

扫描近场光学显微镜及其初步应用*

刘秀梅 王 佳 李达成

(清华大学精密仪器系精密测试技术及仪器国家重点实验室 北京 100084)

提要 介绍的扫描近场光学显微镜能够以探针作为亚微米光源或探测器以及受抑全反射等三种工作方式探测样品,在没有样品-探针间距控制的情况下对全息光栅、脂质体以及沸石粉末等进行了扫描成像,并获得了超衍射极限的光学分辨率,其中最优分辨率可达约 100 nm。

关键词 扫描近场光学显微镜,光子扫描隧道显微镜,受抑全反射

扫描近场光学显微镜(SNOM)的分辨率突破了传统光学显微镜分辨率的衍射极限(即 $\lambda/2$),自 80 年代中期以来获得了很大的发展。到目前为止国外报道的 SNOM 的纵向分辨率最优可达到 0.01 nm^[1]。SNOM 同时具有传统光学显微镜及扫描探针技术的优点,能对各种人工微细结构,如光栅^[2]、光波导^[3]、半导体结构^[4]以及磁光材料^[5]、量子器件^[6]、生物样品^[7]等成像,展示其在材料科学、生物学、信息科学等领域广阔的应用前景。SNOM 与光谱技术相结合可实现定域光谱^[8]、荧光探测^[9]以及单原子、分子的探测与识别^[10]。因此,SNOM 相对于扫描探针技术的家族中的其他成员如扫描隧道显微镜(Scanning Tunneling Microscope: STM)和原子力显微镜(Atomic Force Microscope: AFM)等,有着不可替代的优点。

1 系统装置

从 SNOM 的发展来看,扫描近场光学显微镜的工作方式有多种^[11]。按探针在系统中的作用可分为“照明式”和“探测式”。在图 1(a)所示的“照明式”结构中,表示激光耦合进探针,将针尖作为微小光源照明样品,将照明场局限在很小的局部区域内,用常规的远场光学元件探测透过样品的光(或荧光)。这种方法适合于对光散射比较严重的样品。但是由于探针的尺寸很小,所产生的辐射光很弱,对相应的探测电路要求比较高。图 1(b)所示的“探测式”用常规的远场光学方法照明样品,探针作为探测器探测样品表面的近场光。图 1(c)所示为反射式 SNOM,探测的是样品表面反射的近场光,即探针同时作为光源和探测器。图 1(d)所示为基于受抑全内反射原理工作的光子扫描隧道显微镜(PSTM)。照明与探测方式不同,所探测信号携带的样品信息也就不同。一般根据不同的应用目的,选择不同的工作方式。

我们所设计的扫描近场光学显微镜系统可以实现三种工作模式,见图 2(a),(b),(c),分别为“照明式”、“探测式”和 PSTM 形式。

* 国家自然科学基金(39470204)资助项目。

收稿日期: 1998-03-20; 收到修改稿日期: 1998-06-04

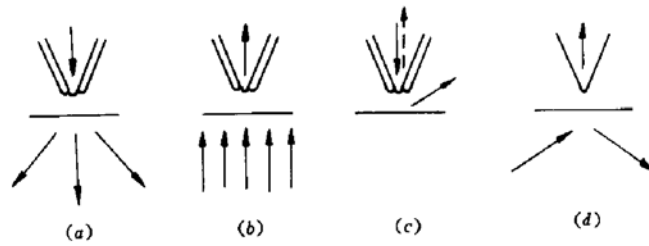


图 1 不同工作方式的 SNOM 原理

Fig. 1 Principle of SNOM with different operation modes

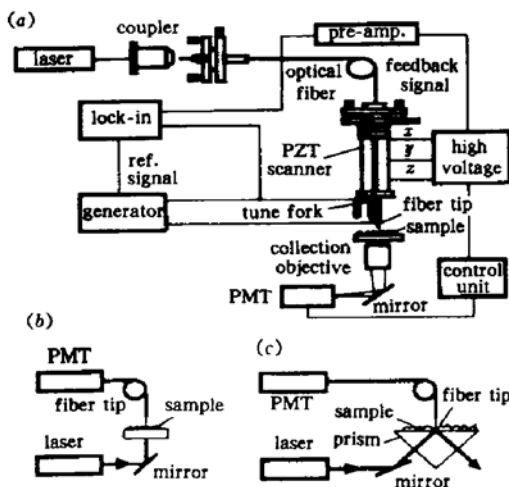


图 2 三种工作方式的 SNOM 系统简图

Fig. 2 Schematic of the SNOM system with three different operation modes

扫描探针材料为截止波长在 1330 nm 的单模通讯光纤。制备采用热拉法或再辅以腐蚀法^[12]。即用功率在 0~10 W 范围连续可调的 CO₂ 激光器和自制的拉伸装置对光纤进行加热和拉伸,形成过渡区为抛物线形状的探针,针尖尺寸可以控制在 60~200 nm 之间。图 3(a) 为用热拉法得到的典型探针的扫描电镜照片,图 3(b) 为图 3(a) 针尖部分的局部放大。从两幅图中可以看出,宏观上针尖为抛物线形状,而在放大后的图中可以清楚地看到一个很小的针尖,尺寸为 65 nm;同时过渡区域很短。因此这种形状的针尖满足了高传输效率所必须的条件^[13,14]。

探针由两个压电陶瓷管(PZT)驱动实现 *xyz* 三个方向的扫描。其中 *xy* 方向的扫描由内部的四分压电陶瓷管($D = 8 \text{ mm}, d = 6 \text{ mm}, L = 25 \text{ mm}$)

实现。四分陶瓷管外套的大陶瓷管实现 *z* 方向样品-针尖间距的细调和反馈控制。其尺寸为 $D = 20 \text{ mm}, d = 18 \text{ mm}, L = 20 \text{ mm}$ 。扫描范围由陶瓷的材料、尺寸以及所施加的电压决定。实验中最的施加电压可达 $\pm 400 \text{ V}$,通过软件可以连续变化所施加的电压和扫描的线数和点数。用激光干涉测振仪^[15]和电感测微仪可以对扫描范围以及电压-位移的非线性关系曲线分别进行动态和静态测量。而且测量结果表明两种测量方法得到的非线性曲线有所不同^[16]。样品与针尖的间距靠检测石英音叉谐振电流来控制^[17]。

xyz 扫描管固定在一个五维调节架上。该调节架可以实现 *xyz* 三个方向的平动以及除绕 *z* 轴外的转动。*xyz* 的调节范围为 3.2 mm,角度调节范围为 8.5°,这样可以实现大范围的样品选区以及样品-针尖的垂直性调节。

图 2 (a) 为照明式 SNOM 系统,将输出功率为 1 mW,波长为 632.8 nm 的 He-Ne 激光通过耦合器耦合到光纤的切平端,另一端为探针针尖,作为纳米光源,对被探测样品实现局部照明。透过样品的近场光由一个 40×(NA=0.65)的显微物镜收集,通过反射镜到光电倍增管(PMT),将微弱的近场光转化成电信号,再经过低噪声电压放大后,通过 12 位模拟/数字转换电路采集到计算机中,经过图像处理获得代表样品透过率信息的光学图像。

在结构设计上使针尖与光电倍增管的距离等于光学显微镜镜筒的标准长度,即 160 mm。探针的针尖到显微物镜前端面的距离等于物镜的工作距。

这种工作方式适合于探测对光散射比较严重的样品,特别是生物活体样品和液体中的样品。但是由于探针的尺寸很小,所产生的辐射光很弱,对相应的探测电路要求比较高。同时,由于结构上要求探针到物镜的距离为物镜本身的工作距离。因此相应的装载样品的基底必须很薄,而且透过率均匀。

在图 2 (b) 所示的探测式 SNOM 系统中,He-Ne 激光器发出的光经过反射镜从样品背面照明样品,透过样品的光在样品的表面形成近场光,光纤探针作为微小探测器进入样品的近场探测近场光。这种工作方式的缺点是整个样品都被照亮,各探测点的光相互之间容易形成背景光,所探测的信号不仅仅代表针尖探测点的信息,而且含有其他点的信息,其优点是易于实现。

图 2 (c) 表示 PSTM 的工作方式,即用受抑全反射的照明方式在样品的表面形成倏逝波场,并用探针探测该波场。这种方法的缺点是:首先,为了得到强的倏逝波场,其照明面积及辐射强度都比较大;光学图像的对比度不仅与样品的表面轮廓有关,而且受到光束入射角、波长、偏振态、介质折射率、厚度和吸收以及光纤探针形态等诸多因素的影响,图像的解释始终是个难题。其次,探针与倏逝波场的相互作用无横向限制,因此在倏逝波场的整个衰减区中的光都可能进入光探针,散射光和倏逝波场都对检测信号作出贡献,使得信噪比下降。这种结构在系统组建初期用于检验光纤探针的质量^[18]。

2 扫描图像

SNOM 从结构上可以实现三种工作模式,本文将给出用图 2 (b) 所示的工作模式下得出的初步实验结果。实验中所采用的样品包括周期为 $1\ \mu\text{m}$ 的全息光栅、脂质体以及沸石粉末。压电陶瓷管(扫描器)的扫描范围用文献[15]中的方法进行了标定。

由于音叉的尺寸较长,将探针粘在音叉上比将探针直接固定在 PZT 管上针尖的扫描范围要大。实验中未采用样品-探针的间距控制,因此我们只对针尖直接固定在陶瓷管上而且伸出长度约为 $8\ \text{mm}$ 时做了标定, xy 方向的扫描范围为 $18\ \mu\text{m} \times 13\ \mu\text{m}$ 。在施加 $1000\ \text{V}$ 电压的情况下,陶瓷管 z 向伸缩范围为 $4\ \mu\text{m}$ 。电压最小变化量为 $0.1\ \text{V}$ 。因此 z 向的最小位移为 $0.4\ \text{nm}$ 。

在以下实验中均未采用样品-探针间距的反馈控制,针尖靠近样品靠粗调和细调两个环节。先用五维调节架缩小样品-探针的间距,并用 $75\times$ 的光学显微镜监视。当间距比较近时(约为 $4\ \mu\text{m}$),调节大压电陶瓷管所加的电压,使之沿管轴方向伸缩,使针尖逐步逼近样品。当样品和探针靠得很近(根据偏置电压判断)时,间距每缩小一次就进行一次图像的采集。若 z 向电压加到满量程,还不能获得分辨率较高的图像,则将陶瓷管缩回,从粗调节开始重复上述过程。直

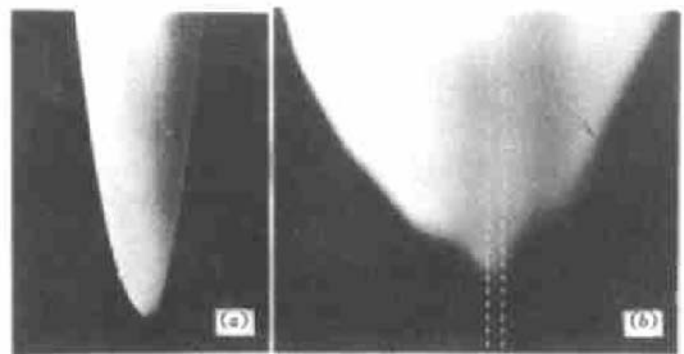


图 3 探针的扫描电镜图像

(a) 放大 $5000\times$, 针尖为抛物线形状;

(b) 放大 $50000\times$, 针尖尺寸为 $65\ \text{nm}$

Fig. 3 SEM photo of pulling-heating method

(a) Fiber probe with parabolic taper shape, $5000\times$;

(b) Local magnification of (a) ($50000\times$), tip diameter of $65\ \text{nm}$

至探针和样品碰撞位置。为保证图像信息的可靠性,通过交换 xy 轴对同一区域进行两次正交扫描。结果表明,除了由于 xy 方向的扫描范围不同引起的差别外,两种情况下的图像基本相同。

下面所有图像都是在不知道样品-探针精确间距的情况下获得的。但由于逐步逼近的步距是可以控制的,以及从所获得光学分辨率来看,样品-探针间距在 100 nm 左右甚至更近。在实验过程中发现随着样品-探针间距的靠近能够被分辨的细节更多。

采用这种方式有其好的一面,各种形式的样品-探针的剪切力控制方法都有可能给光学图像带来伪像^[19],这种所谓的恒高工作模式可以避免这一点。但也存在很大的缺点:样品-探针的间距不能够定量地控制,由于样品本身的凹凸不平,使得各点样品-探针的间距并不相同,因此扫描区域内各点的光学分辨率也不同;具有相同大小的针尖,在剪切力控制方式下可以使样品-探针间距靠得更近,从而获得更高的光学分辨率;这种工作方式可以说是一种破坏性实验,每扫描一种样品,都必须更换新的探针。

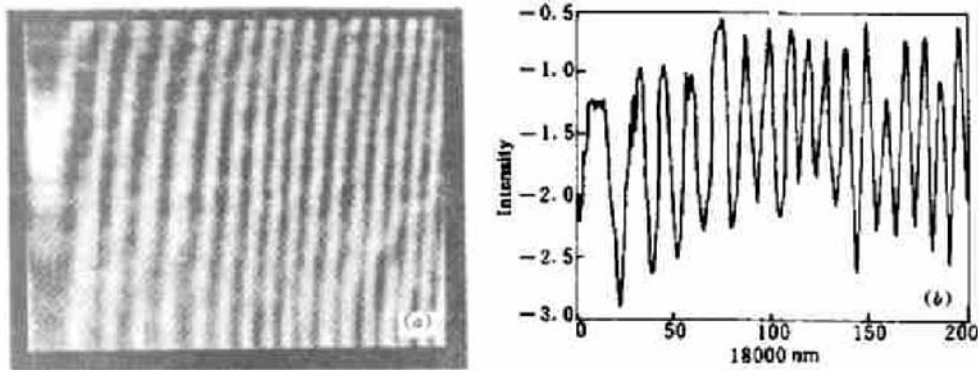


图 4 (a) 1000 线/mm 全息光栅扫描图像,扫描范围 $18 \mu\text{m} \times 13 \mu\text{m}$; (b) 沿扫描图像 x 方向的横截线

Fig. 4 (a) SNOM image of a 1000lines/mm holographic grating with a scanning range of $18 \mu\text{m} \times 13 \mu\text{m}$;

(b) Cross section along x direction of the left image

(1) 全息光栅 实验中所采用的全息光栅为实验室自制,由于实验条件所限,光栅越细,条纹的对比度越差。在可以分辨的情况下最细只能达到 1000 线/mm (SEM 标定结果)。探测式 SNOM 系统所获得的扫描图像如图 4 (a) 所示,深色表示透过率低,即光栅的黑线条。扫描范围的不对称性由四分压电陶瓷管电极划分的不均匀性引起。从图中可以看出,在 $18 \mu\text{m}$ 范围内包含有 18 个周期,这与扫描电镜的标定结果是相符的。从图像中可以看出,从左到右光栅的线条逐渐变密,这是由扫描压电陶瓷管的电压-位移关系的非线性引起的。从上到下图像逐渐模糊。这是由于样品和针尖并不严格垂直,使得在扫描过程中从下到上样品-探针的间距逐渐变小,并没有保证严格意义上的恒高模式,从而上方的图像比较清楚。图 4 (b) 为图 4 (a) 的一条扫描线(横截面)。如果采用文献[20]中确定分辨率的方法,从这幅图中可以看出,图像的分辨率优于 500 nm。

(2) 脂质体 脂质体是将豆类脂肪溶在水中。脂肪分子有两个极,其中一个极亲水,一个极疏水,多个脂肪分子的疏水端沿球茎方向结合成球状体,即分子团。球体中间含有一定的水。制备样品的方法不同,脂质体分子团的大小不同。实验中所采用的样品分子团的大小在几百纳米到几个微米之间。图 5 为对脂质体进行扫描成像的结果。从图中可以看出脂质体中间透过率低,而周围的透过率相对较高。采用文献[20]中确定分辨率的方法,如图 5 (b) 所示为对第

100 条扫描线的横截线,为清楚起见,只取了一部分。凹陷(图 5 (a) 中最左边第 100 线处的脂质体)的半宽度约为 130 nm,如果再考虑因针尖的尺寸引起的图像展宽效应,则分辨率在 100 nm 左右。在图中还可以看到一些分辨得不是很清楚的颜色较深的团状物,这是由于这些分子团离探针间距较远的缘故。图中的坐标表示扫描点数为 100×200 。

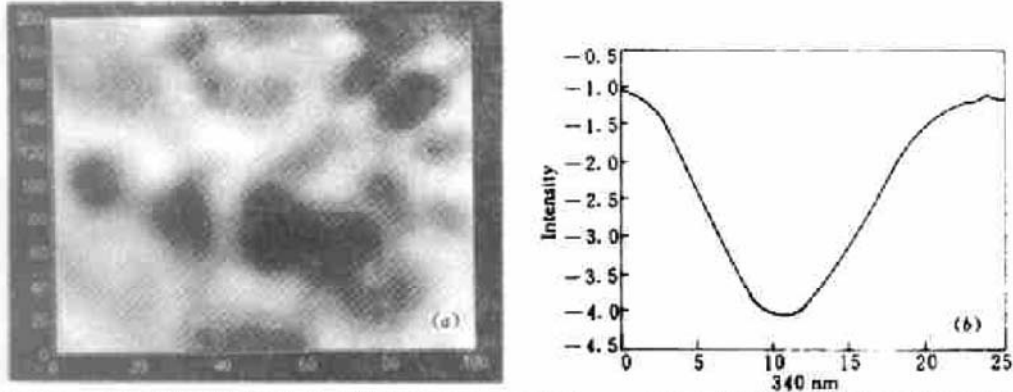


图 5 (a) 脂质体扫描图像,扫描范围 $2.7 \mu\text{m} \times 4.6 \mu\text{m}$; (b) 扫描图像(第 100 线)的横截线

Fig. 5 (a) SNOM image of liposome with a scanning range of $4.6 \mu\text{m} \times 2.7 \mu\text{m}$;

(b) Cross section of the left image along the 100 line

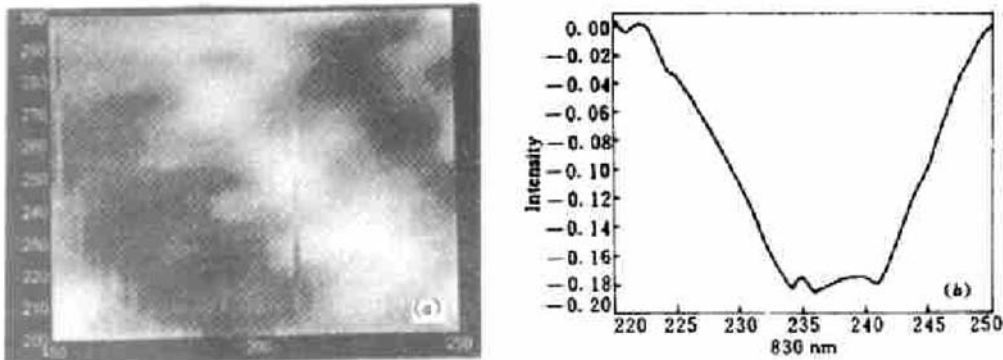


图 6 (a) 沸石粉扫描图像,扫描范围 $2.5 \mu\text{m} \times 2.9 \mu\text{m}$; (b) 第 265 线处的横截面

Fig. 6 (a) SNOM image of BaCO_3 with scanning range of $2.9 \mu\text{m} \times 2.5 \mu\text{m}$;

(b) Cross section of the 265 line; half width of the valley is about 350 nm

(3) 沸石粉末 将沸石粉末溶在去离子水中,并将溶液滴在载玻片上,等水干到一定程度后再扫描,由于碳酸钡微溶于水,因此很难形成均匀的溶液。有的多个粒子粘在一起。图 6 (a) 为所得到的碳酸钡粒子的扫描光学图像,图 6 (b) 为第 265 扫描线处的横截面。从图中可以看出来,凹陷的半宽度约为 350 nm。

综上所述,通过利用所设计的 SNOM 系统对全息光栅、脂质体、沸石粉等样品进行探测,实验结果表明最优分辨率约为 100 nm,打破了衍射极限。如果再辅以样品-探针间距的控制技术,有望获得更高的分辨率,并实现对生物活体样品的成像。

参 考 文 献

- 1 F. Zenhausern, Y. Martin, H. K. Wickramasinghe. Scanning interferometric apertureless microscopy: optical imaging at 10 angstrom resolution. *Science*, 1995, 269(5227):1083~1085
- 2 Y. Chen, R. K. Kupka. Analysis of the near field image formation of dielectric gratings. *Ultramicroscopy*, 1995, 57:153~159
- 3 S. M. Lindsay, C. D. Poweleit, D. H. Naghski *et al.*. Near-field measurement of optical channel waveguides.

- Proc. SPIE*, 1995, 2535:132~136
- 4 G. Guttroff, J. M. Keto, C. K. Shih *et al.*. A design of reflection scanning near-field optical microscope and its application to AlGaAs/GaAs heterostructures. *Appl. Phys. Lett.*, 1996, 68(25):3620~3622
 - 5 T. J. Silva, S. Schultz, W. Dieter. Scanning near-field optical microscope for the imaging of magnetic domains in optically opaque materials. *Appl. Phys. Lett.*, 1994, 65(6):658~660
 - 6 H. Ghaemi, C. Cates, Goldberg *et al.*. Low temperature near field spectroscopy and microscopy. *Ultramicroscopy*, 1995, 57:165~168
 - 7 M. H. P. Moers, A. G. T. Ruiter, A. Jalocha *et al.*. Biological applications of near-field optical microscopy. *Proc. SPIE*, 1995, 2535:94~99
 - 8 Eric Betzig, Jay K. Trautman. Near-field optics: microscopy, spectroscopy, and surface modification beyond the diffraction limit. *Science*, 1992, 257(5067):189~195
 - 9 M. H. P. Moers, A. G. T. Ruiter, A. Jalocha *et al.*. Detection of fluorescence in situ hybridization on human metaphase chromosomes by near-field scanning optical microscopy. *Ultramicroscopy*, 1995, 61:279~283
 - 10 Robert C. Dumm, Errol V. Allen, Stephen. Joyce *et al.*. Near-field fluorescent imaging of single proteins. *Ultramicroscopy*, 1995, 57:113~117
 - 11 H. Heinzelmann, D. W. Pohl. Scanning near-field optical microscopy. *Appl. Phys. A*, 1994, 59(2):89~101
 - 12 Liu Xiumei, Wang Jia, Li Dacheng. Study and fabrication of optical fiber tips for scanning near-field optical microscope. *Optic-electronic Engineering* (光电工程), to be published (in Chinese)
 - 13 L. Novotny, D. W. Pohl, B. Hecht. Scanning near-field optical probe with ultrasmall spot size. *Opt. Lett.*, 1995, 20(9):970~972
 - 14 Maria Garcia-Parajo, Tom Tate, Yong Chen. Gold-coated parabolic tapers for scanning near-field optical microscopy; Fabrication and optimisation. *Ultramicroscopy*, 1995, 61:155
 - 15 Liu Xiumei, Wang Jia, Li Dacheng. Discovery and discussion of low frequency vibration of four-segmented piezotube. *Piezoelectrics & Acousto-optics* (压电与声光), 1998, 20(2):130~134 (in Chinese)
 - 16 Liu Xiumei, Wang Jia, Li Dacheng. Experimental research on scanning performance of four-segmented PZT tube. in *Proc. SPIE, Photonics'98*, Beijing, China
 - 17 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 Comm.*, 1996, 98(7):661~664
 - 18 J. Schofer, M. J. Gregor, P. G. Blome *et al.*. Influence of aperture diameter on image contrast and resolution in scanning near-field optical microscopy. *J. Appl. Phys.*, 1997, 81(9):5871~5877
 - 19 B. Hecht, H. Bielefeldt, Y. Inouye *et al.*. Facts and artifacts in near-field optical microscopy. *J. Appl. Phys.*, 1997, 81(6):2492~2498
 - 20 D. Zeisel, S. Nettesheim, B. Dutoit *et al.*. Pulsed laser-induced desorption and optical imaging on a nanometer scale with scanning near-field microscopy using chemically etched fiber tips. *Appl. Phys. Lett.*, 1996, 68(18):2491~2492

Scanning Near-field Optical Microscope and Application

Liu Xiumei Wang Jia Li Dacheng

(State Key Laboratory of Precision Measurement Technology and Instrument,
Tsinghua University, Beijing 100084)

Abstract The scanning near-field optical microscope (SNOM) breaks the diffraction limit of the conventional optical microscope. It has promising applications in the fields of material science, biological engineering, and semiconductor physics, say a few. A versatile SNOM, which can operate in illumination mode, collection mode and frustration total internal reflection (TIR) mode, was developed. Several kinds of samples including holographic grating, liposome and powder of BaCO₃ were investigated. Images with an optical resolution of 100 nm were obtained.

Key words scanning near-field optical microscope, PSTM, TIR