

УДК 544.032.65

# Исследование разрешающей способности прямой записи субмикронных структур на плёнках титана миллисекундными лазерными импульсами

© 2019 г. **Е. А. Шахно\*** \*\*, доктор техн. наук; **К. З. Нгуен\***, аспирант

\*Университет ИТМО, Санкт-Петербург

\*\*Институт автоматики и электрометрии Сибирского отделения Российской академии наук, Новосибирск

E-mail: elena.shakhno@mail.ru, qdung1991@gmail.com

Поступила в редакцию 21.01.2019

DOI:10.17586/1023-5086-2019-86-04-69-73

Проведено моделирование локального лазерного окисления тонких плёнок титана при субмикронных размерах области облучения. Получены радиальные распределения температуры плёнки, толщины оксидного слоя и пропускания плёнки с учётом временной и пространственной зависимости поглощательной способности плёнки от толщины образующегося слоя оксида. Результаты расчётов выявили условия достижения высокой разрешающей способности (минимальный размер записанного изображения 230 нм для излучения видимого диапазона) и одновременно высокого контраста записи. Определены диапазоны оптимальных значений плотности мощности излучения и толщины плёнки.

**Ключевые слова:** тонкие плёнки, лазерное окисление, разрешающая способность, дифракционные оптические элементы, пропускание, контраст.

**Коды OCIS:** 310.6860, 350.3390.

## ВВЕДЕНИЕ

Создание технологий формирования плёночной топологии с разрешением выше  $1\text{ мкм}^{-1}$  в настоящее время является одной из важнейших задач современной оптики [1]. Высокая разрешающая способность термохимической записи на тонких плёнках может быть достигнута при записи короткими и сверхкороткими импульсами, в частности, в интерференционном поле на плёнках хрома [2, 3] и титана [4, 5]. Однако для ряда оптических применений, например в технологиях создания дифракционных оптических элементов (ДОЭ), предпочтительным оказывается применение более продолжительного воздействия микро- или миллисекундных импульсов или непрерывного излучения при сканировании плёнок, что успешно реализовано в круговой лазерной записывающей системе CLWS-300IAE [6–8], осуществляющей запись на плёнках хрома с последующим травлением. В системе CLWS-300IAE использовано излучение аргонового лазера (405 и 532 нм). При этом диаметр облучённой области на поверхности плёнки

составляет около 600 нм, что позволяет получить пространственное разрешение на плёнках хрома до  $2\text{ мкм}^{-1}$ . Тем не менее, очевидным недостатком при формировании ДОЭ на плёнках хрома является необходимость операции травления после экспозиции для проявления скрытого изображения [9], что существенно усложняет процесс и увеличивает процент брака.

Одноэтапная технология, исключая операцию травления, может быть осуществлена при использовании плёнок титана, образующих при облучении прозрачный оксидный слой (рутил- $\text{TiO}_2$  [10]) [11, 12]. Однако необходимость достаточно глубокого окисления плёнки титана для обеспечения хорошего оптического контраста требует продолжительной экспозиции (порядка 1 мс по экспериментальным и теоретическим оценкам [11–14]), тогда как для создания поверхностного оксида на плёнках хрома достаточно длительность облучения порядка 1 мкс и менее [9]. Такая разница в длительностях воздействия определяет существенно большее теплопроводностное размывание

изображения на плёнках титана, чем на плёнках хрома, и затрудняет запись элементов малых размеров. Система CLWS-300IAE, работающая с высокой скоростью вращения 12–15 об/с [6, 8], не позволяет эффективно записывать структуры дифракционных оптических элементов на плёнках титана, требующих большей экспозиции. Запись в режиме импульсного воздействия при переходе от плёнок хрома к плёнкам титана также требует конструктивной перестройки установки, в частности, при переходе от микросекундных импульсов к миллисекундным. В настоящей работе проведены теоретические исследования особенностей лазерной термохимической записи на плёнках титана и определение области оптимальных параметров воздействия, необходимые для создания лазерных технологических установок термохимической записи на плёнках титана с высоким разрешением.

## ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Методика настоящего исследования основана на известном факте, что для микронных и субмикронных размеров облучённой области и длительности воздействия порядка 1 мс нагревание плёнки на подложке имеет стационарный характер [15]. При этом для используемых толщин плёнок в диапазоне от 5 до 60 нм основные закономерности теплопереноса определяются подложкой, а радиальное распределение температуры плёнки в приближении идеальной адгезии соответствует радиальному распределению температуры на поверхности подложки. Таким образом, распределение тепла контролируется теплофизическими свойствами подложки, а поглощение энергии от лазерного излучения определяется поглощательной способностью плёнки [11, 12]. Тогда радиальное распределение температуры плёнки может быть определено из стационарного уравнения теплопроводности для гауссова распределения интенсивности с граничными условиями  $T(r, z = 0)$

$$\frac{\partial^2 T}{\partial z^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial T}{\partial r} + \frac{\partial^2 T}{\partial r^2} = 0,$$

$$-k_S \left. \frac{\partial T}{\partial z} \right|_{z=0} = q_0 A_f \exp\left(-\frac{r^2}{r_0^2}\right), T \Big|_{z \rightarrow \infty} = T_H, \quad (1)$$

где  $k_S$  — теплопроводность подложки,  $q_0$  — плотность мощности лазерного излучения в центре облучённой области,  $A_f$  — поглощательная способность плёнки,  $r_0$  — характерный размер гауссова распределения интенсивности излучения в пучке,  $T_H$  — начальная температура, а координата  $z$  направлена от поверхности вглубь подложки.

Объединяя решение уравнения (1), полученное с помощью преобразования Ганкеля 0-го порядка,

и параболический закон окисления [16] с учётом изменения поглощательной способности плёнки [13, 14], получаем систему уравнений для определения закономерностей окисления

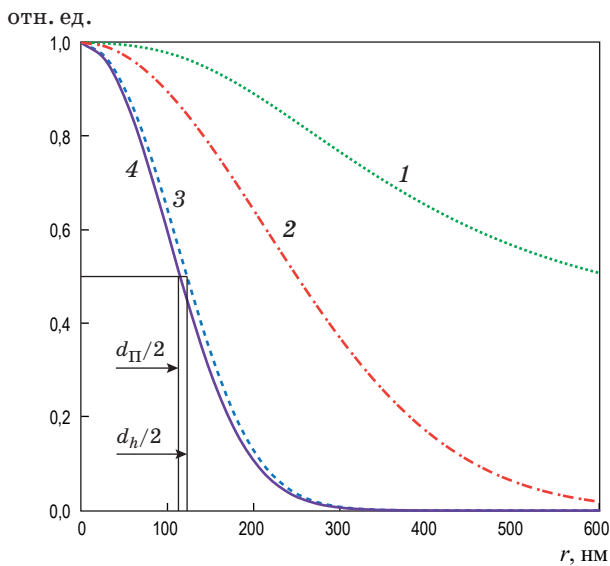
$$\begin{cases} T(r, t) = \frac{q_0 A_f(r, t) r_0 \sqrt{\pi}}{2k_S} \exp\left(-\frac{r^2}{2r_0^2}\right) I_0\left(\frac{r^2}{2r_0^2}\right) + T_H \\ \frac{\partial h(r, t)}{\partial t} = \frac{B}{h(r, t)} \exp\left(-\frac{T_a}{T(r, t)}\right) \\ A_f(r, t) = A_{Me} \left[ 1 - \left( \frac{A_{Me} - A_{Ox}}{A_{Me} H} \right) h(r, t) \right] \end{cases}, \quad (2)$$

где  $I_0$  — модифицированная функция Бесселя 1-го рода 0-го порядка,  $H$ ,  $h$  — толщина исходной плёнки и образуемого оксидного слоя соответственно,  $B$  — константа параболического окисления,  $T_a$  — активационная энергия в градусах Кельвина,  $A_{Me}$ ,  $A_{Ox}$  — поглощательная способность металлической плёнки и оксида для длины волны 532 нм соответственно. Изменение температуры во времени определяется ростом оксидного слоя и соответствующим ему изменением во времени поглощательной способности плёнки. Локальное пропускание плёнки определялось в зависимости от поглощательной способности плёнки и коэффициента отражения на её поверхности  $R_{Ox}$ , рассчитанного ранее нами для облучения плёнок титана широким пучком лазерного излучения [13], как  $\Pi(r, t) = 1 - R_{Ox}(h) - A(r, t)$ .

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На основе численного решения системы уравнений (2) были определены радиальные распределения температуры, толщины оксидного слоя и пропускания. Расчётные нормированные значения радиального распределения интенсивности излучения  $I^* = I(r)/I(0) = \exp(-r^2/r_0^2)$ , температуры  $T^* = T(r)/T(0)$ , толщины оксидного слоя  $h^* = h(r)/h(0)$  и изменения пропускания  $\Pi^* = [\Pi(r) - \Pi(\infty)]/[\Pi(0) - \Pi(\infty)]$  приведены на рис. 1, где  $\Pi(\infty)$  — пропускание исходной металлической плёнки. Параметры лазерного излучения, использованные в расчётах, выбирались соответствующими условию отсутствия разрушения плёнки (температура не должна достигать температуры плавления). Значения плотности мощности излучения в центре облучённой области  $q_0 = 6$  ГВт/м<sup>2</sup> и диаметра облучённой области  $D = 2r_0 = 600$  нм были выбраны аналогичными параметрам оптической системы лазерной установки круговой записи CLWS-300IAE. Толщина плёнки титана в расчётах принималась равной 10 нм, соответствующей глубине проникновения излучения [12].

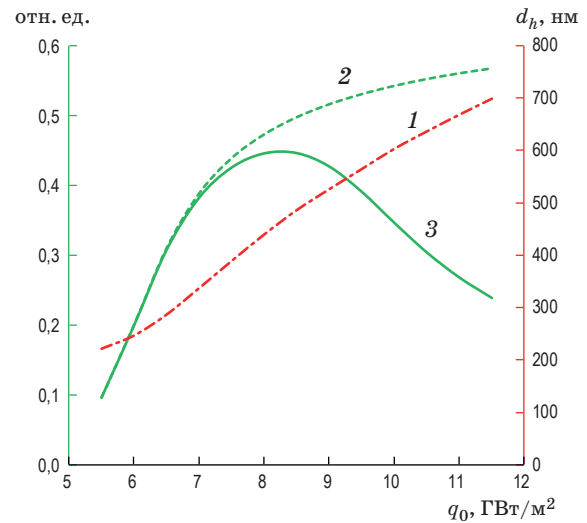
Из приведённых графиков следует, что наблюдается существенная локализация термохимического



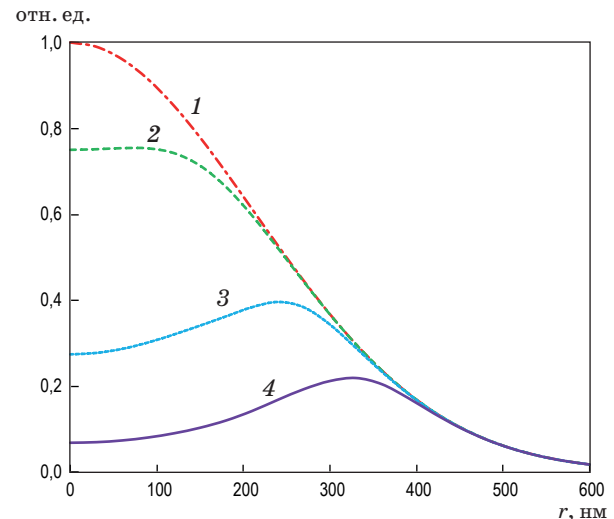
**Рис. 1.** Нормированные радиальные распределения температуры  $T^*$  (1), интенсивности излучения  $I^*$  (2), толщины слоя оксида  $h^*$  (3) и изменения пропускания  $\Pi^*$  (4).

изображения не только по сравнению с температурным изображением, значительно размытым вследствие теплопроводности, но даже по сравнению с оптическим изображением. Расчётное значение размера термохимического изображения (по толщине слоя оксида как половине от значения в центре) составляет  $d_h = 245$  нм, а размера записанного изображения (по изменению пропускания)  $d_{\Pi} = 230$  нм, что не только меньше диаметра лазерного пятна, но также и половины длины волны используемого излучения (266 нм для расчётного значения длины волны в данной работе  $\lambda = 532$  нм).

Зависимости характеристик термохимической записи от плотности мощности лазерного излучения представлены на рис. 2. С увеличением плотности мощности контраст  $K_{\Pi} = [\Pi(0) - \Pi(\infty)]/\Pi(0)$  увеличивается, но разрешающая способность уменьшается (т.е. размер термохимического изображения  $d_h$  увеличивается). Поэтому для качественной записи необходимо выбирать оптимальное значение плотности мощности. В качестве маркера для определения характеристик записи использовано нормированное отклонение пропускания между центром  $r = 0$  и точкой  $r = r_0$  облучённой области  $\Delta\Pi^* = [\Pi(0) - \Pi(r_0)]/\Pi(0)$ . Чем больше это значение, тем меньше размер области просветления в плёнке. Отметим, что для меньших значений плотности мощности (до  $7 \text{ ГВт/м}^2$ ) кривые контраста и отклонения пропускания совпадают, т.е. пропускание на расстояние  $r_0$  от центра и пропускание исходной плёнки имеют одинаковое значение. Кроме того, кривая отклонения пропускания имеет максимум при значении плот-



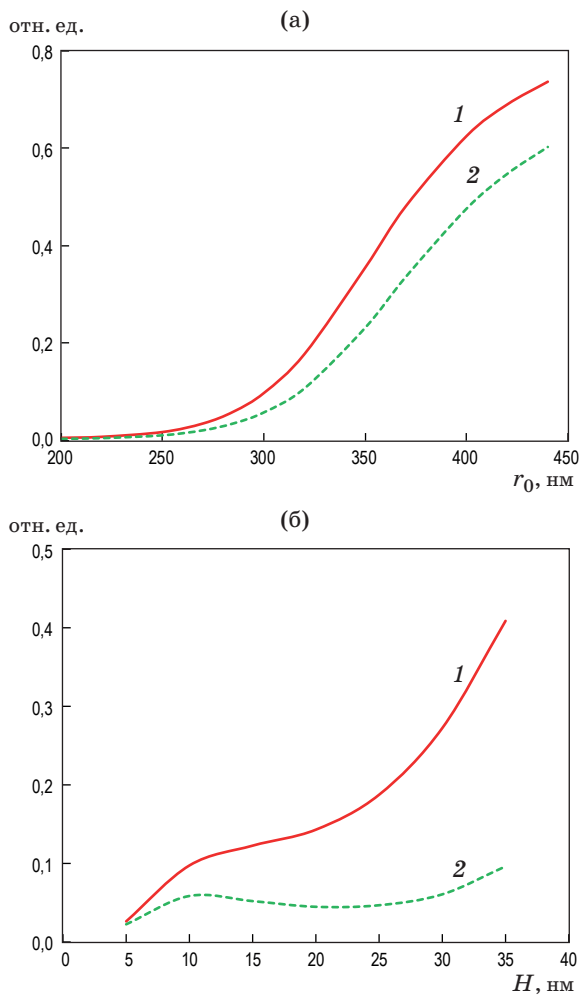
**Рис. 2.** Зависимости размера термохимического изображения  $d_h$  (1), контраста  $K_{\Pi}$  (2) и нормированного отклонения пропускания  $\Delta\Pi^*$  (3) на расстоянии  $r_0$  от центра облучённой области от плотности мощности лазерного излучения.



**Рис. 3.** Нормированные радиальные распределения плотности мощности поглощённого излучения в начальный момент (1) и в момент окончания воздействия при значениях плотности мощности лазерного излучения  $q_0 = 6 \text{ ГВт/м}^2$  (2),  $8 \text{ ГВт/м}^2$  (3),  $10 \text{ ГВт/м}^2$  (4).

ности мощности излучения  $8 \text{ ГВт/м}^2$ . Это означает, что оптимальные значения плотности мощности излучения целесообразно выбирать в диапазоне вокруг этого критического значения ( $7\text{--}9 \text{ ГВт/м}^2$ ) для достижения баланса высоких контраста и разрешения.

Особенности протекания процесса окисления, в частности, немонотонный характер зависимости пропускания в точке  $r_0$  от плотности мощности излучения, проиллюстрированы на рис. 3, где приведены графики радиального распределения плотности мощности поглощённого излучения



**Рис. 4.** Зависимости относительного значения толщины слоя оксида  $h^*(r_0)$  (1) и изменения пропускания  $\Pi^*(r_0)$  (2) на расстоянии  $r_0$  от центра облучённой области от радиуса лазерного пучка (а) и толщины плёнки (б).

в начальный момент воздействия излучения и в момент его окончания ( $\tau = 1$  мс) для различных значений плотности мощности падающего излучения. Так, для малых значений плотности мощности излучения ( $6 \text{ ГВт/м}^2$ ) реакция окисления происходит в основном в центральной части облучённой области (кривая 2). Для больших значений плотности мощности излучения ( $8$  и  $10 \text{ ГВт/м}^2$ , кривые 3 и 4) интенсивное окисление в центре приводит к образованию слоя оксида большой толщины и к снижению поглощательной способности, тогда как на удалении от центра пятна вследствие меньшей скорости протекания реакции окисления поглощательная способность плёнки остаётся высокой, что приводит к увеличению температуры, скорости окисления, количества оксида и, следовательно, пропускания. При этом пропускание в центре медленно растёт, поэтому при некотором значении плотности мощности излучения нормированное отклонение пропускания достигает свое-

го максимума и уменьшается по мере увеличения количества оксида на краю. Таким образом, положение максимума зависимости нормированного отклонения пропускания между центром и краем от плотности мощности излучения определяет диапазон оптимальных значений плотности мощности излучения.

Влияние размера лазерного пучка  $r_0$  и толщины плёнки  $H$  на разрешающую способность и контраст термохимического изображения показано на рис. 4, где приведены зависимости относительного значения толщины оксидного слоя  $h^*(r_0) = h(r_0)/h(0)$  и относительного изменения пропускания  $\Pi^*(r_0) = [\Pi(r_0) - \Pi(\infty)]/[\Pi(0) - \Pi(\infty)]$  в точке  $r_0$  от радиуса облучённой области и толщины плёнки при плотности мощности лазерного излучения  $8 \text{ ГВт/м}^2$  и продолжительности воздействия излучения  $1$  мс. Легко видеть, что с увеличением радиуса пучка и толщины плёнки размер окисленной области расширяется, т.е. высокая разрешающая способность может быть достигнута только при малых значениях размера облучённой области и толщины плёнки. Из рис. 4а видно, что в области значений радиуса пучка  $r_0 \leq 300$  нм увеличение толщины оксида и изменения пропускания не такое резкое, как в случае  $r_0 > 300$  нм. В диапазоне значений толщины плёнки от  $10$  до  $30$  нм (рис. 4б) пропускание изменяется незначительно. Поэтому расчёты прогнозируют высокие разрешение и контраст термохимического изображения на плёнках титана при диаметре облучённой области  $D \leq 600$  нм и толщине плёнки  $H = 10\text{--}30$  нм.

## ВЫВОДЫ

Проведенное моделирование локального лазерного окисления тонких плёнок титана при миллисекундном воздействии и субмикронных размерах области воздействия выявило следующие закономерности.

1. Минимальный диаметр записанного изображения на плёнке титана при диаметре облучённой области  $600$  нм и толщине плёнки  $10$  нм составляет величину  $230$  нм. Разрешающая способность может быть ещё более увеличена при уменьшении диаметра облучённой области, например, при использовании для записи излучения ультрафиолетового диапазона.

2. Диапазон оптимальных значений плотности мощности излучения, соответствующий высоким значениям как разрешающей способности, так и контраста изображения, может быть определён из положения максимума зависимости нормированного изменения пропускания в точке  $r_0$  от плотности мощности излучения, и при толщине плёнки  $10$  нм и диаметре лазерного пучка  $600$  нм составляет  $7\text{--}9 \text{ ГВт/м}^2$ .

3. Для получения качественной записи на плёнках титана предпочтительно использовать плёнки толщиной 10–30 нм.

Авторы благодарят Вейко В.П. за полезные обсуждения. Исследования проводились при финансовой поддержке РНФ-грант 17-19-01721.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Chong T.C., Hong M.H., Shi L.P. Laser precision engineering: from microfabrication to nanoprocessing // *Laser & Photonics Reviews*. 2010. V. 4. № 1. P. 123–143.
2. Veiko V.P., Yarchuk M.V., Zakoldaev R.A. et al. Picosecond laser registration of interference pattern by oxidation of thin Cr films // *Applied Surface Science*. 2017. V. 404. P. 63–66.
3. Gedvilas M., Voisiat B., Indrišiūnas S. et al. Thermo-chemical microstructuring of thin metal films using multi-beam interference by short (nano- & picosecond) laser pulses // *Thin Solid Films*. 2017. V. 634. P. 134–140.
4. Вейко В.П., Заколдаев Р.А., Синев Д.А. и др. Экспериментальная реализация и анализ возможностей термохимической лазерной интерференционной записи на плёнках титана // *Beam Technologies and Laser Application: Proceedings of the international conference*. 2016. P. 366–370.
5. Максимова С.В., Коваль В.В., Заколдаев Р.А. и др. Окисление пленок титана пикосекундными лазерными импульсами в схеме многолучевой интерференции // VII Международная конференция по фотонике и информационной оптике: Сборник научных трудов. М.: НИЯУ МИФИ, 2018. С. 478–479.
6. Полещук А.Г., Вейко В.П., Корольков В.П. Лазерные технологии для формирования структуры дифракционных оптических элементов // *Мир голографии*. 2017. Т. 3. № 1. С. 29–34.
7. Шиманский Р.В., Полещук А.Г., Корольков В.П. и др. Совмещение записывающего пучка с осью вращения дифракционной структуры при изготовлении ДОЭ в полярной системе координат // *Автометрия*. 2017. Т. 53. № 2. С. 30–38.
8. Вейко В.П., Корольков В.П., Полещук А.Г. и др. Лазерные технологии в микрооптике. Ч. 1. Изготовление дифракционных оптических элементов и фотошаблонов с амплитудным пропусканием // *Автометрия*. 2017. Т. 53. № 5. С. 66–77.
9. Veiko V.P., Poleshchuk A.G. Laser-induced local oxidation of thin metal films: physical fundamentals and applications // *Fundamentals of laser-assisted micro- and nanotechnologies* / Ed. by Veiko V.P., Konov V.I. New-York-Heidelberg: Springer Series in Materials Science. Springer verlag, 2014. V. 195. XVII. P. 149–172.
10. Wang Y., Miao J., Tian Y. et al. TiO<sub>2</sub> micro-devices fabricated by laser direct writing // *Opt. Express*. 2011. V. 19. P. 17390–17395.
11. Gorbunov A., Eichler H., Pompe W. et al. Lateral self-limitation in the laser-induced oxidation of ultrathin metal films // *Appl. Phys. Lett.* 1996. V. 69. № 19. P. 2816–2818.
12. Gorbunov A.A., Pompe W., Eichler H. et al. Nanostructuring of laser-deposited Ti films by selflimited oxidation // *Journal of the American Ceramic Society*. 1997. V. 80. № 7. P. 1663–1667.
13. Шахно Е.А., Синев Д.А., Кулажкин А.М. Особенности лазерного окисления тонких пленок титана // *Оптический журнал*. 2014. Т. 81. № 5. С. 93–98.
14. Шахно Е.А., Нгуен К.З. Динамика лазерного нагрева и окисления тонких металлических пленок с учетом изменения поглощательной способности // *Оптический журнал*. 2016. Т. 83. № 4. С. 31–37.
15. Вейко В.П. Лазерная обработка пленочных элементов. Л.: Машиностроение, 1986. 248 с.
16. Либенсон М.Н. Лазерно-индуцированные оптические и термические процессы в конденсированных средах и их взаимное влияние. СПб.: Наука, 2007. 423 с.