

扫描近场微波显微镜测量非线性 介电常数的理论校准系数*

柳学榕 胡 泊 刘文汉 高 琛†

(中国科学技术大学物理系, 合肥 230026)

(中国科学技术大学国家同步辐射实验室, 合肥 230026)

(2002 年 3 月 31 日收到, 2002 年 6 月 11 日收到修改稿)

从理论上分析了扫描近场微波显微镜中探针和非线性样品之间的相互作用, 对非线性介电常数测量时的一个校准系数进行了理论分析和计算, 得到该系数与介电常数之间的关系曲线, 并对各方向的贡献和分辨率极限进行了初步探讨.

关键词: 扫描近场微波显微镜, 介电常数, 非线性

PACC: 0779, 5225M, 4660D

1. 引 言

非线性是铁电材料的关键功能性质之一, 也是其许多重要应用的基础, 如微波移相、调谐、混频等. 近年来, 随着器件小型化的趋势, 薄膜材料的非线性行为和人工周期铁电畴结构成为了研究的热点^[1]. 由于介电非线性行为所依赖的铁电畴没有光学反差, 光学方法很难对其进行观测, 只能通过差分腐蚀来间接推断^[2], 或通过二次谐波显微镜来观察^[3]. 其中差分腐蚀方法是破坏性的, 对薄膜材料难以适用, 而二次谐波显微镜的分辨率有限. 近年来, 各种扫描探针显微术在材料畴结构和各项异性的研究中获得了广泛的应用^[4-6], 其中扫描近场微波显微镜 (scanning tip microwave near-field microscopy, STMNM) 将扫描探针技术和微波测量技术相结合^[7,8], 实现了亚微米尺度材料介电性质的无损定量测量, 能够满足对材料介电非线性行为显微定量测量的需求.

近场显微的概念可以追溯到 1928 年. Syngé 认为用比波长更小的点源在足够近的距离内照明物体, 或用比波长更小的点探测器在足够近的距离内探测物体的散射波, 分辨率可以突破衍射极限^[9]. 1962 年, Soohoo 在微波波段验证了这一想法^[10]. 1972

年, Ash 和 Nicholls 在微波波段得到了 $0.5\text{nm}(\lambda/60)$ 的分辨率^[11], 但这样的分辨率显然无法与传统的光学显微镜相竞争. 随着 STM 和 AFM 技术的发展, 一直困扰近场显微术的探针-样品间距控制的问题得到了解决, Pohl^[12]和 Lewis^[13]终于在 1984 年成功地将近场显微术扩展到了红外和可见光波段, 分辨率达到了 $25\text{nm}(\lambda/20)$, 超过了传统光学显微镜的分辨率. 随后, 近场显微术取得了长足的进展, 导致了一系列重要应用的开拓.

新型 STMNM 的设计在 1996 年提出^[7], 并率先在定量显微理论上取得了突破^[8,14]. 由于在众多的近场显微术中, 源-物或物-探测器的距离均小于波长, 它们之间存在的强烈的相互作用, 使得相应的定量近场显微理论变得非常困难, 一般需采用数值方法在比波长短的尺度上, 以实际边界条件求解 Helmholtz 方程, 得到近场范围内的场强分布, 再由各种显微信号计算相应的物理性质. 这种方法需要大量的数值计算, 难以实时处理, 应用上受到了很大的限制. Gao 等人针对微波的特点, 提出了近场微波显微的“准静态”成像理论^[8,14], 得到了显微信号和材料介电性质间的解析关系, 并成功地应用于介电材料线性介电性质的研究^[15,16]. 但是, 介电材料非线性和导电材料电导的测量目前还处于定性或半定量的

* 中国科学院“百人计划”, 创新方向性项目(批准号: KGCX2-201-2), 国家自然科学基金(批准号: 60171044), 国家杰出青年科学基金(批准号: 50125207), 教育部博士点基金(批准号: 20010758025)资助的课题.

† 通讯作者, 电子邮件: cgao@ustc.edu.cn

水平上. 本文就非线性常数测量时的一个校准系数进行理论分析和计算, 结果可使非线性介电常数的测量达到定量水准.

2. STMNM 的构造和非线性介电常数的测量方法

新型 STMNM 的基本结构如图 1 所示. 其核心为一个高品质因素 (Q) 的 $\lambda/4$ 同轴共振腔. 探针安装在共振腔开端的中心导体上, 并从小孔中伸出共振腔约 2—3mm. 小孔用镶在腔壁上镀有 Ag 膜的白宝石构成, 小孔的直径应能容纳针尖穿过, 越小越好, 以防针尖在小孔内的振动和远场成分的泄漏. Ag 膜厚度为趋肤深度, 以屏蔽远场, 同时避免针尖、镀层

间高损耗微同轴电缆的形成, 维持共振腔的高品质因素系统的高灵敏度. 针尖下方的样品通过与针尖的相互作用改变腔的有效长度和损耗, 进而改变系统的共振频率和品质因素. 系统的工作原理大致如下: 由微波信号发生器 (voltage controlled oscillator, VCO) 产生的微波被分成两路, 一路耦合进入共振腔, 另一路经移相器移相 90° , 两路信号在鉴相器中会合, 当微波频率和共振腔发生共振时, 鉴相器输出为零, 否则, 输出一个正比于两频率差的信号, 以此信号为反馈源调整 VCO 的输出频率, 可将 VCO 的频率锁定在共振腔的共振频率上. 共振腔内的场强和反馈环的控制信号作为系统的显微信号输入计算机, 与样品的位置合成显微图像.

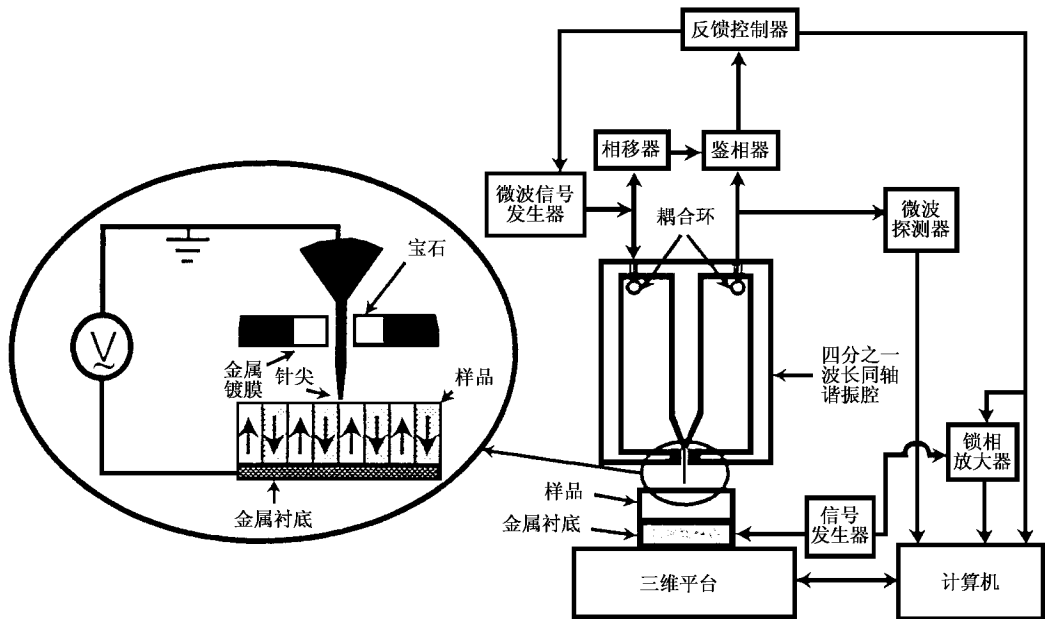


图 1 扫描近场微波显微镜的构造

在“准静态”^[8,14]球形针尖近似和软接触的条件下, 共振频率的改变和样品介电常数间的关系式为

$$\begin{aligned} \frac{f_r - f_0}{f_0} &= \frac{\Delta f_r}{f_0} = - \frac{\int_v \Delta \epsilon E^0 \cdot E^1 dv}{2W} \\ &= A \left(\frac{\ln(1-b)}{b} + 1 \right), \end{aligned} \quad (1)$$

其中 $b = (\epsilon - \epsilon_0) / (\epsilon + \epsilon_0)$, ϵ_0 和 ϵ 分别为真空和被测材料的介电常数, f_0 , f_r 分别为无样品和有样品时共振腔的共振频率, E^0 , E^1 分别为无样品和有样品时针尖附近的电场强度, A 为一可由实验校准 (与腔的几何尺寸、针尖大小有关) 的常数, W 为共振腔内

储存的电磁能量.

在外电场 E 的作用下, 非线性材料的极化可用下式表达 (其中下标 i, j, k, l 为循环指标, 代表三个坐标方向):

$$\begin{aligned} D_i &= P_i + \sum_j \epsilon_{ij} E_j + \frac{1}{2} \sum_{j,k} \epsilon'_{ijk} E_k E_j \\ &\quad + \frac{1}{6} \sum_{j,k,l} \epsilon''_{ijkl} E_l E_k E_j + \dots \end{aligned} \quad (2)$$

相应有效介电常数的分量形式为

$$\epsilon_{ij}^{\text{eff}} = \epsilon_{ij} + \epsilon'_{ijk} E_k + \frac{1}{2} \epsilon''_{ijkl} E_l E_k + \dots \quad (3)$$

其中 ϵ 为线性介电常数, ϵ' 为一阶非线性介电常数,

ϵ'' 为二阶非线性介电常数,....一般场强条件下,上式中的第二项比第一项小几个数量级,难以直接测量,但它随外场的改变而改变,因此可以采用锁相放大技术:在样品上外加一低频调制电场,测量有效介电常数变化中的同频同相成分以检测淹没在“噪声”中的微弱信号.为此,需在针尖和样品间外加一低频调制电场,并用一锁相放大器对共振频率的变化进行锁相放大,如图1所示.详细的测量方法,可参考文献[17].

3. 非线性介电常数的定量计算方法

在上述测量中,样品中的电场是微波电场 E^1 和低频调制电场 E^{Mo} 的叠加,有效介电常数的分量形式为

$$\epsilon_{ij}^{eff} = \epsilon_{ij} + \epsilon'_{ijk} \cdot (E_k^1 + E_k^{Mo}) + \frac{1}{2} \epsilon''_{ijkl} \cdot (E_l^1 + E_l^{Mo}) \chi (E_k^1 + E_k^{Mo}) + \dots (4)$$

在忽略高阶非线性项后,有效介电常数可化为

$$\epsilon_{ij}^{eff} = \epsilon_{ij} + \epsilon'_{ijk} \cdot (E_k^1 + E_k^{Mo}). (5)$$

对于张量形式的介电常数,经重新推导后,得到共振频率扰动的正确形式为

$$\begin{aligned} \frac{\Delta f_r}{f_0} &= -\frac{1}{2W} \int \sum_{i,j} E_i^0 \Delta \epsilon_{ij} E_j^1 dv \\ &= -\frac{1}{2W} \int \sum_{i,j} E_j^0 [(\epsilon_{ij} - \epsilon_0 \delta_{ij}) \\ &\quad + \epsilon'_{ijk} (E_k^1 + E_k^{Mo})] E_j^1 dv. (6) \end{aligned}$$

上式括号中的第二项与第一项不同,作为被积函数,它不再是常数而是位置的函数,因此不能提出积分号,相应的计算也变得复杂起来.此信号被锁相放大器探测到的同频变化成分为

$$\left(\frac{\Delta f_r}{f_0}\right)^\Omega = -\frac{1}{2W} \int \sum_{i,j} E_i^0 (\epsilon'_{ijk} E_k^{Mo}) E_j^1 dv, (7)$$

在一阶非线性介电常数各向同性,即 $\epsilon'_{ijk} = \epsilon_{333} \delta_{ijk}$ 的假设下,上式化为

$$\left(\frac{\Delta f_r}{f_0}\right)^\Omega = -\frac{1}{2W} \epsilon_{333} \int \sum_{i=1}^3 E_i^0 E_i^1 E_i^{Mo} dv. (8)$$

由于 E^1 和 E^{Mo} 均由针尖产生,其有效范围局限于针尖顶端非常小的区域内,在线性介电常数各向同性和“准静态”球形针尖近似^[11]下,有相同的形式

$$\begin{aligned} E^1 &= \frac{q}{2\pi(\epsilon_{333} + \epsilon_0)} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n} b^{n-1} \\ &\quad \times \frac{x e_x + y e_y + (z + R_0/n) e_z}{[x^2 + y^2 + (z + R_0/n)^2]^{3/2}}, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} E^{Mo} &= \frac{4\pi\epsilon_0 R_0 V}{2\pi(\epsilon_{333} + \epsilon_0)} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{1}{m} b^{m-1} \\ &\quad \times \frac{x e_x + y e_y + (z + R_0/m) e_z}{[x^2 + y^2 + (z + R_0/m)^2]^{3/2}}, (9) \end{aligned}$$

其中 e_x, e_y, e_z 分别为 x, y, z 方向上的单位矢量, V 为调制电场的电压, R_0 为针尖顶端曲率半径.将其代入(8)式,可得

$$\begin{aligned} \left(\frac{\Delta f_r}{f_0}\right)^\Omega &= -A \epsilon_{333} \frac{\epsilon_0 V}{2\pi(\epsilon_{333} + \epsilon_0)^2 R_0} \\ &\quad \times \sum_{m,n=1}^{\infty} \frac{1}{mn} b^{m+n-2} [2J_1(m, n) + J_2(m, n)]. (10) \end{aligned}$$

上式涉及两个非标准的椭圆积分:

$$\begin{aligned} J_1(m, n) &= \iiint x^3 \left\{ \left[x^2 + y^2 + \left(z + \frac{1}{n} \right)^2 \right]^{3/2} \right. \\ &\quad \times \left[x^2 + y^2 + \left(z + \frac{1}{m} \right)^2 \right]^{3/2} \\ &\quad \left. \times [x^2 + y^2 + (z + 1)^2]^{3/2} \right\}^{-1} dv, \\ J_2(m, n) &= \iiint \left(z + \frac{1}{n} \right) \chi \left(z + \frac{1}{m} \right) \chi (z + 1) \\ &\quad \times \left\{ \left[x^2 + y^2 + \left(z + \frac{1}{n} \right)^2 \right]^{3/2} \right. \\ &\quad \times \left[x^2 + y^2 + \left(z + \frac{1}{m} \right)^2 \right]^{3/2} \\ &\quad \left. \times [x^2 + y^2 + (z + 1)^2]^{3/2} \right\}^{-1} dv. (11) \end{aligned}$$

由于椭圆积分的困难,无法得到关于 m, n 的解析表达式,而对于每一个 m, n 分别进行计算带来的计算量在现有的条件下也无法实时使用.因此考虑按一定间隔(m, n)计算一些积分,对其他积分进行插值.由积分表达式可以看出,该参量积分在 m, n 从1到 ∞ 的范围内无奇点,是渐变函数,适宜插值.

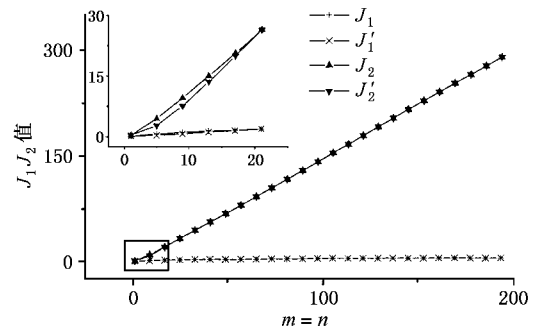


图2 J_1, J_2 计算结果与插值的比较

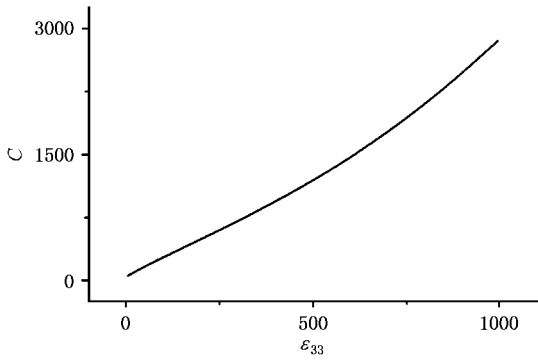
图3 $C-\epsilon_{33}$ 的关系曲线

图2是在 $m=n$ 条件下直接计算的结果与插值的比较,最大误差不超过 2%。由此可见,插值的精度能够满足一般应用的需求。

为方便与实验的比较,引入平均场 $\overline{E^{M_0}}$ 的概念,并将(10)式写为

$$\left(\frac{\Delta f_r}{f_0}\right)^\Omega = -\frac{A}{\epsilon_{33}} \overline{E^{M_0}}, \quad (12)$$

其中 $\overline{E^{M_0}}$ 为 E^{M_0} 在有效区域内的平均值。我们以原点的电场 $E^{M_0}(0) = \frac{V \epsilon_{33} + \epsilon_0}{R_0 2 \epsilon_0}$ 为参考值,除一个系数 C 来表达平均场:

$$\overline{E^{M_0}} = \frac{1}{C} \frac{V \epsilon_{33} + \epsilon_0}{R_0 2 \epsilon_0}. \quad (13)$$

通过计算,得到 $C-\epsilon_{33}$ 的关系曲线,如图3所示。采用最小二乘法拟合,结果为

$$C = 38.9225 + 3.032\epsilon_{33} - 0.0941\epsilon_{33}^{1.5} + 0.00277\epsilon_{33}^2. \quad (14)$$

代入(13)式(12)式得

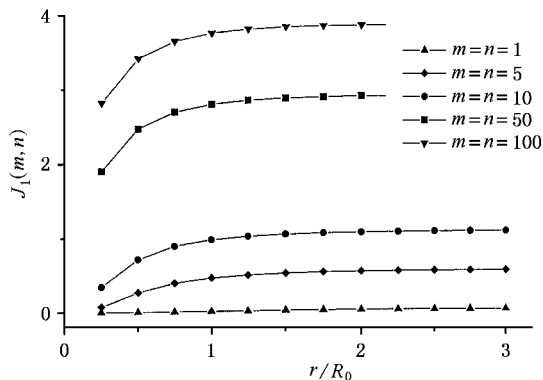
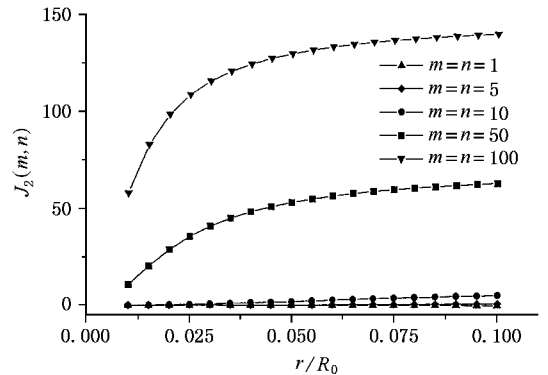
$$\overline{E^{M_0}} = \frac{1}{38.9225 + 3.032\epsilon_{33} - 0.0941\epsilon_{33}^{1.5} + 0.00277\epsilon_{33}^2} \frac{V \epsilon_{33} + \epsilon_0}{R_0 2 \epsilon_0}, \quad (15)$$

$$\left(\frac{\Delta f_r}{f_0}\right)^\Omega = -\frac{A}{38.9225 + 3.032\epsilon_{33} - 0.0941\epsilon_{33}^{1.5} + 0.00277\epsilon_{33}^2} \frac{V \epsilon_{33} + \epsilon_0}{R_0 2 \epsilon_0} \frac{\epsilon_{33}}{\epsilon_{33}}. \quad (16)$$

4. 讨 论

大多数的非线性材料是各向异性的,这方面的工作将在以后开展。本文仅讨论各向同性情况下各个方向的贡献,以区别主要贡献和次要贡献。

由于(10)式中的两个椭圆积分刚好对应于径向的贡献和垂直方向的贡献,我们分别计算不同 m, n 值和不同积分范围的椭圆积分,得到典型的积分值,如图4、图5所示。

图4 不同 m, n 和不同范围的 J_1 积分图5 不同 m, n 和不同范围的 J_2 积分

从图中可以看出,不同的 m, n 值的积分几乎有相同的行为,主要特点有:

1. 垂直方向的贡献远大于径向的贡献(约 10 倍)表明主要贡献来自垂直方向;

2. 所有的贡献局限于针尖下方一个很小的体积内。径向和垂直方向分别在 1.0 倍针尖半径和 0.1 倍处达到饱和。如果以饱和值的 1/2 作为分辨率极限,对应的径向和垂直方向极限分辨率将分别小于 $1/2 R_0$ 和 $1/10 R_0$ 。

- [1] Xu Y 1991 *Elsevier Science* (Amsterdam :The Netherlands)
- [2] Chen Q and Srancil D D 1994 *Appl. Opt.* **33** 7496
- [3] Kurimura S and Uesu Y 1997 *J. Appl. Phys.* **81** 369
- [4] Yan L ,Zhang Y P ,Peng Y P *et al* 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 1017 [in Chinese] 闫 隆、张永平、彭毅萍等 2002 *物理学报* **51** 1017]
- [5] Xu H ,Li J ,Han B S and Wang Y J 1998 *Acta Phys. Sin.* (Overseas Edition) **7** 655
- [6] Xu H ,Han B S ,Ma P P *et al* 1999 *Acta Phys. Sin.* (Overseas Edition) **8** 14
- [7] Wei T ,Xiang X D ,Wallace-Freedman W G *et al* 1996 *Appl. Phys. Lett.* **68** 3506
- [8] Gao C ,Wei T ,Duewer F *et al* 1997 *Appl. Phys. Lett.* **71** 1872
- [9] Syngé E H 1928 *Phil. Mag.* **6** 356
- [10] Soohoo R F 1962 *J. Appl. Phys.* **33** 1276
- [11] Ash E A and Nicholls G 1972 *Nature*(London) **237** 510
- [12] Pohl D W ,Denk W and Lanz M 1984 *Appl. Phys. Lett.* **44** 651
- [13] Lewis A ,Isaacson M ,Murray A and Harootunian A 1983 *Biophys. J.* **41** 405a
- [14] Gao C and Xiang X D 1998 *Rev. Sci. Instrum.* **69** 3846
- [15] Chang H ,Gao C ,Takeuchi I ,Yoo Y ,Wang J ,Schultz P G and Xiang X D 1998 *Appl. Phys. Lett.* **72** 2185
- [16] Chang H ,Takeuchi I and Xiang X D 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 1165
- [17] Gao C ,Duewer F ,Lu Y and Xiang X D 1998 *Appl. Phys. Lett.* **73** 1146

The theoretical calibration coefficient in the measurement of nonlinear dielectric constant with a scanning tip microwave near-field microscopy^{*}

Liu Xue-Rong Hu Bo Liu Wen-Han Gao Chen

(Department of Physics ,University of Science and Technology of China ,Hefei 230026 ,China)

(National Synchrotron Radiation Laboratory ,University of Science and Technology of China ,Hefei 230026 ,China)

(Received 31 March 2002 ; revised manuscript received 11 June 2002)

Abstract

In this paper the interactions between the tip of the scanning tip microwave near-field microscopy and the nonlinear dielectric material were analyzed. The theoretical calibration coefficient in the measurement of nonlinear dielectric constant as a function of dielectric constant was obtained. The contributions to the coefficient from different directions and the resolution limit were also discussed.

Keywords : scanning tip microwave near-field microscopy , dielectric constant , nonlinearity

PACC : 0779 , 5225M , 4660D

^{*} Project supported by the Chinese Academy of Sciences " 100 People Plan " , Knowledge Innovation Program (Grant No. KGX2-201-2) , by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60171044) , by the Funds for Outstanding Young Researchers from the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50125207) and by the Doctorate Foundation of the State Education Ministry of China (Grant No. 20010758025) .