

反射式扫描近场光学显微镜及其成像

王 刚 赵 钧 刘 静 勇 张 培 林

(清华大学现代应用物理系和单原子分子测控中心 北京 100084)

提要 介绍了一种光纤探针同时作为光源和探测器的反射式扫描近场光学显微镜, 该装置通过采用相干探测、偏振分光等技术克服了该类显微镜所普遍面临的噪声背景干扰问题, 具有较高的光学信噪比, 并通过样品纵向振动调制锁相实现了对样品表面光强梯度信号的探测成像, 进一步改善了成像质量。成像研究表明该装置可对近场衰逝分量进行有效探测并实现了超衍射极限成像。

关键词 SNOM, 反射模式, 衰逝波, 相干探测, 光强梯度

1 概 述

扫描近场光学显微镜(Scanning Near-field Optical Microscope, SNOM)由于突破了传统光学衍射极限的限制, 实现了百纳米乃至十几个纳米尺度的成像, 同时又兼具传统光学成像的优点: 无损伤、可通过改变光波长、偏振实现多对比成像等, 因而引起了物理、化学、生物、材料等科学领域的广泛重视。

SNOM 的成像原理最早于 1928 年由 Synge 提出^[1], 由于微位移控制技术方面的困难, SNOM 直至 80 年代中期才真正在实验室获得成功^[2]。此后有关报道逐年增多, 先后出现几十种不同结构的 SNOM^[3, 4]。各类 SNOM 都可根据微光源和微探测器相对于被观测样品的位置分为透射^[5~7]和反射式(reflection)^[8~10]两类, 前者的微光源和微探测器分居样品的两侧, 后者的微光源和微探测器则位于样品同侧。由于各类反射式 SNOM(RSNOM)都不同程度地存在着噪声背景干扰、照明接收光路相干扰、收集光路数值孔径较小等问题, 实现起来难度较大, 目前国际上 RSNOM 的成像分辨率普遍不及透射式 SNOM。然而 RSNOM 对被观测样品厚度及透明度都无特殊要求, 其可观测样品范围较透射式明显要宽, 因而研究意义十分重大。

国内 SNOM 研究工作开始于 90 年代初, 近年在 PSTM 以及其它透射式 SNOM 方面陆续取得一些成果^[11~13], 但关于 RSNOM 方面的研究报道很少^[14]。鉴于 RSNOM 的重要研究意义, 我们研制成功一台光纤探针同时作为微光源和探测器的 RSNOM, 并对其超衍射极限成像特性进行了系统研究。

2 RSNOM 成像原理及装置结构

SNOM 高分辨成像的关键在于引入了近场的概念。近场是指被探测物体表面约一个探测

光波长以内的电磁场。理论研究证明受光照明物体表面的近场包括两种成份: 一种是传导波 (propagating wave), 可从近场区域向远处传播而同时存在于远场区域; 另一种是衰逝波 (evanescent wave), 其强度随距物体表面距离的增加而呈指数衰减, 因而仅存在于近场区域。传导波和衰逝波作为一个完备整体包含了物体表面结构(指表面光学特性和形貌一同形成的综合结构)的全部信息^[4]。其中传导波中包含物体表面粗结构的信息, 衰逝波中则包含样品细结构信息, 两种结构信息的界限是 Abbe 衍射极限 $\lambda/2$ 。传统的光学成像探测到的是远场, 因其中仅含传导波而只能获得物体表面粗结构信息。而近场成像则可同时探测近场传导波和衰逝波, 因为后者的存在, 所获信息中就包含了超衍射极限的物体表面结构信息。SNOM 的基本原理就是利用微探针深入到样品表面近场区域实现了对近场衰逝波的探测从而突破了传统光学衍射极限, 实现了高分辨成像。

我们研制的 RSNOM 总体结构如图 1 所示, 激光起偏后经耦合透镜聚焦注入光纤, 由光纤探针照明样品, 样品表面反射回的光信号仍由光纤探针接收, 在耦合透镜前端经格兰-泰勒棱镜偏振分束后由光电倍增管 (PMT) 接收。前置放大器输出交直流两路信号, 其中直流信号给出探针返回信号值, 交流信号进入锁相放大器。锁相的参考端由函数发生器提供, 该发生器同时驱动一压电陶瓷片以频率为几千赫兹、振幅为几十纳米的纵向振动, 从而实现了对探针返回光信号的调制。扫描控制系统利用了电子隧道显微镜的控制原理, 由步进电机实现探针、样品的预接近, 由压电陶瓷管 (PZT) 实现探针相对于样品的三维扫描控制。控制电路中包括反馈电路, 并配有控制开关可在恒高、恒强两种模式下工作。系统的主要参数调节及扫描成像由计算机进行控制管理, 我们设计开发了 Windows 环境下的 SNOM 控制软件可方便实现对整个系统的操控及图像的处理。

该 RSNOM 在结构及信号探测上具有以下几个特点:

1) 光纤探针同时作为光源和探测器, PMT 接收到的从光纤返回的信号可表达为

$$V = A |E_{\text{fib}} + E_s(d; x, y)|^2 + A |E_{\text{fib}}'|^2 \quad (1)$$

其中 E_{fib} 为光纤探针端面的相干反射信号, E_{fib}' 为光纤内部背向噪声散射信号, E_s 为经探针耦合得到的样品表面反射信号, d 为探针样品间距。式中第一项表明探针尖端表面和样品表面间可近似看成一个法-珀腔, 因而所得信号为两表面的相干信号。探针表面很小, 且反射系数低, 故而该法-珀腔具有较低的品质因数。由于光纤探针对样品表面近场的干扰, 它从近场中耦合出的可在光纤内传播的传导波 E_s 与样品表面形貌、折射率及探针样品间距的依赖关系十分复杂, 无法给出严格的解析形式。但从定性角度来看, E_s 应近似具有如下形式

$$E_s(d; x, y) = E_{s0}(d; x, y) \exp[-\alpha(x, y)d] \exp\{i[\omega t + \varPhi(d; x, y)]\} \quad (2)$$

式中的 $\exp(-\alpha d)$ 反映近场衰逝波的指数衰减特性, 由于存在探针的耦合作用, E_s 只是近似呈指数衰减形式, 因此 E_{s0} 仍与 d 有关。另外, 由于 E_s 是样品表面远场、近场等各空间频谱成份叠加, 式中指数衰减因子 $\alpha(x, y)$ 及相位因子 $\varPhi(d; x, y)$ 分别与样品位置 x, y 及 d 有关, 而不是常数因子。

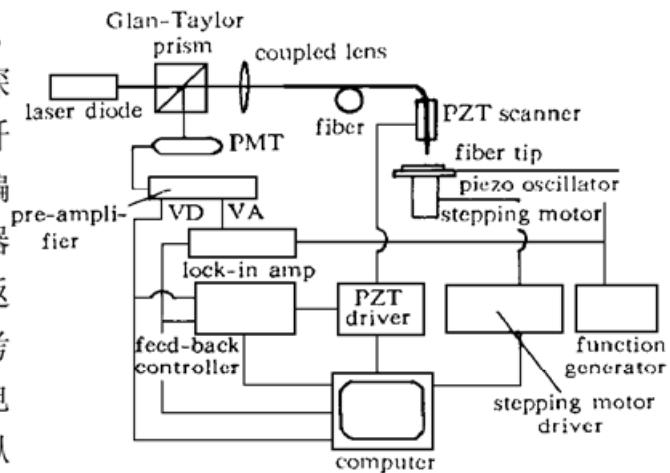


图 1 RSNOM 总体结构框图

Fig. 1 Set-up of RSNOM

在这种近似下, PMT 探测信号 V 可表达为

$$V = A \{ |E_{\text{fib}}|^2 + |E_s|^2 + 2|E_{\text{fib}}|E_{s0}(d; x, y) \exp[-\alpha(x, y)d] \cos \varphi(d; x, y) \} + A |E_{\text{fib}}|^2 \quad (3)$$

其中假定 E_{fib} 的初相位为 0。该式所反映出的一个最重要结果是产生相干项, 它使测量信号不仅与样品返回信号的振幅强度有关而且也与其相位有关, 因而这种探测结构实际上相当于一个近场相敏探测系统。对于一般的近场光学显微镜, 人们关心的重点往往是近场衰减分量在强度上的指数衰减特征, 这种衰减实际上是将传播场中与空间有关的位相项转换成了强度项, 但关于样品表面的折射率微小变化的特征则仍有相当的比例保留在近场衰减波的位相之中。因此在 SNOM 中采用相干探测手段将会实现对样品表面近场相位信息的获取, 并可获得一种新的 SNOM 成像的对比方式。

2) 采用样品纵向振动调制锁相探测技术。由于光纤探针测得的近场光信号强烈依赖于探针样品间距, 因而样品纵向振动将使测得光信号受到调制, 在小振幅调制下, PMT 测量信号 V 可表达为

$$V = A |E_{\text{fib}} + E_s(d_0)|^2 + A \left| \frac{\partial E_s}{\partial d} \right|_{d_0} \Delta d_0 \cos \Omega t + A |E_{\text{fib}}|^2 + A \left[[E_{\text{fib}} + E_s(d_0)] \frac{\partial E_s^*}{\partial d} \Big|_{d_0} + \text{c. c.} \right] \Delta d_0 \cos \Omega t \quad (4)$$

其中 d_0 为无调制下的探针样品间距, Δd_0 为调制振幅, Ω 为调制频率。锁相放大器的作用是将 V 中的 Ω 频谱分量进行提取, 因此锁相输出信号 V_s 可表达为

$$V_s = A_1 \left[[E_{\text{fib}} + E_s(d_0)] \frac{\partial E_s^*}{\partial d} \Big|_{d_0} + \text{c. c.} \right] \Delta d_0 \cos \varphi \quad (5)$$

其中 φ 为锁相放大器可调节位相与 V 中 Ω 频谱分量位相之差。将(1) 式对 d 求偏导, 可证明

$$V_s(d_0) = A_1 \left. \frac{\partial V}{\partial d} \right|_{d_0} \quad (6)$$

该式表明样品纵向振动调制锁相得到的信号实际上反映了样品表面光强纵向梯度。光强梯度探测具有以下三方面的优点: 第一, 可消除入射光在光纤中传播时产生的背向散射引入的杂散光信号 E_{fib}' 。一般 SNOM 都采用光源斩波锁相探测技术, 这时入射光在光路中传播引入的杂散光与反射回的信号光同时受到调制, 因此锁相后并未消除上述噪声干扰。而通过样品振动则只使样品返回光信号受到调制, 这样经过锁相就可有效抑制其它光噪声干扰。第二, 光强梯度信号是对光纤端面和样品表面反射光场强叠加后的光强进行纵向偏微分的结果, 因此其中仍含有相干项。而样品和光纤端面各自的反射光强信号则分别作为倍频调制项和非调制项被锁相放大器滤除。因此光强梯度探测从技术上进一步提高了前述相干探测的对比度。第三, 光强梯度信号使得近场光信号的高空间频谱分量相对于光强信号有更高的放大倍数, 因而其成像分辨率从理论上要高于光强探测^[3], 这一特性对提高 RSNOM 的分辨率指标无疑是有益的。

3) 采用偏振分光探测技术。即通过探测与入射光正交的偏振光分量从而减少入射光本身在光路中各种光学元件表面反射的杂散光的影响。理想情况下, 上述散射光一般与入射光的偏振方向保持一致。但对光纤则不然, 有如下几种效应将会引起偏振光在光纤中传播时发生偏振变化: 第一种是光纤的弯曲引起光纤内部折射率微变导致偏振改向; 第二种是普通光纤的多导

波模式本身就具有偏振方向不断变化的特征;另外光纤探针的形状以及探针样品间的近场相互作用也将对光的偏振产生影响,这样经过样品反射回来的光就具有了垂直于入射偏振方向的偏振分量,可与上述杂散光偏振相区别,从而达到偏振分光探测的目的。

3 RSNOM 成像研究

近场光学理论可以证明 SNOM 实现超衍射极限成像首先要有效探测近场衰逝波。在上述 RSNOM 中探针是热拉伸法制成的裸光纤探针,针尖点直径约为 100 nm,这时的照明光不仅仅来自光纤最顶端,因而照明微光源并非严格的近场光源,探针接收到的信号将同时含有传导波和衰逝波。在这种情况下,所设计的 RSNOM 能否有效测量近场,衰逝分量是否具有足够的信噪比是成像研究中最需要证明的关键问题。为此我们以两种不同周期结构的光栅为样品对不同间距下的成像结果进行了研究,得到的图像分别如图 2 和图 3 所示,其中图 2 为对 1000 L/mm 全息光栅探针样品间距分别为 0.7 μm, 3 μm, 5 μm, 15 μm 的成像结果,图 3 为对 2400 L/mm 原刻光栅探针样品间距分别为 30 nm, 200 nm, 250 nm, 370 nm 的成像结果,两光栅均以铝为衬底材料。对 1000 L/mm 光栅,光栅条纹间距为 1 μm,大于探测光波长,空间频谱分析可知含有该周期结构的信息的频谱成份为传导波,从图 2 中可以看到在探测距离远超出近场的范围内均可得到这种周期结构的图像,这表明 RSNOM 裸探针的测量信号中含有传导波成份,并且能够在远场成像的实验结果也与理论分析相符。

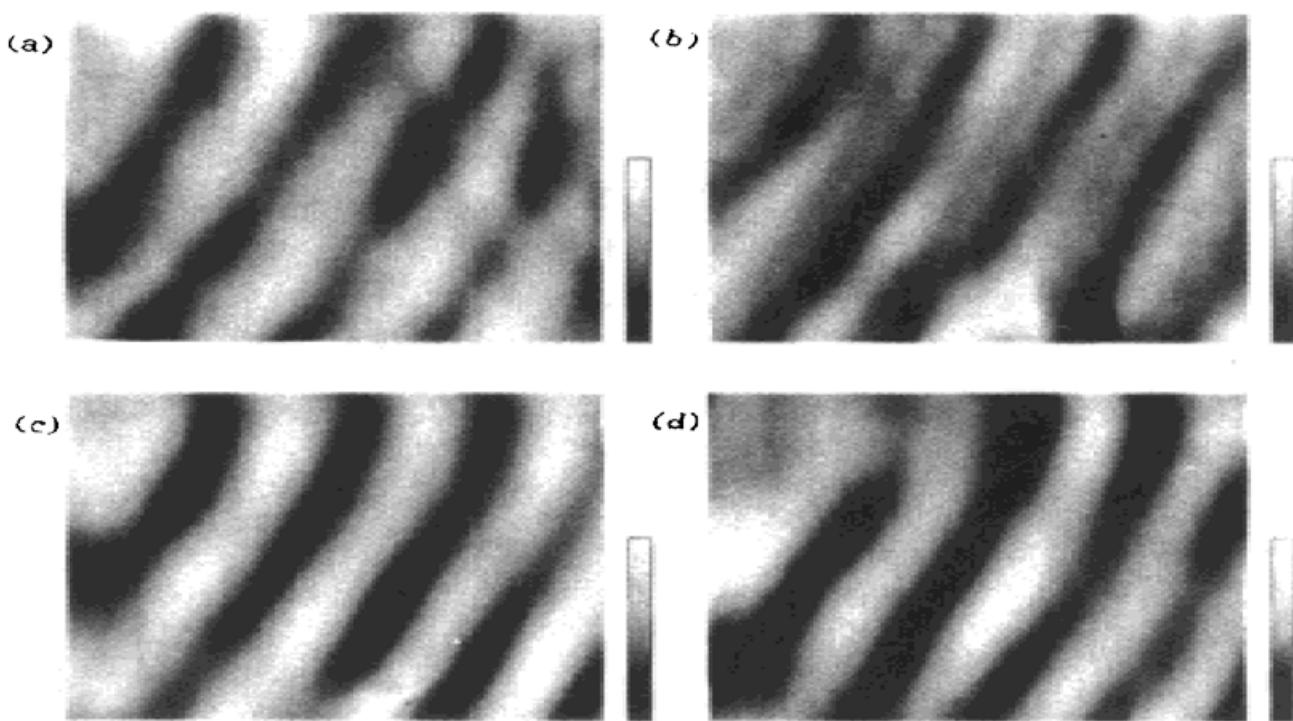


图 2 不同探针样品间距 d_0 下的 1000 L/mm 光栅图像

(a) 0.7 μm; (b) 3 μm; (c) 5 μm; (d) 15 μm. 扫描范围: 3.8 μm × 3.8 μm

Fig. 2 The images of the 1000 lines/mm grating with different tip-sample distances d_0

(a) 0.7 μm; (b) 3 μm; (c) 5 μm; (d) 15 μm. scanning scope: 3.8 μm × 3.8 μm

对于 2400 L/mm 光栅,光栅条纹间距为 417 nm,小于探测光波长,含有该结构信息的空间频谱为衰逝场,因而只能在近场区域被探测,图中可以看到随着探测距离的增加光栅条纹的

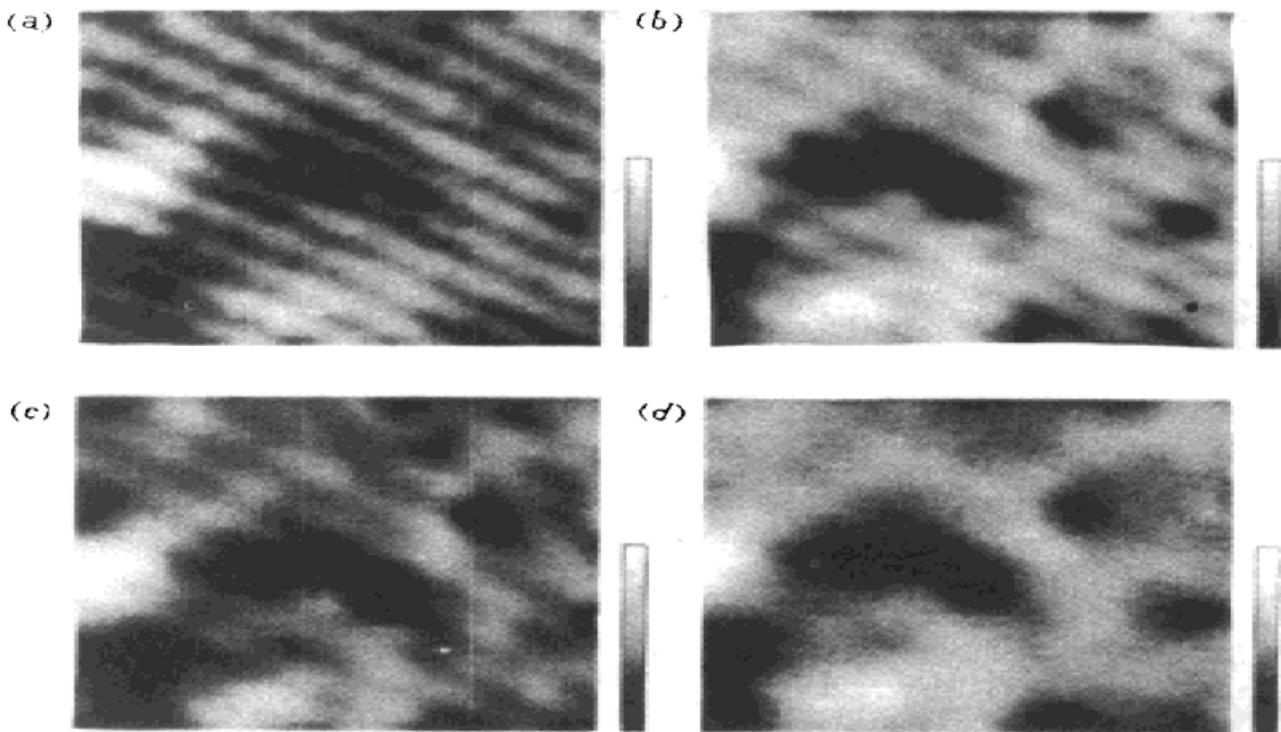


图 3 不同探针样品间距 d_0 下的 2400 L/mm 光栅图像

(a) 30 nm; (b) 200 nm; (c) 250 nm; (d) 370 nm. 扫描范围: $3.8 \mu\text{m} \times 3.8 \mu\text{m}$

Fig. 3 The images of the 2400 lines/mm grating with different tip-sample distances d_0

(a) 30 nm; (b) 200 nm; (c) 250 nm; (d) 370 nm. scanning scope: $3.8 \mu\text{m} \times 3.8 \mu\text{m}$

图像清晰度明显变差, 到 370 nm 时周期结构基本消失。该现象表明反映光栅周期的空间频谱分量随 d_0 增大而衰减, 这正是近场衰逝波的特征。同时还可以看到, 各图像都存在着很多不规则起伏, 其横向尺度一般大于光栅条纹间距, 而且各图起伏十分相近, 这些结果表明样品表面的粗结构信息可在比探测光栅周期结构更远的探针样品间距处被探测, 因而对应于这些结构的空间频谱主要是传导波和衰减较慢的衰逝波。另外, 上述无规则起伏的反差很大, 甚至高于光栅条纹峰谷的反差, 而实际的原刻光栅表面形貌则应以光栅条纹为主, 无规起伏不应如此剧烈。这一现像表明 RSNOM 所获光学图像并不单纯反映样品表面的形貌, 而且包括样品表面折射率等光学性质变化导致的样品表面反射率变化的信息。实验所用光栅表面为 Al 膜, 引起表面反射率发生变化的成因主要有样品表面不同程度氧化、吸附水气和其它大分子集团等。

RSNOM 成像的一个重要指标是分辨率, 图 4 给出了扫描范围为 $0.9 \mu\text{m} \times 0.9 \mu\text{m}$ 时对 2400 L/mm 光栅所成恒光强梯度像。所谓恒光强梯度图像指的是以光强梯度为反馈信号控制探针样品间距, 从而得到反映高度变化的图像。图中 (a), (b) 分别为二、三维灰度图, (c) 给出了横截条纹方向的一维扫描图(扫描方向与光栅条纹相垂直)。从(c) 可知平均条纹深度为 10 nm, 条纹周期为 420 nm。由于光栅由准正弦形刻刀刻制而成, 因而测得的近似正弦形的光栅条纹图像与真实形貌相符。不过 (c) 中反应的条纹深度与真实深度有很大差距, 其原因在于恒光强梯度模式下得到的高度图像反映的是样品表面等光强梯度面的起伏而不是样品本身的起伏, 两者的差异进一步表明样品形貌并非光学成像的唯一敏感因素, 同时也表明采用光强梯度反馈并不是真正的恒探针样品间距的控距方法, 这是各种光学反馈控距所普遍面临的问题。从图中的结果可给出系统的横向分辨率。以光栅条纹一半为标准可算得 RSNOM 分辨率为 200

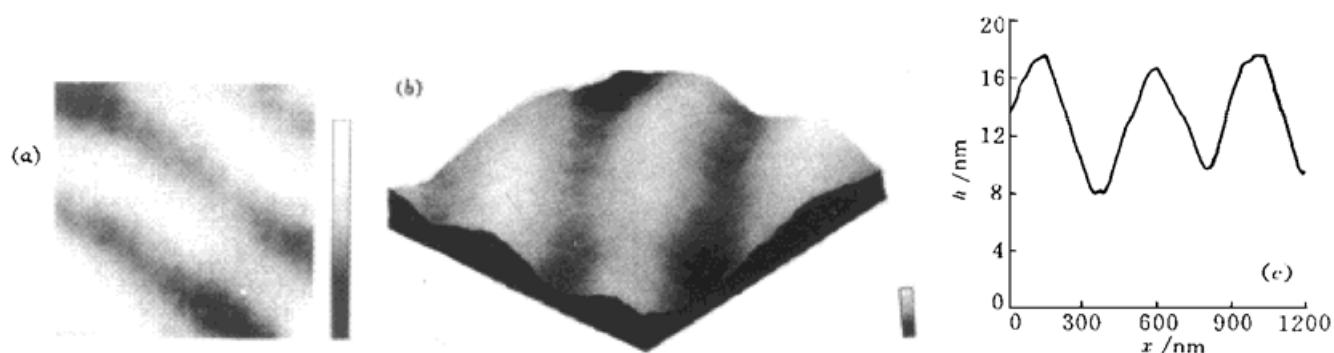


图4 小范围 2400 L/mm 光栅恒光强梯度像

(a) 二维灰度图; (b) 三维灰度图; (c) 横截条纹方向的一维扫描图。扫描范围: $0.9 \mu\text{m} \times 0.9 \mu\text{m}$

Fig. 4 The constant light intensity gradient image of the 2400 lines/mm grating with small scope

(a) 2D gray image; (b) 3D gray image; (c) cross-sectional view along the direction vertical to the grating grooves.
scanning scope: $0.9 \mu\text{m} \times 0.9 \mu\text{m}$ nm, 优于 $\lambda/3$, 表明系统已实现超衍射极限成像。得到的结论与理论相符。

参 考 文 献

- 1 E. H. Synge. A suggested method for extending microscopic resolution into the ultra-microscopic region. *Philosophical Magazine*, 1928, **6**(35): 356~ 362
- 2 D. W. Pohl, W. Denk, M. Lanz. Optical stethoscopy: image recording with resolution $\lambda/20$. *Appl. Phys. Lett.*, 1984, **44**(7): 651~ 653
- 3 E. Betzig, J. K. Trautman. Near-field optics: microscopy, spectroscopy, and surface modification beyond the diffraction limit. *Science*, 1992, **257**(5067): 189~ 195
- 4 D. Courjon, C. Bainier. Near field microscopy and near field optics. *Rep. Prog. Phys.*, 1994, **57**(10): 989~ 1028
- 5 R. Toledo-Crow, P. C. Yang, Y. Chen et al.. Near-field differential scanning optical microscope with atomic force regulation. *Appl. Phys. Lett.*, 1992, **60**(24): 2957~ 2959
- 6 M. H. P. Moers, N. F. van Hulst, A. G. T. Ruiter et al.. Optical contrast in near-field techniques. *Ultramicroscopy*, 1995, **57**(2/3): 298~ 302
- 7 R. C. Reddick, R. J. Warmack, T. L. Ferrel. New form of scanning optical microscopy. *Phys. Rev. B*, 1989, **39**(1): 767~ 770
- 8 J. A. Cline, M. Isaacson. Comparison of different modes of reflection in near-field optical imaging. *Ultramicroscopy*, 1995, **57**(2/3): 147~ 152
- 9 D. Courjon, J.-M. Vigoureux, M. Spajer et al.. External and internal reflection near-field microscopy: experiment and results. *Appl. Opt.*, 1990, **29**(26): 3734~ 3740
- 10 H. Bielefeldt, I. Horsch, G. Krausch et al.. Reflection-scanning near-field optical microscopy and spectroscopy of opaque samples. *Appl. Phys.*, 1994, **A59**(2): 103~ 108
- 11 Guo Ning, Wu Shifa, Xie Dekuan et al.. Studies of imaging experiment for photon scanning tunneling microscopy. *Chinese J. Lasers*, 1994, **B3**(2): 159~ 165
- 12 X. Zhu, G. S. Huang, H. T. Zhou et al.. A novel ultrasonic resonance sample-tip distance regulation for near field optical microscopy and shear force microscopy. *Solid State Commun.*, 1996, **98**(7): 661~ 664
- 13 Han Tao, Gao Duntang, Du Sidan. NFOM and the study of fish scale plates. *Chinese J. Lasers* (中国激光), 1995, **22**(7): 506~ 510 (in Chinese)
- 14 Wang Gang, Zhao Jun, Zhang Peilin. Reflection scanning near-field optical microscope. *Tsinghua Science and Technology*, 1996, **1**(3): 242~ 245

Reflection Scanning Near-field Optical Microscope and its Imaging

Wang Gang Zhao Jun Liu Jingyong Zhang Peilin

(Department of Modern Applied Physics and Center of Atomic and Molecular Science,
Tsinghua University, Beijing 100084)

Abstract A novel reflection scanning near-field optical microscope (RSNOM) which uses a fiber probe as both the light source and detector was developed. By means of interference detecting and polarization beam-splitting detecting, the RSNOM eliminated the background noise disturbance which is commonly encountered in this kind of SNOM, and a high optical signal/noise ratio was achieved. Moreover, by vertically vibrating the sample, the light signal was modulated and detected with a lock-in amplifier, and the light intensity gradient imaging of the sample surface was realized, which further improved the image quality. This research shows that the RSNOM could detect the evanescent near-field wave effectively, and the image with a super-diffraction-limit resolution was obtained.

Key words SNOM, reflection mode, evanescent wave, interference detection, light intensity gradient