

文章编号: 0258-7025(2002)10-0871-04

自洽场方法研究近场扫描显微镜的分辨率

武清华, 王桂英, 徐至展

(中国科学院上海光学精密机械研究所强光学开放实验室, 上海 201800)

提要 运用偶极子-自洽场理论给出探针-样品相互作用的计算公式, 并由此模拟计算近场扫描光学显微镜的系统分辨率。分析结果表明, 探针所探测的光强是被测物体感生场干涉叠加的结果, 探针与样品间的距离以及被测物体的感生光场之间的干涉是决定系统分辨率的重要原因。

关键词 自洽场, 系统分辨率, 两小球感生场的干涉

中图分类号 O 439 文献标识码 A

Study on the Near-field Scanning Optical Microscopy Based on Self-consistent Theory

WU Qing-hua, WANG Gui-ying, XU Zhi-zhan

(*Lab of High Intensity Optics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800*)

Abstract In this paper, the probe-sample interaction equations based on dipole-self-consistent theory are given, and the resolution of near-field scanning optical microscopy is calculated numerically. The analysis results show that the light intensity received by the probe is the outcome of interference of light-fields radiated by sample, and that the distance between probe and sample and the interference of light-fields radiated by sample play the important roles for the resolution of NSOM.

Key words self-consistent field, system resolution, interference between light-fields radiated by two object spheres

1 引 言

纳米技术的迅猛发展,使微结构的超分辨检测变得越来越重要。传统光学显微镜由于存在经典分辨极限而难于满足纳米探测要求。上世纪 80 年代,光学检测从利用辐射波拓展到利用隐失波,即直接从处于近场的隐失波获取成像物体的高频信息,来实现对物体的超衍射分辨成像,从而产生了近场光学扫描显微成像方法。在近场光学技术发展的近十多年来,人们发现,虽然近场扫描显微镜具有较高的分辨率,但在实际使用中,还存在一些问题。例如,1) 存在虚像。虚像的产生主要有三方面的原因:一是探针形状及结构的影响^[1]。二是系统结构及样品性质的影响^[2]。三是扫描方式的影响^[3]。2) 理论

不完备。由于探针及样品间的作用情况复杂,至今还没有一个较普遍的理论描述成像过程并预见成像结果。发展近场理论将有利于解释近场图像,探索提高近场光学显微镜系统分辨率的途径。

目前存在的近场理论有:角谱理论^[4]、有限差分域计算方法(FDTD)^[5]、偶极子-自洽场理论^[6]等。角谱理论从频谱的角度解释了近场显微镜获得超经典分辨率的原因,但难于阐明在近场条件下光与物质的微观相互作用机制。有限差分域计算方法利用麦克斯韦方程加上匹配于近场光学显微镜的边界条件,模拟计算近场光分布,但它计算量大,非常耗时。偶极子-自洽场理论把扫描探针和成像样品视为偶极子,把光场与物质的相互作用视为光场与偶

收稿日期 2001-07-31;收到修改稿日期 2001-09-14

基金项目 国家自然科学基金(No. 60078025)资助项目。

作者简介 武清华(1978—)男,中国科学院上海光学精密机械研究所硕士,主要从事近场光学研究。

极子的相互作用,简化了计算,清晰地揭示了近场条件下探针与样品的微观作用机制。

本文从偶极子-自洽场理论出发,研究两样品小球的系统分辨率以及两样品小球间感生场的干涉对探针探测的光强和系统分辨率的影响以及探针与样品间的距离对系统分辨率的影响。

2 偶极子-自洽场理论

为了求出探针所探测的光强,采用 Green 函数传播子的方法^[7]来描述近场区域的光场分布。用 N 个放在固定位置 $\vec{r}_i (i = 1, 2, \dots, N)$ 的点状偶极子表示被测物体的表面形貌,把场与粒子的相互作用等价于场与偶极子的相互作用。假设入射光场是一角频率为 ω 的单色波,则局域场 $\vec{E}(\vec{r}, \omega)$ 的表达式为

$$\vec{E}(\vec{r}, \omega) = \vec{E}^0(\vec{r}, \omega) - \mu_0 \omega^2 \sum_{i=1}^N \chi_i(\omega) \times [\mathcal{G}(\vec{r}, \vec{r}', \omega) \cdot \hat{\chi}_i(\omega)] \times \vec{E}(\vec{r}_i, \omega) \quad (1)$$

式(1)中 μ_0 为真空中的磁导率, $\vec{E}^0(\vec{r}, \omega)$ 为 \vec{r} 处的初始光场, $\mathcal{G}(\vec{r}, \vec{r}', \omega)$ 为从点源 \vec{r}' 到观察点 \vec{r} 的电磁场 Green 函数传播子。 $\hat{\chi}_i(\omega)$ 为第 i 个粒子的极化率张量。在长波长的情况下,半径为 a 的各同性小球的极化率张量 $\hat{\chi}_i(\omega)$ 可表示为

$$\hat{\chi}_i(\omega) = \alpha(\omega) \hat{U} = 4\pi\epsilon_0 a^3 \frac{\epsilon(\omega) - 1}{\epsilon(\omega) + 2} \hat{U} \quad (2)$$

其中 $\epsilon(\omega) = n^2$ 为小球的相对介电常数, n 为小球的折射率。

传播子 $\mathcal{G}(\vec{r}, \vec{r}', \omega)$ 包含两部分,即

$$\mathcal{G}(\vec{r}, \vec{r}', \omega) = \mathcal{D}(\vec{r}, \vec{r}', \omega) + \mathcal{Y}(\vec{r}, \vec{r}', \omega) \quad (3)$$

其中 $\mathcal{D}(\vec{r}, \vec{r}', \omega)$ 为直接传播子,它代表一偶极子与另一偶极子之间的直接相互作用, $\mathcal{Y}(\vec{r}, \vec{r}', \omega)$ 为间接传播子,它代表偶极子之间通过衬底表面的反射所产生的间接相互作用。直接传播子 $\mathcal{D}(\vec{r}, \vec{r}', \omega)$ 的表达式^[8]为

$$\mathcal{D}(\vec{r}, \vec{r}', \omega) = \frac{1}{4\pi} \left[\left(-\frac{1}{R} - \frac{ic}{\omega R^2} + \frac{c^2}{\omega^2 R^3} \right) \hat{U} + \left(\frac{1}{R} + \frac{3ic}{\omega R^2} - \frac{3c^2}{\omega^2 R^3} \right) \vec{e}_R \vec{e}_R \right] \times \exp[i(\omega/c)R] \quad (4)$$

其中 $\vec{R} = \vec{r} - \vec{r}'$, $R = |\vec{r} - \vec{r}'|$, 而 $\vec{e}_R = \vec{R}/R$, 且 $\vec{r} \neq \vec{r}'$ 。 \hat{U} 为单位二阶张量。

在非近场情况时,由于间接传播子 \mathcal{Y} 比直接传

播子 \mathcal{D} 小很多,一般可忽略它的贡献。在近场情况下间接传播子 $\mathcal{Y}(\vec{r}, \vec{r}', \omega)$ 的表达式为

$$\mathcal{Y}_{ij}(\vec{r}, \vec{r}', \omega) = -\frac{c^2}{4\pi\omega^2} \times \frac{3\vec{R}_M \vec{R}_M - \vec{R}_M^2 \hat{U}}{\vec{R}_M^5} \cdot \hat{M}(\omega) \quad (5)$$

其中 $\vec{r}'_M = (x', y', -z')$, $\vec{R}_M = \vec{r} - \vec{r}'_M$, $R_M = |\vec{r} - \vec{r}'_M|$, 而 $\hat{M}(\omega)$ 的表达式为

$$\hat{M}(\omega) = \frac{\epsilon(\omega) - 1}{\epsilon(\omega) + 1} \begin{pmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (6)$$

综上所述, \vec{r} 处的局域光场 $\vec{E}(\vec{r}, \omega)$ 为

$$\vec{E}(\vec{r}, \omega) = \vec{E}^0(\vec{r}, \omega) + \sum_{i=1}^N \mathcal{F}_i(\vec{r}, \vec{r}_i, \omega) \cdot \vec{E}(\vec{r}_i, \omega) \quad (7)$$

其中 $\mathcal{F}_i(\vec{r}, \vec{r}_i, \omega)$ 的表达式为

$$\mathcal{F}_i(\vec{r}, \vec{r}_i, \omega) = -\mu_0 \omega^2 / 4\pi \cdot \alpha_i(\omega) \hat{U} \cdot [\mathcal{D}(\vec{r}, \vec{r}_i, \omega) + \mathcal{Y}(\vec{r}, \vec{r}_i, \omega)] \quad (8)$$

把探针也视为一偶极子小球,结合 N 个偶极子物体小球,可写出一组 $N+1$ 个自洽方程

$$\vec{E}_i(\vec{r}_i, \omega) = \vec{E}^0(\vec{r}_i, \omega) + \sum_{j=1}^{N+1} \mathcal{F}_{ij}(\vec{r}_i, \vec{r}_j, \omega) \cdot \vec{E}_j(\vec{r}_j, \omega) \quad (i = 1, 2, \dots, N+1) \quad (9)$$

上式中 $\vec{E}^0(\vec{r}_i, \omega)$ 表示在第 i 个偶极子处的初始场,它等于初始的入射场加自由的反射场(外反射式照明方式)或初始的隐失波场(内全反射照明方式), $\vec{E}_i(\vec{r}_i, \omega)$ 表示第 i 个偶极子处的光场强度。求解该组自洽方程组便可得到探针偶极子处的光场。

3 数值计算结果与分析

应用上节探针与样品相互作用方程(9)来模拟计算物面上两小球的分辨。如图1所示,用小球 A , B 表示被测样品的形貌,其外层镀有银膜,放置在玻璃平板衬底上。小球 C 为光纤探针。相对于具有复杂结构的样品,这个模型已经做了大大的简化。下面将应用这一模型来计算系统分辨率,分析样品小球感生光场间的干涉对系统分辨率和探针扫描光强的影响,以及探针与样品间的距离对系统分辨率的影响。在计算过程中,只考虑小球 A , B 对自己的间接传播子的贡献。其他的间接传播子远小于相应的直

接传播子因而被忽略。

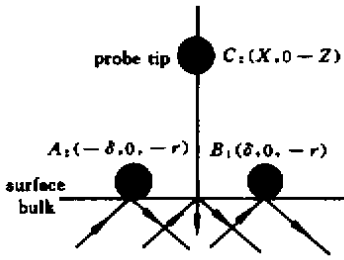


图 1 全内反射照明近场光学显微镜示意图

Fig.1 Schematic diagram for the total internal reflection SNOM configuration

在近场光学扫描显微镜中,存在两种照明方式,即外反射方式和全内反射方式^[9]。本文计算模型中采用全内反射方式,即入射光在界面发生全反射,从而在界面的另一侧产生随垂直距离 Z 指数衰减的隐失波场,照明表面小球。小球 A, B 处的初始光场可取为 $E_A^0 = E_B^0 = 1$ (归一化光场,单位为任意的电场强度的单位),其偏振方向平行于 Z 轴,探针小球 C 因为离界面的距离较远,其初始光场可近似取为 $E_C^0 = 0$ 。小球 A, B 和 C 的半径均为 $r = 10 \text{ nm}$,其对应的坐标分别为 $\vec{r}_A = (-\delta, 0, -r), \vec{r}_B = (\delta, 0, -r)$ 和 $\vec{r}_C = (X, 0, -Z)$ 。入射波长为 $\lambda = 632.8 \text{ nm}$,玻璃和金属银的折射率分别为 $n_g = 1.59, n_{Ag} = 0.06 + 4.0i$ 。将这些参数代入方程(9)中,得一组自洽的方程组,求解之,可得探针小球 C 处的光强 $I_C = |\vec{E}_C(\vec{r}_C, \omega)|^2$,其中 $\vec{r}_C = (X, 0, -Z)$ 。 I_C 由 E_A^0 和 E_B^0 推导出,其值也归一化了,单位为对应电场强度任意单位的平方。

首先考察两小球的分辨率。对照图 1 所示的模型和参数,固定 $Z = 35 \text{ nm}$,探针沿 X 方向扫描,其光强 I_C 将随探针位置 X 变化而变化。图 2 中曲线 (a)(b)(c)(d) 分别对应 $\delta = 10 \text{ nm}, 20 \text{ nm}, 30 \text{ nm}$ 和 50 nm 时探针小球 C 处扫描的光强。可以看出 $\delta = 10 \text{ nm}$ (两样品小球紧挨在一起) 时,难以分辨出这两个小球,而其他几幅图中可清晰地分辨出两个小球。这说明系统存在一个最小分辨尺度。为了确定系统的分辨率,对两个小球的情况,采用探针小球处光强扫描曲线的中心光强 I_0 (即 $X = 0$ 处的光强) 与相应的最大光强 I_{\max} 之比来讨论系统的分辨率。图 3 是 I_0/I_{\max} 随样品小球 x 的坐标值 δ 变化的曲线。可看出 I_0/I_{\max} 随 δ 增大而单调下降,当 $I_0/I_{\max} < 0.78$ 时,这两个小球即可分辨,此时 $\delta = 14 \text{ nm}$,则系统的

分辨率为 28 nm 。这比单独一个小球的情况下的系统分辨率有所下降。如图 2 中 (d) 的情形,其单个峰的高半全宽度 (FWHM)^[10] 为 22 nm 。其原因是两小球感生光场间的干涉影响了系统的分辨率,使之有所下降。由此可以看出,对于实际被探测的物体,其不同的微结构之间的光场干涉将影响系统对物体的最小分辨。

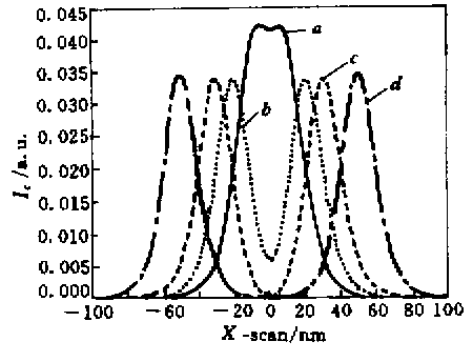


图 2 δ 值不同时探针沿 X 方向扫描光强变化曲线
Fig.2 Field intensity at the site of the probe dipole as a function of the X -coordinate of the probe for different δ
(a) $\delta = 10 \text{ nm}$; (b) $\delta = 20 \text{ nm}$; (c) $\delta = 30 \text{ nm}$; (d) $\delta = 50 \text{ nm}$

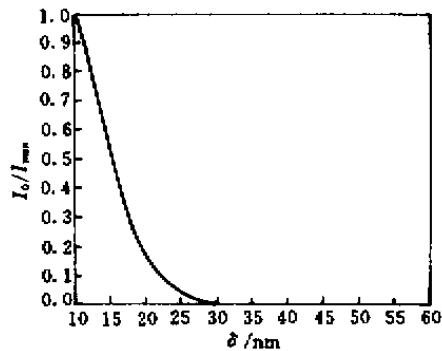


图 3 对比强度 I_0/I_{\max} 随 δ 的变化曲线
Fig.3 Contrast intensity I_0/I_{\max} as a function of δ

其次,研究两小球感生光场的干涉对探针扫描所得光强的影响,我们重点考察探针扫描最大光强的变化。图 4 给出沿 X 方向扫描的最大光强 I_{\max} 随 δ 变化的曲线(固定 $Z = 35 \text{ nm}$)。很有意思的是, I_{\max} 并不是单调下降,而是先减小再慢慢增大,最后趋向一恒定值。这种变化是由于两小球的光场的干涉引起的,这种干涉既包括两小球之间的光场干涉,也包括感生光场中各成分间的干涉,如隐失场与传播场之间的干涉^[11]。之所以最后趋向于一恒定值,是因为两小球离得足够远,相互间的干涉影响甚小,相当于各自独立存在的情况。由此可以看出,探针

所探测的光强是两物体小球感生场干涉叠加的结果。当两物体小球相距较远时,相互间的干涉影响较小。当它们靠得很近时,相互间的光场干涉使得它们难以分辨,从而决定了系统的最小分辨率。

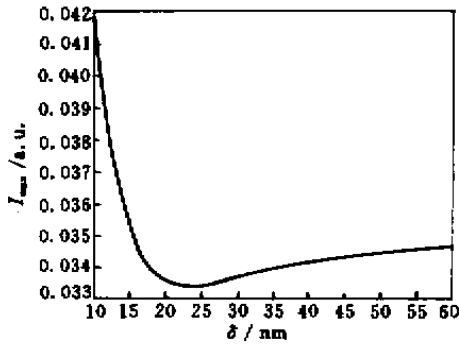


图4 探针扫描的最大光强 I_{\max} 随 δ 变化的曲线

Fig.4 Maximum field intensity at the site of the probe dipole, along the X -axis scanning, as the function of δ

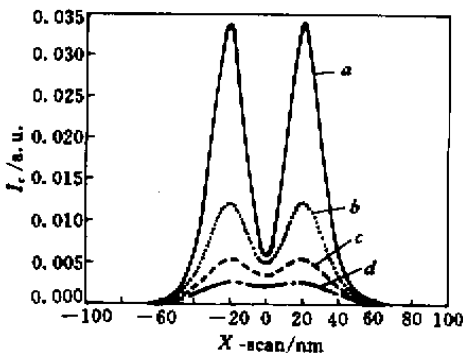


图5 探针与样品间距离不同时探针沿 X 方向扫描的光强变化曲线

Fig.5 Field intensity at the site of the probe dipole as a function of the X -coordinate of the probe for different distances Z

(a) $Z = 35$ nm ;(b) $Z = 40$ nm ;(c) $Z = 45$ nm ;(d) $Z = 50$ nm

最后,研究探针与样品间的距离对系统分辨率的影响。图5是对应于不同的 Z 值的扫描曲线(固定 $\delta = 20$ nm)。很明显地看出 $Z = 45$ nm 时系统已难于分辨出这两个小球。探针小球处的光强随 Z 值的增大也迅速减小。这说明系统的分辨率将随探针与样品间距离的增大而下降。这与其他理论计算^[4]和实验结果^[12,13]相一致。所以在近场光学显微镜中扫描样品时应尽可能地接近样品表面,这样可以提高系统的分辨率,也能增大探针探测的光强。

在偶极近似下,通过把场与物质的相互作用等价到场与偶极子的相互作用,并结合格林函数传播子的概念,得出了任意空间下的光场分布表达式和自治场方程。在此基础上进行数值模拟计算,计算结果表明小球间的光场干涉是决定系统分辨率的一个重要原因。探针所探测的光强是两物体小球的感生光场干涉叠加的结果。探针与样品间的距离是决定系统分辨率的另一重要原因,探针与样品间的距离越大,系统分辨率则越小。

参 考 文 献

- 1 B. Hecht, H. Bielefeldt, Y. Inouye *et al.*. Facts and artifacts in near-field optical microscopy [J]. *J. Appl. Phys.*, 1997, **81**(6) 2492 ~ 2498
- 2 R. Carminati, J.-J. Greffet. Influence of dielectric contrast and topography on the near field scattered by an inhomogeneous surface [J]. *J. Opt. Soc. Am. A*, 1995, **12**(12) 2716 ~ 2725
- 3 K. Hsu, L. A. Gheber. Tip-sample interaction in a "shear force" near-field scanning optical microscope [J]. *Rev. Sci. Instrum.*, 1999, **70**(9) 3609 ~ 3613
- 4 Zhiyang Li, Wu Liu, Chuanyun Xiao *et al.*. Angular spectrum transfer function of photon scanning tunnel microscopy [J]. *CCAST-WL Workshop Series*, 1996, **64**:193 ~ 200 (in Chinese)
- 5 Qing Zhou, Xing Zhu, Changqing Wang *et al.*. Study on field distribution of the probes in scanning near-field optical microscope using finite-difference time-domain calculation [C]. *SPIE*, 1999, **3791**:186 ~ 196
- 6 Ole Keller, Mufei Xiao, Sergey Bozhevolnyi. Configurational resonances in optical near-field microscopy: a rigorous point-dipole approach [J]. *Surf. Sci.*, 1993, **280**(1) 217 ~ 230
- 7 Ole Keller. Tensor-product structure of a new electromagnetic propagator for nonlocal surface optics of metals [J]. *Phys. Rev. B*, 1988, **37**(18):10588 ~ 10607
- 8 J. Jackson. *Classical Electrodynamics* [M]. New York: Wiley, 1962. 271
- 9 D. Courjon, J.-M. Vigoureux, M. Spajer *et al.*. External and internal reflection near field microscopy: experiments and results [J]. *Appl. Opt.*, 1990, **29**(26) 3734 ~ 3740
- 10 M. Xiao, S. Bozhevolnyi, O. Keller. Numerical study of configurational resonances in near-field optical microscopy with a mesoscopic metallic probe [J]. *Appl. Phys. A*, 1996, **62**(2):115 ~ 121
- 11 Mufei Xiao. Exact field distribution in a nanometric dipole-surface system [J]. *Opt. Comm.*, 1997, **143**(1):11 ~ 14
- 12 E. Betzig, M. Isaacson, A. Lewis. Collection mode near-field scanning optical microscopy [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1987, **51**(25) 2088 ~ 2090
- 13 R. C. Reddick, R. J. Warmack, T. L. Ferrell. New form of scanning optical microscopy [J]. *Phys. Rev. B*, 1989, **39**(1):767 ~ 770