

УДК 535-94

СОЗДАНИЕ ОПТИЧЕСКИХ МИКРОСТРУКТУР С ГРАДИЕНТНЫМ ПОКАЗАТЕЛЕМ ПРЕЛОМЛЕНИЯ МЕТОДОМ ДВУХФОТОННОЙ ЛАЗЕРНОЙ ЛИТОГРАФИИ

© 2023 г. М. Д. Апарин¹ *, Т. Г. Балуюян¹, М. И. Шарипова¹, М. А. Сиротин¹,
Е. В. Любин¹, И. В. Соболева¹, В. О. Бессонов¹, А. А. Федянин¹

¹Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования
“Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова”, Физический факультет, Москва, Россия

*E-mail: aparin@nanolab.phys.msu.ru

Поступила в редакцию 05.12.2022 г.

После доработки 23.12.2022 г.

Принята к публикации 27.02.2023 г.

Метод двухфотонной литографии использован для изготовления оптических микроструктур с градиентом показателя преломления. На примере параллелепипедов, при печати которых используются заданные линейное или гауссово пространственные распределения мощности лазерного излучения, показана принципиальная возможность локально изменять показатель преломления на величину до 0.03. Предложенный метод перспективен для создания микрооптических элементов.

DOI: 10.31857/S0367676523701405, EDN: VKYZQG

ВВЕДЕНИЕ

Градиентная оптика, или GRIN (gradient index) оптика – раздел оптики, изучающий особенности распространения света в оптически неоднородных средах, показатель преломления которых зависит от координат [1]. В градиентных материалах, в отличие от однородных, траектории световых лучей искривляются за счет переменного показателя преломления. Это позволяет использовать подобные материалы для создания оптических элементов с произвольной формой поверхности, что может применяться в системах волоконно-оптической связи и визуализации [2, 3] а также в оптических медицинских приборах [4]. Известен ряд способов получения материалов с градиентом показателя преломления: химическое осаждение из газовой фазы [5], ионный обмен [6], нейтронное облучение [7], термическое напыление [8], фотолитография [9, 10]. Несмотря на разнообразие этих методов, все они ограничены применимостью для создания трехмерных объектов произвольной формы, особенно если необходимо получить структуру размерами в десятки микрометров. Существуют методы трехмерной печати элементов градиентной оптики, однако в основном это макрообъекты с характерными размерами порядка сантиметров и разрешением в доли миллиметров [11].

Двухфотонная лазерная литография (ДЛЛ) – метод микролитографии, основанный на двухфотонном поглощении лазерного излучения в объеме фоторезиста с последующей полимеризацией и отверждением экспонированного объема вещества. Объем полимеризуемого фоторезиста в результате двухфотонного поглощения локализован в окрестности фокального пятна лазерного излучения. Перемещая фокальное пятно по заранее заданной траектории в объеме фоторезиста, можно получать трехмерные микроструктуры с разрешением до 100 нм [12, 13].

Плотность и оптические свойства структур, изготовленных методом ДЛЛ, зависят от параметров печати, например мощности используемого лазерного излучения [14]. Соответственно, изменяя мощность излучения непосредственно во время печати, можно менять и оптические свойства структур, задавая необходимый профиль градиента показателя преломления, причем для любой наперед заданной трехмерной формы. На данный момент продемонстрировано применение ДЛЛ для создания GRIN-элементов в пористом кремнии [15] и тонких пленках [16]. Такие объекты, однако, ограничены в применении, поскольку пористые структуры затруднительно использовать в сочетании с оптическими волноводами, а тонкие пленки ограничивают размеры и

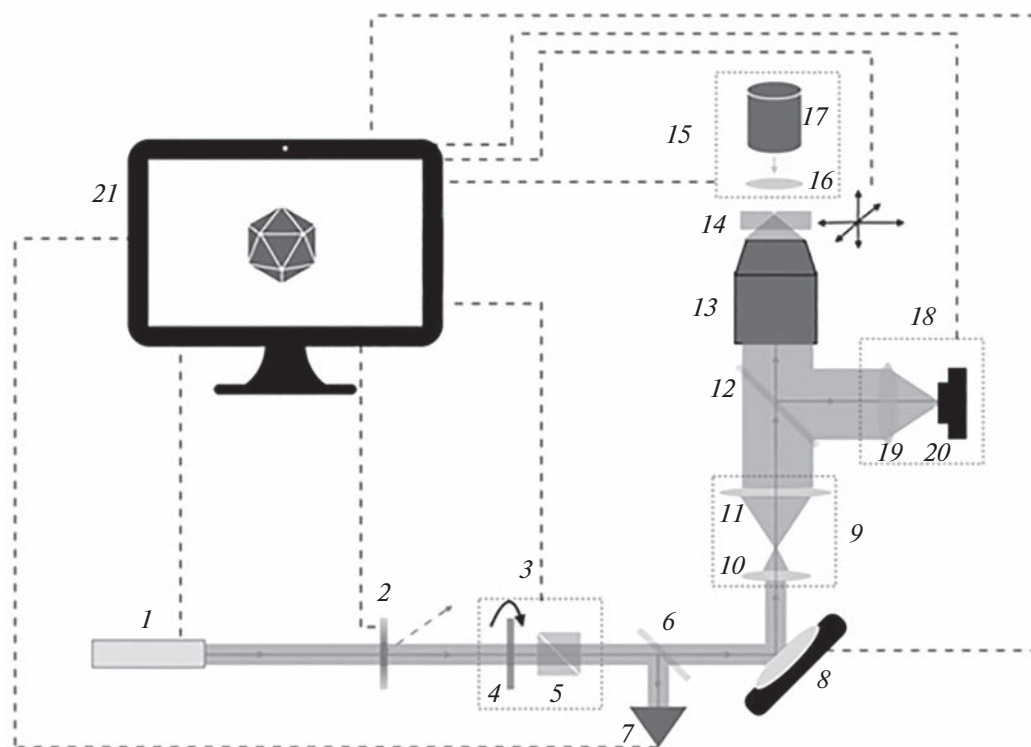


Рис. 1. Схема экспериментальной установки двухфотонной лазерной литографии: 1 – лазер; 2 – акустооптический модулятор; 3 – оптическая система контроля мощности; 4 – полуволновая фазовая пластина; 5 – призма Глана–Тейлора; 6 – светоделительная пластина; 7 – фотодиод; 8 – гальвозеркало; 9 – телескопическая система из линз 10 и 11; 12 – светоделительная пластина; 13 – объектив; 14 – фоторезист; 15 – система подсветки; 16 – собирающая линза; 17 – светодиод; 18 – система визуализации из собирающей линзы 19 и камеры 20; 21 – компьютер.

форму структур, фактически сводя трехмерную литографию к двумерной.

В данной работе методика ДЛЛ адаптирована для изготовления трехмерных микроразмерных структур с непрерывным градиентом показателя преломления, в том числе усовершенствован способ печати методом двухфотонной литографии для изготовления микроструктур с градиентным показателем преломления, изготовлены тестовые структуры с градиентным показателем преломления методом двухфотонной лазерной литографии, а также проведено картирование показателя преломления в изготовленных микроструктурах.

ИЗГОТОВЛЕНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ОБРАЗЦОВ

На рис. 1 показана схема экспериментальной установки для изготовления микроструктур методом ДЛЛ. В качестве источника излучения использовался фемтосекундный лазер TOptica FemtoFiber с центральной длиной волны 780 нм и длительностью импульса 150 фс. Лазерное излучение при помощи системы зеркал направляется

на акустооптический модулятор. Далее излучение, которое отклоняется в направлении первого дифракционного максимума акустооптического модулятора, проходит через систему контроля мощности, состоящую из полуволновой пластины и призмы Глана, и подается на двухкоординатное подвижное гальваническое зеркало, которое позволяет перемещать фокальное пятно лазерного излучения в пределах фокальной плоскости объектива, который фокусирует излучение в объеме фоторезиста. Объектив установлен на пьезоэлектрический транслятор и может перемещаться в направлении, перпендикулярном фокальной плоскости.

Для печати градиентных микроструктур использовался фоторезист SZ2080 (IESL-Forth, Греция) [17]. Фоторезист наносился на стеклянную подложку, очищенную по следующей трехстадийной методике: первичной очистки поверхности за счет промывки ацетоном, изопропиловым спиртом и дистиллированной водой (1), химической очистки поверхности за счет выдержки подложек в “пиранье” (смесь перекиси водорода с концентрированной серной кислотой в объемном соотношении 2 : 3) в течение 30 мин (2), и выдерживания в кислородной плазме в течение

пяти минут (3). Жидкий фоторезист наносится на подложку, которая затем выдерживается в печи при температуре 100°C в течение 60 мин.

В экспериментальной установке опорная мощность лазерного излучения задается с помощью полуволновой пластинки. Для того чтобы создать градиент показателя преломления в печатаемой структуре, рабочая мощность относительно опорной изменяется непосредственно в процессе печати при помощи акустооптического модулятора, поскольку этот элемент позволяет обеспечивать необходимую скорость изменения мощности в процессе печати микроструктур. Управление мощностью осуществляется путем изменения управляющего напряжения на модуляторе. Зависимость пропускания модулятора от подаваемой мощности носит нелинейный характер. Для ее определения была измерена градуировочная кривая акустооптического модулятора. Для этого на модулятор подавалось напряжение в интервале от 0 до 10 В с шагом 0.1 В и измерялась мощность прошедшего излучения в первом дифракционном максимуме при помощи фотодиода. Измерения были проведены для выходного лазерного излучения с тремя различными мощностями: 80, 160 и 240 мВт (рис. 2). Затем проводилась нормировка всех кривых на максимальное значение проходящей мощности излучения. Таким образом, было показано, что градуировочная кривая акустооптического модулятора не зависит от мощности используемого лазерного излучения.

В качестве образца для печати был выбран прямоугольный параллелепипед с квадратным основанием размерами $25\text{ мкм} \times 25\text{ мкм}$ и высотой 3 мкм. Печать осуществлялась на скоростях перемещения лазерного луча в диапазоне от 1000 до 3500 мкм/с с шагом в 1250 мкм/с, и рабочей мощностью в пределах от 1 до 5 мВт с шагом 1 мВт.

Напечатанные параллелепипеды имели два разных профиля распределения мощности печати вдоль одной из сторон квадратного основания: линейный и гауссов. Такие профили были выбраны в качестве модельных, поскольку они позволяют продемонстрировать эффективность метода печати и произвести сравнение друг с другом. Линейная зависимость интенсивности реализована таким образом, что минимальное значение интенсивности присваивается минимальному значению координаты для структуры, а максимальное значение интенсивности присваивается максимальному значению координаты. Функция Гаусса задается координатами пика, где значение интенсивности максимальное, и от положения пика выбирается ширина линии, так, чтобы на краях фигуры мощность излучения была мини-

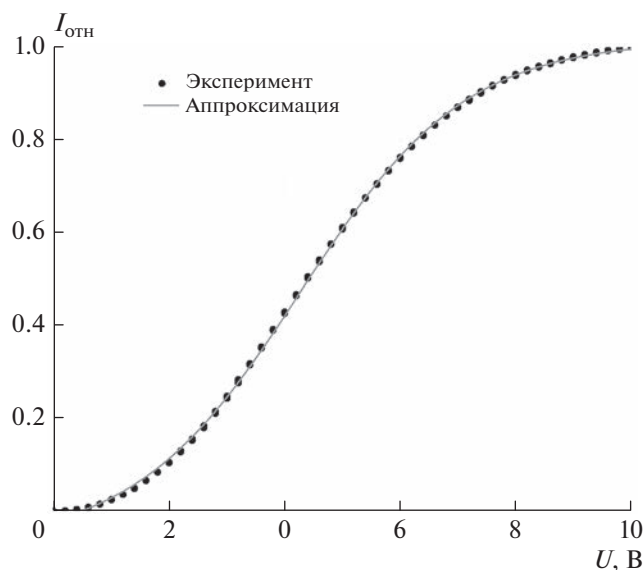


Рис. 2. Зависимость относительной интенсивности лазерного излучения ($I/I_{\text{макс}}$), прошедшего через АОМ, от прикладываемого на модулятор напряжения. График зависимости – аппроксимация функцией Больцмана.

мальной. Параметры линейной и гауссовых функций менялись для получения образцов с разным градиентом показателя преломления.

После печати методом ДЛЛ экспонированные образцы проявлялись в метилизобутилкетоне в течение двух часов, затем промывались дистиллированной водой и высушивались.

РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 3а представлены микрофотографии изготовленных массивов структур, сделанные при помощи оптического микроскопа. Каждому образцу соответствуют уникальные параметры печати, такие как мощность и скорость лазерного луча, а также собственная функция изменения показателя преломления. Можно отметить, что часть массива выполнена при неоптимальных параметрах: структуры либо не сохранились, что соответствует недостаточной дозе поглощенного излучения (ниже порога полимеризации фоторезиста), либо плохой адгезии к подложке; либо структуры имеют характерные неоднородности, свойственные использованию слишком большой мощности лазерного излучения, что приводит к локальному нагреву и деградации полимера. На рис. 3б и 3в показаны массивы микроструктур с линейным и гауссовым градиентом показателя преломления, соответственно. Кружками отмечены структуры, выбранные для проведения последующих измерений.

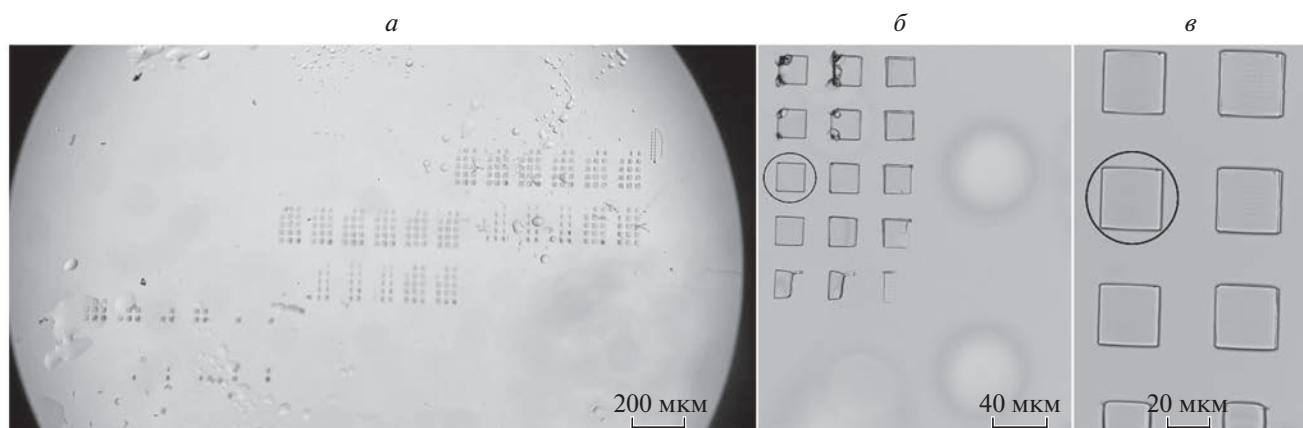


Рис. 3. Микрофотографии образцов, сделанные в оптический микроскоп. Общее расположение напечатанных структур на стеклянной подложке структур (*a*) с линейной зависимостью мощности лазерного излучения при печати (*б*) и с зависимостью, описываемой функцией Гаусса (*в*). Измерения ОКМ проводились для структур, выделенных окружностями.

Измерение пространственного распределения коэффициента преломления проводились методом оптической когерентной микроскопии (ОКМ) [18]. Данная методика позволяет получать трехмерные изображения полупрозрачных объектов с микронным разрешением за счет интерференции опорного, отраженного от подложки, и сигнального, отраженного от образца, лучей. ОКМ позволяет измерить распределение отражательной способности и временной задержки луча в образце, что дает информацию об изменении показателя преломления [19]. Метод ОКМ успешно применяется для изучения внутренней структуры устройств интегральной нанофотоники, изготовленных методом двухфотонной лазерной литографии [20, 21]. В процессе проведения ОКМ было выявлено, что высота изготовленных микроструктур неоднородна и меняется в том же направлении, что и заданный градиент оптического показателя преломления. Этот факт был подтвержден при помощи атомно-силовой микроскопии [22]. Также была определена величина перепада высоты структуры, равная 440 нм. Неоднородность высоты изготовленной структуры возникает вследствие того, что размеры полимеризованного объема фоторезиста зависят от мощности падающего излучения, и этот эффект учитывался при расчете показателя преломления.

Измерения градиентных структур с помощью метода ОКМ проводились в двух конфигурациях: в первой конфигурации сигнальный луч сначала проходил сквозь подложку после чего отражался обратно от верхней грани образца, а затем сквозь исследуемую микроструктуру, в то время как опорный луч проходил только сквозь подложку туда и обратно после отражения от верхней грани

подложки; во второй конфигурации сигнальный луч сразу отражался от структуры, в то время как опорный луч отражался от подложки. В обеих конфигурациях сравнивались пути, пройденные сигнальным и опорным лучами, как показано на рис. 4г темными (сигнальный луч) и светлыми (опорный луч) стрелками, соответственно. Поскольку коэффициент отражения на границе подложка–структура пренебрежимо мал, в обоих случаях наблюдалось отражение от границы структура–воздух (воздух–структура). В первой конфигурации сигнальный луч проходил через подложку и структуру и отражался от границы структура–воздух, таким образом неся информацию о показателе преломления пройденной структуры. Во второй конфигурации сигнальный луч проходил только через воздух и отражался сразу на границе воздух–структура, а потому не нес информацию о показателе преломления образца. Данный подход позволил измерить как оптический путь, проходимый сигнальным лучом внутри исследуемых микроструктур (рис. 4а), так и физический путь, то есть высоту объекта (рис. 4б). Отношение этих величин дает искомое распределение показателя преломления в изготовленных структурах, как показано на рис. 4в. Полученные зависимости качественно подтверждают, что метод ДЛЛ позволяет создавать трехмерные структуры с градиентом показателя преломления. Изменение показателя преломления внутри структуры составляет $\Delta n = 0.03$. При этом сама форма распределения показателя преломления отличается от заданной линейной или гауссовой функции. Данное расхождение можно устранить при проведении дополнительных калибровочных исследований. Абсолютное изменение показателя преломления оказалось меньше соот-

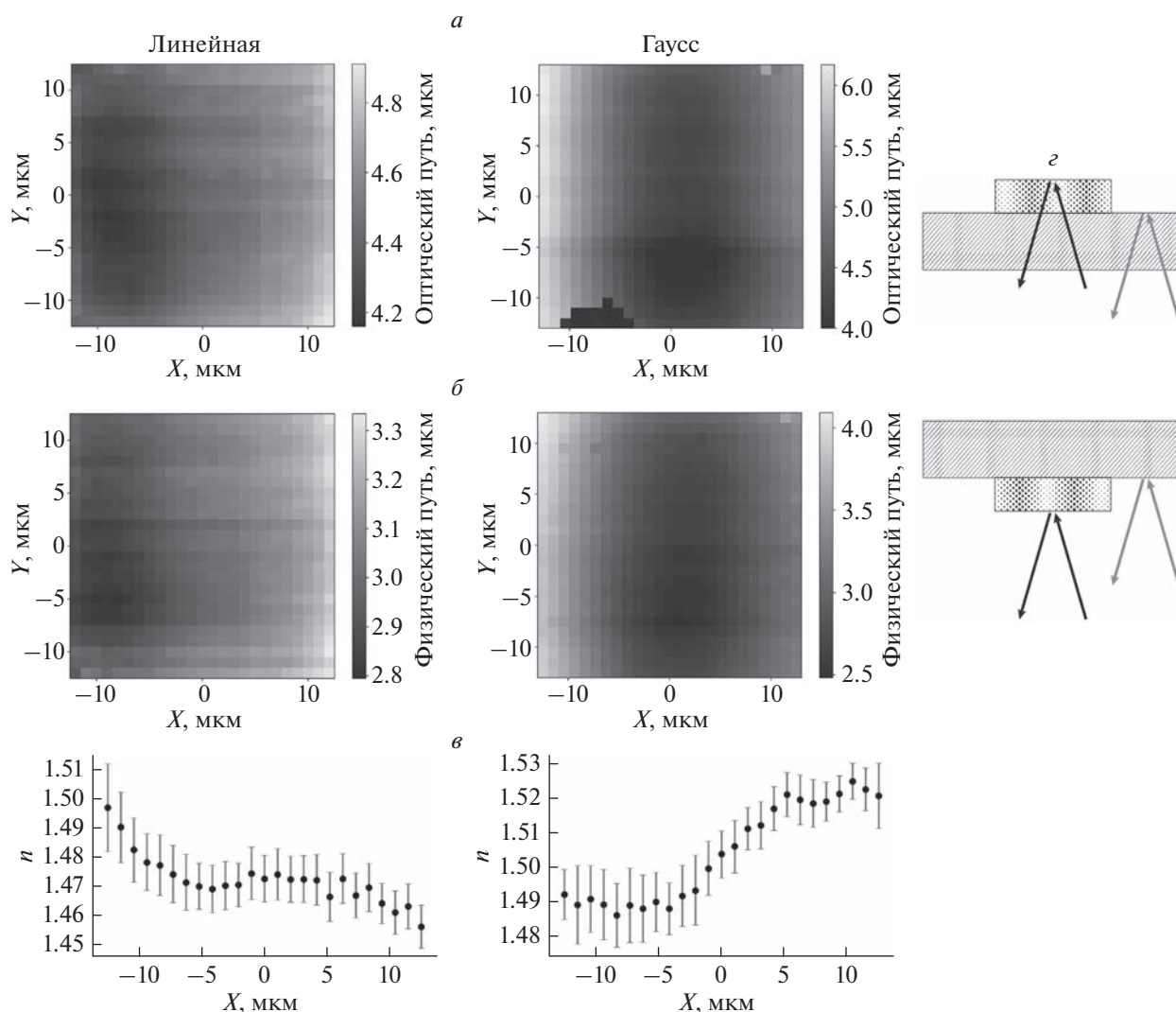


Рис. 4. Картирование микроструктур методом ОКМ: двумерные графики зависимостей оптического пути от координат в микроструктуре (а); графики зависимостей физического пути от координат в микроструктуре (б); зависимости усредненного по оси Y значения показателя преломления в микроструктуре (в); схемы для получения оптического и физического путей луча в образце с помощью ОКМ (г). Измерение оптического (сверху) и физического (снизу) пути прохождения сигнального (черные стрелки) луча в образце по сравнению с опорным лучом (серые стрелки).

ветствующих значений для градиентных структур, выполненных в пористом кремнии [15], однако в два раза больше величины, полученной в тонких пленках [16].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Показана принципиальная возможность создания оптических микроструктур с градиентным показателем преломления при помощи двухфотонной лазерной литографии. Методом оптической когерентной микроскопии определено, что показатель преломления в микроструктурах меняется в интервале $\Delta n = 0.03$. В дальнейшем планируется развить предложенный метод для создания трехмерных оптических элементов с градиентным показателем преломления.

Авторы благодарят И.М. Антропова за измерения высоты структуры методом атомно-силовой микроскопии.

Исследование выполнено в рамках Междисциплинарной научно-образовательной школы Московского университета "Фотонные и квантовые технологии. Цифровая медицина". Работа поддержана Министерством науки и высшего образования Российской Федерации (грант № 075-15-2021-1353).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Gomez-Reino C., Perez M., Bao C. Gradient-index optics: fundamentals and applications. Springer, 2002. 239 p.

2. *Hwang Y., Phillips N., Dale E.O. et al.* // Opt. Express. 2022. V. 30. No. 8. P. 12294.
3. *Gomez-Reino C., Perez M.V., Bao C., Flores-Arias T.M.* // Laser Photon. Rev. 2008. V. 2. No. 3. P. 203.
4. *Kundal S., Bhatnagar A., Sharma R.* Optical and wireless technologies, Springer, 2022. 443 p.
5. *Pickering M.A., Taylor R.L., Moore D.T.* // Appl. Opt. 1986. V. 25. No. 19. P. 3364.
6. *Ohmi S., Sakai H., Asahara Y. et al.* // Appl. Opt. 1988. V. 27. No. 3. P. 496.
7. *Sinai P.* // Appl. Opt. 1971. V. 10. No. 1. P. 99.
8. *Liu J.H., Yang P.C., Chiu Y.H.* // J. Polym. Sci. A. 2006. V. 44. No. 20. P. 5933.
9. *Liu J.H., Chiu Y.H.* // Opt. Lett. 2009. V. 34. No. 9. P. 1393.
10. *Mingareev I., Kang M., Truman M. et al.* // Opt. Laser Technol. 2020. V. 126. Art. No. 106058.
11. *Dylla-Spears R., Yee T.D., Sasan K. et al.* // Sci. Advances. 2020. V. 6. No. 47. Art. No. eabc7429.
12. *Mao M., He J., Li X. et al.* // Micromachines. 2017. V. 8. No. 4. P. 113.
13. *Sharipova M.I., Baluyan T.G., Abrashitova K.A. et al.* // Opt. Mater. Express. 2021. V. 11. No. 2. P. 371.
14. *Zhou X., Hou Y., Lin J.* // AIP Advances. 2005. V. 5. No. 3. Art. No. 030701.
15. *Ocier R.C., Richards C.A., Bacon-Brown D.A. et al.* // Light Sci. Appl. 2020. V. 9. Art. No. 196.
16. *Žukauskas A., Matulaitienė I., Paipulas D. et al.* // Laser Photon. Rev. 2015. V. 9. No. 6. P. 706.
17. *Pertoldi L., Zega V., Comi C., Osellame R.* // J. Appl. Phys. 2020. V. 128. No. 17. Art. No. 175102.
18. *Drexler W., Fujimoto J.G.* Optical coherence tomography. Technology and applications. Springer, 2008. 1327 p.
19. *Sirotin M.A., Romodina M.N., Lyubin E.V. et al.* // Biomed. Opt. Express. 2022. V. 13. No. 1. P. 14.
20. *Safronov K.R., Gulkin D.N., Antropov I.M. et al.* // ACS Nano. 2020. V. 14. No. 8. P. 10428.
21. *Safronov K.R., Bessonov V.O., Akhremenkov D.V. et al.* // Laser Photon. Rev. 2022. V. 16. No. 4. Art. No. 2100542.
22. *Giessibl F.J.* // Rev. Mod. Phys. 2003. V. 75. No. 3. P. 949.

Fabrication of GRIN microstructures by two-photon lithography

**M. D. Aparin^{a,*}, T. G. Baluyan^a, M. I. Sharipova^a, M. A. Sirotin^a, E. V. Lyubin^a,
I. V. Soboleva^a, V. O. Bessonov^a, A. A. Fedyanin^a**

^a*Lomonosov Moscow State University, Moscow, 119991 Russia*

^{*}*e-mail: aparin@nanolab.phys.msu.ru*

The method of two-photon lithography is used to fabricate GRIN microstructures. Test rectangular structures with sizes $25 \times 25 \times 3$ micrometers were used with varying laser intensity by linear or gaussian distribution in one dimension. The resulting refractive index has been tuned in the range of 0.03. The suggested method can be applied to produce arbitrarily shaped 3D GRIN micro-optical elements.