

# Анализ упорядоченности и дефектности структур ТЛИППС сформированных на тонких плёнках Hf астигматическим гауссовым пучком

Д.А. Белоусов<sup>1</sup>, А.В. Достовалов<sup>1,2</sup>, В.П. Корольков<sup>1</sup>, К.А. Бронников<sup>1</sup>,  
С.Л. Микерин<sup>1</sup>, С.А. Бабин<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Институт автоматки и электрометрии СО РАН, проспект академика Коптюга 1, Новосибирск, Россия, 630090

<sup>2</sup>Новосибирский государственный университет, Пирогова 1, Новосибирск, Россия, 630090

**Аннотация.** В работе представлены результаты количественной оценки упорядоченности и дефектности лазерно-индуцированных периодических поверхностных структур, сформированных на тонких плёнках Hf толщиной 15 нм по анализу их микроизображений. Исследуемые структуры были записаны астигматически сфокусированным гауссовым пучком фемтосекундного лазера с длиной волны 1026 нм, при размере пучка вдоль большой оси 150 мкм. Получены зависимости вышеописанных параметров периодических структур от скорости сканирования и мощности записывающего пучка. Применение пленок гафния позволило формировать высокоупорядоченные решетки с периодом 650-720 нм при скоростях сканирования до 2 мм/с.

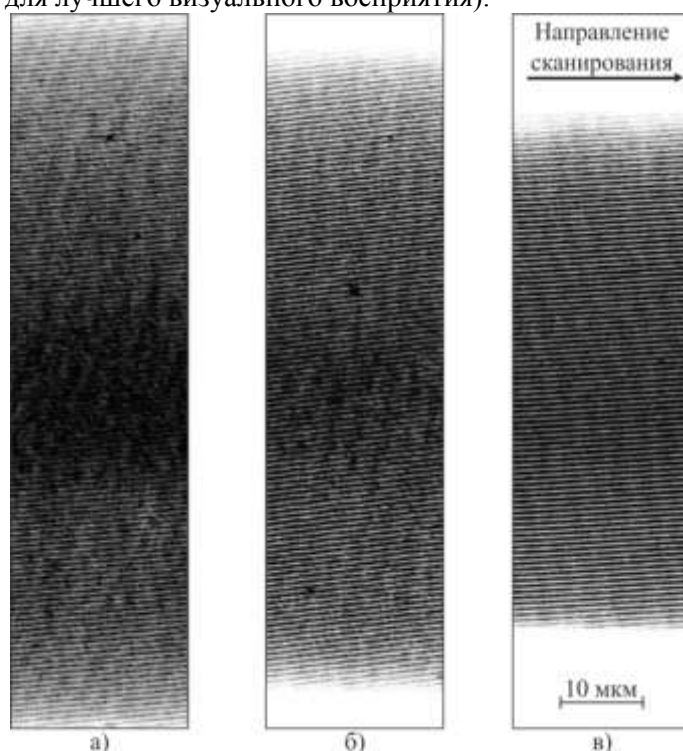
## 1. Введение

Термохимические лазерно-индуцированные периодические поверхностные структуры (ТЛИППС) представляют собой параллельные периодические оксидные выступы, образованные под действием импульсного лазерного излучения в результате поглощения света в металлической пленке [1]. В отличие от хорошо известных абляционных ЛИППС, ТЛИППС ориентированы параллельно электрическому полю записывающего лазерного пучка и более равномерны, как по периоду (разброс значений сформированных периодов на площади в 1 мм<sup>2</sup> может быть менее 1 нм, а при определенных условиях фазовые сдвиги и дефекты структуры могут быть практически полностью устранены [1]), так и по высоте, что делает их привлекательными для различных применений [2,3]. Основным механизмом формирования ТЛИППС является интерференция падающего излучения и излучения рассеянного от неровностей поверхности. Такими структурами можно покрыть большие площади, сканируя поверхность пленки лазерным пучком, получая непрерывную структуру. В предыдущих исследованиях [4] изготовление ТЛИППС проводилось с использованием пучка с круглым поперечным сечением с диаметром пятна ~ 15 мкм. Для увеличения скорости записи в работах [5,6,7], было предложено использовать астигматически сфокусированный гауссов пучок с диаметром ≈150 мкм вдоль большей оси. В работе [7], был предложен алгоритм, количественной оценки параметров упорядоченности и дефектности структур ТЛИППС по

анализу их микроизображений. В данной работе этот алгоритм был применён для анализа микроизображений структур ТЛИППС, сформированных на плёнке гафния, с целью определения вышеописанных параметров. Выбор Hf был обусловлен его пирофорным поведением, низкой теплопроводностью и высокой температурой плавления для оксида и металла.

## 2. Объект исследования

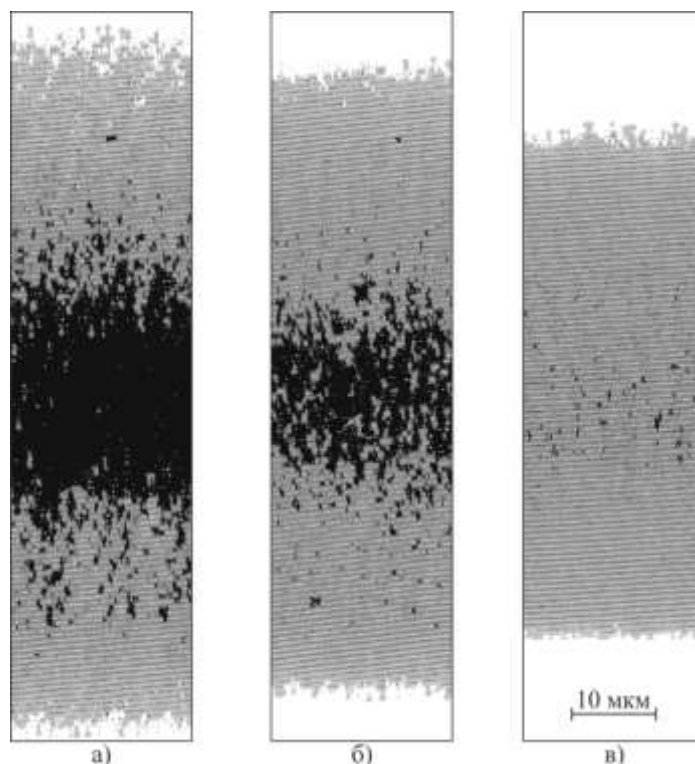
ТЛИППС, исследуемые в данной работе, были сформированы на поверхности пленки гафния толщиной 15 нм напылённой на стеклянную подложку. Запись производилась на установке прецизионной фемтосекундной модификации материалов, использующей излучение фемтосекундного лазера Light Conversion PHAROS 6W (длина волны 1026 нм, частота повторения импульсов в экспериментах - 200 кГц, длительность импульса на полувысоте 232 фс). Мощность записывающего пучка изменялась в диапазоне 200-300 мВт. Скорость сканирования в экспериментах составляла 100-500 мкм/с для мощности записывающего пучка 200 мВт, 100-2000 мкм/с для мощности 250 мВт и 300-2000 мкм/с для мощностей 275 и 300 мВт. Период записанных ТЛИППС составлял 650-720 нм [6]. Исследование дефектности и упорядоченности ТЛИППС, производилось по анализу микроизображений структур (записанных при однопроходном сканировании записывающего пучка), полученных на сканирующем электронном микроскопе (СЭМ) Hitachi TM3000 с увеличением 1200X. Примеры фрагментов обрабатываемых микроизображений приведены на рисунке 1 (приводимые оригиналы СЭМ изображений подвержены дополнительной обработке по повышению контраста и яркости для лучшего визуального восприятия).



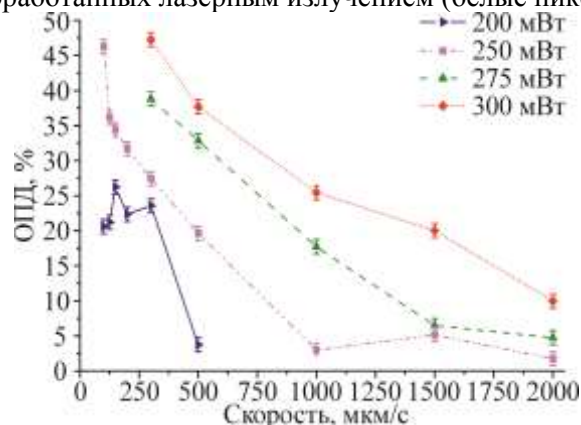
**Рисунок 1.** Фрагменты СЭМ изображений ТЛИППС, записанных при мощности пучка 250 мВт и скорости сканирования 150 мкм/с (а), 500 мкм/с (б), 2000 мкм/с (в).

## 3. Анализ дефектности и упорядоченности структур ТЛИППС

Для анализа микроизображений ТЛИППС был использован алгоритм, который подробно описан в работе [7]. Данный метод позволяет выделить на обрабатываемом микроизображении пиксели, которые относятся к области, не модифицированной лазерным излучением, пиксели, которые составляют структуру ТЛИППС, а также области дефектов (неоднородностей) на записанной периодической структуре.



**Рисунок 2.** Фрагменты СЭМ изображений ТЛИППС, записанных при мощности пучка 250 мВт и скорости сканирования 150 мкм/с (а), 500 мкм/с (б), 2000 мкм/с (в), после выделения на исследуемых микроизображениях дефектных областей ТЛИППС (чёрные пиксели) и областей не обработанных лазерным излучением (белые пиксели).



**Рисунок 3.** Относительная площадь дефектов структуры на обрабатываемых микроизображениях ТЛИППС.

На рисунке 2 показан пример обработки данным методом фрагментов микроизображений представленных на рисунке 1 (белым показана область, не модифицированная лазерным излучением, чёрным – области дефектов, а «эффективно записанная» ТЛИППС представлена в виде оттенков серого). После того, как были выделены на изображении пиксели, характеризующие модифицированную лазерным пучком область ТЛИППС и области дефектов на данной структуре, можно рассчитать относительную площадь дефектов (ОПД) для ТЛИППС записанной при данных параметрах (рисунок 3).

Анализ упорядоченности структур ТЛИППС, также осуществлялся по алгоритму, описанному в работе [7]. В основе данного алгоритма лежит метод, описанный в работе [8] в котором, для определения упорядоченности ТЛИППС предлагается использовать параметр DLOA (dispersion in the LIPSS orientation angle), который определяется с помощью свободно

доступного плагина OrientationJ [9], разработанного для программного обеспечения с открытым исходным кодом ImageJ [10]. Использование данного плагина позволяет строить карту угловой ориентации пикселей обрабатываемого изображения (вкладка «Orientation»). Последующее суммирование числа пикселей, угловая ориентация которых попадает в заданный интервал с выбранным шагом дискретизации по углу ( $\Delta\alpha$ ), позволяет построить график углового распределения пикселей на изображении, полуширина на полувысоте которого и определяет величину DLOA. В работе [8] показано, что параметр DLOA соответствует и сопоставим по величине с параметром углового размытия, получаемого при преобразовании Фурье обрабатываемого изображения, по которому также может быть оценена упорядоченность структуры. Однако, по сравнению с преобразованием Фурье, преимуществом попиксельного анализа является то, что график углового распределения можно построить с учётом только тех пикселей, которые характеризуют «эффективно записанную» периодическую структуру и определить параметр DLOA только для данной области (параметр DLOA<sub>ЭФФ.ОБЛ.</sub> на рисунке 4а), исключив тем самым из анализа упорядоченности ТЛИППС области дефектов и области, не модифицированные лазерным пучком [7]. Кроме того, в работах [5,7], для оценки упорядоченности ТЛИППС предлагается определять не только полуширину на полувысоте построенного графика углового распределения пикселей, но и нормированную площадь под графиком углового распределения (параметр НПУР<sub>ЭФФ.ОБЛ.</sub> на рисунке 4б). Увеличение параметров DLOA<sub>ЭФФ.ОБЛ.</sub> и НПУР<sub>ЭФФ.ОБЛ.</sub> свидетельствует об ухудшении упорядоченности ТЛИППС.

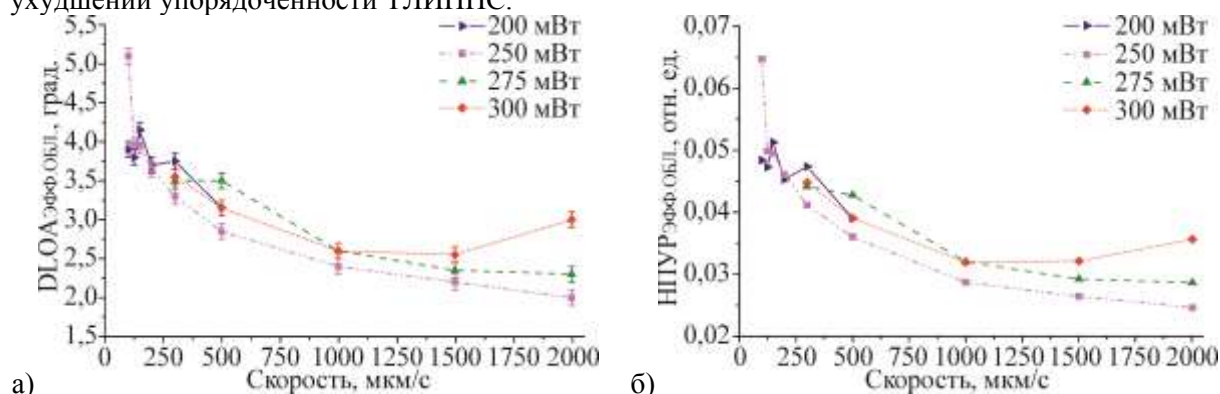


Рисунок 4. Определение упорядоченности ТЛИППС, без учёта дефектных областей: DLOA<sub>ЭФФ.ОБЛ.</sub> (а) и НПУР<sub>ЭФФ.ОБЛ.</sub> (б).

#### 4. Обсуждение результатов

Результаты анализа СЭМ изображений ТЛИППС, сформированных астигматически сфокусированным гауссовым пучком фемтосекундного лазера на плёнках Hf толщиной 15 нм показывают, что запись ТЛИППС осуществляется не равномерно в центральной области и на периферии. На краях записанных структур можно наблюдать не однородную структуру (рисунок 2). На рисунке 1 (на котором представлены необработанные изображения) в этих областях наблюдается ухудшение контраста СЭМ изображений ТЛИППС. Это может свидетельствовать о том что, несмотря на формирование периодической структуры на периферии записанной ТЛИППС, в данных областях, вероятно, отсутствует сквозное окисление металлической плёнки.

При малых скоростях сканирования в центральной области, наблюдается переэкспонирование металлической плёнки, из-за чего относительная площадь дефектов на микроизображениях в зависимости от мощности записывающего пучка варьируется от 20% до 47% для скорости сканирования 300 мкм/с. Увеличение скорости сканирования в процессе записи, приводит к уменьшению переэкспонирования центральной области, а вместе с этим, и к формированию однородной структуры ТЛИППС. Помимо этого, как видно на рисунке 4 с увеличением скорости записи улучшаются и параметры упорядоченности сформированных структур. Судя по графикам, представленным на рисунках 3 и 4, можно предположить, что для

мощностей записывающего пучка 275 мВт и 300 мВт дальнейшее увеличение скорости записи выше 2 мм/с, может позволить уменьшить дефектность формируемых ТЛИППС и улучшить их упорядоченность. Всё это свидетельствует о том, что Hf является потенциально перспективным материалом, для высокопроизводительного формирования ТЛИППС с высокой степенью упорядоченности структур.

## 5. Заключение

Произведён анализ СЭМ изображений ТЛИППС, сформированных астигматически сфокусированным гауссовым пучком фемтосекундного лазера на плёнке Hf толщиной 15 нм. Запись структур производилась при различной средней мощности лазера. Скорость записи в экспериментах составляла 100-500 мкм/с для мощности записывающего пучка 200 мВт, 100-2000 мкм/с для мощности 250 мВт и 300-2000 мкм/с для мощностей 275 и 300 мВт. Результаты обработки СЭМ изображений показывают, что при малых скоростях сканирования формируется неоднородная структура ТЛИППС с переэкспонированием металлической плёнки в центральной области записывающего пучка. В частности, для скорости записи 300 мкм/с, относительная площадь дефектов на микроизображениях исследуемых ТЛИППС варьируется от 20% до 47% в зависимости от мощности записывающего пучка. Увеличение скорости сканирования приводит к постепенному уменьшению переэкспонирования в центральной области и формированию однородной структуры. Кроме того, анализ микроизображений сформированных структур показал, что с увеличением скорости записи, улучшается и упорядоченность записанных ТЛИППС. Применение пленок гафния позволило формировать высокоупорядоченные периодические структуры с периодом 650-720 нм при скоростях сканирования до 2 мм/с, что делает данный материал потенциально перспективным, для высокопроизводительного формирования ТЛИППС.

## 6. Благодарности

Работа выполнена с использованием оборудования ЦКП «Спектроскопия и оптика» ИАиЭ СО РАН, за счет средств субсидии на финансовое обеспечение выполнения государственного задания (№ гос. регистрации АААА-А17-117052210002-7) в части обработки микроизображений и за счёт средств гранта РФФИ №19-32-90235 в части формирования ТЛИППС.

## 7. Литература

- [1] Öktem, B. Nonlinear laser lithography for indefinitely large-area nanostructuring with femtosecond pulses / B. Öktem, I. Pavlov, S. Ilday, H. Kalaycıoğlu, A. Rybak, S. Yavaş, M. Erdoğan, F.Ö. Ilday // *Nature Photonics*. – 2013. – Vol. 7(11). – P. 897-901. DOI: 10.1038/NPHOTON.2013.272.
- [2] Bonse, J. Applications of laser-induced periodic surface structures (LIPSS) / J. Bonse, S.V. Kirner, S. Höhm, N. Epperlein, D. Spaltmann, A. Rosenfeld, J. Krüger // *Proc. SPIE*. – 2017. – Vol. 10092. – P. 100920N. DOI: 10.1117/12.2250919.
- [3] Müller, F.A. Bio-Inspired Functional Surfaces Based on Laser-Induced Periodic Surface Structures / F.A. Müller, C. Kunz, S. Gräf // *Materials (Basel)*. – 2016. – Vol. 9(6). – P. 1-29. DOI: 10.3390/ma9060476.
- [4] Dostovalov, A.V. Oxide composition and period variation of thermochemical LIPSS on chromium films with different thickness / A.V. Dostovalov, V.P. Korolkov, K.A. Okotrüb, K.A. Bronnikov, S.A. Babin // *Optics Express*. – 2018. – Vol. 26(6). – P. 7712-7723. DOI: 10.1364/OE.26.007712
- [5] Достовалов, А.В. Влияние скорости сканирования на формирование ТЛИПСС радиально-симметричным и эллиптическим гауссовым фемтосекундным лазерным пучком / А.В. Достовалов, В.С. Тереньтьев, К.А. Бронников, Д.А. Белоусов, В.П. Корольков // *Прикладная фотоника*. – 2018. – Т. 5, № 3. – С. 157-172. DOI: 10.15593/2411-4367/2018.3.01.

- [6] Dostovalov, A.V. Fast formation of hybrid periodic surface structures on Hf thin-film by focused femtosecond laser beam / A.V. Dostovalov, K.A. Bronnikov, D.A. Belousov, V.P. Korolkov, S.A. Babin // Proc. SPIE. – 2019. – Vol. 11183. – P. 111830U. DOI: 10.1117/12.2537672.
- [7] Белоусов, Д.А. Метод обработки микроизображений для анализа структур ТЛИПСС / Д.А. Белоусов, А.В. Достовалов, В.П. Корольков, С.Л. Микерин // Компьютерная оптика. – 2019. – Т. 43, № 6. – С. 936-945. DOI: 10.18287/2412-6179-2019-43-6-936-945.
- [8] Gnilitskiy, I. High-speed manufacturing of highly regular femtosecond laser-induced periodic surface structures: physical origin of regularity / I. Gnilitskiy, T.J.-Y. Derrien, Y. Levy, N.M. Bulgakova, T. Mocek, L. Orazi // Scientific Reports. – 2017. – Vol. 7(1). – P. 8485. DOI: 10.1038/s41598-017-08788-z
- [9] Orientation J [Электронный ресурс]. – Режим доступа: <http://bigwww.epfl.ch/demo/orientation/> (24.12.2019).
- [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. DOI: 10.1002/mrd.22489.

## Analysis of the ordering and area of defects of the TLIPSS structures formed on thin Hf films by astigmatic Gaussian beam

D.A. Belousov<sup>1</sup>, A.V. Dostovalov<sup>1,2</sup>, V.P. Korolkov<sup>1</sup>, K.A. Bronnikov<sup>1</sup>, S.L. Mikerin<sup>1</sup>, S.A. Babin<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Institute of Automation and Electrometry of the SB RAS, Academician Koptyug ave. 1, Novosibirsk, Russia, 630090

<sup>2</sup>Novosibirsk State University, Pirogova str. 2, Novosibirsk, Russia, 630090

**Abstract.** The results of a quantitative evaluation of the ordering and area of defects of laser-induced periodic surface structures formed on 15 nm Hf film by analyzing their microimages are presented. The investigated structures were produced by astigmatically focused femtosecond Gaussian laser beam with 1026 nm wavelength and 150  $\mu\text{m}$  beam size along the major axis. The dependences of the above-described parameters of the periodic structures on the scanning speed and writing beam power have been obtained. The use of hafnium films allowed forming highly ordered gratings with a period of 650-720 nm at scanning speeds of to 2 mm/s.