

超冷离子源研究进展*

周文长¹⁾²⁾ 方锋¹⁾ 罗长杰¹⁾³⁾ 牟宏进¹⁾³⁾ 卢亮²⁾邹丽平²⁾ 程锐¹⁾³⁾ 杨杰^{1)3)4)5)†} 杜广华^{1)3)‡}

1) (中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000)

2) (中山大学中法核工程与技术学院, 珠海 519082)

3) (中国科学院大学, 北京 100049)

4) (先进能源科学与技术广东省实验室, 惠州 516003)

5) (中国科学院近代物理研究所, 高精度核谱学重点实验室, 兰州 730000)

(2024年5月16日收到; 2024年7月8日收到修改稿)

纳米离子束是制备束斑直径在微纳米尺度荷能离子束的先进技术, 主要应用于高分辨和高精度的离子束分析、离子束加工和离子束材料改性研究, 在材料分析、微纳加工、微电子器件制造和量子计算等方面发挥着重要的作用。高品质离子源作为纳米离子束装置的关键部件, 其性能指标直接决定着该装置的技术水平。然而, 目前常用的传统离子源存在离子种类单一、能散高和结构复杂等问题, 已经难以满足新应用场景下的多离子种类和高分辨的要求, 突显出研发新型离子源的重要性和迫切性。随着激光冷却技术的日臻成熟, 基于光电离冷原子和激光冷却离子技术可以获得温度在 mK 甚至 μ K 量级的超冷离子, 其低温和易于操控等典型特征极大地促进了超冷离子源的发展。超冷离子具有极小的横向速度发散, 可以显著提升离子源的亮度和发射度等品质参数, 为纳米离子束技术的革新带来了巨大的发展机遇。因此, 超冷离子源的研究对于实现更高亮度、更小尺寸、更低能散、更多样化离子种类以及结构更简化的高品质离子源具有重要的意义。本文综述了近年来超冷离子源的研究进展, 从制备原理、产生方式以及典型应用等方面介绍了磁光阱离子源、冷原子束离子源和超冷单离子源在基础研究和应用技术研发方面取得的重要成果, 并对超冷离子源的未来发展和应用前景进行了展望。

关键词: 纳米离子束, 磁光阱离子源, 冷原子束离子源, 超冷单离子源**PACS:** 37.10.De, 32.80.-t, 37.10.Ty, 37.20.+j**DOI:** 10.7498/aps.73.20240695

1 引言

纳米科学与技术是当今世界科技强国竞相追逐的研究热点, 涉及物理、化学、材料、生物、医学、信息技术、能源与环境等多个学科的交叉前沿研究领域。纳米离子束技术, 通过使用束斑直径在微纳米尺度的荷能离子束轰击样品表面, 实现微纳

加工的目的, 是纳米科学的核心技术之一, 在离子束成像、蚀刻、沉积和注入等方面具有独特的优势, 成为材料分析和集成电路生产的关键技术。尤其是在量子计算和量子信息处理等新兴前沿研究领域中, 纳米离子束正展现出巨大的应用前景和潜力^[1-7]。纳米离子束的聚焦精度和稳定性主要取决于离子源的性能, 如何获得具有纳米空间分辨的高亮度、低能散、低发射度的高品质离子源是当下该技术迫

* 国家自然科学基金(批准号: 11975283)、国家重点基础研究发展计划(批准号: 2022YFA1602500)和国家自然科学基金国际(地区)合作与交流项目(批准号: 12120101005)资助的课题。

† 通信作者. E-mail: jie.yang@impcas.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: gh_du@impcas.ac.cn

切需要解决的重要问题。

目前,成功应用于纳米离子束技术(以聚焦离子束 FIB(focused ions beam)为例)商业产品的离子源主要有 3 种类型:液态金属离子源(liquid metal ion source, LMIS)、气体场发射离子源(gas field ion source, GFIS)和电感耦合等离子体离子源(inductively coupled plasma source, ICPS)。其中 LMIS 利用强电场作用于熔融状态的金属获得离子,具有性能稳定和可重复性高等优势。由于所用金属在液态时需具备表面张力大、熔点低和蒸汽压低等特性,因此 LMIS 只能提供以镓(Ga)为主的少数几种金属离子束。Ga-LMIS 的典型亮度为 $10^6 \text{ A}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{Sr}^{-1}\cdot\text{eV}^{-1}$,能散在 4—5 eV,焦斑尺寸可达 5—10 nm,是目前 FIB 商业产品中使用最广泛的离子源^[8,9]。GFIS 通过强电场电离气体原子制备离子^[10],在上述 3 种离子源中亮度最高,其中氦(He)-GFIS 的亮度高达 $10^9 \text{ A}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{Sr}^{-1}\cdot\text{eV}^{-1}$,能散约 1 eV。但是 GFIS 离子种类以质量较小的惰性气体 He 离子和氖(Ne)离子为主,且需配备低温冷却系统,给运维和操作带来诸多不便,应用范围受限^[11,12]。ICPS 通过电感耦合射频放电产生离子,可提供的离子种类较多,但是其亮度和能散等品质参数较差,常见的氙(Xe)-ICPS 典型亮度仅为 $10^4 \text{ A}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{Sr}^{-1}\cdot\text{eV}^{-1}$,能散高达 5 eV^[13]。鉴于目前传统离子源存在的离子种类单一、能散高和结构复杂等问题,需要开发出能够满足离子种类丰富、亮度高、能散低和结构简单等条件的新型离子源。

近些年蓬勃发展的原子(或分子)激光冷却与囚禁技术^[14-16],为研发新型离子源开辟了新途径。冷原子具有密度高、温度低、运动速率慢且易于操控等典型特征,通过光电离冷原子产生的超冷离子束团成为替代传统离子源最具潜力的候选对象。冷原子(束)光电离过程中遵守动量和能量守恒条件,光电子带走了绝大部分的剩余能量,而离子继承了冷原子的温度(几十—数百 μK)以及微弱的光电子反冲动量,具有极小的初始动能。因此,与传统离子源相比,冷原子离子源具有许多独特的优势^[17]: 1) 离子种类丰富,目前激光冷却的原子种类多达 27 种,覆盖碱金属、碱土金属和稀有气体等原子,这些原子及其同位素为冷原子离子源提供了丰富的可选择离子种类; 2) 冷原子的温度相对室温降低了 6 个数量级(百 μK),对应的离子源亮度和发射度等品质参数会有显著提升; 3) 冷原子离子源

结构相对简单,状态参数灵活可控,利用激光稳频和锁频系统,冷原子长期稳定囚禁; 4) 原子的冷却与激光频率相关,对应冷原子离子源成分单一,从源头避免了同位素和杂质元素掺杂; 5) 根据需求控制电离激光模式,既可制备连续束又可制备任意频率的脉冲束,可有效缓解空间电荷效应对离子源品质的影响和拓展 FIB 的应用场景。

2003 年, Freinkman 等^[18]首次提出利用光电离冷原子束产生聚焦离子束的方案。之后, van der Geer 等^[19,20]、Hanssen 等^[21]和 Murphy 等^[22]分别基于磁光阱装置(magneto-optical trap, MOT)利用铷(Rb)、铬(Cr)和锂(Li)等原子产生了磁光阱超冷离子源(magneto-optical trap ion source, MOTIS)。2013 年和 2014 年, Kime 等^[23]、Wouters 等^[24,25]和 Knuffman 等^[26]改变了 MOTIS 中冷原子的分布方式和电离方式,使原子在电离区不再是随机分布,而是以定向的原子束(流)进入电离区。这种方式显著增大了原子束通量以及对应离子的束流密度,突破了 MOTIS 中束流的传输极限,成功制备了高亮度冷原子束离子源(cold atomic beam ion source, CABIS)。

尽管 MOTIS 和 CABIS 两类新型冷原子离子源丰富了离子种类并拓展了离子源可能应用的范畴,但是不具备确定性(数量-位置)的特性。随着工艺精细化、器件微型化和集成化程度越来越高,纳米离子束对更小束斑尺寸和更高定位精度的需求日益增加,需要发展单离子的制备和操控技术。离子阱作为囚禁离子的典型装置,通过激光冷却囚禁中的离子,可以产生温度在 mK 量级的离子库仑晶体,而且基于协同冷却机制,可以产生多种不同种类的离子或者分子离子库仑晶体。此外,光电离原子技术与符合测量技术的结合,允许在同一电离事件中利用电子的动力学信息来追踪和校正离子的行为,为超冷单离子源提供了新的实验方案。Schnitzler 等^[27]和 Sahin 等^[28]分别基于离子阱技术和符合测量技术开发了确定性超冷单离子源装置,成为纳米离子束技术突破的驱动力,对推动量子信息科学和纳米材料科学的发展具有重要意义。

图 1 展示了超冷离子源发展路线及重要研究进展。超冷离子源的实现,克服了传统离子源离子种类单一、能散高和结构复杂等缺点,为纳米离子束技术的革新带来了新的发展机遇,同时也激起了研究者们对这一新领域及其相关应用研究的热情。

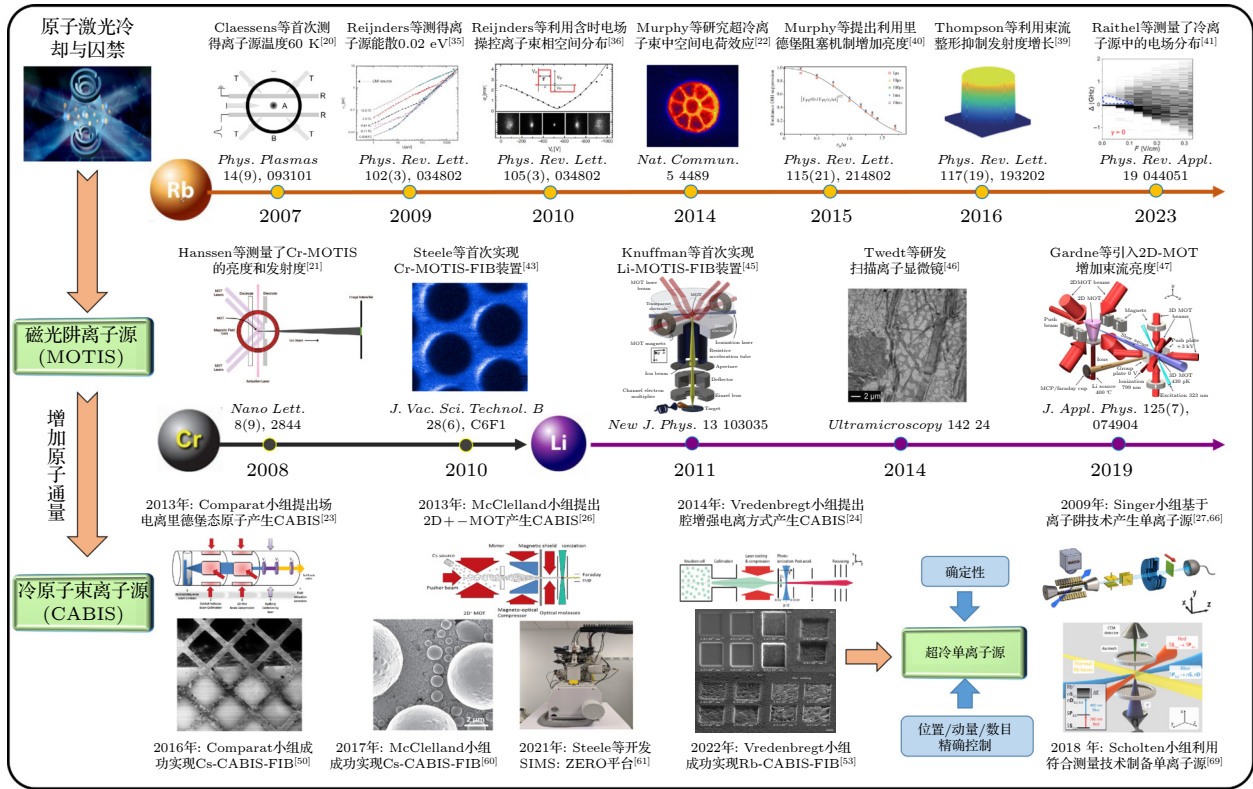


图 1 超冷离子源的发展路线和重要研究进展

Fig. 1. Roadmap and advances of ultracold ion source.

特别地, 单离子的制备和操控在量子计算和通信以及纳米尺度单离子注入等领域展现出巨大的应用潜力和广阔的前景. 本文对超冷离子源的研究进展进行综述, 首先简单介绍了离子源性能参数, 然后详细总结了磁光阱离子源、冷原子束离子源和超冷单离子源的研究进展, 最后对超冷离子源的发展前景进行展望.

2 冷原子离子源的类型和研究现状

根据产生方式不同, 冷原子离子源主要分为两种类型: 1) 基于三维激光冷却和囚禁技术的磁光阱离子源 (MOTIS); 2) 基于二维横向激光冷却技术的冷原子束离子源 (CABIS). 下面将分节对激光冷却和囚禁原子技术以及两种冷原子离子源的研究进展展开介绍.

2.1 原子的激光冷却与囚禁

1975年, Hansch 和 Schawlow^[29] 首次提出了中性原子的“激光冷却”概念. 1997年诺贝尔物理学奖授予了美国斯坦福大学的朱棣文 (Steven Chu)、美国国家标准与技术研究所的 Philips, 以

及法国巴黎高等师范学院的 Cohen-Tannoudji, 以表彰他们在激光冷却与囚禁原子方面做出的突出贡献^[30-32].

激光冷却原子的物理过程如图 2 所示^[33]. 一束负失谐的激光束沿原子运动的相反方向照射原子, 处于基态的原子吸收光子后跃迁到激发态, 原子

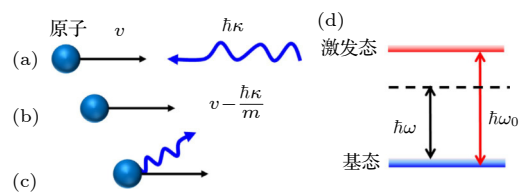


图 2 原子的一维冷却示意图 (a) 速度为 v 的原子与动量为 $\hbar\kappa$ 在单方向上的光子相互作用; (b) 原子吸收定向光子后, 速度减小了 $\hbar\kappa/m$; (c) 激发态原子经自发辐射过程随机释放光子回到基态; (d) 二能级系统中原子对负失谐光子的吸收 ($\hbar\omega$) 和发射过程 ($\hbar\omega_0$)

Fig. 2. The schematic of one-dimensional cooling atoms: (a) An incoming atom with velocity v interaction with laser with the specific momentum $\hbar\kappa$ in a single direction; (b) the photon is absorbed and the velocity of the atom has been reduced $\hbar\kappa/m$ induced by the net momentum transfer; (c) after spontaneous emission, the excited state atom emits a photon in all directions; (d) in a two-level system, the absorption of a red-detuned photon by an atom and the subsequent emission process.

获得激光照射方向的动量, 之后原子通过自发辐射回到基态. 这个过程中原子发射光子的方向是随机的, 获得的反冲动量的方向也是随机的. 在多次的激发-退激过程后, 原子在入射激光相反方向的运动速度降低, 即原子被冷却. Chu 等^[15]在激光冷却原子基础之上, 利用三维的激光场配合一对反亥姆霍兹线圈产生的梯度磁场, 实现了原子在三维空间的冷却和囚禁, 该装置也被称为 MOT.

原子的冷却是基于多普勒效应引起的原子对负失谐光子的吸收和发射过程, 因此这种冷却机制通常称为多普勒冷却. 原子通过与相向运动的定向光子发生动量交换而被冷却, 同时原子在自发辐射过程中受反冲光子的影响被加热. 这种速度的涨落决定了原子的温度不可能趋于绝对零度, 最终体系的温度在冷却和加热之间达到平衡, 原子的平衡温度为^[34]

$$T = \frac{\hbar\Gamma}{4k_B} \left[\frac{2(\omega - \omega_0)}{\Gamma} + \frac{\Gamma}{2(\omega - \omega_0)} \right], \quad (1)$$

其中 ω 为激光频率, ω_0 为原子共振频率, 当 $\omega - \omega_0 = \Gamma/2$ (Γ 为原子的自然线宽) 时 (1) 式取最小值, 即多普勒冷却极限温度为^[34]

$$T_D = \frac{\hbar\Gamma}{2k_B}. \quad (2)$$

可以看到, 多普勒冷却原子的极限温度由原子的自然线宽 (即寿命) 决定. 简单估计可知, 100 ns 的激发态寿命对应的原子的极限温度约为 38 μK .

目前, 利用激光冷却的原子种类多达 27 种, 覆盖碱金属 (Li, Na, K, Rb, Cs 等)、碱土金属 (Mg, Ca, Sr, Ba 等)、惰性气体 (He, Ne, Ar, Kr, Xe 等) 以及少数的镧系元素 (Eu, Dy, Yb 等). 这些原子及其同位素, 为冷原子离子源提供了丰富的可选择离子种类.

2.2 磁光阱离子源 (MOTIS)

2.2.1 MOTIS 原理

MOTIS 装置通常由 MOT、电离激光、离子引出和加速系统构成^[20,21]. 首先在 MOT 中冷却并囚禁一定数量的冷原子, 之后一般采用双色双光子共振电离方法电离冷原子, 即由共振激光激发冷原子至激发态, 然后再引入电离激光将处于激发态的原子电离. 通常选择电离激光的频率仅仅略高于原子的电离阈值, 以保证离子受到尽量小的反冲加热.

最后, 离子被电场引出和加速产生离子束. MOTIS 中电极的设计是一项具有挑战性的工作, 靠近 MOT 中心的地方需要产生高精度且均匀的引出电场, 同时还需要为 MOT 的冷却光和电离激光预留通路, 因此通常需要通过精确的电磁场建模以确定最合适的几何结构.

根据电离激光入射方向和种类的不同, MOTIS 电离过程可分为轴向模式、横向模式和交叉双光子模式^[17], 如图 3 所示. 在轴向电离模式和横向电离模式中, MOT 的冷却光被用来作为共振激光, 同时引入一束激光聚焦在冷原子团上作为电离激光. 在交叉双光子模式中, 需要提前关闭 MOT 的冷却激光, 然后同时引入共振和电离两束激光交叉聚焦在冷原子云团上. 在轴向电离模式中, 电离激光沿着束流引出方向 (z 方向), 激光焦斑通常小于 100 μm , 因此离子初始空间分布的横向 (x 和 y 方向) 尺寸很小, 束流的电流密度 (亮度) 相对较高, 而离子束的初始纵向尺寸由冷原子云团 (通常直径 1 mm) 决定, 引出电场会造成束流具有较大的能散. 在横向电离模式中, 电离激光引入方向与离子引出方向垂直, 离子束初始空间分布的纵向尺寸小而横向尺寸大, 因而束流的电流密度较低而能散小. 双光子交叉电离模式中, 两束激光可以从任意方向入射, 聚焦并交叉于冷原子云上, 离子初始空间分布的横向和纵向尺寸都很小, 保证了束流的能散极小, 同时避免了电离激光对 MOT 冷原子造成的不必要损耗. 交叉电离模式下, 需要提前关闭 MOT 激光, 因此只适用于脉冲工作方式的离子源. 选取 MOTIS 的电离模式, 需要综合考虑束流的特性要求以及整体设备的复杂度.

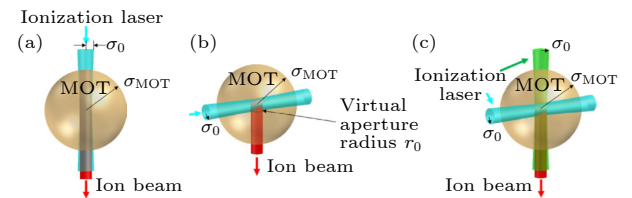


图 3 电离过程的 3 种模式示意图^[17] (a) 轴向电离模式; (b) 横向电离模式; (c) 交叉双光子模式

Fig. 3. The sketch of ionization modes in a MOTIS^[17]: (a) Axial mode; (b) transverse mode; (c) two-photon mode.

2.2.2 磁光阱离子源的现状

自 2003 年冷原子离子源的概念被提出以后^[18], 荷兰、澳大利亚和美国的研究人员基于 Rb, Cr 和

Li 原子先后建成了 MOTIS, 并取得了一系列从基础科学研究到微纳加工应用的亮点成果. 本节将按照 MOTIS 的离子种类简单概述其研究进展.

1) Rb 离子源

Rb 是典型的碱金属元素, 原子能级结构简单. Rb 原子的冷却激光波长为 780 nm, 产生该波长激光的外腔半导体激光器具有稳定性高和寿命长的特点. 因此, Rb 原子是激光冷却和囚禁最容易实现的原子, 也是 MOTIS 研究的首选对象.

2007 年, Claessens 等 [20] 首次利用冷 ^{85}Rb 原子开展了超冷离子源的研究工作. 通过场电离冷里德伯态原子产生冷离子, 引出电场电极由 4 根极杆组成, 离子被加速引出后, 利用微通道板 (micro-channel plate, MCP) 探测器测量离子飞行时间, 电子耦合器件 (charged coupled device, CCD) 相机用来记录荧光屏上离子的空间分布图像. 通过记录离子的空间分布 σ_0 和飞行时间 t , 利用 $k_B T = m(\sigma_0/t)^2$ 可以得出离子温度 T , 基于这种飞行时间质谱法测量得到的冷离子束团的温度约为 60 K.

2009 年, 在文献 [20] 工作基础上, Reijnders 等 [35] 对离子引出电极进行了改进, 采用具有圆柱对称性的电场结构. 通过加载直流电压, 开展了 Rb-MOTIS 能散的测量. 利用飞行时间质谱法, 在不同束流能量下分别测量了电荷量为 0.026—13 fC 的离子束团的能散, 发现当束流能量低至 1 eV 时, 束流的能散低至 0.02 eV, 比 Ga-LMIS 离子源的能散低 2 个量级. 随着束团电荷量增加, 观察到束流能散快速增大 (图 4 插图所示). 实验结果与考虑了电场力和离子间的库仑相互作用的粒子轨迹计算结果非常吻合. 图 4 展示了束流能量和能散除以束流电荷后的关系. 当加速电压较高时, 能散主要受加速场中束团初始位置分布差异的影响, 这一差异来自于电离体积的大小. 在这一区域能散与加速电压呈线性关系 (虚线); 当加速电压较低时, 空间电荷效应占据主导地位, 导致了能散与加速电压有近平方根的关系 ($\sigma_U \cdot U^{1/2}$, 实线); 而在过渡区空间电荷效应和初始尺寸分布对能散均有贡献.

高亮度离子束的应用与其相空间分布的精确操控密切相关. 基于相似的实验装置, 该研究组又利用含时电场实现了对离子束团在横向和纵向的相空间分布的操控 [36,37]. 图 5(a) 为在单极性 (脉冲) 电场 (unipolar voltage pulse) 作用下纵向相对能散与束流能量的关系. 当加载直流电压时 (dc),

由于束流能量和能散都正比于加速电压, 因此相对能散不依赖于束流能量, 仅取决于初始纵向尺寸大小, 这也是 MOTIS 能散的主要来源; 当加载单极性的含时电场时, 通过调整脉冲电场的持续时间 (作用时间: 100 ns—2 μs) 在 3 个不同的峰值电压 V_p 条件下 (分别为 2000, 1000 和 500 V), 测量了

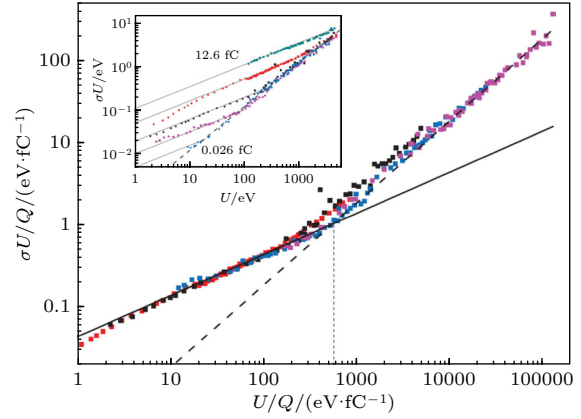


图 4 能散和束流能量除电荷量后的关系, 插图 5 种不同束流电荷量下能散与束流能量的关系 [35]

Fig. 4. The five measured energy spread and beam energy curves from inset scaled by the bunch charge to a single curve. The inset shows the measured energy spread as a function of the beam energy for five different bunch charges [35].

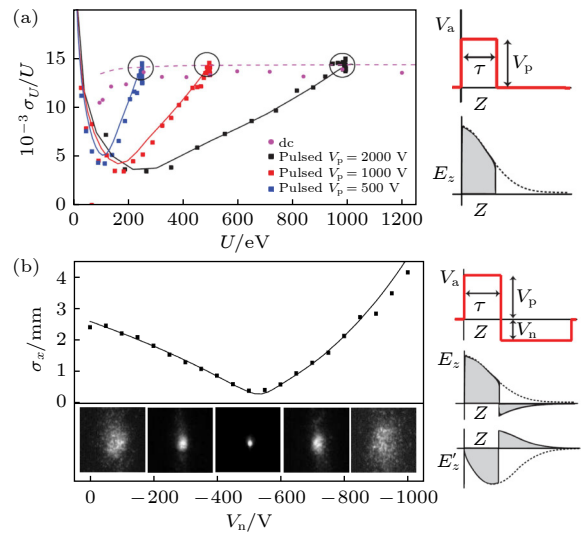


图 5 含时电场对超冷离子束相空间的操控 (a) 纵向相对能散 σ_U/U 与脉冲电场宽度 U 之间的关系; (b) 双极性电场 ($V_p = 1000$ V) 条件下, 离子束在 x 方向上的横向尺寸 σ_x 与 V_n 的函数关系 [36]

Fig. 5. Phase-space manipulation of ultracold ion bunches with time-dependent fields: (a) The longitudinal relative energy spread σ_U/U versus U is plotted; (b) demonstration of focusing by bipolar voltage pulses with $V_p = 1000$ V, the transverse size in the x direction σ_x of the bunch on the detector is measured as a function of V_n [36].

相对能散与束流能量的关系,三者呈现相似的变化趋势.另外,图中圈出的点对应离子已经离开了加速场,因此不受电场开关的影响,测量结果与直流条件测量结果相同.当脉冲电场作用时间较短时,相对能散和束流能量均有所降低.但是对于更短的脉冲电场宽度,相对能散随束流能量的降低呈现反常的增加现象,这主要是由于在这一阶段空间电荷效应开始占主导地位,增加了离子束团的能散.以横向 x 方向的空间分布为例,图 5(b) 讨论了双极性 (bipolar voltage pulses) 的含时电场对离子束团的横向操控.随着负电压 V_n 的增大,束团最初在探测器上实现聚焦,但随后出现过聚焦现象.实验测量结果与粒子追踪模拟非常吻合,如图 5(b) 中实线所示.此外,作者也指出,利用多极性 (multipolar voltage pulses) 的含时电场,可以实现对电场焦距和球差系数的精确控制,为校正限制空间分辨率的球差和色差提供了新的可能性.

利用双极性的含时电场对束流横向操控的能力,Debernardi 等 [38] 进一步开展了 Rb-MOTIS 的温度测量实验.如图 6 所示,通过改变含时电场负电压的数值获得最小尺寸束斑,根据公式 $T = \frac{2}{k_B} U \left(\frac{\sigma_{xf}}{f} \right)^2$ (T 为离子源温度, U 为束流能量, σ_{xf} 为束斑半径, f 为聚焦电场焦距),确定 $1/U$ 和 σ_{xf} 的线性关系,通过拟合斜率提取离子源的温度为 $T = (4.9 \pm 0.3)$ mK,由此给出 MOTIS 归一化的横向发射度为 1.4×10^{-8} m·rad·eV^{1/2}. MOT 中冷原子的温度是 143 μ K,考虑电离激光能量比原子电离阈值高 3.2 meV 引入的电子反冲加热,离子温度期望值是 390 μ K,但是远小于测量值.作者认为离子间的空间电荷效应与微弱的电场畸变是造成温度测量值偏高的主要原因,之后通过粒子追踪数值模拟剔除空间电荷效应影响,得到 MOTIS 的温度 $T = (3 \pm 2)$ mK.

2014 年, Murphy 等 [22] 成功开发 Rb-MOTIS,开展了空间电荷效应的实验观测和模拟研究.实验中,780 nm 的激发激光首先经空间光调制器后激发特定位置的原子,之后 480 nm 的电离激光将处于激发态原子电离,形成空间有序分布的冷离子团,离子团被静电场加速,最终被成像探测器收集记录.随着电离激光功率从 1 μ W 增至 980 μ W,电离过程产生的离子数越来越多,相应的离子间空间电荷效应不断增强,探测器观测到的离子束团图

样发生非常明显的非线性改变,尤其是高密度环和离子束间碰撞边界的形成,充分展示了空间电荷效应对离子束结构的影响.模拟中,考虑空间电荷效应和外加电场,随着对应的束团电荷量从 0 C 增至 19 fC,带电粒子追踪模拟几乎完美地重现了实验观测结果.研究表明:超冷离子束可以避免离子热运动的影响,有利于空间电荷效应的观测.

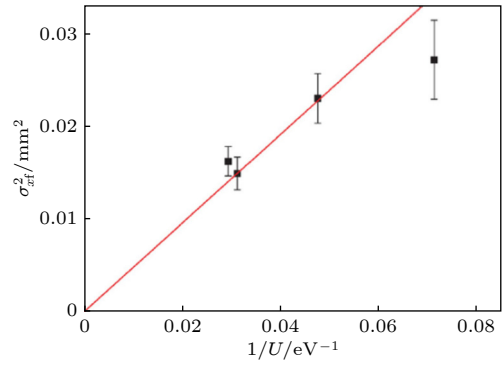


图 6 离子束斑与束流能量倒数的关系,其斜率与有效源温度 T 成正比,图中实心点为实验测量结果,红色实线代表线性拟合 [38]

Fig. 6. Final spot radius squared σ_{xf}^2 vs. the reciprocal of the bunch energy $1/U$, the thick line is a linear fit, the slope of which is proportional to the effective source temperature T [38].

在上述基础之上, Thompson 等 [39] 进一步细致研究了空间电荷效应,证实了对束流三维整形可以显著降低库仑力驱动的发射度增长,首次清晰地区分了不同初始粒子分布的非线性增长变化.图 7(a) 所示为通过测量激光强度分布计算的 4 种初始离子分布 (半球形-HS、高斯型-GS、平顶型-FT 和圆锥型-CN) 对应的激发概率分布.为了评估了离子束流扩散的自相似性,实验测量了不同分布中包含 50%, 75%, 90% 和 95% 束流电荷的横向半径,然后除以激光分布中的初始值得到扩散因子,分别表示为 e_{50} , e_{75} , e_{90} 和 e_{95} .由图 7(b) 可知,当束团中离子数较少时,束团的扩散主要由引出电极结构造成的透镜效应决定,所有形状的束流都表现出近似相同的线性扩散,相应的扩散因子约为 20.随着离子数量的增加,空间电荷效应变得更为显著.对于 GS 和 CN 分布,由于初始时中心密度较高,中心半径的扩散因子 (e_{50} 和 e_{75}) 的增长比外部半径 (e_{90} 和 e_{95}) 的扩散因子更快.然而,对于 FT 分布,情况正好相反,由于初始时中心密度较低, e_{50} 和 e_{75} 的

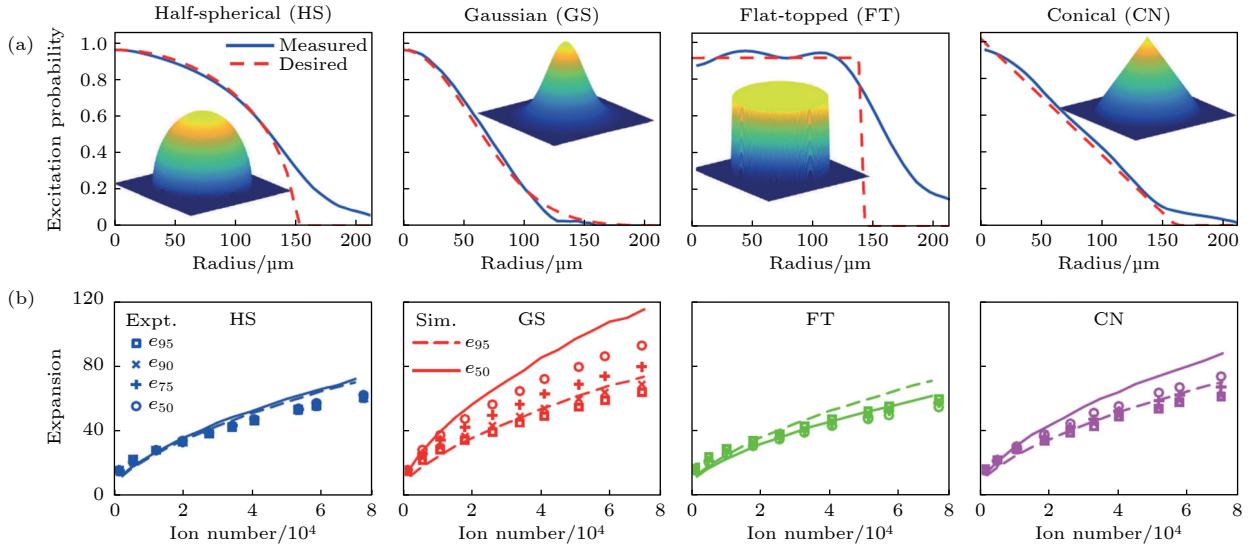


图 7 四种离子束分布及其空间电荷驱动的扩散^[39] (a) 径向平均激发光轮廓(实线)与相对激发概率(虚线)的关系; (b) 径向扩散因子与离子数的关系

Fig. 7. Four ion bunch distributions and their expansion properties^[39]: (a) Measured radially averaged excitation laser profiles (solid lines) and desired profiles (dashed lines), plotted as the relative excitation probability; (b) radial expansion factors against ion number for each shape individually.

增长慢于 e_{90} 和 e_{95} . 对于 HS 初始分布, 扩散因子不随离子数目的增加而变化, 表明发生了线性的自相似空间电荷扩散, 并形成了所需的均匀椭球束. 同时, 通过考虑理想的空间分布和实测的时间分布, 利用粒子追踪软件对实验过程进行模拟, 获得预期的扩散因子, 模拟结果与实验测量吻合良好, 特别是对于 HS 分布.

对于带电粒子束而言, 初始空间分布的离散性也会引入统计库仑效应, 限制了束流最终可实现的最低温度. 光电离磁光阱冷原子产生的冷离子束团, 其离子间的排斥力在方向和大小上都是随机的, 会不可避免地导致无序诱导加热过程, 进而影响束团品质参数(如: 亮度和发射度)的提升. 针对这一问题, Murphy 等^[40] 提出利用里德伯阻塞效应 (Rydberg blockade) 抑制离子无序性导致的发射度增长. 如图 8(a) 所示, 细致的分子动力学模拟定量证实了离子平衡时的发射度和温度都随阻塞半径的增大而减小. 特别地, 当阻塞半径 $r_b = 1.2a$ (a 为 Wigner-Seitz 半径) 时, 离子平衡时的库仑耦合参数高达 $\Gamma_{\text{eq}} = 16$, 发射度将降低 2.6 倍, 进而导致横向的亮度增大 7 倍, 最小的束斑尺寸是无序状态下的 0.62 倍. 另外, 图 8(b) 也反映出发射度的抑制程度不受离子扩散的影响, 主要取决于阻塞半径大小. 这一结果将为进一步开发高亮度冷离子束提供指导.

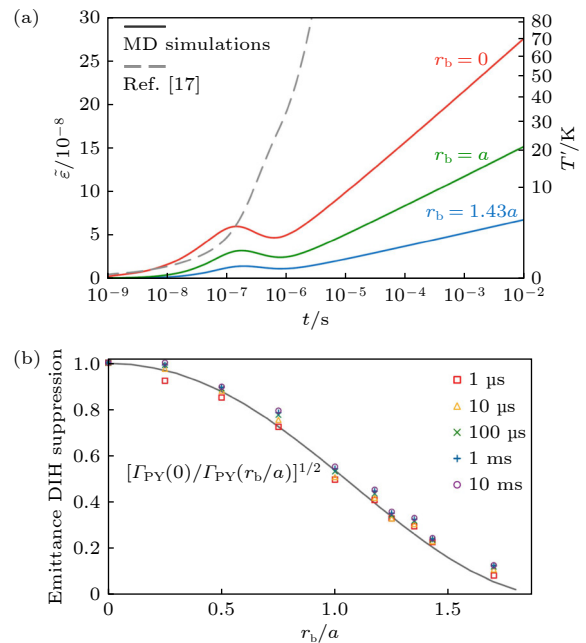


图 8 分子动力学模拟里德伯阻塞机制抑制无序诱导加热^[40] (a) 不同阻塞半径条件下, 离子平衡时的发射度和温度随扩散时间的关系; (b) 不同扩散时间下, 不同阻塞半径对于阻塞与无序发射度比率的影响

Fig. 8. Rydberg blockade mechanism suppressing disorder-induced heating with molecular dynamics simulation^[40]: (a) The relationship between the emittance and temperature of ions at equilibrium under different blocking radii, as a function of diffusion time; (b) suppression of disorder-induced heating, expressed as the ratio of blocked to disordered emittance for different blockade parameters at different expansion times.

2023年, Duspayev等^[41]利用里德伯原子的 Stark 光谱分析了冷 Rb 离子源中的电场分布. 图 9(a) 展示了实验装置示意图, 首先, 将冷 ⁸⁵Rb 原子从三维 MOT 装载到光晶格偶极阱 (optical lattice dipole trap, OLD T), 产生一个圆柱对称, 长而薄的原子云团. 原子云密度高达 10^{11} cm^{-3} , 直径大约 $20 \mu\text{m}$, 沿 OLD T 轴的长度可达 1 mm 左右. 之后, 在 OLD T 中通过四光子电离过程产生冷离子, 对应的能级跃迁如图 9(b) 所示, 其中 1256 nm 和 1064 nm 的激光分别用来激发里德伯原子和制备冷离子源. OLD T 腔周围布置有 6 个与 OLD T 轴平行的长而薄的电极, 这些电极为离子源引出和场电离里德伯原子提供所需电场. 实验中, 电极 E2, E3, E5 和 E6 加载特定电压, 目的是最小化里德伯能级的直流 Stark 位移. 与此同时, 电极 E1 和 E4 则被用来在实验区域内产生一个可控的、近似均匀的离子引出场 F . 通过细致调节电极 E2 和 E3 上的电压, 由场电离里德伯原子产生的电子被有效加速并引向 MCP 探测器, 随后进行检测、记录和分析. 实验中利用 Rb 57 F 以及附近高角动量的里德伯能级的 Stark 效应, 研究了在 $0\text{--}0.35 \text{ V/cm}$ 引出电场范围内, 离子源区域的净电场概率分布. 如图 9(c), (d) 所示, 分别展示了在低离子计数率和高离子计数率条件下, 实验测量的 $57\text{F}_{5/2}$ 的 Stark 图, 图 9(e), (f) 则为对应的模拟 Stark 图, 模拟结果过几乎完美重现了实验观测. 研究表明: 在小引出场 F 和高离子计数率条件下, 离子源产生的场大致遵循 Holtsmark 分布; 随着 F 的增大和离子源计数率的降低, 电场分布变得更加集中, 围绕 F 变窄, 导致离子束具有方向性. 这一发现对于监测冷离子源在 FIB 应用中的性能具有重要意义, 并且对冷等离子体中电场的研究具有重要价值.

2) Cr 离子源

超冷 Cr 离子束以及 Cr 单离子源在蓝宝石 (红宝石) 和纳米级金属结构沉积中的原子级别掺杂有巨大的应用潜力^[42], 因此 Cr 原子也是早期 MOTIS 技术的主要关注对象之一.

2008年, Hanssen等^[21,43]利用光电离“折叠”光路的 MOT 首次实现了 Cr-MOTIS. 图 10 为 Cr-MOTIS 的结构布局图, 引出电场由两片间隔 1.5 cm 的平行板电极构成, 其中一个电极板表面装配了反射镜, 且中心开孔保证了离子的传输; 另一个由镀有透明导电剂氧化铟锡 (ITO) 的熔融石

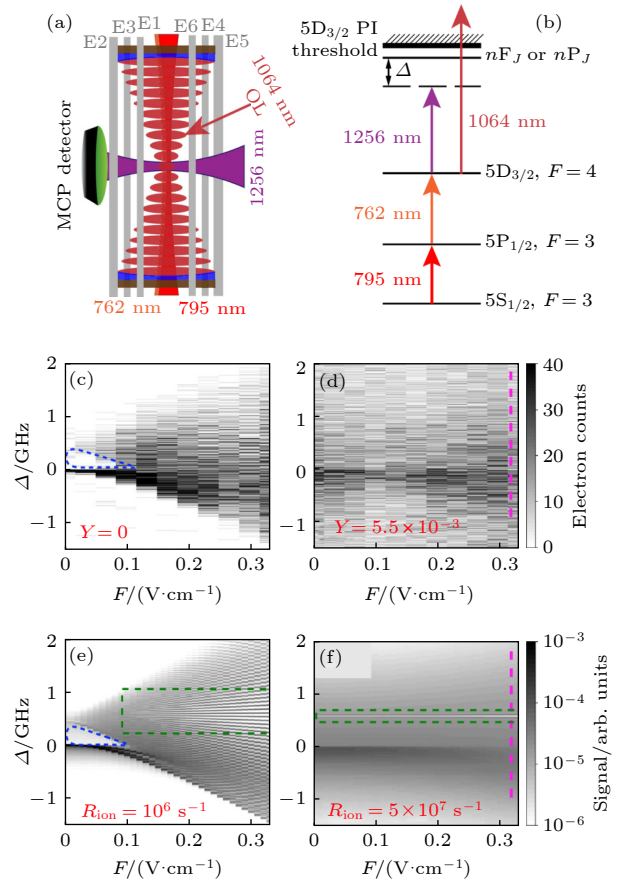


图 9 冷离子源中电场分布测量^[41] (a) 实验装置示意图; (b) ⁸⁵Rb 能级示意图及光电离和激发所需的激光波长; (c) 低离子计数率和 (d) 高离子计数率条件下, 实验测量的 $57\text{F}_{5/2}$ 的 Stark 图; (e), (f) 则为对应的模拟 Stark 图
Fig. 9. Measurement of electric field in a cold ion source^[41]: (a) Sketch of the experimental setup; (b) diagram of the utilized ⁸⁵Rb energy levels and configuration of laser beams for photoionization and excitation; (c), (d) experimental Stark maps of $57\text{F}_{5/2}$ and the neighboring hydrogenic states at the different γ values; (e), (f) the corresponding simulated Stark maps with empirically determined ion rates.

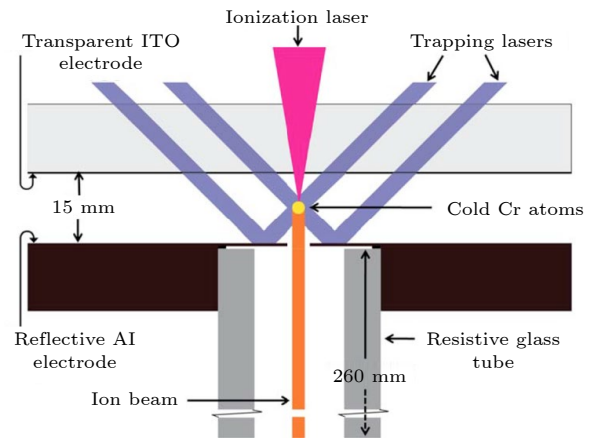


图 10 Cr-MOTIS 装置示意图^[43]
Fig. 10. The schematic of Cr-MOTIS^[43].

英窗构成. 两对 MOT 的冷却光通过透明电极入射, 经对面电极表面的反射镜反射, 相互交叉形成奇特的“W”形几何结构. 独特的光路设计既保证了引出电场的均匀性又方便冷却光顺利通过 MOT 中心. 根据测得的离子空间分布以及离子温度, 作者给出束流的归一化横向发射度低至 $6 \times 10^{-10} \text{ m}\cdot\text{rad}\cdot\text{eV}^{1/2}$ 并计算得到 0.25 pA 的流强下束流的归一化亮度为 $2.25 \times 10^4 \text{ A}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{Sr}^{-1}\cdot\text{eV}^{-1}$. 引入加速、偏转和聚焦等束流光学元件后, Steele 等^[43]初步实现了 Cr-MOTIS 和 FIB 的结合. 将束流作用于 MCP 样品, 通过收集和分析二次电子图像, 发现束流能量在 3 keV 时束斑尺寸小至 205 nm , 但是比基于光线追踪 (ray-tracing) 模拟结果大 3 倍. 作者认为造成束斑尺寸增加的原因可能有以下 4 点: 1) 数值模拟的精度不够高; 2) 离子光学器件加工和组装精度不够高, 没有补偿束流中的像差; 3) 束流中的空间电荷效应引起了束流横向温度的升高, 导致了发射度增加; 4) 受到样品和离子光学设备的机械振动影响.

3) Li 离子源

Li 原子是质量最小的金属原子, 其仅比氢和氦原子重, 基于 Li-MOT 开发的 Li-MOTIS 在 FIB 应用方面具有独特的优势. 例如: Li 原子质量小, 对基底材料损伤小, 可广泛用于材料表面成像研究; Li 离子与目标电子复合概率较小, 因此背散射离子产额高; Li 原子在许多重要的电化学过程中, 特别是在可充电电池化学中, 发挥着积极作用, 因此 Li 离子注入是重要的研究方向. 但是, 相比 Rb 原子和 Cr 原子, Li 原子的激光冷却和囚禁比较困难, 而且其多普勒冷却极限温度也比较高, 大约在 $142 \mu\text{K}$.

2011 年, Steele 等^[44]以 Li 原子为工作物质, 开发了 Li-MOTIS 装置, 结构与之前的 Cr-MOTIS 非常相似, 不同之处在于增大了塞曼减速器来提高 Li 原子的装载率, 实验中通过控制束流流强和改变引出电场强度, 探讨了空间电荷效应对 Li-MOTIS 的影响. 同年, Knuffman 等^[45]基于商业化 FIB 系统的束流光学元件, 利用 Li-MOTIS 代替 Ga-LMIS, 将 Li 离子束成功耦合到 FIB 系统中, 结合其高精度的束流光学结构设计以及优异的校正能力, 实现 Li-MOTIS-FIB 样机研制, 如图 11 所示. 实验中刀片法测量束斑大小 $d_{25/75}$ (刀刃上 25%—75% 上升距离) 为 $(26.7 \pm 1.0) \text{ nm}$. 最后, 作

者提出了改善离子源性能的建议: 1) 增大束流能量, 改善空间分辨; 2) 电离激光实现紧聚焦, 消除色差对束斑的贡献; 3) 进一步降低原子的温度; 4) 增大原子的装载率, 提高离子源的束流电流和亮度. 基于开发的 Li-MOTIS-FIB 装置, Twedt 等^[46]开展了低能背散射离子成像的研究. Li 离子显微镜的束流能量范围 500 eV — 5 keV , 远低于典型的氦离子显微镜或 Ga-LMIS-FIB 系统, 具有背散射离子产额高和相互作用体积小优势. 实验中通过测量和计算背散射离子产额随靶原子序数的变化关系, 发现 Li 离子背散射离子的产额随靶材原子序数的升高而增加, 因此可以通过背散射离子信号的对比如来识别样品成分. 为了展示 Li-MOTIS-FIB 的优势, 非破坏性地观察了纳米压印光刻过程中热塑性抗蚀剂的残留层经等离子体蚀刻后的去除情况, 研究表明 Li-MOTIS-FIB 可以提供样品在刻蚀处理前后对比清晰的成像, 是一种快速、无损的测量手段.

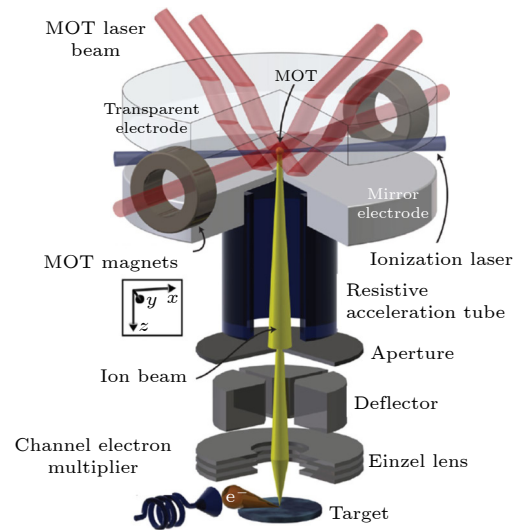


图 11 Li-MOTIS-FIB 装置示意图^[45]

Fig. 11. The sketch of Lithium FIB system^[45].

为了提升 Li-MOTIS 的亮度, 2019 年, Gardner 等^[47]采用新颖的 Li 原子装载和电离方法, 如图 12(a) 所示. 为了增大原子的装载率, 一方面利用更大的 MOT 光束束斑增加俘获效率, 另一方面, 改进装置设计, 利用 2D-MOT 取代塞曼减速器, 引入额外的“推动”激光束, 有效地将热 Li 原子转化为慢速 Li 原子束. 通常光电离是通过基态原子双光子共振电离过程实现的, 往往利用 MOT 的冷却光作为第一步的激发光. 为了更好地控制电离区域的几

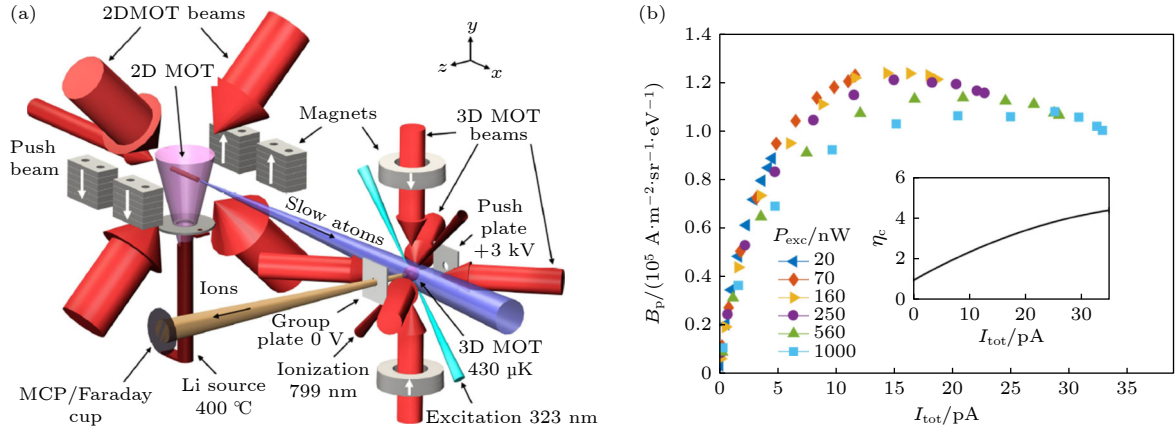


图 12 (a) Li-MOTIS 装置示意图; (b) 不同紫外激发功率 (P_{exc}) 下离子源亮度 (B_p) 与束流流强 (P_{exc}) 的关系^[47]

Fig. 12. (a) Schematic of Li-MOTIS; (b) peak normalized brightness (B_p) as a function of total current (I_{tot}) for a range of UV excitation powers (P_{exc})^[47].

何形状, 且使电离速率不再依赖于激发态原子的比例因子, 额外引入 323 nm 和 799 nm 的激光独立实现激发和电离. 如图 12(b) 所示, 测量了不同激发功率下束流归一化亮度与束流流强的关系, 测得 Li-MOTIS 的亮度高达 $1.2 \times 10^5 \text{ A} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{sr}^{-1} \cdot \text{eV}^{-1}$, 比之前的测量值提高 20 倍. 由于是近阈值光电离, 作者认为 Li 离子的温度可直接用 MOT 温度代替, 约 $430 \mu\text{K}$. Gardner 等^[48] 通过调控激发激光的作用时间, 在脉冲离子源中测量了原子完全电离和重新装载的时间依赖关系, 进一步探索了 Li 离子传输动力学过程.

总之, 基于 MOTIS 的纳米离子束和 FIB 显微镜已经初步实现了实用化. 就亮度而言, 当前 Li-MOTIS 的亮度达到了 $1.2 \times 10^5 \text{ A} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{sr}^{-1} \cdot \text{eV}^{-1}$, 相比传统离子源, 优于 ICP 的亮度 $10^4 \text{ A} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{sr}^{-1} \cdot \text{eV}^{-1}$, 接近 LMIS 的亮度 $10^6 \text{ A} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{sr}^{-1} \cdot \text{eV}^{-1}$, 低于 GFIS 的亮度 $10^9 \text{ A} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{sr}^{-1} \cdot \text{eV}^{-1}$. 在低束流能量下, 实验测得 Rb-MOTIS 的能散低至 0.02 eV, 比 LMIS 和 ICP 的能散 4—5 eV 低 2 个数量级. 实验测得 Cr-MOTIS 的发射度为 $6 \times 10^{-10} \text{ m} \cdot \text{rad} \cdot \text{eV}^{1/2}$ 可与 GFIS 发射度 $10^{-11} \text{ m} \cdot \text{rad} \cdot \text{eV}^{1/2}$ 相媲美, 但远好于 LMIS 和 ICP 发射度 10^{-8} 和 $10^{-7} \text{ m} \cdot \text{rad} \cdot \text{eV}^{1/2}$. 尤其是 MOTIS 在背散射离子成像领域等方面具有绝对优势. 随着 MOTIS 离子种类的不断发展和性能的不断提升和成像模式的不断涌现, MOTIS 将在纳米尺度表面显微分析等领域发挥重要作用.

2.3 冷原子束离子源 (CABIS)

MOTIS 作为一种新型的离子源, 具有独特的

技术优势, 然而也存在一些局限性. 首先, 在亮度方面, 由于 MOT 中的原子密度存在上限以及温度有下限, 这限制了 MOTIS 亮度的进一步提升. 其次, 就通量而言, MOT 捕获的原子通量相对较低, 进一步制约了 MOTIS 束流强度的增大. 此外, MOT 需要静态磁场来约束中性原子, 这可能会对实验造成干扰, 尤其是在需要避免磁场影响的应用场景中. 最后, MOT 需要多束激光, 一定程度上限制了 MOTIS 装置的灵活性和可扩展性.

现有实验测量结果也表明, MOTIS 由于冷原子进入电离区域时装载速度缓慢, 导致其束流亮度低于传统的 LMIS 和 GFIS 离子源. 为了进一步提升亮度, 需要改变 MOTIS 中冷原子的分布方式和电离方式, 使得原子在电离区不再是随机分布, 而是以定向的原子束 (流) 进入电离区. 这种方式可以显著增大原子束通量以及对应的离子束流密度, 突破 MOTIS 中束流的传输极限. 另外, 这种方式还具有额外的优势: 如果原子束沿离子束流的轴线方向传输, 只需要在横向将其冷却至低温就可以在离子束中实现高亮度, 而束流轴线方向的原子温度对离子束的亮度和发射度等参数的影响可以忽略.

2003 年, Freinkman 等^[18] 提出了横向冷却原子束后再进行光电离以制备高亮度离子源的概念. 2013 年以来, Kime 等^[23]、Wouters 等^[24,25] 以及 Knuffman 等^[26] 对 Freinkman 等^[18] 的方案进行了扩展和提升, 首先利用原子炉产生定向的原子蒸气束, 之后利用 2D-MOT 对原子束进行横向冷却和预压缩产生高通量的冷原子束, 最后基于共振电离

过程产生高亮度超冷离子束流. 实验中, 原子蒸气束的纵向速度通常在数百米每秒, 而电离区域的宽度相对较窄, 原子与电离激光相互作用的时间过短, 严重限制了原子的电离效率. 因此, 如何提高原子束的电离效率, 成为冷原子束离子源 (CABIS) 开发过程中需要克服的主要技术难题.

2.3.1 场电离冷里德伯原子

2013年, Kime 等^[23]提出利用场电离冷里德伯态原子产生超冷离子的方案, 这种方法在保持离子源低温特性的同时, 还可以实现更高效的电离过程. 图 13 展示了实验装置示意图, 原子炉产生的原子束经二维光学黏团冷却后进入 2D-MOT 再次被压缩和冷却, 之后被连续激光激发至里德伯态, 在引出电场中里德伯态原子被场电离形成冷离子束 (电子束). 相比于光电离过程, 场电离方式有以下两点优势. 第一, 可以产生单色性非常好的低能散束流. 通常, 离子源会采用大电场强度的引出场 (大于 1 kV/cm) 以缩短束流的传输时间和减小空间电荷效应的影响, 但是离子团的初始空间分布会造成束流能散增大. 例如: 初始尺寸 10 μm 的离子团在场强 1 kV/cm 的引出电场中的能散就是 1 eV, 这一数值接近甚至超过了传统离子源的能散. 场电离主量子数 n 的碱金属里德伯原子所需的场强约 $400 \times (30/n)^4$ V/cm. 可见, 当 $n > 30$ 时, 电场强度小于 400 V/cm, 引起的束流能散将显著减小. 第二, 原子的共振截面远高于光电离截面, 因此场电离方式显著降低了对激发激光能量的要

求. 利用连续激光直接光电离原子束需要激光功率在 10 W 左右^[49], 如此高功率、窄线宽和特定波长的激光器的研发是一项较大的挑战. 相比之下, 将碱金属原子激发至 $n = 30$ 里德伯态需要的激光功率 (线宽 10 MHz) 将降低 10^4 倍, 显著降低了对激光器的要求.

基于上述的方案, 2016年 Viteau 等^[50]利用激光冷却的 Cs 原子束的成功开发了 Cs-CABIS-FIB 样机. 通过场电离里德伯态原子产生 Cs 离子束, 束流流强高达 130 pA, 比光电离的离子产额提高了 40 倍. 将 CABIS 与商业 FIB 束流光学系统耦合, 可以在 1—5 keV 束流能量条件下获得优于 40 nm 的空间分辨率. 图 14 为束流能量 5 keV 和流强 7 pA 的 Cs-CABIS-FIB 和束流能量 5 keV 和流强 20 pA 的商业化产品 Ga-LMIS-FIB 拍摄的碳衬底上锡球的图像, 前者的成像对比度和分辨率明显优于后者. 此外, 研究者还利用能量 2 keV、流强 2 pA 的束流对不锈钢和锡的表面进行刻蚀实验. 结果表明, 在低流强条件下, Cs-CABIS-FIB 能够引起材料表面发生改变, 这为光刻、成像和表面分析等领域提供了广阔的应用前景.

2.3.2 腔增强光电离

2014年, Wouters 等^[24,25,51,52]提出在原子束电离区域搭建谐振腔的方案, 以大幅度提升电离激光的强度, 增加光电离效率. Wouters 等^[24,25,51,52]通过建立模型, 分析预测了系统的性能和相关参数, 2D-MOT 可以制备的 Rb 原子束亮度高达 $2.1 \times$

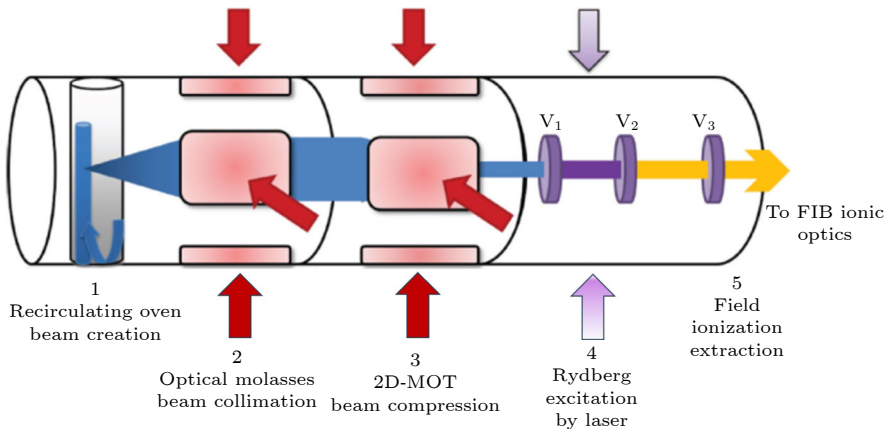


图 13 场电离里德伯态原子方案的 CABIS 装置结构示意图^[23], 利用 2D-MOT 技术对高通量原子束进行横向冷却和压缩, 离子或电子 (取决于电极的极性) 由场电离冷里德伯态原子产生, 之后束流在 FIB 系统中被加速和聚焦

Fig. 13. Sketch of the ultracold electron-ion source producing from CABIS^[23], an intense effusive atomic beam is transversely cooled and compressed using laser-cooling techniques, electrons or ions (depending on electrode polarities) are produced by laser excitation to Rydberg states that are then field ionized, the beam is finally focused and accelerated in a FIB column.

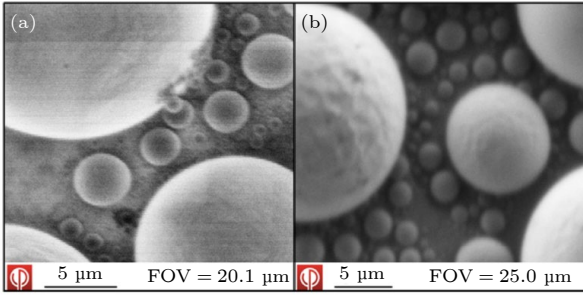


图 14 拍摄的碳衬底上锡球的图像比较 (a) 束流能量 5 keV, 束流电流 7 pA 的 Cs⁺-FIB; (b) 束流能量 5 keV, 束流电流 20 pA 的商业化产品 Ga-LMIS FIB^[50]

Fig. 14. Comparison between images acquired on a tin on carbon test sample: (a) Our system at 5 keV ion beam energy and 7 pA current; (b) a commercial Ga-LMIS FIB at 5 keV ion beam energy and current 20 pA^[50].

$10^7 \text{ A}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{Sr}^{-1}\cdot\text{eV}^{-1}$, 通量高达 $6.2\times 10^9/\text{s}$, 完全光电离产生的离子束流强将高达 1 nA, 亮度将比 LMIS 高 1 个量级. 2017 年 ten Haaf 等^[51,52] 利用激光诱导荧光技术对 2D-MOT 压缩和冷却后的 Rb 原子束进行测量, 结果发现, 等效换算为完全光电离产生的离子束, 最大流强为 $(0.6\pm 0.3) \text{ nA}$, 横

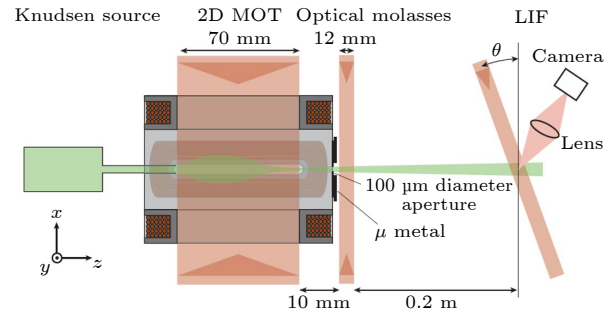


图 15 腔增强电离方案的 CABIS 装置结构示意图 (未按比例绘制)^[51]

Fig. 15. Schematic diagram of the experimental setup (not drawn to scale) of CABIS for the cavity enhanced photoionization^[51].

温度为 $(0.2\pm 0.1) \text{ mK}$, 由此计算出横向亮度为 $(1\pm 0.8) \times 10^6 \text{ A}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{Sr}^{-1}\cdot\text{eV}^{-1}$. 作者指出, 若在 2D-MOT 之后, 再引入二维光学黏团冷却 (如图 15 所示), 可进一步降低原子束流的横向温度, 相应的离子束亮度将增加至 $(6\pm 5) \times 10^6 \text{ A}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{Sr}^{-1}\cdot\text{eV}^{-1}$, 比 LMIS 的亮度高 6 倍, 比 MOTIS 的高 300 倍, 可以为 FIB 纳米加工提供极高亮度的离子束.

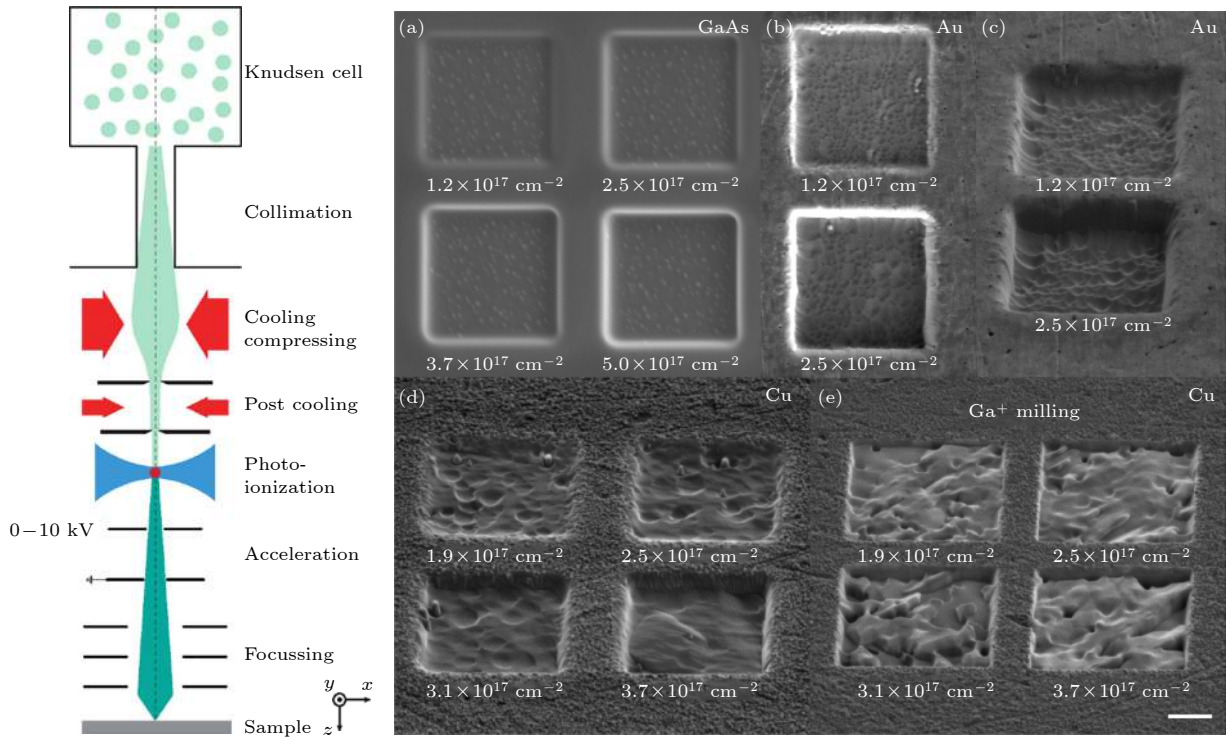


图 16 Rb-CABIS-FIB 装置示意图 (左), 不同剂量 Rb⁺和 Ga⁺刻蚀材料的 SEM 图像 (右图) (a) 8.5 keV 的 Rb⁺刻蚀后 GaAs 靶俯视图; (b) 多晶 Au 靶俯视图 (0°); (c) Au 靶侧视图 (52°); (d) 多晶 Cu 靶侧视图 (52°); (e) 30 keV 的 Ga⁺刻蚀后 Cu 靶侧视图 (52°)^[53], 标尺为 1 μm

Fig. 16. Schematic of corresponding Rb-CABIS-FIB (left), SEM images of Rb⁺ and Ga⁺ milling patterns on standard samples (right): (a) Top view (0°) of milling patterns on GaAs at 8.5 keV; (b) top view (0°) of milling patterns on polycrystalline Au; (c) tilt view (52°) of (b); (d) tilt view (52°) of milling patterns on polycrystalline Cu; (e) tilt view (52°) of 30 keV Ga⁺ milling patterns on polycrystalline Cu, ion dose is marked below each pattern^[53], scale bar is 1 μm.

2022年, Xu等^[53]研发了基于Rb原子束的Rb-CABIS-FIB样机. 图16(左)展示了实验装置示意图, Rb单质经克努森炉加热形成Rb原子束, 经准直后进入2D-MOT被冷却压缩, 横向温度降低至约200 μK , 在2D-MOT下游利用二维光学黏团可进一步降低原子束横向温度至40 μK 左右, 此时Rb原子束的亮度约为 $6 \times 10^6 \text{ A} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{Sr}^{-1} \cdot \text{eV}^{-1}$. 之后原子束通过小孔进入光学谐振腔内通过腔增强光电离方法产生离子, 离子束经加速后进入商业化FIB的离子光学系统. 实验测量表明, 在7 μm 的孔径和0.2 eV的能散条件下, FIB图像的分辨率约3 nm. 基于开发的Rb-CABIS-FIB系统, Xu等^[53]利用能量8.5 keV的离子束流对金属和半导体等几种典型样品进行蚀刻, 并与Ga-LMIS-FIB的蚀刻结果进行对比. 研究表明, 对大多数样品而言, Rb离子蚀刻的溅射速率都高于同能量, 甚至30 keV的Ga离子蚀刻. 图16(右)展示的是利用扫描电子显微镜(scanning electron microscope, SEM)拍摄的不同剂量条件下Rb离子和Ga离子对GaAs, Cu和Au等靶材的蚀刻结果. 可以看到, Rb离子刻蚀随着剂量的增大, GaAs靶材没有出现显著的变化, 而Cu和Au靶的表面趋于平整. Ga离子刻蚀随着剂量的增大, Cu靶表面出现大量的弹坑, 表面极不平整, 作者认为可能是沟道效应(channeling effect)^[54]造成的结果. 聚焦离子束诱导沉积(focused ion beam induced deposition, FIBID)技术^[55]作为一种高精度的微纳加工技术, 利用FIB与特定气体分子相互作用, 在基底表面

沉积形成纳米结构. 2023年, Li等^[56]利用Rb-CABIS-FIB样机开展了FIBID-Pt(铂金)的研究, 测量了Pt的沉积速率和电阻率. 之后, Xu等^[57]进一步研究了硅表面辐照损伤, 通过分析不同剂量 Rb^+ 束辐照后的硅样品, 观察到硅表面形成了双层损伤层, 包括氧化层和非晶硅层, 并测量了稳态损伤层的厚度为 $(23.2 \pm 0.3) \text{ nm}$. 这些研究结果不仅展示了CABIS技术在高精度加工方面的潜力, 也充分说明了CABIS正逐步走向商业化应用, 有望成为FIB技术革新的替代离子源, 将广泛应用于纳米器件制造和材料科学领域, 为纳米技术的发展提供新的工具和方法.

2.3.3 2D⁺-MOT慢原子束

2013年, Knuffman等^[26]提出并实现了一种新的光电离CABIS方案. 如图17(a)所示, 使用2D-MOT从真空背景中捕获弥散的Cs原子, 之后使用一束“pusher”激光束沿2D-MOT的轴向入射, 并在带有小孔的镜子处原路反射用来减速原子, 形成慢速原子束, 这种几何配置称为2D⁺-MOT^[58]. 其工作原理与LVIS(low velocity intense source)相似^[59], 出射的慢原子束通量可达 $5 \times 10^{10}/\text{s}$, 横向温度约为5 mK, 轴向速度取决于“pusher”激光加载的功率, 在6—14 m/s之间. 慢原子束进入下游磁光压缩器(magneto-optical compressor, MOC), 横向温度降低至100—150 μK . 之后, 继续利用二维光学黏团可进一步降低原子束的横向温度至30 μK . 与原子蒸气束相比, 低速原子束的优势在

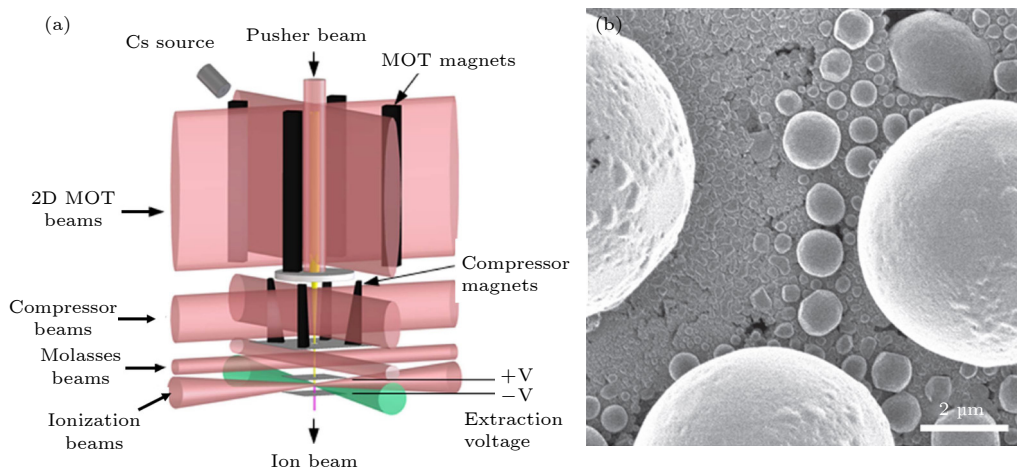


图17 (a)慢原子束CABIS装置结构示意图, 显示了离子束产生的4个阶段, 即带推杆束磁光压缩器的二维磁光阱、光学糖蜜和电离; (b)标准锡球二次电子图像, 获取自CABIS的聚焦10 keV, 1 pA Cs^+ 离子束^[60]

Fig. 17. (a) Schematic of the slow cold atomic beam ion source, showing the four stages of ion beam production: 2D magneto-optical trap with pusher beam magneto-optical compressor, optical molasses, and ionization; (b) secondary electron image of a standard tin ball resolution target acquired using a focused 10 keV, 1 pA Cs^+ ion beam from the CABIS^[60].

于增加了原子在电离区的停留时间,降低了对电离激光强度的要求.光电离则采用与 MOTIS 类似的双色双光子共振横向电离的模式,两束激光都横向入射,并成一定夹角聚焦在原子束上,焦斑交叉大小可以根据离子束流强度的需要进行调节.通过增大电离激光光斑就可以获得更高流强的离子束流.以牺牲束流的亮度为代价的前提下,作者观察到束流流强可以超过 5 nA. 基于上述的方案,2017 年,Steele 等^[60]成功实现了 Cs-CABIS-FIB,在 10 keV 的束流能量下,束斑尺寸低至 (2.1 ± 0.1) nm,归一化的束流亮度高达 $(2.4 \pm 0.1) \times 10^7$ A·m⁻²·Sr⁻¹·eV⁻¹. 图 17(b)给出了标准锡球二次电子图像,展现出非常清晰的成像对比度,证实了束流的高稳定性和高分辨能力,这也表明该装置在电路编辑和二次离子质谱等应用方面存在广泛的应用前景.2021 年,Steele 等^[60]对 Cs-CABIS-FIB 系统 (FIB: ZERO) 升级改造,结合二次离子质谱 (secondary ion mass spectroscopy, SIMS) 技术,开发了一种新型高分辨 FIB+SIMS 混合系统——SIMS:ZERO^[61]. 该系统不仅能够执行高分辨率 FIB 操作,还可以通过应用 SIMS 提供一个新材料分析信息通道.与现有的 FIB-SIMS 相比, SIMS:ZERO 系统具有以下优势: 1) 利用 Cs-CABIS 能够产生更多的二次离子,实现更高的灵敏度; 2) SIMS:ZERO 可以将超过 100 倍的电流引入特定点,大幅缩短分析时间,从而能够以更高的分辨率分析更大的样本.

综上,场电离里德伯态原子、腔增强光电离和 2D⁺-MOT 慢原子束等方案有效解决了冷原子束电离效率低的难题,突破了 MOTIS 中束流传输极限,使得 CABIS 亮度达到前所未有的高度,最高亮度达 2.4×10^7 A·m⁻²·Sr⁻¹·eV⁻¹, 远超传统 LMIS 和 ICPS 的亮度,为获取更高亮度的离子源开辟了一条新路径,也为 FIB 技术的发展和突破奠定了基础.

3 超冷单离子源

单离子的制备、操控和检测是实验物理学中的关键技术之一.过去几十年的研究成果已经证明,单离子技术是实现纳米结构制造和掺杂等应用的关键工具,在物质相互作用研究和量子信息处理等方面具有重要的作用.冷原子离子源丰富了离子源的种类以及拓展了离子源可能的应用范畴,但是在

精确控制离子束中离子数目以及追踪单离子的时空轨迹方面仍然面临巨大挑战.若能够实现对离子束中每个离子的完全控制,将对量子信息科学和纳米材料科学的发展产生重要影响.本节将简要概述基于离子阱技术和符合测量技术的超冷单离子源的研究进展.

3.1 离子阱-超冷单离子源

所谓的离子阱,即利用电场或者磁场(或者两者组合)将离子囚禁在有限空间内的装置,在精密测量和量子信息处理等基础物理研究中有广泛的应用.离子阱的核心优势在于其能够长时间保持单离子的稳定状态,从而允许进行高精度的实验操作.根据所加操控场的不同,常见的离子阱主要分为 Penning 阱^[62]和 Paul 阱^[63],都以其发明者的名字命名.1989 年,Hans Dehmelt 和 Walter Paul 因在离子捕获和囚禁技术方面的开创性工作而共同获得了诺贝尔物理学奖.离子阱技术的发展极大地提高了基本物理常数的测量精度,也为实现基于离子阱的量子计算机提供了技术基础.

2009 年,Schnitzler 等^[27]利用激光冷却分段式线性离子阱(“刀片阱”)中的 Ca⁺,观测到线型 Ca⁺库仑晶体,阱中离子的温度低至 2 mK.通过调节离子阱的囚禁参数,可以按照需求确定性地提取任意数量的离子,实现了确定性超冷离子源制备.基于飞行时间质谱分析,测得离子的平均速度为 19.47 km/s,纵向速度的不确定性为 6.3 m/s,离子束束斑半径 83 μm,发散角为 600 μrad.利用蒙特卡罗 (Monte-Carlo) 数值模拟预测,如果将离子进一步冷却到运动基态(海森伯极限-Heisenberg limit),结合静电透镜,能够实现纳米级空间分辨的离子束,甚至可以提供完美的单离子物质波源.之后,Fickler 等^[64,65]利用粒子追踪模拟,设计并优化了静电透镜的几何结构,将单个 Ca⁺聚焦到半径约 4.3 μm 的束斑.为了将离子束的发散角降至最低,作者利用自主开发的程序,调控离子阱的加载电压,实现了离子阱中单离子装载,效率高达 96.7%.

基于上述的工作基础, Jacob 等^[66]进一步实现了一种基于确定性探测的新型单离子显微镜.如图 18(a) 所示,整个系统主要包括 5 部分:离子阱提供随机(或确定)数量的 Ca⁺,电子倍增探测器 (EMCCD) 采集离子荧光统计离子数量,二维偏转电极准直和扫描离子束,单透镜聚焦离子束,探测

器收集并记录图像信息. 利用三维平移台扫描物体在焦平面上的位置, 通过记录一定数量的透射事件生成图像. 实验测得离子束最小束斑半径约 5.8 nm, 辐照的两样本在 9 h 内偏差约 1.5 nm, 证明系统的长期工作稳定性. 为了验证单离子显微镜的高分辨能力, 作者通过扫描金刚石制作的波导腔展示了透射成像过程结果对比. 图 18(b) 展示了波导腔 SEM 图像, 图中孔的直径约为 150 nm, 图 18(c) 为单离子显微镜图像. 实验中通过控制离子束的位置和扫描速度, 获取波导腔内部结构信息, 每个像素的分辨率为 $25\text{ nm} \times 25\text{ nm}$, 图中的每个像素点都使用单离子进行探测. 图 18(d) 为使用泊松分布的离子源成像结果. 与前者相比, 利用确定性单离子源进行成像可以显著提高图像的信噪比和对对比度, 进而提高成像质量和可靠性. 这是由于确定性离子源能够精确地控制每个像素点的离子数量, 避免了泊松分布离子源中离子数量的随机波动, 从而减少了噪声和误差. 这一结果表明确定性单离子源成像技术在高精度和高可靠性的应用中具有显著优势.

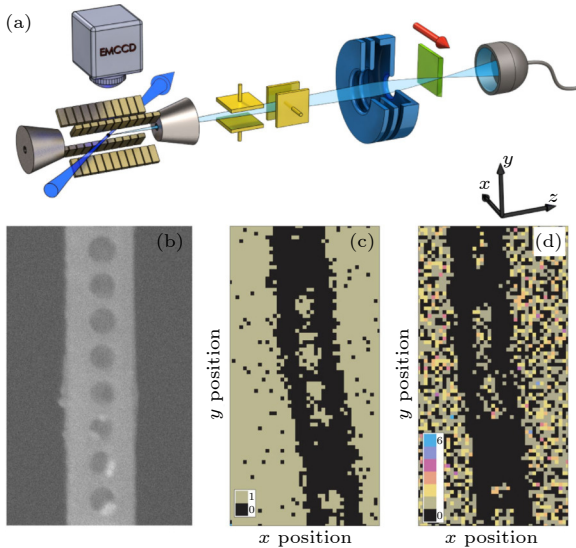


图 18 (a) 单离子显微镜示意图; (b) 波导腔结构的 SEM 图像, 孔直径约为 150 nm; (c) 单离子源成像结果, 分辨率为每像素 ($25\text{ nm} \times 25\text{ nm}$), 图中的全部信息基于 4141 个提取的离子中的 2659 个; (d) 泊松分布的离子源成像结果^[66]

Fig. 18. (a) Sketch of the single ion microscope; (b) SEM image of the waveguide-cavity structure, holes have a diameter of about 150 nm; (c) scan of the cavity structure using one ion at each lateral position, with a resolution of ($25\text{ nm} \times 25\text{ nm}$) per pixel, the entire information in the picture is based on 2659 transmission events out of 4141 extracted ions; (d) imaging a source with emulated Poissonian behavior^[66].

固态基底中单离子掺杂以及相关色心的制备在量子计算和通信领域具有重要的研究意义. 2019 年 Groot-Berning 等^[67] 基于相似的实验装置 (如图 19(a) 所示), 使用单个稀土金属镨离子 (Pr^+) 展示了在钇铝石榴石 (YAG) 基底中制备镨色心阵列的方法. 实验中利用 532 nm 的脉冲激光烧蚀 Pr 靶产生 Pr^+ , 经 Wien filter 筛选后进入分段线性 Ca^+ 离子阱, 基于协同冷却机制实现 Pr^+ 的冷却和结晶. 图 19(b) 展示了 Ca^+ 和 Pr^+ 库仑晶体的荧光图像, 由此可确定被囚禁的离子数目. A 表示纯 Ca^+ 库仑晶体, B 表示额外含有 Pr^+ 的库仑晶体. 两个 Ca^+ 晶体之间距离增加, 表明捕获了一个单独的 Pr^+ . 图 19(c) 展示了 Ca^+ 和 Pr^+ 束斑半径测量的直方图, 两者的束腰半径分别约为 11 nm 和 30 nm. 单个 Pr^+ 被引出后, 加速至 5.9 keV 注入 YAG 晶体, 制备的样品在大气环境下通过合适的退火和激活过程达到所需的 Pr^{3+} 电荷态. 通过共焦显微镜对植入位点进行表征, 结果显示在 YAG 中 Pr^{3+} 离子的产率高达 50%, 实现了晶体中单个稀土离子的确定性掺杂. 这种单离子注入技术可应用于不同能量、多种种类、不同电荷态的掺杂离子和不同的基底材料, 为制造量子设备提供了新的选择. 2021 年 Groot-Berning 等^[68] 进一步成功产生了单个氮分子离子 (N_2^+), 通过单离子注入, 在钻石衬底中制备了氮空位 (NV) 中心. 利用共焦显微镜对钻石样品进行横向 x - y 扫描成像, 图 19(d) 展示了 6 个来自 NV 中心荧光的高计数率亮点.

3.2 符合测量-超冷单离子源

离子阱通过对离子的捕获和囚禁, 可以实现对离子数量的精确控制, 因此可以产生具有高保真度的单离子束. 然而, 这类离子源能够提供的束流流强非常有限. 相比之下, 新型的冷原子离子源 MOTIS 和 CABIS 可以提供高流强和高亮度离子束, 但是并不具备确定性 (数量-位置) 的特性. 针对这一现状, 2017 年, Sahin 等^[28] 和 McCulloch 等^[69] 基于 MOT 装置提出利用电子-离子符合测量技术实现确定性单离子源. 符合测量技术是指一种在特定时间窗口内检测和记录两个或多个事件同时发生的方法, 广泛应用于原子物理和粒子物理等领域. 例如, 冷靶反应显微成像谱仪 (COLTRMIS)^[70] 和磁光阱显微成像谱仪 (MOTRMIS)^[71] 装置利用该技术可提供原子-离子碰撞反应的反应中间体、产物以及运动学等信息.

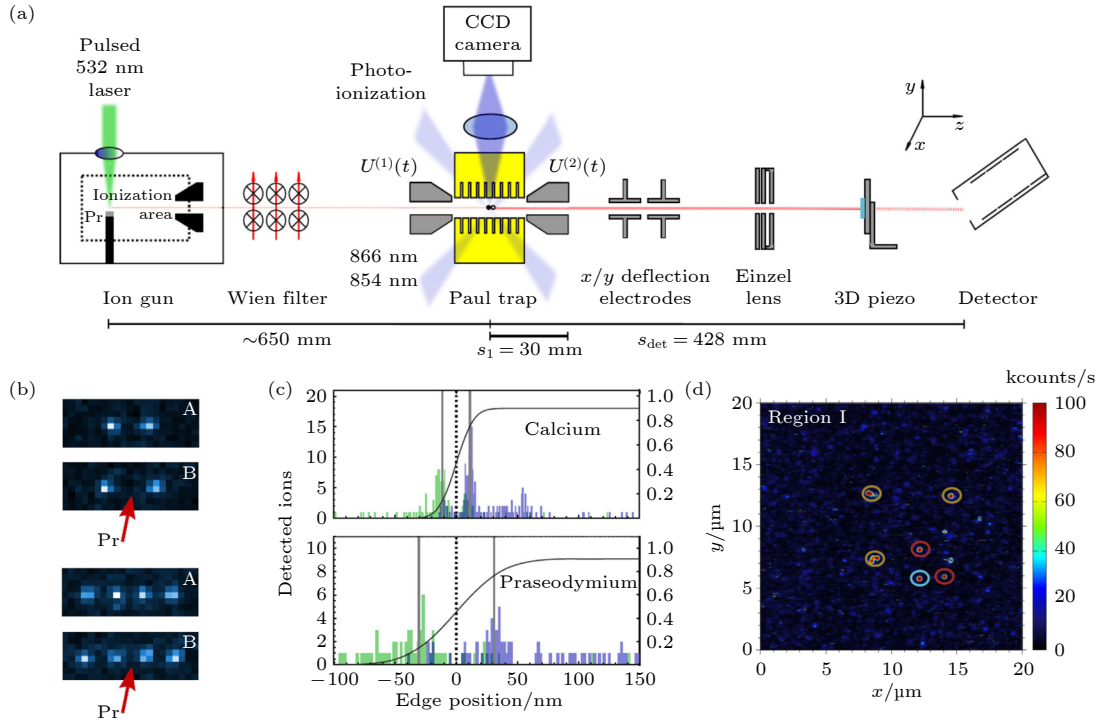


图 19 (a) 单离子注入装置的示意图; (b) 离子荧光的成像; (c) Ca^+ 和 Pr^+ 离子束斑测量的直方图^[67]; (d) 植入区域的共聚焦显微镜图像^[68]

Fig. 19. (a) Sketch of the single-ion implantation setup; (b) fluorescence of ions imaged; (c) histograms of the profiling edge measurement for Ca^+ and Pr^+ ions^[67]; (d) confocal images of the implanted regions^[68].

通过利用电子-离子符合测量技术, Sahin 等^[28]和 McCulloch 等^[69]率先实现了电子-离子的时间相关性测量. 如图 20 所示, 原子发生光电离后, 产生电子-离子对, 产物在引出电场作用下分别飞向对应的 CEM 探测器, 从而提供各自的飞行时间信息. 这一方案的创新之处在于利用了冷原子电离过程中产生的电子来预告相应离子的产生. 利用电子

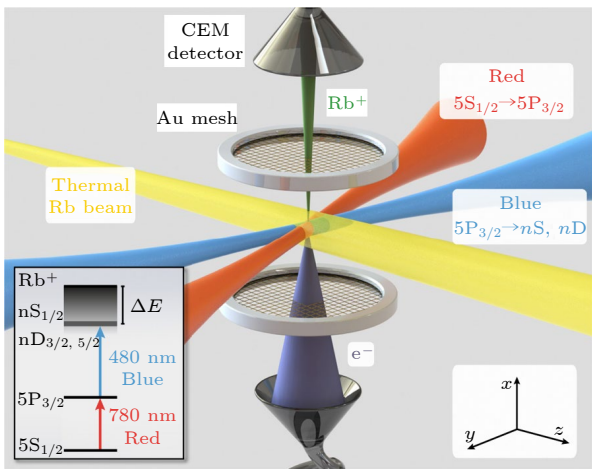


图 20 电子-离子符合装置示意图^[69]

Fig. 20. Schematic of the electron-ion coincidence apparatus^[69].

的飞行时间信息来调控飞行过程中离子的轨迹, 实现对单离子源的高保真度控制. 研究表明该离子源离子产生速率高达 $4 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$, 在单离子操作模式下保真度达到 98%^[28].

2019 年, Lopez 等^[72,73]将电子-离子时间的相关拓展到位置和动量相关. 图 21(a) 为实验装置和流程示意图, 光电离原子产生的电子-离子对被电场引出并加速后被相应的探测器分别收集. 为了揭示电子-离子的相关性并依此来推断离子的位置, 实验中需要确定两种粒子的位置和飞行时间. 因此电子的探测器由一组成像质量的微通道板 (MCPs) 和一个延迟线探测器 (DLD) 组成. 离子探测器由一组成像质量的 MCPs、一个荧光屏和一个 CMOS 相机组成. 反馈系统从延迟线探测器 (DLD) 获取电子的 x 和 y 坐标, 并通过处理这些坐标向 4 个偏转板加载适当的电压将离子传送到期望的位置, 而不受初始位置和光电子反冲动量的限制. 该方案不仅增加了离子传送的确定性, 还增加了对其轨迹的精确调控. 由于对每个离子的轨迹进行逐一校正, 最终可实现的束斑尺寸显著减小, 这一等效的聚焦性能优于传统静电透镜. 如图 21(b) 所示, 对初始尺寸在毫米级的离子束进行轨迹校正, 发现束斑面

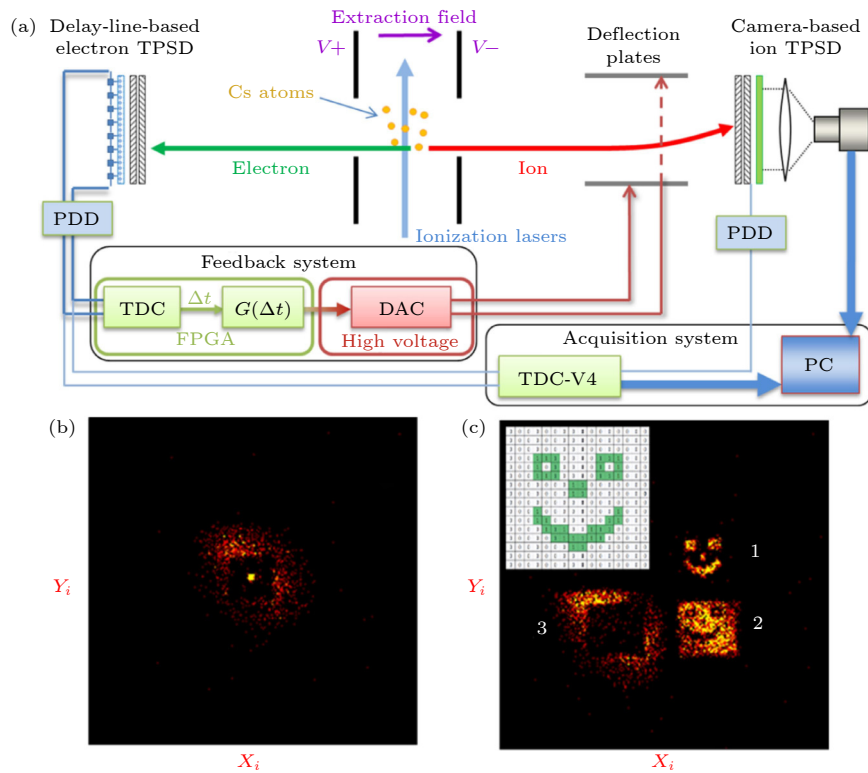


图 21 (a) 实验装置及流程示意图; (b) 选定区域离子轨迹二维校正; (c) 在 FPGA 中实现的虚拟掩模的应用^[72]
 Fig. 21. (a) Sketch of experiment set and procedure; (b) 2D correction on a selected zone for the ion trajectory; (c) application of a virtual mask implemented in the FPGA^[72].

积减小了 3 个数量级. 这种轨迹校正也可以推广到控制所有束流参数, 包括位置、动量和能量等, 可以显著增大离子束的相空间密度、亮度和发射度, 从而提升离子束的整体性能. 为了证实反馈系统的通用性, 作者在 FPGA 中植入 16×16 的虚拟掩模阵列, 如图 21(c) 左上角所示. 与绿色 (白色) 像素对应的选定离子被放置在探测器目标的 1 号位置 (2 号位置) 上, 未选定的离子被推到 3 号位置. 显然, 如果将选定离子的校正与虚拟掩模结合起来, 可以实现将单个离子精确传送到任何预期的位置, 并在探测器上形成所需的图案. 这种离子轨迹的校正和反馈技术, 为离子束像差校正、高分辨率成像和精确植入等应用提供了全新的解决方案.

4 总结与展望

纳米离子束技术是一种先进的加工和分析手段, 利用微纳米尺度的荷能离子束与物质相互作用, 在纳米尺度上研究物质的结构、组成和特性. 超冷离子源是纳米离子束装置的核心组成部件之一, 离子源的束斑尺寸、亮度、能散和发射度等品

质参数直接决定了纳米离子束的工艺水平和应用场景. 本文介绍了面向纳米离子束技术的 3 种新型超冷离子源: 磁光阱离子源 MOTIS、冷原子束离子源 CABIS 和确定性超冷单离子源, 并详细概述了这 3 种离子源的研究进展、性能独特性和典型应用.

这些新型超冷离子源虽然处于发展阶段, 但仍然取得了一系列突破性成果. 例如: 就亮度而言, Li-MOTIS 和 Cs-CABIS 的亮度分别达到了 $1.2 \times 10^5 \text{ A} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{Sr}^{-1} \cdot \text{eV}^{-1}$ 和 $2.4 \times 10^7 \text{ A} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{Sr}^{-1} \cdot \text{eV}^{-1}$, 已经接近甚至超过了 LMIS 和 ICP 亮度; 发射度方面, Cr-MOTIS 的发射度为 $6 \times 10^{-10} \text{ m} \cdot \text{rad} \cdot \text{eV}^{1/2}$, 可与 GFIS 发射度相媲美; 能散和束斑方面, Rb-MOTIS 的能散低至 0.02 eV, Cs-CABIS 的束斑低至 2 nm, 相比传统离子源表现出绝对的优势; 应用方面, 确定性单离子源具有极高的控制精度 (数十 nm) 和灵活性, 单离子注入技术在制备色心和氮空位中心等与量子计算和量子信息相关研究中展现出巨大的应用潜力.

目前, Fang 等^[74,75] 基于 Rb-MOT 的超冷离子成像实验平台开展了冷离子速度成像聚焦以及低密度离子束空间电荷效应的研究, 后期将与 FIB

装置结合研发 Rb-MOTIS-FIB 样机, 同时将结合符合测量技术研发确定性超冷单离子源, 为纳米离子束制备和应用提供硬件准备。

未来, 为满足纳米离子束在多样化应用场景中的特定需求, 对超冷离子源的要求也更加苛刻, 例如: 离子种类更多、亮度更高、发射度更小和能散更低。目前, 有多种技术正在开发中, 例如: 空间结构光场电离^[76] 和里德伯阻塞机制^[77] 等方法, 可以有效抑制无序诱导加热过程引起的离子升温, 有望大幅提升冷原子离子源的束流的品质; 此外, 引入高重频激光可以提高单离子引出的重复频率, 有望获得高流强的确定性单离子源。随着这些技术的不断成熟和应用, 我们可以期待在未来的科学研究和工业制造中, 超冷离子源将发挥更加重要的作用。

参考文献

- [1] Hoeflich K, Hobler G, Allen F I, Wirtz T, Rius G, McElwee-White L, Krasheninnikov A V, Schmidt M, Utke I, Klingner N, Osenberg M, Cordoba R, Djurabekova F, Manke I, Moll P, Manoccio M, De Teresa J M, Bischoff L, Michler J, De Castro O, Delobbe A, Dunne P, Dobrovolskiy O V, Frese N, Goelzhaeuser A, Mazarov P, Koelle D, Moeller W, Perez-Murano F, Philipp P, Vollnhals F, Hlawacek G 2023 *Appl. Phys. Rev.* **10** 041311
- [2] Manoccio M, Esposito M, Passaseo A, Cuscuna M, Tasco V 2021 *Micromachines* **12** 6
- [3] Sloyan K, Melkonyan H, Apostoleris H, Dahlem M S, Chiesa M, Al Ghaferi A 2021 *Nanotechnology* **32** 472004
- [4] Li P, Chen S Y, Dai H F, Yang Z M, Chen Z Q, Wang Y S, Chen Y Q, Peng W Q, Shan W B, Duan H G 2021 *Nanoscale* **13** 1529
- [5] Lesik M, Spinicelli P, Pezzagna S, Happel P, Jacques V, Salord O, Rasser B, Delobbe A, Sudraud P, Tallaire A, Meijer J, Roch J-F 2013 *Physica Status Solidi a-Applications and Materials Science* **210** 2055
- [6] Bradac C, Gao W, Forneris J, Trusheim M E, Aharonovich I 2019 *Nat. Commun.* **10** 5625
- [7] Haruyama M, Onoda S, Higuchi T, Kada W, Chiba A, Hirano Y, Teraji T, Igarashi R, Kawai S, Kawarada H, Ishii Y, Fukuda R, Tani T, Isoya J, Ohshima T, Hanaizumi O 2019 *Nat. Commun.* **10** 2664
- [8] Swanson L W, Schwind G A 1978 *J. Appl. Phys.* **49** 5655
- [9] Bischoff L, Mazarov P, Bruchhaus L, Gierak J 2016 *Appl. Phys. Rev.* **3** 021101
- [10] He S X, Tian R, Wu W, Li W D, Wang D P 2021 *IJEM* **3** 012001
- [11] Ward B W, Notte J A, Economou N P 2006 *J. Vac. Sci. Technol. B* **24** 2871
- [12] Rahman F H M, McVey S, Farkas L, Notte J A, Tan S, Livengood R H 2012 *Scanning* **34** 129
- [13] Smith N S, Notte J A, Steele A V 2014 *Mrs Bull.* **39** 329
- [14] Prodan J V, Phillips W D, Metcalf H 1982 *Phys. Rev. Lett.* **49** 1149
- [15] Chu S, Hollberg L, Bjorkholm J E, Cable A, Ashkin A 1985 *Phys. Rev. Lett.* **55** 48
- [16] Softley T P 2023 *P. Roy. Soc. A-Math. Phys.* **479** 20220806
- [17] McClelland J J, Steele A V, Knuffman B, Twedt K A, Schwarzkopf A, Wilson T M 2016 *Appl. Phys. Rev.* **3** 011302
- [18] Freinkman B G, Eletsii A V, Zaitsev S I 2003 *Jetp Lett.* **78** 255
- [19] van der Geer S B, Reijnders M P, de Loos M J, Vredendregt E J D, Mutsaers P H A, Luiten O J 2007 *J. Appl. Phys.* **102** 094312
- [20] Claessens B J, Reijnders M P, Taban G, Luiten O J, Vredendregt E J D 2007 *Phys. Plasmas* **14** 093101
- [21] Hanssen J L, Hill S B, Orloff J, McClelland J J 2008 *Nano Lett.* **8** 2844
- [22] Murphy D, Speirs R W, Sheludko D V, Putkunz C T, McCulloch A J, Sparkes B M, Scholten R E 2014 *Nat. Commun.* **5** 4489
- [23] Kime L, Fioretti A, Bruneau Y, Porfido N, Fuso F, Viteau M, Khalili G, Santic N, Gloter A, Rasser B, Sudraud P, Pillet P, Comparat D 2013 *Phys. Rev. A* **88** 33424
- [24] Wouters S H W, ten Haaf G, Notermans R P M J W, Debernardi N, Mutsaers P H A, Luiten O J, Vredendregt E J D 2014 *Phys. Rev. A* **90** 063817
- [25] ten Haaf G, Wouters S H W, van der Geer S B, Vredendregt E J D, Mutsaers P H A 2014 *J. Appl. Phys.* **116** 244301
- [26] Knuffman B, Steele A V, McClelland J J 2013 *J. Appl. Phys.* **114** 044303
- [27] Schnitzler W, Linke N M, Fickler R, Meijer J, Schmidt-Kaler F, Singer K 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 070501
- [28] Sahin C, Geppert P, Muellers A, Ott H 2017 *New J. Phys.* **19** 123005
- [29] Hansch T W, Schawlow A L 1975 *Opt. Commun.* **13** 68
- [30] Phillips W D 1998 *Rev. Mod. Phys.* **70** 721
- [31] Chu S 1998 *Rev. Mod. Phys.* **70** 685
- [32] Cohen-Tannoudji C N 1998 *Rev. Mod. Phys.* **70** 707
- [33] Wang Y Q 2007 *Laser Cooled and Trapped Atoms* (Beijing: Peking University Press) (in Chinese) [王义遒 2007 原子的激光冷却与陷阱 (北京: 北京大学出版社)]
- [34] Lett P D, Watts R N, Westbrook C I, Phillips W D, Gould P L, Metcalf H J 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 169
- [35] Reijnders M P, van Kruisbergen P A, Taban G, van der Geer S B, Mutsaers P H A, Vredendregt E J D, Luiten O J 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 034802
- [36] Reijnders M P, Debernardi N, van der Geer S B, Mutsaers P H A, Vredendregt E J D, Luiten O J 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 034802
- [37] Reijnders M P, Debernardi N, van der Geer S B, Mutsaers P H A, Vredendregt E J D, Luiten O J 2011 *J. Appl. Phys.* **109** 033302
- [38] Debernardi N, Reijnders M P, Engelen W J, Clevis T T J, Mutsaers P H A, Luiten O J, Vredendregt E J D 2011 *J. Appl. Phys.* **110** 024501
- [39] Thompson D J, Murphy D, Speirs R W, van Bijnen R M W, McCulloch A J, Scholten R E, Sparkes B M 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 193202
- [40] Murphy D, Scholten R E, Sparkes B M 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 214802
- [41] Duspayev A, Raithe G 2023 *Phys. Rev. Appl.* **19** 044051
- [42] Hill S B, McClelland J J 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 3128
- [43] Steele A V, Knuffman B, McClelland J J, Orloff J 2010 *J. Vac. Sci. Technol.* **28** C6F1
- [44] Steele A V, Knuffman B, McClelland J J 2011 *J. Appl. Phys.* **109** 104308
- [45] Knuffman B, Steele A V, Orloff J, McClelland J J 2011 *New*

- J. Phys.* **13** 103035
- [46] Twedt K A, Chen L, McClelland J J 2014 *Ultramicroscopy* **142** 24
- [47] Gardner J R, McGehee W R, McClelland J J 2019 *J. Appl. Phys.* **125** 074904
- [48] Gardner J R, McGehee W R, Stiles M D, McClelland J J 2020 *J. Vac. Sci. Technol.* **38** 052803
- [49] Bömmels J, Leber E, Gopalan A, Weber J M, Barsotti S, Ruf M W, Hotop H 2001 *Rev. Sci. Instrum.* **72** 4098
- [50] Viteau M, Reveillard M, Kime L, Rasser B, Sudraud P, Bruneau Y, Khalili G, Pillet P, Comparat D, Guerri I, Fioretti A, Ciampini D, Allegrini M, Fuso F 2016 *Ultramicroscopy* **164** 70
- [51] ten Haaf G, de Raadt T C H, Offermans G P, van Rens J F M, Mutsaers P H A, Vredenburg E J D, Wouters S H W 2017 *Phys. Rev. Appl.* **7** 054013
- [52] ten Haaf G, Wouters S H W, Mutsaers P H A, Vredenburg E J D 2017 *Phys. Rev. A* **96** 053412
- [53] Xu S, Li Y, Vredenburg E J D 2022 *J. Vac. Sci. Technol.* **40** 042801
- [54] Kempshall B W, Schwarz S M, Prenitzer B I, Giannuzzi L A, Irwin R B, Stevie F A 2001 *J. Vac. Sci. Technol.* **19** 749
- [55] Utke I, Michler J, Winkler R, Plank H 2020 *Micromachines* **11** 397
- [56] Li Y, Xu S, Sezen M, Misirlioglu F B, Vredenburg E J D 2023 *J. Vac. Sci. Technol.* **41** 042803
- [57] Xu S, Li Y, Verheijen M A, Kieft E R, Vredenburg E J D 2023 *J. Vac. Sci. Technol. B* **41** 042804
- [58] Dieckmann K, Spreuw R J C, Weidemüller M, Walraven J T M 1998 *Phys. Rev. A* **58** 3891
- [59] Lu Z T, Corwin K L, Renn M J, Anderson M H, Cornell E A, Wieman C E 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3331
- [60] Steele A V, Schwarzkopf A, McClelland J J, Knuffman B 2017 *Nano Futures* **1** 015005
- [61] Steele A, Schwarzkopf A, Knuffman B 2021 *Microsc. Microanal.* **27** 24
- [62] Brown L S, Gabrielse G 1986 *Rev. Mod. Phys.* **58** 233
- [63] Raizen M G, Gilligan J M, Bergquist J C, Itano W M, Wineland D J 1992 *J. Mod. Optic.* **39** 233
- [64] Fickler R, Schnitzler W, Linke N M, Schmidt-Kaler F, Singer K 2009 *J. Mod. Optic.* **56** 2061
- [65] Schnitzler W, Jacob G, Fickler R, Schmidt-Kaler F, Singer K 2010 *New J. Phys.* **12** 065023
- [66] Jacob G, Groot-Berning K, Wolf S, Uhm S, Couturier L, Dawkins S T, Poschinger U G, Schmidt-Kaler F, Singer K 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 043001
- [67] Groot-Berning K, Kornher T, Jacob G, Stopp F, Dawkins S T, Kolesov R, Wrachtrup J, Singer K, Schmidt-Kaler F 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 106802
- [68] Groot-Berning K, Jacob G, Osterkamp C, Jelezko F, Schmidt-Kaler F 2021 *New J. Phys.* **23** 063067
- [69] McCulloch A J, Speirs R W, Wissenberg S H, Tielen R P M, Sparkes B M, Scholten R E 2018 *Phys. Rev. A* **97** 043423
- [70] Dörner R, Mergel V, Jagutzki O, Spielberger L, Ullrich J, Moshhammer R, Schmidt-Böcking H 2000 *Phys. Rep.* **330** 95
- [71] Depaola B D, Morgenstern R, Andersen N (Arimondo E, et al. ed) 2008 *Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics* (Vol. 55) pp139–189
- [72] Lopez C, Trimeche A, Comparat D, Picard Y J 2019 *Phys. Rev. Appl.* **11** 064049
- [73] Hahn R, Trimeche A, Lopez C, Comparat D, Picard Y J 2021 *Phys. Rev. A* **103** 042821
- [74] Fang F, Zhou W C, Li Y F, Qian D B, Luo C J, Zhao D M, Ma X W, Yang J 2021 *Rev. Sci. Instrum.* **92** 043103
- [75] Zhou W C, Fang F, Luo C J, Qian D B, Yang J, Lu L 2023 *J. Appl. Phys.* **133** 034901
- [76] van Bijnen R M W, Ravensbergen C, Bakker D J, Dijk G J, Kokkelmans S J J M F, Vredenburg E J D 2015 *New J. Phys.* **17** 023045
- [77] Beterov I I, Tretyakov D B, Entin V M, Yakshina E A, Ryabtsev I I, MacCormick C, Bergamini S 2011 *Phys. Rev. A* **84** 023413

INSTRUMENTATION AND MEASUREMENT

Research progress of ultracold ion source*

Zhou Wen-Chang¹⁾²⁾ Fang Feng¹⁾ Luo Chang-Jie¹⁾³⁾ Mou Hong-Jin¹⁾³⁾
 Lu Liang²⁾ Zou Li-Ping²⁾ Cheng Rui¹⁾³⁾
 Yang Jie^{1)3)4)5)†} Du Guang-Hua^{1)3)‡}

1) (*Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China*)

2) (*Sino-French Institute of Nuclear Engineering and Technology, Sun Yat-sen University, Zhuhai 519082, China*)

3) (*University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

4) (*Advanced Energy Science and Technology Guangdong Laboratory, Huizhou 516003, China*)

5) (*CAS Key Laboratory of High Precision Nuclear Spectroscopy, Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China*)

(Received 16 May 2024; revised manuscript received 8 July 2024)

Abstract

Nanobeam is an advanced technology for preparing charged ion beams with spot diameters on a nanometer scale, and mainly used for high-resolution and high-precision ion beam analysis, ion beam fabrication and ion beam material modification research. The nanobeam devices play an important role in realizing material analysis, micro/nano fabrication, microelectronic device manufacturing and quantum computing. The high-quality ion source is one of the key components of nanobeam device, the performance of which directly affects the resolution and precision of the nanobeam system. However, the traditional ion source used in this system is limited to available ionic species, large energy spread and complex structure. These issues hinder their ability to meet emerging application scenarios that require multi-ion types and high resolution. This emphasizes the importance of creating new ion sources as soon as possible.

With the development of laser cooling technology, ultracold ions with temperatures in the range of mK or even μK can be obtained based on photoionization of cold atoms and laser cooling of ions. The typical characteristics of low temperature and easy operation greatly promote the emergence of ultracold ion sources. The ultracold ions exhibit extremely small transverse velocity divergence, which can significantly enhance the brightness and emittance quality parameters of the ion source, bringing great opportunities for innovating nanobeam technology. Therefore, the research on ultracold ion sources is of great significance for achieving high-quality ion sources with higher brightness, smaller size, lower energy dispersion, more diverse ion species, and simplified structure. Here, we introduce the important achievements in basic research and application technology development of magneto-optical trap ion sources, cold atomic beam ion sources, and ultracold single ion sources from the aspects of preparation principles, generation methods, and typical applications, and review the recent research progress of ultracold ion sources. Finally, we provide an outlook on the future development and application prospects of ultracold ion sources.

Keywords: nanobeam, magneto-optical trap ion source, cold atom beam ion source, ultracold single ion source

PACS: 37.10.De, 32.80.-t, 37.10.Ty, 37.20.+j

DOI: [10.7498/aps.73.20240695](https://doi.org/10.7498/aps.73.20240695)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11975283), the National Basic Research Program of China (Grant No. 2022YFA1602500), and the Funds for International Cooperation and Exchange of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12120101005).

† Corresponding author. E-mail: jie.yang@impcas.ac.cn

‡ Corresponding author. E-mail: gh_du@impcas.ac.cn



超冷离子源研究进展

周文长 方锋 罗长杰 牟宏进 卢亮 邹丽平 程锐 杨杰 杜广华

Research progress of ultracold ion source

Zhou Wen-Chang Fang Feng Luo Chang-Jie Mou Hong-Jin Lu Liang Zou Li-Ping Cheng Rui
Yang Jie Du Guang-Hua

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 173701 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20240695

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240695>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于强流离子源的离子束溅射镀膜设备均匀性优化

Uniformity optimization of ion beam sputtering coating equipment based on strong current ion source

物理学报. 2024, 73(5): 058101 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231491>

微型电子回旋共振离子源的全局模型

Global model of miniature electron cyclotron resonance ion source

物理学报. 2022, 71(14): 145204 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212250>

2 cm电子回旋共振离子源猝灭现象模拟

Numerical study on abnormal flameout of 2-cm electron cyclotron resonance ion source

物理学报. 2022, 71(8): 085203 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212151>

2 cm电子回旋共振离子推力器离子源中磁场对等离子体特性与壁面电流影响的数值模拟

Numerical simulation of influence of magnetic field on plasma characteristics and surface current of ion source of 2-cm electron cyclotron resonance ion thruster

物理学报. 2021, 70(7): 075204 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201667>

面向复杂求解域的高效粒子网格/蒙特卡罗模型与阳极层离子源仿真

High-efficient particle-in-cell/Monte Carlo model for complex solution domain and simulation of anode layer ion source

物理学报. 2023, 72(8): 085202 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222394>

离子阱量子计算规模化的研究进展

Research progress of ion trap quantum computing

物理学报. 2023, 72(23): 230302 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20231128>