

激光会聚铬原子光栅三维特性分析

张萍萍¹ 马艳¹ 张宝武^{2,3} 李同保¹

(¹ 同济大学物理系, 上海 200092; ² 中国计量学院计量测试工程学院, 浙江 杭州 310018)
³ 清华大学精密测试技术及仪器国家重点实验室, 北京, 100084)

摘要 采用近共振激光驻波场会聚铬原子沉积技术制作的原子光栅可以作为纳米级长度计量标准。基于粒子光学模型, 综合考虑横向发散角、纵向速度分布以及同位素等影响因素, 采用蒙特-卡罗方法确定原子运动的初始条件, 对激光驻波会聚原子的三维特性进行了研究。获得了不同激光功率下沉积条纹的三维结构, 分析了纵向高斯激光分布和椭圆高斯激光截面对沉积条纹的影响。模拟结果表明, 当激光功率为 40 mW 时, 可观测的纳米光栅图案能在基板 87% 区域内出现, 对应于高斯光束中心处条纹半峰全宽为 31 nm。当高斯激光束截面为圆形时, 沉积质量较好。

关键词 激光光学; 原子光刻; 纳米计量; 激光驻波场; 蒙特-卡罗方法

中图分类号 O436 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS201131.1114001

Properties of 3D Nanostructures Fabricated by Laser-Focused Cr Atomic Deposition

Zhang Pingping¹ Ma Yan¹ Zhang Baowu^{2,3} Li Tongbao¹

¹ Department of Physics, Tongji University, Shanghai 200092, China

² College of Metrology and Measurement Engineering, China Jiliang University, Hangzhou, Zhejiang 310018, China

³ State Key Laboratory of Precision Measurement Technology and Instruments, Tsinghua University, Beijing 100084, China

Abstract Periodic nanostructures fabricated by atom lithography using standing-wave light field can be applied for nanometrology. Atom-optical properties of 3D standing-wave light field are studied with particle optics model. The initial condition of each trajectory is stochastically selected with Monte-Carlo method, where the effects of isotope, longitudinal velocity distribution and transverse Gaussian divergence are systematically evaluated. 3D nanostructures with varying laser powers are presented, which shows the effect of longitudinal Gaussian distribution of the light field. The effect of elliptical standing wave is also discussed. It is shown that well-defined nano-grating lines appear in 87% of the substrate and full width at half maximum (FWHM) obtained at the center of Gaussian laser beam is 31 nm when the laser power is 40 mW. Good results can be obtained when the shape of the cross section of the standing wave is round.

Key words laser optics; atom lithography; nanometrology; standing wave light field; Monte-Carlo method

OCIS codes 140.3325; 220.3740; 220.4241

1 引 言

激光驻波场会聚铬原子沉积技术^[1]可以得到反映驻波场周期的纳米光栅, 可用作原子力显微镜 (AFM) 等纳米测量工具的计量标准^[2]。激光驻波场会聚铬原子沉积技术采用激光驻波场形成的偶极力将准直好的原子束会聚在驻波的波节或波腹处, 在基板上形成周期性的条纹。由于原子的跃迁频率

极为稳定, 相应的会聚激光频率也是非常精确的。因此, 所得纳米光栅的周期可以直接溯源于绝对原子跃迁频率, 这使激光驻波场会聚铬原子沉积技术成为研制纳米计量传递标准的新路线。

在大失谐低功率实验条件下, 分析激光驻波场会聚铬原子沉积模型主要是经典粒子光学模型^[3~8]。其中驻波场所形成的原子透镜主要分为薄

收稿日期: 2011-04-07; **收到修改稿日期**: 2011-06-20

基金项目: 国家自然科学基金(10804084)和清华大学国家重点实验室开放基金(DL_003)资助课题。

作者简介: 张萍萍(1987—), 男, 博士研究生, 主要从事原子光刻方面的研究。E-mail: zpp_789@163.com

导师简介: 李同保(1942—), 男, 院士, 博士生导师, 主要从事原子操纵和纳米计量等方面的研究。

E-mail: tbli@tongji.edu.cn(通信联系人)

透镜模型、厚透镜模型以及沟道化模型。在薄透镜情形下,会聚激光功率较小,原子束的聚焦平面在激光场外;在厚透镜情况下,会聚激光功率较大,原子束的聚焦平面在激光场内;沟道化模型有可能形成多个聚焦平面。在之前的分析中,一般只考虑驻波场沿轴方向的高斯光强最大处一个切面的沉积情况,分析出激光功率、失谐、束腰半径以及铬原子束的纵向速度分布、横向发散角等实验参数对沉积条纹的半峰全宽(FWHM)、对比度的影响。这能反映沉积过程中原子会聚情况,可以对一些实验参数进行局部优化,但是不能反映出沉积条纹的三维结构。实验中一般采用 AFM 完成对样品的检测。在实际操作中,如果沉积形成的周期性纳米条纹的区域较小,这会使得对纳米条纹的定位相当困难,因此,对沉积条纹所形成的区域大小的研究具有相当大的实用价值。张文涛等^[9]分析了某一特定椭圆高斯光束的会聚与沉积特性,但没有对不同离心率下椭圆高斯光束对沉积结果的影响进行比较分析。本文基于粒子光学模型,给出原子在三维激光驻波场运动的轨迹方程,采用蒙特-卡罗思想提供初始条件,分析了激光功率以及不同离心率下椭圆高斯激光束对沉积的三维结构的影响。

2 理论模型

激光驻波场会聚铬原子沉积如图 1 所示,横向激光冷却后的原子束在通过由激光驻波场形成的原子透镜时,原子会在驻波场偶极力的作用下向低势阱处会聚,在基片上沉积形成周期性纳米结构。

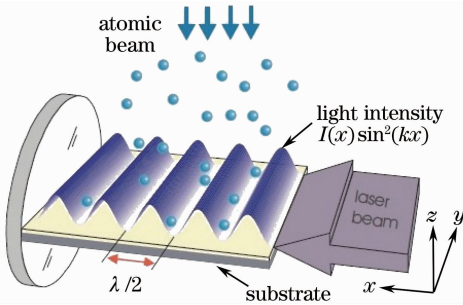


图 1 激光驻波场汇集铬原子沉积示意图

Fig. 1 Geometry for laser-focused atomic deposition

如图 1 所示,激光驻波场沿 x 轴分布,且设 y, z 方向的激光束腰半径分别为 w_y, w_z , 那么三维高斯激光驻波场光强的分布可表示为^[4]

$$I(x, y, z) = I_0 \sin^2(kx) \exp\left(-\frac{2y^2}{w_y^2} - \frac{2z^2}{w_z^2}\right), \quad (1)$$

式中 $k = 2\pi/\lambda$ (λ 为激光波长), I_0 为高斯光束中心

处光强。基态原子在高斯驻波场中的光学势能为

$$U(x, y, z) = \frac{\hbar\Delta}{2} \ln\left[1 + \frac{I(x, y, z)}{I_s} \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + 4\Delta^2}\right], \quad (2)$$

式中 $\hbar = h/2\pi$ (h 为普朗克常量), Δ 为失谐, Γ 为自发辐射率, I_s 为饱和激光光强。

原子在三维激光驻波场中的运动轨迹方程可以表示为^[10]

$$\begin{cases} \frac{dx}{dz} = \alpha \\ \frac{dy}{dz} = \beta \\ \frac{d\alpha}{dz} = \frac{1 + \alpha^2 + \beta^2}{2(E_0 - U)} \left(\alpha \frac{\partial U}{\partial z} - \frac{\partial U}{\partial x} \right) \\ \frac{d\beta}{dz} = \frac{1 + \alpha^2 + \beta^2}{2(E_0 - U)} \left(\beta \frac{\partial U}{\partial z} - \frac{\partial U}{\partial y} \right) \end{cases}, \quad (3)$$

式中 α 为原子在 x 方向初始发散角, β 为原子在 y 方向初始发散角, $E_0 = mv^2/2$, m 为原子质量, v 为原子沿 z 轴的纵向速度。

使用 $(x_i, y_i, v_i, \alpha_i, \beta_i, T_i)$ 表示每条轨迹的初始条件。其中 x_i, y_i 表示原子进入光场的初始位置。如果对 n 个周期内的沉积进行模拟,那么 x_i 应选择 $[-n\lambda/4, n\lambda/4]$ 当中的随机数。距高斯光束中心 1.5 倍束腰半径处,光强降为的中心 1%, 此时近似认为原子与光场无作用,故 y_i 选取 $[-1.5w_y, 1.5w_y]$ 当中的随机数。 v_i 表示初始纵向速度, α_i, β_i 分别表示 x, y 方向初始发散角。原子纵向速度 v_i 满足麦克斯韦玻耳兹曼分布律,横向发散角 α_i 符合高斯分布,两者符合联合概率密度分布函数^[3]

$$P(v_i, \alpha_i) \propto v_i^4 \exp\left[-\frac{v_i^2}{2v_0^2} \left(1 + \frac{\alpha_i^2}{\alpha_0^2}\right)\right], \quad (4)$$

式中 v_0 为原子纵向最可几速率, $\alpha_0 = \alpha_{\text{FWHM}} / (2\sqrt{\sqrt{2} - 1})$, α_{FWHM} 为激光冷却实验中原子束发散角分布的 FWHM。纵向发散角 β_i 与原子纵向速度 v_i 的概率分布同样满足(4)式。符合(4)式的随机数选取按如下思路进行^[8]:首先在三维空间中选取随机点 (v_i, α_i, P_i) , 将 P_i 与 $P(v_i, \alpha_i)$ 相比较。如果 $P_i < P(v_i, \alpha_i)$, 则选取的 (v_i, α_i) 有效;反之,则重复上述过程,直到选取的随机点满足 $P_i < P(v_i, \alpha_i)$ 为止。这样即可产生符合(4)式分布的随机数序列。

实验中采用⁵²Cr 作为沉积原子。铬元素各自然同位素中,⁵²Cr 原子的丰度为 84% 左右,剩下的同位素如⁵³Cr, ⁵⁴Cr 等总和只占 16%, 且不与光场发生作用。首先选取均匀分布于 $[0, 1]$ 之间的随机数 r , 如果 $r \in [0.16, 1]$, 那么可以认为此时产生的原子

为 ^{52}Cr , 三维空间的原子的轨迹方程按(3)式来计算; 如果 $r \in [0, 0.16]$, 此时认为原子的属性为 ^{52}Cr 的同位素。由于同位素不与光场耦合, 忽视重力的作用, 故同位素的运动轨迹应是一条直线, 其运动轨迹应满足微分方程组

$$\begin{cases} \frac{dx}{dz} = \alpha, & \frac{dy}{dz} = \beta \\ \frac{d\alpha}{dz} = 0, & \frac{d\beta}{dz} = 0 \end{cases}, \quad (5)$$

通过蒙特-卡罗方法确定了每条轨迹的初始条件 $(x_i, y_i, v_i, \alpha_i, \beta_i, T_i)$ 之后, 即可通过轨迹(4)式或(5)式来追踪原子运动, 从而得出沉积平面处原子密度的分布情况。

3 模拟结果

3.1 相关参数

^{52}Cr 原子的工作谱线对应共振能级跃迁 $^7\text{S}_3 \rightarrow ^7\text{P}_4^0$, 其对应的波长为 $\lambda = 425.55 \text{ nm}$, 自发辐射率为 $\Gamma = 5 \times 2\pi \text{ MHz}$, 饱和光强 $I_s = 85 \text{ mW/cm}^2$ 。实验中, 会聚激光束入射功率为 $P = 7.86 \text{ mW}$ (对应高斯激光驻波场中心光强为 $I_0 = 1.37 \times 10^3 \text{ mW/cm}^2$), 失谐为 $\Delta = 2\pi \times 250 \text{ MHz}$, 设定束腰半径 $w_y = w_z = 60 \text{ }\mu\text{m}$ 。从高温原子炉中泄流出来的铬原子束, 纵向最可几速率可表示为

$$v = \sqrt{3k(t + 273)/m}, \quad (6)$$

式中 k 为玻耳兹曼常数, t 为原子炉温度。在实验中, 原子炉温度通常设定为 $1550 \text{ }^\circ\text{C}$, 所对应的最可几速率 $v_0 \approx 950 \text{ m/s}$ 。铬原子束的准直是一维多普

勒^[11]或亚多普勒激光冷却^[12]的方式来实现, 本文选取最佳结果 $\alpha_{\text{FWHM}} = 0.16 \text{ }\mu\text{rad}$ 。

3.2 激光功率对光栅三维结构的影响

图2在两个周期内显示了不同激光功率下铬原子在三维激光驻波场中沉积的三维结构, 所用功率分别为 $5, 10, 20$ 和 40 mW 。除激光功率不同外, 其余均采用3.1节所提供的参数。沉积的总原子数为 5×10^5 。基板的位置固定在距高斯激光束中心 $1.5w_z$ 处。可以看出, 沿 x 轴方向均形成了周期性的条纹结构, 间距为 $\lambda/2$ 。图3显示了对应于图2的纳米光栅条纹。由图3可知, 当激光功率分别为 $5, 10, 20$ 和 40 mW 时, 可观测的沉积条纹在 y 轴的范围分别为 $[-0.8, 0.8], [-1, 1], [-1.1, 1.1]$ 和 $[-1.3, 1.3]$, 所占百分比分别为 $53\%, 66\%, 73\%$ 和 87% 。这说明了, 随着激光功率的增强, 条纹沿 y 轴沉积图案的范围增加, 这是由沿 y 轴的高斯激光光强分布引起的。当功率较小时($P = 5 \text{ mW}$ 和 10 mW), 离高斯光束中心较远距离处的光强将沿 y 轴降低, 此时原子透镜的聚焦能力大大减弱, 相应的会聚效果不佳。反之, 当功率较大时($P = 20 \text{ mW}$ 和 40 mW), 离高斯光束中心处的光强相对而言依然较大, 此时原子透镜依然有显著的会聚作用, 所以原子光刻所得的纳米图案范围较大。但在不同功率下, 可观测沉积条纹的区域的差别并不显著, 如 5 mW 所对应的图3(a)与 40 mW 所对应的图3(d)。可能的原因是, 纵向发散角的存在使周期纳米条纹出现的范围沿 y 轴延伸。

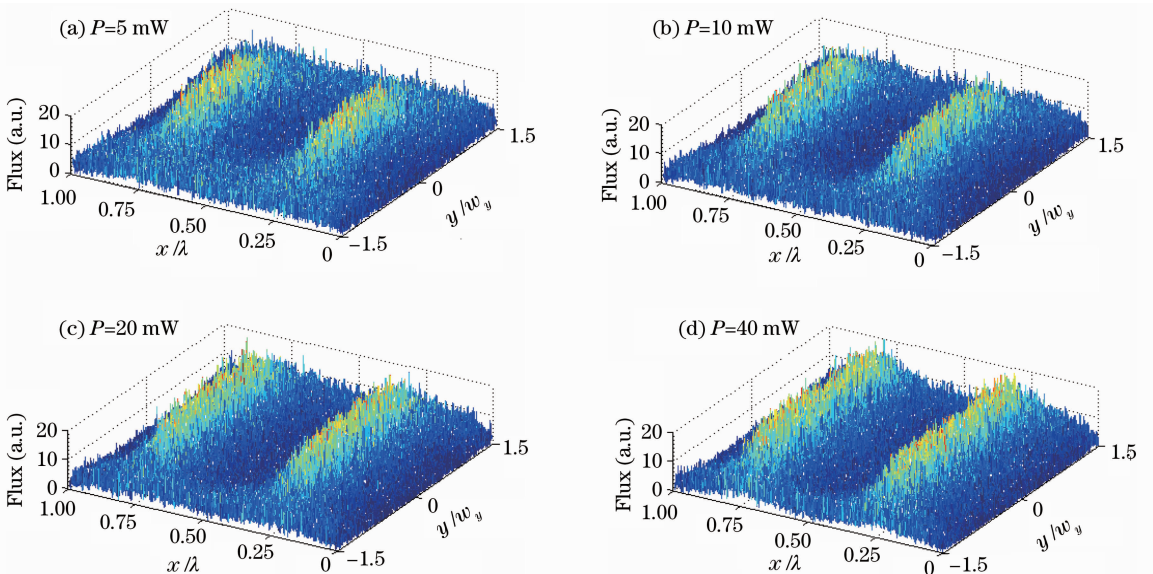


图2 不同激光功率下纳米光栅三维结构

Fig. 2 3D nanostructures with varying laser powers

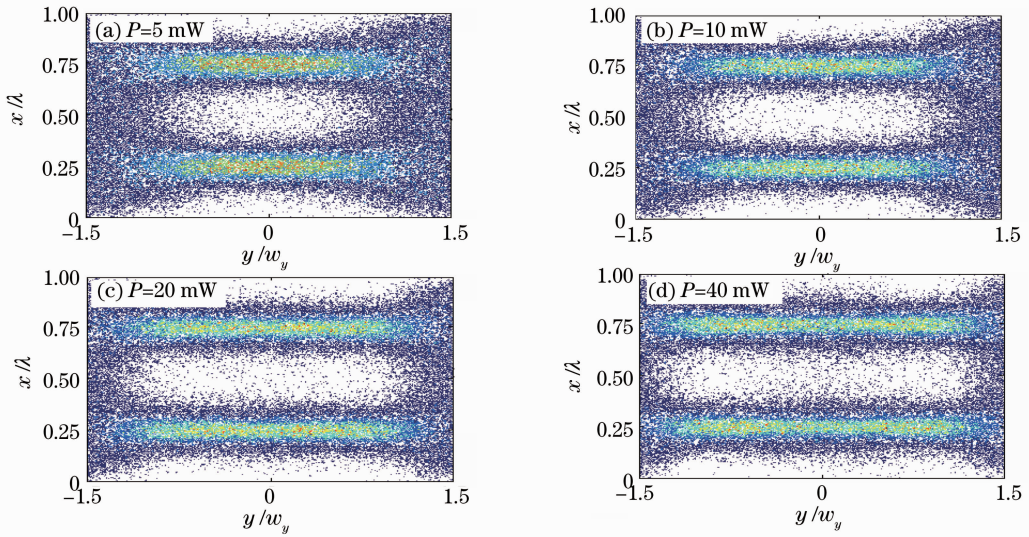


图 3 不同激光功率下纳米光栅条纹

Fig. 3 Deposited nano-grating lines with varying laser powers

不同的激光功率对应了不同的沉积模型。依据文献[3]所提出的一级傍轴近似会聚功率公式 $P_{\text{focus}} = a\pi E_0 I_s \Delta / (h\Gamma^2 k^2)$ (其中 a 为激发参数) 可以判定, 在当前参数下, 5 mW 所对应的原子透镜模型为薄透镜模型, 10, 20 和 40 mW 所对应的模型为厚透镜模型。为了定量分析不同激光功率下三维结构的质量, 依据上面条纹出现的范围, 绘制了 FWHM 沿 y 轴的变化图, 如图 4 所示。因为沉积结构关于 $y=0$ 对称, 故仅考虑 y 轴正半轴。在高斯光强最大处 ($y=0$), 5, 10, 20 和 40 mW 激光光强所对应的 FWHM 分别为 51, 40, 35 和 31 nm。且随着功率的增加, 曲线的变化率减小, 当 $P=40$ mW 时, 远离高斯中心处的 FWHM ($y=1.3w_y$) 与高斯中心处的 FWHM ($y=0$) 只相差 4 nm 左右, 这说明了, 大功率下沉积条纹在较大范围内具有很高的结构质量, 样品检测时的 AFM 测量验证了这一结论。图 5 即显示了激光功率 $P=20$ mW 时的实验结果, 采用 3.1 节所提

供参数, 基板位置位于高斯激光束中心 $1.5w_z$ 处, 沉积时间为 1 h。如图所示, 在 $10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$ 的区域内得到了高度为 4 nm 的均匀分布的周期为 212.6 nm 的纳米光栅结构, 达到了实用性的要求。而当沉积功率较小 ($P < 10$ mW) 时实验结果不理想, 沉积条纹质量较差, 条纹出现的区域较小, 在样品检测过程中, AFM 探针有时甚至定位不到条纹的位置。

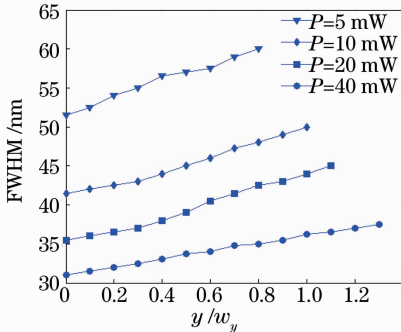


图 4 不同激光功率下、不同 y 平面处半峰全宽变化情况

Fig. 4 FWHM at different y planes with varying laser powers

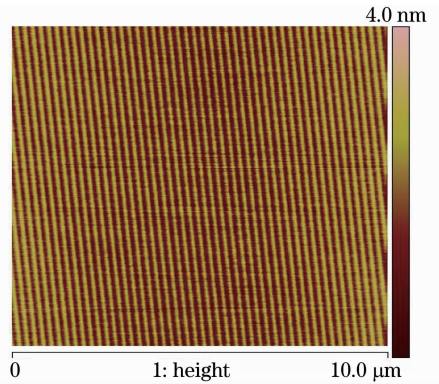


图 5 $P=20$ mW 时 $10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$ 区域内均匀分布的铬原子光栅 AFM 图像

Fig. 5 $10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$ AFM image of Cr atomic grating showing the uniformity of the periodic structure when the laser power is 20 mW

3.3 椭圆高斯激光束对纳米光栅三维结构的影响

由于激光束从激光器射出后, 经过多个光学器件作用后, 光束的截面往往不是圆形高斯激光束, 其截面有可能呈现椭圆状, 故分析椭圆高斯激光束对纳米结构的影响具有特殊的意义^[9]。图 6 显示了不同椭圆高斯激光束下纳米光栅条纹的形状。设定激

光功率 $P = 10 \text{ mW}$, 束腰半径分别为 $w_y \times w_z = 60 \mu\text{m} \times 60 \mu\text{m}$, $w_y \times w_z = 40 \mu\text{m} \times 60 \mu\text{m}$ 和 $w_y \times w_z = 60 \mu\text{m} \times 40 \mu\text{m}$, 分别对应于图 6(a)~(c)。其余参数与 3.1 节相同, 沉积原子数为 5×10^5 , 基板位于高斯光束中心 $1.5w_z$ 处。如图 6 所示, 沿着 y 轴方向, 条纹的范围分别为 $[-1, 1]$, $[-0.75, 0.75]$ 和 $[-0.85, 0.85]$ 。经计算, 在 $y = 0$ 平面处,

图 6(a)~(c) 所对应的条纹的 FWHM 分别为 35, 46 和 42 nm。模拟结果表明, 当高斯光束截面为圆形时, 沉积范围较大, 且沉积质量较好。图 6(c) 所对应的 $w_y > w_z$ 情况所得结果次之, $w_y < w_z$ 对应的图 6(b) 得出结果最差。为此, 在实验中, 应尽量避免高斯光束椭圆截面情况。

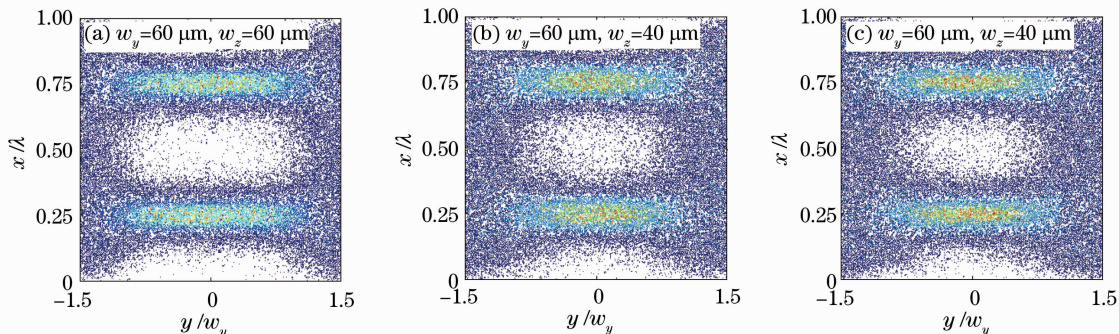


图 6 椭圆高斯激光束下的纳米光栅条纹

Fig. 6 Deposited nano-grating lines with elliptical a Gaussian laser beam

4 结 论

基于粒子光学模型, 采用蒙特-卡罗方法提供初始条件, 综合考虑纵向速度分布、横向发散角及同位素等影响因素, 分析了三维激光驻波场的原子光学特性。给出了不同激光功率下纳米光栅的三维结构, 当激光功率较大时沉积条纹能在较大范围内出现, 且质量较高。同时分析了椭圆高斯激光束对沉积的影响, 模拟结果表明, 当激光束截面为圆形时, 可获得较高质量的三维条纹。这些工作为正在进行的实验提供了较好的理论基础。

参 考 文 献

- 1 J. J. McClelland, R. E. Shorten, E. C. Palm *et al.*. Laser-focused atomic deposition [J]. *Science*, 1993, **262** (5135): 877~880
- 2 Li Tongbao. Nanometrology and transfer standard [J]. *Shanghai Measurement and Testing*, 2005, **32**(1): 8~13
李同保. 纳米计量与传递标准 [J]. 上海计量测试, 2005, **32**(1): 8~13
- 3 J. J. McClelland. Atom optical properties of a standing-wave light field [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1995, **12**(10): 1761~1768
- 4 W. R. Anderson, C. C. Brandley, J. J. McClelland *et al.*. Minimizing feature width in atom optically fabricated chromium nanostructures [J]. *Phys. Rev. A*, 1999, **59**(3): 2476~2485
- 5 Erich Jurdik. Laser Manipulation of Atoms and Nanofabrication [D]. Netherlands: Katholieke University, 2001

- 6 Xianzhong Chen, Hanmin Yao, Xunan Chen. Classical simulation of atomic beam focusing and deposition for atom lithography[J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2004, **2**(4): 187~189
- 7 Zhang Baowu, Ma Yan, Li Tongbao *et al.*. Effect of laser power on one-dimensional deposition of chromium atomic beam[J]. *Acta Optica Sinica*, 2009, **29**(2): 421~424
张宝武, 马 艳, 李同保 等. 激光功率对铬原子束一维沉积的影响[J]. 光学学报, 2009, **29**(2): 421~424
- 8 Zhang Pingping, Ma Yan, Li Tongbao. Optimization of particle optics model for one-dimensional atom lithography [J]. *Acta Optica Sinica*, 2011, **31**(5): 0514004
张萍萍, 马 艳, 李同保. 一维原子光刻经典模型的优化[J]. 光学学报, 2011, **31**(5): 0514004
- 9 Zhang Wentao, Zhu Baohua, Xiong Xianming. Focusing characteristic of chromium atoms under elliptical standing wave [J]. *Acta Physica Sinica*, 2009, **58**(12): 8199~8204
张文涛, 朱保华, 熊显明. 椭圆型激光驻波场作用下 Cr 原子的会聚特性研究 [J]. 物理学报, 2009, **58**(12): 8199~8204
- 10 K. Okamoto, Y. Inouye, S. Kawata. Atomic-beam propagation in a two-dimensional standing wave of light: a numerical analysis based on a particle-optics [J]. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 2001, **40**(2A): 609~613
- 11 Ma Yan, Zhang Baowu, Zheng Chunlan *et al.*. Experimental study of laser collimation of Cr beam [J]. *Acta Physica Sinica*, 2007, **55**(8): 4086~4090
马 艳, 张宝武, 郑春兰 等. 激光准直 Cr 原子束的实验研究 [J]. 物理学报, 2007, **55**(8): 4086~4090
- 12 R. E. Scholten, R. Gupte, J. J. McClelland *et al.*. Laser collimation of a chromium beam [J]. *Phys. Rev. A*, 1997, **55**(2): 1331~1338