

APLICACIÓN DE LA MICROSCOPIA HOLOGRÁFICA DIGITAL EN TRANSMISIÓN PARA LA CARACTERIZACIÓN DEL ESPESOR DE RECUBRIMIENTOS DELGADOS

Application of transmission digital holographic microscopy for the characterization of thin films thickness

RESUMEN

En este trabajo se implementa un sistema óptico experimental de microscopía holográfica digital para medir espesores de capas delgadas.

Se alcanzó la reconstrucción tridimensional de la superficie como una imagen de contraste de fase a través de procesamiento computacional de los hologramas digitales. Estas imágenes permiten mediciones cuantitativas de los espesores de los recubrimientos delgados.

Esta técnica se aplicó para medir los espesores de recubrimientos de sílice bioactivados con partículas de wollastonita producidos por la técnica sol-gel. Las deposiciones se hicieron mediante el método de inmersión-extracción con diferentes velocidades y usando 10% p/p de partículas de wollastonita dispersas en el sol de sílice.

PALABRAS CLAVES: holografía digital, métodos ópticos, recubrimientos, wollastonita.

ABSTRACT

In this work an experimental optical system of digital holographic microscopy is implemented to measure thicknesses of thin films.

The three-dimensional surface reconstruction was achieved as a phase contrast image obtained through computational processing of digital holograms. These images allow quantitative measurements of thin films thicknesses.

This technique was applied to measure silica depositions bioactivated with particles of wollastonite produced by means of sol-gel technique. The depositions were made through dip-coating method with different velocities and using 10% p/p of wollastonite particles dispersed into the silica sol.

KEYWORDS: Digital holography, optical methods, coatings, wollastonite.

JORGE HERRERA

Ingeniero Físico,
Candidato M. Sc. Física
Universidad Nacional de Colombia-
Medellín
jaherrer@unal.edu.co

EMIGDIO MENDOZA

Ingeniero de Materiales,
Candidato M. Sc. Física
Universidad Nacional de Colombia-
Medellín
ejmendoz@unal.edu.co

CLAUDIA GARCÍA

Doctora en Ciencias Químicas,
Universidad Nacional de Colombia-
Medellín
cpgarcia@unalmed.edu.co

ROMÁN CASTAÑEDA

Dr. Rer. nat. óptica,
Universidad Nacional de Colombia-
Medellín
rcastane@unalmed.edu.co

1. INTRODUCCIÓN

La determinación de espesores es crucial en la caracterización de recubrimientos delgados. Para ello existen herramientas típicas como los perfilómetros mecánicos y ópticos. Dentro de los perfilómetros ópticos podemos ubicar la microscopía holográfica digital. Esta herramienta interferométrica surgió de la idea inicial propuesta por D. Gabor[1] sobre holografía, la cual permite mediante el registro de la interferencia de campos ópticos coherentes guardar y extraer información que en otras técnicas de formación de imágenes no es posible. La microscopía holográfica digital permite el análisis de objetos microscópicos con resoluciones transversales similares a las obtenidas en microscopía óptica, pero además, al sacar ventaja de la naturaleza de la holografía, permite análisis axiales mediante el acceso a valores cuantitativos de fase[2]. En los últimos años esta técnica ha sido utilizada en diferentes pruebas, entre

ellas el estudio de muestras biológicas, el análisis de deformaciones, caracterización de microsistemas mecánicos y ópticos, entre otros.[3-6] Los montajes ópticos de registro son varios. Existen esquemas en reflexión y en transmisión[7], además hay diferencias en cuanto a la dirección o ángulo entre los haces que interfieren para formar el holograma lo que los clasifica como hologramas en línea o fuera de eje[7, 8].

En el caso de visualización de objetos de fase puros ya sean biológicos o no biológicos se utilizan sistemas basados en microscopía como los contraste de fase de Zernike, de campo oscuro o de interferencia diferencial contrastada de Normansky[9] y aunque todos ellos evitan las tinciones de las muestras, no permiten la extracción de características cuantitativas representadas en la fase. En el caso de la microscopía holográfica digital de transmisión los valores de la imagen de fase representan diferencias de longitud de camino óptico que surgen tanto de la morfología de las muestras como de los cambios de

índice de refracción[10]. En este trabajo esta herramienta se utiliza para la caracterización de espesores de capas de sílice amorfa, y de sílice amorfa con partículas de wollastonita dispersas, obtenidas por sol-gel y depositadas sobre portaobjetos de vidrio a través de la técnica de inmersión-extracción. Los resultados de las mediciones de espesores están en el rango de 0.5µm a 1.1µm.

2. MATERIALES Y MÉTODOS

2.1 Microscopía Holográfica Digital

En general la holografía digital supone el registro de un holograma mediante un montaje óptico interferométrico y su posterior reconstrucción mediante un sistema de cómputo[11]. El sistema interferométrico lleva a cabo el registro de la información de amplitud tanto como la de fase de un frente de onda a través de un registro de intensidades. La ecuación 1 representa el patrón de intensidades $I(x_h, y_h)$ generado por la interferencia de una onda de referencia con amplitud compleja $R(x_h, y_h)$ y una onda objeto con amplitud compleja $O(x_h, y_h)$.

$$I(x_h, y_h) = |R(x_h, y_h) + O(x_h, y_h)|^2 \\ = |R(x_h, y_h)|^2 + |O(x_h, y_h)|^2 + \dots \\ R^*(x_h, y_h)O(x_h, y_h) + R(x_h, y_h)O^*(x_h, y_h) \quad (1)$$

donde el subíndice h representa la ubicación en el plano holograma y * indica complejo conjugado.

La reconstrucción numérica producirá la recuperación de la amplitud compleja del frente de onda objeto $O(x, y)$, es decir el frente de onda portador de la información de interés.

2.1.1 Registro Holográfico

Los registros de los hologramas se han hecho en un montaje holográfico digital que se basa en una configuración Mach-Zehnder[11] el cual en uno de sus brazos contiene la muestra a analizar. El montaje experimental se esquematiza en la Fig. 1.

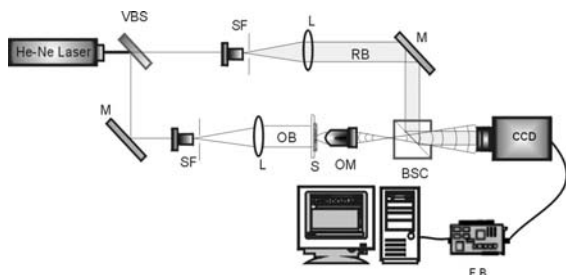


Figura 1. Montaje experimental para el registro de hologramas (ver texto para explicación)

En el montaje el haz proveniente de la fuente láser ($\lambda = 632.8\text{nm}$) es dividido en un haz de referencia y un haz objeto. El haz de referencia, que en la figura sigue la trayectoria inicial del láser, es colimado para formar una onda plana que interfiere en el plano del CCD con el haz objeto el cual ha sufrido difracción al atravesar la muestra y ha sido magnificado por el objetivo de microscopio (40X 0.65 NA). Con la inclinación del espejo M o el cubo divisor de haz (BSC), que es el que acopla los dos haces para ser dirigidos de nuevo al CCD, se logra la introducción del ángulo necesario en el esquema fuera de eje. El registro y digitalización de los hologramas se lleva a cabo mediante una cámara JAI CV-M4+CL y una tarjeta de adquisición CORECO X64-CL. Esta cámara tiene 1280x1024 píxeles cuadrados de lado 6.45µm y una salida en escala de grises de 10 bits.

2.1.2 Reconstrucción Numérica.

El procesamiento numérico de los datos holograma reproduce computacionalmente la difracción que sufre la onda de reconstrucción en un proceso óptico holográfico convencional donde el holograma actúa como la rejilla difractante[2]. En este trabajo se utiliza el método del espectro angular para el cálculo de la difracción del campo óptico[2], el cual se vale de la representación de los frentes de onda en términos de ondas planas para generar la imagen necesaria en un plano determinado.

Veamos, si el frente de onda en el plano $z = 0$ es $O(x, y, 0)$ entonces su espectro angular se obtiene al tomar su transformada de Fourier[2],

$$A(k_x, k_y, 0) = \iint O(x, y, 0) \exp[-i(k_x x + k_y y)] dx dy, \quad (2)$$

donde k_x, k_y son las correspondientes frecuencias espaciales en x e y . En este caso el espectro angular objeto, que es el de nuestro interés, no está aislado sino que se obtiene como una zona específica del total correspondiente a la transformada de Fourier del holograma. Por lo tanto la obtención de este espectro angular se puede considerar como el resultado del filtrado espacial del holograma. Ahora, si se desea recuperar el frente de onda objeto en fase y amplitud para el plano específico que se registró en el holograma, basta con llevar a cabo la transformada de Fourier inversa del espectro angular obtenido, así:

$$O(x, y, 0) = \iint A(k_x, k_y, 0) \exp[i(k_x x + k_y y)] dk_x dk_y. \quad (3)$$

Pero si se requiere la reconstrucción del frente de onda en un plano diferente, entonces se necesita una propagación digital que en este caso se hace a partir del espectro angular ya hallado. El espectro angular de un frente de onda se interpreta como la descomposición en ondas planas de éste, así que la propagación de un frente de onda a través del espectro angular involucra la propagación de una onda plana la distancia z que se desea. Así la propagación de una onda plana componente se representa así:

$$A(k_x, k_y, z) = A(k_x, k_y, 0) \exp[i(k_z z)], \quad (4)$$

$$\text{donde } k_z = \sqrt{k^2 - k_x^2 - k_y^2}.$$

Por lo tanto el frente de onda objeto total en un plano perpendicular a la dirección de propagación z está dado por la transformada inversa de Fourier de su correspondiente espectro angular propagado[12]:

$$O(x, y, z) = \iint A(k_x, k_y, z) \exp[i(k_x x + k_y y)] dk_x dk_y. \quad (5)$$

Esta reconstrucción holográfica digital contiene entonces la información de fase y amplitud del frente de onda objeto para una distancia z específica.

2.1.3 Reconstrucción en Fase y Corrección de Aberraciones

Para la cuantificación del desfase que genera el paso de la luz láser a través de la muestra, es necesario corregir los cambios en fase inherentes a defectos o naturaleza del montaje utilizado y que no representan cambios reales debidos al objeto. El principal cambio de fase que surge del montaje experimental está dado por la curvatura de frente de onda inducida por el objetivo de microscopio usado en la magnificación. Este problema se corrige con procesamiento numérico y la obtención de un holograma de referencia[13, 14]. Este holograma de referencia permite obtener la fase proveniente sólo del montaje y así sustraerla de la fase objeto obtenida[13].

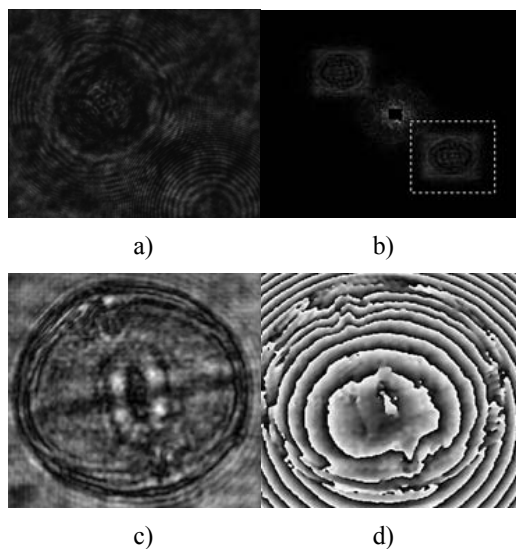


Figura 2. a) Registro holográfico digital b) Espectro angular del holograma mostrando la zona correspondiente al objeto c) reconstrucción amplitud objeto d) reconstrucción fase objeto. (objeto biológico)

En la Fig. 2b se muestra el espectro angular del holograma de la Fig 2a y la región específica que corresponde al espectro angular objeto. Además de la imagen de amplitud y fase usuales (Fig. 2c y 2d) provenientes del proceso de reconstrucción descrito. La imagen de fase contiene entonces valores que provienen

del montaje y que no corresponden a valores de fase producidos por el objeto por lo que con el uso del holograma llamado de referencia se puede obtener esa fase y removerla.

Como se puede observar en la Fig. 2d la imagen de fase está representada de una manera discontinua, esto es debido a la naturaleza del proceso de obtención de fase y esta representación se conoce regularmente como mapa de fase 2π ya que su representación está restringida al intervalo acotado 0 a 2π [15]. El proceso de eliminación de estas discontinuidades o desenrollamiento de fase permite pasar de este mapa discontinuo o envuelto a un continuo de la información que necesitamos[16].

2.2. Preparación de Muestras.

El sol de sílice se preparó a partir de una reacción de catálisis ácida utilizando como precursores de sílice tetraetoxisilano (TEOS, ABCR), y metiltrietoxisilano (MTES, ABCR)[8].

Las suspensiones fueron preparadas adicionando al sol de sílice un 10% de partículas de wollastonita comercial (NYAD 1250), producida por MINERA NYCO S.A. (USA) con un tamaño medio de $3.5\mu\text{m}$. Luego se realizó un proceso de homogenizado de la suspensión con un agitador Silverson L2R UK, durante un tiempo de 4 minutos y en el intermedio del homogenizado se adicionó éster de fosfato en un 3% en peso con respecto a la masa de partículas para estabilizar las suspensiones[17-20].

2.3. Recubrimientos.

Para realizar la deposición de los recubrimientos se utilizaron como sustratos portaobjetos de vidrio. Sobre estos sustratos se depositaron recubrimientos libres de partículas de wollastonita y con partículas dispersas por medio de la inmersión del sustrato en el sol y en la suspensión, respectivamente, y con una posterior extracción a 5 diferentes velocidades en un rango de 4.1cm/min a 18.1cm/min [8, 21]. Todos estos recubrimientos se sometieron a un tratamiento térmico de densificación a 400°C durante 30 minutos. Previo al tratamiento térmico se removió parte de la deposición por medio de una punta de cobre lo que generó un escalón en la muestra lo que evidencia el espesor del recubrimiento.

3. RESULTADOS Y ANÁLISIS

En esta sección se presentan los resultados de la aplicación de la técnica de microscopía holográfica digital a la medición de espesores de deposiciones. Las muestras a analizar son objetos traslúcidos que en el caso en que la deposición es libre de partículas son objetos puros de fase en los que la imagen de amplitud, la cual es equivalente a la imagen obtenida en un microscopio óptico convencional, no hace visible ningún contraste (Fig.3a). En estos casos es el acceso a la fase lo que hace posible la visualización de la ranura que se generó con la

punta de cobre además de otros detalles como los que muestran que esta punta tenía pequeñas imperfecciones.

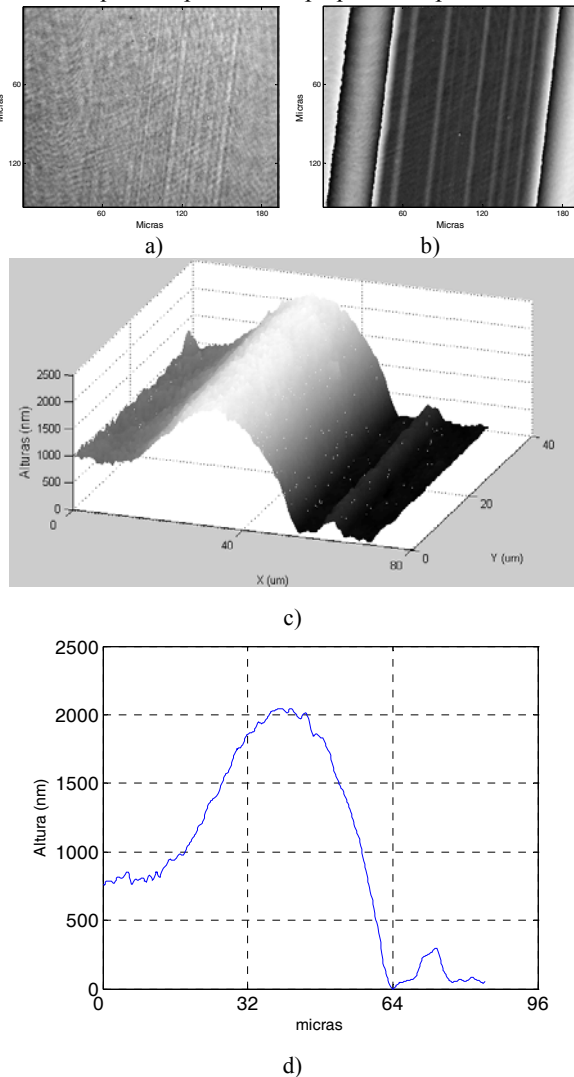


Figura 3. Aplicación de la técnica holográfica a la medida de espesores. a) Imagen de amplitud b) imagen de fase envuelta c) perfil de alturas 3-D d) perfil del escalón en una línea.

En la Figura 3 se muestran los resultados de la aplicación de la técnica holográfica para la muestra con recubrimiento libre de partículas a una velocidad de extracción de 8.8cm/min. La figura 3a muestra la imagen de amplitud que como se ha mencionado no revela la existencia del escalón generado por la punta de cobre. Mientras que la imagen de fase envuelta, figura 3b, hace clara la existencia del escalón pero todavía requiere del desenvolvimiento de fase y la conversión de sus valores a mediciones de altura. Los valores de fase se relacionan con la altura según[6, 12]

$$h = \phi \times F = \phi \frac{\lambda}{2\pi(n-1)}, \quad (6)$$

donde ϕ es la fase obtenida, λ es la longitud de onda y n es el índice de refracción de la muestra a la longitud de onda utilizada.

Así en la figura 3c se hace una visualización 3-D del perfil de alturas y en la figura 3d se da un corte transversal de éste a

partir del cual se obtienen los valores de espesor de la capa depositada.

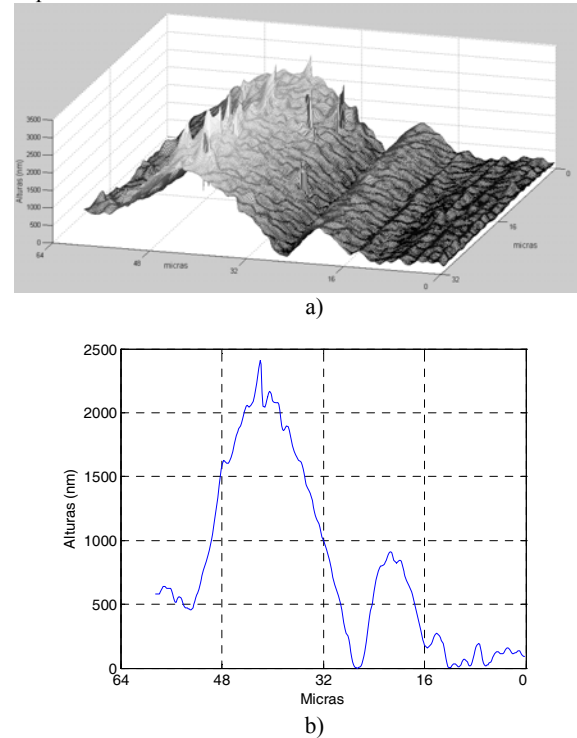


Figura 4. Perfiles de alturas para recubrimiento con partículas a) perfil 3-D b) perfil en una línea.

La figura 4 muestra el perfil del recubrimiento con partículas dispersas y con una velocidad de extracción de 4.1cm/min donde se aprecian variaciones localizadas de la superficie debido a la presencia de las partículas de wollastonita en la matriz de sílice. Estas variaciones se deben al incremento del índice de refracción en las regiones del recubrimiento que existen las partículas. Traduciéndose en un aumento de la longitud de camino óptico en regiones localizadas y por tanto en un aparente aumento de la altura del recubrimiento.

Velocidad (cm/min)	Espesor de recubrimiento sin partículas (um)	Espesor de recubrimiento con partículas (um)
4.1	0.50±0.02	0.42±0.02
8.8	0.58±0.02	0.51±0.02
11.1	0.88±0.02	0.80±0.02
15.6	1.05±0.02	0.94±0.02
18.1	1.10±0.02	1.00±0.02

Tabla 1. Espesores de recubrimientos con partículas y sin partículas de wollastonita para velocidades de extracción entre 4.1 y 18.1 cm/min

La aplicación del procedimiento óptico anterior, el cual para este ensayo se le estimó una incertidumbre de 20nm[22], permitió hacer un estudio de espesores para

diferentes velocidades de extracción como se muestra en la Tabla 1 observándose que éstos aumentan con el aumento de la velocidad de extracción. También se evidencia que para una misma velocidad de extracción los espesores del recubrimiento sin y con partículas difieren. Esto se debe a la presencia del éster de fosfato como agente dispersante en la estabilización de la suspensiones, el cual disminuye la viscosidad del sol en la suspensión aumentando el drenaje de la solución durante el proceso de extracción.

4. CONCLUSIONES

Se mostró que es posible utilizar la técnica de microscopía holográfica digital en la caracterización de espesores de recubrimientos delgados y se evidencia que esta herramienta tiene la posibilidad de reconstrucciones 3-D de superficies en materiales con índice de refracción homogéneo o visualización de cambios de índice de refracción inducidos por algún tipo de tratamiento en los materiales.

La resolución del sistema nos permitió observar los cambios de espesor a medida que se daban los cambios de velocidad y además, como la disminución de viscosidad en las suspensiones de partículas por uso del éster de fosfato, disminuía sistemáticamente el espesor del recubrimiento que contenía las partículas de wollastonita.

AGRADECIMIENTOS

Al ingeniero mecánico Diego Andrés Hincapié por sus discusiones y aportes en la programación de algoritmos.

BIBLIOGRAFÍA

- [1] D. Gabor, "A new microscopic principle," *Nature*, vol. 161, pp. 777-778, 1948.
- [2] J.W. Goodman, *Introduction to Fourier Optics*. Second ed., San Francisco McGraw-Hill, 1996.
- [3] F. Dubois, C. Minetti, O. Monnom, C. Yourassowsky, J.C. Legros, and P. Kischel, "Pattern recognition with a digital holographic microscope working in partially coherent illumination," *Appl. Opt.*, vol. 41, pp. 4108-4119, 2002.
- [4] G. Coppola, P. Ferraro, M. Iodice, S. De Nicola, A. Finizio, and S. Grilli, "A digital holographic microscope for complete characterization of microelectromechanical systems," *Meas. Sci. Technol.*, vol. 15, pp. 529-539, 2004.
- [5] L. Xu, X. Peng, J. Miao, and A.K. Asundi, "Studies of digital microscopic holography with applications to microstructure testing," *Appl. Opt.*, vol. 40, pp. 5046-5051, 2001.
- [6] B. Rappaz, P. Marquet, E. Cuche, Y. Emery, C. Depeursinge, and P.J. Magistretti, "Measurement of the integral refractive index and dynamic cell morphometry of living cells with digital holographic microscopy," *Opt. Exp.*, vol. 13, pp. 9361-9373, 2005.
- [7] E. Cuche, P. Marquet, and C. Depeursinge, "Simultaneous amplitude-contrast and quantitative phase contrast microscopy by numerical reconstruction of Fresnel off-axis holograms", vol. 38, pp. 6994-7001, 1999.
- [8] J. Garcia-Sucerquia, W. Xu, K. Jericho, P. Klages, M.H. Jericho, and H.J. Kreuzer, "Digital in-line holographic microscopy," *Appl. Opt.*, vol. 45, pp. 836-850, 2006.
- [9] P. Torok and F.J. Kao, *Optical imaging and microscopy*: Springer-Verlag, 2003.
- [10] F. Palacios, J. Ricardo, D. Palacios, E. Goncalves, J.L. Vali, and R.D. Souza, "3D image reconstruction of transparent microscopic objects using digital holography," *Opt. Comm.*, vol. 248, pp. 41-50, 2005.
- [11] U. Schnars and W.P. Jueptner, *Digital Holography*: Springer-Verlag, 2005.
- [12] C. Mann, L. Yu, C.M. Lo, and M. Kim, "High-resolution quantitative phase-contrast microscopy by digital holography," *Opt. Exp.*, vol. 13, pp. 8693-8698, 2005.
- [13] T. Colomb, J. Kühn, F. Charrière, C. Depeursinge, P. Marquet, and N. Aspert, "Total aberrations compensation in digital holographic microscopy with a reference conjugated hologram," *Opt. Exp.*, vol. 14, pp. 4300-4306, . 2006.
- [14] P. Ferraro, S.D. Nicola, A. Finizio, G. Coppola, S. Grilli, C. Magro, and G. Pierattini, "Compensation of the Inherent Wave Front Curvature in Digital Holographic Coherent Microscopy for Quantitative Phase-Contrast Imaging " *Appl. Opt.* , vol. 42, pp. 1938-1946, 2003.
- [15] T. Kries, *Holography Interferometry*. Berlin: ed. Akademie Verlag, 1996.
- [16] D. Malacara, M. Servín, and Z. Malacara, *Interferogram Analysis for optical testing*. New York. : Marcel Dekker Inc, 1998.
- [17] A.K. Maiti and B. Rajender, "Terpineol as a dispersant for tape casting yttria stabilized zirconia powder," *Materials Science and Engineering*, vol. A333, pp. 35-40, 2002.
- [18] R.E. Becker and W.R. Cannon, "Source of water and its effect on tape casting barium titanate," *American Ceramic Society*, vol. 73, pp. 1312-1317, 1990.
- [19] H. Ging, W. Li, and I. Linc, "Optimized phosphate ester structure for the dispersion of nano-sized barium titanate in proper non-aqueous media," *Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects*, vol. 294, pp. 212-220, 2007.
- [20] E. Roncari, P. Pinasco, M. Nagliati, and D. Sciti, "Tape casting of AlN-SiC-MoSi₂ composites," *European Ceramic Society*, vol. 24, pp. 2303-2311, 2004.
- [21] P. Galliano, J.J.D. Damborenea, J. Pascual, and A. Durán, "Sol-Gel coating on 316L for Clinical

Applications," *Sol-Gel Science and Technology*, vol. 13, pp. 723-727, 1998.

- [22] F. Charrière, B. Rappaz, J. Kühn, T. Colomb, P. Marquet, and C. Depeursinge, "Influence of shot noise on phase measurement accuracy in digital holographic microscopy," *Opt. Exp.*, vol. 15, pp. 8818-8831, 2007.