

综 述

近场光学显微术进展

田燕宁¹ 陈 烽² 侯 洵^{1,2}

(1. 西北大学光子学与光子技术研究所 西安 710069)

(2. 中国科学院西安光学精密机械研究所瞬态光学技术国家重点实验室 西安 710068)

摘 要

讨论了近场光学显微术发展及其理论知识,重点介绍了近场光学显微镜的工作原理、构造设计、工作方式等,概述了近场光学显微术的应用领域和应用成果,探讨了近场光学显微术目前存在的主要问题和需要解决的问题。

关键词 近场光学显微镜, 倏逝波, 光子扫描隧道显微镜 (PSTM), 近场扫描光学显微镜 (NSOM)

1 近场光学显微术发展历史及现状^[1~3]

近场光学是随着科学技术向小尺寸和低维空间推进所出现的光学领域中的一个新型交叉学科,研究对象是距离物体表面一个波长以内的光学现象。近场光学显微术是一种新型超高分辨率显微成像技术,是探针技术与光学显微技术相结合的产物,是近场光学中一个重要组成部分。近年来,随着近场光学显微镜的研究、发展和应用,近场光学显微术在理论上和实践上都取得了突破性的进展。传统光学显微镜是利用透镜对物体的放大作用制成的,放大倍数可达一两千倍,但其探测元件均位于远大于光波长的远场中。由于光的衍射效应,其分辨率的提高受到瑞利极限的限制,一般不能超过一个波长($\delta x \geq 0.6\lambda/NA$)。若要得到更大放大倍数、更高分辨率的显微镜,在技术上存在难以克服的困难。与传统光学显微镜相比,近场光

学显微镜最大区别在于: a) 以纳米级的光学探针代替了传统光学显微镜镜头; b) 在探测过程中探针被控制于样品表面一个波长以内,即探针位于样品表面的近场区域内。而样品表面的近场区域内存在携带物体表面精细结构信息的非辐射场,所以,处于近场区域内的探针可探测到亚微米级的光学信息,这样就突破了瑞利衍射极限的限制。在理论上,其分辨率是无限大的,但由于技术上探针尖不能做得无限小,探针亦不能无限接近样品,所以在实际应用中,分辨率还是有限的。

早在1928年, E.H.Synge 就描述了扫描近场光学显微镜的原理,并清楚地预言了现代近场光学显微镜的主要特征,但由于当时技术水平的限制,无法制备出亚微米量级的光孔,且无法用一种可靠的方法将探针控制于样品表面的亚波长区域内,因此在当时未受到人们的重视。1981年瑞士苏黎士IBM研究中心成功地研制了世界上第一台

扫描隧道显微镜, 其分辨率比传统电子显微镜提高了两个数量级, 探测灵敏度也相应有所提高。这一研究成果很快地应用于光学领域中, 极大地推动了近场光学显微镜的诞生和发展。1984 年瑞士苏黎士 IBM 研究中心用金属镀膜的石英晶体尖端制成的纳米尺寸光孔作为探针制成了世界上第一台近场光学显微镜, 同时美国康奈尔大学用微毛细管拉成的极细光孔作为探针制成了近场光学显微镜。1989 年国外首次报道了光子扫描隧道显微镜 (PSTM) 的成像技术, 并用它得到 200 nm 的分辨率。使近场光学引起更广泛的关注来自于 AT&T 贝尔实验室, 1991 年 Betzig 等人用光纤制成了亚微米级的光孔, 且利用了一种稳定可靠的切变力探针-样品间距控制法。从此, 近场光学显微镜走向成熟, 并广泛应用于许多微观现象观察领域。国内首台 PSTM 由中科院电子显微镜实验室和大连理工大学物理系合作研制成功, 其横向分辨率优于 10 nm, 纵向分辨率优于 1 nm。

2 近场光学显微术理论基础^[4~6]

物体表面外的场分布一般划分为两个区域: 一部分是距离物体表面仅几个波长的近场区域; 另一部分是从近场区域外到无穷远这一远场区域。在近场区域中既有可向远处传播的辐射场, 又有限限于物体表面一个波长以内的非辐射场, 其中非辐射场存在于物体表面, 强度随着离开物体表面距离的增加而迅速衰减。在远场区域中, 只存在辐射场, 不存在非辐射场。下面以傅里叶光学分析的平面波展开法来讨论辐射场与非辐射场, 在讨论过程中用物体表面的场分布的衍射波以及这些波的传导过程, 即以光的角分布谱和传输过程来描述电磁波与样品的相互作用。

$E(x, y, 0)$ 为 $z = 0$ 时一光源的场分布,

$A_0(m, n)$ 为相应的角分布谱; $E(x, y, z)$ 为 z 处一光源的场分布, $A(m, n, z)$ 为相应的角分布谱。

若以赫姆霍兹方程 $\nabla^2 E + k^2 E = 0$ 来描述 $A(m, n, z)$ 与 $A_0(m, n)$ 之间的关系, 则当 z 足够小时, 可得

$$A(m, n, z) = A_0(m, n) \exp[(2\pi i/\lambda) \cdot \sqrt{1 - (m\lambda)^2 - (n\lambda)^2} \cdot z] \quad (1)$$

分两种情况讨论 (1) 式:

$$(a) \quad (m\lambda)^2 + (n\lambda)^2 < 1$$

则 (1) 式变为

$$A(m, n, z) = A_0(m, n) \exp[(2\pi i/\lambda) \cdot \sqrt{1 - (m\lambda)^2 - (n\lambda)^2} \cdot z] \quad (2)$$

(2) 式中指数部分为虚数, 相位也随 m 、 n 变化, 所以 (2) 式所示是传播波。由 (2) 式可得, 在 $z = 0$ 处, 对应的低空间频率才属于传播波, 也就是说传播波携带的是物体比较大的表面结构信息。(2) 式所示的传播波属于辐射场部分, 既存在于近场区域内, 又存在于远场区域中。

$$(b) \quad (m\lambda)^2 + (n\lambda)^2 > 1$$

则 (1) 式变为

$$A(m, n, z) = A_0(m, n) \exp[(-2\pi/\lambda) \cdot \sqrt{(m\lambda)^2 + (n\lambda)^2 - 1} \cdot z] \quad (3)$$

(3) 式中, 指数部分为实数, 振幅随式中 z 的增大而呈指数衰减。其分量属于高空间频率 m 和 n , (3) 式描述的是倏逝波, 属于非辐射场部分, 只存在于物体表面的近场区域内。由于 (3) 式分量属于高空间频率 m 和 n , 所以对应于物体表面小的结构信息, 即为物体表面亚波长级的精细结构信息。因为倏逝波随离开物体表面距离 z 增大迅速衰减, 所以传不到远处去, 因而要探测到物体精细结构信息, 必须将探针放于近场中。这样, 才

可探测到携带有物体表面精细结构信息的倏逝波。倏逝波的衰减长度满足

$1/d = (2\pi/\lambda) \sqrt{[m\lambda]^2 + (n\lambda)^2 - 1}$ 的关系。

我们也可由倏逝波得到非辐射场的表达式

$$E(x, y, z, t) = A(x, y, z) \exp[-i(k_x x + k_y y)] \exp(-z/d) \exp(i\omega t) \quad (4)$$

式中 A 是在点 (x, y, z) 场的振幅, $\exp[-i(k_x x + k_y y)]$ 表示波在 $x - y$ 平面传播的特性, $\exp[-z/d]$ 则表示场沿 z 方向的衰减, d 与样品特性及结构细节有关, $\exp(i\omega t)$ 表示场与时间的关系, ω 是光的频率。

所以,要得到能探测到物体表面精细结构信息的更高分辨率的显微镜,则需要探测到非辐射场。传统光学显微镜镜头不能处于物体表面的近场区域内,因而无法探测到具有亚波长级光学信息的倏逝波,分辨率也就难以进一步得到提高。近场光学显微镜探针位于样品表面的近场区域内,可探测到携带物体表面精细结构信息的倏逝波。由于光学隧道效应,探测到的倏逝波可转换为新的倏逝波和传播波,对于转换成的传播波进行探测、处理,就可以得到物体表面精细结构图像。上述对于传播波进行分析处理并转换为图像的过程一般由计算机控制软件来完成。

3 近场光学显微镜

这一部分重点阐述的是以近场光学显微术为基础设计出来的近场光学显微镜。近场光学显微镜由探针、信号传输元件、扫描控制、信号处理和信号反馈等系统组成。近场光学显微镜存在两个分支,分别为近场扫描光学显微镜(NSOM)和光子扫描隧道显微镜(PSTM)。对于近场光学显微镜,最关键

的问题是: 1) 纳米级探针的制作。由于利用探针尖端收集光场信息,探针尖越细,探测到的精细结构越丰富,其分辨率也就愈高。又由于探针尖端愈细,光通过率愈小,则灵敏度越低,所以同时亦得考虑光通过率的大小,因此存在分辨率与灵敏度之间的矛盾关系。这就要根据具体要求制作合适的纳米级探针。2) 纳米级样品-探针间距的控制。只要既能将探针控制在样品表面一个波长以内,又能在探测过程中对样品表面无接触扫描探测,才能突破瑞利极限,实现超高分辨率探测。下面主要阐述上述两点。而近场光学显微镜数据采集处理由软件控制并完成,从而得到物体表面精细结构信息。其高效扫描亦是通过软件来控制伺服机构实现的。

1983年,IBM苏黎世中心在金属镀膜的石英晶体尖端成功地制备了纳米尺寸的光孔,使得亚波长探针制造成为可能。同时,康奈尔大学将微毛细管拉伸成为极细的孔径作为探针。1991年Betzig等人用光纤制成了锥形光孔,侧面蒸镀膜层。如今,国内外一般均以光纤来制作亚微米级探针^[7]。首先,将探针削尖化。一般有两种方法:A) 腐蚀法:利用HF酸对于光纤芯与包层之间腐蚀速度的不同来削尖。上述方法应用极为广泛,具有高可重复性,且能根据不同要求利用不同方法制造出不同种类的光纤尖,又可利用多步腐蚀法得到笔型、平头型光纤尖等。但由此种方法得到的光纤尖常有腐蚀坑和毛刺,形成分散的散射中心。目前,有一种不去掉光纤保护套对其进行腐蚀的方法^[8],这种方法相比于裸露纤芯腐蚀法所得锥形尖光滑得多。B) 熔拉锥法:这种方法是利用CO₂激光使光纤熔融后,在其两端施以较小的力使其成锥,再以较大的力迅速将其拉断,断面自然形成锥面。这种方法形成的锥面比较光滑,然而对于具有相同锥长和针尖的相对孔

径相同的条件下，腐蚀锥比熔拉锥具有较高的传输效率^[9]。常用的近场扫描探针多是用腐蚀法做成。其次，亚波长孔径的制造也有两种方法：A) 对所制作的光纤尖先镀一层金属膜，然后用 KI 或 I₂ 溶液进行化学腐蚀。B) 对已镀有保护层的光纤尖利用纳米光刻法即可得到亚波长孔径。中科院西安光学精密机械研究所则对腐蚀锥进行真空蒸镀膜层在其顶端形成一个光孔制成探针。上述 B) 种方法比 A) 种方法制作精细，控制也更精确一些。通过上述两部分光纤削尖及亚波长孔径的制作，可得到一个亚波长乃至纳米级的探针。国外还有一种将熔拉法和腐蚀法结合在一起的两步探针制造法^[10~11]：首先以 CO₂ 激光加热单模光纤，经熔拉形成一个其顶端具有细纤丝的抛物面型传输尖锥，然后以 5% 的 HF 进行腐蚀。这样就除掉了细纤丝，形成一个抛物面尖锥。用这种方法所得的探针，锥形尖端尺寸为 10 nm，尖端锥角处于 15° 到 18° 之间，这种探针的尖端尺寸大小和传输光效率都较适合近场探测。

剪切力调制是一种被证明可保证探针-样品间距保持在亚波长范围内的可靠、稳定的非光学调制法。为此要探测剪切力，一般

方法是使光纤头以其谐振频率作平行于样品表面的微小振动，振幅一般只有几个纳米甚至更小。在探针尖靠近样品的过程中，由于受到随间距不同而具有不同剪切力的阻碍，使得光纤头的振幅和相位均发生变化。测出探针振幅与相位的变化，就可确定探针-样品间距的大小。一般采用压电陶瓷的压电效应测控样品-探针间距。中科院西安光学精密机械研究所使用的就是这种方法。将高频振动压电管分为上下两部分，下半部分以交流电压激励振动，上半部分有两个电极，用于探测压电陶瓷管 (DPT) 的振幅。由于剪切力对于探测振动的阻碍，DPT 内部产生张力；又由于压电效应引起感应电压，将感应电压作为反馈信号，经锁相放大器达到控制样品-探针间距的目的。这种方法既操作简单，又可使近场光学显微镜的调整简单化。另外还可利用样品透射光、反射光、超声共振法和电压-声学法来测控样品-探针间距，或者用电子系统的阻抗变化、电容传感器等来测控样品-探针间距^[12]。

近场光学显微镜以其探针工作方式分为三种：1) C-mode 模式，即收集模式，如图 1(a) 所示。传输光以全反射角照射到样品基

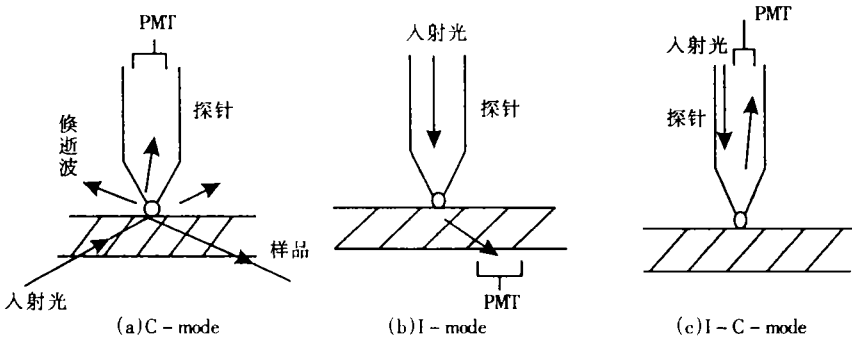


图 1 近场光学显微镜的工作方式

底下,在样品表面上产生倏逝波,这一倏逝波被处于样品表面一个波长以内的探针检测到。该倏逝波光功率的一维分布包含有样品的三维特征信息,也可显示探针的位置函数。C-mode模式的优点是入射远场光的极化状态可根据需要调整,并且倏逝光功率沿垂直于样品表面迅速衰减,所以可控制样品-探针间距使探测到的光功率为常数,这种方法为等强度测量。2)I-mode模式,即照明模式,如图1(b)所示。处于样品表面纳米处的探针尖端微波长孔径产生的倏逝波照向样品,在样品表面上产生新的倏逝波及传播波,处于样品下面的光电探测器探测到新的传播波,可得到探针位置函数及样品精细结构信息。这种模式的优点是可选择性地照明样品,从而实现最佳对比度,但这种模式的入射光极化强度难以依据需要来调整。3)I-C-mode模式,即照明-收集混合模式,如图1(c)所示。由探针尖端微波长光孔产生的倏逝波照向样品,再由同一探针探测产生于样品上的新的倏逝波与传播波,从而得到探针位置函数及样品精细结构信息,但这种方法信噪比较低。对这三种模式,针对探测光功率随孔径的减小而减小出现的探测灵敏度与分辨率的矛盾关系,提出了一种探测灵敏度较高的光波相变探测法。由于物体内部、外部结构存在微小变化,当光照射到样品上时,光的折射特性、散射特性均发生一微小变化,可通过探测透射光、折射光等相位的微小变化,再经过分析处理,就可得到样品内部和表面的精细结构。这种方法就是光波相变探测法,该方法分辨率高,目前已得到广泛应用。

4 近场光学显微术应用

近场光学显微术发展至今,由于它的超高分辨率和在探测过程中探针不接触样品,对样品无损伤等优越特性,应用极其广泛,

渗透了物理、化学、生物等各研究领域,并可应用于信息领域中。下面阐述一下近场光学显微术应用。

1) 物理领域^[13]

近场光学显微术源于物理,在物理领域应用极其广泛。首先,可用于光学成像。由近场光学所成像的分辨率达到了纳米量级,使人们对物质结构研究、物质认识向微观领域推进了一大步。其次,近场光学显微术也多用于基本物理过程:如微区光谱仪技术难以达到的纳米尺度结构区域光谱,用近场光谱仪可以区分尺度为几十纳米的量子线的光发射,单个或多个量子阱的发射谱,并且在研究量子点、纳米晶体、表面缺陷与位错、量子球与多孔硅方面发挥了它独特的作用。利用光波相变法也可测得某一条件下物体内部和外部结构的微小变化。此处主要讨论一下对于绝缘光波导的探测。在近场光学显微镜使用以前对其进行的都是有损探测,而利用C-mode PSTM通过收集产生于波导表面的倏逝波,实现对其进行的高分辨率无损探测。利用这种方法发现了光波导微波长散射源,从而提高了在设计中形成导层掩模的精确性,减少了导管的导波损失。在国外,已用近场光学显微镜探测到来自单个染料分子的荧光,其高分辨率是传统远场探测的光学显微镜无法达到的^[14]。

2) 生物领域

将近场光学显微术应用于生物研究领域,可得到亚波长级生物分子的结构图像,使得对生物分子的研究得到进一步发展;也可得到生物标本的细胞膜厚度、聚合物特征尺寸如细胞膜内连接元素等纳米级精细结构信息;还可利用光波相变法测内部与外部结构在某一特定条件下发生的微小变化。国外用PSTM已得到椭圆头直径为100 nm,圆柱尾直径为10 nm的纳米生物标本噬菌体细菌图像及作为分子电机典型代表的沙门氏菌体

鞭毛图像,其鞭毛直径为25 nm,并且由鞭毛一部分横断面放大图给出了一个小于10 nm分辨率的估计^[14]。

3) 信息领域^[15~17]

近场光学显微术在信息领域中主要应用于光存储。由于光学衍射极限和数值孔径的限制,传统光记录密度是有限的,记录点不能减至比光波长尺寸还小。随着计算机发展的要求,人们寻求一种能大幅度提高存储密度的方法,而近场光学的发展使得存储密度大幅度提高成为可能。目前,已在光盘上得到直径为50 nm的光斑,在透射情况下,可以 4.5Gb/in^2 ^[18]密度向磁光盘写入或从该密度盘中读出信息。在近场光存储中,用到的存储材料一般为光刻、相变材料和光致变色薄膜等几种,其中光致变色材料具有高分辨率、高灵敏性、可多层记录等性质,所以它具有很大的研究和发展潜力。当以某一特定波长光照射处于基态的光致变色薄膜材料时,该材料吸收光子变为激发态;若以另一波长光去照射又变回基态。由于近场光存储中探针处于样品表面近场区域内,且孔径很小,则投射到样品表面的光斑很小,达到几个分子甚至比一个分子还小,只有处于光斑中的分子吸收光子发生光色反应,实现利用分子双稳态来存储信息。理论分析近场存储密度可达 6.5Tb/in^2 ^[19]。目前,对于光致变色材料的存储、读取,国外已提出一种比较理想的读出方法——荧光探测法^[20],利用这种方法可得到具有高信噪比和高密度的近场光致变色存储。目前,近场高密度光存储的研究是个起始,以后可望得到更高的存储密度(1Tb/in^2 ^[11]),这就需要近场光学显微术及存储介质的进一步发展。

5 结束语

近场光学显微术突破传统光学显微术存在的衍射极限,分辨率达到了亚波长量级,

使人们对物质结构的认识深入到纳米级微观结构。然而,近场光学显微术目前仍处于实验室研究阶段,就技术而言近场光学显微镜各个环节仍存在一定问题,如扫描范围太小、扫描速度太慢,还没有一种简单、实用的探针控制法,所以在近场中存在信噪比较低、信息读写速度太慢等迫切需要解决的问题。就近场光学显微术理论而言,目前仍不是很完善。在今后的发展中,应该继续优化探针尖,寻求一种更实用可行的探测法,一个更完善的理论体系,使近场光学显微术理论与技术得到进一步的发展,并尽快使其设计与制造工业化,逐步使之走向实用化和商业化。

参考文献

- 1 李志远,杨国桢,顾本源.浅谈近场光学.物理,1997,26(7):396~401
- 2 吴世法,姚骏恩,简国树,郭宁.光子扫描隧道显微镜的进展.光学学报,1998,18(2):191~198
- 3 Betzig E, Trautman J K. Near-field optics: microscopy, spectroscopy, and surface modification beyond the diffraction limit. *Science*, 1992,257:189~195
- 4 Courjon D et al. External and internal reflection near field microscopy: experiment and results. *Appl Optics*, 1990,29 (26): 3734~3739
- 5 Torok P, Sheppard C J R, Varga P. Study of evanescent waves for transmission near-field optical microscopy. *Journal of Modern Optics*, 1996,43(6): 1167~1183
- 6 朱星.近场光学和近场光学显微镜.北京大学学报,1997,33(3):394~404
- 7 Saiki T, Mononobe S, Ohtsu M, Saito N, Kusano J. Tailoring a high-transmission fiber probe for photon scanning tunneling microscopy. *Appl Phys Lett*, 1996,68(19):2612~2614
- 8 Lambelet P et al. Chemically etched fiber tips for near-field optical microscopy: a process for smoother tips. *Appl Optics*, 1998,37(31): 7289~7292

- 9 张国平, 明海, 陈晓刚, 吴云霞, 谢建平. 扫描近场光学显微镜中两类光纤探针传输特性的研究. 光学学报, 1998, 18(7): 886~889
- 10 Grober R D et al. Modal approximation for the electromagnetic field of a near-field optical probe. *Appl Optics*, 1996,35(19): 3488~3495
- 11 Essaidi N et al. Fabrication and characterization of optical-fiber nanoprobe for scanning near-field optical microscopy. *Appl Optics*, 1998,37:605~619
- 12 刘秀梅, 王佳, 李达成. 近场光学显微镜中利用剪切力原理进行样品 / 探针间距测控的非光学方法. 光学技术, 1998,(5): 6~10
- 13 Bozhevolnyi S I. Topographical artifacts and optical resolution in near-field optical microscopy. *J Opt Soc Am B*, 1997,14(9): 2254~2259
- 14 Ohtsu M. Progress of high-resolution photon scanning tunneling microscopy due to a nanometric fiber probe. *Journal of Light Wave Technology*, 1998,13:1200~1221
- 15 Betzig E et al. Near-field magneto-optics and high density data storage. *Appl Phys Lett*, 1992,61(2): 142~144
- 16 Tsujioka T et al. Optical Density dependence of write/read characteristics in photon-mode photochromic memory. *Jpn J Appl phys*, 1996,35(8): 4353~4360
- 17 黄浩, 裴先登, 黄俊. 近场记录光盘的写入能量的研究. 光学学报, 1999, 19(2): 191~195
- 18 从征. 光存储的三大前景. 激光与光电子学进展, 1998, (11): 31~36
- 19 Tsujioka T, Irie M. Theoretical study of the recording density limit of a near-field photochromic memory. *J Opt Soc Am B*, 1998, 15: 1140~1146
- 20 Tsujioka T, Irie M. Fluorescence readout of near-field photochromic memory. *Appl Optics*, 1998,37:4419~4424

Progress in the Study of Near-field Optical Microscopy

Tian Yan-ning¹ Chen Feng² Hou Xun^{1,2}

(1 Institute of Photonics & Photon Technology, Northwest University Xi'an 710069)

(2 Xi'an Institute of Optics & Precision Mechanics, Academia Sinica Xi'an 710068)

Abstract

The development of near-field optical microscopy and the primary principles are described. The construction, design, working mechanism and working methods of near-field optical microscopy are particularly introduced. The application fields and achievements of the near-field optical microscopy are summarized. Progress, future prospects and problems remaining in this field are also discussed.

Key words near-field optical microscopy, evanescent wave, photon scanning tunneling microscopy(PSTM), near-field scanning optical microscopy (NSOM)