

Schlussbericht zum Vorhaben  
**„Prozessentwicklung für optische Beschichtungen auf  
Beugungsgittern mittels Hochraten-Atomlagenabscheidung“**

im Rahmen des Eurostars Projekts  
**E! 113859 Akronym**  
**„Innovative Technologien für die Herstellung von Beugungsgittern“**

**Leif Kochanneck, Gerd-Albert Hoffmann, Andreas Wienke, Dietmar Kracht**

Laser Zentrum Hannover e.V. (LZH)  
Hollerithallee 8  
30419 Hannover

Das diesem Bericht zugrunde liegende Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Bildung und Forschung gefördert. Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei der Autorin / beim Autor.

Förderkennzeichen: 01QE2032B  
Projektlaufzeit: 01.06.2020 – 31.12.2022

## Inhaltsverzeichnis

1	Aufgabenstellung	3
1.1	Kurzdarstellung	3
1.2	Voraussetzung, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde	3
1.3	Planung und Ablauf des Vorhabens	3
1.4	Wissenschaftlicher und technischer Stand, an den angeknüpft wurde	3
1.5	Zusammenarbeit mit anderen Stellen	3
2	Eingehende Darstellung	3
2.1	Verwendung der Zuwendung und des erzielten Ergebnisses im Einzelnen, mit Gegenüberstellung der vorgegebenen Ziele	3
2.2	Wichtigste Positionen des zahlenmäßigen Nachweises	3
2.3	Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit	3
2.4	Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit des Ergebnisses im Sinne des Verwertungsplans	3
2.5	Während der Durchführung des Vorhabens dem ZE bekannt gewordenen Fortschritts auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen	3
2.6	Veröffentlichung der Ergebnisse	3
2.7	Liste der Konferenz- und Zeitschriftenbeiträge	3

# 1 Kurzdarstellung

## 1.1 Aufgabenstellung

Ziel des Teilprojektes war es die rotierende Atomlagenabscheidung (engl.: rotary atomic layer deposition, rALD) Technologie für optische Beschichtungen zu befähigen und dafür notwendige Prozesse zu entwickeln. Im Besonderen stand die Beschichtung von optischen Beugungsgittern im Fokus. Im Gegensatz zu konventionellen optischen Beschichtungstechnologien ist die ALD-Technologie besonders geeignet, um mikroskopische und makroskopische Strukturen zu beschichten. Dies eröffnet neue Chancen hoch effiziente optische Gitter herzustellen, die z.B. widerstandsfähiger gegen Staubbelastungen in der Umgebung und so stabiler und länger in bisherigen Anwendungen sind und damit neue Anwendungsfelder ermöglichen. Die Abwandlung der rotierenden ALD setzt mit einem ca. 24-fachen der Beschichtungsgeschwindigkeit neue Maßstäbe, auch im Bezug auf die Wirtschaftlichkeit. Bisherige ALD-Anlagen haben bereits demonstriert, auf planaren und gekrümmten Oberflächen Schichten mit geringster Absorption und hoher Laserzerstörungsschwelle herstellen zu können. All dies macht die in Zusammenarbeit mit dem ALD Anlagenhersteller Beneq entwickelte, erstmals kommerziell verfügbare rALD-Anlage zu einer Technologie mit hohem disruptivem Potential. Dieses für den optischen Markt zu entwickeln und für die Beschichtung optischer Gitter nutzbar zu machen war Kern dieses Teilprojekts.

## 1.2 Voraussetzung, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde

Bisher beschränkten sich ALD-Verfahren nahezu ausschließlich auf Anwendungen außerhalb der Optik. Das Laser Zentrum Hannover e.V. (LZH) verfügt über langjährige Erfahrung in Forschung und Entwicklung von optischen Beschichtungstechnologien und weltweit anerkannte führende Expertise im Bereich der PVD-Verfahren. Dies schließt die Fertigung maßgeschneiderter, komplexer Beschichtungen, deren Design und Auslegung in optischen Modulen und Systemen, sowie deren Charakterisierung hinsichtlich optisch relevanter Parameter mit ein [1-9]. Aus diesem Grund bieten die Voraussetzungen für das Vorhaben eine gute Grundlage für eine erfolgreiche Durchführung des Teilprojekts.

[1] Detlev Ristau, Henrik Ehlers, Tobias Gross, and Marc Lappschies, "Optical broadband monitoring of conventional and ion processes" Appl. Opt. 45, 1495-1501 (2006)

[2] Marc Lappschies, Tobias Gross, Henrik Ehlers, Detlev Ristau "Broadband optical monitoring for the deposition of complex coatings" Advances in Optical Thin Films, 5250 S. 637-645 (2004)

[3] Detlev Ristau et al. "Laser-induced damage in optical materials" CRC Press (2014)

[4] M Mero, J Liu, W Rudolph, D Ristau, K Starke, "Scaling laws of femtosecond laser pulse induced breakdown in oxide films" Physical Review B (2005)

[5] Detlev Ristau, Marco Jupé, Kai Starke, "Laser damage thresholds of optical coatings" Thin Solid Films 518,5 S. 1607-1613 (2009)

[6] Uwe Willamowski, Detlev Ristau, Eberhard Welsch "Measuring the absolute absorptance of optical laser components" Applied optics 37, 36, S.8362-8370 (1998)

[7] Detlev Ristau, Johannes Ebert, "Development of a thermographic laser calorimeter" Applied Optics, 25, 24 S. 4571-4578 (1986)

[8] Hao Liu, Lars Jensen, Ping Ma, Detlev Ristau, "ALD anti-reflection coatings at  $1\omega$ ,  $2\omega$ ,  $3\omega$ , and  $4\omega$  for high-power ns-laser application", Advanced Optical Technologies, 7, 1-2, S. 23-31 (2018)

[9] Hao Liu, Lars Jensen, Ping Ma, Detlev Ristau, "Stress compensated anti-reflection coating for high power laser deposited with IBS SiO<sub>2</sub> and ALD Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>", Applied Surface Science, 476 S. 521-527 (2019)

## 2 Eingehende Darstellung

### 2.1 Verwendung der Zuwendung und erzielte Ergebnisse im Einzelnen, mit Gegenüberstellung der vorgegebenen Ziele

#### Zusammenfassung:

Die Tätigkeitsbereiche des LZHs bewegten sich bei diesem Projekt um einen erfolgreichen Einsatz der rALD Technologie im Rahmen von optischen Beschichtungen für wissenschaftliche und wirtschaftliche Anwendungen. Durch die selbstlimitierende Oberflächenreaktionen eines gasförmigen Präkursors ist es möglich auch Geometrien zu beschichten, die von konventionellen Beschichtungsverfahren wie den physikalischen Verdampfungsverfahren (physical vapour deposition, PVD) nicht beschichtet werden können. Im konventionellem Batch ALD Verfahren wird eine Reaktionskammer, welche das zu beschichtende Substrat enthält, nacheinander abwechselnd mit den erforderlichen Präkursoren beaufschlagt und anschließend gespült. Bei jedem dieser Durchläufe wird eine nur maximal eine Atomlage dicke Schicht erzeugt, weswegen die Verfahrensschritte so oft wiederholt werden, bis die gewünschte Schichtdicke erreicht ist. Dieses Verfahren ist zwar in der Lage sehr gute optische Schichten zu erzeugen, die konform auch auf komplexen Oberflächen deponiert werden, aber ist ersichtlich langwierig, was ein Hauptgrund für den begrenzten Einsatz bei optischen Beschichtungen ist. So erreichen auch kommerzielle Anlagen kaum Beschichtungsraten über 1  $\mu\text{m}$  pro Tag.

Bei der rALD-Technologie wird der Reaktionsraum durch differenzielles Abpumpen, Zuführen von Gasströmen und Gasvorhängen derart gut voneinander getrennt, dass es möglich ist die vier Prozess nebeneinander in einem Reaktor ablaufen zu lassen. Das zu beschichtende Substrat befindet sich auf einem Tisch und wird durch die Prozesszonen hindurch rotiert, wodurch die Beschichtungsrate im Wesentlichen nur von der Rotationsgeschwindigkeit abhängig ist. Das schematische Verfahren ist in Abbildung 3 dargestellt.

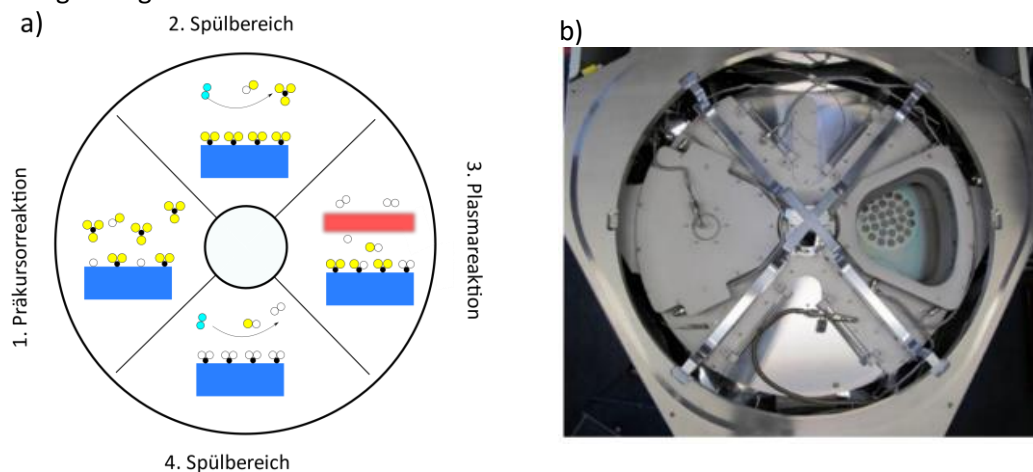


Abbildung 2: a) Schematisches Funktionsprinzip der rALD und b) Realbild des Reaktionsraums.

So lassen sich auch Beschichtungsraten von 1  $\mu\text{m}$  pro Stunde erreichen, was einem 24-fachen der Beschichtungsgeschwindigkeit von konventionellen Systemen entspricht.

Zu Beginn des Projektes wurden in Zusammenarbeit mit dem Anlagenhersteller Beneq, Präkursoren für die Schichtabscheidung diskutiert und noch während des Anlagenaufbaus getestet. Dies war notwendig, da sich der Auslieferungstermin der Anlage verzögert hatte. Hier konnten (tert-butylimido)tris(ethylmethyldamido)tantalum (kurz: TBTEMT) und bis(diethylamino)silan (kurz: SAM.24) als Präkursoren für die Abscheidung von  $\text{SiO}_2$  bzw.  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  identifiziert werden. Ab Januar 2021 wurde die Anlage an das LZH geliefert und wie in Abbildung 2 gezeigt aufgebaut. Kurze Zeit später wurde eine Flowbox zur Vermeidung von weiteren Kontaminationen der Optiken über dem Loadlock installiert.



*Abbildung 3: Aufgebaute rALD Anlage im LZH Beginn 2021 (Hier noch ohne Flowbox).*

Neben den Beschichtungsversuchen fanden kontinuierliche Anlagenoptimierungen und sukzessive Anpassungen der optischen Beschichtungsprozesse statt. Erste Proben wurden im Rasterelektronenmikroskop untersucht. Hierbei lag besonderes Augenmerk auf Partikeln und Oberflächenstruktur, um die Prozesszonentrennung wie in AP 4.1 geplant, sicherzustellen. Abbildungen 4 a) und b) zeigt die in der Anlage erzeugten, sehr glatten Oberflächen, was für einen gut kontrollierten Prozess spricht. Die Partikel werden in der Abbildung nur gezeigt, um eine richtige Fokussierung zu dokumentieren, waren jedoch einzelne Ereignisse dieser Art auf der Oberfläche. Auch bei den später beschichteten Gittern wurde von GW eine außerordentlich geringe Partikelanzahl und sehr reine Proben nachgewiesen. Dies wurde neben einer guten Prozesskontrolle auch durch eine Laminar-Flowbox erreicht, die über der Probenschleuse installiert wurde. Letztere filtert auch kleinste Staubpartikel aus der Umgebungsluft und formt diesen zu einem laminaren Luftstrom, indem die Proben hochrein in die Anlage eingebracht und auch während des Verpackens nicht kontaminiert werden. Weiter wurde die Schichtzusammensetzung mittels EDX untersucht. Abbildung 4 c) und d) zeigen, dass außer den Schichtmaterialien und dem Substrat ( $\text{SiO}_2$ ) nur ein Kohlenstoffsignal zu finden ist. Dies zeugt von einer hochreinen Schicht ohne prozessbedingte Kontaminationen. Das Kohlenstoffsignal lässt sich auf natürliche atmosphärische Anlagerungen zurückführen, wie sie durch das Lagern von Proben und durch die Untersuchung im REM entstehen.

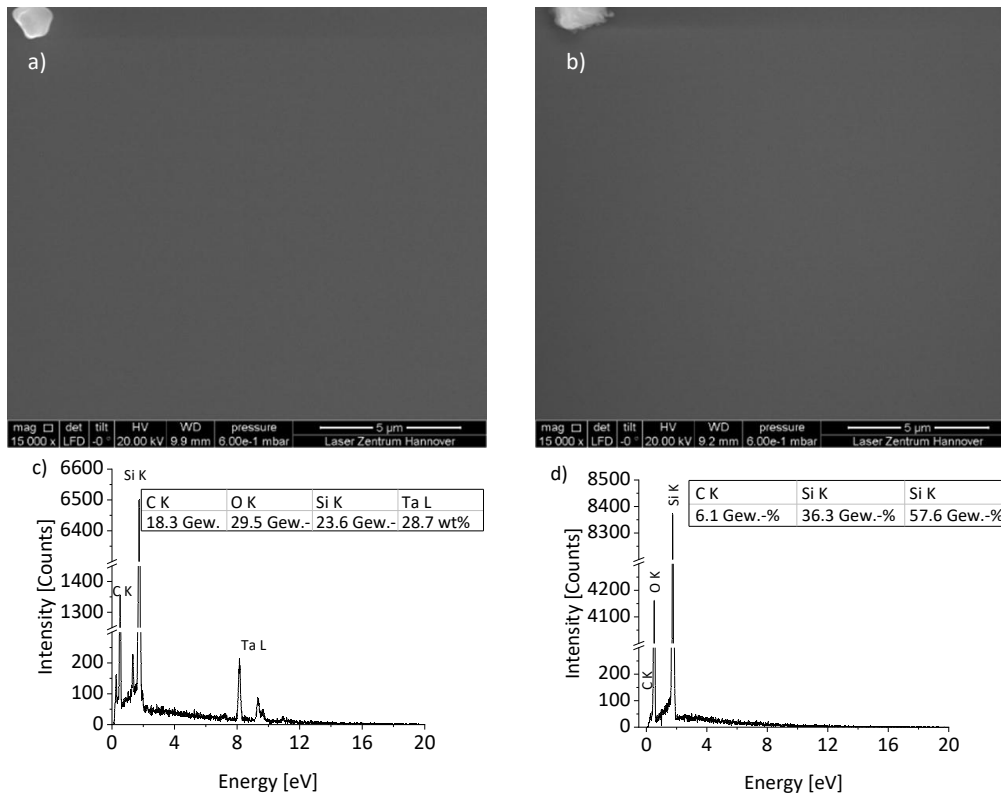


Abbildung 4: Rasterelektronenbild eines Quarzsubstrates das mit a)  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  und b) mit  $\text{SiO}_2$  beschichtet wurde. EDX-Analyse der Oberflächen c)  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  und d)  $\text{SiO}_2$ .

Nachdem die nicht-optischen Schichteigenschaften untersucht wurden, galt es auch die optischen Schichteigenschaften zu analysieren. Dazu wurden photospektrometrische Transmissionsmessungen von beiden Schichtmaterialien durchgeführt und durch Modellierung der Brechwerte ( $n$ ) berechnet. Abbildung 5 a) und b) zeigen die gute Übereinstimmung des errechneten und gemessenen Spektrums. Anschließend wurde die Beschichtung mit Hilfe einer laserkalorimetrischen Messung nach ISO 11551:2019 bei 1064 nm untersucht. Hierbei wurde eine geringe Absorption von 3,1 ppm und ein Extinktionskoeffizient von  $1,66 \cdot 10^{-6}$  für  $\text{SiO}_2$  und 6,0 ppm bzw.  $4,8 \cdot 10^{-7}$  für  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  inklusive des Substrats gemessen.

Diese optischen Konstanten wurden GW übermittelt und wurden bei der späteren Designberechnung für die Gitterbeschichtung verwendet.

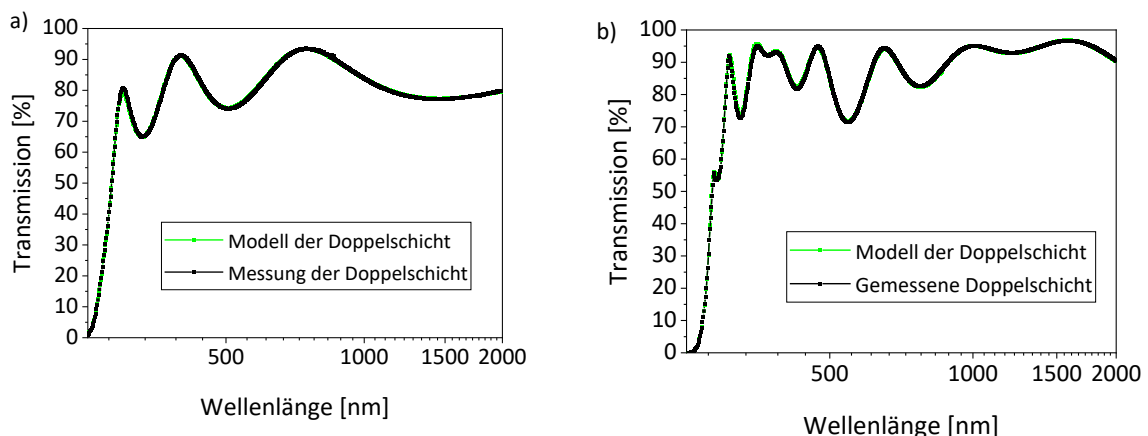


Abbildung 5: Photospektrometrische Transmissionsmessungen (schwarz) von a)  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  und b)  $\text{SiO}_2$  auf einer Vorschicht zur Erhöhung des Brechwertkontrastes, sowie deren Schichtmodell (grün).

Weiterhin wurde die Verformung der Beschichtung gemessen, um die durch die Beschichtung eingebrachte Spannung zu messen. Abbildung 6 zeigt diese am Beispiel einer  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  Schicht. Die tensile Spannung ist mit 394 MPa etwas geringer als in den bekannten IBS-Prozessen (ca. 500 MPa), aber



etwas über dem anvisierten Wert von 200 MPa. In Absprache mit GW wurde dies aber als akzeptabel befunden. Ebenso wurde die Schichthaftung mit der zweiten Sensitivitätsstufe der Methode 2 nach ISO-9211-4 erfolgreich bestanden.

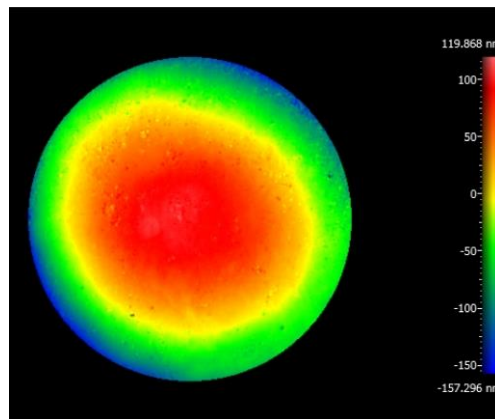


Abbildung 6: Verformung einer beschichteten Ta2O5 Probe.

Abbildung 7 zeigt die optimierte Schichtdickenverteilung der beiden Beschichtungsmaterialien. Diese wurde durch Veränderung der Präkursorgas Zuführung schrittweise verbessert. So konnte ein Bereich von 135x60 mm dargestellt werden, indem die Schichtdickenabweichung bei  $\pm 1,07\%$  für Siliziumdioxid und  $\pm 0,53\%$  für Tantalpentoxid liegt. Dies wurde zusammen mit GW als ausreichend für Beschichtungsversuche an strukturierten Gittern definiert.

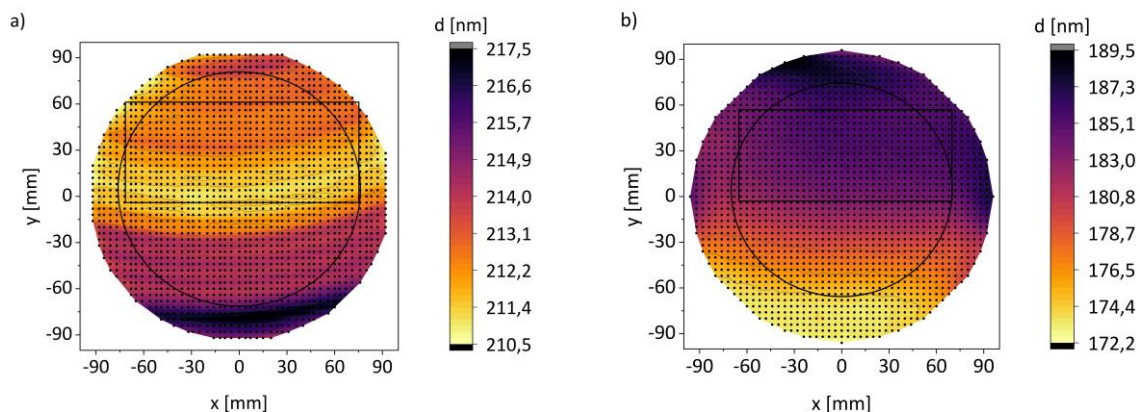


Abbildung 7: 2D Schichtdickenverteilung auf einem 200 mm Silizium-Wafer von a) Ta2O5 und b) SiO2. Punkte zeigen die Messpunkte. Rechteck und Kreis definierte Bereiche. .

Ein zentraler Aspekt des Arbeitspaktes 5 ist die Installation des im LZH entwickelten Breitbandmonitoring Systems (Abbildung 8 a). Dieses nimmt während der Beschichtung Transmissionsspektren auf, berechnet hieraus die abgeschiedenen Schichtdicken und beendet selbstständig die weitere Beschichtung, wenn die Zieldicke erreicht ist oder der Prozess fehlerhaft außerhalb festgelegter Parameter verläuft. Hierfür wurden nicht nur bauliche Veränderungen an der Anlage unternommen, sondern auch in enger Zusammenarbeit mit dem Anlagenhersteller eine notwendige Integration in die Anlagensteuerung geschaffen. Hiermit wurde, soweit bekannt, erstmals ein solches System erfolgreich in eine ALD-Anlage integriert.

Dies bringt gerade bei der Beschichtung von dickeren Einzelschichten und Multischichtsystemen große Vorteile, weil Testbeschichtungen entfallen und so Anlagenzeit, der Beschichtungsmaterialeinsatz und Ausschuss reduziert werden kann. Im ursprünglichen Anlagenkonzept ohne Einsatz einer direkten spektralen Messung wurde die Anzahl an Rotationen und somit ALD-Reaktionszyklen gezählt und dann die Schichtdicke mit einem zuvor gemessenen Wert für die Beschichtung pro Rotation multipliziert. Dies Verfahren ist jedoch für längere Beschichtungszeiten unpraktikabel, weil es hier durch Temperaturschwankungen im Vorratsbehälter des Präkursors zu leichten Abweichungen kommen

kann, die sich über die hohe Anzahl notwendiger Rotationen aufsummieren. Durch Abhängigkeiten vom Füllstand ist dieses Verhalten zudem nur eingeschränkt vorhersagbar, wodurch sich durch die direkte Messung entscheidende Vorteile für die Prozesskontrolle ergeben (Abbildung 8 b).

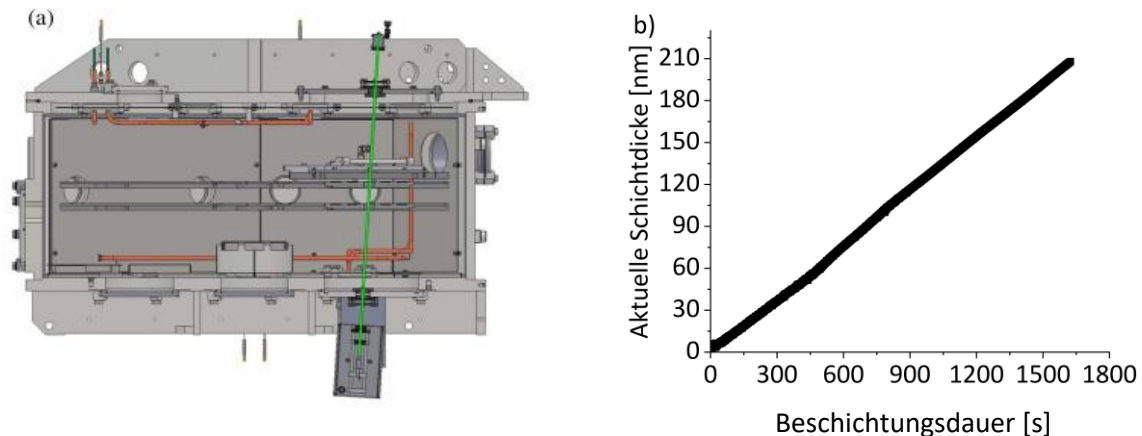


Abbildung 8: a) Strahlengang des online Breitbandmonitorings und b) aufgenommene Beschichtungsrate.

Bei den Versuchen komplexere und damit dickere Multischichtsysteme zu beschichten, ergaben sich je nach Design ab ca. 500 nm Gesamtsystemdicke Risse in den Beschichtungen wie exemplarisch in Abbildung 9 gezeigt ist. Dies steht im Kontrast zu dicken Einzelschichten von bis zu 1  $\mu\text{m}$ , bei denen keine Risse oder sonstige Verfehlungen auftraten. Bedauerlicherweise verhinderten diese Effekte derzeit die Schichtsysteme der Gittertypen 4, 5, 6, 8 zu beschichten. Die Ursachen hierfür konnten noch nicht geklärt werden und sind Gegenstand zukünftiger Forschung.

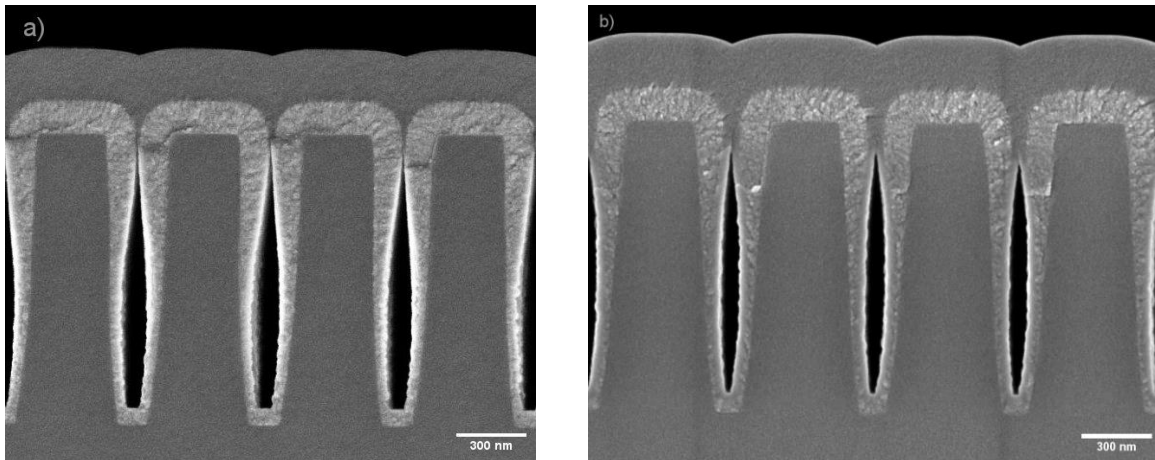


Abbildung 9: Exemplarisches Abbild eines gerissenen Multischichtsystems.

In der Folge wurde das Verfüllen von Beugungsgittern adressiert, um das Alleinstellungsmerkmal der konformen Beschichtungen zu nutzen. Dies geschah in Absprache mit dem Projektpartner GW. Abbildung 10 zeigt die hierbei erzielten Ergebnisse. Hierfür wurden strukturierte Gitter mit einem Dreischichtsystem aus 11,7 nm  $\text{SiO}_2$ , 155 nm  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  und abschließend 227,5 nm  $\text{SiO}_2$  beschichtet. Dieses Design wurde von GW auf Basis der gelieferten optischen Konstanten berechnet. Bei den ersten Beschichtungsversuchen kam es zu einem bevorzugten Wachstum am oberen Ende der Gitterstege. Dadurch ergaben sich Hohlräume (Vakuolen), die in ihrer längsten Ausdehnung 1165 nm und an ihrer breitesten Position 120 nm groß sind. Diese führten zu einer Verschlechterung der Beugungseffizienz des Gitters. Dieses Aufwuchsverhalten wurde als eine unzureichende Diffusion des Präkursors in die

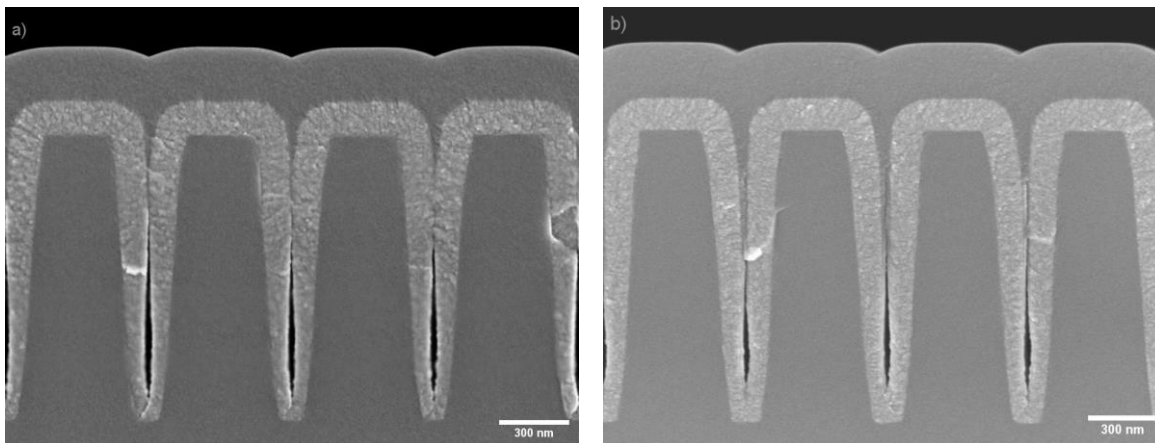


Gräben des Gitters interpretiert und in der Folge verschiedene Ansätze erprobt diese Diffusion zu verstärken. Bei dem ersten Ansatz, wurde die Ausrichtung der Gitterstege relativ zur Rotationsachse variiert und dessen Einfluss auf die Beschichtung untersucht. Abbildung 10 zeigt, dass dies einen deutlichen Einfluss hat. Die Größe der Vakuolen sank auf 1017 nm in der Höhe und 82 nm in der Breite. Dieser Effekt wurde in der Folge für weitere Beschichtungen ausgenutzt.



*Abbildung 10: Rasterelektronenmikroskopbilder beschichteter Beugungsgitterquerschnitte a) Gitterstege quer zur Rotationsrichtung und b) Gitterstege tangential zur Rotationsrichtung.*

Ein weiterer Ansatz war, die Beschichtung durch eine Erhöhung des Präkursorflusses zu optimieren. Die Ausgangshypothese war, dass durch eine Erhöhung des Flusses der Präkursor tiefer an die Gittergräben getragen wird und sich somit die notwendige Diffusionsstrecke reduziert und so zu einer verbesserten Verfüllung führt. Abbildung 11 zeigt jedoch, dass dies nur einen geringen Einfluss hat. Das Gasvolumen ist über der Gitterprobe bereits mit den Standardflüssen hinreichend mit Präkursor gefüllt, sodass eine Erhöhung des Flusses nur zu einem erhöhtem Präkursorverbrauch führt.



*Abbildung 11: Einfluss des Präkursorflusses. a) 1000 sccm b) 1500sccm. Bei 50 rpm Rotationsgeschwindigkeit.*

Als nächstes wurde die Temperaturabhängigkeit untersucht. Diese ist in Abbildung 12 dargestellt. Eine Erhöhung der Substrattemperatur führt zu breiteren Vakuolen. Zum einem könnte eine stärkere Desorption des Präkursors in den Gräben zu einer geringeren Aufwachswahrscheinlichkeit führen oder die Reaktion des Präkursors an den oberen Stegen schon bevorzugt stattfinden, bevor der Präkursor vollständig in die Gräben diffundiert ist.

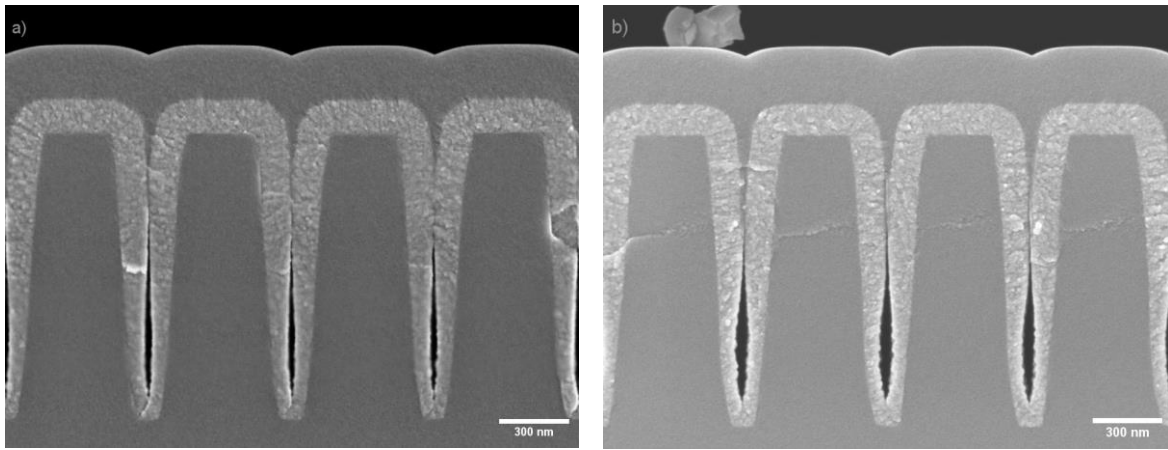


Abbildung 12: Temperatureinfluss a) 150°C Substrattemperatur und b) 180 °C.

Schließlich stellte sich die Reduktion der Rotationsgeschwindigkeit als zielführender Ansatz heraus. Bei einer Reduzierung auf 25 rpm konnte ein vollständig verfülltes Gitter hergestellt werden. Im Gegensatz zu konventionellen ALD-Verfahren wird so trotz der verringerten Rotationsgeschwindigkeit weiterhin eine hohe Depositionsrate von 0,044 nm/Sek für SiO<sub>2</sub> und 0,035 nm/Sek für Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> erzielt. Diese liegen im Bereich von anderen Beschichtungsverfahren wie IBS und trotz reduzierter Rotationsgeschwindigkeit bei einem vielfachen bisheriger ALD-Prozesse.

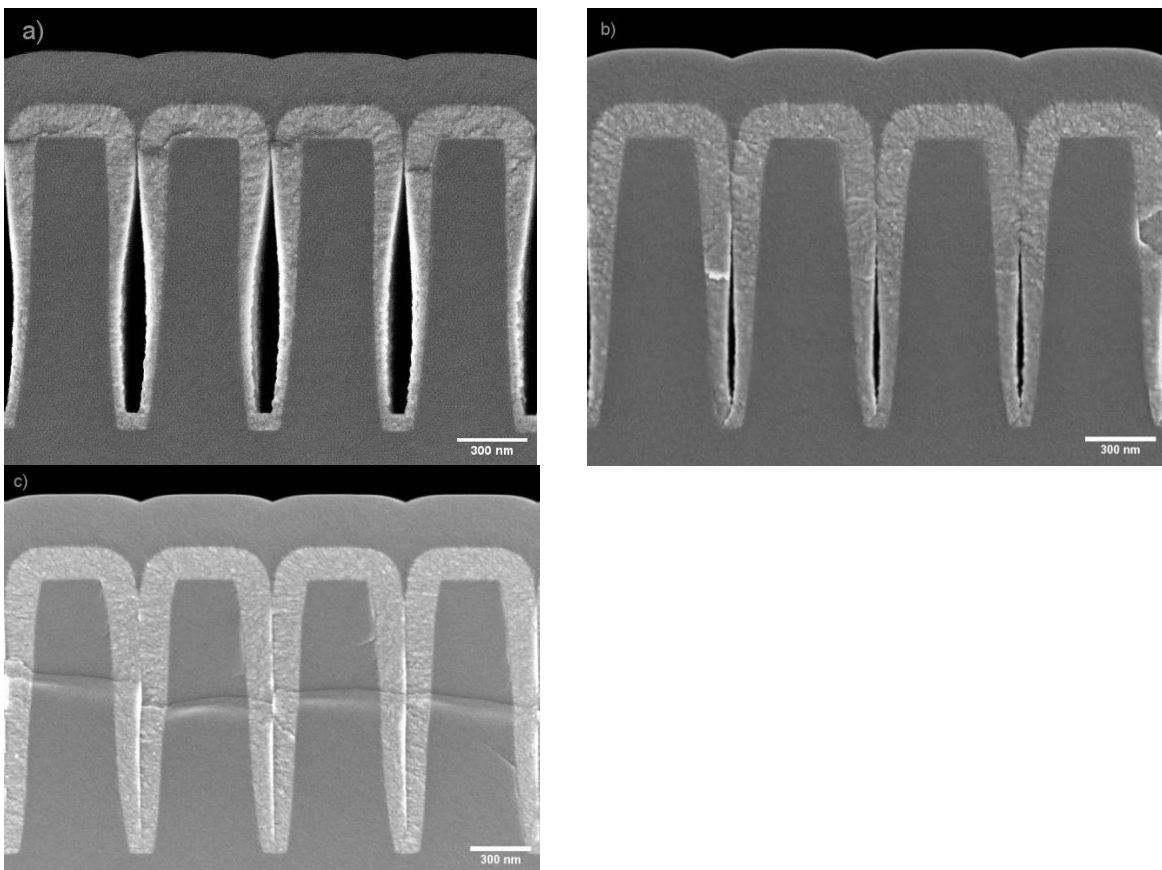


Abbildung 13: Rasterelektronenmikroskopbilder beschichteter Beugungsgitterquerschnitte hergestellt mit unterschiedlichen Rotationsgeschwindigkeiten: a) 100 rpm b) 50 rpm und c) 25 rpm.

Die Prozessentwicklung zur Herstellung optischer Schichten und Integration eines Breitbandmonitors zur In-situ-Messung der spektralen Eigenschaften an der rALD-Anlage konnte damit erfolgreich umgesetzt werden und ermöglicht damit in der Folge die Entwicklung neuartiger Anwendungen im Bereich der optischen Beschichtungstechnologie.

## 2.2 Zusammenarbeit mit anderen Stellen

### **Gitterwerk GmbH (Projektpartner)**

Dr. Lorenz Stürzebecher, Dr. Frank Fuchs

Moritz-von-Rohr-Str. 1a

07745 Jena, Deutschland

Die zu beschichtenden Gittersubstrate wurden durch die Gitterwerk GmbH zur Beschichtung zur Verfügung gestellt. Nach gemeinsamer Absprache konnten die Beschichtungen hinsichtlich Uniformität und Sauberkeit in der Verarbeitung den Anforderungen entsprechend beschichtet werden. Die dafür erforderlichen optischen Kennwerte der rALD-Anlage wurden kommuniziert und somit gemeinsam ein Design für die Gitterbeschichtung erzeugt. Abschließend konnte eine vollständige Verfüllung der Gittersubstrate mittels rALD präsentiert werden.

### **Université de Neuchâtel**

Laboratoire Temps-Fréquence

Avenue de Bellevaux 51

2002 Neuchâtel, Switzerland

In gemeinsamer Absprache konnte mit der Université de Neuchâtel ein Substrathalter für die Beschichtung der Gittersubstrate entworfen und gefertigt werden, der sowohl das sichere Handling der Proben als auch eine uniforme Beschichtung ermöglicht hat. Darüber hinaus konnten die IBS-Beschichtungen der Gittersubstrate durch das LZH hinsichtlich ihrer Absorptionseigenschaften mittels Laserkalorimetrie vermessen werden.

## 2.3 Wichtigste Positionen des zahlenmäßigen Nachweises

Die wichtigsten Positionen sind im Finanzierungsnachweis dargestellt. Im Rahmen des Projekts wurde der Finanzierungsplan eingehalten. Das Projekt wurde mit einer Verlängerung von 7 Monaten bis zum 31.12.2022 verlängert, um die geplanten Arbeiten abschließen zu können.

## 2.4 Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit

Die durchgeführten Arbeiten sowie die dafür aufgewandten Ressourcen waren notwendig und angemessen, da sie im Wesentlichen der im Projektantrag dargelegten Planung entsprachen und die im Arbeitsplan formulierten Aufgaben erfolgreich bearbeitet wurden. Darüber hinaus mussten keine zusätzlichen Ressourcen zur Durchführung des Vorhabens aufgewandt werden.

## 2.4 Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit des Ergebnisses im Sinne des Verwertungsplans

Nach der erfolgreichen Bearbeitung des Projektes steht nun eine neuartige Anlagentechnik zur Verfügung, die für die Anwendung optischer Beschichtungstechnologien qualifiziert und in der Zukunft für die Fertigung komplexer optischer Schichtsysteme mit einem optischen Breitband-Monitoring-System ausgerüstet ist. Diese Technologie ermöglicht neben der Fertigung planarer optischer Schichtsysteme darüber hinaus die Beschichtung von strukturierten und stark gekrümmten, oder sogar Freiformoptiken und ermöglicht damit Etablierung der Produktion und des Vertriebs von bisher nicht verfügbaren rALD-Schichtsystemen.

Dabei ist das Laser Zentrum Hannover e.V. als Forschungsinstitut bestrebt, neue Forschungsergebnisse und Anwendungstechniken in die Industrie zu transferieren und Firmen in der Umsetzung der entsprechenden Technologie zu unterstützen. Das gewonnene Prozess-Know-how ist ein Alleinstellungsmerkmal für die Industrie und konnte bereits einem Hersteller von rALD-Anlagentechnologie zur Verfügung gestellt werden. Über diesen Wissenstransfer können Hemmnisse des Markteintritts für den neuartigen rALD-Prozess in den Bereich der Präzisionsoptik gesenkt und

damit neue ALD-Marksegmente erschlossen werden. Im Laufe des Projektrahmens wurde ein optisches Breitband-Monitoring-System zur präzisen Endpunktkontrolle komplexer Schichtsysteme erstmalig für rALD-Anlagen verfügbar gemacht und an einen Anlagenhersteller vertrieben. Dies verdeutlicht damit die hohe Attraktivität der entwickelten messtechnischen Einrichtung.

Patentrelevante Kenntnisse wurden in diesem Teilvorhaben nicht erarbeitet und damit anders als geplant nicht für das LZH geschützt werden.

Die Projektergebnisse konnten außerdem auf relevanten Fachmessen z.B. Laser World of Photonics, sowie auf Fachkonferenzen vorgestellt werden (s. u.).

## 2.5 Während der Durchführung des Vorhabens dem ZE bekannt gewordenen Fortschritts auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen

Nach bestem Wissen sind keine Forschungs- und Entwicklungsergebnisse bekannt geworden, die für die Durchführung des Vorhabens relevant waren.

## 2.6 Veröffentlichung der Ergebnisse

Aufgrund seiner Neuheit wurden die Ergebnisse der Herstellung optischer Schichten und des dafür eingesetzten Breitband-Monitorings mittels Plasma-basierter rALD auf internationalen Konferenzen veröffentlicht. Außerdem ist eine Veröffentlichung im begutachteten Journal „Applied Optics“ entstanden. Eine Liste mit den Konferenzbeiträgen und dem Zeitschriftenbeitrag ist im Folgenden aufgeführt und die Beiträge als solches angehängt.

## 2.7 Liste der Konferenz- und Zeitschriftenbeiträge

### Konferenzenbeiträge:

L. Kochanneck, A. Tewes, G.-A. Hoffmann, K. Niiranen, J. Rönn, H. Velasco, S. Sneck, A. Wienke, D. Ristau, „Study of rotary atomic layer deposition for optical applications“, SPIE Photonics West: OPTO, 22.-27. Januar, San Francisco (2022)

L. Kochanneck, A. Tewes, G.-A. Hoffmann, K. Niiranen, J. Rönn, S. Sneck, A. Wienke, D. Ristau, [“Enabling rotary Atomic Layer Deposition for optical applications”](#), Optical Interference Coatings Conference, 19.-24. Juni, Whistler, (2022)

P. Maydannik, J. Rönn, G. A. Hoffmann, L. Kochanneck, S. Schlichting, [“Rotary PEALD: in situ monitoring of optical coatings”](#), Spatial ALD Day, 09. Juni, Eindhoven, (2022)

### Proceedings:

L. Kochanneck, A. Tewes, G.-A. Hoffmann, K. Niiranen, J. Rönn, S. Sneck, A. Wienke, D. Ristau, [“Enabling rotary Atomic Layer Deposition for optical applications”](#), Proceedings of the Optical Interference Coatings Conference (OIC), TC.1, (2022)

L. Kochanneck, A. Tewes, G.-A. Hoffmann, K. Niiranen, J. Rönn, H. Velasco, S. Sneck, A. Wienke, D. Ristau, [“Study of rotary atomic layer deposition for optical applications”](#), SPIE Proceedings Vol. 12002: Oxide-based Materials and Devices XIII, 120020D, (2022)

### Zeitschriftenbeiträge

Kochanneck L, Rönn J, Tewes A, Hoffmann GA, Virtanen S, Maydannik P, Sneck S, Wienke A, Ristau D. “Enabling rotary atomic layer deposition for optical applications”, Applied Optics. 2023 Apr 20;62(12):3112-7

## Kurzbericht zum Vorhaben

### **„Innovative Technologie für die Fertigung von Beugungsgittern“**

#### **Teilprojekt: „Prozessentwicklung für optische Beschichtungen auf Beugungsgittern mittels Hochraten-Atomlagenabscheidung“**

In Rahmen des Eurostars Projekts E! 113859

**Leif Kochanneck, Gerd-Albert Hoffmann, Andreas Wienke, Dietmar Kracht**

Laser Zentrum Hannover e.V. (LZH)  
Hollerithallee 8  
30419 Hannover

Gefördert durch das Bundesministerium für Bildung und Forschung  
Förderkennzeichen: 01QE2032B  
Projektlaufzeit: 01.06.2020-31.12.2022

#### **Aufgabenstellung**

Ziel des Verbundprojektes INTEGRA war die Herstellung von innovativen Beugungsgittern unter anderem für den Einsatz in Ultrakurzpulslasern. Hierbei spielen neuartige Beschichtungstechnologien eine Schlüsselrolle. Neben der konventionellen Ionenzerstäubungs-Methode, IBS (*engl. ion beam sputtering*) wird auch erstmals die rotierende Atomlagenabscheidung, rALD (*engl. rotary atomic layer deposition*) verwendet, um Transmissions- und Reflexionsgitter im industriellen Maßstab herzustellen. Zu diesem Zweck erfolgte die Auslegung und Fertigung der Gittersubstrate durch den Partner Gitterwerk (GW). Die Partner Universität de Neuchâtel (UniNe) entwickelte Entspiegelungen und Verspiegelungen für diese Gitter, die auf die nicht strukturierte Seite mit dem IBS-Verfahren aufgebracht wurden. Im Gegensatz zum etablierten IBS-Verfahren wurde mit dem rALD-Verfahren ein neuer Beschichtungsprozess an einer industriellen Prototypenanlage entwickelt. Diese neuartige Beschichtungstechnologie hat den Vorteil, dass auch bereits strukturierte Gitter konform beschichtet werden können. Bislang war diese Verfüllung nur mit konventionellen ALD-Verfahren verfügbar und diese Prozesse damit zeit- und kostenintensiv. In der Anwendung lassen sich durch die Verfüllung Verunreinigungen des Gitters verhindern, die zu einer reduzierten Effizienz oder Zerstörung durch das eingestrahlte Laserlicht führen können. Abschließend wurden Gitterproben durch den Projektpartner AmpLight KG qualifiziert.

#### **Wissenschaftlicher und technischer Stand an den angeknüpft wurde**

Im Rahmen des Projektes wurde die Befähigung der rALD Anlage zur Fertigung optischer Einzelschichten und Mehrschichtsysteme mit unterschiedlichen dielektrischen Materialien entwickelt. Darüber hinaus konnte durch die Integration eines Breitband-Monitoring-Systems die In-situ-Messung und Regelung von optischen Beschichtungen realisiert werden. Hierfür konnte auf die vielfältige Expertise am Laser Zentrum Hannover e.V. zurückgegriffen werden, die durch verschiedene Veröffentlichungen auf den Themengebieten der optischen Dünnschichttechnologie dokumentiert ist. Dazu zählen Untersuchungen [1,2] zur Anwendung spektroskopischer Methoden bei der präzisen Steuerung von Abscheidungsprozessen mittels Breitband-Monitoring. Andere Veröffentlichungen in dem Themenfeld beschäftigen sich mit der Laser-induzierten Zerstörung von optischen Materialien [3,4,5] und insbesondere mit der Erforschung von Laser-induzierten Schäden, die auf der Oberfläche oder der Beschichtung von optischen Komponenten auftreten. Die Untersuchungen befassen sich mit Schlüsselfragen im Bereich der Hochleistungs-Laserbeschichtungen und berücksichtigt die Auswirkungen von Verunreinigungen. Ein weiterer Schwerpunkt, zu dem umfangreiche Forschungen durchgeführt wurden, betrifft die auch in diesem Projekt erforderliche Messmethode der Laserkalorimetrie, zur Bestimmung der absoluten Absorption von optischen Komponenten [6,7]. Die Betrachtung von optischen Schichten die mittels ALD abgeschieden wurden fand im Vorfeld des Projektes INTEGRA bereits ebenfalls statt [8,9] und wurde dazu mit anderen Beschichtungstechnologien verglichen. Die dort betrachteten Schichten zeigen eine hohe optische



Homogenität und wurden hinsichtlich ihres Einsatzes für Hochleistungslaser untersucht. (Literaturangaben [1-9] siehe Teil II Sachbericht)

## Ablauf des Vorhabens

Der Arbeitsplan des Forschungsprojektes INTEGRA umfasst 7 Arbeitspakete in der die Auslegung und Simulation sowie verschiedenen Stadien der Fertigung der Gitter durch die beteiligten Partner beschrieben sind. Diese Arbeiten wurden teilweise parallel bzw. mit zeitlichen Überschneidungen durchgeführt und beinhalteten Übergabepunkte, die in der



Abbildung 1: Aufgabenverteilung im Verbundprojekt

Verbundbeschreibung definiert wurden. Die konkrete Aufgabenteilung ist in Abbildung 1 zusammen mit den dafür zuständigen Projektpartnern dargestellt. Das Teilprojekt des LZH umfasste dabei vier Arbeitspakete, die in Tabelle 1 gemeinsam mit den jeweiligen Aufgaben aufgelistet sind.

Tabelle 1: Arbeitspakete im Teilprojekt

AP#	Arbeitspakete und Ergebnisse
AP1	<b>Gitterdesign:</b> Lieferung von spez. Beschichtungsdaten der rALD-Anlage (opt. Konstanten n & k)
AP2	<b>IBS-Beschichtung:</b> Durchführung von laserkalorimetrische Absorptionsmessungen an Proben der Université de Neuchâtel
AP4	<b>rALD: Grundlegende Prozessentwicklung:</b> Modifikation der Gaströme in der Prozesskammer; Identifikation von Parameterabhängigkeiten (Rotationsgeschwindigkeit, Temperatur); Maximierung der Beschichtungsuniformität; Bestimmung der optischen Konstanten n & k; Handling und Beschichtung der Gitter mit Einzelschichten
AP5	<b>rALD: Prozesserweiterung und In-situ-Monitoring:</b> Integration eines optischen Breitband-Monitoring-Systems; Prozessstabilisierung durch prozessbegleitende Diagnostik (BBM etc.); Ex-situ-Charakterisierung von Mehrschichtsystemen; Beschichtung der Gitter mit Mehrschichtsystemen

## Die wesentlichen Ergebnisse sowie Zusammenarbeit mit den anderen Forschungseinrichtungen

Zu Beginn des Projektes wurden in Zusammenarbeit mit dem Anlagenhersteller Präkursoren, mit denen die dielektrischen Schichten in diesem Verfahren hergestellt werden, erprobt. Die dabei gewonnenen Schichten wurden im LZH untersucht und qualifiziert. Aufgrund von Lieferengpässen und Beschränkungen aufgrund der COVID-19-Pandemie während der Beschaffung von Anlagen- und Laborinfrastruktur fand eine Inbetriebnahme im LZH erst im Januar 2021 und damit 7 Monate nach Projektbeginn statt. Anschließend konnten die Beschichtungsprozesse kontinuierlich weiterentwickelt werden. Zusammen mit dem Partner Gitterwerk und der UniNe wurden Halter für die strukturierten Glaswafer entworfen und gefertigt. Auch die Absorptionsmessungen für die von UniNe im IBS-Verfahren hergestellten Schichten fanden im LZH statt. Des Weiteren wurde, soweit bekannt, erstmalig ein optisches Breitbandmonitoring (BBM) erfolgreich in einer rALD-Anlage integriert, was das präzise Abscheiden von Schichtsystemen und die online-Prozesskontrolle ermöglicht. So konnten Absorptionswerte von 3,1 ppm für 186.2 nm Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> und 6,0 ppm für 1032 nm SiO<sub>2</sub> einschließlich Substrat und damit Beschichtungen mit geringen Verlusten gefertigt werden. Mit der Installation des BBMs konnten auch Mehrschichtsysteme direkt und ohne aufwändige Vorentwicklung abgeschieden werden. Im Verlaufe des Vorhabens konnte gezeigt werden, dass sich die rALD-Technik eignet um Beugungsgitter vollständig zu verfüllen und diese damit in industriellem Maßstab herstellbar sind.