arXiv:2302.01610v1 [cond-mat.mtrl-sci] 3 Feb 2023

离子束轰击制备的基于锗的近超均匀纳米结构

Jean-Benoit Claude, [1] Mohammed Bouabdellaoui, [2] Jerome Wenger, [1]Monica Bollani, [3] Marco Salvalaglio, [4,5] 和 Marco Abbarchi[2,6]
[1]*Aix Marseille Univ, CNRS, Centrale Marseille, Institut Fresnel, 13013 Marseille, France*
[2]*Aix Marseille Univ, Université de Toulon, CNRS, IM2NP, Marseille, France*
[3]*Istituto di Fotonica e Nanotecnologie-Consiglio Nazionale delle Ricerche, Laboratory for Nanostructure Epitaxy and Spintronics on Silicon, Via Anzani 42, 22100 Como, Italy.*
[4]*Institute of Scientific Computing, TU Dresden, 01062 Dresden, Germany*
[5]*Dresden Center for Computational Materials Science (DCMS), TU Dresden, 01062 Dresden, Germany*
[6]*Solnil, 95 Rue de la République, Marseille 13002, France*（日期：2023年2月6日）

我们研究了利用 Ga^+ 离子束轰击沉积在 SiO_2 上的非晶锗薄层来制备纳米结构，并探究由此形成图案的结构与光学性质。通过调节束流和扫描参数，可形成不同类型的纳米结构，从细长的周期结构到占地尺寸仅数十纳米的无序结构。后者具有近乎超均匀特性：对小波矢处谱密度的分析表明，其大尺度涨落受到显著抑制，而这类涨落通常见于有序系统。根据闵可夫斯基泛函分析结果，这种结构也不同于传统的随机场。通过展示所得纳米结构薄膜特有的反射特性，本文验证了其潜在应用：与平坦锗层相比，该薄膜呈现着色效果，并增强了光吸收（在某些波长下最高可达一个数量级）。这种制备无序超均匀结构的方法不受束斑尺寸限制。离子束技术已广泛应用于半导体晶圆厂，适用于直径超过 200 mm 的晶圆。我们的工作为通过自组装获得占地尺寸仅数十纳米的无序近超均匀材料提供了一条可行途径，可用于电子和光子器件、能量存储及传感。

I. 引言

超均匀（HU）系统的特征是，由于存在一种在短长度尺度上并不明显的隐序，大波长密度涨落受到抑制 [1, 2]。具有长程平移有序和取向有序的系统，例如晶体结构和周期场，是超均匀结构的平凡情形。更有意思的是，无序系统也可能具有超均匀特征：在小波矢处，密度涨落部分或完全受到抑制（类似于晶体固体），且相对于空间方向表现出各向同性行为（如液体）。对于点图案，这些特征可由结构因子 $S(\mathbf{k})$ 描述，其中$\mathbf{k}$ 为波矢。理想的超均匀特征对应于满足标度关系 $S(\mathbf{k}) \sim |\mathbf{k}|^{\alpha}$ （当 $|\mathbf{k}| \to 0$ 时，且$\alpha > 0$）。已有研究提出了推广形式，以描述异质介质以及标量场和矢量场等系统中的此类性质 [2–4]。在实验中，超均匀特征的量化（即系统与理想超均匀情形的接近程度）通常通过指标 $H = S(|\mathbf{k}| \to 0)/\max(S(|\mathbf{k}|))$ 来考量，其中条件 $H \lesssim 10^{-2}$ 和 $H \lesssim 10^{-4}$ 通常分别表示近超均匀特征和有效超均匀特征 [5, 6]。

具有近似、有效或理想超均匀特征的材料和架构近年来备受关注。除了基础物理层面的意义之外 [2, 7], ，它们的重要性还在于为光 [8–14] 和载流子管理提供了新的可能性，并可利用拓扑保护的电子态 [15]，以及超导体中的涡旋 [16]。一个关键问题是找到合适的制备方法，以实现超均匀特征，例如具有足够小的尺度 H，并适用于目标应用所关注的波长。人们已制定出用于实现超均匀图案的设计方案 [11]。这些方案通常与自上而下的方法结合使用。尽管这类方法功能强大，例如 [17, 18], ，但通常难以规模化。这对于面向大面积应用、具有纳米级特征的图案至关重要，例如用于光子学应用的金属和纳米结构半导体薄膜。

因此，制定可扩展的方案来制备具有纳米结构的超均匀材料是一项重要目标。几十年来，人们一直采用自组装范式或自下而上/自上而下的混合方法，从薄膜状结构中制备纳米和微米结构 [19–21]。最近，基于类旋节线固态去润湿的自组装也已成功用于制备有效超均匀的硅锗纳米结构，其特征尺寸约为 100 nm [22]。这种方法可扩展至大面积表面 [23]。此外，人们还利用溶胶-凝胶材料（如二氧化硅和二氧化钛）的软纳米压印光刻技术，以去润湿形成的微米和纳米结构作为硬模板，制备了近乎超均匀的超表面 [24]。

晶态和非晶锗半导体薄膜中自组装的一个显著例子，是离子束的撞击；这一现象已从实验 [25–28] 和理论 [29–

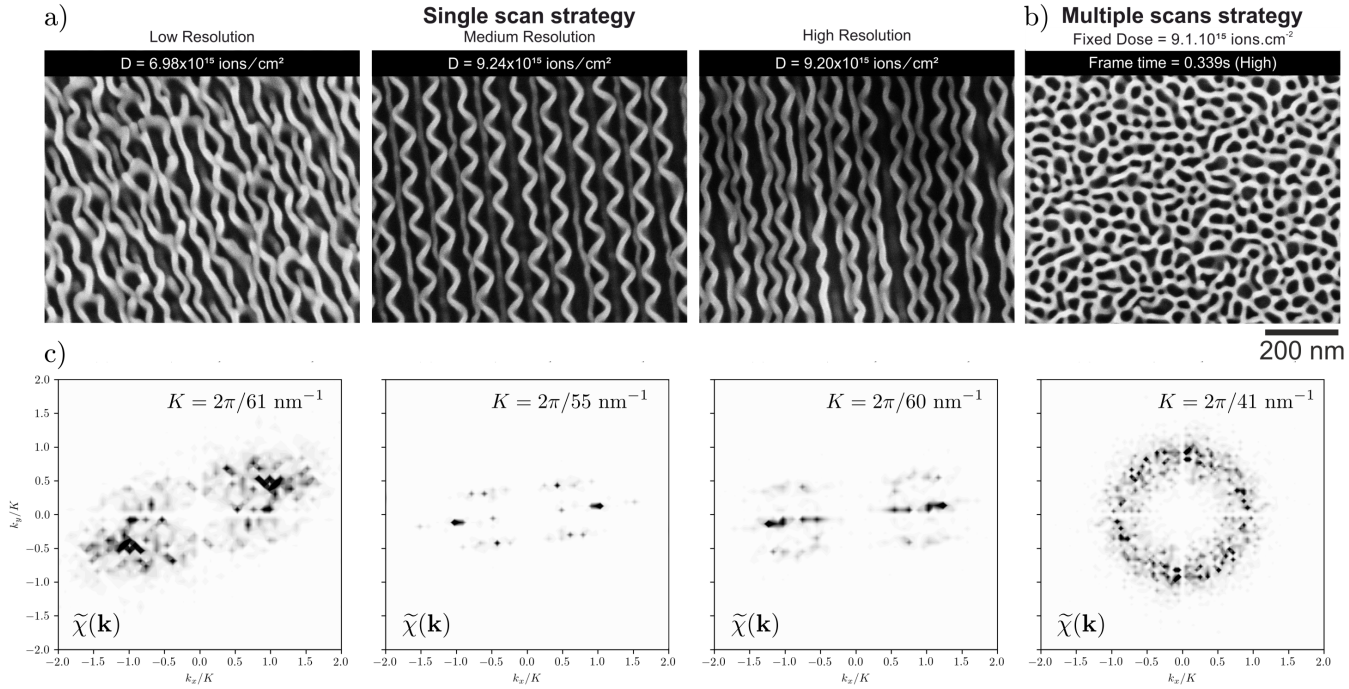


图 1. *Influence of FIB single scanning mode*。a) 采用单次扫描策略，通过聚焦离子束（FIB）处理的绝缘体上硅（SOI）衬底上锗层的高分辨率扫描电子显微镜（SEM）图像，分别采用低、中、高分辨率（分别为 256×221 512×442 1024×884 像素、像素和像素），离子束注量为 10^{15} ions cm^{-2} 范围。b) 采用多次扫描策略，通过 FIB 处理的 SOI 上锗层的 SEM 图像。在这种条件下，高分辨率和低分辨率呈现相同的最终形貌，并具有近超均匀特征。以上所有图案均在如下叠层上制备：该结构由 SOI 衬底上的顶部非晶锗层组成，衬底顶部覆盖一层 7 nm 厚的薄硅层，并以 2000 nm 厚的 SiO_2 作为埋氧层。（c）图（a）和（b）所示样品的谱密度 $\widetilde{\chi}$(k)。白到黑的色标在 0.75 max($\widetilde{\chi}$(k)) 处饱和。 K 对应于获得 max($\widetilde{\chi}$(k)) 时的波矢模长。

31]。利用这种方法形成周期性、有序的 [32, 33] 以及无序的纳米结构，迄今已得到广泛研究，因此我们将读者引向现有文献 [26, 29, 34, 35]。这种方法的关键特点在于其多功能性：通过改变离子束参数（例如离子种类、能量和剂量 [28, 36], 入射角 [37],样品温度 [25] 以及化学计量比 [38]），即可调控其特征；此外，它还能处理尺寸可达 200 mm 的晶圆。这些结构还可在表面以下延伸数十微米的深度，从而形成真正的三维多孔纳米结构，其平均空腔半径小至几十纳米 [38, 39]。

本文报道了高能 Ga^+ 离子束轰击锗层所获得的基于锗的纳米结构，并对由此形成的有序和无序纳米结构及其形貌特征进行了表征。在第二节中，我们展示了通过调节离子电流、施加剂量和扫描参数获得的强各向异性波状结构以及各向同性无序结构。随后，我们聚焦于各向同性无序图案——本研究的主要目标，并在第二节中讨论其特征。特别是，我们通过分析其谱密度评估了无序结构的近超均匀特征，该分析揭示了具有约 40 nm 创纪录尺度的基于锗的近超均匀纳米结构。通过闵可夫斯基泛函进行的分析进一步评估了其偏离（高斯）随机场的程度，并支持图案中存在关联。随后，在第四节中给出了潜在应用的概念验证，展示了所得纳米结构薄膜独特的反射特性。为便于阅读，正文仅报告主要证据和结果，其他补充材料则收录于补充信息中。结论总结于第五节。

II. 实验

实验在一层厚度为 50 nm 的非晶锗薄膜上进行，该薄膜沉积于绝缘体上硅（SOI）衬底上；衬底由厚度为 7 nm 的顶层硅和厚度为 2000 nm 的 SiO_2 层组成。经化学清洗（在 N_2 气氛中，用含 10% 氢氟酸溶液的 H_2O 清洗 5 秒）后，通过分子束外延沉积非晶锗（采用 Riber R32，在$\sim 10^{-10}$ 托超高真空、室温条件下进行，生长速率为10 °A/min）。

虽然在晶体块体锗上也能制备出非常相似的结构（补充信息图5），但我们选择在商用超薄绝缘体上硅上的超薄锗层中实现这些结构。这种衬底更适合电子与光子器件集成，因此比块体衬底更具吸引力。为求周全，我们还提及探索过其他几种实验条件，例如在 SOI 上沉积厚度为 80 nm 的非晶锗（补充信息图5），或采用定制的绝缘体上锗晶圆，其上覆盖 200 nm 非晶锗层和 300 nm SiO_2 层（未展示）。这些条件始终得到与本文所示相似的结果，说明这些结构也可在不同条件下制备。

本研究使用了配备 Ga^+ （原子质量为 31 amu）液态金属离子源聚焦离子束（FIB）和 SFEG 源进行扫描电子显微镜成像（SEM）的双束 FEI Strata DB235。离子电流设为 15 至 1000 pA，电压为 30 keV。样品与 Ga 离子束保持垂直。FIB 束沿水平方向移动，从视窗左上方开始逐行栅格扫描样品表面，直至右下方。

对于单次扫描（图1 a），离子束分辨率设为低（ 256 × 221 像素）、中（512 × 442像素）和高（ 1024 × 884）。在 50000× 倍放大倍率下（用于铣削过程），视场边长为 6080 nm。因此，低、中、高分辨率下每个像素之间的间距分别为 24、12 和 6 nm。离子电流固定为 30 pA，对应的束斑直径约为 15 nm。因此，只有低分辨率模式不会造成相邻扫描点之间的束斑重叠。如图1 a)所示，不同的分辨率会产生不同特征，从而影响最终形貌。

与强激光照射[40]和离子束轰击金属[41, 42],时的情况类似，预计有多种因素会促成有序与无序图案的形成，即离子诱导的非晶锗层熔化、曲率依赖溅射和/或膨胀 [43]。对于锗层，空位团簇化被认为在图案形成中发挥着重要作用 [27]。温度和表面质量再分布也预计会发挥作用，这一点得到了类似体系中的观察结果[32] 以及离子轰击图案形成理论 [29, 34, 35, 44]的支持。全面研究并调控所有这些因素超出了本文的范围；本文转而聚焦于能够产生有趣且可能具有重要意义特性的特定条件，以下将对此进行讨论。

III. 图案分析

如图1所示，图案的全局特征可通过考察其谱密度 $\tilde{\chi}(\mathbf{k})$ 来分析。它为点图案 的结构因子 $\tilde{\chi}(\mathbf{k})$ 所传达的信息提供了推广。

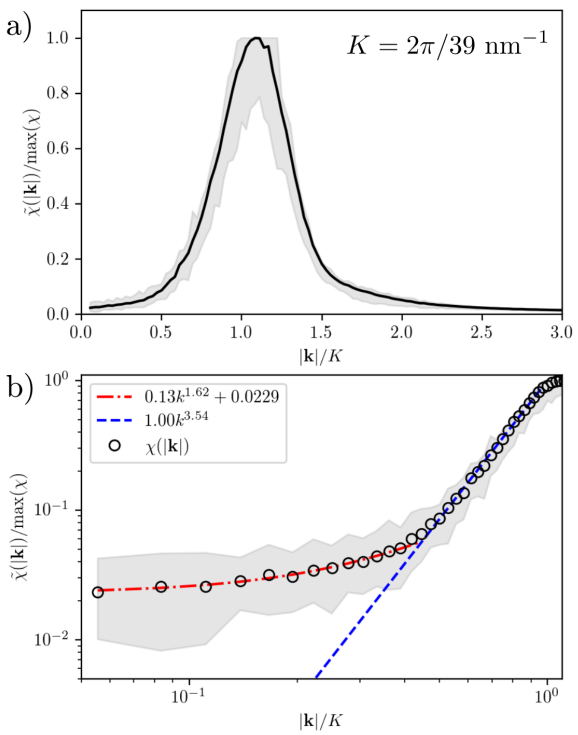


图 2 *Spectral density and assessment of the nearly-HU . . character* a）同一样品中不同位置的多孔非晶锗样品 50 幅图像的归一化谱密度径向分布平均值（见补充信息图8）。灰色阴影区域表示在全部50次图案重复测量中测得的谱密度变异性。b）对（a）图中曲线的双对数图，聚焦于区域 $|\mathbf{k}|/K \leq 1$，并显示了 $|\mathbf{k}| \to 0$的衰减。

针对这些结构采集的扫描电子显微镜图像（参见图1）能够清晰分辨固相区域与周围真空。因此，我们考虑二相（固相-真空）系统 [3] 的谱密度 $\tilde{\chi}(\mathbf{k})$。它基于一个示性函数:

$$\mathcal{I}^{(s)}(\mathbf{r}) = \begin{cases} 1, & \mathbf{r} \in \mathcal{V}_s, \\ 0, & \mathbf{r} \notin \mathcal{V}_s, \end{cases} \tag{1}$$

其中，$\mathbf{r} \in \Omega$ 为空间坐标，$\mathcal{V}_s$ 为灰度值高于给定阈值的区域。 $\tilde{\chi}(\mathbf{k})$ 随后对应于自协方差函数的傅里叶变换: [3, 45]

$$\chi(\mathbf{r}) = \mathcal{S}_2^{(s)}(\mathbf{r}) - (\phi^{(s)})^2, \tag{2}$$

with

$$\mathcal{S}_2^{(s)}(\mathbf{r}) = \langle \mathcal{I}^{(s)}(\mathbf{r}')\mathcal{I}^{(s)}(\mathbf{r}'+\mathbf{r}) \rangle, \tag{3}$$

两点自相关函数和 $\phi^{(s)} = \langle \mathcal{I}^{(s)}(\mathbf{r}') \rangle$ 固相的体积分数。

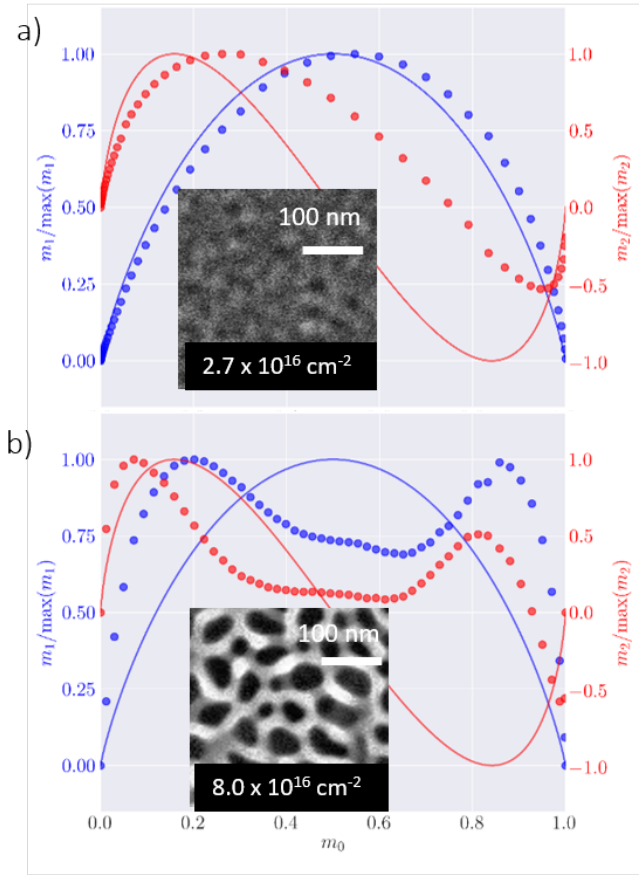


图3. *Disorder and correlations of spontaneous patterns*。a）闵可夫斯基泛函分析 $m_{1,\ 2}(m_0)$：对厚度为30 nm的锗层采用多次扫描，并以2.7×10^{15} 离子 cm^{-2} 的剂量进行处理。b）与a）相同，但剂量为8.02×10^{15} 离子 cm^{-2} 。连续曲线表示高斯随机场的 $m_{1,\ 2}(m_0)$ 趋势。插图展示了样品表面的细节扫描电子显微镜显微图。

谱密度可直接计算为： [45]

$$\widetilde{\chi}(\mathbf{k}) = \frac{1}{|\Omega|}|\mathcal{F}[\mathcal{I}^{(s)}(\mathbf{r}) - \phi_i]|^2 \qquad (4)$$

其中 $\mathcal{F}$ 为傅里叶变换， $|\Omega|$为图像面积。 $\widetilde{\chi}(\mathbf{k})$ 随$\mathbf{k} \to 0$ 的衰减传递的信息与 $S(|\mathbf{k}|)$ [2, 3][46] 类似。

图1 a)中获得的图案的谱密度显示在图1 c)的前三个面板中。这些结构呈现出具有明显周期性的各向异性排列。图中报告了特征频率 K（即观测到 $\widetilde{\chi}(\mathbf{k})$峰值的位置），它对应于特征长度尺度 $2\pi/K$。在低分辨率下，结构的无序程度较高；随着分辨率提高，无序程度随之降低。还发现，这些图案呈现出略有不同的主要取向 $>83°$：相对于扫描方向的倾斜角分别为中等分辨率下的 75°-83°和低分辨率下的 61°-70°。与（部分）有序结构的预期一致，相应的谱密度在小波矢处显示出排斥区。这项分析表明，根据离子的供给方式不同，可以获得具有可调无序度的不同各向异性结构。

通过采用总剂量为 9.1×10^{15} 离子 cm^{-2}的多次扫描策略，可获得与上文所示图案类似的行为：大波长处的关联受到抑制（小波矢处存在排斥区）（图1 b）。然而，这一次形成的最终结构具有角分布各向同性的谱密度 $\widetilde{\chi}(\mathbf{k})$（图1 c 最后一幅图），对应于对象的无序且均匀分布。探索三种不同的分辨率配置，得到的形貌始终相同，均呈现连通的无序结构，即使总剂量与单次扫描的剂量相当时也是如此（见补充信息图7）。

除了采用小光斑进行光栅扫描（如图1 b) 所示）外，也可以通过单个大光斑的离子撞击获得无序多孔非晶锗（见补充信息图1-4）。这表明，由于该制造过程不需要高横向分辨率，因此可以扩展到大得多的表面。尽管如此，在小而明确界定的区域内形成这些图案，仍可能使其集成到其他器件中。

现在，我们进一步评估均匀结构中的无序程度。我们对图1 b) 中均匀和无序图案的超均匀特征进行定量评估，并通过分析样品不同位置的50张独立图像来考察其可扩展性（拼图见补充信息图8）。图2报告了对所有分析图像求平均后的归一化径向分布 $\widetilde{\chi}(\mathbf{k})$。灰色区域表示不同图像结果的变异范围。图2a显示，在约0.16 nm^{-1} 处有一个显著峰值，对应的特征长度尺度为 ~ 39 nm（± 4 nm）。我们观察到， $\widetilde{\chi}(\mathbf{k})$逐渐衰减至零；对其采样一直延伸到分析窗口的边界，并且可用 $|\mathbf{k}|^{\alpha}$ 很好地拟合，其中 $\alpha \approx 3.5$接近 $|\mathbf{k}|/K = 1$ （见图2b中的双对数图）。

通过拟合对 $\widetilde{\chi}(0)$ 进行外推，可估算出平均 $\widetilde{\chi}(\mathbf{k})$ 的 H度量值为 $H \approx 2 \cdot 10^{-2}$，且该值处于所分析样本的范围 $H \in [8 \cdot 10^{-3} - 3 \cdot 10^{-2}]$ 之内。此值符合近超均匀特征 [5, 6]，与其他关联和超均匀特征自发显现的系统类似 [47, 48]。

除简单随机场之外，闵可夫斯基泛函分析还能进一步描述无序结构的特征及其拓扑特性 [22, 49, 50]。我们绘制闵可夫斯基泛函$m_i(\bar{\rho}) = (1/|\Omega|)M_i(\mathcal{B}_{\bar{\rho}})$，其中 $\bar{\rho}$ 给定的阈值用于定义阈值化灰度图像的二值图像 [22, 51]（图3）。 $m_0(\bar{\rho})$ 是 $|\Omega|$ 中非零区域所占的比例 $\mathcal{B}_{\bar{\rho}}$，而 $M_0(\mathcal{B}_{\bar{\rho}})$ 表示 $\mathcal{B}_{\bar{\rho}} = 1$ 的面积。 $m_1(\rho)$ 是 U 中 $\mathcal{B}_{\bar{\rho}} = 1$ 与 $\mathcal{B}_{\bar{\rho}} = 0$的区域之间边界长度的平均值，

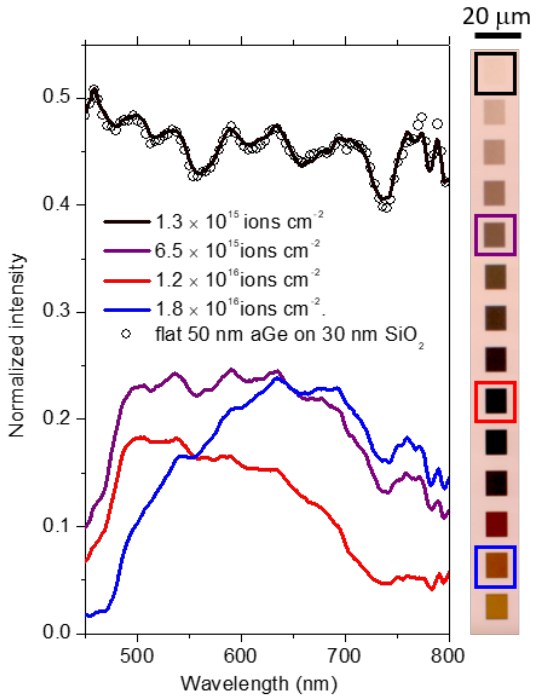


图 4. *Light reflection from porous a-Ge*。a）30 nm 厚 SiO_2 上 50 nm 非晶锗的反射率，以用于照明的白钨灯归一化。空心符号对应平坦非晶锗，连续线则表示采用多次扫描方法处理的区域。使用放大倍率为 $100\times$ 、数值孔径为 0.9 的物镜，在明场照明下采集光谱（收集角约为 ± 64 度，横向分辨率为 $\sim 6\ \mu$m。右侧插图：从上到下为受照射区域的明场图像，剂量从 0 到 2.3×10^{16} ions cm^{-2}，步进为 5×10^{15} ions cm^{-2}。高亮区域为光谱学测量所选区域。

$U = 2\pi M_1(\mathcal{B}_{\bar{\rho}})$。 $m_2(\rho)$ 是平均欧拉示性数 χ，而 $\chi = \pi M_2(\mathcal{B}_{\bar{\rho}})$。采用这种方法，结果不受图像饱和度和对比度的影响 [22, 51]。

$m_{1,\ 2}(m_0)$评估其相对于随机场的偏离程度（图2 a) 和 b) 中的实线）以及潜在图案形成动力学的非线性[29, 52] [51]。对于经 8.0×10^{15} 离子 cm^{-2} 辐照的多孔锗，我们观察到其显著偏离高斯随机场的情况，分别见 $m_1(m_0)$和 $m_2(m_0)$（图2 b)），且偏离程度随剂量增加而增大。其他聚焦离子束设置（例如较低的束能量），如 T. Bottger 等人[28] 所述，会形成与高斯随机场非常接近的无序结构（未显示）。

高随机场。

IV. 光学性质

最后，我们探讨具有近超均匀特征的受照射区域的光反射变化。在明场照明下对光反射进行光谱表征，结果显示，与平坦区域相比，受影响区域的光学响应发生了显著变化（图 4）。当采用单次扫描模式、剂量大于 $\sim 5\times10^{15}$ cm^{-2} 时，沉积在 30 nm 厚 SiO_2 上的 50 nm 厚非晶锗层反射光强度急剧降低。剂量较大时（约从 1.3×10^{16} cm^{-2} 起）会呈现红色，这是由于短波长处吸收增强，削弱了蓝光反射（反射强度最高可比平坦区域大约高 25 倍）。采用 200 nm 厚非晶锗以及沉积在薄、厚绝缘体上硅上的非晶锗，也得到了定性相似的结果（未显示）。

鉴于存在多个光学常数不同的层，整体光照响应由法布里-珀罗效应以及无序的细丝网络决定 [53, 54]。

五、结论

总之，我们证明，用离子束轰击锗薄层可形成具有近超均匀特征的有序和无序结构。其典型尺寸是迄今报道的类似超均匀系统中最小的 [17, 22, 55]。通过硅合金化改变化学计量比 [38]，、改变离子剂量 [27, 36] 或锗薄膜厚度 [39] 来调节孔隙尺寸，并且还能获得真正的三维结构 [27, 39]，这种制备方法在突破传统超均匀纳米结构制备方法的局限方面具有巨大潜力 [56]。

致谢

本研究由欧盟 H2020 FET-OPEN 项目 NARCISO（编号：828890）资助。J. W. 和 J.-B. C. 感谢欧洲研究理事会（ERC，资助协议编号：723241）的支持。我们感谢马赛 IM2NP研究所的 Nanotecmat平台。

[1] S. Torquato 和 F. H. Stillinger，《局部密度涨落、超均匀性与有序度指标》，《物理评论E》**68**，041113（2003）。

[2] S. Torquato，《物质的超均匀态》，《物理报告》**745**，1（2018）。[3] S. Torquato，《超均匀性及其推广》，《物理评论E》**94**，022122（2016）。

[4] Z. Ma 和 S. Torquato，随机标量场与超均匀性，《应用物理学杂志》**121**，244904（2017）。[5] S. Torquato、O. U. Uche 和 F. H. Stillinger，高欧几里得维度下硬球的随机顺序添加，《物理评论E》**74**，061308（2006）。[6] J. Kim 和 S. Torquato，缺陷对多体系统超均匀性的影响，《物理评论B》**97**，054105 2018( )。[7] A. Gabrielli、M. Joyce 和 F. S. Labini，类玻璃宇宙：标准宇宙学模型的实空间关联性质，《物理评论D》**65**，083523（2002）。[8] L. S. Froufe-P´erez、M. Engel、J. J. S´aenz 和 F. Scheffold，具有结构关联的无序光子材料中的带隙形成与安德森局域化，《美国国家科学院院刊》**114**，9570（2017）。[9] W. Zhou、Z. Cheng、B. Zhu、X. Sun 和 H. K. Tsang，超均匀无序网络偏振器，《IEEE量子电子学精选主题期刊》**22**，288（2016）。[10] S. Yu、C.-W. Qiu、Y. Chong、S. Torquato 和 N. Park，光子学中的工程化无序，《自然·材料评论》，1（2020）。[11] M. Florescu、S. Torquato 和 P. J. Steinhardt，具有大完全光子带隙的设计型无序材料，《美国国家科学院院刊》**106**，20658（2009）。[12] W. Man、M. Florescu、E. P. Williamson、Y. He、S. R. Hashemizad、B. Y. Leung、D. R. Liner、S. Torquato、P. M. Chaikin 和 P. J. Steinhardt，在超均匀无序光子固体中观测到的各向同性带隙与自由形状波导，《美国国家科学院院刊》**110**，15886 2013( )。[13] L. S. Froufe-P´erez、M. Engel、P. F. Damasceno、N. Muller、J. Haberko、S. C. Glotzer 和 F. Scheffold，短程有序和超均匀性在无序光子材料带隙形成中的作用，《物理评论快报》**117**，053902（2016）。[14] B.-Y. Wu、X.-Q. Sheng 和 Y. Hao，超均匀无序复合材料的有效介质性质，《PLOS ONE》**12**，e0185921（2017）。[15] N. P. Mitchell、L. M. Nash、D. Hexner、A. M. Turner 和 W. T. Irvine，由随机点集构建的非晶拓扑绝缘体，《自然·物理》**14**，380（2018）。[16] G. Rumi、J. A. S´anchez、F. El´ıas、R. C. Maldonado、J. Puig、N. R. C. Bolecek、G. Nieva、M. Konczykowski、Y. Fasano 和 A. B. Kolton，II型超导体表面的超均匀涡旋图案，《物理评论研究》**1**，033057（2019）。[17] M. Castro-Lopez、M. Gaio、S. Sellers、G. Gkantzounis、M. Florescu 和 R. Sapienza，利用超均匀金无序表面进行倒易空间工程，《APL光子学》**2**，061302（2017）。[18] N. Granchi、R. Spalding、M. Lodde、M. Petruzzella、F. W. Otten、A. Fiore、F. Intonti、R. Sapienza、M. Florescu 和 M. Gurioli，发光超均匀无序材料的近场研究，《先进光学材料》**10**，2102565（2022）。[19] G. Medeiros-Ribeiro、A. M. Bratkovski、T. I. Kamins、D. A. A. Ohlberg 和 R. S. Williams，硅（001）表面锗纳米晶体从金字塔结构到穹顶结构的形状转变，《科学》**279**，353（1998）。[20] J. Ye 和 C. V. Thompson，模板化固态去润湿：可控地产生复杂图案，《先进材料》**23**，1567（2011）。[21] M. Naffouti、R. Backofen、M. Salvalaglio、T. Bottein、M. Lodari、A. Voigt、T. David、A. Benkouider、I. Fraj、L. Favre、A. Ronda、I. Berbezier、D. Grosso、M. Ab- barchi 和 M. Bollani，超薄硅薄膜复杂去润湿情景及其大规模纳米结构，《科学进展》**3**，eaao1472（2017）。[22] M. Salvalaglio、M. Bouabdellaoui、M. Bollani、A. Benali、L. Favre、J.-B. Claude、J. Wenger、P. de Anna、F. Intonti、A. Voigt、 *et al.*，旋节线固态去润湿形成的超均匀单晶结构，《物理评论快报》**125**，126101 2020( )。[23] A. Benali、J.-B. Claude、N. Granchi、S. Checcucci、M. Bouabdellaoui、M. Zazoui、M. Bollani、M. Salvalaglio、J. Wenger、L. Favre、 *et al.*，基于介电天线的柔性光子器件，《物理学：光子学》**2**，015002 2020( )。[24] Z. Chehadi、M. Bouabdellaoui、M. Modaresialam、T. Bottein、M. Salvalaglio、M. Bollani、D. Grosso 和 M. Abbarchi，通过金属氧化物纳米压印光刻制备可扩展的无序超均匀结构，《ACS应用材料与界面》**13**，37761（2021）。[25] L. Bischoff、W. Pilz 和 B. Schmidt，重离子辐照锗上形成的非晶固体泡沫结构，《应用物理学A》**104**，1153（2011）。[26] M. Kol´ıbal、T. Matlocha、T. Vystav˘el 和 T. ˘Sikola，硅和锗纳米结构的低能聚焦离子束铣削，《纳米技术》**22**，105304（2011）。[27] N. G. Rudawski 和 K. S. Jones，通过离子束改性制备的锗纳米结构，《材料研究学会杂志》**28**，1633（2013）。[28] R. B¨ottger、K.-H. Heinig、L. Bischoff、B. Liedke 和 S. Facsko，随着离子能量增加，辐照锗表面从孔洞到海绵结构——缺陷动力学的作用？《应用物理学A》**113**，53（2013）。[29] R. M. Bradley 和 J. M. Harper，离子轰击诱导的波纹形貌理论，《真空科学与技术杂志》**6**，2390（1988）。[30] J. Nord、K. Nordlund 和 J. Keinonen，离子束非晶化硅、锗和砷化镓中的非晶化机制与缺陷结构，《物理评论B》**65**，165329（2002）。[31] A. K. Hartmann、R. Kree 和 T. Yasseri，通过模拟离子束溅射引起的图案形成离散模型，《凝聚态物理杂志》**21**，224015（2009）。[32] Q. Wei、X. Zhou、B. Joshi、Y. Chen、K.-D. Li、Q. Wei、K. Sun 和 L. Wang，离子束溅射自组装有序半导体纳米孔，《先进材料》**21**，2865（2009）。[33] M. Fritzsche、A. Muecklich 和 S. Facsko，聚焦离子束和宽束 Ga+辐照诱导的锗纳米孔图案形成，《应用物理学快报》**100**，223108（2012）。[34] R. Cuerno 和 A.-L. Barab´asi，离子溅射表面的动力学标度，《物理评论快报》**74**，4746（1995）。[35] M. Castro、R. Cuerno、L. V´azquez 和 R. Gago，离子束溅射产生的纳米结构自组织有序化，《物理评论快报》**94**，016102（2005）。[36] S. Hooda、S. Khan、B. Satpati、D. Stange、D. Buca、M. Bala、C. Pannu、D. Kanjilal 和 D. Kabiraj，离子束参数对纳米尺度空洞构筑及其生长后退火稳定性的影响，《应用物理学A》**122**，227（2016）。[37] S. A. Mollick、D. Ghose、P. D. Shipman 和 R. Mark Bradley

, 异常模式和近乎无缺陷的

通过金离子束轰击硅和锗产生的波纹，《应用物理快报》**104**，043103（2014）。[38] H. Alkhaldi、F. Kremer、T. Bierschenk、J. Hansen、A. Nylandsted-Larsen、J. Williams 和 M. C. Ridgway，Ge/Si$_{1-x}$Ge$_x$ **119**, 094303（2016）。[39] L. Romano、G. Impellizzeri、L. Bosco、F. Ruffino、M. Miritello 和 M. Grimaldi，离子注入在沉积非晶锗薄膜中诱导的纳米孔隙，《应用物理学杂志》**111**，113515（2012）。[40] S. Herminghaus、K. Jacobs、K. Mecke、J. Bischof、A. Fery、M. Ibn-Elhaj 和 S. Schlagowski，液晶和液态金属薄膜中的旋节线脱湿，《科学》**282**，916（1998）。[41] L. Repetto、B. ˇSetina Batiˇc、G. Firpo、E. Piano 和 U. Valbusa，离子诱导固体薄膜旋节线脱湿，《应用物理快报》**100**，223113（2012）。[42] L. Repetto、R. L. Savio、B. ˇS. Batiˇc、G. Firpo、E. Angeli 和 U. Valbusa，描述离子轰击薄膜形貌演化的类液体模型，《核仪器与方法B辑：物理研究》**354**，28（2015）。[43] J. Yanagisawa、K. Takarabe、K. Ogushi、K. Gamo 和 Y. Akasaka，聚焦离子束辐照在锗表面形成纳米多孔结构，《物理学：凝聚态》**19**，445002（2007）。[44] R. M. Bradley 和 P. D. Shipman，离子轰击二元化合物诱导的自发图案形成，《物理评论快报》**105**，145501（2010）。[45] S. Torquato，随机介质中物理上可实现的关联函数的精确条件，《化学物理学杂志》**111**，8832（1999）。[46] 有趣的是，通过对固相进行随机分布点采样，并计算 $S(\mathbf{k})$，可以得到与下文所报告结果相似的结果。[47] S. Wilken、R. E. Guerra、D. J. Pine 和 P. M. Chaikin，通过剪切胶体形成的超均匀结构悬浮液，《物理评论快报》**125**，148001（2020）。[48] R. Xie、G. G. Long、S. J. Weigand、S. C. Moss、T. Car- valho、S. Roorda、M. Hejna、S. Torquato 和 P. J. Stein- hardt，基于测量结构因子无限波长极限研究非晶硅中的超均匀性，《美国国家科学院院刊》**110**，13250（2013）。[49] H. Minkowski，《体积与表面积》，载于 *Ausgewählte Arbeiten zur Zahlentheorie und zur Geometrie*（施普林格，1989），第146–192页。[50] R. Schneider，*Convex bodies: the Brunn–Minkowski theory* 151，（剑桥大学出版社，2014）。[51] H. Mantz、K. Jacobs 和 K. Mecke，利用闵可夫斯基泛函进行图像分析：一种行进正方形算法，《统计力学杂志：理论与实验》**2008 (12)**，P12015。[52] P. Alkemade，离子轰击驱动玻璃表面波纹的演化，《物理评论快报》**96**，107602（2006）。[53] H. Galinski、A. Fratalocchi、M. D¨obeli 和 F. Capasso，利用功能连接性操控金属纳米线网络中的光，《先进光学材料》**5**，1600580（2017）。[54] H. Galinski、G. Favraud、H. Dong、J. S. T. Gongora、G. Favaro、M. D¨obeli、R. Spolenak、A. Fratalocchi 和 F. Capasso，基于网络超材料的可扩展、超耐久结构色，《光科学与应用》**6**，e16233（2017）。[55] N. Tavakoli、R. Spalding、P. Koppejan、G. Gkantzounis、C. Wang、R. Rohrich、E. Kontoleta、A. F. Koenderink、R. Sapienza、M. Florescu、*et al.*，在具有超均匀纹理的 1 μm硅薄板中实现超过65的太阳光吸收，《ACS 光子学》**9**，1206（2022）。[56] C. M. Soukoulis 和 M. Wegener，三维光子超材料开发中的过往成果与未来挑战，《自然·光子学》**5**，523（2011）。