

DOI:10.19651/j.cnki.emt.2108724

真空调频原子力显微镜系统设计*

王旭东 温阳 王慧云 冯婕 秦丽 马宗敏

(中北大学仪器与电子学院 太原 030051)

摘要:原子力显微镜(AFM)作为微观领域表征物质性质的强有力工具,在科学研究中被广泛应用。现有的商业原子力显微镜的工作模式大都为调幅模式(AM-AFM),受品质因子 Q 的影响限制了进一步的高分辨率成像研究。为进一步提高分辨率,设计研发了调频原子力显微镜(FM-AFM),分析了影响系统分辨率的重要因素,并且设计了真空系统,以此提高探针悬臂的品质因子 Q 。本文对真空环境下FM-AFM的系统性能进行了实验和研究,从系统灵敏度以及测量效果等方面讨论了真空环境下FM-AFM相较于大气环境下的优越性。系统功率谱密度达到 $10\text{ mHz}/\sqrt{\text{Hz}}$,系统灵敏度 $\Delta f \leq 0.02\text{ Hz}$,探针悬臂的品质因子 Q 达到14 212,突破了原子力显微镜中的 Q 限制。

关键词:调频原子力显微镜(FM-AFM);真空系统;高 Q 因子;高灵敏度

中图分类号: TH741 **文献标识码:** A **国家标准学科分类代码:** 140.6

Design of vacuum frequency modulation atomic force microscope system

Wang Xudong Wen Yang Wang Huiyun Feng Jie Qin Li Ma Zongmin

(School of Instrument and Electronics, North University of China, Taiyuan 030051, China)

Abstract: Atomic force microscopy (AFM) is used to characterize the properties of material in microscopic scale, which has a board application in scientific research. Most of the commercial atomic force microscopes work in amplitude modulation mode (AM-AFM), and the resolution of imaging is limited to quality factor Q . We developed a frequency modulated atomic force microscope (FM-AFM) to improve resolution, and analyzed the important factors affecting the system resolution. In addition, we designed a vacuum system to improve the quality factor Q of the probe cantilever. For comparing the superiority in sensitivity and measurement effect of FM-AFM in vacuum environment with in atmospheric environment, the system performance of FM-AFM in vacuum environment were studied. The results show that the power spectral density of the system is $10\text{ mHz}/\sqrt{\text{Hz}}$, the system sensitivity is less than 0.02 Hz , and the quality factor Q of the probe cantilever is 14 212, which breaks the limit of Q in atomic force microscope.

Keywords: frequency modulated atomic force microscope (FM-AFM); vacuum system; high Q factor; high sensitivity

0 引 言

原子力显微镜(AFM)是一种通过检测探针尖端和样品表面之间的相互作用力来成像样品表面的实时空间技术。自1986年由Binnig, Quate和Gerber等发明第一台原子力显微镜以来,原子力显微镜从工作模式、力检测方式和应用领域都获得了巨大的发展。其中,FM-AFM凭借其真实的原子分辨率、可以测量原子力谱和可以观察到均匀的绝缘体等优势已迅速发展成为原子/分子尺度上的强大表征工具,在有机材料的表面成像、动态生物分子的高速成像、混合原子的化学鉴别和操纵等领域有着广泛应用^[1-3]。

随着高分辨率成像的深入研究,也对FM-AFM的系统精度提出了更高的要求。

在FM-AFM中主要有3种噪声源限制测量系统性能:悬臂梁热噪声、位移传感器噪声和电子设备中产生的噪声。文献[4]提出了非共振轻敲模式原子力显微镜,可以同步获取多种机械特性,通过通用噪声模型的仿真优化了最小可控力的精度。Fukuma等^[5]提出了在液相环境中降低悬臂梁的尺寸来提高探针最小可检测力,可以使实验更加稳定。但是轻敲模式对样品和探针都有一定的磨损,影响之后的测量效果,而且在大气和液相环境中测量始终受到品质因子 Q 的影响,限制了测量分辨率的提高。

收稿日期:2021-12-29

* 基金项目:科技部国家重点研发计划(2018YFF01012502)、国家自然科学基金(61874100)、山西省重点研发计划(201803D421037)、山西“1331工程”重点学科建设(1331KSC)项目资助

本文从系统分辨率和探针灵敏度关系展开研究,根据高分辨率成像的要求,对影响探针灵敏度的限制条件进行了理论分析。对不同条件下的探针灵敏度变化做了仿真计算。根据分析结果,在 FM-AFM 系统基础上设计了真空系统,找到一种结合高 Q 因子和快速响应的方法^[6]。在真空环境中,品质因子 Q 会显著提高,可以通过提高悬臂共振的 Q 值来提高给定带宽下的信噪比^[7]。并且对真空环境下的整体系统性能进行了测试与研究。经过与大气环境下系统性能的对比分析,验证了其具备高 Q 值,低噪声和高灵敏度的优越性能,为下一步提高成像分辨率奠定了坚

实的基础,我国精密测量仪器自主研发和测量积累理论基础和实践经验。

1 实验原理

如图 1(a)所示,FM 模式中,谐振中的高 Q 悬臂振动作为振荡器的频率决定元件。如图 1(b)所示为悬臂振动工作原理,探针悬臂振幅 A_0 恒定不变,当探针远离样品时,探针在本征频率 f_0 处恒幅振动,当探针与样品接近时,探针受到探针-样品间引力作用^[8],共振频率发生变化,系统将频率变化量 Δf 作为反馈信号保持探针恒幅振动。

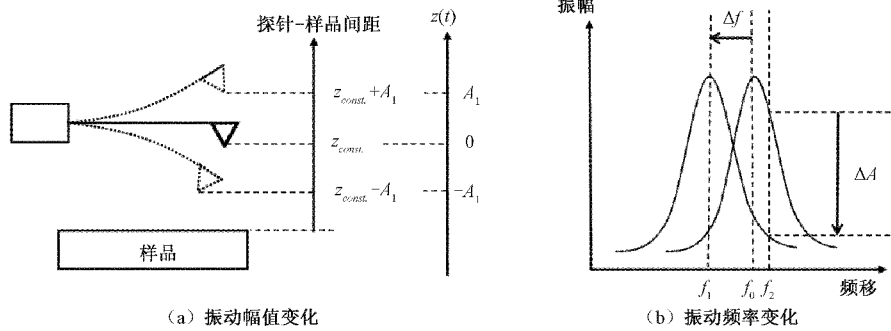
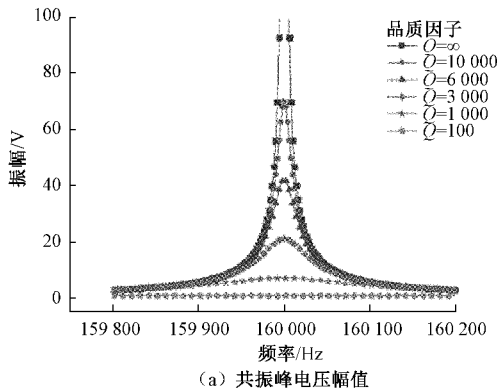


图 1 FM 模式探针振动原理

FM-AFM 中,起振模块是系统的关键部分,通过分析悬臂梁的运动,可以更好地理解系统的工作原理。探针的悬臂梁可以视为外部驱动的阻尼谐振子,对于外部激励 A_{exc} ,悬臂偏转响应为^[9]:

$$|A| = \frac{|A_{exc}|}{\sqrt{\left(1 - \frac{f_{exc}^2}{f_0^2}\right)^2 + \frac{f_{exc}^2}{f_0^2 Q^2}}} \quad (1)$$



$$\varphi = \arctan \left[\frac{f_{exc}}{Q f_0 \left(1 - f_{exc}^2 / f_0^2\right)} \right] \quad (2)$$

其中, A 为探针谐振电压幅值, φ 为相位, f_{exc} 为实际振动频率, f_0 为探针谐振频率。保持其他条件相同,讨论 Q 值不同的情况下对共振峰进行计算,使用 MATLAB 对式(1)和(2)进行仿真,如图 2(a)和(b)所示分析可知 Q 值越高,系统带宽越小,相位变化更为明显,共振峰更加接近理想。

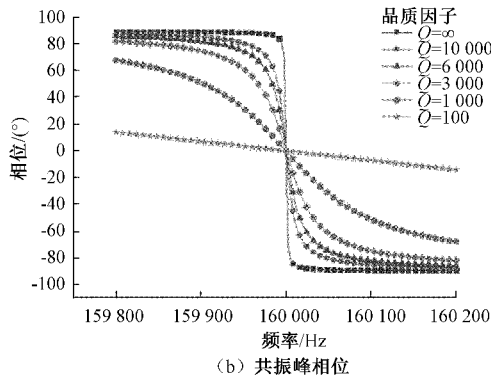


图 2 共振峰计算

此外,探针的最小可检测的位移 Δz 与探针灵敏度 Δf 有如下关系^[10]:

$$\Delta z = \frac{2}{3} \frac{S}{N} (\sqrt{2\pi} V)^{-1} \lambda \sqrt{\frac{\Delta f e}{\eta P}} \quad (3)$$

其中, S/N 是信噪比, λ 是激光的波长, Δf 是检测出的振动频率变化值, e 是单位电荷, η 是光电检测器的检测

灵敏度, P 是反射到光电检测器上的激光强度, $V = D_0 / l_c$ 是光斑直径 D_0 和悬臂背面到光电探测器的距离 l_c 的比。从式(3)中可以看到 Δz 随着 Δf 减小而减小,所以提高探针灵敏度是提高系统分辨率的有效手段。

悬臂梁热振动引起的最小可检测灵敏度推导如下。根据均分定理,悬臂梁中的热能导致悬臂梁运动^[11]:

$$\frac{1}{2}m\omega_0^2\langle z_{th}^2 \rangle = \frac{1}{2}k_B T \quad (4)$$

式中: $\langle z_{th}^2 \rangle$ 为悬臂梁端部在热激励下的均方位移, k_B 是玻尔兹曼常数, 噪声谱密度 $N_{th}(\omega)$ 和 $\langle z_{th}^2 \rangle$ 存在关系:

$$\langle z_{th}^2 \rangle = \frac{1}{2\pi} \int_0^{\infty} N_{th}(\omega) d\omega \quad (5)$$

并且 $N_{th}(\omega)$ 可以进一步表示为:

$$N_{th}(\omega) = |G(\omega)|^2 \Psi_{th}(\omega) \quad (6)$$

其中, $|G(\omega)|^2$ 是悬臂(阻尼谐振子)的响应函数, 表示为:

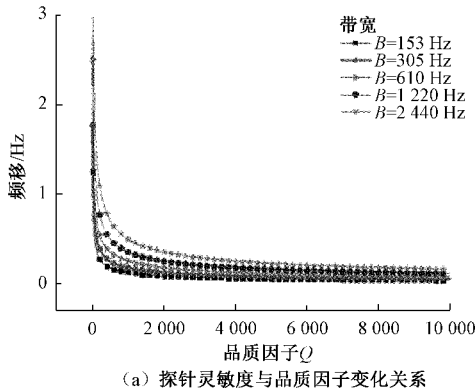
$$|G(\omega)|^2 = \frac{1/m^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (\omega_0\omega/Q)^2} \quad (7)$$

$\Psi_{th}(\omega)$ 为热噪声, 表示为:

$$\Psi_{th}(\omega) = 4m\omega_0 k_B T / Q \quad (8)$$

由式(8)可知, 悬臂振动热噪声随着 Q 值的增大而减小, 并且高 Q 悬臂梁的非共振热噪声较小, 所以高 Q 因子对于降低系统噪声水平有明显的作用^[12]。

对于具有正反馈的自激振荡系统, 比如 FM 检测系统, 振荡器输出的频谱宽度随振荡器振幅的增加而减小。



(a) 探针灵敏度与品质因子变化关系

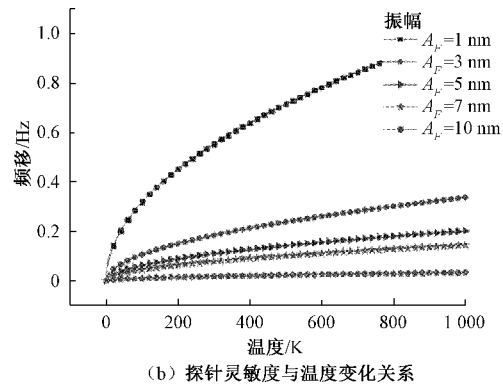
这种行为可以用 $G(\omega)$ 中的表面品质因素 Q' 描述, 它比实际的品质因子 Q 大。

$$\frac{Q'}{Q} = \frac{\langle z_{osc}^2 \rangle}{\langle z_{th}^2 \rangle} \quad (9)$$

其中, $\langle z_{osc}^2 \rangle$ 是悬臂梁自激振荡的均方振幅。探针振幅 $A_F^2 = 2\langle z_{osc}^2 \rangle$ 一般实验中 Q' 的值在 104~109, 因此振荡器带宽通常小于 1 Hz, 根据热噪声公式^[13] 可得最小可检测灵敏度为:

$$\delta(\Delta f) = \sqrt{\frac{f_0 k_B T B}{\pi k Q A_F^2}} \quad (10)$$

其中, f_0 是共振频率, B 是系统带宽, T 是温度, 这实际上与 AM 模式中的斜率检测表达式是相同的。所以当保证所有参数相同的条件下, 斜率检测和调频检测具有相似的灵敏度。保持其他条件相同, 对 Δf 与品质因子 Q 的关系进行仿真计算, 图 3(a) 可以看到, Δf 随着 Q 的增加而减小, 随着 B 增大而增大; 同理, 对 Δf 与温度 K 的关系仿真计算, 图 3(b) 中, 可以观察到 Δf 随着 K 的增加而增加, 并且探针振幅 A_F 越大, 探针灵敏度 Δf 越小。



(b) 探针灵敏度与温度变化关系

图 3 探针灵敏度计算

图 3 的仿真计算为提高探针灵敏度提供了方向, 本文通过提高品质因子 Q 和减小带宽 B 来提高探针灵敏度, 因为振动系统中, 品质因子代表系统对振幅的放大能力, 反比于阻尼系数, Q 因子愈大, 说明材料愈接近理想弹性。在 AFM 中, Q 因子取决于环境中存在的阻尼机制, 真空度越高, 阻尼越小, 对于在大气环境下操作的微机械悬臂, Q 值通常是几百, 而在真空系统中 Q 值可以达到几十万。通过提高环境真空度可以有效提高品质因子 Q , 进而提高探针检测灵敏度。FM 模式中, Q 值仅取决于探针悬臂梁的阻尼, B 值根据 FM 解调器的特性设置, 可以根据需要灵活改变, 所以 FM 模式在不牺牲带宽或动态范围的情况下, 通过使用非常高的 Q 值来提高灵敏度。

2 实验设计和结果分析

2.1 系统设计

真空腔体是系统的主体结构, 是保持内部为真空状态

的容器, 综合比较特性、材质、成本, 采取了 SUS304 不锈钢。304 不锈钢是真空中应用广泛的一种铬-镍不锈钢, 具有良好的耐蚀性、耐热性、低温强度和机械特性; 冲压、弯曲等热加工性好、无热处理硬化现象(使用温度 196 °C ~ 800 °C)等优点。

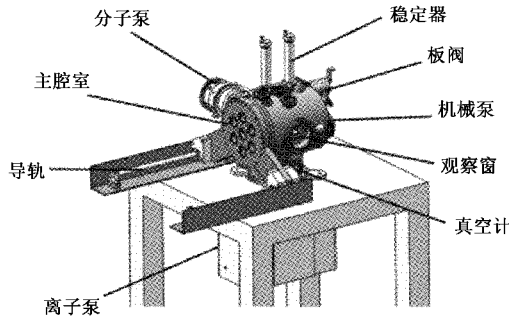
为了尽可能地减小出气率, 真空腔表面采用电解抛光的方法^[14], 靠选择性的溶解材料表面微小凸出部分, 使表面光滑, 减少腔壁的表面面积。同时可以消除阴极反应的影响, 效果较好。

设计中为了满足真空度的需求, 主要从系统密封性和选材方面进行了研究。金属与金属之间密封时采用的氩弧焊的密封技术, 焊接过程中通过不断输送惰性气体氩气, 隔绝金属焊材与大气中的氧气接触, 起到保护作用。金属和玻璃之间的接口采用可伐合金, 由于可伐合金的热膨胀系数在 20 °C ~ 500 °C 范围内随温度变化曲线与玻璃的热膨胀系数曲线变化基本一致, 所以采用玻璃加工工

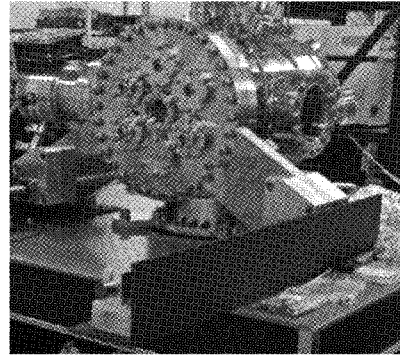
艺。选材从材料出气率方面考虑,材料表面放出的气体会极大的影响系统真空度。真空系统内部测量单元主体结构采用可伐合金材质,在保证出气率较小的同时可以与玻璃、陶瓷较好的焊接;橡胶圈等弹性材料使用氟橡胶;接线板等刚性零件使用聚四氟乙烯加工制作,可以保证系统真空度维持在较高的水平。

真空泵采用机械泵、分子泵、和离子泵组合方式^[15]。机

械泵作为前级泵,利用机械方式,周期性地改变泵内吸气腔的容积,使容器中的气体不断地通过泵的进气口膨胀到吸气腔中,然后通过压缩经排气口排出泵外;分子泵利用高速旋转的转子把动量传输给气体分子,使之获得定向速度,从而被压缩、被驱向排气口后为前级抽走;离子泵离子溅射吸附,进一步抽除氧、氮等活泼气体分子,图 4(a)是真空系统设计的三维模型,图 4(b)为设计的真空系统实物。



(a) 三维模型



(b) 实物展示

图 4 真空系统设计

真空系统内部配合 FM-AFM 平台设计了环形除振结构,更好地消除机械噪声;平台稳定器可以在更换探针样品时固定核心单元,保护实验平台。外部在不同角度设有观察窗,可以实时观测内部运行情况,根据不同结果调整试验方案;真空腔室的左侧盖板通过滑轨移动,保证开舱时可以匀速缓慢的移动,减小对核心单元的影响。

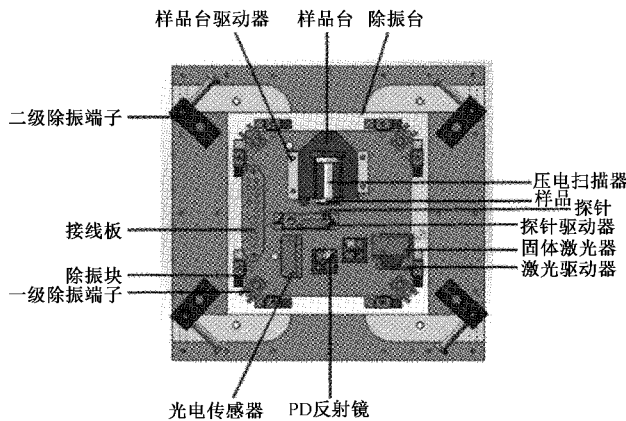
真空系统设计实现后,使用安捷伦公司的 XGS-600 真空计控制器测试系统真空度,先打开机械泵工作 30 min,再打开分子泵,机械泵和分子泵协同工作 120 min 之后,打开 XGS-600 真空计,等待 10 min 后,控制器实数基本保持稳定,真空度如图 5 所示为 2.6×10^{-6} Torr,真空度良好,满足实验需求。



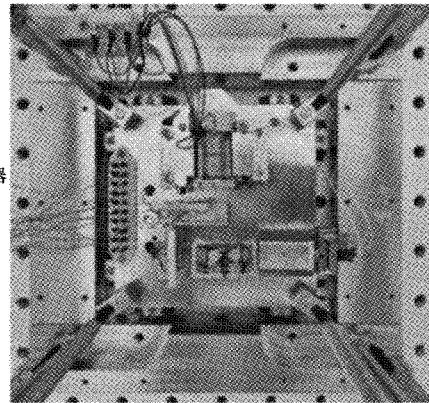
图 5 系统真空度测量

基于对高分辨的要求,本文设计研发了 FM-AFM 测

量单元,如图 6(a)和(b)所示可以看到相较于商用的竖式 AM-AFM,采用了卧式结构,避免探针悬臂受重力影响对测量效果造成影响。外周是 170 mm/110 mm×30 mm 的‘回’字形二级除振结构,内部为 90 mm×90 mm 的核心单元,集成了光偏转系统、探针起振系统、样品台位移系统、扫描系统等关键部分^[16-18]。



(a) 三维模型



(b) 实物展示

图 6 FM-AFM 测量单元

实验中,激光通过 LD 反射镜将激光光斑打到探针悬臂梁背面,此时将悬臂梁背面作为反射面将激光反射到 PD 反射镜,进而将激反射到光电传感器。当探针以谐振频率开始振动时,光电传感器上的激光光斑会随着探针振动而产生位移量。扫描样品时设定探针振幅,扫描过程中随着样品和探针针尖之间相互作用力的变化,控制系统根据光电传感器采集到的信号变化提供维持探针恒幅振动的补偿量 Δf , 形成完整的闭环系统。

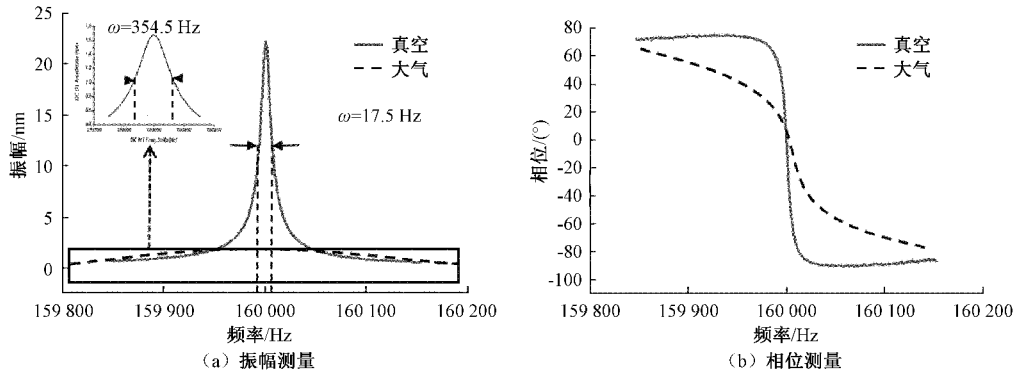


图7 共振峰测量

设定探针振幅 $A_0 = 7 \text{ nm}$, 系统反馈成功后探针实际振幅 $A = A_0$, 如图8所示测量了大气环境和真空环境下系统信号功率谱密度(PSD), 大气环境下系统在 200 Hz 低频范围内有较大的噪声干扰, PSD 在 $10 \sim 40 \text{ mHz}/\sqrt{\text{Hz}}$ 范围内; 真空环境下噪声得到了明显的抑制, $\text{PSD} \leq 10 \text{ mHz}/\sqrt{\text{Hz}}$ 。

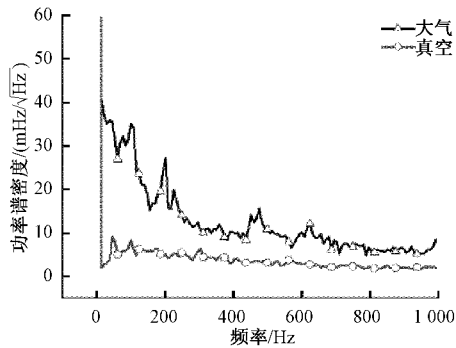


图8 功率谱密度分布

实验中对真空环境下探针灵敏度进行测量, 根据式(10), 计算理论值 $\delta(\Delta f) = 0.016 \text{ Hz}$, 如图9所示实际值基本与理论值基本吻合, 具有良好的灵敏度。

云母表面平整, 常用作 AFM 中样品的衬底, 本文选择云母作为测量系统分辨率的样品。实验中扫描范围为 $2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$, 扫描速度 15.8 nm/s , 图像分辨率 256×256 , 对云母表面进行测量, 图10(a)中可以分辨出云母表面有清晰的台阶结构, 如图10(b)所示, 高度从 $-2.5 \sim 2.5 \text{ nm}$ 呈有序变化, 证明自主设计搭建的真空调频原子力显微镜系统分辨率达到 5 nm , 具有高分辨率成像的性能。

2.2 系统性能分析

在使用机械泵和分子泵的情况下, 实验可以达到真空度为 $5 \times 10^{-6} \text{ Torr}$ 的高真空环境; 探针选用 PPP-NCLPt-SPL 型号, 共振频率 $f_0 = 160 \text{ kHz}$ 、悬臂 $l = 225 \mu\text{m}$ 、 $w = 38 \mu\text{m}$; 样品选用 V1 云母样品。分别在大气环境和真空环境中进行实验, 测量探针起振情况和品质因子 Q 。如图7(a)所示大气环境下共振峰带宽为 354.5 Hz , 如图7(b)所示相位偏转较为平缓, $Q = 722$; 真空环境下带宽 17.5 Hz , 相位偏转明显, $Q = 14\,212$, Q 因子得到了极大地提升。

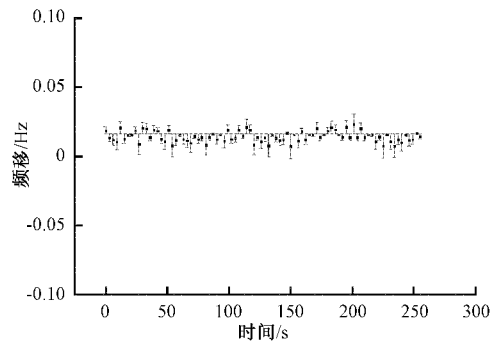


图9 最小灵敏度检测

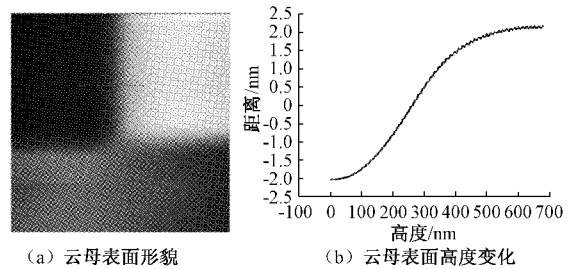


图10 云母扫描图像

3 结 论

本文针对 AM-AFM 在大气或溶液中分辨率受限的问题设计研发了 FM-AFM, 通过提高 Q 因子和减小带宽 B 提高探针灵敏度。从选材、抽气、结构方面考虑设计了相应的真空系统, 保证探针悬臂高 Q 因子的实验环境。在高

真空环境下对系统性能进行测量, Q 因子可以达到 12 000~16 000, 突破了 Q 限制, 提高了系统灵敏度, 系统整体性能得到了极大提升; 成功得到了云母表面的台阶结构, 实现了纳米级别的分辨率, 为亚原子级别的测量提供了实验基础, 也为之后超高真空环境下系统的设计和优化积累了经验。

参考文献

- [1] 金晨, 许军, 王慧云, 等. KPFM 导电探针的制备及应用[J]. 国外电子测量技术, 2021, 40(2):108-111.
- [2] 纳米级测量. 安捷伦推出下一代原子力显微镜[J]. 电子测量与仪器学报, 2013, 27(12):1140.
- [3] 许军, 金晨, 王旭东, 等. 大气环境非接触调频 AFM 检测与控制平台设计及测试[J]. 电子测量技术, 2021, 44(11):163-168.
- [4] 闫孝姮, 孔繁会, 邵永健, 等. 非共振轻敲模式原子力显微镜的研究[J]. 仪器仪表学报, 2020, 41(2):70-77.
- [5] FUKUMA T, ONISHI K, KOBAYASHI N, et al. Atomic-resolution imaging in liquid by frequency modulation atomic force microscopy using small cantilevers with megahertz-order resonance frequencies [J]. Nanotechnology, 2012, 23(13):135706.
- [6] 黄强先, 袁丹, 尤焕杰, 等. 动态 AFM 悬臂的高阶谐振特性研究及实验[J]. 仪器仪表学报, 2013, 34(12):2647-2652.
- [7] JU H, ZHANG S, CUI SH, et al. Effects of environments on the noise of atomic force microscopy cantilevers [J]. Journal of Harbin Institute of Technology(New Series), 2020, 27(4):5-11.
- [8] LUBBE J, TEMMEN M, SCHNIEDER H, et al. Measurement and modelling of non-contact atomic force microscope cantilever properties from ultra-high vacuum to normal pressure conditions [J]. Measurement Science & Technology, 2011, 22(5):55501-55506.
- [9] JANNIS L, MATTHIAS T, PHILIPP R, et al. Noise in NC-AFM measurements with significant tip-sample interaction[J]. Beilstein Journal of Nanotechnology, 2016, 7:1885-1904.
- [10] ENNING R, ZIEGLER D, NIEVERGELT A, et al. A high frequency sensor for optical beam deflection atomic force microscopy [J]. Review of Scientific Instruments, 2011, 82(4):043705.
- [11] SAWADA D, NAMIKAWA T, HIRAGAKI M, et al. High-spatial-resolution topographic imaging and dimer distance analysis of Si(100)-(2×1) using noncontact atomic force microscopy [J]. Japanese Journal of Applied Physics, 2014, 47(7):6085-6087.
- [12] 韩雷, 卢洁, 王建国. 悬臂梁应变测量数学模型研究[J]. 电子测量技术, 2020, 43(18):98-101.
- [13] HUMPHRIS A, TAMAYO J, HOBBS J, et al. Resonance control for dynamic force microscopy and spectroscopy [J]. Single Molecules, 2015, 2(2):126-126.
- [14] 郭方准. 实用真空技术[M]. 大连:大连理工大学出版社, 2020.
- [15] 齐立娟. 几种真空泵工作原理及选型方案探讨[J]. 石油化工设备, 2020, 49(4):71-75.
- [16] 曲章, 武兴盛, 魏久焱, 等. 高灵敏低噪声光束偏转检测系统设计[J]. 微纳电子技术, 2018, 55(5):359-365, 370.
- [17] RODE S, STARK R, LUBBE J, et al. Modification of a commercial atomic force microscopy for low-noise, high-resolution frequency-modulation imaging in liquid environment [J]. Review of Scientific Instruments, 2011, 82(7):073703.
- [18] 许军, 金晨, 牛刘敏, 等. 低噪声原子力显微镜测量单元设计[J]. 电子显微学报, 2021, 40(2):138-143.

作者简介

王旭东, 硕士研究生, 主要研究方向为精密仪器研发与测量。

E-mail:15735658772@163.com

马宗敏(通信作者), 博士, 教授, 主要研究方向为固态量子传感与精密测量技术。

E-mail:mzmcit@163.com