

06.1

Формирование наноструктур Au/Si методом токовой литографии в сканирующем туннельном микроскопе

© Д.В. Лебедев¹⁻³, В.А. Школдин^{1,4}, А.М. Можаров², А.Е. Петухов², А.О. Голубок³, А.В. Архипов⁵, И.С. Мухин^{1,5}, В.Г. Дубровский²

¹ Санкт-Петербургский национальный исследовательский Академический университет им. Ж.И. Алфёрова РАН, Санкт-Петербург, Россия

² Санкт-Петербургский государственный университет, Санкт-Петербург, Россия

³ Институт аналитического приборостроения РАН, Санкт-Петербург, Россия

⁴ Университет ИТМО, Санкт-Петербург, Россия

⁵ Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого, Санкт-Петербург, Россия

E-mail: Denis.v.lebedev@gmail.com

Поступило в Редакцию 15 апреля 2022 г.

В окончательной редакции 26 апреля 2022 г.

Принято к публикации 29 апреля 2022 г.

Разработана методика синтеза наноструктур методом токовой литографии в сканирующем туннельном микроскопе (СТМ-литографии) в слоистых структурах Au/Si. Получена экспериментальная зависимость геометрических размеров создаваемых наноструктур от времени токовой СТМ-литографии. Предложена теоретическая модель роста наноструктур, объясняющая нелинейную зависимость радиуса получаемых наноструктур от времени с насыщением в области больших радиусов.

Ключевые слова: наноструктуры Au/Si, СТМ-литография, скорость роста, моделирование.

DOI: 10.21883/PJTF.2022.12.52672.19224

Одной из наиболее актуальных задач развития вычислительной техники является повышение производительности современных интегральных микросхем. Перспективным подходом к решению этой задачи может стать интеграция фотонных и электронных элементов в оптоэлектронные микросхемы нового поколения. Условно элементы фотоники можно разделить на три типа: источники оптических сигналов [1], устройства обработки [2,3] и передачи [4] информации. Компактные электрически управляемые источники оптического излучения являются одними из ключевых элементов любой оптоэлектронной системы. Существующие решения в этой области, такие как лазеры с вертикальным резонатором [5], микрокольцевые/микродисковые лазеры [6] или лазеры на основе одиночных наночастиц [7], имеют резонаторы с геометрическими размерами, значительно превышающими длину волны излучения, что препятствует их применению в интегральных оптоэлектронных схемах. Кроме того, они плохо совместимы с КМОП-технологиями. Описанные недостатки можно устранить, если в качестве локальных источников света использовать структуры, работающие на основе эффекта излучения фотонов при неупругом туннелировании электронов через наноконтакт [8].

Сканирующий туннельный микроскоп (СТМ) является эффективным инструментом для исследования излучения из туннельного наноконтакта благодаря своей простоте и универсальности [9]. Еще одним преимуществом СТМ является возможность модификации поверхности под иглой зонда (метод СТМ-литографии [10,11]). СТМ позволяет не только манипулировать одиночными

атомами, но и модифицировать поверхность в заданной области образца за счет протекания тока большой плотности [12,13]. Существует несколько способов модификации поверхности под иглой зонда СТМ, таких как сублимация или химическая реакция, индуцированные туннелирующими электронами, джоулев нагрев, полевое испарение и т.д. [14].

В настоящей работе предлагается новый способ синтеза наноразмерных электрически управляемых источников оптического излучения на основе КМОП-совместимых материалов: Au и Si. Для этого используется СТМ-литография, позволяющая локально модифицировать стеки тонких пленок Au/Si с помощью локального нагрева.

Для создания образцов с тонкими пленками Au/Si на первом этапе свежесколотые пластинки слюды $K_2O \cdot Al_2O_3 \cdot SiO_2$ (TipsNano Co, Эстония) помещались в камеру установки термического испарения в вакууме (Vac Edwards Auto 500, Великобритания). Затем вакуумная система откачивалась до остаточной атмосферы не хуже 10^{-7} mbar с последующей дегазацией образцов в течение 15 min при температуре 200°C. Далее на нагретые до 130°C подложки наносился слой Au толщиной 100 nm со скоростью осаждения 6–7 nm/min. После напыления Au образцы переносились в сверхвысоковакуумную камеру СТМ Omicron VT AFM XA 50/500 (Scienta Omicron, Германия), в которой дополнительно отжигались при температуре более 150°C для удаления адсорбата с поверхности. Вакуумная камера СТМ также содержала модуль термического напыления пленок Si. На поверхность Au дополнительно осаждался слой нелегированного Si толщиной 10 nm.

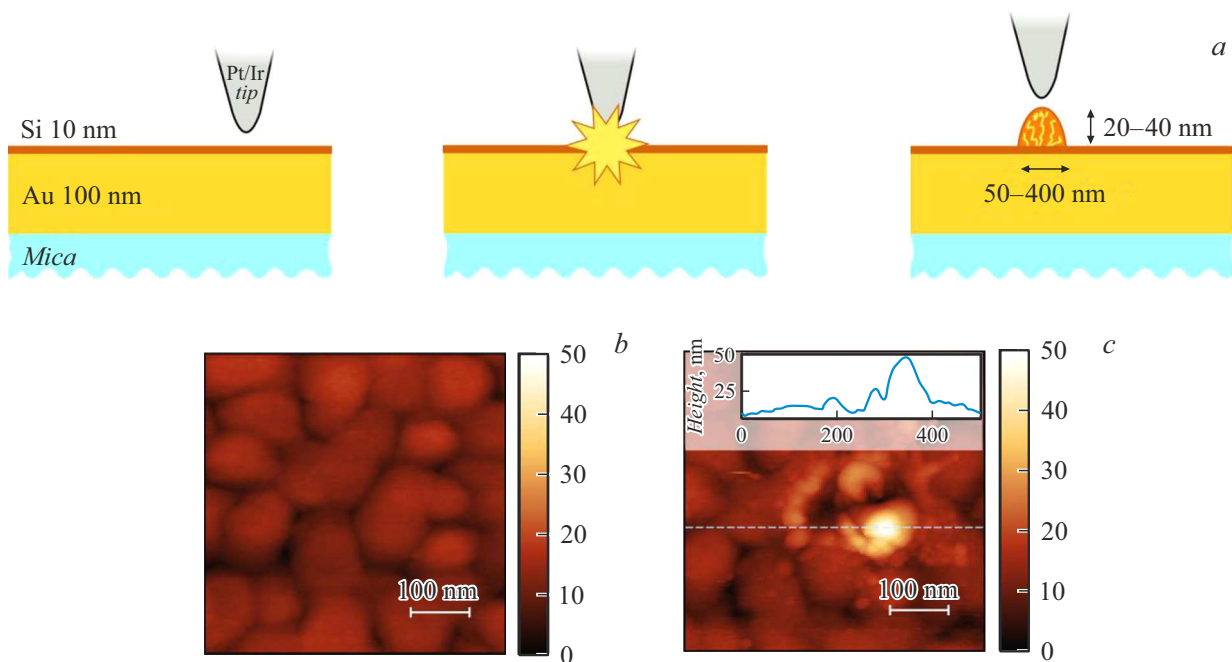


Рис. 1. *a* — схематическое изображение методики создания композитной наноструктуры; *b, c* — СТМ-изображения поверхности образца и сформированной наноструктуры Au/Si соответственно. На вставке — профиль нанохолма.

Для исследований были использованы коммерчески доступные Pt/Ir-зонды DPT10 (Bruker, США). Методика синтеза наноструктур с помощью СТМ на поверхности пленок состоит из нескольких этапов, представленных на рис. 1, *a*. В первую очередь необходимо получить топографию выбранной для модификации области (рис. 1, *b*) в режиме малых токов ($I_{sp} = 0.1$ нА) при малом напряжении смещения в наноконтакте ($V_{bias} = 0.5$ В). Затем зонд перемещается в заданную область и производится локальная модификация поверхности за счет подачи электрического импульса напряжением -10 В и длительностью от десятков миллисекунд до десятков секунд. Во время воздействия импульса обратная связь СТМ разрывается. Далее производится сканирование топографии и визуализируется результат модификации поверхности — формирование наноструктуры в виде „нанохолма“ (рис. 1, *c*).

Можно предположить, что механизм формирования нанохолмов в слоистых пленках Au/Si связан с локальным джоулевым разогревом под действием тока высокой плотности в области под СТМ-зондом. Взаимная диффузия материалов в этой области приводит к образованию композитной структуры Au/Si. СТМ-воздействие с такими же параметрами на пленку Au не приводит к подобным изменениям поверхности, что можно объяснить более эффективным процессом переноса тепла в пленке Au.

На СТМ-изображении, показанном на рис. 1, *c*, отчетливо заметны застывшие капли нанометрового диаметра вокруг нанохолма, являющиеся типичными для локального разогрева тонких пленок. Подобный эффект

можно наблюдать для частиц, созданных методом лазерной абляции. В [15] описывается создание гибридных наночастиц Si/Au, формируемых методом лазерной абляции с помощью фемтосекундного лазера, из пленки Si (60 нм)/Au (15 нм). Как показано в [15], исследования в просвечивающем электронном микроскопе выявили, что данные наночастицы имеют поликристаллическую кремниевую структуру с включениями Au. Мы предполагаем, что полученные методом СТМ-литографии нанохолмы имеют схожий композитный состав, что открывает возможность для применения таких систем в качестве наноразмерных источников оптического излучения.

Для определения зависимости размеров формируемых наноструктур от параметров СТМ-литографии на образце, состоящем из стека пленок Au (100 нм)/Si (10 нм), был создан набор нанохолмов при различных условиях. Экспериментально обнаружено, что увеличение длительности и силы тока импульса приводит к росту диаметра нанохолма. Зависимость радиуса наноструктур от длительности импульса, или времени экспозиции, обладает выраженным нелинейным характером (рис. 2, *a*). Предложенная методика позволяет формировать наноструктуры на поверхности тонких пленок Au/Si с минимальным радиусом порядка 30 нм.

Для объяснения представленной на рис. 2, *a* нелинейной зависимости радиуса наноструктуры от времени экспозиции используем обычное в ростовой теории наноструктур выражение для скорости роста числа частиц в зародыше i [16–18]:

$$\frac{di}{dt} = \frac{\xi(t)}{\tau} i^p. \quad (1)$$

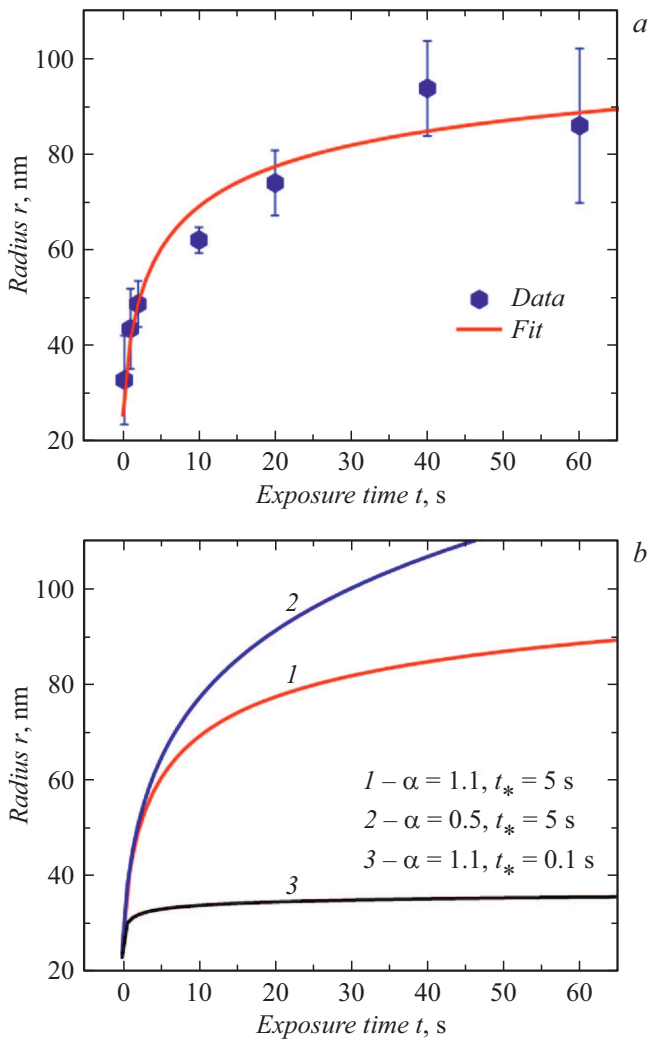


Рис. 2. *a* — зависимость радиуса нанохолма от времени воздействия при СТМ-литографии импульсами различной длительности при одинаковом заданном токе (20 нА) и напряжении смещения (−10 В). Символы соответствуют измеренной зависимости, кривая получена из выражения (2) при $r_0 = 25$ nm, $A = 60\,000$, $t_* = 5$ s, $\alpha = 1.1$ и $p = 0$. *b* — теоретические зависимости радиуса от времени при различных параметрах. Кривая 1 — та же, что на части *a*, кривая 2 соответствует неограниченному росту при $\alpha = 0.5$, кривая 3 — подавлению роста при малом $t_* = 0.1$ s за счет быстрого падения пересыщения.

Здесь $\xi(t)$ — пересыщение (избыточная концентрация) за счет локального разогрева пленки Au/Si в процессе СТМ-литографии, τ — характерное время роста, p — степенной индекс в пределах $0 \leq p < 1$ (обычно $p = 0, 1/3, 1/2, 2/3$ в зависимости от механизма массопереноса [16,17]). Разумно предположить, что пересыщение убывает от некоторого максимального значения ξ_0 до нуля в результате выравнивания температуры и исчезновения локального разогрева за счет теплопроводности. Мы используем для $\xi(t)$ степенную модель вида $\xi(t) = \xi_0 / (1 + t/t_*)^\alpha$, где t_* — характерное время

убывания пересыщения, $\alpha > 0$ — степенной индекс. Считаем, что форма нанохолма определяется энергетическим состоянием поверхности и сохраняется в процессе роста [19], тогда i связано с радиусом r согласно $i = Cr^3$, где C не зависит от времени экспозиции t .

Интегрируя уравнение (1), для радиуса наноструктуры получаем

$$r = \left\{ r_0^q + \frac{At_*}{1-\alpha} \left[\left(1 + \frac{t}{t_*} \right)^{1-\alpha} - 1 \right] \right\}^{1/q}, \quad (2)$$

где $q = 3(1-p)$ и $A = (1-p)\xi_0 / (C^{1-p}\tau)$. Из полученного выражения следуют два важных вывода. Во-первых, радиус наноструктуры возрастает неограниченно при $\alpha < 1$, тогда как при $\alpha > 1$ рост ограничен, т.е. радиус наноструктуры стремится к константе. Значение $\alpha = 1$ соответствует логарифмическому росту радиуса во времени. Во-вторых, формирование нанохолма возможно только тогда, когда время убывания пересыщения t_* достаточно велико, т.е. процесс передачи тепла не должен быть слишком быстрым. При $t/t_* \ll 1$ выражение (2) принимает вид

$$r = (r_0^q + At)^{1/q}, \quad (3)$$

что соответствует росту островка при постоянном пересыщении ξ_0 и совпадает с результатом [16].

Кривая на рис. 2, *a*, дающая наилучшее согласие с экспериментом, получена из выражения (2) при $A = 60\,000$, $t_* = 5$ s, $\alpha = 1.1$ и $p = 0$. Значение $p = 0$ соответствует диффузионному росту трехмерного островка при диффузионных длинах атомов, много больших его линейного размера [17]. На рис. 2, *b* приведены кривые, отвечающие неограниченному росту при $\alpha = 0.5$ и практически полному отсутствию роста при $t_* = 0.1$ s. Последний случай качественно соответствует случаю пленки чистого Au, где островки не формируются в связи с более эффективным отводом тепла в области пленки под острием СТМ за счет большей теплопроводности Au в сравнении с теплопроводностью Si.

Таким образом, в работе представлена методика синтеза наноструктур методом СТМ-литографии в слоистых структурах Au/Si. Получена экспериментальная зависимость геометрических размеров создаваемых наноструктур от времени токовой СТМ-литографии. Предложена теоретическая модель, объясняющая нелинейный характер зависимости размера наноструктуры от длительности импульса. Данная методика применена к пленкам Au/Si, что делает ее потенциально совместимой с современным КМОП-процессом.

Благодарности

Исследования проведены с использованием оборудования Научного парка СПбГУ РЦ „Физические методы исследования поверхности“.

Финансирование работы

Исследования выполнены при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 21-79-10346). Моделирование проведено при поддержке гранта СПбГУ № 75746688.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] J. Kern, R. Kulloock, J. Prangma, M. Emmerling, M. Kamp, B. Hecht, *Nature Photon.*, **9**, 582 (2015). DOI: 10.1038/nphoton.2015.141
- [2] W. Du, T. Wang, H.-S. Chu, C.A. Nijhuis, *Nature Photon.*, **11**, 623 (2017). DOI: 10.1038/s41566-017-0003-5
- [3] H.-S. Ee, Y.-S. No, J. Kim, H.-G. Park, M.-K. Seo, *Opt. Lett.*, **43**, 2889 (2018). DOI: 10.1364/OL.43.002889
- [4] Y. Fang, M. Sun, *Light: Sci. Appl.*, **4**, e294 (2015). DOI: 10.1038/lsa.2015.67
- [5] A. Liu, P. Wolf, J.A. Lott, D. Bimberg, *Photon. Res.*, **7**, 121 (2019). DOI: 10.1364/PRJ.7.000121
- [6] D. Liang, J.E. Bowers, *Nature Photon.*, **4**, 511 (2010). DOI: 10.1038/nphoton.2010.167
- [7] A.S. Polushkin, E.Y. Tiguntseva, A.P. Pushkarev, S.V. Makarov, *Nanophotonics*, **9**, 599 (2020). DOI: 10.1515/nanoph-2019-0443
- [8] J. Lambe, S.L. McCarthy, *Phys. Rev. Lett.*, **37**, 923 (1976). DOI: 10.1103/PhysRevLett.37.923
- [9] D.V. Lebedev, A.M. Mozharov, A.D. Bolshakov, V.A. Shkoldin, D.V. Permyakov, A.O. Golubok, A.K. Samusev, I.S. Mukhin, *Phys. Status Solidi (RRL)*, **14**, 1900607 (2020). DOI: 10.1002/pssr.201900607
- [10] S.W. Hla, *Rep. Prog. Phys.*, **77**, 056502 (2014). DOI: 10.1088/0034-4885/77/5/056502
- [11] S.W. Hla, *J. Vac. Sci. Technol.*, **23**, 1351 (2005). DOI: 10.1116/1.1990161
- [12] Z. Klusek, A. Busiakiewicz, P.K. Datta, R. Schmidt, W. Kozłowski, P. Kowalczyk, P. Dabrowski, W. Olejniczak, *Surf. Sci.*, **601**, 1513 (2007). DOI: 10.1016/j.susc.2007.01.011
- [13] V.M. Kornilov, A.N. Lachinov, *Microelectron. Eng.*, **69**, 399 (2003). DOI: 10.1016/S0167-9317(03)00327-7
- [14] S. Kondo, S. Heike, M. Lutwyche, Y. Wada, *J. Appl. Phys.*, **78**, 155 (1995). DOI: 10.1063/1.360733
- [15] S.V. Makarov, I.S. Sinev, V.A. Milichko, F.E. Komissarenko, D.A. Zuev, E.V. Ushakova, I.S. Mukhin, Y.F. Yu, A.I. Kuznetsov, P.A. Belov, I.V. Iorsh, A.N. Poddubny, A.K. Samusev, Yu.S. Kivshar, *Nano Lett.*, **18**, 535 (2018). DOI: 10.1021/acs.nanolett.7b04542
- [16] S.A. Kukushkin, A.V. Osipov, *Prog. Surf. Sci.*, **151**, 1 (1996). DOI: 10.1016/0079-6816(96)82931-5
- [17] V.G. Dubrovskii, *J. Chem. Phys.*, **131**, 164514 (2009). DOI: 10.1063/1.3254384
- [18] V.G. Dubrovskii, N.V. Nazarenko, *J. Chem. Phys.*, **132**, 114507 (2010). DOI: 10.1063/1.3354118
- [19] V.G. Dubrovskii, N.V. Sibirev, X. Zhang, R.A. Suris, *Cryst. Growth Des.*, **10**, 3949 (2010). DOI: 10.1021/cg100495b