

引用格式: CHEN Nan, WANG Yue, LIU Tao, et al. Development and Application Test of Scattering-type Scanning Near-field Optical Microscope[J]. Acta Photonica Sinica, 2021, 50(11):1111001

陈楠,王玥,刘涛,等. 散射式扫描近场光学显微系统的研制及应用测试[J]. 光子学报, 2021, 50(11):1111001

散射式扫描近场光学显微系统的研制及应用测试

陈楠^{1,2}, 王玥¹, 刘涛^{1,2}, 夏洋^{1,2,3,4}

(1 中国科学院微电子研究所, 北京 100029)

(2 中国科学院大学, 北京, 100049)

(3 北京市微电子制备仪器设备工程技术研究中心, 北京 100029)

(4 集成电路测试技术北京市重点实验室, 北京 100029)

摘要: 基于扫描探针技术设计搭建了一套散射式扫描近场光学显微系统。基于搭建的系统结构和近场信号探测原理, 理论分析和实验讨论了不同因素的干扰、解调阶次、聚焦光斑等因素对近场光学信号提取的影响。为进一步验证装置性能, 对纳米金颗粒和机械剥离的六方氮化硼样品进行了测试。结果表明, 所搭建的装置实现了 10 nm 的空间分辨率, 可以清晰地观察到六方氮化硼表面声子极化激元在传播-反射过程中形成的驻波现象, 展示了该技术在低维纳米材料光学表征中应用的巨大应用潜力。

关键词: 散射式扫描近场光学显微镜; 扫描探针技术; 近场光学; 衍射极限; 超分辨

中图分类号: O436.2

文献标识码: A

doi: 10.3788/gzxb20215011.1111001

Development and Application Test of Scattering-type Scanning Near-field Optical Microscope

CHEN Nan^{1,2}, WANG Yue¹, LIU Tao^{1,2}, XIA Yang^{1,2,3,4}

(1 Institute of Microelectronics of the Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China)

(2 University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

(3 Beijing Research Center of Engineering and Technology of Instrument and Equipment for Microelectronics Fabrication, Beijing 100029, China)

(4 Beijing Key Laboratory of IC Test Technology, Beijing 100029, China)

Abstract: Based on scanning probe microscope, a set of scattering scanning near-field optical imaging device is designed. The structure of the device and the basic near-field signal detection principle are introduced, and the influence of the demodulation order, focus spot size and other factors on the near-field optical signal extraction are discussed through models and experiments. In order to verify the performance of the device, a sample of gold nano-particles and a sample of h-BN microcrystals be characterized. The results show that the home-made device achieves a spatial resolution of 10 nm, and the standing wave phenomenon formed by the h-BN phonon polarization excimer can be clearly observed, demonstrating the huge application potential of this technology.

Key words: Scattering-type scanning near field optical microscopy; Scanning probe microscope; Near-

基金项目: 国家自然科学基金重大科研仪器研制专项(No.61427901), 国家重点研发计划(No.2018YFA0704804), 中国科学院科研装备研制项目(No.YJKYYQ20180033)

第一作者: 陈楠(1992—), 男, 博士研究生, 主要研究方向为精密光学检测技术。Email: chennan@ime.ac.cn

通讯作者: 刘涛(1979—), 男, 研究员, 博士, 主要研究方向为扫描探针技术和 MEMS 器件设计。Email: liutao@ime.ac.cn

王玥(1988—), 男, 博士后, 主要研究方向为微纳光学。Email: wangyue@ime.ac.cn

收稿日期: 2021-06-16; 录用日期: 2021-07-19

<http://www.photon.ac.cn>

field optics; Diffraction limit; Super-resolution
 OCIS Codes: 110.2970; 110.0180; 100.2960

0 引言

光学显微术经过不断的发展与完善,已经成为生物、物理、化学等众多学科研究中不可或缺的研究手段。然而,常规的光学显微术都是基于光学成像原理,依据阿贝衍射定理,极限空间分辨率可表示为 $\delta \geq 0.61\lambda/\text{NA}$,其中 λ 为入射光波长,NA为聚焦透镜的数值孔径,其空间分辨率最多约为 $\lambda/2$ 。为突破衍射极限的障碍,SYNGE E H^[1]在1928年最早提出了近场光学探测的构想,但受限于当时的技术水平,直到1984年才由LEWIS A等^[2]和POHL D W等^[3]第一次实现了真正意义上的近场光学探测,后来BETZIG E^[4]在此基础上开发了孔径型近场扫描光学显微镜(Aperture-based Scanning Near-field Optical Microscope, a-SNOM)。a-SNOM使用镀金属的孔径光纤进行光的探测,由于通过孔径探针接收的光通量随孔径减小而快速衰减,使得a-SNOM的最佳空间分辨率仅为50 nm,并且通过孔径探针耦合到光纤的能量与 λ^4 成反比,导致其只适用于短波长光的探测^[5]。为了克服这一不足,KEILMANN F等^[6]引入了另一种SNOM设计,称为散射型扫描近场光学显微镜(Scattering-type Scanning Near-field Optical Microscopy, s-SNOM)。在s-SNOM中,通过收集探针针尖的散射光来代替孔径,其空间分辨率与AFM探针的尖锐程度有关而与波长无关,最佳空间分辨率可以达到10 nm。这些特点使其成为一种比a-SNOM更为广泛应用近场光学探测技术。近年来随着纳米技术的发展,s-SNOM已经被广泛用于二维材料^[7-10]、微纳结构器件^[11-12]、有机薄膜^[13-14]研究中,已逐渐成为探索纳米世界的又一有力工具。

尽管s-SNOM被认为是一种具有巨大应用潜力的技术,但国内相关研究起步相对较晚,且相关研究大多采用商业仪器所完成,而商用仪器几乎为国外NeaSpec等少数厂家所垄断。本文介绍了所搭建系统的结构和基本的近场信号探测原理,通过实验测试,讨论了 z 方向空间干涉,静态悬停Tapping过程, x - y 扫描动态过程,不同解调阶次,光斑等因素对近场信号提取的影响。为进一步验证装置性能,对纳米金颗粒和机械剥离的六方氮化硼(h-BN)样品进行了测试。测试结果表明,所搭建的装置实现了10 nm的空间分辨率,利用该装置可以清晰观察到h-BN声子极化激元在传播-反射过程中形成的驻波,展示了该技术在低维纳米材料光学表征应用中巨大的应用潜力。所搭建的装置平台,为课题组下一步研制更为完善的仪器样机提供了基础。

1 仪器系统结构与原理

1.1 仪器装置基本结构

自行研制的s-SNOM装置原理图与实物图,分别如图1(a)、(b)所示。系统主要由照明光源、光路系统、

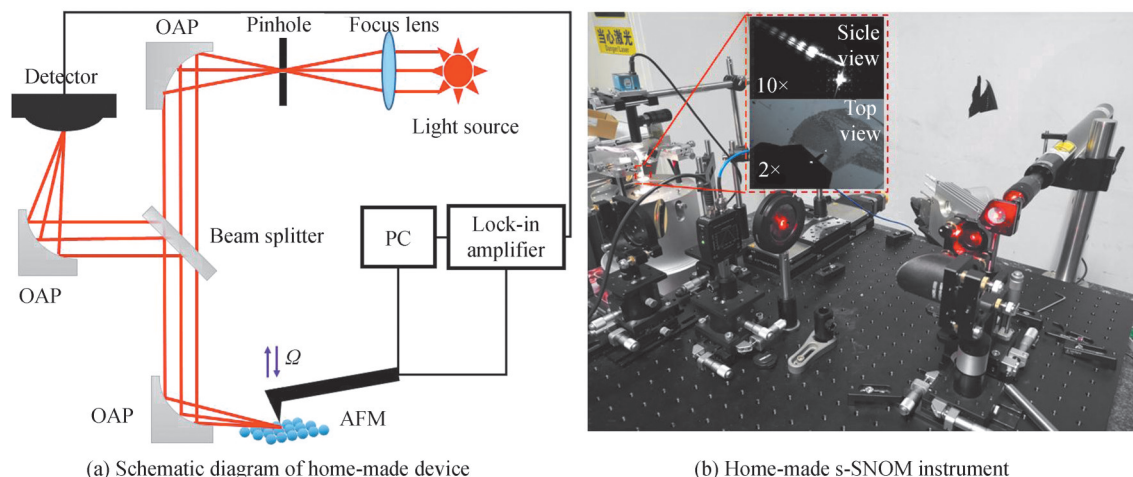


图1 装置原理图和实物图
 Fig.1 s-SNOM schematic and physical diagram

原子力显微镜(Atomic Force Microscope, AFM)和信号处理系统组成。AFM经过结构改造以适应光路系统。光源发出的光经过扩束、聚焦、准直过程经分光镜由离轴抛物面镜(Off-axis Parabolic Mirror, OAP)聚焦于AFM的探针针尖。为了获得更为理想的光斑质量和调控光斑尺寸,光路准直聚焦后还加入了一个精密针孔(Pinhole)进行空间滤光。聚焦光束与针尖-样品表面相互作用产生散射光,经过OAP收集后由分光镜反射至另一侧由探测器接收,探测器最终将信号输入至锁相放大器与电脑组成的数据处理系统进行近场信号提取。

1.2 近场信号的来源与提取的原理

与传统光学只考虑光与样品间的相互作用不同,在s-SNOM探测中需要考虑光、探针、样品三者间的相互作用耦合,因此通过等效模型来理解近场散射信号是十分必要的。在以往的文献报道中^[15],最为简单和广泛使用的是点偶极子模型(Point-Dipole Model, PDM)。如图2(a)所示,在PDM模型中将针尖-样品等

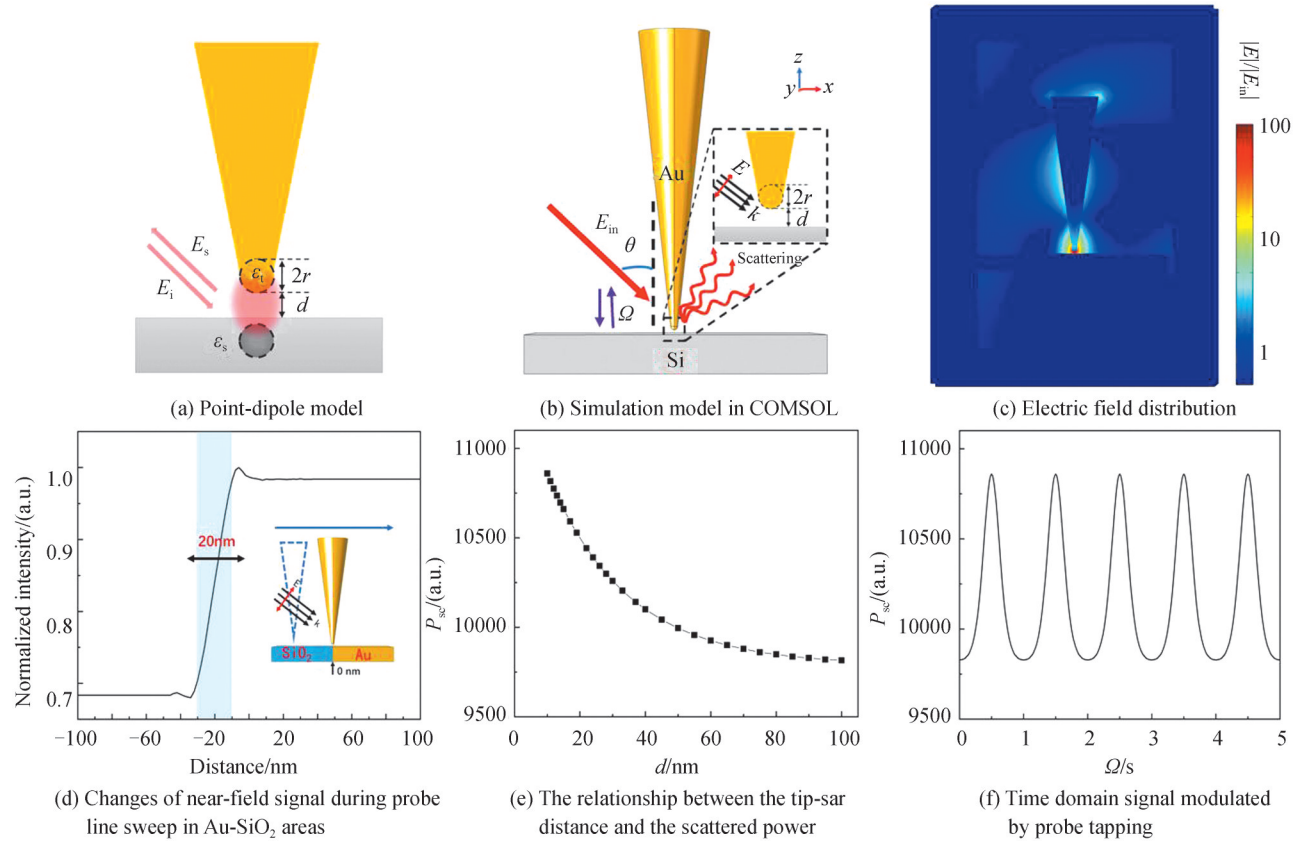


图2 点偶极模型和COMSOL有限元仿真结果

Fig.2 Point-dipole model and COMSOL finite element simulation results

效近似为两个偶极子小球间的相互作用,散射近场信号 E_s 可以表示为

$$E_s \approx \alpha_{\text{eff}} \cdot E_i$$

式中, α_{eff} 为针尖-样品间的极化率, E_i 为入射电场。将探针针尖简化为一个极化小球,其复介电常数为 ϵ_t ,半径为 r 。那么针尖等效小球的极化率 α 表示为

$$\alpha = 4\pi a^3 \frac{\epsilon_t - 1}{\epsilon_t + 2}$$

同时假设样品的介电常数为 ϵ_s ,则样品的介电响应函数 β 表示为

$$\beta = \frac{\epsilon_s - 1}{\epsilon_s + 1}$$

假设样品只受等效偶极子间的电场极化作用,此时针尖-样品的复杂体系的极化率表示为

$$\alpha_{\text{eff}} = \frac{\alpha}{1 - \left(\frac{\alpha \cdot \beta}{16\pi \cdot (r + d)^3} \right)}$$

那么 s-SNOM 成像对比度的来源可以理解为样品结构和材料不同带来的局域介电常数差异。在以往的工作中还使用 COMSOL 建立了多物理场有限元模型对近场信号的“针尖增强”效果和近场信号调制解调过程进行了更为精确的分析,模型具体细节参见文献[16]。如图 2(c)所示,由于光学天线和避雷针效应,当光聚焦于金属或金属镀层(金、银、铂等)材质的探针针尖时,与入射光电场强度相比在针尖-样品间将形成超过两个数量级的电磁场增强效应。仿真探针在不同介电常数的材料交界处“线扫”过程,近场信号强度随材料的变化而发生相应改变,且信号的空间分辨率与针尖曲率半径相当,如图 2(d)所示。聚焦光斑通常为 10 μm 量级,探测器探测的是散射光的总和,虽然针尖-样品间存在着强烈的局域场增强,但增强作用区域仍然较小($\sim 20 \text{ nm}$),针尖-样品区间的近场散射信号将湮没于样品、探针悬臂梁等其它区域散射产生的背景信号中。采集近场信号时,还需要对这些干扰信号进行剔除。因此系统中 AFM 采用轻敲模式(Tapping mode)。当针尖在 z 方向以固定频率 Ω 上下振动时,针尖-样品间近场信号强度随针尖-样品距离呈非线性的指数型衰减,如图 2(e)所示,随时间呈周期性变化,如图 2(f)所示。由于背景散射信号大部分未被调制而少部分只随针尖-样品距离变化导致的散射截面变化而线性变化,此时将探测器信号输入锁相放大器中,以高次谐波频率 $n\Omega$ ($n=2, 3, \dots$) 进行解调放大,便可有效的提纯针尖尖端-样品区域的散射信号^[17]。图 2(e)、2(f)为包含背景信号和近场信号的总体散射信号,信号变化的部分可以理解为受调制的近场信号。需要注意的是,计算机的计算能力限制了模型中探针和样品区域的大小,依据完整的探针与光斑大小则背景信号应当还要强多个数量级。

2 实验部分

2.1 装置部件与实验参数

AFM 使用的探针为 Nano Sensors 的 ATEC-NCPT,激励电流 0.2 A, tapping 振幅为 60 nm, 振动频率为 270 kHz。锁相放大器积分时间为 10 ms。测试使用的光源为波长 632.8 nm 的 He-Ne 激光器,能量为 20 mW。OAP 直径为 50.8 mm 焦距为 101.6 mm, 聚焦光斑直径控制在 25 μm 左右,光束入射角(入射方向与垂直方向夹角)约为 60°,探测器型号为 Thorlabs APD410A。除解调阶次对比试验部分,其它试验结果都采用 3 Ω 信号进行成像。

2.1 样品制备

实验所用金膜样品为以抛光硅片为衬底采用电子束蒸发 5 nm Cr+20 nm Au 制成。Au-Si 光栅样品采用 lift-off 工艺加工制成,栅格线宽约为 1 μm , Au 材质台阶高度约为 20 nm。购买中科雷鸣科技 10 nm 水性纳米金颗粒分散液(0.1 mg/mL),稀释 10 倍后滴涂于抛光 Si 衬底后烘干制得纳米金颗粒样品。h-BN 材料购自深圳六碳科技,使用 3M 公司的 Scotch 胶带对 h-BN 进行机械剥离后转移至 SiO₂/Si 衬底上制得 h-BN 样品。

3 结果与讨论

3.1 近场信号扰动来源和解调阶次对信号的影响

在 Tapping 模式下,控制 AFM 探针缓慢的逼近 Au 膜样品,记录近场信号随解调阶次和针尖-样品距离的变化情况,其结果如图 3 所示(为便于比较,信号强度做了归一化处理)。从图 3 可以看出随针尖-样品距离增大所提取的信号呈指数型衰减,并且随着解调阶次的增加其衰减速度更加迅速,这与图 2(e)中的仿真结果一致。另外在一阶、二阶信号的逼近曲线中可以观察到“鼓包”现象。我们推测这与针尖空间位置变化带来的激光干涉有关,但考虑到 Tapping 的振幅通常在 100 nm 以内,这种干扰对实际近场信号的提取影响有限。

设置锁相放大器采样速率为 200 sample/s,采样时长为 1 min,控制 AFM 探针驻留于 Au 膜样品表面随机的某一点,记录不同解调阶次情况下近场信号和噪声的有效值(RMS),并以此计算探针 Tapping 过程中

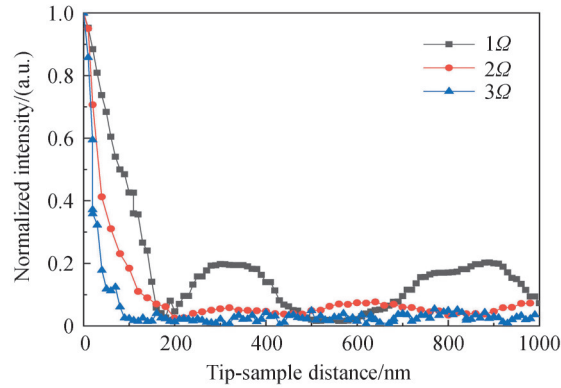


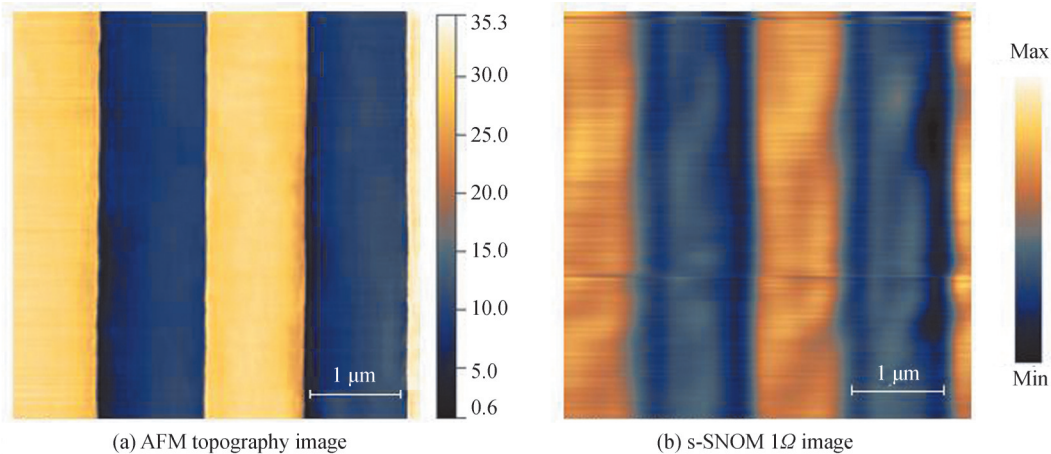
图3 实测 1Ω 、 2Ω 、 3Ω 逼近曲线
Fig.3 s-SNOM approach curve of 1Ω , 2Ω , 3Ω

的信噪比。随后操作 AFM 退针,使针尖远离样品表面,再次记录噪声信号的有效值。从表 1 的测试结果可以看出,每提升一个解调阶次,信号强度出现了 4~8 倍的衰减。在一定范围内采用更高阶次解调信号能提升近场信号的信噪比,但过高的阶次解调带来的信号衰减反而对信噪比带来负面影响。此外,退针后的噪声明显小于探针轻敲样品过程中的噪声,两者之间的差值主要来自于 AFM 压电平台精度和探针 Tapping 过程的稳定性不足带来的噪声,而这种干扰可随解调阶次的提升而有效滤除。

表 1 悬停 Tapping 状态不同解调阶次信号噪声对比
Table 1 Signal and noise comparison under different demodulation orders

Demodulation frequency	1Ω	2Ω	3Ω	4Ω
Signal	5.2 mV	824 μ V	127 μ V	38 μ V
Noise(RMS)	107 μ V	13.63 μ V	1.97 μ V	1.53 μ V
SNR	33.7 dB	35.6 dB	36.1 dB	27.8 dB
Noise(RMS)/Stage-off	37.1 μ V	2.4 μ V	1.23 μ V	1.02 μ V

使用装置逐点扫描 Au-Si 光栅结构样品,获得的样品表面形貌和 1Ω 、 2Ω 、 3Ω 近场信号成像如图 4 所示。在静态 Tapping 中使用 1Ω 解调仍然具有不错的信噪比,但从图 4(b) 可以看出,一阶信号有较为明显的波纹,这可以理解为扫描过程中 AFM 压电平台带动样品在 x - y 方向移动导致样品散射截面随着逐行扫描的过程有规律的变化,从而导致样品背景信号强度发生了有序的变化带来的干扰。而二阶、三阶信号这种状况得到了明显的改善。因此可以看出提高解调阶次可以显著的降低背景信号强度变化带来的干扰。



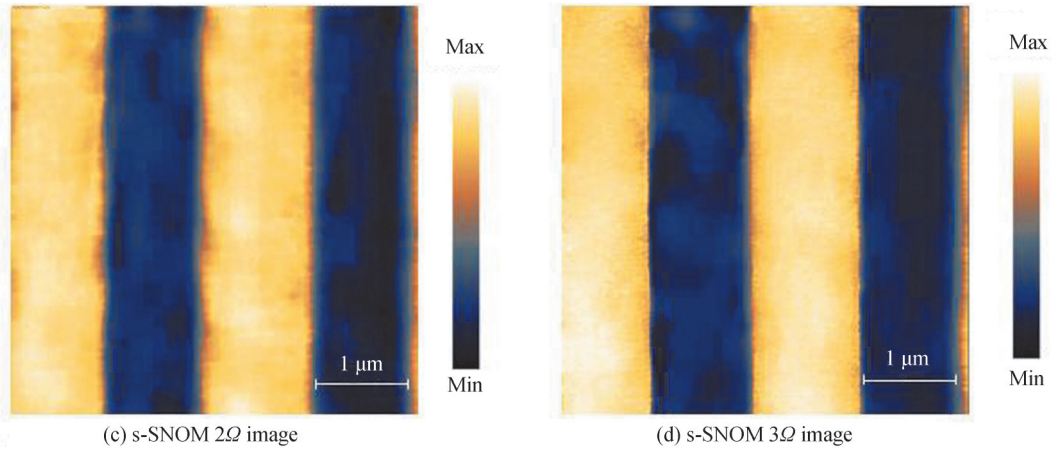


图4 金-硅光栅样品 AFM 形貌图和 1Ω 、 2Ω 、 3Ω 近场光学成像
Fig.4 AFM topography and 1Ω , 2Ω , and 3Ω near-field optical imaging of gold-silicon grating sample

3.2 聚焦光斑稳定性

依据前文的介绍,理想状态下越小的聚焦光斑越能减小背景信号的比例,从而获得更高的信噪比。使用光束分析仪(DataRay WinCamD-LCM),分别以 0.1 s、1 s 为间隔分别记录光斑中心偏移变化。如图 5 所示,光斑在 14 min 内最大偏移为 $1\ \mu\text{m}$,偏离均方根(RMS)为 $0.5\ \mu\text{m}$,而在 2 h 的记录中可以看出光斑存在一种缓慢的蠕动,其最大偏移为 $4.2\ \mu\text{m}$,偏离 RMS 为 $3.52\ \mu\text{m}$ 。光斑能量呈二维高斯分布,采用过小的光斑将导致光斑偏离针尖位置,出现不必要的扰动,因此采用何种光斑大小还需依据系统特性在扫描时间和光斑大小之间进行权衡。

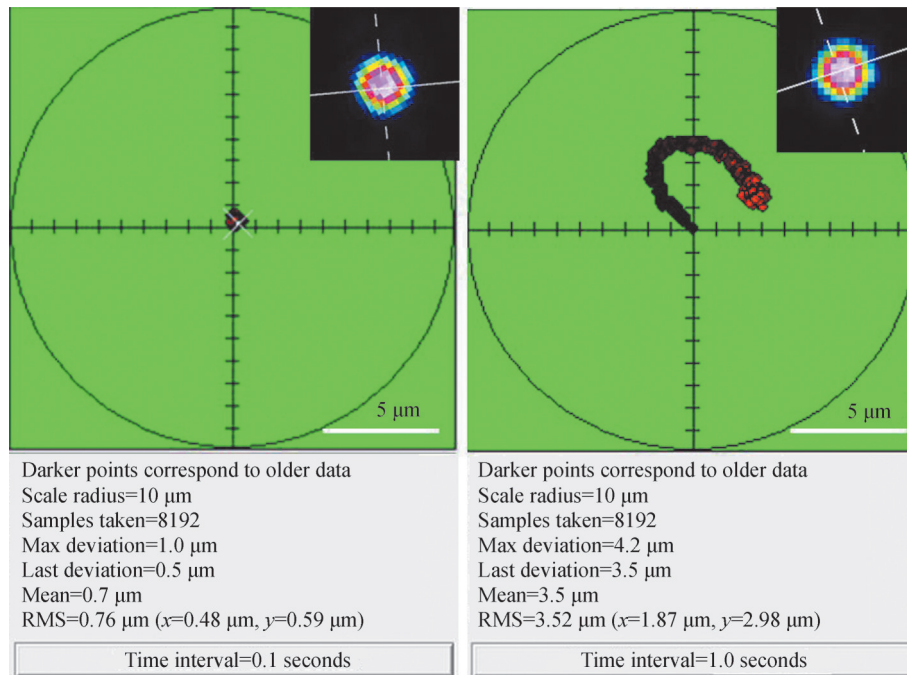


图5 聚焦光斑随时间的变化情况
Fig.5 The center of the focused spot changes with time

3.3 空间分辨率

为测试 s-SNOM 系统的极限空间分辨率,对附着了 Au 纳米颗粒样品进行了测试。结果如图 6 所示,其中图 6(a)为 AFM 形貌图,图 6(b)为样品的三阶近场信号强度图,图 6(c)与 6(d)对应于 6(a)和 6(b)中白色虚线的剖线图。可以看出,虽然背景信号给近场图像带来一定的波纹状扰动,但 AFM 形貌图中凸起颗粒与

近场图像中的“亮点”可以逐一对应。从图6(c)和6(d)的剖面图可以看出,对应一个5 nm高度的纳米 Au 颗粒,以台阶信号的15%~85%宽度计算,装置近场光学的空间分辨率约为10 nm。

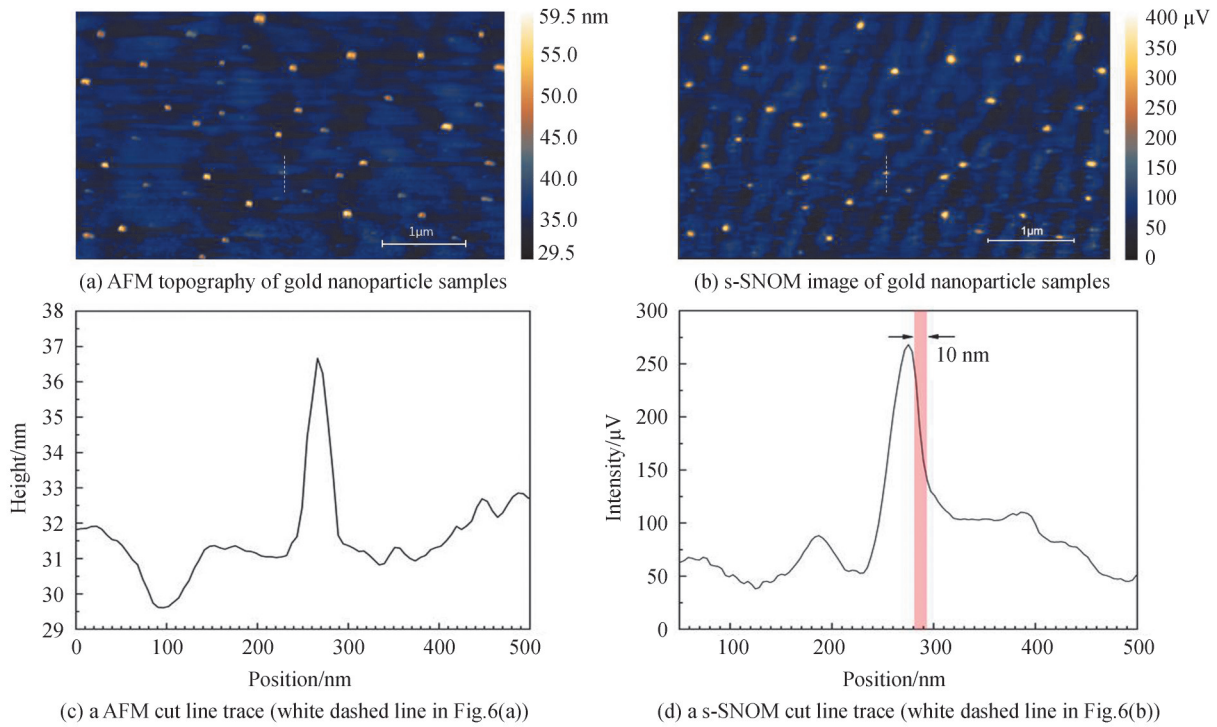
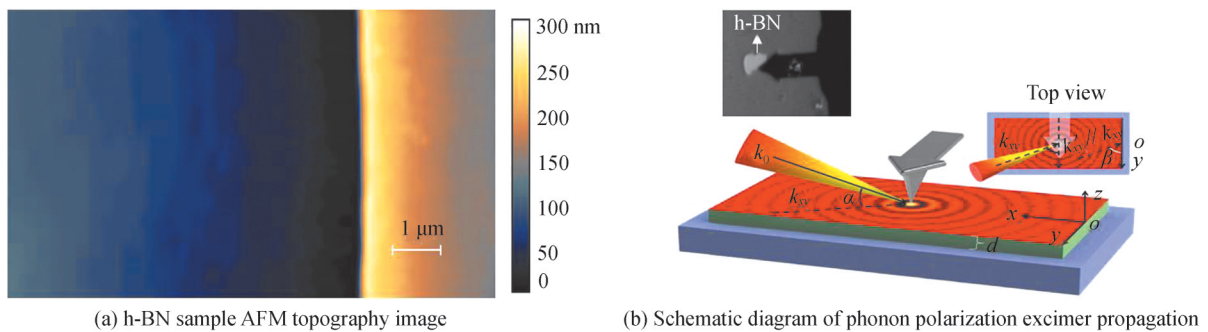


图6 纳米金颗粒样品 AFM 表面形貌和 s-SNOM 成像图
Fig.6 AFM topography and s-SNOM imaging map of gold nanoparticle samples

3.4 二维材料应用测试

s-SNOM 可在纳米尺度观测 AFM 和传统光学成像无法观察的表面极化激元物理现象。当入射光照射在针尖-样品表面,探针针尖产生局域场增强,这将填补极化激元与自由空间光的动量差,由此针尖将成为声子极化激元的激发源,极化激元以球面波的形式向外扩散,如图7(b)所示,在传播至台阶边界处发生反射形成驻波。此时驻波条纹的间距为极化激元波长的一半。图7(d)为图7(c)中白色虚线的剖面强度图,对应图7(a)中~180 nm 厚的 h-BN 二维结构,由图7(d)可知其表面声子极化激元波长约为486 nm,且随着与 h-BN 的边界距离增加逐渐衰减,这与文献[18]的报道基本相符。



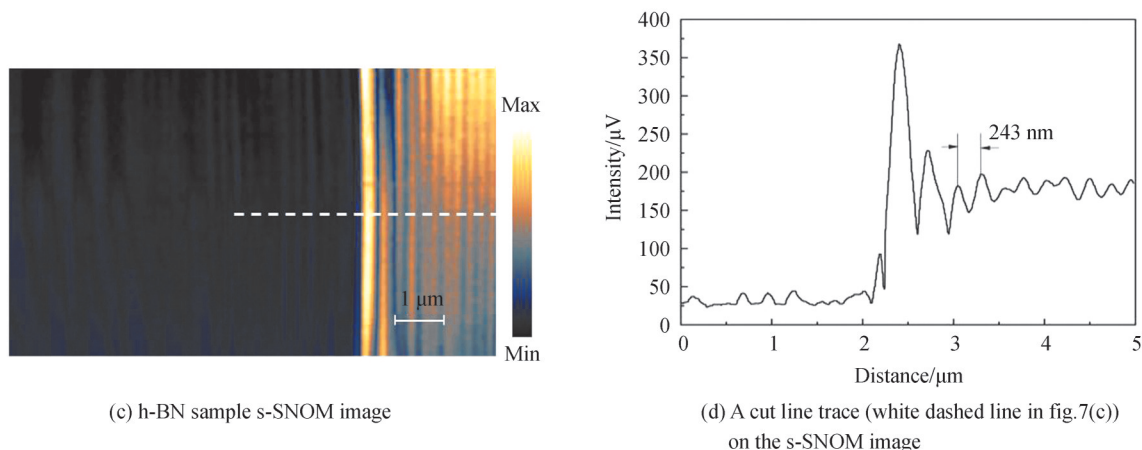


图7 h-BN样品AFM表面形貌和s-SNOM成像图
Fig.7 AFM topography and s-SNOM imaging map of h-BN samples

4 结论

研制搭建了一套s-SNOM系统,并对其进行了验证测试。测试结果表明,近场信号的扰动来自多个方面,在一定范围内使用更高的解调阶次,能有效抑制背景噪声的影响。所搭建的装置近场光学成像空间分辨率达到了10 nm,达到了同类商业仪器同等水平。利用该装置可以清晰观察到h-BN声子极化激元在传播-反射过程中形成的驻波,展示了该技术在低维纳米材料光学表征应用中的巨大应用潜力。本研究中的测试数据和分析可以为同类型设备的搭建和数据分析提供参考。研制更为紧凑和完善的仪器样机将是课题组下一步的工作目标。

参考文献

- [1] SYNGE E H. A suggested method for extending microscopic resolution into the ultra-microscopic region [J]. *Philosophical Magazine*, 1928, 6(35): 356-362.
- [2] LEWIS A, ISAACSON M, HAROOTUNIAN A, et al. Development of a 500 Å spatial resolution light microscope [J]. *Ultramicroscopy*, 1984, 13(3): 227-231.
- [3] POHL D W, DENK W, LANZ M. Optical stethoscopy: Image recording with resolution $\lambda/20$ [J]. *Applied Physics Letters*, 1984, 44(7): 651-653.
- [4] BETZIG E, TRAUTMAN J K, HARRIS T D, et al. Breaking the diffraction barrier: optical microscopy on a nanometric scale [J]. *Science*, 1991, 251(5000): 1468-1470.
- [5] 段嘉华, 陈佳宁. 二维极化激元学近场研究进展[J]. *物理学报*, 2019, 68(11): 7-16
DUAN Jiahua, CHEN Jianing. Recent progress of near-field studies of two-dimensional polaritonics [J]. *Acta Physica Sinica*, 2019, 68(11): 110701.
- [6] KEILMANN F, WEIDE D W D, EICKELKAMP T, et al. Extreme sub-wavelength resolution with a scanning radio-frequency transmission microscope [J]. *Optics Communications*, 1996, 129(1-2): 15-18.
- [7] HU F, LUAN Y, SCOTT M E, et al. Imaging exciton - polariton transport in MoSe₂ waveguides [J]. *Nature Photonics*, 2017, 11(6): 356-360.
- [8] HU D, CHEN K, CHEN X, et al. Tunable modal birefringence in a low-loss van der waals waveguide [J]. *Advanced Materials*, 2019, 31(27): e1807788.
- [9] DAI S, FEI Z, MA Q, et al. Tunable phonon polaritons in atomically thin van der waals crystals of boron nitride [J]. *Science*, 2014, 343(6175): 1125-1129.
- [10] DUAN J, CHEN R, LI J, et al. Launching phonon polaritons by natural boron nitride wrinkles with modifiable dispersion by dielectric environments [J]. *Advanced Materials*, 2017, 29(38): 1702494.
- [11] HUBER A J, KEILMANN F, WITTBORN J, et al. Terahertz near-field nanoscopy of mobile carriers in single semiconductor nanodevices [J]. *Nano Letters*, 2008, 8(11): 3766.
- [12] NEUMAN T, ALONSO-GONZALEZ P, GARCIA-ETXARRI A, et al. Mapping the near fields of plasmonic nanoantennas by scattering-type scanning near-field optical microscopy [J]. *Laser Photonics Review*, 2016, 9(6): 637-649.
- [13] PAULITE M, FAKHRAAI Z, LI I T, et al. Imaging secondary structure of individual amyloid fibrils of a beta2-

- microglobulin fragment using near-field infrared spectroscopy [J]. *Journal of The American Chemical Society*, 2011, 133 (19): 7376-7383.
- [14] CRAIG I M, TAUBMAN M S, LEA A S, et al. Infrared near-field spectroscopy of trace explosives using an external cavity quantum cascade laser [J]. *Optics Express*, 2013, 21(25): 30401-30414.
- [15] HU Debo , DAI Qing. Near-field optical characterization of low-dimensional nanomaterials[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2018, 63(35): 67-79.
胡德波,戴庆.低维纳米材料的近场光学表征[J].*科学通报*, 2018, 63(35): 67-79.
- [16] CHEN Nan, WANG Yue, WANG Boyu, et al. Research on numerical model of nano-FTIR system based on COMSOL [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2021,41(4): 1125-1130.
陈楠,王玥,王博雨,等.基于COMSOL的纳米傅里叶红外光谱系统数值模型[J].*光谱学与光谱分析*, 2021, 41(4): 1125-1130.
- [17] CHEN X, HU D, MESCALL R, et al. Modern scattering-type scanning near-field optical microscopy for advanced material research [J]. *Advanced Materials*, 2019, 31(24): e1804774.
- [18] HU D, YANG X, LI C, et al. Probing optical anisotropy of nanometer-thin van der waals microcrystals by near-field imaging [J]. *Nature Communications*, 2017, 8(1): 1471.