

扫描探针显微学中的云纹方法^{*}

郭海明¹⁾ 刘虹雯¹⁾ 王业亮¹⁾ 谢惠民²⁾ 戴福隆²⁾ 高鸿钧^{1)†}

¹⁾中国科学院物理研究所纳米物理与器件实验室,北京 100080)

²⁾清华大学工程力学系,北京 100084)

(2003 年 2 月 28 日收到,2003 年 4 月 4 日收到修改稿)

在扫描探针显微镜(SPM)的扫描过程中,由 SPM 的扫描线与物质表面周期性晶格结构进行干涉可以形成纳米云纹图像.采用高取向热解石墨(HOPG)和云母作为试件,分别对扫描隧道显微镜(STM)和原子力显微镜(AFM)云纹进行了研究,实验结果与理论分析完全一致.SPM 纳米云纹法在纳米测量和表征方面具有较大的应用前景.

关键词:云纹,SPM,晶格栅线,纳米测量

PACC:6116P,0779,4225H,6170L

1. 引言

基于光学莫尔干涉效应的云纹方法已经发展成为一种成熟的变形测量技术,随着光刻技术的发展和制栅工艺的不断革新,其测量灵敏度已获得了巨大的提高^[1-3].由全息光栅技术制作的试件栅频率达到 5000 线/mm,测量灵敏度可达 0.20 μm ,使得云纹法成功地应用于材料的细观变形研究中^[4].上世纪 90 年代初期,Kishimoto 等^[5]提出了电子束云纹法,采用电子束刻蚀技术制备的栅线频率高于 10000 线/mm,测量灵敏度达 0.1 μm ,使变形测量范围进入到微观尺度.90 年代末,Xing 等^[6,7]提出通过高分辨透射电子显微镜,直接利用晶体的晶格周期结构作为试件栅,和已有的参考栅干涉形成纳米云纹.他们采用该方法对晶体物质中的位错,原子键断裂,残余变形等进行了纳米尺度的观察和测量.

随着纳米技术的发展,具有原子级分辨率的扫描探针显微镜(SPM),如扫描隧道显微镜(STM),原子力显微镜(AFM)等的出现,使得人们可以简便直接地观察到物质表面的原子、分子排列结构,也为纳米范围的测量、加工提供了有效的手段^[8,9].本文提出了一种基于 SPM 的云纹方法,它是用单晶物质的表面晶格结构作为试件栅,扫描探针显微镜的扫描线作为参考栅,通过调整 SPM 的扫描范围,使得试

件栅的频率和扫描线的频率相互匹配,从而两者干涉形成 SPM 纳米云纹.本文对 SPM 纳米云纹的形成原理进行了分析和探讨,实验验证了形成 SPM 纳米云纹的可行性和真实性,最后提出并讨论了 SPM 云纹在纳米测量和表面变形缺陷研究中的作用.

2. 实 验

STM 的云纹实验是采用高取向热解石墨(HOPG)的表面单晶晶格结构作为试件栅来完成的.在大气室温环境下,使用 DI 公司的 Nanoscope IIIa SPM 系统,针尖为机械剪切法制备的铂/铱针尖(80% Pt/20% Ir).实验采用恒流模式,典型的隧道电流和偏压分别为 1 nA 和 50 mV.整个扫描范围内 STM 的扫描线数为 256.首先通过 STM 观察选择一个原子级平整的大面积区域,得到 HOPG 的原子像.为了得到平行云纹,改变扫描角度使 STM 的扫描线平行于石墨晶格中的某一方向的原子线,例如 x 方向(图 1).在扫描线数为 256 的情况下,我们在 40—70 nm 的扫描范围间得到了清晰的云纹图像.当扫描范围为 56 nm 时,改变扫描角度从 -20° 到 20° ,得到了转角云纹.

AFM 的云纹实验是在云母表面上实现的,仍在大气室温环境下采用 Nanoscope IIIa SPM 系统.实验采用接触模式,首先得到原子分辨的云母表面晶格

^{*} 国家自然科学基金重大项目(批准号:90206028,60071009)资助的课题.

[†] 联系作者: hjgao@aphy.iphy.ac.cn

结构图像.在扫描线数为 256 的情况下,我们在 80—120 nm 的扫描范围间得到了云母的云纹图像.

3. 结果与讨论

3.1. SPM 云纹的形成原理

如图 1 所示,SPM 云纹是由晶格格栅和 SPM 的扫描线两者叠加干涉而成,其中前者称为试件栅,后者称为测量栅.当两栅平行重叠并满足一定频率匹

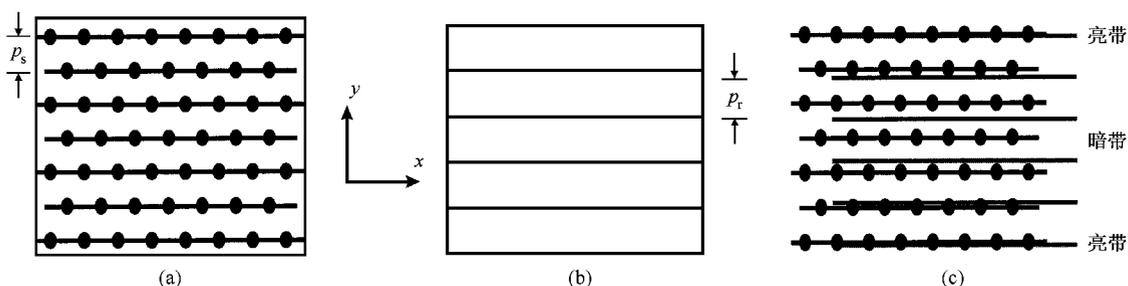


图 1 SPM 平行云纹的形成原理示意图 (a) 物质表面的周期性晶格结构作为试件栅 (b) SPM 扫描线作为测量栅 (c) 当两栅平行时,相互干涉形成平行云纹.如果扫描线处在晶格栅线上或者附近时将会在此处形成一条亮带,相反,如果扫描线处于两条相邻晶格栅线的中间,则会形成一条暗带

由于云纹间距必须至少为 P_s 和 P_r 的两倍,此式成立的条件为 $P_s/2 \leq P_r \leq 2P_s$.从式中可以看出,当原子栅线和扫描栅线间距正好相等时 ($P_r = P_s$),则云纹间距 P_m 将趋于无穷大,即没有云纹形成; P_s 和 P_r 相差越大,云纹间距 P_m 将会越小,云纹越密集.

另外,云纹间距 P_m 和扫描栅线间距 P_r 与扫描范围 L 具有以下关系:

$$L = n P_m = N P_r, \quad (2)$$

式中 n 为扫描范围内的云纹条数, N 为扫描线数(一般为 256 或 512).由(1)和(2)式可得到

$$L = P_s [N \pm n], \quad (3)$$

此式即为当试件栅间距 P_s 和 N 一定时,云纹条数 n 和扫描范围 L 之间的关系式.式中“+”表示扫描栅线间距大于原子栅线间距 ($P_r > P_s$);“-”表示 $P_r < P_s$.(1)式和(3)式说明了 SPM 平行云纹的形成原理.

3.2. 实验结果和讨论

图 2 显示了几个不同扫描范围内 STM 平行云纹的图像,扫描范围 L 分别为(a) 56 nm,(b) 60

配条件时即出现平行云纹.在扫描过程中,当扫描线正好在原子线上或接近原子线进行扫描时将会在此处形成一条亮带,相反,如果扫描线处于两个相邻原子线的中间,则会形成一条暗带,如图 1(c)所示.相邻的亮带和暗带就形成一条莫尔条纹(云纹).可以看出,在一个云纹间距里原子栅线的数目与扫描栅线的数目仅仅相差一条.假设沿 Y 方向的原子栅线间距为 P_s ,而扫描栅线间距为 P_r ,很容易算出云纹的间距:

$$P_m = P_s P_r / |P_s - P_r|, \quad (1)$$

nm,(c) 64 nm,(d) 68 nm.当扫描范围从 56 nm 逐渐增大时, P_r 与 P_s 的差值 ($P_r - P_s$) 越来越大,所以云纹间距越来越小,云纹条数逐渐增加.根据(1)式,云纹间距 P_m 对 P_r 与 P_s 的差值 ($P_r - P_s$) 非常敏感,尽管扫描范围每次改变 2 nm 时,扫描线间距 P_r 仅有很小的变化,但均导致云纹的间距产生很大的改变.

图 3 表明云纹条数 (n) 和扫描范围 (L) 之间具有良好的线形对称关系,并完全符合(2)式.当扫描范围为 51.4 nm 时,没有云纹产生,表明此时原子栅线和扫描栅线的间距正好相等 ($P_r = P_s$).如果扫描范围从 51.4 nm 一直增大(或减小)时,云纹条数将会急剧增大以致于无法分辨.一般地,云纹条数应小于扫描线数的一半 ($n < 0.5 N$),根据(2)式,扫描范围 L 应处于 30 到 78 nm 之间.

图 4 显示了扫描范围为 56 nm,扫描角度从 -10° 变化到 10° 时的 STM 转角云纹图像.当扫描角度有微小变化时,云纹的宽度和角度均发生巨大的变化.当扫描角度向相反的方向偏转时,云纹也向相反的方向旋转.当扫描角度超过 20° 时,云纹将会变得非常细小模糊从而无法分辨.一个有意思的现象

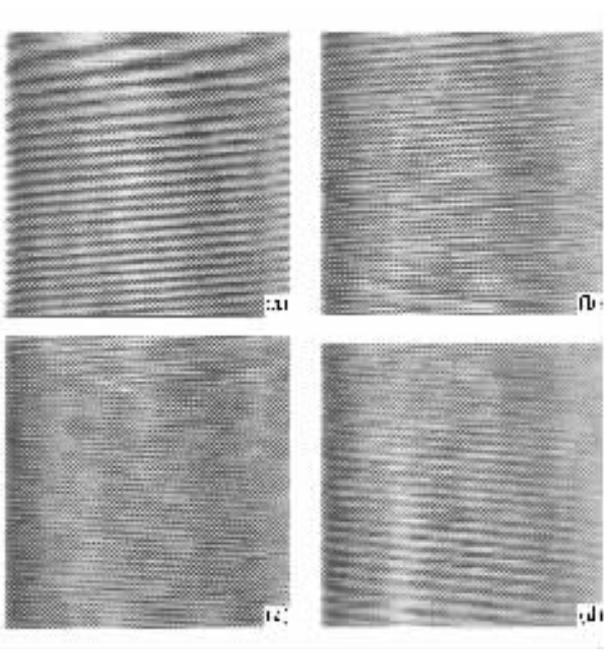


图 2 在 HOPG 表面得到的 STM 平行云纹图案(扫描范围分别为 (a) 56 nm,(b) 60 nm,(c) 64 nm,(d) 68 nm.扫描范围的微小改变会导致云纹条数和间距产生很大的变化)

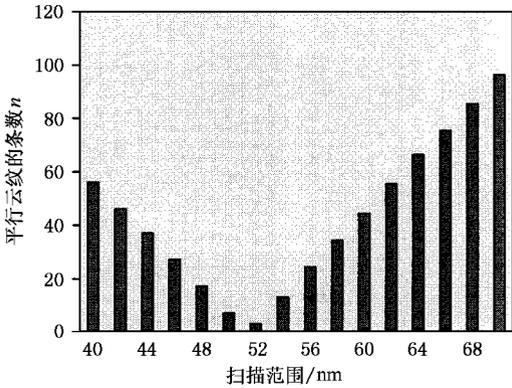


图 3 HOPG 的 STM 平行云纹条数与扫描范围的关系图.当原子栅线和扫描栅线间距正好相等时(扫描范围为 51.4 nm),没有云纹形成.随着扫描范围的逐渐增大或减小,原子栅线和扫描栅线间距的差值增大,云纹条数线性增加

是当扫描角度大于约 40° 时,云纹又会以相反的方向重新出现,当扫描角度改变 60° 时,又会产生平行云纹.图 5 是 STM 转角云纹生成原理的示意图,沿着扫描栅线和原子栅线的交点的连线将会形成一条亮带,两条亮带之间将形成一条暗带.转角云纹的间距和角度可以根据两组栅线的参数以及它们之间的相对位置计算得到.我们知道,HOPG 的表面晶格有三组不同方向的原子栅线,它们各相差 60° .通过对转角莫尔条纹的研究结果表明,仅仅与扫描栅线夹角

最小的那组原子栅线才能和扫描栅线进行有效的叠加干涉,从而形成清晰可辨的莫尔条纹^[10].

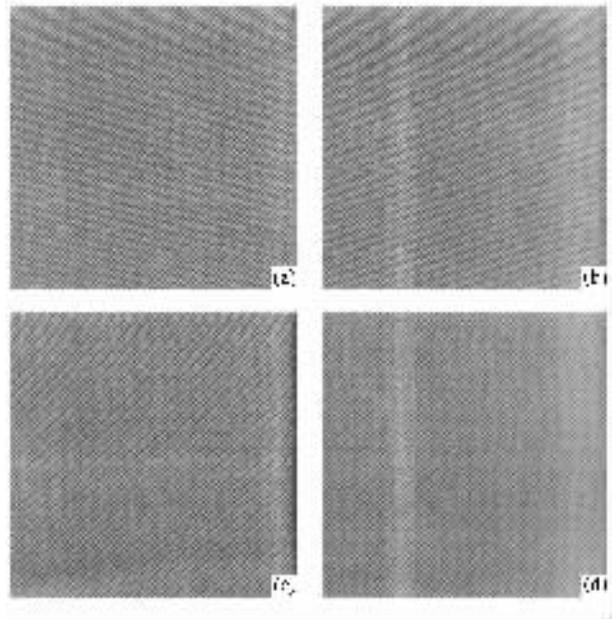


图 4 STM 转角云纹图案(扫描范围为 56 nm,扫描角度分别为 (a) -2° ,(b) 2° ,(c) 5° ,(d) 10° .扫描角度的微小改变引起云纹的宽度和角度发生很大的变化.当扫描角度向相反的方向偏转时,云纹也向相反的方向旋转)

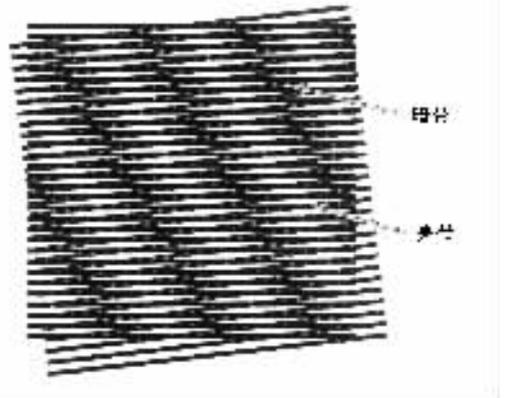


图 5 SPM 转角云纹的形成原理示意图(沿着扫描栅线和原子栅线的交点的连线将会形成一条亮带,两条亮带之间将形成一条暗带.相邻的亮带和暗带就形成一条莫尔条纹(云纹))

图 (a)是由 AFM 得到的云母原子分辨图像,其原子栅线间距约为 0.45 nm.当扫描线数 N 等于 256 时,在 80—120 nm 范围内得到了云母的云纹图像.由于前面对 STM 云纹形成原理和变化规律的分析同样适用于 AFM 云纹,本文在此不再详细论述,仅给出典型的 AFM 云母云纹图像,如图 (b)所示.

需要指出 SPM 云纹的形成仅仅依赖于物质表

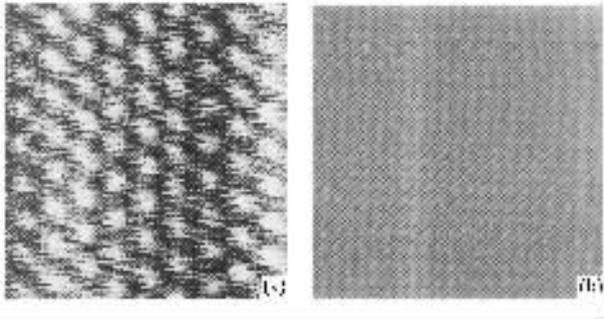


图6 云母的 AFM 云纹图 (a) 云母的表面晶格结构, 扫描范围: $4 \text{ nm} \times 4 \text{ nm}$, (b) 典型的云母 AFM 云纹图案, 扫描范围: $120 \text{ nm} \times 120 \text{ nm}$

面晶格栅线和扫描线的干涉, 它与 SPM 本身的扫描参数, 如偏压、隧道电流、针尖-试样之间的接触力、扫描速度等没有关系. 我们在操作 SPM 的过程中, 由于操作参数不当、仪器本身或环境因素等经常得到与 SPM 云纹非常相似的噪声图像, 但是两者在形成原理、变化规律、影响因素等方面有着本质的不同, 通过对 SPM 云纹特征的认识可以帮助我们进行正确区分, 从而有利于更有效地进行 SPM 操作.

3.3. SPM 云纹在表面缺陷分析和变形测量中的应用

从某种意义上讲, SPM 云纹反映的是晶格栅线与扫描栅线之间的不同. 如果使扫描线保持恒定, 那么 SPM 云纹就包含了表面晶格的特征信息, 晶格中的变形和缺陷等将会在 SPM 云纹中得到充分体现. 这就是我们期望利用 SPM 云纹进行表面缺陷和变形研究的基本思想. 例如, 假设晶格中原子栅线间距有一个微小扰动 ΔP_s , 由(1)式, 云纹的间距变化 ΔP_m 将会等于

$$\Delta P_m = (P_m / |P_s - P_r|) \cdot \Delta P_s, \quad (4)$$

可以算出 ΔP_m 比 ΔP_s 要大得多. 这表明相对于用 STM 直接观察到的原子分辨图像, 云纹图像对晶格中的微小变形更加敏感, 并具有明显的放大作用.

下面几张图显示了一些 HOPG 原子晶格变形的 STM 云纹特征图案. 图 7(a) 中 A 区和 B 区的云纹间距有着明显的差别, 原位的 STM 原子分辨像表明这两个区域的原子栅线间距分别为 0.203 nm 和 0.217 nm . 云纹图像能够同时反映形貌特征, 在 B 区和 C 区之间边界处可观察到 HOPG 的台阶. 图 7(b) 中 D 区处的云纹发生严重扭曲, 表明此处有一个很大的晶格应变场. 图 7(c) 中 E 区的云纹突然断开和消失, 原位的原子分辨图像显示此处原子排列无序且

模糊, 类似于非晶区, 如图 7(d) 所示. 以上图像都能够不同扫描条件下长时间内保持稳定且可重复出现, 排除了由于仪器或操作等因素所导致产生的假像.

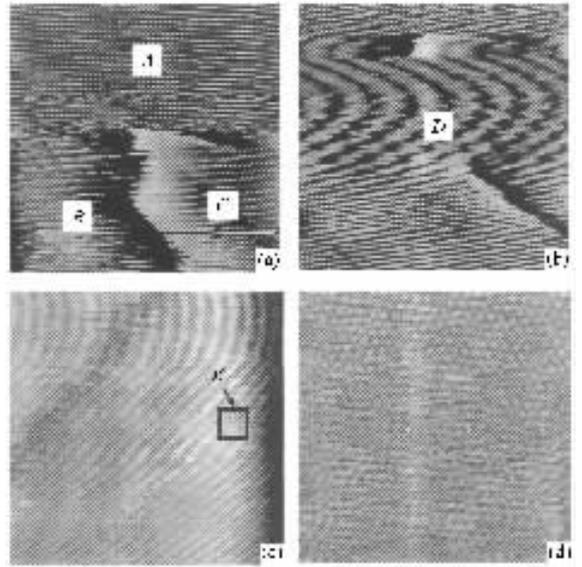


图7 HOPG 原子晶格变形的一些 STM 云纹特征图案 (a) A 区和 B 区的云纹间距有很大差别, 原位的原子分辨像表明这两个区域的原子栅线间距不同. 同时可观察到 B 区和 C 区之间的台阶形貌特征, 扫描范围: $66 \text{ nm} \times 66 \text{ nm}$. (b) D 区处有一个很大的应变场, 使云纹发生严重扭曲, 扫描范围: $60 \text{ nm} \times 60 \text{ nm}$. (c) E 区中云纹突然消失, 扫描范围: $56 \text{ nm} \times 56 \text{ nm}$. (d) E 区处的原子分辨图像, 显示出原子排列无序且模糊, 扫描范围: $5.70 \text{ nm} \times 5.70 \text{ nm}$.

另外, 根据 SPM 云纹的形成机理, 其他各种晶格缺陷都应该能够在云纹图像中得到不同的反映^[7]. 图 8 显示了由表面晶格中位错形成的云纹图案. 当扫描线平行于位错方向且扫描线的位置和间距满足一定条件时, 两条云纹会在位错尖端汇合形成一条云纹; 当扫描线与位错方向有一定角度时, 将会形成转角云纹, 且有一条云纹在位错尖端突然消失. 图 9 所示的云纹图案反映了表面晶格中的层错结构, 云纹在层错处不再连续, 仿佛被剪断后再移动了半个云纹间距. 这些不同而有趣的云纹特征图案可以帮助我们在一个较大范围内寻找和确定不同的晶格变形和缺陷, 所以可以在表面晶格的缺陷分析和变形测量研究中获得重要的应用.

近年来, 各种周期性有序纳米结构受到人们越来越多的重视和关注, 如纳米量子点有序点阵^[11-14], 纳米线和纳米管有序阵列^[15], 有机分子有序薄膜^[16]等等. 对这些有序纳米结构的表征和测量

已成为一个极为重要的课题.采用 SPM 云纹方法可以同时观察到表面微观形貌和云纹图像,能够在较大范围内观察到有序结构的局域变形和缺陷情况,且操作过程简单方便.经过进一步的研究和不断发

展,SPM 云纹法有望成为一种有序纳米结构表征和研究的有效的新途径和新方法,从而在纳米领域研究中发挥重要作用.

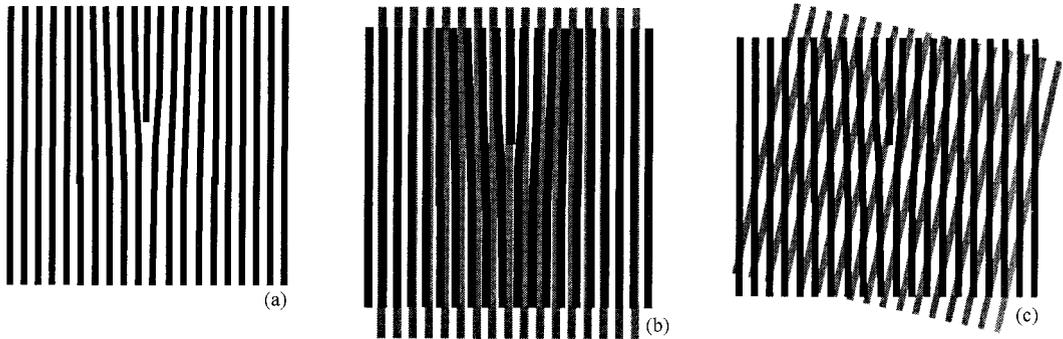


图 8 表面晶格中位错形成的云纹示意图 (a)表面晶格中的位错结构 (b)当扫描线平行于位错方向且扫描线的位置和间距满足一定条件时,两条云纹会在位错尖端汇合形成成为一条云纹 (c)当扫描线与位错方向有一定角度时,将会形成转角云纹,且有一条云纹在位错尖端突然消失

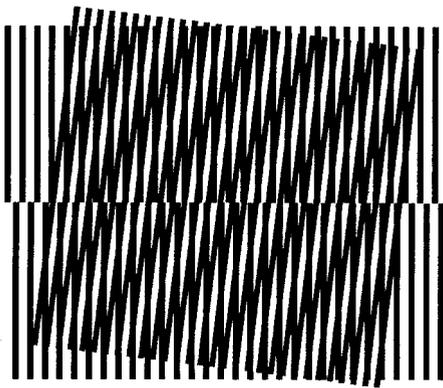


图 9 表面晶格中层错结构的云纹示意图(云纹在层错处不再连续,仿佛被剪断后再移动半个云纹间距)

4. 结 论

自 SPM 发明以来,人们可以用它来获得两种图像,其中原子级分辨图像扫描范围很小,一般最大不过几十纳米,而大范围的形貌像又无法分辨出试样的表面晶格结构.我们提出了一种新的 SPM 云纹图像方法.它是在扫描过程中由 SPM 的扫描栅线与物质表面晶格的周期性栅线相互干涉而得到的一种莫尔条纹图像.SPM 云纹图像可以在相当大的尺度内反映试样表面晶格结构,以及局域变形和缺陷结构特征.本文对 SPM 云纹的形成原理进行了分析,利用 HOPG 和云母分别对 STM 和 AFM 云纹进行了观察和研究,探讨了 SPM 云纹在表面晶格缺陷分析和变形测量中的潜在应用.

[1] Smith H I , Chinn S R and Degraff P D 1975 *J. Vac. Sci. Tech.* **12** 1262
 [2] Qian K , Miao H and Wu X 1999 *Optics and Lasers in Eng.* **31** 289
 [3] Dally J W and Read D T 1993 *Experimental Mechanics* **11** 270
 [4] Post D 1980 *Mechanics of Nondestructive Testing* (New York : Plenum Press)
 [5] Kishimoto S , Egashira M and Shinya N 1993 *Opt. Eng.* **32** 522
 [6] Xing Y M , Dai F L and Yang W 2000 *Science in China (A)* **43** 963
 [7] Dai F L and Xing Y M 1999 *Acta Mech. Sin.* **15** 283
 [8] Binnig G , Rohrer H , Gerber C and Weibel E 1982 *Phys. Rev. Lett.* **49** 57

[9] Hasegawa Y and Avouris P 1992 *Science* **258** 1763
 [10] Xie H M , Kishimoto S , Boay C G *et al* 2000 *J. Nanotech.* **11** 24
 [11] Shen C M , Su Y K , Gao H J *et al* 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 483 (in Chinese) [申承民、苏轶坤、高鸿钧等 2003 物理学报 **52** 483]
 [12] He S T , Yao J N , Gao H J *et al* 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 765 (in Chinese) [何声太、姚建年、高鸿钧等 2001 物理学报 **50** 765]
 [13] 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]
 [14] Zhang Y P , Yan L , Gao H J *et al* 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 296 (in Chinese) [张永平、闫 隆、高鸿钧等 2002 物理学报 **51** 296]

- [15] Bohringer M , Morgenstern K and Schneider W D 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 324
- [16] Gerstenberg M C , Schreiber F , Scoles G *et al* 2000. *Phys. Rev. B* **61** 7678

Moiré fringes of HOPG and mica in scanning probe microscopy^{*}

Guo Hai-Ming¹⁾ Liu Hong-Wen¹⁾ Wang Ye-Liang¹⁾ Xie Hui-Min²⁾ Dai Fu-Long²⁾ Gao Hong-Jun¹⁾

¹⁾*Nanoscale Physics & Devices Laboratory , Institute of Physics , Chinese Academy of Sciences , Beijing 100080 , China)*

²⁾*Department of Engineering Mechanics , Tsinghua University , Beijing 100084 , China)*

(Received 28 February 2003 ; revised manuscript received 4 April 2003)

Abstract

A Moiré technique using a scanning probe microscope (SPM) is developed , in which the natural periodic structure of a crystal is used as an ideal spacing grating. Formation principle of the SPM moiré fringes is discussed. Moiré patterns formed on highly oriented pyrolytic graphite (HOPG) and mica are investigated experimentally with STM and AFM , respectively. The results demonstrate the feasibility of the SPM Moiré technique in studying deformation and defects of crystals at the nanometer scale.

Keywords : Moiré fringe , SPM , crystalline lattice , nanometer-scale characterization

PACC : 6116P , 0779 , 4225H , 6170L

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 90206028 , 60071009).