

07;11;12

# Фотонный сканирующий туннельный микроскоп с нерезонансным атомно-силовым режимом

© Д.А. Лапшин

Институт спектроскопии РАН,  
142092 Троицк, Московская область, Россия

(Поступило в Редакцию 29 ноября 1996 г. В окончательной редакции 8 июля 1997 г.)

Представлена конструкция фотонного сканирующего туннельного микроскопа. Подробно обсуждаются режим, "shear force" и преимущества нерезонансного возбуждения зонда. Предложено использовать метод реплики для оценки размера активной части зонда.

## Введение

Микроскопия ближнего поля позволяет преодолеть дифракционный предел, ограничивающий разрешение классической оптической микроскопии [1]. Большой энтузиазм вызывают возможности реализации спектроскопии с субмикронным пространственным разрешением. К числу заметных достижений в этой области можно отнести визуализацию отдельных флуоресцентных молекул [2,3], измерение времен флуоресценции отдельных молекул [4,5], низкотемпературную люминесцентную спектроскопию полупроводниковых материалов [6]. Достаточно интересны также возможные применения в области управления локальными химическими реакциями [7] и записи информации [8].

Для получения максимального разрешения необходимо помещать зонд вблизи поверхности на расстоянии порядка нескольких нанометров. Поэтому для практической работы требуется способ контроля расстояния зонд–поверхность, независимый от оптического канала микроскопа. Наибольшее распространение получит так называемый метод "shear force" [9,10], позволяющий одновременно с оптическим получать топографическое изображение поверхности. Для реализации метода необходимо возбудить колебания зонда на резонансной частоте в плоскости, перпендикулярной плоскости исследуемой поверхности. Экспериментально было обнаружено, что вблизи поверхности наблюдается уменьшение амплитуды колебаний за счет взаимодействия с поверхностью (рис. 1). Зависимость амплитуды от расстояния имеет плавный характер и позволяет контролировать расстояние зонд–поверхность в нанометровом диапазоне. Однако характер взаимодействия зонд–поверхность оставался до последнего времени предметом обсуждений. Как следует из названия метода, предполагалось, что зонд испытывает нечто вроде вязкого демпфирования за счет капиллярных или ван-дер-ваальсовых сил [9]. Для контроля за амплитудой колебаний зонд освещают с одной стороны лучом лазера, а с другой стороны помещают двухсекционный фотодиод, который регистрирует перераспределение света между двумя секциями фотодиода. Поскольку сигнал с фотодиода имеет небольшую величину, то для его анализа используется

фазочувствительный метод синхронного детектирования. В такой схеме сигнал на выходе детектора зависит как от амплитуды, так и от фазы сигнала и может принимать как положительные, так и отрицательные значения. В своих экспериментах мы иногда наблюдали скачкообразное изменение амплитуды сигнала детектора со сменой знака, что согласуется с сообщениями об иногда наблюдаемых эффектах инверсии контраста на топографических изображениях [11]. В этом случае выступы на изображении выглядят как углубления, и наоборот. Подобные эффекты трудно объяснить исходя из вязкой модели демпфирования.

Совсем другая модель взаимодействия зонд–поверхность предложена в [12]. Прежде всего отметим, что, для того чтобы кончик зонда при колебаниях двигался параллельно поверхности, необходимо приложить специальные усилия. Поэтому практически всегда при измерениях в режиме "shear force" траектория кончика зонда наклонена под острым углом к поверхности. Это означает, что при достаточно малом расстоянии зонд–поверхность кончик зонда будет касаться поверхности, что должно нарушать амплитудную и частотную характеристики колебаний. Авторы [12] провели экспериментальное исследование резонансной кривой в вакууме при температуре жидкого гелия, что позволило сразу снять вопрос о капиллярных силах. Было показано, что наблюдаемая амплитудная и частотная зависимости резонансной кривой хорошо согласуются с математической моделью, построенной на модели касания зондом поверхности и нижней части своей траектории. Важнейшее

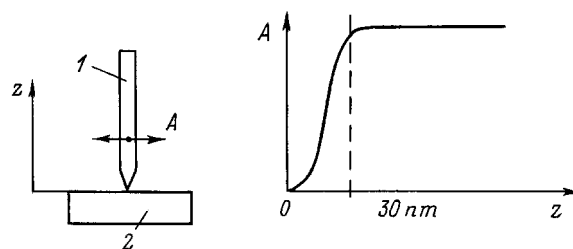
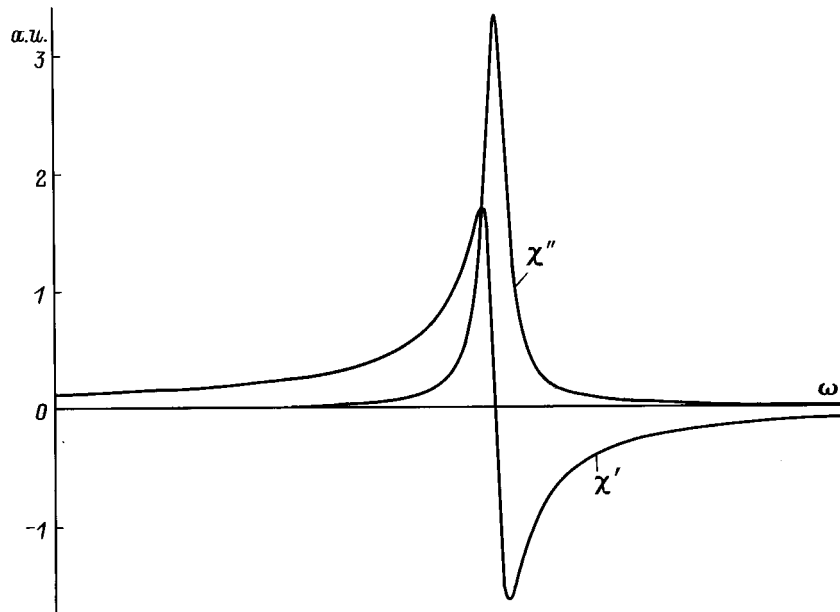


Рис. 1. Эффект "shear force": уменьшение амплитуды вынужденных колебаний  $A$  зонда микроскопа за счет взаимодействия с поверхностью (1 — зонд, 2 — образец).



**Рис. 2.** Функция отклика  $\chi$  гармонического осциллятора на внешнюю возбуждающую силу:  $\chi'$  — действительная,  $\chi''$  — мнимая составляющие.

наблюдение состоит в том, что резонансная частота увеличивается при контакте с поверхностью за счет разности упругих постоянных свободной части зонда и его конусообразной части. Увеличение резонансной частоты невозможно объяснить в рамках модели вязкого затухания.

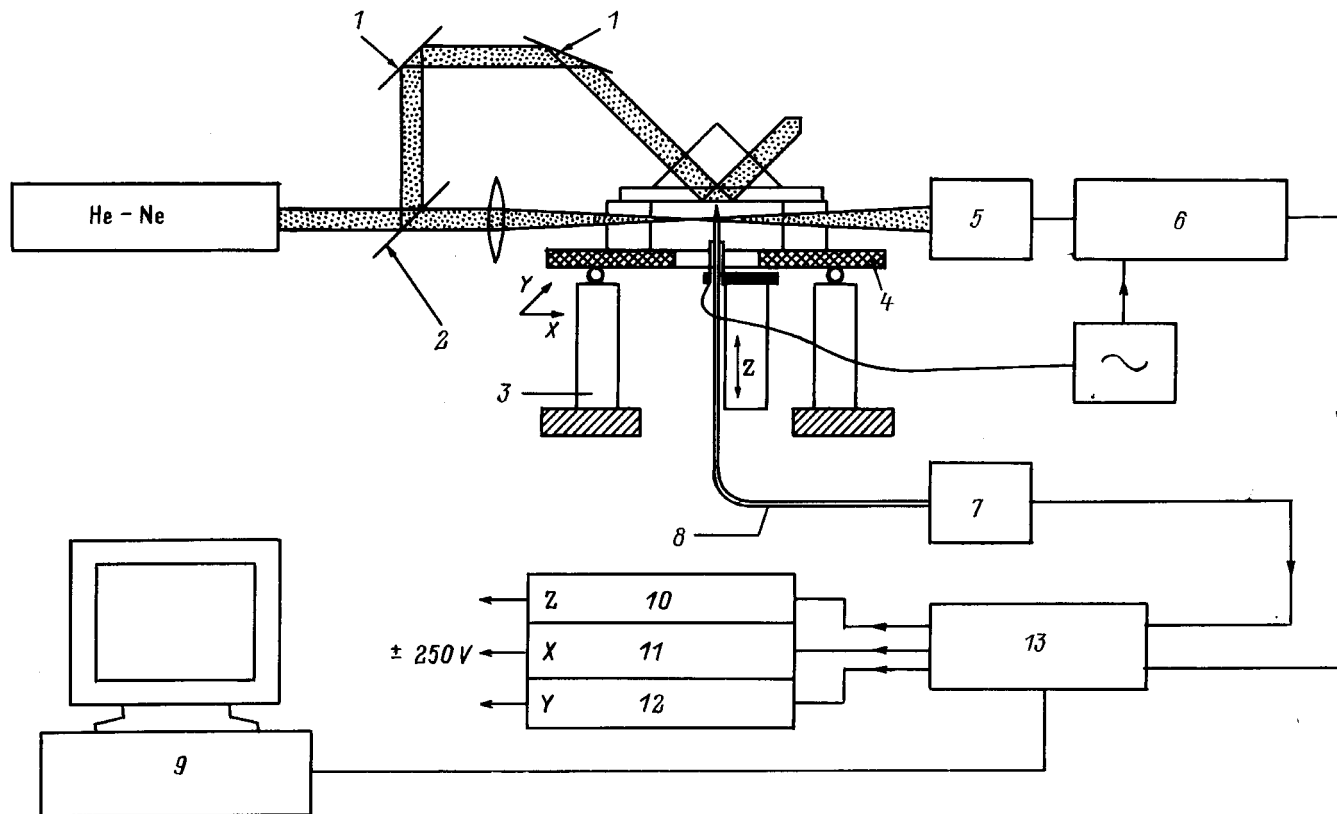
Таким образом, режим "shear force" в основном аналогичен режиму "tapping mode", или режиму касаний, который хорошо известен в атомно-силовой микроскопии [13,14], поэтому в дальнейшем мы будем называть этот режим атомно-силовым. Уменьшение амплитуды сигнала атомно-силового канала при приближении к поверхности обусловлено ограничением амплитуды колебаний зонда жесткой стенкой за счет механического контакта.

Отсюда следует важный вывод: разрешение микроскопа в атомно-силовом режиме определяется зоной контакта, т. е. зависит от радиуса закругления иглы и не зависит в общем случае от амплитуды колебаний. Конечно, при больших амплитудах возможны искажения изображения поверхности в виде паразитных "теней" и т.п. за счет лишних касаний, например, если высота неровностей значительно превышает диаметр закругления зонда, а расстояние между неровностями меньше амплитуды колебаний зонда. Поэтому оптимальным с точки зрения разрешения следует считать режим, в котором амплитуда колебаний зонда равна радиусу закругления зонда: при меньшей амплитуде в канале детектирования уменьшается отношение сигнал/шум, при большей возрастает вероятность паразитных эффектов.

Теперь можно понять механизм инверсии контраста, иногда наблюдаемой на топографических изображениях. В первом приближении колеблющийся зонд можно рас-

сматривать как классический осциллятор, возбуждаемый внешней силой. Функцию отклика  $\chi$  для гармонического осциллятора можно описать как сумму действительной  $\chi'$  и мнимой  $\chi''$  частей [15–17]. Вид этих компонент хорошо известен и показан на рис. 2. Взаимодействие зонда с поверхностью, с одной стороны, приводит к увеличению резонансной частоты [12], с другой стороны, изменяет фазу колебаний, так как в уравнение движения осциллятора необходимо добавить члены, отражающие взаимодействие с поверхностью. Величина смещения фазы будет зависеть от продолжительности взаимодействия с поверхностью, а также от локальных механических свойств поверхности. Изменение фазы сигнала можно рассматривать так же, как изменение соотношения между действительной и мнимой частями функции отклика. Изменение фазы колебаний даже при постоянной амплитуде обеспечит изменение амплитуды сигнала на выходе синхронного детектора. Таким образом, величина сигнала детектора может зависеть от локальных упругих свойств поверхности.

Другая возможность проиллюстрирована на рис. 2: если выходной сигнал имеет большую долю  $\chi'$ , то увеличение резонансной частоты приведет к смещению кривой  $\chi'$  вправо и в зависимости от положения рабочей точки, которая фиксирована во время измерений и определяется частотой звукового генератора, могут наблюдаться как увеличение амплитуды сигнала, так и уменьшение вплоть до смены знака. Поэтому эффект увеличения резонансной частоты за счет взаимодействия с поверхностью может также быть ответственным за иногда наблюдаемую инверсию контраста на топографических изображениях.



**Рис. 3.** Принципиальная схема фотонного сканирующего туннельного микроскопа: 1 — зеркало, 2 — светоделитель, 3 — пьезо, 4 — столик, 5 — фотодиод, 6 — синхронный усилитель, 7 — ФЭУ, 8 — световод, 9 — компьютер, 10–12 — ВВ усилители, 13 — контроллер.

Резюмируя сказанное, можно заключить, что корень проблемы лежит в наложении фазовых и амплитудных эффектов при работе вблизи резонансной частоты. Поэтому более удобно работать в нерезонансном режиме, в этом случае амплитудная функция будет определяться обрезанием смещения зонда при контакте с поверхностью, а фазовые эффекты будут отсутствовать. Мы приводим схему микроскопа ближнего поля с нерезонансным атомно-силовым режимом и представим некоторые результаты, полученные на этом микроскопе.

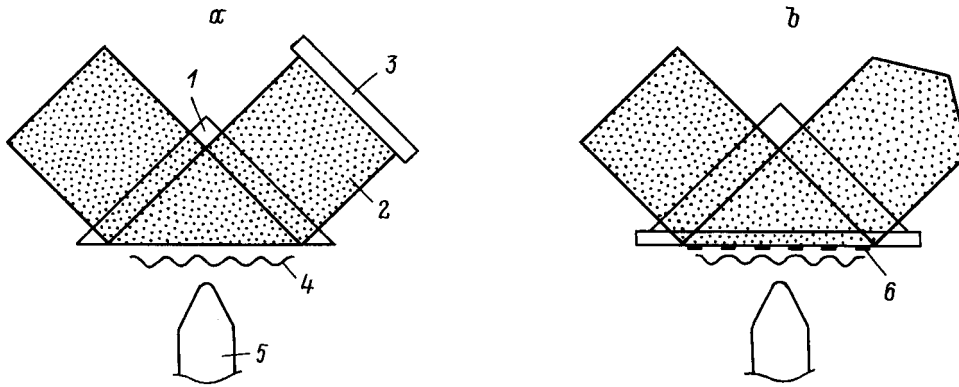
### Фотонный сканирующий туннельный микроскоп

Схема микроскопа приведена на рис. 3. Луч He–Ne лазера проходит через призму под углом полного внутреннего отражения [18]. Снизу в область поверхностной световой волны помещен заостренный конец световода, выполняющий функцию зонда. Часть поверхностной световой волны испытывает рассеяние на зонде и захватывается световодом. Сигнал ФЭУ на другом конце световода пропорционален интенсивности световой волны. Этот тип микроскопа, согласно сложившейся к настоящему

времени терминологии, принято называть фотонным сканирующим туннельным микроскопом [19,20].

Мы использовали многомодовый кварцевый световод, заостренный методом травления в 40%-ном водном растворе плавиковой кислоты [21]. В наших экспериментах был использован неметаллизированный зонд без апертуры: благодаря экспоненциальной зависимости интенсивности поверхностной волны от расстояния до поверхности наибольший вклад в сигнал дает компонента поля вблизи конца зонда, что позволяет получать разрешение меньше 200 nm [20]. Использование металлизированной иглы с апертурой позволяет получить разрешение вплоть до 20 nm [22], однако анализ данных и механизма взаимодействия поверхностной волны с зондом усложняется и не может быть описан простой моделью типа рассеяния на диэлектрической сфере.

В нашей конструкции сканирующее устройство перемещает решетку, в то время как игла неподвижна. Для этого призма жестко связана со столиком в виде стеклянного диска, который покоится на трех металлических шариках, приклеенных к пьезоэлектрическим трубкам длиной 32 mm, диаметром 10 mm, толщиной стенки 0.75 mm (на рис. 2 показаны только две из них).



**Рис. 4.** Принципиальная схема эксперимента по измерению интенсивности поверхностной световой стоячей волны (а), интенсивности световой волны над поверхностью дифракционной решетки (б): 1 — призма, 2 — зеркало, 3 — свет, 4 — ближнее поле, 5 — зонд, 6 — решетка.

Внутренняя и внешняя поверхность каждой из трубок металлизирована и разделена на 4 электрода, которые соединены таким образом, что приложение напряжения к группе электродов приводит к изгибу трубки в соответствующем направлении [23]. Электроды трех трубок соединены параллельно, поэтому трубки движутся синхронно и обеспечивают перемещение столика с сохранением его ориентации. Кроме того, эта конструкция позволяет перемещать столик дискретно с шагом меньше микрона. Для этого на электроды сканера необходимо подать напряжение пилообразного вида [24]. Большая пьезотрубка в центре рис. 3 обеспечивает тонкую регулировку расстояния между поверхностью образца и зондом. Микрометрический винт для грубой регулировки на рисунке не показан. При управляющих напряжениях  $\pm 250$  В, поле сканирования составляет  $14.5 \mu\text{m}$ , а диапазон регулирования по вертикали  $5 \mu\text{m}$ .

Для реализации атомно-силового режима в верхней части центральной пьезотрубки установлен дополнительный трубчатый пьезоэлемент (внешний диаметр  $1.3 \text{ mm}$ , внутренний диаметр  $0.8 \text{ mm}$ , длина  $8 \text{ mm}$ ) для возбуждения колебаний свободного конца световода в плоскости, перпендикулярной плоскости рисунка. Колеблущаяся часть световода освещена сбоку лучом лазера, и рассеянный свет регистрируется с помощью двухсекционного фотодиода с противоположной стороны. Используя петлю обратной связи, можно поддерживать амплитуду на заданном уровне за счет перемещения иглы в вертикальном направлении, при этом расстояние игла–поверхность сохраняет постоянное значение при сканировании.

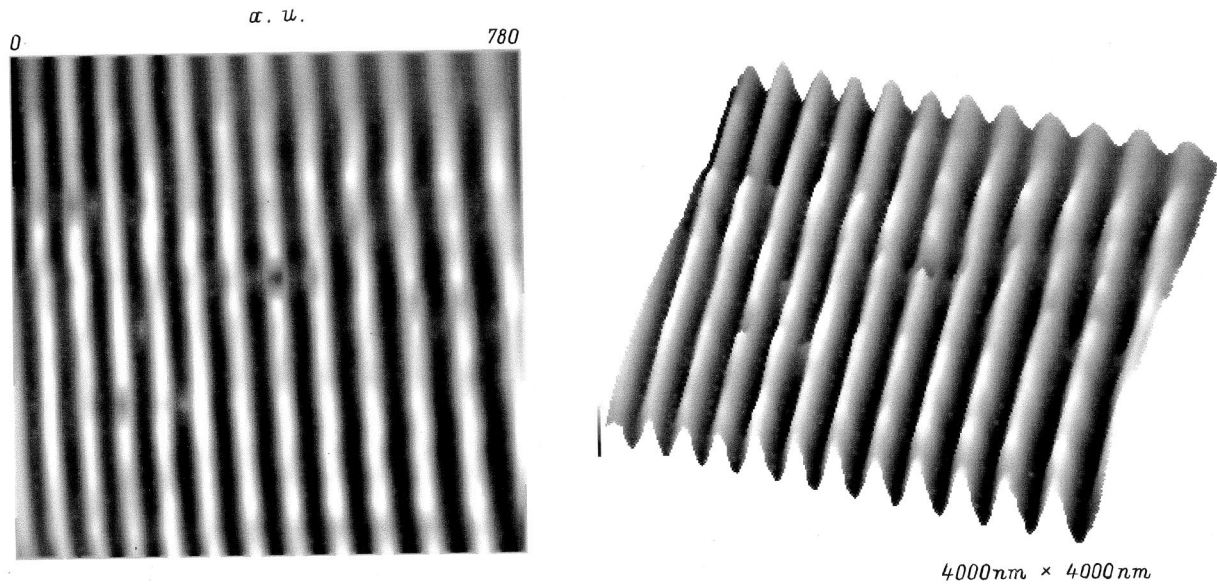
В нашей работе мы использовали нерезонансное возбуждение колебаний иглы в отличие от всех известных нам работ, где использовался резонансный метод. По нашим наблюдениям, нерезонансный метод отличается большей стабильностью, причем мы использовали частоту ниже первой резонансной для изгибных колебаний зонда, обычно в диапазоне  $5\text{--}10 \text{ kHz}$ .

В стандартном режиме детектированный сигнал от фотодиода использовался в петле обратной связи, оканчивающейся на пьезотрубке тонкого подвода, что позволяло поддерживать на постоянном уровне расстояние между зондом и поверхностью во время сканирования. В этом случае траектория кончика зонда повторяет топографический профиль поверхности, а контроллер микроскопа в каждой точке сканирования записывает оптический сигнал и топографический сигнал атомно-силового канала. Контроллер микроскопа выполнен в виде отдельного блока и связан с персональным компьютером через шину ISA с помощью специальной интерфейсной платы.

## Измерения

В качестве первого примера мы представляем изображение простой модельной структуры в виде стоячей поверхностной волны [25]. Схема эксперимента представлена на рис. 4. Луч лазера испытывает полное внутреннее отражение на границе раздела стекло–воздух. На пути луча установлено плоское металлическое зеркало, поэтому свет, распространяющийся в прямом и обратном направлениях, образует на поверхности стоячую световую волну с периодом  $d = \lambda/2n \sin \Theta$ . При  $n = 1.5$  и  $\Theta = 45^\circ$  расстояние между максимумами световой волны для  $\lambda = 633 \text{ nm}$  составляет  $3000 \text{ nm}$ .

На рис. 5 представлено изображение интенсивности светового поля, полученное по оптическому каналу, причем за счет обратной связи по атомно-силового каналу поддерживалось постоянное расстояние ( $50 \text{ nm}$ ) между зондом и стеклом. Как и следовало ожидать, профиль сигнала имеет синусоидальную форму. Локальные неоднородности на изображении обусловлены внешними механическими возмущениями во время записи. Увеличение периода структуры слева направо есть следствие нелинейности пьезоэлектрического сканирующего устройства.



**Рис. 5.** Изображение поверхностной стоячей световой волны на поверхности стеклянной призмы. Расстояние между максимумами  $\sim 300$  nm ( $I$  — интенсивность, а.е.).

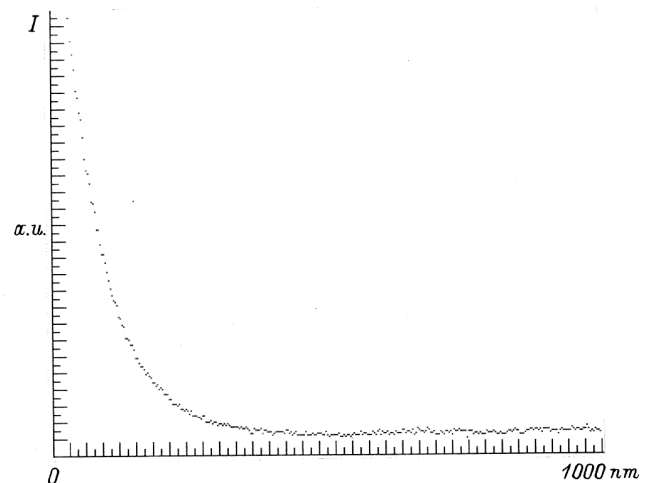
На рис. 6 представлена запись оптического сигнала при перемещении зонда в перпендикулярном направлении к поверхности. График иллюстрирует известную экспоненциальную зависимость поля поверхностной световой волны [18]. При измерении этой зависимости зеркало было удалено (рис. 4, *b*). Глубина затухания поля составляет 130 nm.

В качестве другого примера, иллюстрирующего возможности микроскопа, мы представляем изображение плоской дифракционной решетки, состоящей из полосок Ni на поверхности стекла, изготовленной методом фотолитографии. Высота штрихов 40 nm, период решетки 10  $\mu\text{m}$ , ширина металлического штриха 3  $\mu\text{m}$ . На рис. 7 представлено трехмерное топографическое изображение решетки, полученное по атомно-силовому каналу в нерезонансном режиме, а на рис. 8 представлены изображения участка решетки (вид сверху) по топографическому и оптическому каналам. Высота штриха составляет 40 nm, что хорошо согласуется с данными изготовителя решетки. Вдоль краев металлических штрихов наблюдаются "хребты" высотой  $\sim 40$  nm. Мы предполагаем, что это — результат массопереноса при травлении, обусловленный деталями технологического процесса.

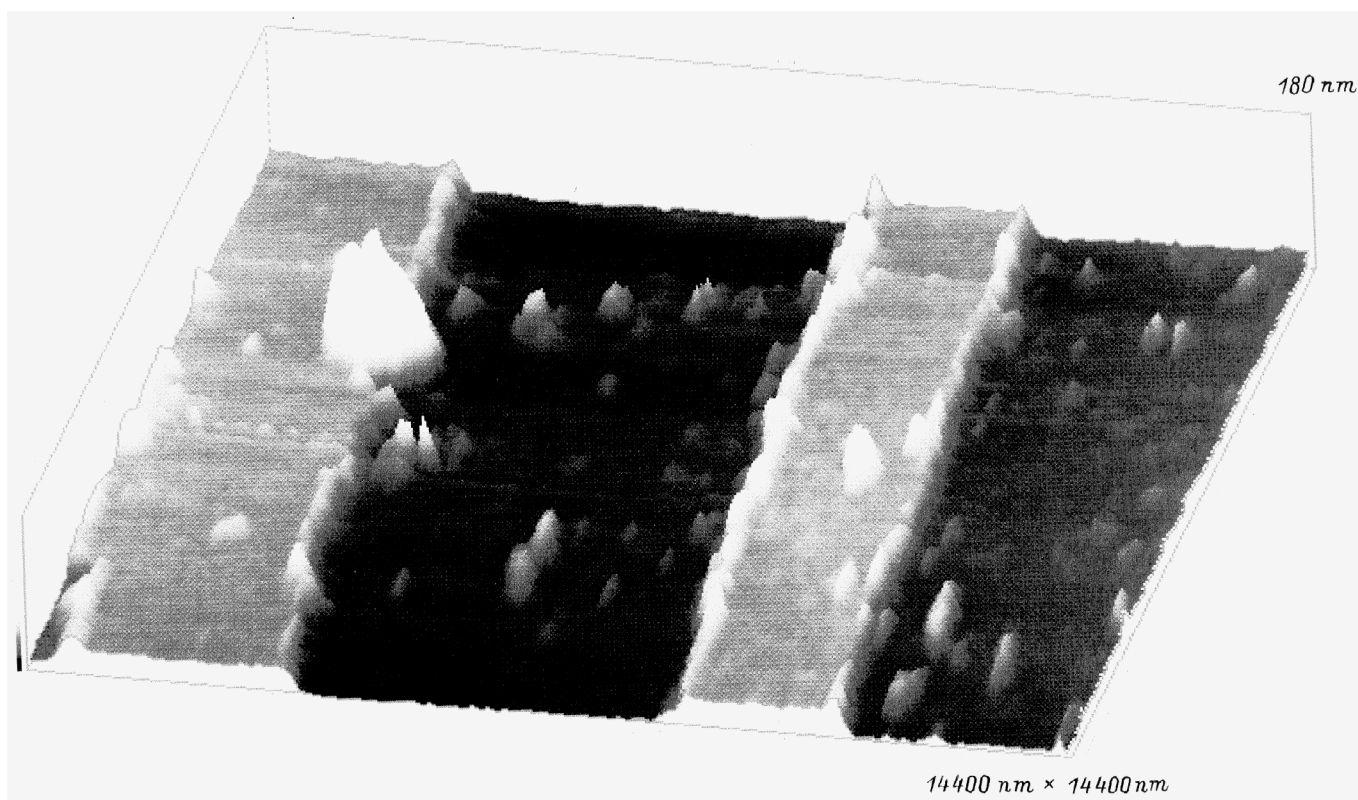
Здесь мы считаем необходимым подчеркнуть, что разработанный нами контроллер микроскопа исключает возможные искажения изображения за счет эффектов недорегулирования или перерегулирования в цепи обратной связи при резких изменениях профиля поверхности. Для этого перед записью каждой точки контроллер микроскопа проверяет отсутствие сигнала ошибки в петле обратной связи. Кроме того, каждый скан записывается как в прямом, так и в обратном направлениях. Сравнение этих профилей также позволяет избежать ошибок,

которые могут быть связаны, например, с крипом (ползучестью) пьезокерамики в вертикальном направлении. Первые линии развертки изображения (в нижней части рисунка) сдвинуты вправо за счет крипа пьезокерамики в горизонтальном направлении. Крупный "холм" в левом верхнем углу является, как мы предполагаем, частичкой пыли, осевшей из воздуха на поверхность решетки.

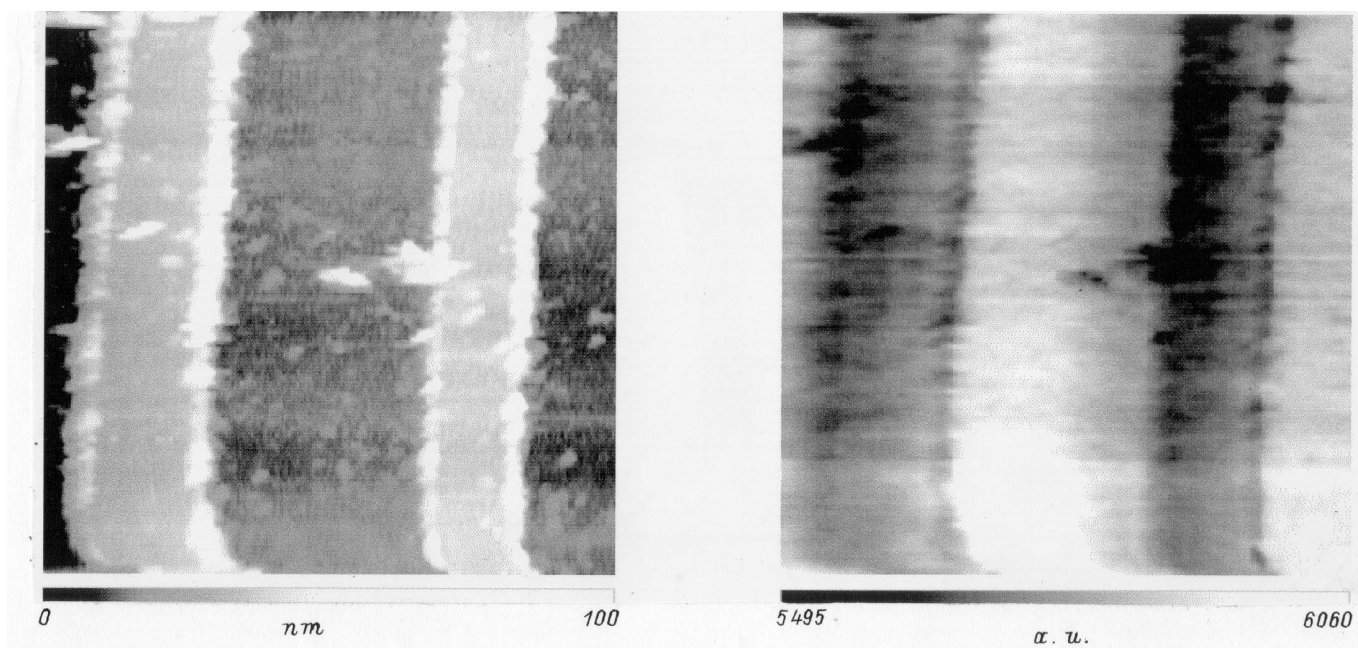
Оптическое изображение с хорошей точностью соответствует деталям топографического изображения, т.е. полосы минимума оптического сигнала соответствуют металлическим штрихам дифракционной решетки. Мелким деталям в виде небольших пятен на топографическом изображении, которые, видимо соответствуют



**Рис. 6.** Зависимость интенсивности поверхностной волны от расстояния зонд–поверхность.



**Рис. 7.** Трехмерное изображение участка дифракционной решетки на поверхности стекла, полученное по атомно-силовому каналу микроскопа. Период решетки  $10 \mu\text{м}$ .



**Рис. 8.** Атомно-силовое (слева) и оптическое (справа) изображения участка дифракционной решетки. Вектор  $k$  поверхностной волны направлен вдоль штрихов решетки.

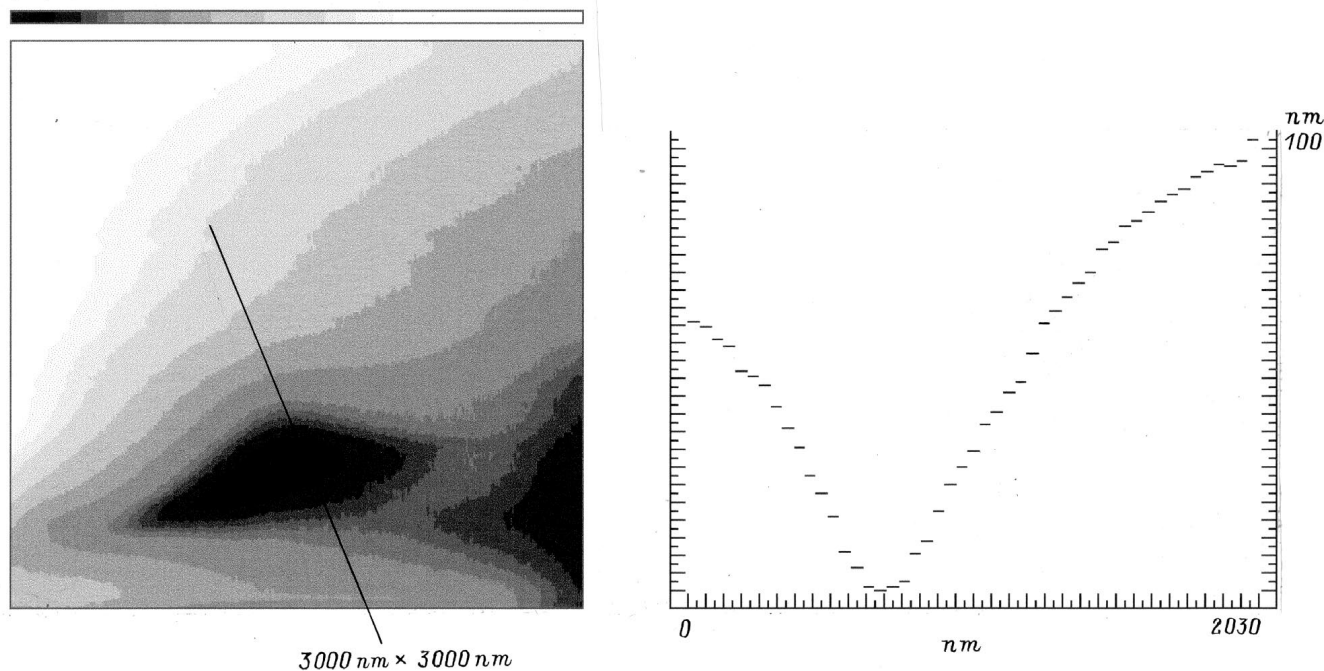


Рис. 9. Изображение отпечатка кончика иглы в плавленной канифоли. Справа — сечение вдоль линии.

остаткам не удаленного металла, соответствуют провалы в оптическом сигнале в виде темных пятен. Исходя из полученного изображения, можно оценить разрешение микроскопа на уровне  $0.1 \mu\text{m}$  по обоим каналам.

## Метод реплики

Важнейшим параметром микроскопа, определяющим его разрешение, является радиус закругления зонда. Для оценки этого параметра большинство авторов использует электронный микроскоп. Мы предлагаем использовать для этих целей метод реплики, под которым понимается искусственное создание в мягком материале отпечатка кончика иглы. Процесс образования подобного рода отпечатков субмикронного размера был подробно исследован в ряде работ [16,17,26]. Исследуя временную зависимость перемещения индентора под воздействием внешней силы, показали, что в общем случае после снятия нагрузки наблюдается упругая релаксация материала, вследствие чего глубина отпечатка меньше глубины укола, а угол вершины конуса отпечатка больше, чем у индентора. В мягких материалах, в частности в Al, подобного типа релаксация мала, поэтому отпечаток с хорошей точностью повторяет форму индентора.

Высокая жесткость иглы в вертикальном направлении в нашей конструкции позволяет выполнять уколы на глубину до нескольких микрон. В качестве материала для индентирования мы использовали Al и плавленную канифоль. Практика показала хорошую воспроизводимость отпечатков на этих материалах, а также отсут-

ствие деформации иглы в процессе индентирования, что позволяет делать оценку формы зонда по форме отпечатка.

Для визуализации формы отпечатка мы используем микроскоп в атомно-силовом режиме с тем же зондом, которым был выполнен отпечаток. На рис. 9 представлено изображение отпечатка иглы, которая была использована в этой работе (в правом нижнем углу имеется дефект поверхности, существовавший до индентирования). Сечение в правой части рисунка позволяет оценить радиус закругления зонда  $0.1 \mu\text{m}$  и величину угла конуса  $150^\circ$ , что согласуется с приведенной выше оценкой разрешения микроскопа. Возможность визуализации отпечатка зонда с помощью того же зонда может показаться неправдоподобной. Здесь необходимо еще раз подчеркнуть, что форма отпечатка несколько отличается от формы зонда вследствие релаксации материала, а амплитуда колебаний зонда не превышает величины радиуса закругления зонда и составляла в этих измерениях  $\sim 100 \text{ nm}$ . Это позволяет зонду приписывать отпечаток вплоть до самого дна. Предлагаемый метод не позволяет восстановить точную форму зонда по изображению отпечатка, а представляет лишь способ оценки сверху размера зонда.

Предложенный способ имеет ряд существенных преимуществ перед стандартным методом электронной микроскопии: возможность получать трехмерное изображение, а не проекцию на плоскость, как в электронном микроскопе, возможность изучения диэлектрических игл без предварительной металлизации; относительная простота и дешевизна, так как контроль отпе-

чатка выполняется на том же микроскопе, на котором ведутся исследования, поэтому сокращаются расходы времени и уменьшается вероятность повредить иглу, связанная с переносом зонда от одного микроскопа к другому.

## Выводы

1. Продемонстрирована возможность работы атомно-силового канала микроскопа в нерезонансном режиме. Режим отличается большей стабильностью по сравнению с резонансным способом возбуждения. Разрешение микроскопа определяется радиусом закругления зонда и в общем случае не зависит от амплитуды колебаний зонда.

2. Показана возможность создания отпечатка зонда в мягких материалах (алюминий и плавленая канифоль). Визуализация отпечатка в атомно-силовом режиме с помощью того же зонда позволяет оценить размер активной части зонда.

## Список литературы

- [1] Pohl D.W., Denk W., Lanz M. // Appl. Phys. Lett. 1984. Vol. 44. P. 651–653.
- [2] Betzig E., Chichester J. // Science. 1993. Vol. 262. P. 1422–1425.
- [3] Meixner A.J. et al. // Opt. Eng. 1995. Vol. 34. N 8. P. 2324–2332.
- [4] Xie X.S., Dunn R.C. // Science. 1994. Vol. 265. P. 361–364.
- [5] Ambrose W.P. et al. // Science. 1994. Vol. 264. P. 364–367.
- [6] Hess H.F. et al. // Science. 1994. Vol. 264. P. 1740–1745.
- [7] Krausch G. et al. // Opt. Commun. 1995. Vol. 119. P. 283–288.
- [8] Betzig E. et al. // Appl. Phys. Lett. 1992. Vol. 61. P. 142–144.
- [9] Toledo-Crow R. et al. // Appl. Phys. Lett. 1992. Vol. 60. P. 2957–2959.
- [10] Betzig E., Finn P.L., Weiner S.J. // Appl. Phys. Lett. 1992. Vol. 60. P. 2484–2486.
- [11] Heinzelmann H. et al. // Opt. Eng. 1995. Vol. 34. P. 2441–2454.
- [12] Gregor M.J. et al. // Appl. Phys. Lett. 1996. Vol. 68. N 3. P. 307–309.
- [13] Zong Q. et al. // Surf. Sci. Lett. 1993. Vol. 290. P. L688.
- [14] Hansma H.G. et al. // Scanning. 1993. Vol. 15. P. 296.
- [15] Пуннар А. // Физика колебаний. М.: Высшая школа, 1985. 456 с.
- [16] Doerner M.F., Nix W.D. // J. Mater. Res. 1986. Vol. 1. N 4. P. 601–609.
- [17] Mencik J., Swain M.V. // J. Mater. Res. 1995. Vol. 10. N 6. P. 1491–1501.
- [18] Бутиков Е.И. // Оптика. М.: Высшая школа, 1986. 512 с.
- [19] Courjon D., Sarayeddine K., Spajer M. // Opt. Commun. 1989. Vol. 71. P. 23–28.
- [20] Reddick R.C., Warmack R.J., Ferrell T.L. // Phys. Rev. B. 1989. Vol. 39. P. 767–770.
- [21] Pohl D.W., Courjon D. // Near field optics. NATO ASI Series. E. Vol. 242 (Kluwer, Dordrecht, 1993). P. 131–139.
- [22] Naya M. et al. // Opt. Commun. 1996. Vol. 124. P. 9–15.
- [23] Binning G., Smith D.P.E. // Rev. Sci. Instr. 1986. Vol. 57. P. 1688–1689.

- [24] Pohl D.W. // Rev. Sci. Instrum. 1987. Vol. 58. P. 54–57.
- [25] Meixner A.J., Bopp M.A., Tarrach G. // Appl. Opt. 1994. Vol. 33. P. 7995.
- [26] Bhushan B., Koinkar V.N. // Appl. Phys. Lett. 1994. Vol. 64. P. 1653–1655.