, С. Л. Микерин, В. Н. Хомутов // HOLOEXPO 2018 : XV международная конференция по голографии и прикладным оптическим технологиям : Тезисы докладов. — М. : МГТУ им. Н. Э. Баумана, 2018. — С. 191–196.

Введение

Лазерные методы записи периодических решеток на тонких пленках металлов интенсивно исследуются как для оптических применений, так и задач изменения топографии и физических свойств поверхности (например, смачиваемости). Наиболее распространёнными методами записи являются сканирующая одно- или многоточечная запись сфокусированным лазерным пучком [1, 2]; интерференционно-голографический метод [3, 4]. Термохимические лазерно-индуцированные периодические поверхностные структуры (ТЛИППС) формируются в виде оксидных дорожек на поверхности металлических пленок под действием фс лазерного излучения [5]. В отличие от хорошо изученных абляционных ЛИППС, которые имеют ориентацию перпендикулярно поляризации падающего лазерного излучения и образуются за счет процесса абляции материала, ТЛИППС ориентированы параллельно поляризации падающего излучения. Формирование ТЛИППС сопровождается ростом рельефа в области формирования оксида металла. Кроме того, ТЛИППС имеют более упорядоченную структуру, что открывает новые

возможности для разработки технологий экономически эффективного нанесения решеток без необходимости острой фокусировки лазерного излучения.

В настоящей работе рассмотрены методы характеристики метал/оксидных решеток на основе обработки изображений и дифрактометрии. Данные методы оказались удобными и для исследования решеток, формируемых одно- и многоточечными методами сканирующей лазерной записи с пошаговым перемещением между сканами. Результатом исследования также является параметр упорядоченности решеток, характеризующий как точность системы двухкоординатного сканирования, так и специфические особенности регистрирующей среды и метода формирования топологии решеток.

Формирование ТЛИППС. Эксперименты по созданию ТЛИППС на поверхности пленок хрома выполнялись на установке прецизионной фемтосекундной модификации материалов, использующей излучение **Ошибка! Источник ссылки не найден.Ошибка! Источник ссылки не найден.** фемтосекундного лазера Light Conversion PHAROS 6W (длина волны 1026 нм, частота повторения импульсов в экспериментах — 200 кГц, длительность импульса на полувысоте 232 фс). Излучение лазера фокусировалось в пятно

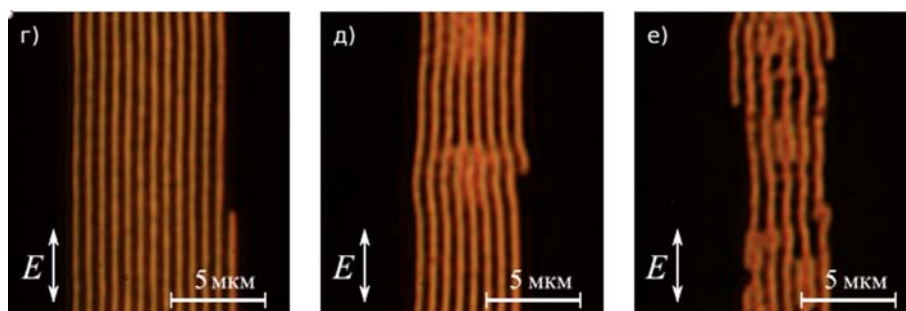


Рис. 1. Изображения ТЛИППС, сформированных на 40 нм пленке хрома при $E = 110$ нДж, $V = 1$ мкм/с (а), 16 мкм/с (б) и 45 мкм/с (в)

диаметром 8–17 мкм. Перемещение образца производилось с помощью системы высокоточных координатных столов Aerotech ABL1000. Направление поляризации во время записи изменялось поворотом пластинки $\lambda/2$. Энергия импульсов изменялась в диапазоне 30–120 нДж. Скорость перемещения образцов в экспериментах составила 1–100 мкм/с, СЭМ изображения ТЛИПСС были получены с помощью СЭМ Hitachi TM3000.

На рис. 1 представлены изображения сформированных ТЛИПСС на пленке хрома, полученные с помощью оптического микроскопа (рис. 1а, 1б, 1в). Измеренный период ТЛИПСС увеличивается с 690 нм при $V = 1$ мкм/с до 720 нм при $V = 16$ мкм/с и достигает 860 нм при $V = 45$ мкм/с. Упорядоченность структуры уменьшается при больших скоростях сканирования. Области ТЛИПСС со сквозным оксидированием прозрачны для видимого света, поэтому они наблюдаются в проходящем свете на оптическом микроскопе.

Формирование периодических структур методом прямой лазерной записи

Для проведения экспериментов по прямой лазерной безрезистной записи на металлических пленках использовалась круговая лазерная записывающая система (КЛЗС), разработанная в ИАиЭ СО РАН [6]. Она состоит из следующих основных частей: узла вращения, узла радиального перемещения; непрерывного DPSS лазера (532 нм); системы модуляции лазерного пучка с двумя акустооптическими модуляторами; узла автоматической фокусировки; управляющего компьютера с платой генератора изображений. Скорость сканирования в экспериментах изменялась в пределах 100–500 мм/с. Для исследования методов повышения пространственного разрешения лазерной нанолитографии также разработан экспериментальный стенд с УФ диодным лазером с длиной волны 405 нм и XY системой двухкоординатного сканирования. Фотография стенда показана на рис. 2. Кроме записи тестовых решеток с субмикронным периодом на этом стенде необ-



Рис. 2. Стенд для исследований по лазерной нанолитографии

ходимо реализовать предварительное исследование тестовых решеток с субмикронным периодом с помощью фотоэлектрических методов.

Фотоэлектрический контроль параметров записи непосредственно на записывающей установке. При прямой лазерной записи сканирующим сфокусированным лазерным пучком на металлических пленках методом сквозного окисления, локальный коэффициент пропускания облученной пленки зависит от мощности записывающего пучка и скорости сканирования пучка. В связи с этим, предварительно, перед записью конечного дифракционного элемента записываются тестовые структуры при различных параметрах. Измерение зависимости пропускания от мощности пучка и скорости сканирования в области тестовых структур позволяет подобрать оптимальные режимы записи.

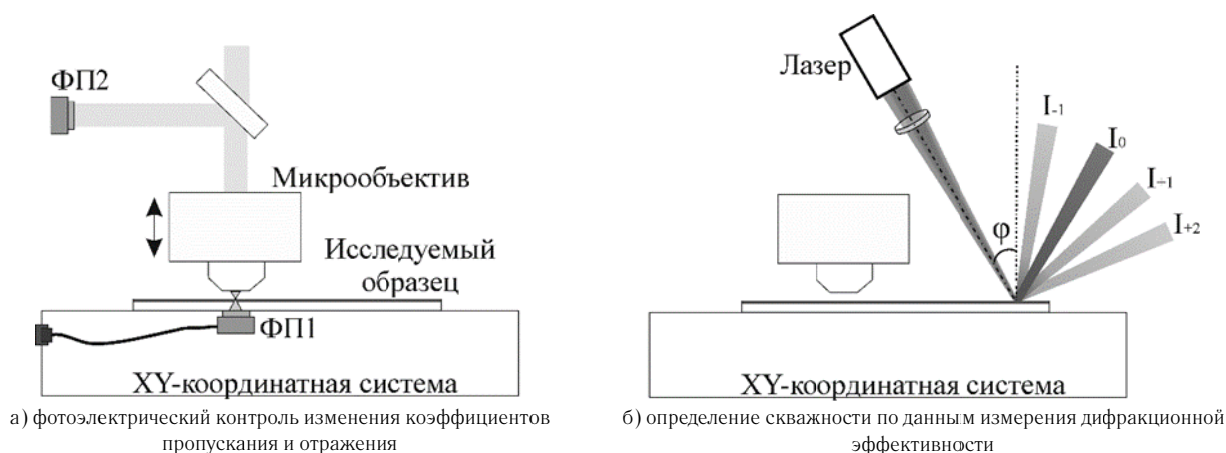


Рис. 3. Схема контроля параметров структур непосредственно на записывающей установке

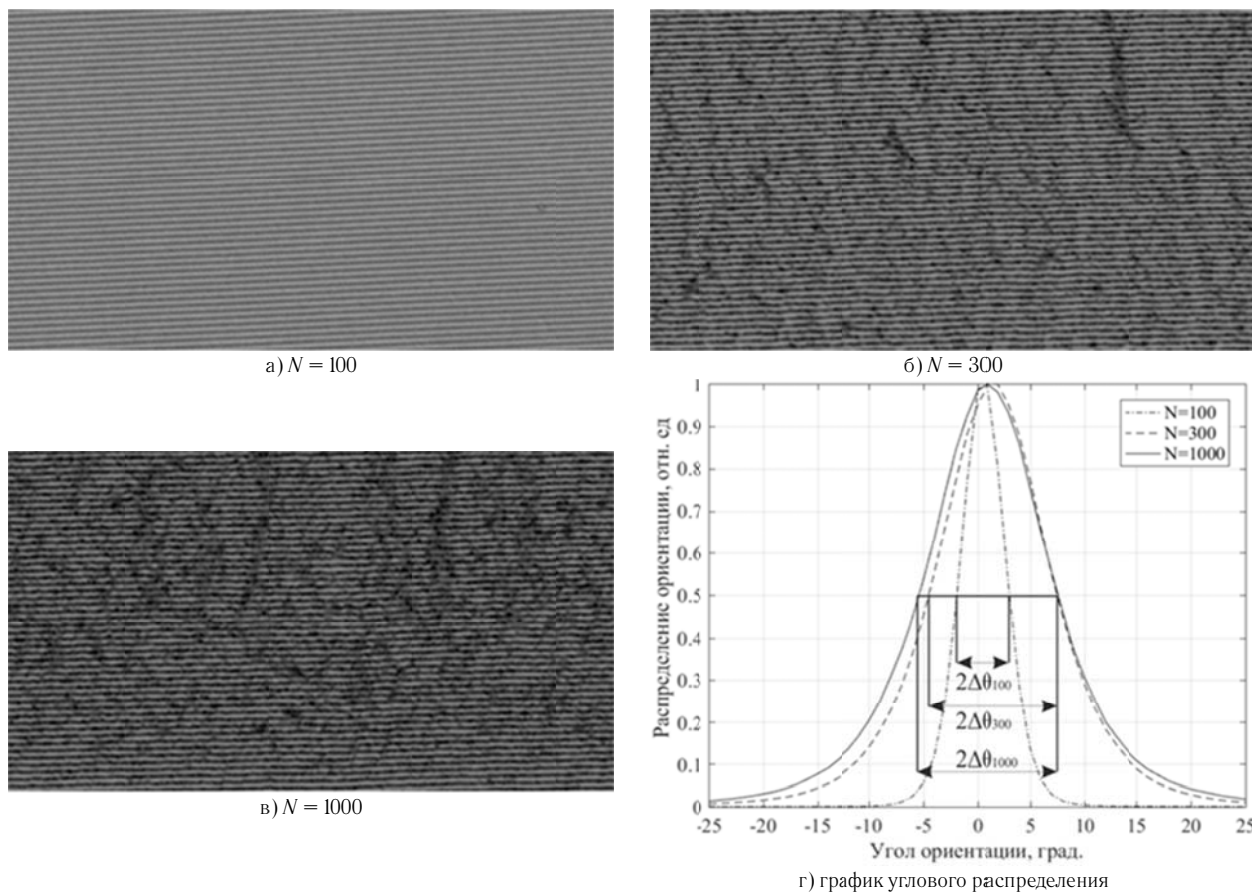


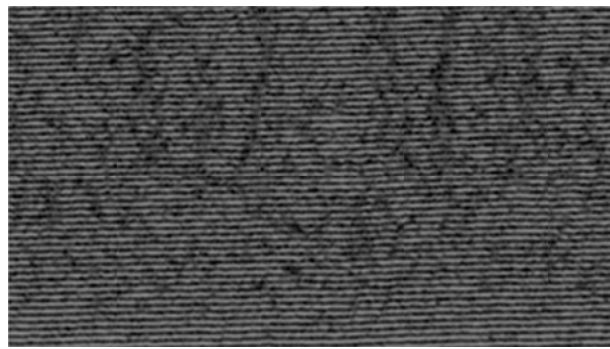
Рис. 4. Фрагменты записанных ЛИППС для разных количеств импульсов (N) и результат их обработки

Наиболее эффективным является осуществление измерений непосредственно на записывающей установке без необходимости снимать образец для осуществления измерений между записью тестов и конечного элемента. Для этого в записывающую систему встраивается фотоприёмник (ФП1 на рис. 3а), закреплённый под образцом. В идеале он должен перемещаться под образцом, оставаясь на оптической оси объектива. Но поскольку это достаточно сложно реализовать внутри двухкоординатного стола, перемещающего образец, то проще применить фотоприёмник с большой площадью фотодиода, на который будет попадать свет с достаточно большой площади образца, достаточной для тестирования. Необходимо также обеспечить возможность вывода фотоприёмника за пределы зоны записи либо его закрытия непрозрачным экраном чтобы избежать выхода его из строя под воздействием лазерного излучения, мощность которого при записи может достигать 100 мВт и более. Для реализации тестирования в нескольких зонах образца удобно сделать несколько фиксированных положений фотоприёмника — одно в необлучаемой зоне и несколько в зоне записи. После измерения тестовых структур, мощность пучка уменьшается до значений, не влияющих на параметры пропускания металлической плёнки, а фотоприёмник устанавливается на оптической оси записывающего пучка в области одного из тестируемых участков. Перемеще-

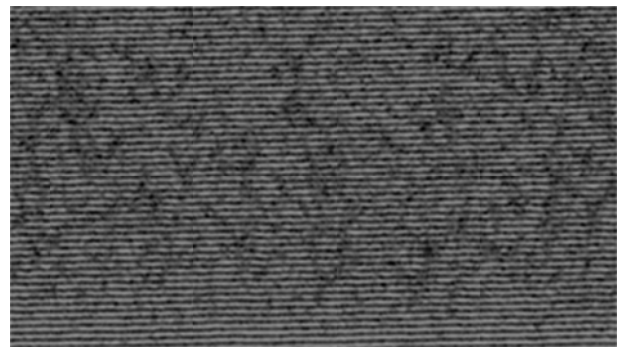
ние объектива по вертикали, позволяет выбирать размер пробного пучка на поверхности исследуемого элемента. Измерение сигнала с фотоприёмника ФП1 позволяет сопоставить пропускание в области тестовых структур и в области, не обработанной лазерным излучением, а также с пропусканием опорного стеклянного образца, используемого для нормировки. Кроме того, встроенный в XY-координатную систему фотоприёмник может быть использован для измерения размеров записывающего пучка методом ножа Фуко.

В процессе записи отражающих метал/оксидных решеток в случае несквозного окисления и, соответственно, отсутствия высокого пропускания для пробного лазерного пучка, изменение коэффициента отражения в области тестовых структур дает полезную информацию о динамике процесса. Для его измерения можно использовать фотоприёмник ФП2 рис. 3а, установленный в оптическом канале. Его преимуществом является возможность использования фотодиода с малой площадью (необходимо добавить в схему линзу для фокусировки) и высоким быстродействием, полезным для изучения динамики процесса окисления.

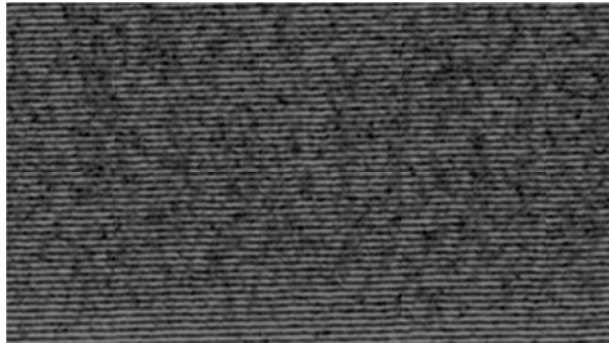
Описанные выше фотоэлектрические методы контроля изменения коэффициентов пропускания и отражения не позволяют оценить ширину оксидной дорожки, образованной в тонкой металлической плёнке под воздействием мощного лазерного излучения. Для



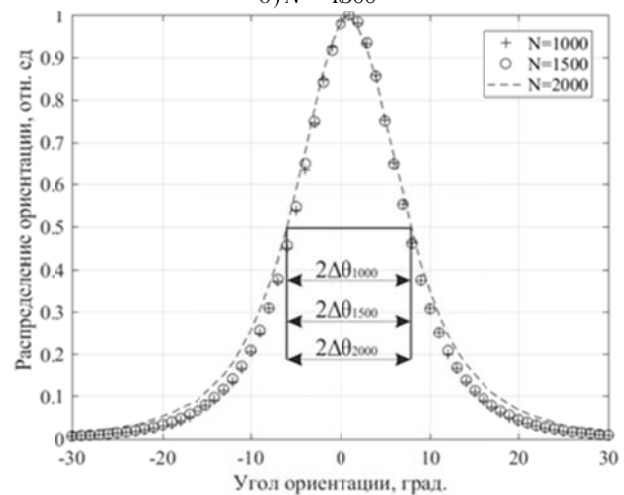
а) $N = 1000$



б) $N = 1500$



в) $N = 2000$



г) график нормированного углового распределения

Рис. 5. Фрагменты записанных ЛИППС для разных количеств импульсов (N) и результат их обработки

решения этой проблемы, можно применить дифракционный метод контроля, используя дополнительный пробный лазерный пучок слабой интенсивности направленный под углом φ к исследуемому элементу (рис. 3б). Для этого на исследуемом образце записываются две тестовые области: первая представляет собой область, размер которой в несколько раз превышающую размер пробного лазерного пучка, а вся её площадь равномерно экспонирована сфокусированным записывающим лазерным пучком при выбранных параметрах записи; во второй области формируется тестовая периодическая структура, записанная с теми же параметрами записи. Измерение отражённого от первой области излучения позволяет измерить коэффициент отражения от обработанного записывающим пучком материала, а измерение ДЭ всех (или достаточного числа) дифракционных порядков от тестовой структуры с известным периодом, позволяет по полученным данным оценить скважность сформированной решётки, определив тем самым ширину записанной канавки при выбранных параметрах записи и известном периоде.

Обработка изображений периодических структур. Период и скважность решетки можно с высокой точностью оценить дифракционным методом контроля, пропуская через нее лазерный пучок и измеряя параметры дифракционной картины в широком угловом диапазоне для всех видимых порядков дифракции [7]. Однако для более детального анализа качества запи-

санных ЛИППС необходимо обрабатывать изображения, полученные с помощью оптической, сканирующей электронной или атомно-силовой микроскопии. Одной из проблем оценки качества по полученным изображениям является то, что при регистрации изображения достаточно большой площади, для того, чтобы оценить такие параметры решетки как прямолинейность и сонаправленность, приходится обрабатывать изображения на которых период записанной дорожки ограничена размером в несколько пикселей на изображении, что осложняет процесс прямой обработки. В связи с этим актуальным является вопрос разработки критерия качества записанных структур, достаточного простого в использовании и позволяющего анализировать изображения достаточной большой площади записанных ЛИППС.

Для оценки прямолинейности полученных ЛИППС в поле большой площади, авторами работы [8] был предложен критерий DLOA (dispersion in the LIPSS orientation angle) $\Delta\theta$. Параметр $\Delta\theta$ сопоставим с угловым размытием (angular opening) при двумерном преобразовании Фурье. Однако для более точного определения параметра $\Delta\theta$ предлагается использовать свобододоступный плагин OrientationJ [9], написанный для программного обеспечения с открытым исходным кодом ImageJ [10], который позволяет на основе тензорного анализа [11] определить угловую ориентацию каждого пикселя обрабатываемого изображения.

Данный плагин позволяет построить график зависимости количества пикселей от угла ориентации. Параметр $\Delta\theta$ определяется как полуширина на полувывсоте от полученного распределения.

Критерий определения параметра $\Delta\theta$ был использован, для оценки параметров ЛИППС, сформированных на поверхности пленок хрома на установке прецизионной фемтосекундной модификации материалов [6] при постоянной мощности 240 мВт, но с разным количеством импульсов N , приходящихся на каждый участок поверхности: 100, 300 и 1000. Изображения записанных ЛИППС (рис. 4а–4в) были получены на сканирующем электронном микроскопе Hitachi TM3000. Измеренный параметр $\Delta\theta$ для исследуемых структур составил 2° , $5,5^\circ$ и 6° , соответственно (рис. 4г).

Кроме этого, предложенным методом были исследованы ЛИППС, сформированные при постоянной мощности 240 мВт и количестве импульсов N : 1500 и 2000 (рис. 5б и 5в). Для сравнения, на рис. 5а приведён фрагмент структуры ЛИППС для количества импульсов $N = 1000$. Как показано на рис. 5в параметр $\Delta\theta$ для всех полученных структур получился равным и составил 6° . Однако по графику углового распределения (рис. 5в) видно, что нижняя область «купола» полученного углового распределения для значения $N = 2000$ проходит выше, по сравнению со значениями, полученными для структур $N = 1000$ и $N = 1500$. Это вызвано тем, что решетка ЛИППС, записанная при $N = 2000$, имеет больше неоднородностей структуры. Для выражения этого параметра в численном эквиваленте можно просуммировать все значения углового распределения для каждого параметра N и разделить его на количество элементов в массиве. Данная величина составила 0,0864, 0,0873, 0,0957. Таким образом, использование предложенного метода позволяет определять не только прямолинейность, но и сопоставлять однородность полученных ЛИППС.

Проблема определения сонаправленности структур возникает также и при записи периодических метал/оксидных решёток, формируемых прямой однопучковой лазерной записью движущимся сфокусированным пучком. На рис. 6 показано микроизображение решеток, полученное с помощью электронного микроскопа. Три решетки записывались на пленке циркония с пропусканием 4 % при разных уровнях мощности. При записи всех трех решеток пучок двигался в одном и том же направлении сверху вниз (на данном изображении). Мощность пучка уменьшалась от правой решетки к левой. Механизм образования сложных криволинейных структур пока не ясен. Воз-

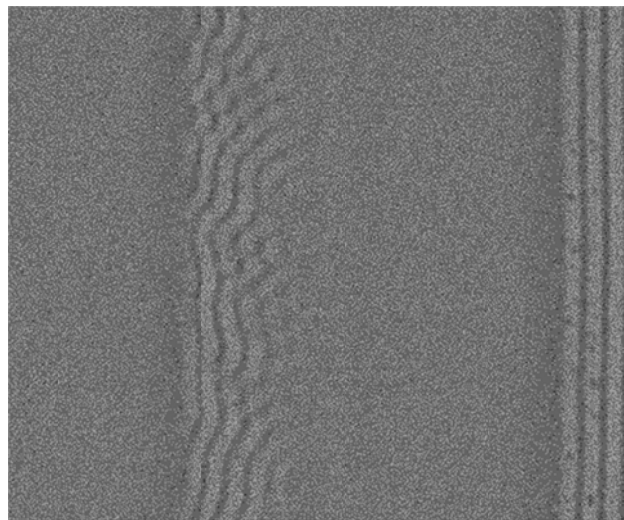


Рис. 6. Периодические структуры, сформированные прямой однопучковой лазерной записью на пленке циркония при разных уровнях мощности

можно, нагрев лазерным пучком запускает формирование оксидных кристаллитов, направление роста которых не совпадает с направлением пучка. Для количественного исследования нарушения упорядоченности таких структур необходим развиваемый метод характеристики угловой направленности решеток.

Заключение

Приведены результаты исследования методов характеристики метал-оксидных периодических решеток, сформированных различными методами прямой записи импульсным и непрерывным лазерным излучением на поверхности металлических пленок, напыленных на стеклянные подложки. Особенностью исследуемых решеток является, то, что дорожки оксида расположены между дорожками металла, а период решеток может быть от нескольких микрометров до долей микрометра. Рассмотрены для характеристики решеток применение сканирующей электронной и оптической микроскопии, фотоэлектрических измерений и дифрактометрии. Показаны возможности компьютерной обработки изображений для определения прямолинейности и сонаправленности решеток.

Работа выполнена с использованием оборудования Центра коллективного пользования «Высокорешающая спектроскопия газов и конденсированных сред» ИАиЭ СО РАН, Новосибирск [12] при поддержке гранта РФФИ 16-32-60096 (в части формирования ТЛИППС) и РНФ 17-19-01721 (в части методов характеристики решеток и формирования решеток методом сканирующей одноточечной лазерной записи).

Список источников

- [1] Вейко, В. П. Исследование особенностей многоуровневой лазерной термохимической записи дифракционных микроструктур / В. П. Вейко, Д. А. Синёв, Е. А. Шахно, А. Г. Полещук, А. Р. Саметов, А. Г. Седухин // Компьютерная оптика. — 2012. — Том 36. — № 4. — С. 562–571.

- [2] **Коронкевич, В. П.** Лазерная термохимическая технология синтеза дифракционных оптических элементов на пленках хрома / В. П. Коронкевич, А. Г. Полещук, Е. Г. Чурин, Ю. И. Юрлов // Квантовая электроника. — 1985. — Том 12. — № 4. — С. 755–761.
- [3] **Полещук, А. Г.** Микроструктурирование оптических поверхностей: технология и устройство прямой лазерной записи дифракционных структур / А. Г. Полещук, А. А. Кутанов, В. П. Бессмельцев, В. П. Корольков, Р. В. Шиманский, А. И. Малышев, А. Е. Маточкин, Н. В. Голошевский, К. В. Макаров, В. П. Макаров, И. А. Снимщиков, Н. Сыдык уулу // Автометрия. — 2010. — Том 46. — № 2. — С. 86–96.
- [4] **Veiko, V. P.** Picosecond laser registration of interference pattern by oxidation of thin Cr films / V. P. Veiko, M. V. Yarchuk, R. A. Zakoldaev, M. Gedvilas, G. Raciukaitis, M. O. Kuzivanov, A. V. Baranov // Applied Surface Science. — 2017. — Vol. 404. — P. 63–66.
- [5] **Dostovalov, A. V.** Simultaneous formation of ablative and thermochemical laser-induced periodic surface structures on Ti film at femtosecond irradiation / A. V. Dostovalov, V. P. Korolkov, S. A. Babin // Laser Physics Letters. — 2015. — Vol. 12. — № 3. — 036101.
- [6] **Poleshchuk, A. G.** Polar coordinate laser pattern generator for fabrication of diffractive optical elements with arbitrary structure / A. G. Poleshchuk, E. G. Churin, V. P. Koronkevich, V. P. Korolkov // Applied Optics. — 1999. — Vol. 38. — № 8. — P. 1295–1301.
- [7] **Белоусов, Д. А.** Устройство для регистрации дифракционной картины синтезированных голограмм в широком угловом диапазоне / Д. А. Белоусов, А. Г. Полещук, В. Н. Хомутов // Автометрия. — 2018. — Том 54. — № 2. — С. 35–42.
- [8] **Gnilitskiy, I.** High-speed manufacturing of highly regular femtosecond laser-induced periodic surface structures: physical origin of regularity / I. Gnilitskiy, T. Derrien, Y. Levy, N. Bulgakova, T. Mocek, L. Orazi // Scientific Reports. — 2017. — Vol. 7. — 8485.
- [9] **Piispoki, Z.** Transforms and operators for directional bioimage analysis: A survey / Z. Piispoki, M. Storath, D. Sage, M. Unser // Focus on Bio-Image Informatics (Springer International Publishing). — 2016. — Vol. 219. — P. 69–93.
- [10] **Schindelin, I.** The ImageJ ecosystem: An open platform for biomedical image analysis / I. Schindelin, C. T. Rueden, M. C. Hiner, K. W. Eliceiri // Molecular Reproduction and Development. — 2015. — Vol. 82. — P. 518–529.
- [11] **Rezakhaniha, R.** Experimental Investigation of Collagen Waviness and Orientation in the Arterial Adventitia Using Confocal Laser Scanning Microscopy / R. Rezakhaniha, A. Agianniotis, J. T. C. Schrauwen, A. Griffa, D. Sage, C. V. C. Bouten, F. N. van de Vosse, M. Unser, N. Stergiopoulos // Biomechanics and Modeling in Mechanobiology. — 2012. — Vol. 11. — № 3–4. — P. 461–473.
- [12] Каталог центров коллективного пользования научным оборудованием / URL: <http://ckp-rf.ru/ckp/3046/>.

Methods for characterization of metal/oxide gratings created by direct laser writing

V. P. Korolkov, D. A. Belousov, A. V. Dostovalov, S. L. Mikerin, V. N. Khomutov

Institute of Automation and Electrometry, Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences, Novosibirsk, Russia

The investigation of metal/oxide lattices formation is actual task for both the study of thermochemical laser-induced periodic surface structures (TLIPSS) and the study of periodic structures inscribed by the single-point direct laser writing method. The formed structures are oxide tracks between metal tracks in the first case or oxide tracks grown due to the thermal action of laser radiation on a metal film in the second case. The structure can be characterized by electron and optical microscopy, photoelectric measurements and diffractometry. The paper is devoted to the discussion of the configuration of measuring scheme and the processing of images of periodic and quasi-periodic structures in order to obtain quantitative parameters characterizing their ordering.

Keywords: Metal/oxide gratings, Laser-induced periodic surface structures, TLIPSS, Metal thin films, Characterization of periodic structures.