

Контроль лазерной микро- и нанообработки поверхности алмаза с помощью низкокогерентной интерферометрии

В.В.Кононенко, Е.В.Бушуев, Е.В.Заведеев, П.В.Волков, А.Ю.Лукьянов, В.И.Конов

Продemonстрирована возможность применения тандемной низкокогерентной оптической интерферометрии для контроля локальной лазерной обработки поверхности алмаза. Бесконтактное измерение оптической толщины пластин монокристаллического алмаза осуществлялось непосредственно в процессе воздействия на поверхность мощного импульсно-периодического лазерного излучения. Исследована динамика утоньшения монокристалла в двух принципиально различных режимах лазерного травления поверхности: абляционном (эксимерный KrF-лазер, $\lambda = 248$ нм, $\tau = 20$ нс) и наноабляционном (Ti:сапфировый лазер, $\lambda = 266$ нм, $\tau = 100$ фс).

Ключевые слова: алмаз, лазерная абляция, лазерная наноабляция, низкокогерентная интерферометрия.

1. Введение

В последние годы благодаря развитию технологий осаждения вещества из газовой фазы стало возможным получение синтетических монокристаллических алмазных пластин с размерами и качеством, достаточными для создания на их основе не только фотонных [1–5], но и (в перспективе) квантовых устройств [6–9]. Прецизионные технологии микро- и нанообработки поверхности алмаза являются одними из ключевых элементов развития алмазной фотоники и в дальнейшем будут определять ее практические возможности [10]. С этим связан длительный интерес к исследованиям лазерно-индуцированных процессов в алмазе, достаточно разнообразных и эффективных с точки зрения контролируемой и производительной обработки этого чрезвычайно твердого и химически инертного кристалла.

Сегодня можно выделить два технологически важных процесса, которые могут быть инициированы при соответствующем лазерном воздействии. Во-первых, это классическая испарительная абляция, которая сопровождается графитизацией поверхности алмаза и характеризуется относительно высокой скоростью выноса материала (свыше 10 нм/имп.) [11–15]. Второй режим воздействия на поверхность алмаза реализуется при плотности лазерной энергии, не превышающей порога графитизации. Травление при этом не останавливается, однако его скорость кардинально падает – до менее 10^{-3} нм/имп., что дало основание использовать для описания этого режима

термин «наноабляция» [16, 17]. По существу наноабляция является фотостимулированным окислением поверхности алмаза: для ее протекания необходим кислород, а ее продуктами являются летучие окислы углерода. В последнее время интерес к наноабляционному режиму обработки возрос, поскольку было показано, что в процессе фотохимической реакции на поверхности образуются дефекты типа «вакансия», которые затем диффундируют в глубь кристалла и, реагируя там с замещающим азотом, формируют азотно-вакансионные комплексы (NV центры) [18].

Оба описанных процесса (абляция и наноабляция) нуждаются в методах бесконтактного on-line контроля, которые бы позволили дозировать облучение и получать в зоне лазерного воздействия структуру с заранее заданными параметрами: количеством удаленного материала, количеством созданных в приповерхностном слое дефектов и т. д. Одними из наиболее перспективных для этой цели являются интерференционные методы, позволяющие в режиме реального времени контролировать рельеф поверхности образца. Однако применение традиционной когерентной интерферометрии как в абляционном, так и в наноабляционном режимах обработки алмаза имеет ограничения. При абляции существенно увеличивается шероховатость поверхности, что затрудняет измерения. Получение релевантных данных также затруднено, если скорость удаления материала за импульс превышает величину порядка длины волны. В случае наноабляции ключевой проблемой является обеспечение сверхвысокой точности измерения глубины лазерного травления, которая не должна превышать 1 нм. В настоящей работе исследуется возможность преодоления указанных проблем с помощью низкокогерентной волоконно-оптической интерферометрии, уже применявшейся для контроля за процессом лазерного макропрофилирования алмаза [19].

2. Эксперимент

Схема экспериментальной установки представлена на рис.1. Для обработки поверхности алмазных пластин в режиме абляции использовался эксимерный KrF-лазер

В.В.Кононенко, Е.В.Заведеев, В.И.Конов. Институт общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Россия, 115409 Москва, Каширское ш., 31;

e-mail: vitali.kononenko@nsc.gpi.ru

Е.В.Бушуев. Институт общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38

П.В.Волков, А.Ю.Лукьянов. Институт физики микроструктур РАН, Россия, 603087 Нижегородская область, Кстовский район, дер. Афонино, Академическая улица, 7

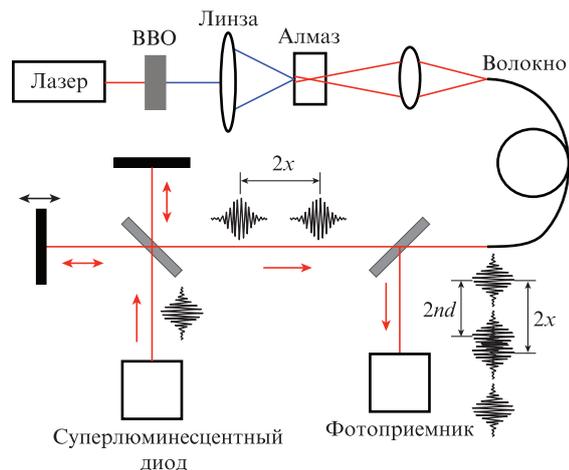


Рис.1. Установка для контролируемой лазерной обработки алмазных пластин.

CL-7100 («Оптосистемы»), генерирующий импульсы излучения на $\lambda = 248$ нм длительностью $\tau = 20$ нс. Энергия лазерного импульса составляла 200 мДж при частоте их следования 50 Гц. Лазерный пучок освещал квадратную маску, изображение которой проецировалось на обрабатываемую поверхность в виде равномерно освещенного пятна размером 40×40 мкм.

Лазерная система для травления алмаза в наноабляционном режиме включала в себя Ti:сапфировый генератор Tsunami (Spectra Physics) и регенеративный усилитель Spitfire (Spectra Physics), формирующие импульсы с $\tau = 120$ фс на $\lambda = 800$ нм. После утроения частоты лазерное излучение с $\lambda = 266$ нм фокусировалось на поверхность образца сферической линзой с фокусным расстоянием 100 мм. Диаметр пучка в перетяжке составлял при этом ~ 10 мкм по уровню $1/e$.

В экспериментах использовались оптически прозрачные пластины монокристалла алмаза, выращенного с помощью плазмохимического осаждения. Толщина пластин варьировалась от 500 до 700 мкм. После двухсторонней механической полировки глубина шероховатости поверхностей образцов составляла 2–3 нм. Установка обеспечивала одновременное управление перемещением образца и его облучение требуемым числом лазерных импульсов.

В основе работы используемой системы мониторинга толщины прозрачных пластин лежит известный метод tandemной низкокогерентной интерферометрии (см. напр., обзор [20]). Зондирующий пучок низкокогерентного интерферометра совмещался на обрабатываемой поверхности с пучком обрабатывающего лазера, что позволяло непосредственно отслеживать локальное изменение толщины образца в ходе многоимпульсного лазерного воздействия. В нашем случае источником низкокогерентного света служил суперлюминесцентный диод, излучающий на $\lambda = 1556$ нм. Ширина полосы излучения составляла ~ 60 нм, а длина когерентности – около 20 мкм. Схема представляет собой два последовательно оптически связанных интерферометра, один из которых (интерферометр Майкельсона) позволяет контролируемо перестраивать разность длин плеч, а вторым является измеряемый объект (квазиплоскопараллельная пластинка алмаза). Толщина образца измерялась с необрабатываемой стороны (рис.1), что позволяло исключать влияние непрозрач-

ного графитоподобного слоя, образующегося в процессе абляции.

Используемый метод измерения толщины прозрачного объекта основан на том, что для пучков частично когерентного света интерференция возникает только тогда, когда оптическая разность хода между этими пучками не превышает определенную величину, так называемую длину когерентности источника излучения. Интерференция на выходе наблюдалась при условии, что разности длин плеч обоих интерферометров отличались друг от друга менее чем на длину когерентности источника, т.е. выполнялось условие $|L_2 - L_1| < L_{\text{coh}}$, где L_1, L_2 – разности длин плеч первого и второго интерферометров.

Свет от суперлюминесцентного диода делился в перестраиваемом интерферометре на два пучка с оптической разностью хода $2x$. При отражении от образца каждый из этих пучков снова делился на два и, таким образом, на фотоприемник приходило четыре пучка (рис.1). При этом интерференционная картина на фотоприемнике может быть создана либо при нулевой разности плеч перестраиваемого интерферометра, либо при разности плеч интерферометра, равной удвоенной оптической толщине измеряемой пластины $2nd$ (n – показатель преломления, d – толщина). Таким образом, измерение оптической толщины образца сводится к сканированию разности плеч интерферометра и нахождению положения максимума огибающей интерференционного сигнала (интерференционного пика), получаемого с фотодиода. Оптическая связь между опорным интерферометром и объектом осуществлялась по оптическому волокну с фокусировкой света на образец с помощью объектива. Более подробное описание методики можно найти в работах [19, 21, 22].

В качестве эталона для получения данных о глубине абляционных и наноабляционных кратеров, создаваемых заданным количеством лазерных импульсов и измеряемых *in situ* в режиме реального времени, использовался интерференционный профилометр New View 5000 (Zygo Corp.). После лазерной обработки рельеф поверхности в зоне облучения и вокруг нее восстанавливался *ex situ* с его помощью с нанометровой точностью.

3. Результаты и их обсуждение

3.1. Абляция

При облучении алмаза с помощью эксимерного KrF-лазера энергия импульса составляла 55 мДж, а ее плотность на поверхности образца была равна 17 Дж/см². При этом в процессе лазерной абляции интерференционный сигнал постепенно уменьшался и после ~ 20 импульсов деградировал так, что вычисление толщины образца в данной точке становилось невозможным. В этот момент облучение останавливалось и глубина кратера D измерялась интерференционным профилометром.

Характерный рельеф поверхности после лазерного воздействия, приведенный на рис.2, иллюстрирует процесс абляции. Постепенное уменьшение видности интерференционной картины обусловлено, скорее всего, ухудшением условий отражения от дна кратера. Видно, что неплоскостность всего дна кратера достигает почти 2 мкм. Перепад глубины в пределах пятна низкокогерентного излучения меньше, ~ 1 мкм. Однако даже при таком перепаде сдвиг фазы волнового фронта в отраженном пучке существенно превышает длину волны. Получение при

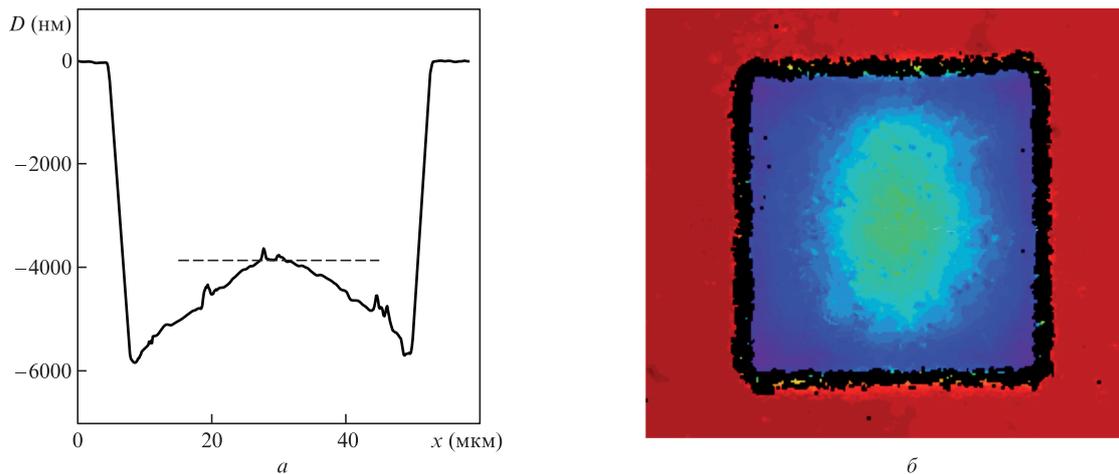


Рис.2. Профиль (а) и рельеф (б) поверхности алмазной пластины после лазерного облучения в режиме абляции (сплошная кривая). Штриховая линия указывает глубину травления, полученную из результатов измерения толщины образца с помощью низкокогерентной интерферометрии. Цветной вариант рис.2 помещен на сайте нашего журнала <http://www.quantum-electron.ru>.

этом адекватных результатов измерений толщины образца можно объяснить, предположив, что вклад в интерференционный сигнал дает преимущественно центральная часть пучка, а «крылья» не попадают в апертуру объектива из-за появления наклона поверхности на дне кратера (рис.2). Это предположение подтверждается тем, что получаемые с помощью тандемной интерферометрии данные очень хорошо согласуются с глубиной рельефа в центральной части кратера.

При этом измерения показали строгую линейную зависимость глубины травления от количества импульсов облучения: среднее отклонение результатов измерений от их линейной аппроксимации составило ~ 10 нм (рис.3). Наклон зависимости глубины кратера от количества импульсов определяет среднюю скорость удаления материала в установившемся режиме травления. В рассматриваемых условиях она составила 210 ± 10 нм/имп., т.е. относительное отклонение скорости абляции алмаза от среднего значения не превышало 5%. Это значение соответствует величине флуктуации энергии отдельного импульса, которая также составляла $\sim 5\%$.

Отметим и четкую характерную особенность первого импульса облучения, создающего кратер, глубина которого заметно меньше, чем ее увеличение в результате воздействия каждого последующего импульса. В условиях

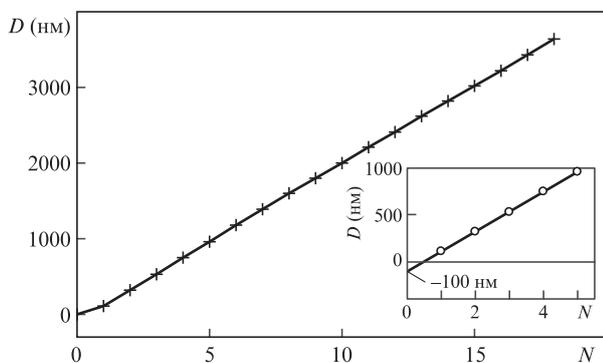


Рис.3. Зависимость глубины абляционного кратера от числа N импульсов облучения по результатам измерения толщины образца с помощью низкокогерентной интерферометрии. На вставке показана особенность абляции алмаза первым импульсом цуга.

эксперимента различие составило ~ 100 нм (см. вставку на рис.3). Эта особенность связана с отсутствием на поверхности алмаза графитизованного слоя, который формируется именно первым импульсом. В результате поглощение излучения и соответствующий разогрев материала при воздействии первого импульса существенно меньше, что приводит к меньшему количеству испаренного материала.

3.2. Наноабляция

Наноабляционное травление алмаза проводилось при плотности лазерной энергии, на 10% меньшей порога многоимпульсной графитизации [23]. Процедура облучения состояла из семи серий с разным количеством импульсов, в течение каждой из которых собирались данные о толщине пластины в зоне облучения. Полученные кратеры, пример топологии которых показан на рис.4, имели глубину до 200 нм. Таким образом, *in situ* (низкокогерентная интерферометрия) и *ex situ* (оптическая профилометрия) данные сопоставлялись не только для максимальной дозы облучения, как в случае с испарительной абляцией, но и для промежуточных доз.

Зависимости толщины алмаза от дозы облучения для разных серий облучения представлены на рис.5. Для наглядности зависимости смещены относительно друг друга на 4 нм. В действительности начальные толщины в разных точках поверхности различались на ~ 100 нм, что связано с неплоскостью образца. Отметим, что в отсутствие облучения разброс последовательных значений толщин составлял ~ 2 нм и определялся преимущественно точностью оцифровки интерференционного сигнала. Полученные данные показывают, что в процессе облучения толщина образца уменьшается (формируется кратер), и это уменьшение линейно зависит от дозы облучения. Эта корреляция позволяет, усредняя в режиме реального времени шум отдельных измерений, определять глубину травления с субнанометровой точностью.

Однако существуют две проблемы. Во-первых, хотя первоначальная толщина образца (~ 510 мкм) была измерена корректно, рассчитанные глубины кратеров были занижены в несколько раз по сравнению с *ex situ* измерениями. На вставке к рис.5 представлены данные опти-

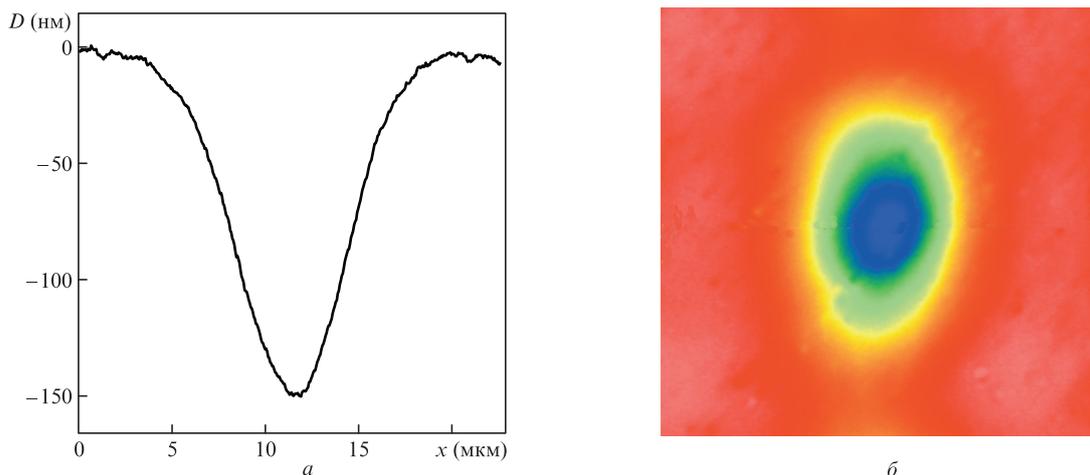


Рис.4. Профиль (а) и рельеф (б) поверхности алмазной пластины после лазерного облучения в режиме наноблажи. Цветной вариант рис.4 помещен на сайте нашего журнала <http://www.quantum-electron.ru>.

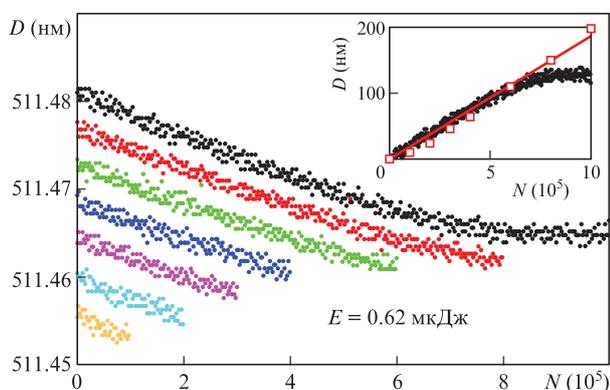


Рис.5. Уменьшение толщины алмазной пластины в результате наноблажи ее поверхности для разных серий облучения (подробнее см. в тексте). На вставке – зависимость глубины наноблажонного кратера от дозы облучения, полученные *in situ* с помощью низкокогерентной интерферометрии (точки) и *ex situ* с помощью оптического профилометра (квадраты).

ческой профилометрии и низкокогерентной интерферометрии, причем последние увеличены в $K = 8$ раз. При такой поправке наблюдается хорошее соответствие результатов, полученных с использованием двух методов. Отметим, что пока кратер неглубокий, данные *in situ* измерений даже ближе к ожидаемой линейной зависимости, поскольку они проводятся в одной точке образца, тогда как *ex situ* измерения сделаны в разных точках. Вторая проблема состоит в том, что указанная линейность нарушается, когда глубина кратера достигает ~ 100 нм.

Оба артефакта являются, на наш взгляд, следствием несогласованности размеров зоны травления и зоны измерения. Как уже отмечалось, толщины используемых пластин варьировались в диапазоне 500–700 мкм. В этих условиях, чтобы обеспечить эквивалентные условия отражения зондирующего пучка от обеих поверхностей алмаза, фокусное расстояние объектива составляло 240 мм. Размер пятна при этом был равен ~ 30 мкм, что меньше размера зоны обработки в абляционном режиме (~ 40 мкм) и больше ее размера в наноблажонном режиме (~ 10 мкм). Увеличить размер зоны наноблажи в описываемых экспериментах было нельзя: лимитирующим фактором являлась энергия импульса третьей гармоники, которая использовалась для воздействия на алмаз.

В результате интерференционный сигнал разбивался на две компоненты, отраженные от обработанного и от необработанного участков поверхности. Огибающая первой компоненты сдвигалась при травлении, огибающая второй была неподвижна. Суммарная огибающая также сдвигалась, но значительно медленнее. В первом приближении этот сдвиг уменьшался в соответствии с отношением интенсивности полезного сигнала (отраженного из кратера) к суммарной интенсивности отраженного сигнала. Указанное отношение легко оценить из отношения площадей зоны травления и зоны, освещенной низкокогерентным светом. Оно составляет $(30 \text{ мкм} / 10 \text{ мкм})^2 = 9$, что согласуется с коэффициентом $K = 8$, величина которого была подобрана, чтобы согласовать результаты *in situ* и *ex situ* измерений.

Насыщение глубины травления также является следствием слишком большого размера зоны измерений. С увеличением глубины наноблажонного кратера растет угол наклона его стенок. При этом, как уже упоминалось, часть отраженного излучения теряется, причем теряется именно полезный сигнал; сигнал, отраженный от необработанного участка, остается постоянным. Уменьшение доли полезного сигнала приводит, в свою очередь, к увеличению коэффициента K и к нелинейности зависимости глубины кратера от дозы облучения.

4. Выводы

Проведенные исследования показали возможность применения низкокогерентной оптической интерферометрии для локального бесконтактного измерения оптической толщины монокристаллических пластин алмаза и для прецизионного on-line контроля лазерного травления этих пластин, например при изготовлении дифракционных оптических элементов и элементов нанопотоники. Показано, что данный метод может быть использован для контроля лазерного структурирования поверхности в обоих режимах лазерного воздействия на алмаз: испарительной абляции и фотостимулированной наноблажи. В режиме реального времени достигнута точность контроля глубины воспроизводимого рельефа не хуже 10 нм, что открывает путь к автоматизации процессов лазерного профилирования, а также микро- и наноструктурирования прозрачных сверхтвердых материалов.

Работа поддержана грантом Российского научного фонда (проект 14-22-00243).

1. Кононенко В.В., Кононенко Т.В., Конов В.И., Пименов С.М., Гарнов С.В., Тищенко А.В., Прохоров А.М., Хомич А.В. *Квантовая электроника*, **26** (2), 158 (1999) [*Quantum Electron.*, **29** (2), 1058 (1999)].
2. Кононенко В.В., Конов В.И., Пименов С.М., Прохоров А.М., Павельев В.С., Соيفер В.А. *Квантовая электроника*, **26** (1), 9 (1999) [*Quantum Electron.*, **29** (1), 9 (1999)].
3. Lee K.G., Chen X.W., Eghlidi H., Kukura P., Lettow R., Renn A., Sandoghdar V., Gotzinger S. *Nat. Photon.*, **5**, 166 (2011).
4. Castelletto S., Harrison J.P., Marseglia L., Stanley-Clarke A.C., Gibson B.C., Fairchild B.A., Hadden J.P., Ho Y.-L.D., Hiscocks M.P., Ganesan K., Huntington S.T., Ladouceur F., Greentree A.D., Praver S., O'Brien J.L., Rarity J.G. *New J. Phys.*, **13**, 025020 (2011).
5. Sotillo B., Bharadwaj V., Hadden J. P., Sakakura M., Chiappini A., Fernandez T.T., Longhi S., Jedrkiewicz O., Shimotsuma Y., Criante L., Osellame R., Galzerano G., Ferrari M., Miura K., Ramponi R., Barclay P.E., Eaton S.M. *Sci. Reports*, **6**, 052330 (2016).
6. Wrachtrup J., Jelezko F. *J. Phys.: Condensed Matter*, **18**, S807 (2006).
7. Kurtsiefer C., Mayer S., Zarda P., Weinfurter H. *Phys. Rev. Lett.*, **85**, 290 (2000).
8. Neumann P., Beck J., Steiner M., Rempp F., Fedder H., Hemmer P.R., Wrachtrup J., Jelezko F. *Science*, **329**, 542 (2010).
9. Siyushev P., Pinto H., Voros M., Gali A., Jelezko F., Wrachtrup J. *Phys. Rev. Lett.*, **110**, 167402 (2013).
10. Aharonovich I., Greentree A.D., Praver S. *Nat. Photon.*, **5**, 397 (2011).
11. Rothschild M., Arnone C., Ehrlich D.J. *J. Vac. Sci. Technol. B*, **4**, 310 (1986).
12. Конов В.И., Пименов С.М., Прохоров А.М., Смолин А.А., Чаплиев Н.И. *Квантовая электроника*, **18** (9), 1096 (1991) [*Sov. J. Quantum Electron.*, **21** (9), 993 (1991)].
13. Preuss S., Stuke M. *Appl. Phys. Lett.*, **67**, 338 (1995).
14. Кононенко В.В., Кононенко Т.В., Пименов С.М., Синявский М.Н., Конов В.И., Даусингер Ф. *Квантовая электроника*, **35** (3), 25 (2005) [*Quantum Electron.*, **35** (3), 25 (2005)].
15. Shinoda M., Gattass R.R., Mazur E. *J. Appl. Phys.*, **105**, 053102 (2009).
16. Кононенко В.В., Комленок М.С., Пименов С.М., Конов В.И. *Квантовая электроника*, **37** (11), 1043 (2007) [*Quantum Electron.*, **37** (11), 1043 (2007)].
17. Гололобов В.М., Кононенко В.В., Конов В.И. *Квантовая электроника*, **46** (12), 1154 (2016) [*Quantum Electron.*, **46** (12), 1154 (2016)].
18. Kononenko V.V., Vlasov I.I., Gololobov V.M., Kononenko T.V., Semenov T.A., Khomich A.A., Shershulin V.A., Krivobok V.S., Konov V.I. *Appl. Phys. Lett.*, **111**, 081101 (2017).
19. Кононенко В.В., Конов В.И., Пименов С.М., Волков П.В., Горюнов А.В., Иванов В.В., Новиков М.А., Маркелов В.А., Тертышник А.Д., Уставщиков С.С. *Квантовая электроника*, **35** (7), 622 (2005) [*Quantum Electron.*, **35** (7), 622 (2005)].
20. Rao Y.-J., Jackson D.A. *Measurement Sci. Technol.*, **7**, 981 (1996).
21. Volkov P.V., Goryunov A.V., Daniltsev V.M., Luk'yanov A.Y., Pryakhin D.A., Tertyshnik A.D., Khrykin O.I., Shashkin V.I. *J. Cryst. Growth*, **310**, 4724 (2008).
22. Bushuev E.V., Yurov V.Y., Bolshakov A.P., Ralchenko V.G., Ashkinazi E.E., Ryabova A.V., Antonova I.A., Volkov P.V., Goryunov A.V., Luk'yanov A.Y. *Diamond Related Mater.*, **66**, 83 (2016).
23. Kononenko V.V., Gololobov V.M., Konov V.I. *Appl. Phys. A*, **122**, 1 (2016).