

原子力显微镜探针悬臂几何结构变化对高次谐波信息增强的研究*

杨海艳 王振宇 李英姿 张维然 钱建强†

(北京航空航天大学应用物理系, 微纳测控与低维物理教育部重点实验室, 北京 100191)

(2013年4月27日收到; 2013年7月9日收到修改稿)

轻敲模式原子力显微镜高次谐波信号包含待测样品表面纳米力学特性等方面的信息, 但是传统原子力显微镜的高次谐波信号非常微弱. 里兹法证明在探针悬臂的特定位置打孔可以实现探针的内共振从而增强高次谐波信号强度. 本文通过有限元仿真计算获得探针第一共振频、第二共振频及其比值随着孔的尺寸和位置变化的规律. 在实验上通过聚焦离子束在探针悬臂上打孔使其第二共振频约为第一共振频的 6 倍, 提高了第 6 次谐波信号的信噪比, 并在实验室研制的高次谐波成像实验装置上获得了 6 次谐波图像.

关键词: 轻敲模式原子力显微镜, 探针悬臂几何结构, 高次谐波, 聚焦离子束加工

PACS: 07.79.Lh

DOI: 10.7498/aps.62.200703

1 引言

原子力显微镜 (AFM)^[1] 自发明以来已逐渐成为纳米科学领域中非常重要的研究工具, 人们对纳米材料的研究也逐步由观测样品表面形貌延伸到了表面力学性能信息的研究领域. 为了使 AFM 能在材料科学和生物学中得到进一步的应用, 发展了一些利用 AFM 检测样品表面力学性质的测试方法^[2-5], 如纳米刻痕^[2]、力调制^[3]等, 但是这些方法都是基于 AFM 的接触模式, 易损伤样品表面形貌, 影响对样品表面的成像.

轻敲模式是目前应用最广泛的 AFM 成像方式. 该方法利用针尖与样品间相互作用引起的探针的相位、振幅和共振频率的改变来获得形貌成像^[6-8], 对样品表面的损伤很小, 被应用于诸多领域, 如半导体科学、生物学、化学科学等方面. 由于针尖与样品间的非线性相互作用, 原子力显微镜探针振动信号中包含了高次谐波分量^[9]. Hillenbrand 等^[10] 利用第 13 次谐波对晶硅片进行成像, 获得了比基频像更好的对比度; Sahin 等^[11] 利用第

16 次谐波对表面覆盖有高硼硅玻璃和铬的光掩膜样品进行成像, 图像能够很好地区分两种表面杨氏模量不同的样品. 相比于基频信号, 高次谐波信号不仅能够用于样品表面形貌成像, 而且能够用其表征样品表面的力学性质, 具有重要应用价值.

然而, 传统原子力显微镜的高次谐波信号强度非常小, 很难有效地提取, 因此对高次谐波信号的增强研究成为一个热点, 多频激励等方法^[12,13] 陆续被提出. 特别地, 当探针的两共振频率之比接近整数时, 在针尖样品作用力的影响下, 两共振模态易发生相互间的耦合, 这种现象被称为“内共振”, 内共振现象可以有效地提高高次谐波信号的信噪比^[14].

Sadewasser 等^[15] 以及 Felts 和 King 等^[16] 分别通过对矩形探针悬臂两边加工出缺口和在探针悬臂上加工出一个自由振动的翘板等方法, 改变探针的共振频率. 相比于他们的加工方法, Sahin 等^[11] 在探针悬臂的特定位置打孔的方法更为简单, 但他们并没有给出探针的共振频率随孔尺寸和位置变化的规律. 里兹法证明了在 AFM 探针悬臂上打孔可以改变其共振频率, 本文应用有限元仿真获

* 国家自然科学基金 (批准号: 11074019) 和北京市自然科学基金 (批准号: 4132038) 资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: qianjq@buaa.edu.cn

得探针基频 (f_1)、第二共振频 (f_2) 及其比值随孔尺寸及位置变化的规律, 借助聚焦离子束 (FIB) 在探针悬臂的特定位置打孔, 实现 6:1 内共振, 成功提高了第 6 次谐波信号的信噪比, 并在实验室研制的高次谐波成像实验装置上获得了第 6 次谐波图像.

2 理论分析

对于弹性体振动的解法, 解微分方程得到解析解是一种方式, 对于结构单一、边界条件简单的问题可较容易地得到解析解. 实际的工程结构比较复杂, 通过解微、积分方程得到解析解极为困难. 所以一些建立在变分原理基础上的近似解法就有了用武之地. 里兹^[17]法建立在哈密顿变分基础上, 通过变分方法来建立连续弹性体的运动微分方程.

在探针悬臂上打孔的理论模型是根据里兹法利用多项式的正交边界条件建立起来的. 未打孔前, 线性代数方程组 (1) 的 w 的 n 个根为探针共振频率的近似解^[18]:

$$\sum_{j=1}^n (C_{ij} - w^2 B_{ij}) a_j = 0, \quad (1)$$

其中

$$B_{ij} = \int_0^L \rho A z_i(x) z_j(x) dx, \quad (2)$$

$$C_{ij} = \int_0^L EI \frac{\partial^2 z_i(x)}{\partial x^2} \frac{\partial^2 z_j(x)}{\partial x^2} dx, \quad (3)$$

E 为探针悬臂的杨氏模量, 探针悬臂长 L , 宽 W , 厚 T , 转动惯量 $I = \frac{WT^3}{12}$, ρ 为密度, $A = WT$.

由于内共振现象发生在两共振频率之比接近整数时, 一般矩形探针无法发生内共振现象. 因此, 需要改变探针的频率来满足内共振的条件. 改变频率即是改变 (1) 式的解, 从该式可知要改变方程的解需要改变 B_{ij} 和 C_{ij} . 从 (2) 式和 (3) 式可知改变 B_{ij} 和 C_{ij} 需要改变探针悬臂局部的宽 W 和厚 T . 因此, 通过在探针悬臂上打孔, 如图 1 所示, 可以使探针的共振频率发生改变.

设孔的宽、厚分别 W_{ch} 和 T_{ch} , 起始和终止位置距固定端分别为 L_{ch1} 和 L_{ch2} , $A_{ch} = W_{ch}T_{ch}$, $I_{ch} = \frac{W_{ch}T_{ch}^3}{12}$ 则 (1), (2) 和 (3) 式化简为

$$\sum_{j=1}^n (C'_{ij} - w^2 B'_{ij}) a_j = 0, \quad (4)$$

$$B'_{ij} = \int_0^L \rho A z_i(x) z_j(x) dx$$

$$- \int_{L_{ch1}}^{L_{ch2}} \rho A_{ch} z_i(x) z_j(x) dx, \quad (5)$$

$$C'_{ij} = \int_0^L EI \frac{\partial^2 z_i(x)}{\partial x^2} \frac{\partial^2 z_j(x)}{\partial x^2} dx - \int_{L_{ch1}}^{L_{ch2}} EI_{ch} \frac{\partial^2 z_i(x)}{\partial x^2} \frac{\partial^2 z_j(x)}{\partial x^2} dx. \quad (6)$$

解 (4) 式可以得到 w 的 n 个根为打孔后矩形探针的一系列共振频率近似解.

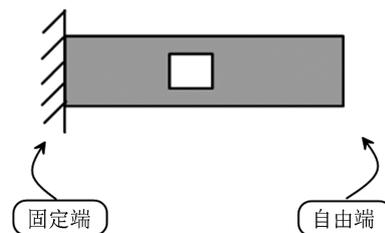


图 1 矩形悬臂打孔示意图

3 有限元仿真

通过里兹法验证, 在探针悬臂上打孔的方法可以调节探针的基频和第二共振频率, 里兹法在论证过程中存在一些近似计算^[19]的结果会与实际情况存在一些偏差. 本文以 COMSOL Multiphysics 有限元法为基础, 通过解偏微分方程 (或偏微分方程组) 对探针的运动进行高度精确的数值仿真.

通过有限元方法对探针的特征频率进行仿真, 探针悬臂尺寸选择为长 $450 \mu\text{m}$, 宽 $50 \mu\text{m}$, 厚度 $2 \mu\text{m}$, 杨氏模量 $E = 1.5 \times 10^{11} \text{ Pa}$, 密度 $\rho = 3240 \text{ kg/m}^3$, 泊松比 $\nu = 0.3$. 考虑到普通矩形探针 f_2/f_1 为 6.26^[19], 实现 f_2/f_1 整数 6 更为容易, 因此仿真计算了四种尺寸, 分别为 $10 \mu\text{m} \times 25 \mu\text{m}$, $18 \mu\text{m} \times 25 \mu\text{m}$, $26 \mu\text{m} \times 25 \mu\text{m}$, $34 \mu\text{m} \times 25 \mu\text{m}$ (长 \times 宽) 的方孔随着孔中心距离固定端位置变化其 $f_1, f_2, f_2/f_1$ 的变化规律, 孔中心相对于悬臂固定端的距离以 $20 \mu\text{m}$ 的长度为步长移动到悬臂自由端.

仿真结果如图 2 所示. 图 2(a), (b), (c) 分别为探针的 f_1, f_2 及 f_2/f_1 , 随着孔中心与悬臂固定端的距离变化 (孔中心从悬臂固定端移动到自由端) 的规律曲线, 由图 2(a) 可知, 随着孔中心与悬臂固定端距离的增加, f_1 先变小后变大, 打孔长度越大, 对探针的基频调节范围变大. 由图 2(b) 可得, 随着孔中心与悬臂固定端距离的增加, f_2 的大小存在反复变化, 打孔长度越大, 对探针第二共振频的调节范围越大. 对比图 2(a) 和 (b) 可知, 悬臂打孔的加工方法对探针第二共振频有更大的调节作用. 由图 2(c) 可

得,随着孔中心与悬臂固定端距离的增加, f_2/f_1 先变大后变小再变大. 由仿真可知,在探针悬臂固定位置打孔的方法可以使探针的 f_2/f_1 变为整数 6.

依据仿真结果对探针悬臂打孔,孔的尺寸选取为 $18\ \mu\text{m} \times 25\ \mu\text{m}$,由图 2(c)可知,要使探针的 f_2/f_1 为 6,孔中心距离悬臂固定端应为 $278\ \mu\text{m}$. 图 3(a), (b) 分别为打孔前探针的第一、第二共振模态的仿真图,探针的 f_2/f_1 为 6.26. 图 4(a), (b) 分别为打孔后探针的第一、第二共振模态的仿真图,打孔后探针 f_2/f_1 改变为 6.

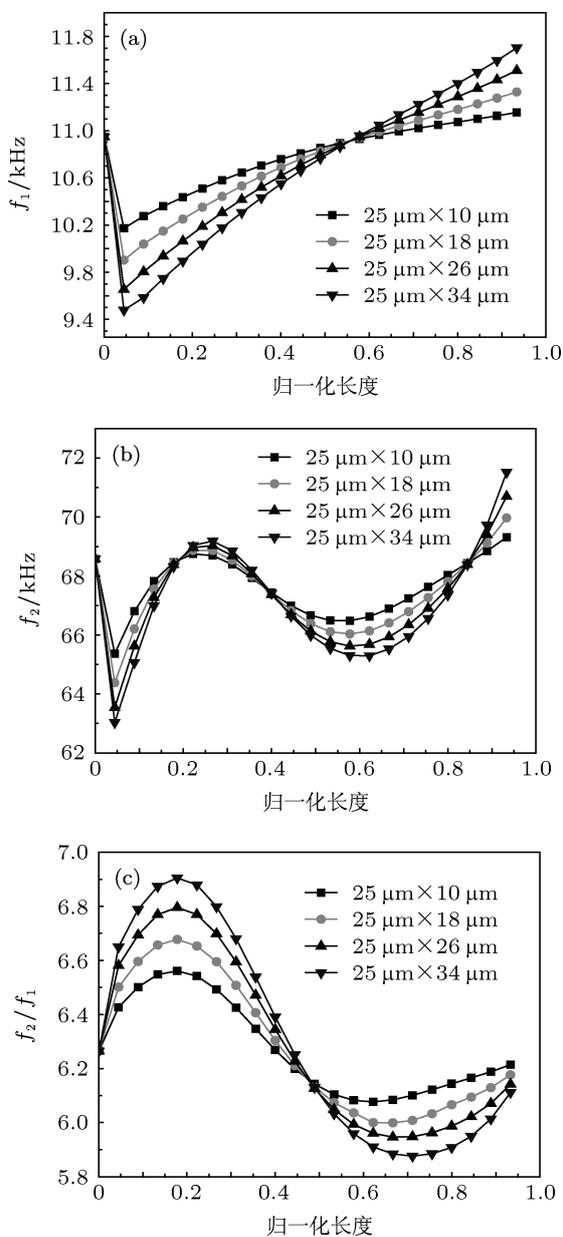


图 2 (a), (b), (c) 分别为 f_1 , f_2 , f_2/f_1 的值随孔中心距悬臂固定端位置的变化曲线

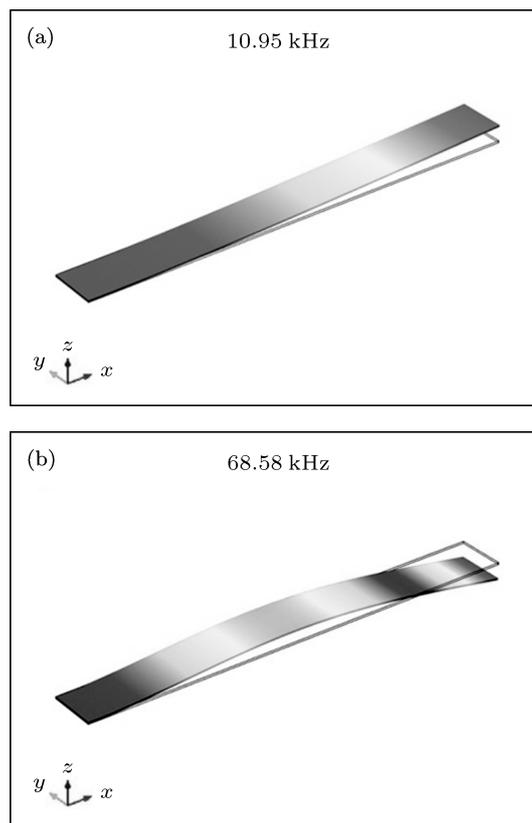


图 3 打孔前探针的第一、第二共振模态仿真图

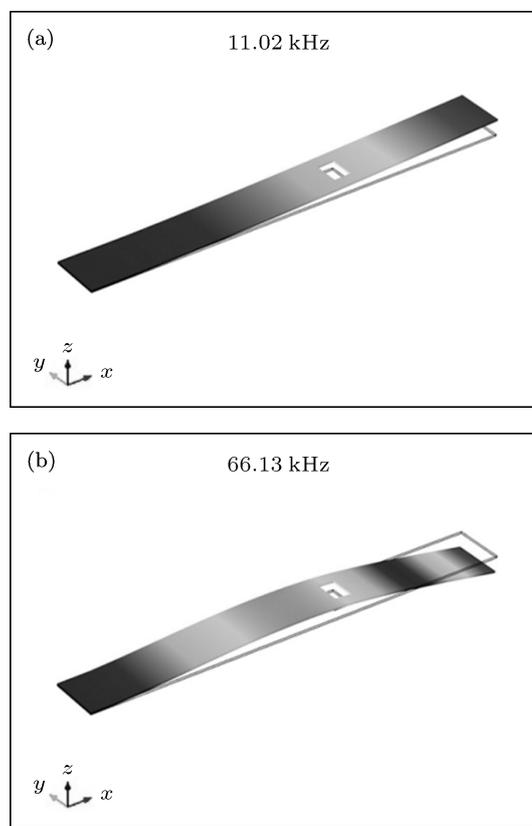


图 4 打孔后探针的第一、第二共振模态仿真图

4 实验

FIB^[15] 是半导体工业、材料科学和生物学领域对样品进行定位分析、沉积和消融的一种技术. 可以用强电流离子束对样品表面原子进行剥离, 以完成微、纳米级表面形貌加工. 用 FIB 加工方法可对 AFM 探针悬臂进行小面积的切割, 改变探针悬臂的几何形状, 使探针共振频率改变, 进而实现探针内共振.

应用 FIB 按照仿真图 4 中孔的尺寸和位置对探针悬臂进行加工, 图 5 和图 6 分别为探针加工前、后的扫描电镜图像和扫频曲线, 图 5(b) 所示 f_2/f_1 为 6.79, 因为实际的探针并不是标准的梁结构, 所以与解梁结构方程存在一定差异. 而加工后图 6(b) 所示探针基频增加, 第二共振频率减小, 与仿真结果趋势相同, f_2/f_1 为 5.95, 接近 6. 加工结果与仿真结果之所以存在差异是由于探针与梁结构存在差异所致.

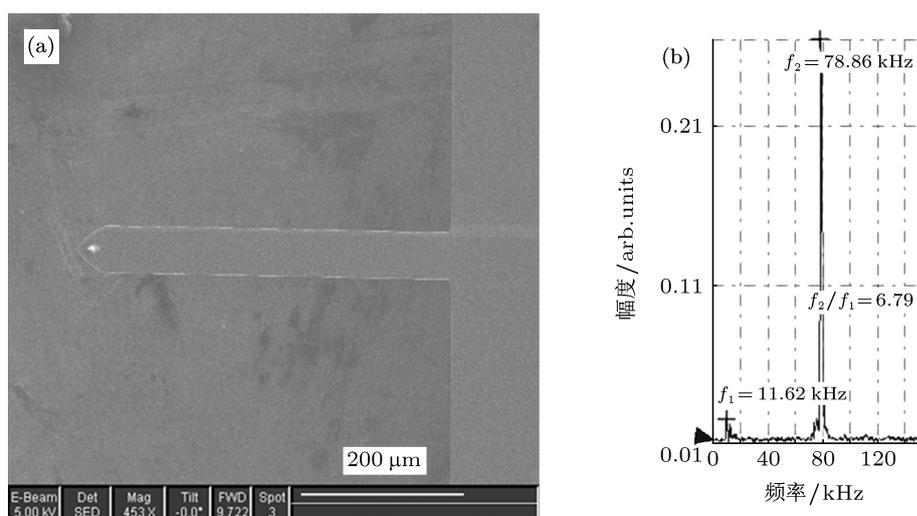


图 5 (a), (b) 分别为探针加工前的扫描电镜图像和扫频图

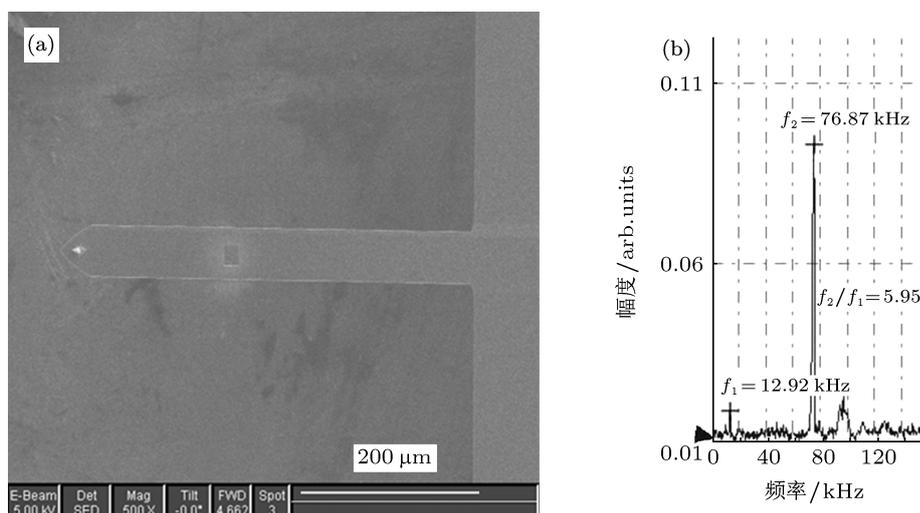


图 6 (a), (b) 分别为探针加工后的扫描电镜图像和扫频图

探针应用 FIB 加工前其 f_2/f_1 为 6.79, 不能实现内共振, 其高次谐波信号幅值非常小, 常淹没于噪声信号中, 应用在实验室研制的高次谐波成像系统^[20]上, 不能获得稳定的高次谐波图像. 而加工后的 f_2/f_1 为 5.95, 能实现明显的内共振, 使第

6 次谐波信息增强. 将 FIB 加工后的探针应用于实验室研制的高次谐波成像实验装置上, 获得了 $0.5 \mu\text{m} \times 0.5 \mu\text{m}$ 的二嵌段共聚物的基频形貌图像和 6 次谐波图像, 分别如图 7(a), (b) 所示. 二嵌段共聚物由聚苯乙烯 (PS) 和聚环氧乙烷 (PEO) 两种

成分经过组装形成,在 PS 基底下,PEO 成圆柱状的规则排列的阵列,PS 的弹性模量较大,PEO 的弹性模量相对较低,所以整个嵌段共聚物有明显的软硬区域差别.图 7(a) 在 100—140 nm 之间存在一个约为 3 nm 的凹陷,因为 PEO 为圆柱状,所以从形貌图 7(a) 中可知该处凹陷为 PEO 样品,图 7(b) 在相同位置处存在一个明显的突起,因为扫图过程中探针与

样品表面的距离恒定,所以该突起主要是源于 PEO 样品表面弹性模量与周围衬底 PS 的表面弹性模量之间的差异.应用 FIB 加工后的探针在实验室研制的高次谐波成像实验装置上实现了高次谐波像对样品弹性模量的表征.该工作说明可以通过 FIB 加工使探针实现内共振,从而增强高次谐波信号强度,使其能够用于高次谐波成像.

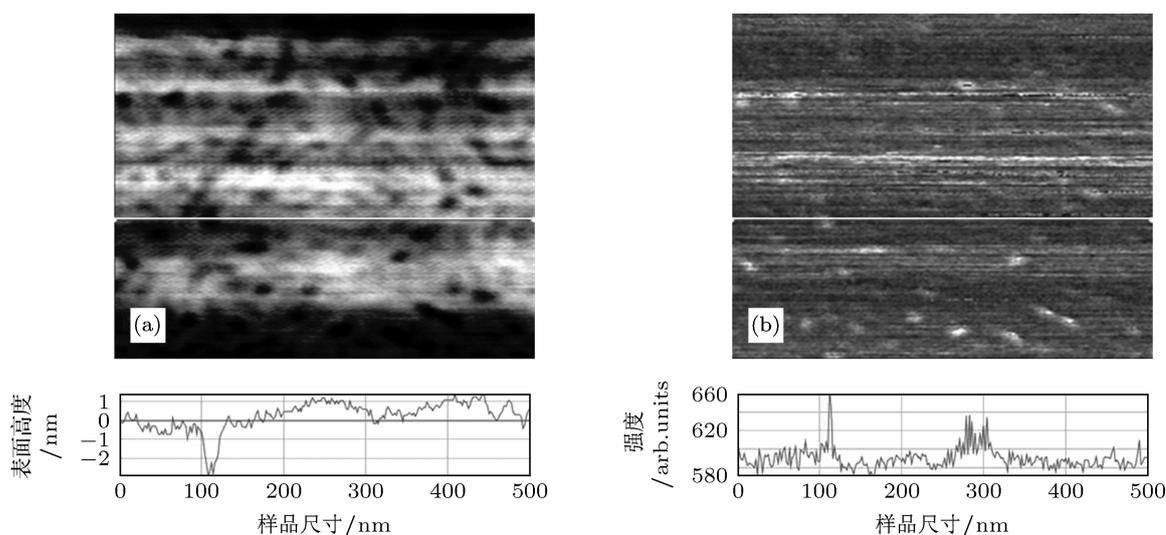


图 7 二嵌段共聚物样品的 (a) 基频形貌图像, (b) 第 6 次谐波成像

5 结论

轻敲模式原子力显微镜高次谐波信号能表征样品表面的物理化学性质,但是传统原子力显微镜的高次谐波信号非常微弱.理论分析证明,在探针悬臂的特定位置打孔可以实现探针的内共振.经有限元仿真计算,在探针悬臂(长 450 μm ,宽 50 μm ,厚度 2 μm)上打尺寸为 18 $\mu\text{m} \times 25 \mu\text{m}$ 的方孔(孔

中心距离固定端 278 μm)可以使探针的 f_2/f_1 为整数 6,实现 6:1 内共振.应用 FIB 加工方法按仿真尺寸对探针悬臂打孔,使探针 f_2/f_1 从 6.79 变为 5.95,接近 6,与仿真结果一致,实现了探针的内共振,提高了第 6 次谐波信号的信噪比,使原本因为高次谐波信号强度较弱不能实现高次谐波成像的探针,在实验室研制的高次谐波成像实验装置上获得了 6 次谐波图像.

- [1] Binnig G, Quate C F, Gerber C 1986 *Phys. Rev. Lett.* **56** 930
- [2] Stephen A J, Houston J E 1990 *Rev. Sci. Instrum.* **62** 710
- [3] Maivald P, Butt H J, Gould S A C, Prater C B, Drake B, Grake B, Gurley J A, Elings V B, Hansma P K 1991 *Nanotechnology* **2** 103
- [4] Heuberger M, Dietler G, Schlapbach L 1994 *Nanotechnology* **5** 12
- [5] Yamanaka K, Ogiso H, Kosolov O 1994 *Appl. Phys. Lett.* **64** 178
- [6] Fukuma T, Ichii T, Kobayashi K, Yamada H, Matsushige K 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 034103
- [7] Zhong Q, Inniss D, Kjoller K, Elings V B 1993 *Surf. Sci. Lett.* **290** L688
- [8] Fukuma T, Kilpatrick J I, Jarvis S P 2006 *Rev. Sci. Instrum.* **77** 123703
- [9] Stark R, Heckl W 2000 *Surf. Sci.* **457** 219
- [10] Hillenbrand R, Stark M, Guckenberger R 2000 *Appl. Phys. Lett.* **76** 3478
- [11] Sahin O, Yaralioglu G, Grow R, Zappe S F, Atalar A, Quate C, Solgaard O 2004 *Sens. Actuat. A: Phys.* **114** 183
- [12] Rodríguez T R, García R 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 449
- [13] Sahin O, Magonov S, Su C, Quate C F, Solgaard O 2007 *Nano-technol.* **2** 507
- [14] Ribeiro P, Petyt M 1999 *J. Sound. Vibr.* **224** 591
- [15] Sadewasser S, Villanueva G, Plaza J A 2006 *Rev. Sci. Instrum.* **77** 073703
- [16] Felts J R, King W P 2009 *J. Micromech. Microengin.* **19** 115008
- [17] Bhat R B 1985 *J. Sound. Vibr.* **102** 493
- [18] Zou J X 1996 *Structural Dynamics* (Harbin: Harbin Institute of Technology Press) p93 (in Chinese) [邹经湘 1996 结构动力学(哈尔滨:哈尔滨工业大学出版社)第 93 页]
- [19] Li Y, Qian J Q, Li Y Z 2010 *Chin. Phys. B* **19** 050701
- [20] Qian J Q, Wang X, Li Y Z, Wang W, Chen Z L, Yang R 2011 (Chinese Patent) ZL201110358206.8 (in Chinese) [钱建强, 王曦, 李英姿, 王伟, 陈注里, 阳睿 2011 中国发明专利 ZL201110358206.8]

Investigation of enhancing higher harmonics by changing the shape of atomic force microscope cantilever*

Yang Hai-Yan Wang Zhen-Yu Li Ying-Zi Zhang Wei-Ran Qian Jian-Qiang[†]

(Key Laboratory of Micro-Nano Measurement-Manipulation and Physics of Ministry of Education, Department of Applied Physics, Beihang University, Beijing 100191, China)

(Received 27 April 2013; revised manuscript received 9 July 2013)

Abstract

Higher harmonics of tapping-mode atomic force microscope carries information about the mechanical properties of the sample on a nanometer scale. Unfortunately, the vibration amplitudes of traditional atomic force microscope (AFM) cantilever at higher harmonics are too small for practical AFM imaging. Ritz method demonstrates that specific cutout on the cantilever can realize internal resonance to enhance higher harmonics. In this paper, by COMSOL finite element simulation, the laws for fundamental frequency, second resonance frequency and their ratio each as a function of the size of the cutout and the position of the cutout on the cantilever are achieved. Using focused ion beam to hole the cantilever makes the second resonance frequency close to 6 times that of the fundamental frequency and also the 6th harmonic enhanced. Moreover, we obtain the image of the 6th harmonic on our home-made higher harmonic system.

Keywords: tapping-mode atomic force microscope, the shape of probe cantilever, higher harmonics, focused ion beam fabrication

PACS: 07.79.Lh

DOI: 10.7498/aps.62.200703

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11074019) and the Beijing Natural Science Foundation, China (Grant No. 4132038).

[†] Corresponding author. E-mail: qianjq@buaa.edu.cn