

文章编号: 1001-4322(2003)09-0919-04

亚稳态氦原子束在纳米结构制作中的应用*

陈献忠, 姚汉民, 陈旭南

(中国科学院 光电技术研究所 微细加工光学技术国家重点实验室, 四川 成都 610209)

摘 要: 介绍两种用亚稳态氦原子束制作纳米结构的新方法。亚稳态原子束从原子源喷出后首先对其进行横向激光冷却, 准直后的原子束穿过与之垂直的激光驻波场时发生淬火过程, 原子的密度分布出现沟道化效应, 给出基于光掩模制作纳米图形的基本原理、理论分析及模拟结果。介绍基于物理掩模制作纳米图形的原理和 SAM 抗蚀剂, 利用沉积在基底上的亚稳态原子破坏基底上的 SAM 膜, 结合刻蚀技术可制作出纳米量级的图形。

关键词: 亚稳态原子束; 纳米结构制作; 光掩模; 光驻波淬火; 自组装单分子膜抗蚀剂

中图分类号: TN305

文献标识码: A

原子光学在过去的 20 余年中得到了广泛深入的研究, 玻色-爱因斯坦凝聚的实现和原子激光的出现表明, 这一领域的研究在理论探讨和实验手段上已经成熟。原子光刻是原子光学领域的一个重要组成部分。经横向激光冷却得到的准直度很好的钠、铝、铬等原子束经激光驻波场所构成的原子透镜阵列聚焦并沉积到基底上, 在实验上已得到线宽约 10nm 量级的图形^[1~4]。原子光刻技术可用于纳米材料(如量子点、量子线、光子晶体)制作、纳米器件(如微电子器件、特殊金属光栅)加工、纳米长度测量(可置于显微镜中)、纳米物质的物理特性研究以及生物工程等领域。原子光刻的基本方案有两种: 一种是采用金属原子束, 用共振光压使原子束高度准直化和形成空间强度分布后, 直接沉积在基板上。另一种是采用亚稳态惰性气体原子束, 用光抽运作用使其形成空间强度分布, 再使亚稳原子破坏基板上的特殊膜层, 最终用化学腐蚀方法在基板上刻印成形。利用亚稳态原子在抗蚀剂上光刻^[5,6]的思想最初由 Jabez McClelland, Mara Prentiss 和 George Whitesides 提出, 1996 年美国科学家提出了根据原子光学原理实现纳米刻印的新方案。用亚稳态原子局部修改 SAM (Self-assembled monolayers) 抗蚀剂, 结合激光辅助调制物质波的方法直接制作纳米图形。比较常用的方法有两种: 用物理掩模或光掩模使亚稳态原子在抗蚀剂中成形, 可以产生小到 30nm 的图形。

1 亚稳态氦原子束的准直

亚稳态原子的产生装置是在氦气体中加上一对电极, 在直流电压大小为 1000V 左右的电场作用下, 来自阴极的电子撞击原子, 使处于基态的原子被激发到亚稳态^[7]。由于从喷口喷出的亚稳态原子具有很大的发散角, 所以首先必须进行横向冷却达到准直的目的, 装置如图 1 所示。通过引入饱和和吸收信号来锁频, 利用可调谐二极管激光器使激光束入射到两反射镜之间, 入射激光束与反射镜法线的夹角为 θ_0 , 每一个反射镜与原子束轴线的夹角为 $\beta_0/2$ 。当在两反射镜之间发生多次反射时, 激光束与原子束轴线的夹角以 β_0 大小改变。这意味着激光的有效调谐 $\nu_e = \nu_0 - k \cdot v$ 随每次反射改变。开始原子束有很大的横向速度, 随着准直的进行, 横向速度变小, 此过程中的多普勒频移正好可以通过 ν_e 的变化得到补偿。然后使原子束再进入偏振梯度场^[8,9]实现高度准直, 调谐量与准直角的关系如图 2 所示, 横坐标为势阱深度的相对值。

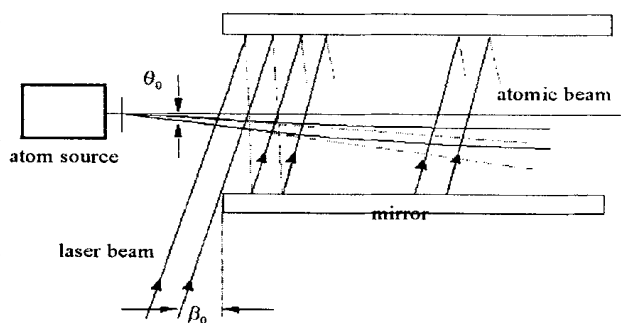


Fig. 1 Collimation configuration for metastable atomic beam

图 1 亚稳态原子束的准直装置

* 收稿日期: 2003-02-21; 修订日期: 2003-04-28

基金项目: 中科院知识工程创新课题 (A2 K0009); 中科院开放基金资助课题

作者简介: 陈献忠 (1974-), 男, 博士研究生, 从事纳米加工技术研究和微电子光刻研究; 成都双流 350 信箱; E-mail: chenxiz@163.net.

2 基于光掩模的纳米结构制作

2.1 基本原理

基于光掩模利用亚稳态惰性气体原子束制作纳米图形的基本原理,是利用光抽运作用使原子束产生空间强度分布,使基板上的特殊膜层“曝光”,结合刻蚀技术在基底上形成纳米量级的条纹、点阵或人们所需的特定图案,见图 3。利用激光技术,使原子从亚稳态向高能态激发,处于高能态的原子自发激发回到基态,该过程称为淬火过程。

亚稳态氦原子的能级如图 4 所示, $|m\rangle$ 为亚稳态 (2^3S_1), 与激发态 (2^3P_2) $|e\rangle$ 构成二能级系统, $|g\rangle$ 为基态 (1^1S_0)。在波长为 1083nm 的一维横向驻波共振光

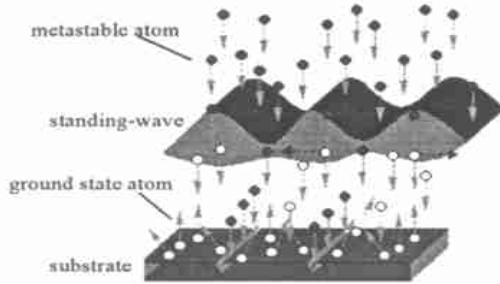


Fig. 3 Schematic of nanostructures fabrication based on mask made of light

图 3 基于光掩模制作纳米结构原理图

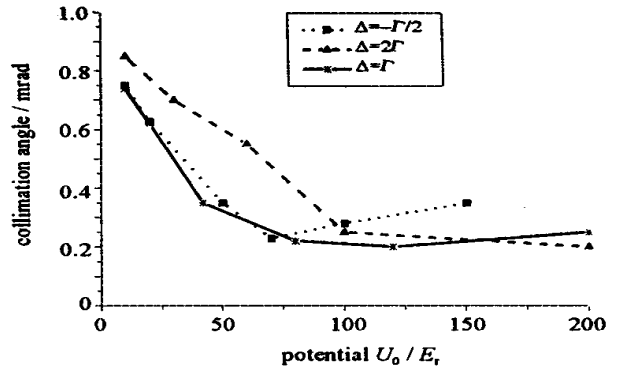


Fig. 2 Relation between detuning and collimation angle, E_r is recoil energy of single photon

图 2 调谐量与准直角度的关系

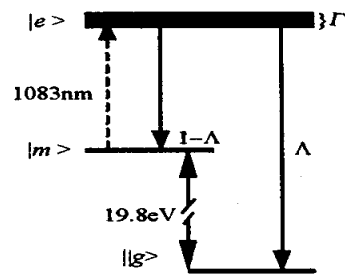


Fig. 4 Energy levels related to quenching

图 4 与淬火有关的能级

场激励下,驻波场的场强空间分布使亚稳态原子产生跃迁的 Rabi 频率的空间分布 $\Omega(z)$,处于强场区的亚稳态原子被泵浦到激发态, $|e\rangle$ 态原子通过自发辐射有 Γ 的概率回到 $|g\rangle$ 态或以 $1-\Gamma$ 的概率回到 $|m\rangle$ 态,当共振光场强度变化时,进入 $|g\rangle$ 态的速率按 $\Omega(z)/\Gamma$ (为激发态的辐射衰减系数) 的因子变化。显然,亚稳态原子一旦进入 $|g\rangle$ 态便发生淬火,不再成为亚稳态原子。根据这一原理,亚稳态原子束经过横向一维驻波场时将发生空间选择性淬火,驻波场的作用就象一系列间隔为半波长的“虚狭缝”,只有通过波节区域的原子才能保持其亚稳态,因而驻波场可视为对原子内能和横向速度的选择器^[10]。处于亚稳态的原子所携带的能量一般不会释放,除非有外界扰动出现,例如原子与表面碰撞将释放出此能量。亚稳态 $|m\rangle$ 比基态 $|g\rangle$ 的能量高出 19.8eV,正是利用这个能量的差别实现刻印,方法是采用表面有特殊抗蚀剂的基板,基板材料为硅,表面依次镀有 Cr 和 Au 的薄层,最后再涂以 SAM 膜,当具有横向周期结构的亚稳态氦原子束打在基板上时,SAM 膜将被破坏,“曝光”后再将基板进行化学腐蚀,将 Au 层刻印成纳米量级光栅。

2.2 理论模型和模拟结果

忽略自发辐射的影响并且假定在波节区域附近由于能量很弱原子被激发的可能性很小,亚稳态原子的行为可用下面的薛定谔方程^[11]描述

$$\frac{i\hbar}{2} \frac{d}{dt} \psi = H_{\text{eff}} \psi \tag{1}$$

式中: H_{eff} 为有效哈密顿量,其大小为

$$H_{\text{eff}} = \frac{p_x^2}{2M} + \frac{\hbar s_0}{4} (k_{\text{laser}} x)^2 - i \frac{\hbar \Gamma}{2} \tag{2}$$

式中: $s_0 = \frac{2}{2(\Gamma^2 + \Gamma^2/4)} \gg 1$ 是峰值饱和参数; $k_{\text{laser}} = 2\pi/\lambda_{\text{laser}}$ 是淬火光波的波矢量; M 是原子质量。在驻波波节附近,势能近似为简谐振子的势函数,最低束缚态的能量由 $E_n = (n + 0.5) \hbar \omega_{\text{osc}}/2$ 给出, n 为能级数;谐振频率 $\omega_{\text{osc}} = (\Gamma_{\text{rec}}^2/2)^{1/2}$, $\Gamma_{\text{rec}} = \hbar k_{\text{laser}}^2/4M$ 为光对原子的反冲频率。处于低能级的淬灭速率 γ_n 随着能级

数增加, $n = 2(n + 1) \rho_0$, $\rho_0 = 0.25 s_0$ (ρ_{rec}/ρ_{osc})。由于处于激发态的原子比处于最低能态的原子衰减的快,经过一个足够长的作用时间后,处于最低能态的原子布居数最多。假定处于亚稳态的原子开始在势阱中分布是均匀的,经过激光淬火后,原子的密度会重新分布。理想的淬火情况是除波节附近的区域 $\rho = 1$, 实际情况 $0 < \rho < 1$ 。开始处于波节处的亚稳态原子,如果横向速度过大,进入强场区也有回到基态的可能,则对生成图形的特征尺寸没有影响。

量子 Monte Carlo 计算考虑到氦原子在 1083nm 激光的作用下从 $2^3S_1 \rightarrow 2^3P_2$ 的跃迁,图 5 是亚稳态氦原子在激光淬火前后的密度分布对比情况,该技术得到的线条宽度(FWHM)可达到 40nm,并能一次制作出极大数目的线条。并且可以通过激光强度变化改变光抽运作用的强弱,通过调节虚狭缝的宽窄来控制刻印条纹的宽度。从模拟结果很清楚地看出,亚稳态原子的分布在驻波的波节附近出现明显的“沟道化”效应。

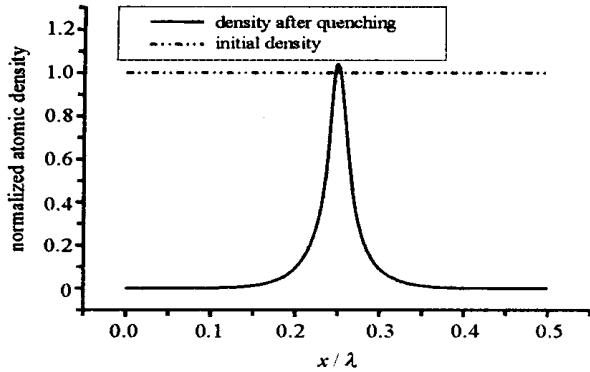


Fig. 5 Comparison between initial density and density after quenching
图 5 激光淬火前后原子的密度分布对比

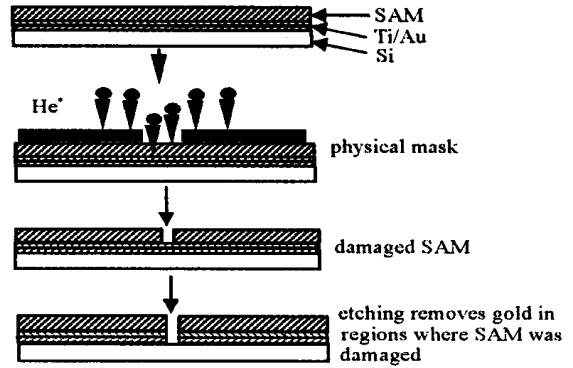


Fig. 6 Schematic of nanostructure fabrication based on physical mask
图 6 基于物理掩模制作纳米结构示意图

3 基于物理掩模的纳米结构制作

3.1 基本原理

经过严格准直的亚稳态原子束在通过物理掩模时,只有特定区域的亚稳态原子才能到达基底表面。亚稳态惰性气体原子如果不与其它原子接触,它将长时间(其寿命 20ms)处于亚稳态,该时间足以保证在真空中操纵原子到达基底表面。亚稳态原子起到小型炸弹的作用,将 SAM 膜的化学键打破后,结合传统刻蚀技术就可制作出所需要的纳米结构,见图 6。用这种方法制作不同的纳米结构必须更换掩模,但可制作出大面积的纳米图形且利于批量生产。

3.2 SAM 抗蚀剂^[12]

3.2.1 背景及 SAM 的发现

抗蚀剂是微细加工技术的重要组成部分,微细加工的尺寸不同,所用的抗蚀剂也不同。在光学光刻中,常用的抗蚀剂主要由树脂分子、光活性化合物以及相应的溶剂分子组成。由于中性原子的物质波能量很低,而传统抗蚀剂的化学键能量高,二者不能匹配使用。例如聚合甲基丙酸盐 PMMA 太厚,中性原子不足以损伤它,一般来讲需要非常薄的抗蚀剂。自组装单分子膜是近几年发展起来的一种新型的有机超薄膜,它利用特定的有机分子在适当的固体材料表面上排列成为紧密有序的单层膜。与传统的有机超薄膜制备手段相比,所得到的膜具有高度有序、低缺陷和高稳定性等优点,操作简单,便于实现大规模生产。对亚稳态原子对 SAM 的作用的研究近几年报道比较多,典型的是东京大学和斯坦福大学的研究报道。

3.2.2 抗蚀剂的种类及其优势

可以用于亚稳态稀有气体原子或 Cs 原子的抗蚀剂有三类。

(1) Alkane thiolate SAM: SAM 的每个分子经过大于 3 个 Cs 原子曝光后, SAM 表面特性被原子束充分改变,接着进行化学刻蚀,可制作几十 nm 的结构。

(2) Alkylsiloxane SAM: 可以用每 10 个原子的剂量破坏一个 SAM 分子,在 Si 中制作 70nm 宽的图形。

(3) 用 dodecanethiol (DDT- $CH_3(CH_2)_{11}SH$) 的 SAM 作为抗蚀剂,该抗蚀剂表面不易被水粘湿。在将 SAM 置于硅片上之前,在硅片上覆盖一层金,用粘合剂将金和硅粘在一起。除了 SAM 外,另一种抗蚀剂系统

也非常有用。先在真空系统中充入一些碳氢化合物或硅树脂气体作为背景,然后将硅片放入其中。在原子曝光过程中,聚集在表面的背景材料将发生聚合,变得坚硬,这样相当于一块优秀的刻蚀掩模。

利用 SAM 将中性原子形成的图形转移到永久基底上具有以下潜在的优势:(1) SAM 对许多种类的中性原子灵敏,例如亚稳态 He, Ne, Ar, Xe 和碱金属原子 Cs, Na 等。(2) SAM 薄(约 1nm), 它们对低剂量的亚稳态稀有气体原子和 Cs 敏感。(3) SAM 可在许多材料上成形(例如 GaAs 半导体, 二氧化硅绝缘体), 因此如果破坏机理是通用的, 在 SAM 上的图形可以被传递到许多种类的基底上。

4 前景展望

用亚稳态惰性气体原子制作纳米结构的技术在美国、日本和德国得到深入研究。哈佛大学的 K. S. Johnson 小组基于光掩模用亚稳态 Ar 原子成功制作出了线宽(FWHM)为 $65 \pm 5\text{nm}$ 、高度为 12nm、面积为 0.5mm^2 的纳米硅光栅。基于物理掩模他们制作出了面积为 44cm^2 的纳米图形。由于 He 的亚稳态比其它中性惰性气体原子携带有最高能量(20eV), 利用 He 可以增加成功的机会。有关亚稳态惰性气体原子对 SAM 作用的机理尚需深入研究, 这将对纳米结构制作起到积极的推动作用。

参考文献:

- [1] McClelland J J, Scholten R E, Palm C, et al. Laser focused atomic deposition[J]. *Science*, 1993, **262**(5135): 877—880.
- [2] McGowan R W, Giltner D M, Lee S A. Light force cooling, focusing, and nanometer scale deposition of aluminum atoms[J]. *Opt Lett*, 1995, **20**(24): 2535—2537.
- [3] Tim P G, Behringer R E, Tennant D M, et al. Using light as a lens for submicron, neutral-atom lithography[J]. *Phys Rev Lett*, 1992, **69**(11): 1636—1639.
- [4] Celotta R J, Gupta R, Scholten R E, et al. Nanostructure fabrication via laser-focused atomic deposition[J]. *J Appl Phys*, 1996, **79**(8): 6079—6083.
- [5] Rehse S J, Gueck A D, Lee S A, et al. Nanolithography with metastable neon atoms: enhanced rate of contamination resist formation for nanostructure fabrication[J]. *J Appl Phys Lett*, 1997, **71**(10): 1429.
- [6] Johnson K S, Berggren K K, Black A, et al. Using neutral metastable argon atoms and contamination lithography to form nanostructure in silicon, silicon dioxide, and gold[J]. *J Appl Phys Lett*, 1996, **69**(18): 2773—2775.
- [7] Scoles G. Atomic and molecular beams methods[M]. Oxford: Oxford University Press, 1988. 23—86.
- [8] Dalibard J, Cohen-Tannoudji C. Laser cooling below the Doppler limit by polarization gradients: simple theoretical models[J]. *J Opt Soc Am*, 1989, **B6**: 2023—2045.
- [9] Lett P D, Philips W D, Rolston S L, et al. Optical molasses[J]. *J Opt Soc Am*, 1989, **B10**: 2084—2107.
- [10] Brand J A, Furst J E, Gay T J, et al. Production of a high-density state-selected metastable neon beam[J]. *J Rev Sci Instrum*, 1992, **63**(1): 163—165.
- [11] Chu A P, Johnson K S, Prentiss M G. A virtual amplitude grating for atomic optics[J]. *Opt Commun*, 1997, **134**: 105—111.
- [12] 罗先刚. 原子光刻技术探索研究[D]. 成都: 中国科学院光电技术研究所, 2001. 90—121. (Luo X G. Study on atom lithography. Chengdu: Institute of Optics and Electronics, CAS, 2001. 90—121)

Application of metastable helium atomic beam in nanostructure fabrication

CHEN Xian-zhong, YAO Han-min, Chen Xu-nan

(State Key Laboratory of Optical Technologies for Microfabrication, Institute of Optics and Electronics, the Chinese Academy of Sciences, P. O. Box 350, Shuangliu, Chengdu 610209, China)

Abstract: Two new methods using metastable helium atomic beam to fabricate nanostructures are introduced. A metastable helium atomic beam effusing out of atom source is firstly cooled by transversally in cident laser. This well-collimated atomic beam traveling through the light standing-wave whose direction is perpendicular to atomic beam is quenched, and channeling effect happens in atomic density distribution. In this paper the basic principle of this technique based on mask made of light and theoretical analysis as well as simulation results are given. The principle of another method based on physical mask and SAM(self-assembled monolayers) resists are presented, the SAM on substrate is destroyed by deposited metastable atoms on substrate, and the nanometer-scale structure will be fabricated with etching technologies.

Key words: Metastable atomic beam; Nanostructures Fabrication; Mask made of light; Light standing-wave quenching; SAM resist