

原子光刻中原子通量的优化研究

陈杰^{**}, 刘杰, 朱立, 邓晓^{*}, 程鑫彬, 李同保

同济大学物理科学与工程学院, 上海 200092

摘要 原子通量是影响原子光刻技术制备纳米光栅质量的主要因素之一。应用原子炉管喷发量的理论模型, 利用理论与实验相结合的方法, 对比研究了三类典型原子炉管构型下的原子通量水平, 并基于最优原子炉管构型将研制的铬纳米光栅峰谷高度提升到 100 nm, 使光栅质量得到进一步优化。

关键词 原子与分子物理学; 纳米计量; 传递标准; 原子光刻; 纳米光栅; 原子通量

中图分类号 O562

文献标识码 A

doi: 10.3788/AOS201838.1202001

Optimization of Atom Flux in Atom Lithography

Chen Jie^{**}, Liu Jie, Zhu Li, Deng Xiao^{*}, Cheng Xinbin, Li Tongbao

School of Physics Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China

Abstract Atom flux is one of the main factors influencing the quality of nano-gratings fabricated by atom lithography. Based on the theoretical model of eruption volume of atomic furnace tube, the atom flux levels for three typical kinds of furnace tubes are compared by the combination of theory and experiment. Moreover, with the best furnace tube configuration, the peak to valley height of the fabricated Cr nano-gratings increases up to 100 nm, which further optimizes the quality of nano-gratings.

Key words atomic and molecular physics; nanoscale metrology; transfer standards; atom lithography; nanoscale gratings; atom flux

OCIS codes 020.1335; 020.3320; 050.2770

1 引 言

纳米计量不仅在测量和表征纳米材料及器件方面提供基础支撑, 还在纳米制造工艺控制和质量领域扮演重要角色^[1]。在纳米计量过程中, 受工作原理及测试环境等因素的影响, 测试结果可能会截然不同。因此, 研究准确适用的纳米传递标准具有重要意义^[2]。基于原子光刻技术^[3-4]制备得到的纳米光栅, 其节距直接溯源于激光半波长, 因此可以作为纳米级长度计量的传递标准, 实现对于扫描探针显微镜(SPM)和扫描电子显微镜(SEM)等纳米测量仪器非线性特征的高精度校准。原子光刻技术的基本原理是: 原子与激光驻波场的相互作用使原子周期性地会聚至激光驻波场的波腹或波节位置, 从而形成节距为激光半波长的纳米光栅^[5-6]或网格结构^[7-8]。

1978 年, Bjorkholm 等^[9]首次提出原子光刻技

术的概念。1992 年, Timp 等^[10]利用钠原子首次在实验中验证该技术, 并在硅基板上得到节距为 294 nm 的纳米光栅。1993 年, McClelland 等^[5]利用铬原子也成功获得周期为 212.78 nm 的光栅结构。之后, 利用 Al^[11]、Yb^[12]、Fe^[13] 等元素制备得到特定节距纳米光栅的研究均不断出现。然而, 在原子光刻纳米光栅研制过程中, 普遍面临的挑战是光栅的峰谷高度(PTVH)难以得到稳定的提升, 这不仅在某种程度上限制了其研制的稳定性与复现性, 还会对光栅节距测试与节距表征精度产生不利影响。一般来讲, 影响原子光刻制备纳米光栅 PTVH 的主要因素有原子通量、激光光强以及切光比例等, 原子通量直接决定了光栅峰谷高度的上限, 因此在所有影响因素中尤为重要。研究提高原子通量的理论与方法对于提升原子光刻纳米光栅质量至关重要。

原子光刻实验中, 一般将工作物质放置入原子

收稿日期: 2018-06-14; 修回日期: 2018-07-23; 录用日期: 2018-07-25

基金项目: 国家重点研发计划(2016YFA0200902)、国家重大科学仪器设备开发专项(2014YQ090709)

* E-mail: 1110490dengxiao@tongji.edu.cn; ** E-mail: 1310571@tongji.edu.cn

炉管中进行加热,并以泻流的方式将原子束引出。经验表明,不同的原子炉管构型对应不同的泻流模式与原子通量,受此启发,本文应用原子炉管喷发量理论模型,对比研究了三类典型原子炉管构型下的原子通量水平,并基于最优原子炉管构型将研制的铬纳米光栅峰谷高度提升到 100 nm,同时解决了炉管使用过程中炉管喷口堵塞的问题,使原子光刻光栅峰谷高度、原子炉管的使用稳定性和光栅研制质量的复现性等均得到进一步优化。

2 基本原理与理论模型

原子光刻的基本原理如图 1 所示^[14]。中性原子在原子炉中加热到一定温度时喷发而出,经过小孔预准直和激光冷却^[15-16]后,垂直入射到激光驻波场中。原子在驻波场中受到偶极力的作用,向驻波波节(负失谐)或波腹(正失谐)位置移动,最后沉积到硅基片上,形成周期为激光半波长的纳米光栅。由于铬(Cr)原子在大气中具有很好的稳定性以及表面黏附性^[17],因此选择 Cr 元素作为原子源。实验选择的激光波长为 $\lambda = 425.6$ nm,对应于铬原子 $^7S_3 \rightarrow ^7P_4$ 的跃迁谱线。因此,实验制备得到的纳米光栅周期为 $\lambda/2 = 212.8$ nm。

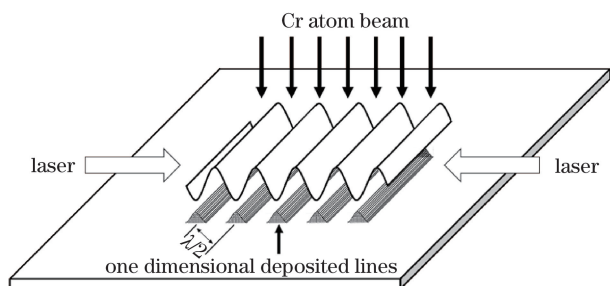


图 1 原子光刻原理示意图

Fig. 1 Schematic of atom lithography

在原子光刻实验中,一定量的铬元素放置于原子炉管中,通过加热将温度到达一定程度,铬原子气体在腔体内形成饱和蒸气压,经炉管中的一个小的开口喷发而出。其理论模型根据 Knudsen 系数可以分成三种情况。Knudsen 系数定义为炉腔内气体原子的平均自由程 $\bar{\lambda}$ 与炉管喷口直径 d_s 的比值^[18]。

1) $\bar{\lambda}/d_s < 0.01$,此区域称之为黏滞流体区。此时炉腔内原子间的碰撞频率高于原子与炉内壁的碰撞频率,由流体力学描述。

2) $\bar{\lambda}/d_s > 1$,此区域称之为原子泻流区。此时炉腔内原子间的碰撞频率低于原子与炉内壁的碰撞

频率,由泻流公式描述。

3) $0.01 < \bar{\lambda}/d_s < 1$,此区域称之为由黏滞流体向原子泻流的过渡区,由半经验方程描述。

密闭炉管内铬蒸气的饱和蒸气压与温度的关系为^[19]

$$\log_{10} P = 14.56 - \frac{20680}{T} - 1.31 \times \log_{10} T, \quad (1)$$

式中 P 为炉管内铬蒸气的饱和蒸气压, T 为铬蒸气的温度。为计算铬原子气体平均自由程,假设炉管完全密闭,铬蒸气处于热平衡状态,则满足关系

$$P = nk_B T, \quad (2)$$

式中 k_B 为气体玻尔兹曼常数,当原子加热温度为 1923 K 时,可得炉管内铬蒸气原子数密度为 $n = 1.603 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$ 。

一定温度和压强下,容器内热平衡态气体中的原子平均自由程可表示为

$$\bar{\lambda} = \frac{1}{n\delta\sqrt{2}}, \quad (3)$$

式中 $\delta = \pi(2R_0)^2$ 为原子的碰撞截面, R_0 为原子半径,实验中铬原子半径为 $R_0 = 1.25 \times 10^{-8} \text{ cm}$,由此计算可得炉管内铬气体原子的平均自由程为 $\bar{\lambda} = 0.225 \text{ cm}$ 。而实验所用炉管喷口直径为 0.1 cm,因此,实验中原子喷发模型满足泻流条件。

在一定温度和压强的泻流条件下,原子通量可表示为^[20]

$$N = \frac{1}{4} KnvA_s, \quad (4)$$

式中 A_s 为炉管喷口处面积, v 为炉管内铬蒸气原子平均速度(当温度为 1923 K, $v = 960 \text{ m/s}$ ^[21]), $K = \frac{16}{3} \left(A_s \int_0^L \frac{C}{A^2} dl \right)^{-1}$ 为 Knudsen 公式,其中 L 为喷口处壁的厚度, A 为壁厚 l 处的横截面积, C 为此横截面对应的周长。

3 实验对比与讨论

为比较不同原子炉管构型对于原子喷发量以及实验结果的影响,对比实验中保持其他主要影响实验结果的条件不变,包括原子炉温度 1923 K、会聚光功率 30 mW、切光比例 50%、冷却光功率 15 mW 等。

第一类与第二类原子炉管构型如图 2 所示,其中,图 2(a)中原子炉管壁厚 $L = 1 \text{ mm}$,开口大小为 $d = 1 \text{ mm}$,因为炉管喷口为圆柱形,因此 Knudsen 公式可以简化为 $K = \frac{16}{3} \times \frac{d}{4L}$,将 L 和 d 代入得

$K=1.33$,再代入 n 和 v 可得 $N_1=4.03 \times 10^{17} \text{ s}^{-1}$ 。第一类炉管在实际使用中存在的典型问题是炉管使用不久后出现炉管喷口处堵塞现象。炉管喷口的堵塞会导致两个问题:1)原子喷发通量大幅下降(稳定后喷发量缩减到 $N_1/10$,即 $4.03 \times 10^{16} \text{ s}^{-1}$),导致纳米光栅 PTVH 明显降低,此种情况下 PTVH 一般在 30 nm 左右即达到饱和状态;2)原子束出射方向发生改变,这会引引起光栅节距的改变^[22]。一般认为,造成原子炉管堵塞的最大问题是炉管喷口处内外存在温度差,导致原子气体在喷口处沉积,最终形成堵塞现象。

图 2(b)所示为第二类原子炉管构型,在喷口处增加了一段高温胶(HTG)保护层,有效地解决了原子炉管堵塞的问题。但是由图 2(b)可知,这种改动变相地增加了炉管喷口厚度 L ,此时炉管喷口可以分为两段:第一段 $L'=1 \text{ mm}$, $d'=1 \text{ mm}$;第二段 $L''=9 \text{ mm}$, $d''=2 \text{ mm}$ 。将其代入 Knudsen 公式得到 $K=0.15$,计算得到 $N_2=4.48 \times 10^{16} \text{ s}^{-1}$,原子通量减少,直接影响了实验所得纳米光栅的高度。在相似实验条件下的对比实验表明,第二类原子炉管研制的原子光刻光栅 PTVH 同样在 30 nm 左右饱和。

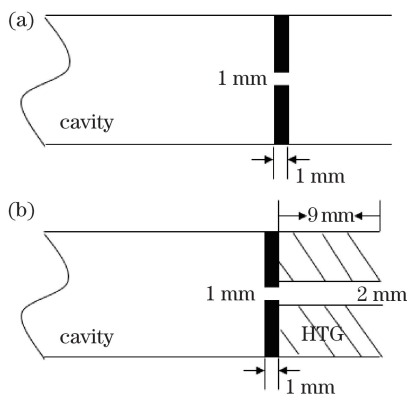


图 2 原子炉管构型。(a)第一类;(b)第二类
Fig. 2 Atomic furnace tube configuration.
(a) First kind; (b) second kind

为了增加原子通量,设计了第三类原子炉管构型,如图 3(a)所示。炉管喷口去掉了保护层,同时将喷口处设计成刀口状。以原子炉管喷口中心为原点,刀口处切角为 θ ,如图 3(b)所示,则 $d=1+2L \tan \theta$,考虑到原子炉管内径为 7 mm, $\tan \theta \leq 3$,因此 θ 的取值范围是 $0 \leq \theta \leq 71^\circ$ 。将上述关系式代入 Knudsen 公式和(4)式可计算得到原子通量 N_3 ,如图 4 所示。

考虑到加工工艺和喷发量已经满足实验要求,

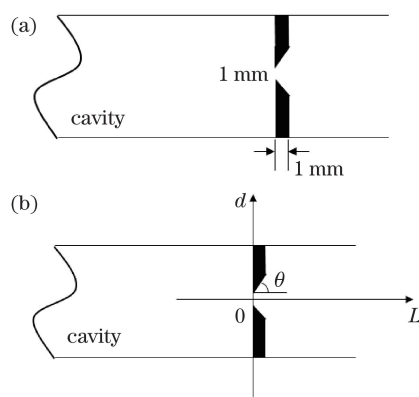


图 3 第三类原子炉管构型及其坐标系。
(a)构型;(b)坐标系

Fig. 3 Atomic furnace tube and its coordinate system.
(a) Configuration; (b) coordinate system

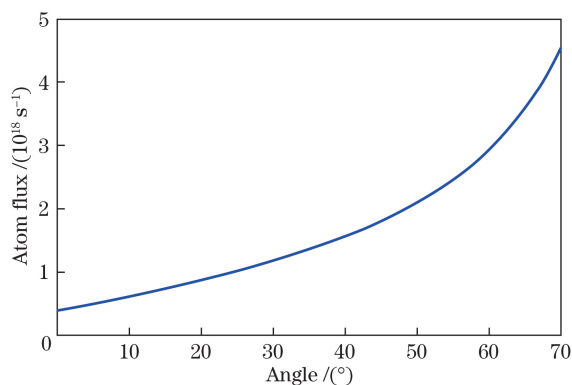


图 4 喷口刀口切角与原子通量关系图
Fig. 4 Relationship between nozzle blade angle and atom flux

实际制备的炉管喷口角度选择为 $\theta=45^\circ$,此时 $d=1+2L$,代入 Knudsen 公式可得 $K=6.00$, $N_3=1.81 \times 10^{18} \text{ s}^{-1}$ 。将三类原子炉管构型的原子喷发量作比较(由于第一类炉管很快会有堵塞问题,因此比较的是堵塞以后稳定情况下的原子通量),结果如图 5 所示。相比于第一类和第二类,第三类原子炉管的原子通量增加了约 40 倍,同时也不存在炉管喷口堵塞的问题。

由于炉管喷口为刀口状,其对原子束出射方向的稳定性以及束流形状、直径等均有影响。实验中,原子束从原子炉管喷出后经过预准直小孔、沉积狭缝以及冷却激光的作用,可以极大地减弱因炉管喷口形状改变而带来的影响,装置示意图如图 6 所示。预准直小孔尺寸与泻流小孔尺寸相当,测量表明,该种情况下原子束沿喷射方向的水平发散角小于 2.7 mrad,具有良好的平行性与准直性^[23]。

基于第三类炉管的原子光刻实验制备得到的纳

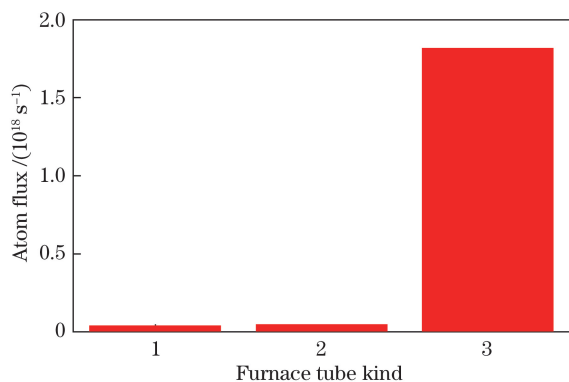


图 5 三类原子炉管对应的喷发量比较
Fig. 5 Eruption volume comparison among three kinds of atomic furnace tubes

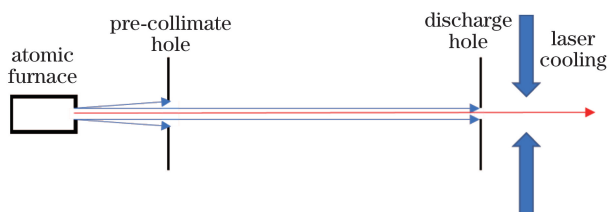


图 6 原子束准直示意图

Fig. 6 Schematic of atomic beam collimation

米光栅形貌与轮廓测试结果如图 7(a)所示,图 7(b)展示了基于三类炉管研制的原子光刻光栅典型轮廓对比结果,该系列对比实验过程中保持实验条件(如会聚激光功率、切光比例、沉积时间等)一致。由图 7(b)可知,通过改进原子炉管构型增加原子通量,原子光刻光栅 PTVH 从 30 nm 增加到了 100 nm,并且光栅周期保持严格统一,始终与使用会聚光的半波长保持一致。峰谷高度达到 100 nm 的铬原子光刻光栅与美国国家标准技术研究所(NIST)利用原子光刻制备得到的纳米光栅的峰谷高度相当,满足作为纳米量级标准物质对于峰谷高度上的要求。

在图 7(b)中,值得注意的是,虽然第三类原子炉管的原子通量增加了 40 倍,但是光栅的峰谷高度只增加了 3 倍左右,说明此时原子通量已经达到饱和,此时影响光栅峰谷高度的主要因素将变为激光功率和切光比例等,这也是今后优化实验需要进一步研究的重点内容。

4 结 论

利用原子束喷发的理论模型,结合具体实验研究,优化了原子炉管构型,从而使原子通量增加了一个数量级,在其他实验条件相当的情况下,所研制的纳米光栅峰谷高度可以提升至 100 nm。通过优化

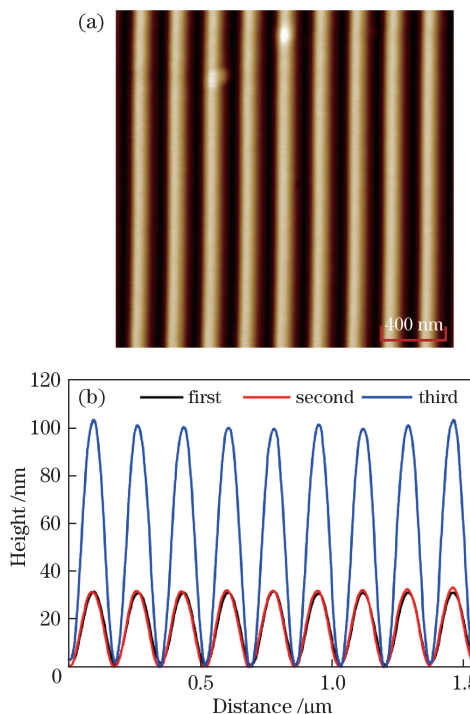


图 7 第三类炉管研制的纳米光栅形貌与轮廓实验结果。
(a)光栅原子力显微镜图像;(b)光栅截面对比

Fig. 7 Experimental result of morphology and profile of nano-grating fabricated by third kinds of furnace tube. (a) Atomic force microscope image of nano-grating; (b) profile comparison of nano-grating

原子通量实现原子光刻光栅峰谷高度的提升,不仅有利于提升原子光刻实验的稳定性与复现性和光栅节距提取的精度,而且优化了光栅质量,降低了测试噪声对于测试结果的影响,同时为该光栅申请标准物质,以及研制更小周期纳米光栅标准物质奠定了基础。

参 考 文 献

- [1] Li T B. 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.
- [2] Yi L F, Xiong X M, Zhang W T, *et al.* Analysis of three-dimensional deposition characteristics of chromium atoms in the straight edge diffraction standing wave field[J]. Acta Optica Sinica, 2017, 37(6): 0614004.
伊路福, 熊显名, 张文涛, 等. 直边衍射驻波场中铬原子三维沉积特性分析[J]. 光学学报, 2017, 37(6): 0614004.
- [3] McClelland J J, Scheinfein M R. Laser focusing of atoms: a particle-optics approach[J]. Journal of the Optical Society of America B, 1991, 8(9): 1974-

- 1986.
- [4] Ekstrom C R, Keith D W, Pritchard D E. Atom optics using microfabricated structures[J]. Applied Physics B, 1992, 54(5): 369-374.
- [5] McClelland J J, Scholten R E, Palm E C, *et al.* Laser-focused atomic deposition[J]. Science, 1993, 262(5135): 877-880.
- [6] Ma Y, Li T B, Wu W, *et al.* Laser-focused atomic deposition for nanoscale grating[J]. Chinese Physics Letters, 2011, 28(7): 073202.
- [7] McClelland J J, Hill S B, Pichler M, *et al.* Nanotechnology with atom optics[J]. Science and Technology of Advanced Materials, 2004, 5(5/6): 575-580.
- [8] Deng X, Liu J, Zhu L, *et al.* Natural square ruler at nanoscale[J]. Applied Physics Express, 2018, 11(7): 075201.
- [9] Bjorkholm J E, Freeman R R, Ashkin A, *et al.* Observation of focusing of neutral atoms by the dipole forces of resonance-radiation pressure[J]. Physical Review Letters, 1978, 41(20): 1361-1364.
- [10] Timp G, Behringer R E, Tennant D M, *et al.* Using light as a lens for submicron, neutral-atom lithography[J]. Physical Review Letters, 1992, 69(11): 1636-1639.
- [11] McGowan R W, Giltner D M, Lee S A. Light force cooling, focusing, and nanometer-scale deposition of aluminum atoms[J]. Optics Letters, 1995, 20(24): 2535-2537.
- [12] Ohmukai R, Urabe S, Watanabe M. Atom lithography with ytterbium beam[J]. Applied Physics B, 2003, 77(4): 415-419.
- [13] te Sligte E, Smeets B, van der Stam K M R, *et al.* Atom lithography of Fe[J]. Applied Physics Letters, 2004, 85(19): 4493-4495.
- [14] McClelland J J, Celotta R J. Laser-focused atomic deposition-nanofabrication via atom optics[J]. Thin Solid Films, 2000, 367(1/2): 25-27.
- [15] Dalibard J, Cohen-Tannoudji C. Laser cooling below the Doppler limit by polarization gradients: simple theoretical models[J]. Journal of the Optical Society of America B, 1989, 6(11): 2023-2045.
- [16] Wen X, Zhang Y Y, Qian J. Lensing effect induced by a Bose-Einstein condensate passing a Gaussian laser field[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2017, 54(11): 110201.
温歆, 张钰伊, 钱静. 玻色-爱因斯坦凝聚体穿越高斯光场的透镜效应[J]. 激光与光电子学进展, 2017, 54(11): 110201.
- [17] McClelland J J, Gupta R, Jabbour Z J, *et al.* Laser focusing of atoms for nanostructure fabrication[J]. Australian Journal of Physics, 1996, 49(2): 555-565.
- [18] Dushman S, Brown S C. Scientific foundations of vacuum technique[J]. American Journal of Physics, 1962, 30(8): 612.
- [19] Brandes E A. Smithells metals reference book[M]. 6th ed. London: Butterworths, 1983.
- [20] Smith K F. Molecular beams[M]. New York: John Wiley & Sons, 1955.
- [21] Zhang B W, Li T B, Ma Y. One-dimensional Doppler laser collimation of chromium beam with a novel pre-collimating scheme[J]. Chinese Optics Letters, 2008, 6(10): 782-784.
- [22] McClelland J J, Anderson W R, Bradley C C, *et al.* Accuracy of nanoscale pitch standards fabricated by laser-focused atomic deposition[J]. Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology, 2003, 108(2): 99-113.
- [23] Zhang W J, Ma Y, Li T B, *et al.* Structured mirror array for two-dimensional collimation of a chromium beam in atom lithography[J]. Chinese Physics B, 2013, 22(2): 228-231.