Masterstudiengang Physik

Masterarbeit

Adiabatische Nanofokussierung und Impulsraumabbildung

Vorgelegt von: Jens Brauer

Betreuender Gutachter: Prof. Dr. Christoph Lienau

Zweite Gutachterin: Dr. Petra Groß

Oldenburg, den 16. September 2013

Ultraschnelle Nano-Optik

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung **7**

2 Rasterkraftmikroskopie **11**

2.1 Grundlagen der Rasterkraftmikroskopie 11

2.1.1 Statische Betriebsmodi 12

2.1.2 Dynamische Betriebsmodi 14

2.1.2.1 Amplitudenmoduliertes Rasterkraftmikroskop 17

2.1.2.2 Frequenzmoduliertes Rasterkraftmikroskop 17

2.1.3 PID-Regler 19

2.2 Charakterisierung von Stimmgabel-Kraftsensoren 21

2.2.1 Interferometrische Messung der Stimmgabelamplitude 21

2.2.2 Thermisches Rauschen der Stimmgabel 27

2.2.3 Messung der Frequenzverschiebung mit einem PLL 33

2.2.4 Zusammenfassung der Ergebnisse 37

3 Optische Rasternahfeldmikrosopie **39**

3.1 Grundlagen aperturloser Rasternahfeldmikroskope 39

3.1.1 Oberflächenplasmonen 40

3.1.2 Adiabatische Nanofokussierung 42

3.2 Berechnung der Eigenmoden einer scharfen Goldspitze 44

3.3 Dipol-Modell zur Veranschaulichung der Eigenmoden 47

3.4 Impulsraumabbildung der Eigenmoden von Goldspitzen 51

3.4.1 Optische Fouriertransformation 51

3.4.2 Experimenteller Aufbau 53

3.4.3 Ergebnisse 54

3.4.4 Diskussion 57

4 Zusammenfassung und Ausblick **61**

A Anhang **65**

A.1 Mikroskopbilder der Stimmgabelzinke 65

A.2 Herleitungen 66

A.3 Matlab-Code 68

Literaturverzeichnis **71**

Danksagung **75**

Abkürzungsverzeichnis

AFM	engl. Atomic Force Microscope
	(Rasterkraftmikoskop)
SNOM	engl.: Scanning Nearfield Optical Microscope
	(Optisches Rasternahfeldmikroskop)
PLL	Phase-Locked-Loop Regelkreis
	(Regelkreis zur Minimierung der Phasendifferenz zwischen zwei Signalen)

Symbolverzeichnis

β	Umrechnungsfaktor Strom - Stimmgabelauslenkung (in A/m)
n	Brechungsindex
λ	Wellenlänge
k_x, k_y, k_z	(x,y,z)-Komponente des k-Vektors
$\vec{E}$	Elektrisches Feld
ω, f	(Kreis-)Frequenz
ω_0, f_0	Resonanzfrequenz

Abbildungsverzeichnis

2.1 Modell für einen AFM-Aufbau mit der Laser-Reflektionsmethode. 11
2.2 Elektronenmikroskopbild der Spitze auf einem Silizium Cantilever. 12
2.3 Modell von gekoppelten Federn zur Beschreibung eines AFMs. 13
2.4 Zeichnung einer Quarz-Stimmgabel mit entsprechender Kontaktierung. . . . 15
2.5 Spektrale Rauschdichte der Verbiegung eines Cantilevers. 16
2.6 Blockdiagramm zum Prinzip eines PLLs 18
2.7 Skizze zur Funktionsweise eines PID Reglers. 19
2.8 Aufbau des Interferometers zur Untersuchung der Stimmgabelamplitude . . 22
2.9 Beispiel für das Signal der Photodiode und das bei der Resonanzfrequenz demodulierte Signal des Lock-In-Verstärkers. 23
2.10 Stimmgabelamplitude (a) und Umrechnungsfaktor β zwischen Strom und Stimmgabelamplitude (b) für verschiedene Positionen auf der Stimmgabel. . 25
2.11 Kalibrierung des Picocube-Dreiachsentisches mit einem Interferometer . . . 27
2.12 Skizze zum Butterworth-Van-Dyke-Schwingkreis. 28
2.13 Resonanzkurve einer Quarz-Stimmgabel in Vakuum mit einer Resonanzfrequenz von 32,7649 kHz bei Anregung mit einer Wechselspannung mit einer Amplitude von $2\mathrm{mV}_{\mathrm{rms}}$. 29
2.14 Rauschspektrum einer Quarz-Stimmgabel. 30
2.15 Annäherungskurve für eine Quarz-Stimmgabel mit aufgeklebter Goldspitze 34
2.16 Annäherungskurve für einen Cantilever in einem kommerziellen AFM . . . 35

3.1 Vergleich des Prinzips eines üblichen Lichtmikroskops (a) mit einem sSNOM- (b) und einem SNOM basierend auf dem Konzept der adiabatischen Nanofokussierung (c). 39
3.2 Skizze zu Oberflächenplasmonpolaritonen. 40
3.3 Dispersionsrelation von Oberflächenplasmonen an einer Metall-Luft Grenzschicht im Vergleich mit der Lichtlinie. 42
3.4 Experimentelle Beobachtung der adiabatischen Nanofokussierung 43
3.5 Berechnete Dispersionsrelation für einen unendlich langen Draht mit Durchmesser R. 45
3.6 Feldverteilung eines Dipols und einer Kette von Dipolen. 48
3.7 Feldverteilung der $n = 0$ und $n = 1$ Mode für eine Goldspitze, modelliert durch Platzierung von Dipolen 49
3.8 Prinzip einer Fourier-Linse. 51
3.9 Typische 4f-Linsenanordnung zur Filterung im Impulsraum. 52

3.10 Experimentelle Realisierung des Aufbaus zur Impulsraumabbildung. 53
3.11 Impulsraumabbildungen bei verschiedenen Abständen von Spitze und Probe eines SNOM-Aufbaus. 54
3.12 Quantitative Auswertung der Ergebnisse aus Abbildung 3.11. 56

4.1 Größenvergleich bei spektroskopischer Untersuchung eines Quantenpunkts mit einem fokussierten Laserpuls und einem SNOM 62

A.1 Mikroskopbild Stimmgabelzinke Länge 65
A.2 Mikroskopbild Stimmgabelzinke Breite 65

1 Einleitung

Übliche Lichtmikroskope sind aufgrund von Beugungseffekten in ihrer Auflösung begrenzt. Nach dem Abbe-Limit lassen sich zwei Objekte nur als getrennt voneinander identifizieren, wenn ihr Abstand größer als die halbe Wellenlänge des verwendeten Lichts ist. Mit einem Rasternahfeldmikroskop (engl.: scanning nearfield optical microscope - SNOM) lässt sich diese Grenze umgehen. Hierbei nutzt man das optische Nahfeld aus, um die laterale Auflösung zu erhöhen. Eine mögliche Methode besteht darin, eine spitz zulaufende und metallbeschichtete optische Faser als SNOM-Spitze zu verwenden [1]. Das Licht wird entweder in die Faser eingekoppelt und das evaneszente Nahfeld zur Untersuchung der Probe benutzt, oder die Probe selber wird beleuchtet und die Faser im optischen Nahfeld sammelt das Licht ein. Man spricht in diesen Fällen von einem Apertur-SNOM, wobei die Auflösung hauptsächlich durch die Apertur der optischen Faser begrenzt wird.
Eine weitere Methode besteht darin, einen Laser direkt auf eine scharfe Metallspitze zu fokussieren. Dadurch kommt es zu einer starken Feldüberhöhung am Spitzenapex. Das im Nahfeld gestreute Licht wird dann zur Untersuchung der Probe benutzt [2, 3]. Die Spitze in diesem aperturlosen SNOM agiert als nahezu punktförmiger Emitter.
In beiden Fällen ist es essentiell, die Spitze sehr nah an die Probe zu bringen, um das evaneszente Nahfeld ausnutzen zu können. Die Abstandsregelung basiert dabei häufig auf dem Prinzip eines Rasterkraftmikroskops (engl.: atomic force microscope - AFM), welches 1986 von Binnig, Quate und Gerber entwickelt wurde [4]. Mit einem AFM ist es möglich, die Oberflächenstruktur von Objekten im Nanometer-Bereich abzubilden, indem ein Cantilever mit einer Spitze dicht über eine Oberfläche gerastert wird und dieser sich aufgrund der kurzreichweitigen Kräfte verbiegt. Ein SNOM stellt eine optische Erweiterung eines AFMs dar.
Ein Rasternahfeldmikroskop ist außerdem nicht die einzige Möglichkeit, das Beugungslimit zu umgehen. Die STED Mikroskopie (STED - Stimulated Emission Depletion) [5, 6] stellt eine Alternative dar, welche hauptsächlich in der Biologie zur Untersuchung von (lebenden) Zellen eingesetzt wird und meistens die Verwendung von Fluoreszenzfarbstoffen voraussetzt.

Will man nun das erwähnte aperturlose, auf Streuung am Spitzenapex basierende SNOM verwenden, besteht das Problem, dass auch ein großer Teil des Laserlichts oberhalb des Spitzenapex gestreut wird bzw. die Probe selbst beleuchtet. Das führt zu einem un-

erwünschten hohen optischen Hintergrund in den Messdaten und man ist auf Modulations- und Demodulationstechniken angewiesen um das Signal zu filtern. Eine neue Methode nutzt das Prinzip der adiabatischen Nanofokussierung aus, um eine nahezu hintergrundfreie SNOM Messung zu gewährleisten [7–9]. Dabei wird ein Gitter auf einer metallischen Spitze mit einem Laser beleuchtet, um kollektive Oszillationen des Elektronengases zu erzeugen. Diese an Licht gekoppelten Oberflächenmoden nennt man Oberflächenplasmonpolaritonen (engl.: surface plasmon polaritons - SPP). Sie können entlang der Oberfläche propagieren und erzeugen am Spitzenapex einen stark fokussierten Lichtfleck. Durch Anregung oberhalb des Spitzen-Apex kann das Signal im Verhältnis zum Hintergrund um zwei Größenordnungen verbessert werden. Mit einem solchen Aufbau konnten Auflösungen im Bereich kleiner 30 nm gezeigt werden [7, 10].

Trotzdem ist ein SNOM auf Grundlage der adiabatischen Nanofokussierung selten. Ein Grund dafür sind die verwendeten Spitzen. Experimentell eignet sich nicht jede Spitze gleichermaßen, auch wenn sie gleiche Merkmale wie Apex-Radien und eine gleiche Morphologie aufweisen. Erklären lassen sich diese Unterschiede durch das Modenverhalten. Bei Beleuchtung eines auf der Spitze befindlichen Gitters werden verschiedene Moden angeregt, deren Amplitude stark mit der genauen Struktur und Form der Spitze sowie mit der Art der Einkopplung zusammenhängen.

Im Rahmen dieser Masterarbeit sollen Ansätze zur weiteren Verbesserung des SNOM-Aufbaus erarbeitet werden. Dazu wird eine neue Art der Regelungstechnik für den bestehenden AFM- bzw. SNOM-Aufbau vorgestellt, sowie das Schwingungsverhalten von Quarz-Stimmgabeln als Abstandssensoren ermittelt. Weiterhin wird das Abstrahlverhalten der Eigenmoden einer Goldspitze sowohl theoretisch als auch durch Experimente im Impulsraum (k-Raum) untersucht.
Die Arbeit ist dementsprechend in zwei Hauptkapitel gegliedert. Kapitel 2 beschäftigt sich mit den Grundlagen und experimentellen Ergebnissen zur Rasterkraftmikroskopie, während Kapitel 3 auf die optische Rasternahfeldmikroskopie ausgelegt ist.
Insbesondere werden in Kapitel 2 Regelungstechniken zum Umgang mit einem AFM vorgestellt. Das Unterkapitel zur „Charakterisierung von Stimmgabel-Kraftsensoren“ umfasst dabei die Vorstellung von drei Experimenten, welche zu einem besseren Verständnis und Umgang mit Quarz-Stimmgabeln als Abstandssensor dienen sollen. Konkret wurde das Schwingungsverhalten der Stimmgabeln genauer untersucht. Zu diesem Zweck wurden interferometrische Messungen durchgeführt und das thermische Rauschen analysiert, welches die maximale Auflösung begrenzt. Weiterhin wurden erste Tests zur Abstandsregelung mit

Hilfe der auftretenden Resonanzfrequenzverschiebung durchgeführt. Ein AFM wird dafür in einem Selbst-Anregungsmodus betrieben und die Frequenz mit einem „Phase-Locked-Loop“ (PLL) ermittelt. Dadurch lassen sich AFM- bzw. SNOM-Daten besser analysieren. Im Unterschied zum herkömmlichen amplitudenmodulierten AFM hat man in diesem Modus Information über alle drei wichtigen Parameter Frequenz, Phase und Amplitude. Damit lassen sich auch Rückschlüsse auf physikalisch relevante Größen wie Dissipation und auftretende Kräfte [11, 12] ziehen.

Kapitel 3 beginnt mit den Grundlagen der optischen Rasternahfeldmikroskopie. Insbesondere wird hier das neuartige, auf dem Konzept der adiabatischen Nanofokussierung basierende SNOM vorgestellt. Die nachfolgenden Unterkapitel befassen sich mit der Propagation und Abstrahlung der Eigenmoden einer scharfen Goldspitze bei Anregung von Oberflächenplasmonen auf dem Spitzenschaft. Dazu wird zunächst ein Modell zur Berechnung der Eigenmoden auf Grundlage der klassischen Elektrodynamik vorgestellt. Weiterhin können durch Platzierung vieler Dipole in Form einer Spitze die elektrischen Felder am Spitzenapex simuliert werden. Letztlich werden die Ergebnisse zur experimentellen Untersuchung der Abstrahlcharakteristik der Eigenmoden vorgestellt. Dazu wird ein Aufbau verwendet, mit dem Abbildungen des von der Spitze emittierten Lichts im Impulsraum aufgezeichnet werden.

2 Rasterkraftmikroskopie

2.1 Grundlagen der Rasterkraftmikroskopie

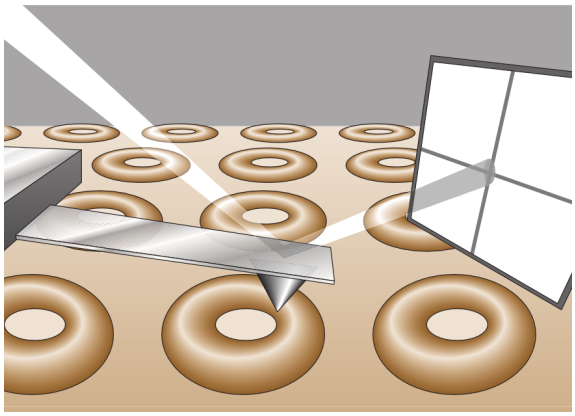

Abbildung 2.1: Modell für einen AFM-Aufbau mit der Laser-Reflektionsmethode. Der Laser wird von dem Cantilever auf eine Vier-Quadranten-Diode gelenkt. Dadurch lassen sich Rückschlüsse auf die vertikale und die Torsions-Verbiegung ziehen. (aus [13])

Um Strukturen im Nanometerbereich abzubilden, werden in einem Rasterkraftmikroskop (engl.: atomic force microscope - AFM) die auftretenden attraktiven und repulsiven Kräfte zwischen einer mikroskopischen Spitze, beispielsweise auf einem Silizium-Cantilever (vgl. Abbildung 2.2), und einer zu untersuchenden Oberfläche ausgenutzt. Abbildung 2.1 zeigt schematisch eine mögliche Realisierung eins AFMs. Hierbei wird ein Cantilever Punkt für Punkt über die Probe gerastert. Die auftretende Verbiegung ist ein Maß für die wirkenden Kräfte zwischen Cantilever und Probe und kann direkt auf die Topografie zurückgeführt werden. Die Verbiegung des Cantilevers kann beispielsweise gemessen werden, indem man einen Laser auf das Ende des Cantilevers richtet und das reflektierte Signal auf einer Vier-Quadranten-Diode aufzeichnet.
Im Gegensatz zum schon vorher entwickelten Rastertunnelmikroskop (engl.: scanning tunneling microscope - STM), konnten mit dem AFM erstmals auch nichtleitende Proben mit atomarer Auflösung untersucht werden [4]. Für einen detaillierten Überblick über das AFM und dessen vielseitige Einsatzmöglichkeiten sei auf [14–16] verwiesen.

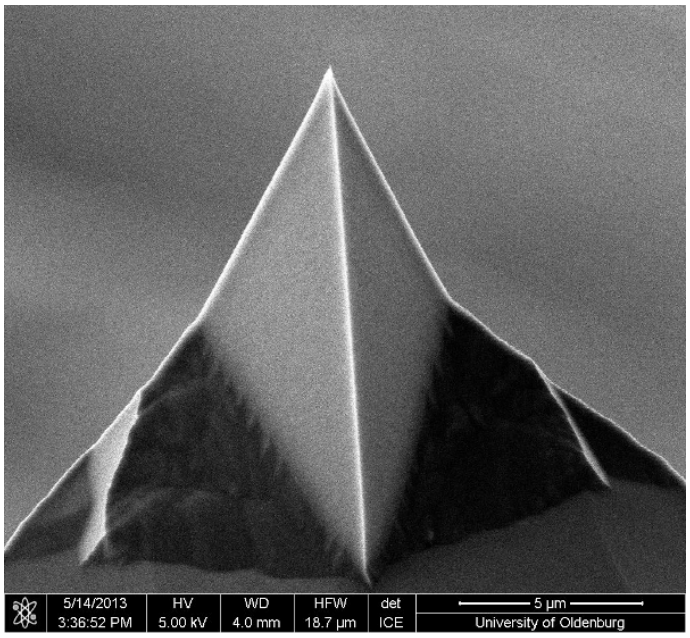

Abbildung 2.2: Elektronenmikroskopbild der Spitze auf einem Silizium Cantilever.

Das AFM kann in verschiedenen Betriebsmodi genutzt werden. Generell unterscheidet man zwischen statischen Modi, bei denen die Spitze über die Oberfläche gerastert und die Verbiegung des Cantilevers aufgezeichnet wird, und dynamischen Modi, bei denen die Spitze zu Schwingungen angeregt wird. Außerdem wird unterschieden zwischen Kontakt-Modi, bei denen die Spitze in direktem Kontakt mit der Probe ist und hauptsächlich repulsive Kräfte auftreten, sowie Nicht-Kontakt Modi.

2.1.1 Statische Betriebsmodi

Zu den statischen Modi zählen z.B. der „Constant-Height“-Modus sowie der „Constant-Force“-Modus. Bei ersterem wird der Cantilever in konstanter Höhe über die Probe gerastert und die Verbiegung aufgezeichnet. Da keine Regelung des Abstandes zwischen Spitze und Probe erfolgt, kann mit diesem Modus eine relativ hohe Scangeschwindigkeit erreicht werden. Bei unregelmäßigen Vertiefungen auf der Probe kann der Cantilever jedoch leicht den Kontakt verlieren oder durch zu starke Erhöhungen der Probenoberfläche zerstört werden bzw. die Probe beschädigen. Daher eignet sich dieser Modus nur für Proben mit glatter Oberfläche. Beim „Constant-Force“-Modus wird die Verbiegung des Cantilevers konstant gehalten. Dazu ist ein Regelkreis nötig, welcher die Höhe je nach Probenhöhe nachregeln muss. Der Regelkreis wird üblicherweise mit einem PID-Regler realisiert (vgl.

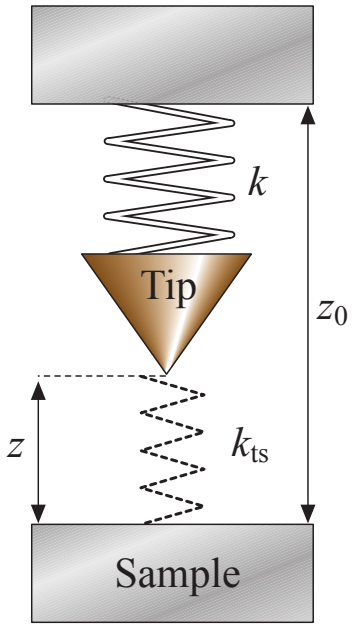

Abbildung 2.3: Modell von gekoppelten Federn zur Beschreibung eines AFMs. (aus [13])

Kapitel 2.1.3). Dadurch wird der Scanvorgang zwar langsamer, jedoch lassen sich so auch unregelmäßige Vertiefungen und Erhöhungen auf der Probe messen ohne den Cantilever oder die Probe zu beschädigen.
Für kleine Auslenkungen kann man sich das AFM als System zweier gekoppelter Federschwinger vorstellen (vgl. Abb. 2.3). Der Cantilever hat eine Federkonstante $k = \frac{Ebh^3}{4L^3}$, mit dem Elastizitätsmodul E, der Breite b, der Höhe h und der Länge L. Die Auslenkung Δz ist nach dem Hookschen Gesetz durch $\Delta z = F/k$ gegeben. Die Kraftwechselwirkung zwischen Spitze und Probe lässt sich durch eine weitere Feder mit der Federkonstante $k_{ts} = -\frac{\partial F_{ts}}{\partial z}$ modellieren. k_{ts} verändert sich in diesem Fall bei Änderung des Abstandes zwischen Spitze und Probe.

Um kurzreichweitige Kräfte messen zu können und somit eine gute Auflösung zu erreichen, ist beim statischen AFM eine kleine Federkonstante nötig. Typische Werte sind $k = 0.1 - 10\,\mathrm{N/m}$, welche zu Auslenkungen von 0.1-100 nm bei Wechselwirkungskräften im Nano-Newton Bereich führen.
Durch kleine Federkonstanten kommt es jedoch leicht zum „Jump-to-Contact“, d.h. der Cantilever wird durch die attraktiven Van-Der-Waals-Kräfte zu stark zur Probe hingezogen und kommt in direkten Kontakt mit der Probe. An Luft entsteht auf der Probe außerdem häufig ein dünner Wasserfilm, welcher den Cantilever zusätzlich „festhält“. Der

Cantilever befindet sich in diesem Augenblick in einem Potentialminimum und man muss zusätzliche Kraft aufwenden um ihn von der Probe zu lösen. Es zeigt sich also ein hysterse-artiges Verhalten in der Kraft-Abstandskurve. Dieser „Jump-to-Contact“ findet statt für $k < k_{\mathrm{ts}}^{\max}$. Um das zu vermeiden, ist man darauf angewiesen, entweder steifere Cantilever mit einer größeren Federkonstante zu benutzen oder den Abstand zwischen Probe und Spitze zu vergrößern. Beides verschlechtert die Auflösung des AFMs. Aus diesem Grund sind im statischen Modus keine atomaren Auflösungen möglich, solange man das AFM nicht im Ultrahochvakuum betreibt.

2.1.2 Dynamische Betriebsmodi

Unter den dynamischen Modi versteht man die verschiedenen Betriebsarten eines AFMs bei denen die Spitze zu Schwingungen angeregt wird, üblicherweise mit oder in der Nähe der Resonanzfrequenz. Das hat den Vorteil, dass man den „Jump-to-Contact“ durch die großen Rückstellkräfte leichter vermeiden kann. Es gilt in diesem Fall:

$$k_{\mathrm{total}} = k_{\mathrm{statisch}} + k_{\mathrm{dynamisch}} = k_{\mathrm{statisch}} + k_{\mathrm{ts}} = k_{\mathrm{statisch}} - \frac{\partial F_{\mathrm{ts}}}{\partial z}. \tag{2.1}$$

k_{ts} entspricht der bereits eingeführten Federkonstante aus Abbildung 2.3, welche sich mit dem Abstand zur Probe ändert und die Wechselwirkung zwischen Spitze und Probe wiedergibt.
Unter dem Modell der zwei gekoppelten Federpendel lässt sich das System als gedämpfter getriebener harmonischer Oszillator mit folgender Differentialgleichung beschreiben:

$$\ddot{z} + \frac{\omega_0}{Q}\dot{z} + \omega_0^2 z = A_{\mathrm{Anregung}}\omega_0^2 \cos(\omega t) + F_{ts}. \tag{2.2}$$

$\omega_0 = \sqrt{k/m}$ entspricht der Resonanzfrequenz des freien ungedämpften Oszillators. Q ist der Gütefaktor und ist ein Maß für die Anzahl der Oszillationen, innerhalb derer die Amplitude auf 1/e der anfänglichen Amplitude abgefallen ist (ohne externe Anregung) [13]. Für den Fall eines großen Spitzen-Proben-Abstandes ist $F_{ts} \approx 0$ und die stationäre Form der DGL hat die Form $z(t) = A_0 \cos(\omega t + \phi)$. Für A_0 erhält man den Ausdruck für das Lorentzprofil der Amplitude als Funktion der Frequenz (vgl. Herleitung in Anhang A.2)

$$|A_0(\omega)| = \frac{A_{\mathrm{Anregung}} Q \omega_0^2}{\sqrt{(\omega_0^2 - \omega^2)Q^2 + \omega^2\omega_0^2}} \tag{2.3}$$

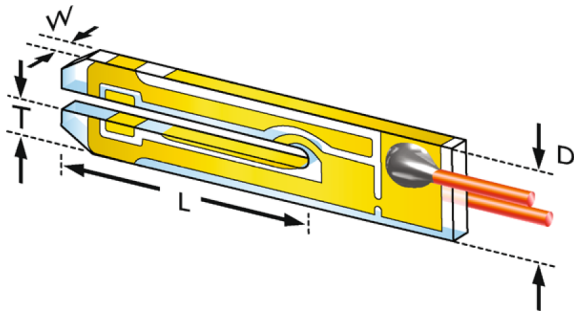

Abbildung 2.4: Zeichnung einer Quarz-Stimmgabel mit entsprechender Kontaktierung. (aus [17])

und für die Phasenbeziehung gilt

$$\phi = \arctan \frac{\omega\omega_0/Q}{\omega_0^2 - \omega^2}. \tag{2.4}$$

Für $F_{ts} \neq 0$ ist die Differentialgleichung kaum noch analytisch zu lösen, da F_{ts} eine relativ komplizierte Funktion in Abhängigkeit des Spitzen-Proben Abstandes darstellt. Man sieht jedoch gleich, dass sich dabei mehrere Parameter ändern. Für einen harmonischen Oszillator unter Vernachlässigung der Dämpfung lässt sich z.B. mit Gleichung (2.1) die Änderung der Resonanzfrequenz mit dem Abstand zur Probe ausdrücken als [13]

$$(\omega_0 + \Delta\omega)^2 = \frac{k_{\text{total}}}{m} = \frac{k - \frac{\delta F_{ts}}{\delta z}}{m} \tag{2.5}$$

Für kleine $\Delta\omega$ im Vergleich zu ω_0 gilt schließlich die Näherung

$$\Delta\omega \cong -\frac{1}{2k}\frac{\partial F_{ts}}{\partial z} \cdot \omega_0 = \frac{k_{ts}}{2k} \cdot \omega_0. \tag{2.6}$$

Die Frequenzverschiebung ist proportional zum Kraft-Gradienten der Wechselwirkung zwischen Spitze und Probe [13]. Während man im statischen Modus die Kraft selber misst, ist im dynamischen Modus der Kraftgradient von Bedeutung.

Alternativ zu Cantilevern kann man für dynamische Modi Quarz-Stimmgabeln mit einer Resonanzfrequenz von 32,768 kHz verwenden. Da Quarz ein piezo-elektrisches Material ist, lässt sich eine wie in Abb. 2.4 kontaktierte Stimmgabel leicht zu Schwingungen anregen, indem man eine Wechselspannung an die Kontakte anlegt. Außerdem bieten sie ein Sensorsignal. Man kann also auf Lasertechniken wie bei Cantilever-AFMs verzichten. Weitere

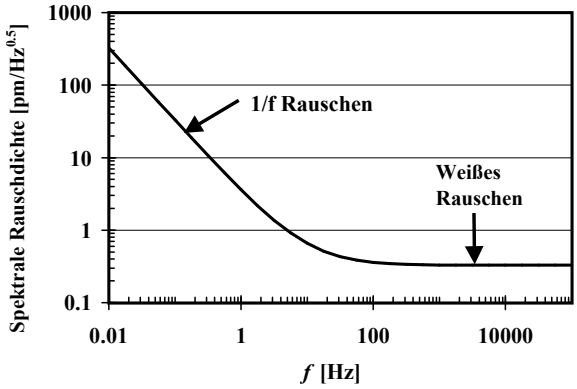

Abbildung 2.5: Spektrale Rauschdichte der Verbiegung eines Cantilevers. (nach [21])

Vorteile gegenüber Cantilevern sind, dass sie sehr robust und frequenzstabil sind [18]. Quarzstimmgabeln sind außerdem sehr steif bwz. haben eine hohe Güte, d.h. die Resonanzkurve ist sehr schmal und der Q-Faktor dementsprechend sehr groß, üblicherweise im Bereich von 10000 (vgl. Abbildung 2.13 auf Seite 29 für eine typische Resonanzkurve einer Quarzstimmgabel). Dadurch lassen sie sich sehr nahe an die Probe bringen, ohne dass es zu einem „Jump-to-Contact“ kommt. Lässt man die Stimmgabel mit kleiner Amplitude schwingen, können so auch die kurzreichweitigen chemischen Kräfte detektiert werden, welche im sub-Nanometer Bereich abfallen, und es lässt sich eine atomare Auflösung erreichen. [19, 20]

Unabhängig davon ob man einen Cantilever oder eine Stimmgabel einsetzt, liegen die Resonanzfrequenzen meistens im kilo-Hertz-Bereich. Das hat den positiven Nebeneffekt, dass das Rauschen der Messung minimiert wird. Ein typisches Rauschspektrum ist in Abbildung 2.5 gezeigt. Die Rauschdichte fällt bis zu einer Grenzfrequenz mit $1/f$ ab, danach befindet man sich im Bereich des weißen Rauschens mit konstanter Amplitude pro Frequenz. Bei Anregung der Stimmgabel bzw. des Cantilevers mit großen Frequenzen erreicht man somit eine deutlich bessere Auflösung durch ein verringertes Rauschen.

Anders als im statischen Modus kann im dynamischen Modus jedoch ohne rechnerischen Aufwand keine eindeutige Aussage zu den auftretenden Kräften gemacht werden. Weiterhin wird die Regelung komplizierter. Grundsätzlich gibt es 3 voneinander abhängige Parameter, die sich je nach Spitzen-Proben-Abstand ändern und auf die geregelt werden kann: Amplitude A, Frequenz f und Phase ϕ zwischen Eingangs- und Ausgangssignal.

Hierdurch ergeben sich verschiedene Regelkreise, welche im nächsten Kapitel näher betrachtet werden.

2.1.2.1 Amplitudenmoduliertes Rasterkraftmikroskop

Im amplitudenmodulierten Rasterkraftmikroskop (AM-AFM) wird die Spitze mit einer konstanten Anregungsamplitude bei oder in der Nähe ihrer Resonanzfrequenz in Schwingungen versetzt. Bei Annäherung an die Probe wird die Schwingung gedämpft, d.h. Amplitude und Phase ändern sich. Mit Hilfe eines PID-Reglers wird während eines Scans auf eine einstellbare Amplitude A, z.B. $A = 0.9A_0$, geregelt. Der PID-Regler sorgt dafür, dass der Abstand der Spitze zur Probe soweit verringert bzw. erhöht wird, sodass die Amplitude A während des ganzen Scans konstant bleibt.
Da nur ein Regelkreis (Amplitudenregelung) benötigt wird, welcher leicht mit einem PID-Regler realisiert werden kann, wird dieser Modus sehr häufig für AFM Messungen an Luft verwendet.
Bei Verwendung von Oszillatoren mit einer hohen Güte (z.B. Quarz-Stimmgabeln) ist diese Art der Messung jedoch verhältnismäßig langsam. Schaltet man beispielsweise die Anregung zum Zeitpunkt t=0 an, dann lässt sich aus Gleichung 2.2 leicht ermitteln, dass der Gleichgewichtszustand $z(t) = A\cos(\omega t + \phi)$ erst nach einer Zeitkonstante $\tau = \frac{2Q}{\omega_0}$ erreicht wird. Selbiges gilt für die Änderung der Amplitude bei einem Scan. Man muss somit für jeden Scanschritt relativ lange warten, bis die Stimmgabel die endgültige Amplitude erreicht.
Die schlechte Zeitauflösung kann man unter anderem verbessern, indem man statt auf die Amplitude auf das Produkt $A\cos(\omega t + \phi)$ regelt. Da sich die Phase ebenfalls verschiebt, ist die Änderung hier schneller und somit auch die Regelung.
Dennoch bleibt weiterhin das große Problem bestehen, dass keine Zugänglichkeit zu physikalischen Größen wie auftretenden Kräften gegeben ist. Man kann im AM-AFM nur Aussagen über die Änderung der Amplitude bzw. Amplitude und Phase machen, das oszillierende System ist jedoch nicht eindeutig definiert, da die Änderung der Resonanzfrequenz nicht erfasst werden kann. Dieser Freiheitsgrad ist durch die direkte Anregung bei einer festen Frequenz nicht zugänglich.

2.1.2.2 Frequenzmoduliertes Rasterkraftmikroskop und Selbstanregung

Bei der Selbstanregung oder Self-Excitation wird das Ausgangssignal des Oszillator-Systems phasenverschoben und verstärkt wieder auf den Eingang gegeben. In den meisten Fällen

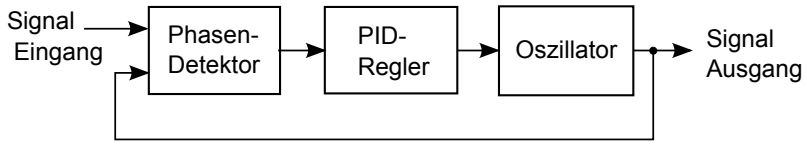

Abbildung 2.6: Blockdiagramm zum Prinzip eines PLLs

ist das Ausgangssignal bei Anregung mit der Resonanzfrequenz um 90° phasenverschoben. Diese Phasenverschiebung muss ausgeglichen werden, bevor man das Signal wieder auf den Eingang geben kann.
Der Vorteil bei dieser Methode liegt darin, dass das System immer in seiner Resonanzfrequenz schwingt. Da sich die Resonanzfrequenz sehr schnell mit $\tau \propto \frac{1}{f}$ ändert [21], ist eine Regelung auf diese Größe viel schneller als bei der Amplitudenregelung. Das konnte 1990 erstmals experimentell von Albrecht et al. gezeigt werden [22].
Bei Anwendung der Selbstanregungsmethode in einem AFM spricht man von einem frequenzmoduliertem AFM oder FM-AFM. Hierbei benutzt man üblicherweise einen „Phase-Locked-Loop (PLL)“ Regelkreis um die Frequenzverschiebung zu messen. Bei Änderung der Probenoberfläche ändert sich nun die Resonanzfrequenz. Diese Änderung wird als Regelgröße benutzt, um mit einem PID-Regler den Abstand der Spitze zur Probe anzupassen.

Ein PLL besteht dabei grundsätzlich aus drei Teilen: einem Phasendetektor, einem PID-Regler und einem variablen Frequenz-Oszillator (vgl. Abbildung 2.6). Dabei wird der Oszillator anfangs üblicherweise auf die gleiche Frequenz und Phase eingestellt, wie das Eingangssignal. Nach Aktivierung des PLL's vergleicht der Phasendetektor die Phase zwischen Eingangssignal und Referenz-Signal des Oszillators. Das Ziel ist es, eine auftretende Phasendifferenz zwischen den beiden Signalen zu beseitigen. Dafür sorgt der interne PID-Regler, indem dieser die Frequenz des Oszillators anpasst. Ist die Phasendifferenz, ausgehend von einem Phasensetpoint, positiv, so läuft das Referenzsignal dem Eingangssignal hinterher und die Frequenz des Oszillators muss erhöht werden. Bei einem negativen Fehlersignal muss die Frequenz des Referenzsignals verkleinert werden. Ein PLL sorgt also dafür, dass das Eingangs- und Referenzsignal die gleiche Phase haben. Da die Frequenz die Ableitung der Phase ist, ist dementsprechend auch die Frequenz bei beiden Signalen gleich.

Neben dem PLL kann man nun noch einen weiteren Regelkreis benutzen, um zusätzlich die Amplitude der Schwingung konstant zu halten. Dazu verwendet man einen weiteren PID-Regler, welcher die Anregungsamplitude bzw. Anregungsspannung verändert.
Dadurch sind alle 3 internen Parameter, also Frequenz, Phase und Amplitude zu jeder

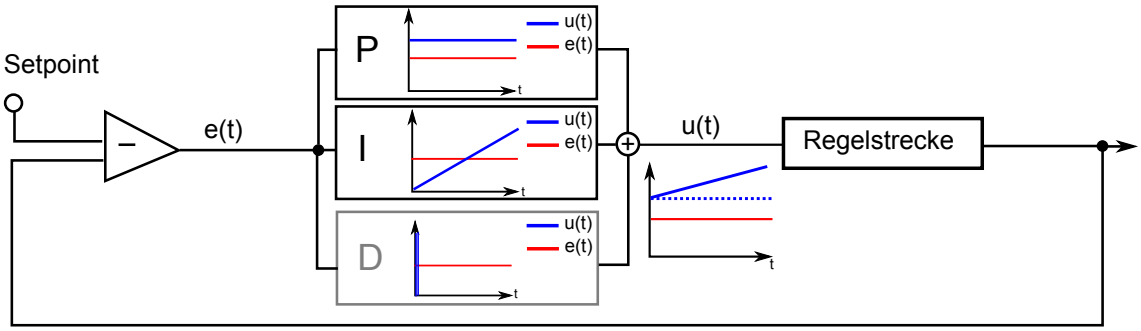

Abbildung 2.7: Skizze zur Funktionsweise eines PID Reglers (vgl. Text).

Zeit bekannt, wodurch sich die ermittelten Daten bei der Messung im FM-AFM leichter interpretieren lassen. In diesem Fall lassen sich auch Rückschlüsse auf die auftretenden Kräfte machen. [11, 12]

2.1.3 PID-Regler

Ein Proportional-Integral-Differential-Regler (PID) wird verwendet, um das Fehlersignal zwischen einem anliegenden Eingangssignal und einem einstellbaren Setpoint zu minimieren bzw. auszugleichen. Zum Beispiel wurde ein PID-Regler verwendet, um bei Abrasterung der Probe mit einem AFM den Spitzen-Proben-Abstand (die Regelstrecke in Abb. 2.7) konstant zu halten. Als Regelsignal wurde hier beispielsweise die Amplitude der Stimmgabelschwingung verwendet. Ändert sich die Amplitude von einem vorgegebenen Setpoint, regelt der PID-Regler dieses Fehlersignal weg, indem der Spitzen-Proben-Abstand angepasst wird.

Abbildung 2.7 zeigt eine Skizze zum Funktionsprinzip des PID-Reglers. Wie der Name sagt, besteht dieser aus einer Kombination von Proportional-Regler, Integral-Regler und Differential-Regler.

Der Proportional-Regler führt zu einem zum Fehlersignal proportionalen Regelsignal

$$u(t) = K_P \cdot e(t) \tag{2.7}$$

Der P-Teil sorgt also nur für eine Verstärkung des Fehlersignals und ist deshalb auch sehr schnell. Wird die Abweichung klein, wird jedoch auch das Fehlersignal klein, sodass ein Setpoint im Prinzip nie erreicht werden kann. Deshalb verwendet man im Allgemeinen

einen Integralteil, der dies behebt.

Denn der Integral-Teil führt eine zeitliche Integration der Regelabweichung durch:

$$u(t) = K_I \cdot \int_0^t e(\tau) d\tau \tag{2.8}$$

Je länger das Fehlersignal einen Wert ungleich null hat, desto größer wird das Regelsignal durch den I-Anteil. Dadurch wird der Fehler vollständig beseitigt, die Regelung ist jedoch langsam im Vergleich zum P-Regler.

Der Differential-Anteil des PID-Reglers reagiert auf die Änderungsgeschwindigkeit $\frac{de(t)}{dt}$ des Fehlersignals. Hierbei ergibt sich das Problem, dass dadurch auch ein weißes Rauschen bei einer AFM-Messung durch den D-Teil verstärkt wird. Wenn das Rauschen oder der D-Anteil zu groß ist, kann das dazu führen, dass das System sehr stark oszilliert und im AFM beispielsweise die Spitze zerstört wird. Der D-Teil wurde deshalb im Folgenden nicht verwendet.

Insgesamt ergibt sich als Regelgröße des PID-Reglers:

$$u(t) = K_P e(t) + K_I \int_0^t e(\tau) d\tau + K_D \frac{de(t)}{dt} \tag{2.9}$$

Die Parameter K_P, K_I und K_D sind am PID-Regler einzustellen. Ziel bei der Einstellung des PID-Reglers ist eine schnelle Regelung, also ein kleines Verhältnis von I-Teil zu P-Teil. Ein zu großer P-Teil führt allerdings zu unerwünschten Überschwingern. Zur Kalibrierung ist es daher sinnvoll, sich die Antwort des Regelsignals auf eine Stufenfunktion anzusehen.

2.2 Charakterisierung von Stimmgabel-Kraftsensoren

2.2.1 Interferometrische Messung der Stimmgabelamplitude

Bei der Verwendung von Quarz-Stimmgabeln als Abstandssensor in einem AFM oder SNOM ist es wichtig zu wissen, mit welcher Amplitude die Stimmgabel schwingt und inwiefern die Schwingungsamplitude mit den gemessenen piezoelektrischen Eigenschaften verknüpft ist, um diese später ineinander umrechnen zu können.
Um die Stimmgabelamplitude möglichst genau und ohne genaues Wissen der Stimmgabelabmessungen zu messen, wurde im Rahmen dieser Masterarbeit ein Michelson-Interferometer verwendet. Damit lassen sich kleinste Positionsschwankungen sehr genau bestimmen. Mit Kenntnis der Amplitude lässt sich weiterhin ein Umrechnungsfaktor $\beta = \frac{\Delta I}{\Delta x}$ für das Verhältnis zwischen den durch die Stimmgabel fließenden Strom und der Stimmgabelauslenkung ermitteln.
Der komplette Versuchsaufbau ist in Abbildung 2.8 gezeigt.
Der Laserstrahl eines Helium-Neon-Lasers mit einer Wellenlänge von $\lambda = 632{,}8\,\mathrm{nm}$ durchläuft als erstes einen Faraday-Isolator. Dieser sorgt dafür, dass zurückreflektiertes Licht aus den Interferometerarmen nicht wieder in den Laser eintreten kann. Es hat sich herausgestellt, dass der Laser dadurch viel stabiler läuft und keine ungewollten Fluktuationen in der Laserintensität auftreten.
Der Strahlteiler teilt die Intensität des Laserstrahls im Verhältnis 50:50, sodass in jedem Strahlarm die gleiche Intensität enthalten ist. In einem Strahlarm befindet sich nun ein Spiegel auf einem ansteuerbaren Verschiebetisch (Attocube ECS 3030), während in dem anderen Strahlarm die zu untersuchende Stimmgabel selbst als Spiegel fungiert. Da diese sehr klein ist, wird weiterhin ein Objektiv mit einer numerischen Apertur NA=0.5 verwendet, um den Laserstrahl auf den Stimmgabelarm zu fokussieren und möglichst viel des von der teils rauen Stimmgabeloberfläche zurückreflektierten Lichts einzusammeln. Der kollimierte Strahl aus dem Mikroskopobjektiv interferiert mit dem zurückreflektierten Licht aus dem anderen Strahlarm. Die Intensität der interferierenden Strahlen wird schließlich mit einer Photodiode (Thorlabs PDA36A-EC) ermittelt und über eine DA-Karte (Data Translation DT 9836) mit einem Computer aufgezeichnet. Weiterhin wird das mit einem Lockin-Verstärker bei der Resonanzfrequenz demodulierte Photodiodensignal aufgezeichnet.

Die Stimmgabel selber ist an einen Vorverstärker (Transimpedanzverstärker mit einem Verstärkungsfaktor $1{,}5 \cdot 10^8\,\mathrm{V/A}$) angeschlossen. An diesen wird mittels eines Funktions-

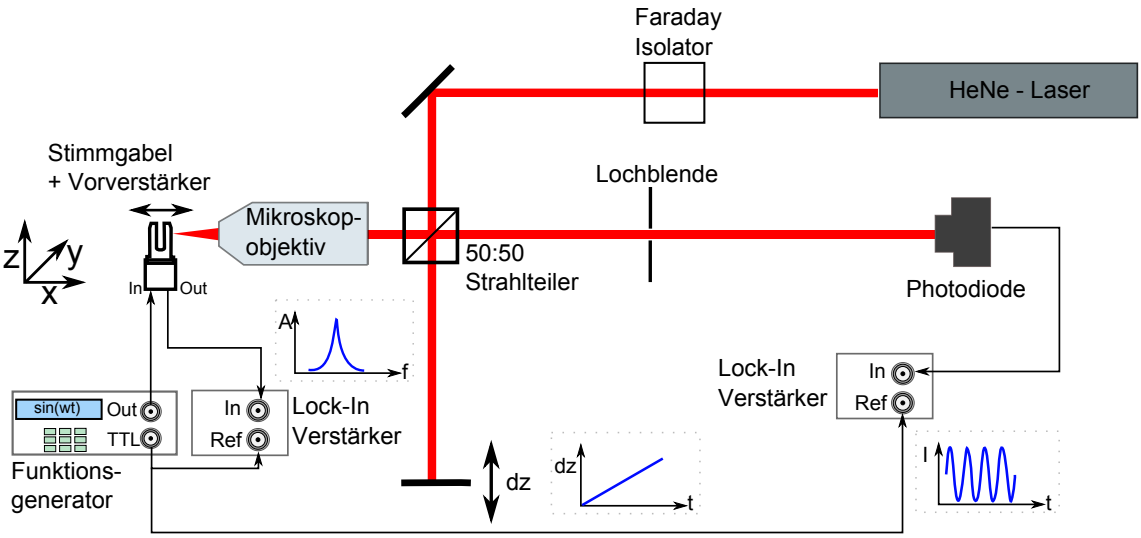

Abbildung 2.8: Aufbau des Interferometers zur Untersuchung der Stimmgabelamplitude

generators eine Wechselspannung mit einer Amplitude von 80 $\mathrm{mV_{pp}}$ angeschlossen um die Stimmgabel zu Schwingungen anzuregen.
Die Frequenz der Wechselspannung entsprach der Resonanzfrequenz der Stimmgabel.

Als nächstes wurde der Verschiebetisch in 1 nm Schritten um ca. 900 nm verfahren und das Photodiodensignal sowie das demodulierte und verstärkte Photodiodensignal bei der Resonanzfrequenz aufgenommen (vgl. Abbildung 2.9).
Das Photodiodensignal lässt sich ausdrücken als

$$I_{\mathrm{PD}} = A \cdot \cos^2(\omega x + \phi) + O, \tag{2.10}$$

mit der Amplitude A, der Frequenz ω, der Phase ϕ und einem Offset O. Ein Fit durch die Daten liefert die Werte dieser vier Parameter. Der Fit ist in Abbildung 2.9 als rote Linie eingezeichnet.
Die Stimmgabelamplitude ist sehr klein im Vergleich zur Periodizität des Interferogramms. Daher ist im Folgenden der Wert des demodulierten Photodiodensignals im Bereich der größten Steigung von besonderem Interesse. Hier wird für eine vorgegebene Stimmgabelamplitude die größtmögliche Änderung im Photodiodensignal erreicht (vgl. die grüne Kurve in Abbildung 2.9), während in einem Maximum oder Minimum die Steigung gegen 0 geht. Hier führen die (kleinen) Auslenkungen der Stimmgabel kaum zu einer Änderung der gemessenen Spannung. Durch die Messung im Bereich der größten Steigung erhält

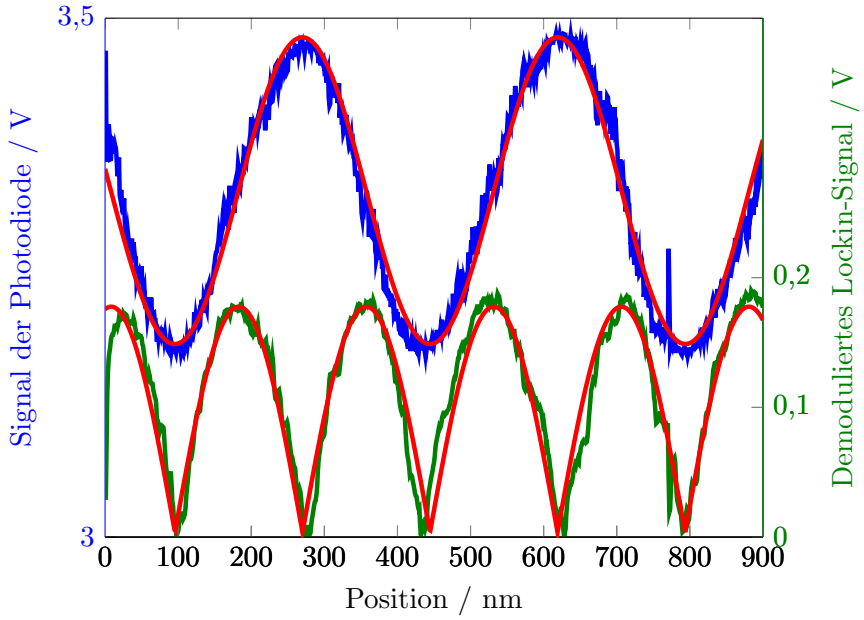

Abbildung 2.9: Beispiel für das Signal der Photodiode und das bei der Resonanzfrequenz demodulierte Signal des Lock-In-Verstärkers. Die rote Linie stellt einen Fit der Daten dar.

man also ein besseres Signal-Rausch-Verhältnis.

Die maximale Steigung $m_{\max}$ lässt sich nach Ableitung von Formel 2.10 bestimmen:

$$m = \frac{\partial I_{PD}}{\partial x} = -A\omega \sin(2(\omega x + \phi)) \tag{2.11}$$

Es folgt für $m_{\max}$:

$$m_{\max} = A\omega. \tag{2.12}$$

Das demodulierte Photodiodensignal aus dem Lockin-Verstärker folgt aufgrund der kleinen Auslenkungen der Stimmgabel dem Signal von Formel (2.11), stellt also in guter Näherung die Steigung des Interferogramms dar, jedoch mit einer anderen Amplitude als zuvor. Um den Amplitudenwert am Ort größter Steigung möglichst genau zu ermitteln, wurden auch hier die Daten angefittet (vgl. Abbildung 2.9).

Die Stimmgabelamplitude berechnet sich dann mit den ermittelten Fitparametern zu

$$x_{\mathrm{TF}} = \frac{A_{\mathrm{lockin}}}{m_{\mathrm{max}}}. \tag{2.13}$$

Weiterhin lässt sich mit dem Verstärkungsfaktor des Vorverstärkers Z_{Gain} und der aufgenommenen Resonanzkurve der durch die Stimmgabel fließende Strom berechnen:

$$I_{\mathrm{TF}} = \frac{A_{\mathrm{resonanz}}}{Z_{\mathrm{Gain}}}. \tag{2.14}$$

Der Umrechnungsfaktor zwischen Stimmgabelauslenkung und Strom durch die Stimmgabel ist schließlich durch Formel 2.15 gegeben:

$$\beta = \frac{I_{\mathrm{TF}}}{x_{\mathrm{TF}}} \tag{2.15}$$

Diese Messungen und Berechnungen wurden für verschiedene Positionen des Laserstrahls auf der Stimmgabel durchgeführt. Das so ermittelte Modenprofil entlang der Stimmgabel ist in Abbildung 2.10 gezeigt. Hier entspricht ein Abstand von 0 dem Ende der Stimmgabel, während ein größerer Abstand den Weg zur Gabelung der zwei Zinken bedeutet. Als Ende wurde weiterhin der Punkt definiert, bevor die Stimmgabelzinken eine Abschrägung erfahren (vgl. Abb. A.1 im Anhang).

In Übereinstimmung mit den Erwartungen sieht man, dass die Stimmgabelauslenkung größer wird, je näher man an das Zinkenende kommt. Der Modenverlauf selber kann mit der Formel für die Verbiegung eines Stabes beschrieben werden [23]:

$$x_{\mathrm{Fit}} = \frac{Wx^2}{24EIl}(2l^2 - (2l - x)^2) \tag{2.16}$$

und

$$\beta = \frac{I_{\mathrm{TF}}}{x_{\mathrm{Fit}}}, \tag{2.17}$$

mit W der auf die Stimmgabel ausgeübten Kraft, $E = 7{,}87 \cdot 10^{10}\,\mathrm{N/m^2}$ dem Elastizitätsmodul für Quartz, $I = \frac{tw^3}{12} = 1{,}92 \cdot 10^{-15}\,\mathrm{m^4}$ dem Trägheitsmoment, $t = 360\,\mu\mathrm{m}$, $w = 400\,\mu\mathrm{m}$, $l = 3{,}2\,\mathrm{mm}$ der Dicke, Breite sowie Länge der Stimmgabel und x der Position auf der Stimmgabel.
Die Messwerte wurden mit dieser Formel gefittet und sind als grüne Linie in Abbildung 2.10 eingezeichnet. Es zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung. Lediglich für x gegen 0 liegt der Fit bei $\beta(x)$ etwas unterhalb des gemessenen Wertes.

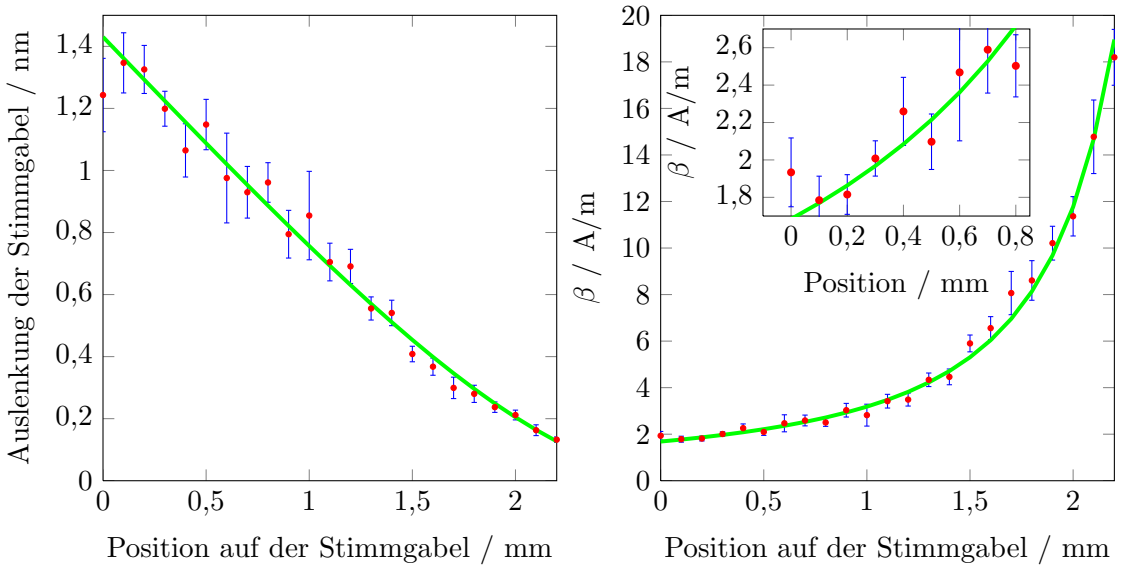

Abbildung 2.10: Stimmgabelamplitude (a) und Umrechnungsfaktor β zwischen Strom und Stimmgabelamplitude (b) für verschiedene Positionen auf der Stimmgabel. Die grüne Linie stellt einen Fit mit der Formel für die Verbiegung eines Stabes (Gleichung (2.16)) dar.

Man kann festhalten, dass die Messwerte für den Umrechnungsfaktor β gegen einen Wert von ca. 1,9 A/m gehen je näher man am Ende der Stimmgabelzinke misst. In der Literatur wird oftmals ein Umrechnungsfaktor $\beta = 2\,\mathrm{A/m}$ zwischen Stimmgabelamplitude und durchfließendem Strom verwendet [24]. Dieser Wert passt gut zu den ermittelten Daten und befindet sich innerhalb des Fehlerbereichs.

Zur Überprüfung der Genauigkeit des Interferometers wurde die Stimmgabel nun durch einen Dreiachsentisch (PI Picocube) mit aufgesetztem Spiegel ersetzt. Der Dreiachsentisch kann über Piezoelemente sehr genau in alle 3 Raumrichtungen bewegt werden.
Der Vorteil des eingesetzten Picocubes ist, dass die Auslenkung durch die eingebauten kapazitiven Positionssensoren bekannt ist. Laut Datenblatt gilt, dass einer angelegten Spannung von 0 bis 10 V ein Verfahrweg von 0 bis 5 µm entspricht. Um dies vor der eigentlichen Messung zu überprüfen, wurde ein Interferogramm aufgezeichnet. Dazu wurde an den Picocube eine linear wachsende Spannung von 0 V bis 10 V angelegt. Der Picocube nimmt in dieser Messung also die Funktion der Attocube Stage ein. Das Ergebnis zeigt Abbildung 2.11. Die Messwerte wurden wieder mit $A\cos^2(Bx + \phi)$ angefittet. Durch das Michelson-Interferometer ist bekannt, dass bei einer kompletten 2π Periode genau ein Weg

von λ verfahren wurde. D.h. der Umrechnungsfaktor von Position in Spannung ist gegeben durch $B/2\pi \cdot \lambda = (505{,}23 \pm 0{,}09)\,\mathrm{nm/V}$. Hier entsprechen 10 V ca. 5,05 µm und stimmen gut mit den Herstellerangaben überein.

Um die Stimmgabel zu simulieren, wurde an den analogen Eingang des Picocubes eine Wechselspannung angelegt. Die tatsächliche Position lässt sich außerdem als Sensorsignal ausgeben. Der Picocube kann jedoch nur bei kleinen Frequenzen betrieben werden und ist für zu große Frequenzen nicht schnell genug um diesen zu folgen. Für die Messung wurde eine Frequenz von 80 Hz und eine Amplitude von $10\,\mathrm{mV}_{pp}$ verwendet. Hierbei betrug die tatsächliche Amplitude des Sensorsignals $7\,\mathrm{mV}_{pp}$ und es war noch eine durchmodulierte Sinusschwingung gegeben. Bei höheren Frequenzen war das nicht mehr der Fall.
Als nächstes wurde das gleiche Verfahren wie zur Ermittlung der Stimmgabelauslenkung durchgeführt. D.h. der Attocube-Verschiebetisch wurde linear um 900 nm verfahren und das Photodiodensignal, sowie das bei 80 Hz demodulierte Photodiodensignal aufgezeichnet. Es wurde für die Auslenkung folgender Wert ermittelt:

$$x_{\text{Picocube,Interferometer}} = (3{,}53 \pm 0{,}11)\,\mathrm{nm}.$$

Die „tatsächliche“ Auslenkung berechnet sich zu

$$x_{\text{Picocube,eingestellt}} \approx 0{,}007\,\mathrm{V} \cdot 505{,}23\,\mathrm{nm/V} \approx 3{,}54\,\mathrm{nm}.$$

Die Werte passen sehr gut zusammen, das Interferometer funktioniert somit wie erwartet und bestätigt das ermittelte Modenprofil der Stimmgabel.

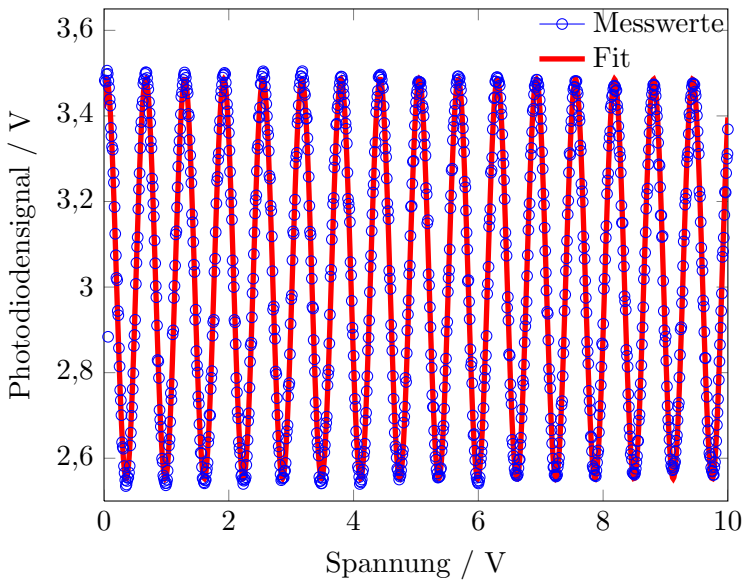

Abbildung 2.11: Kalibrierung des Picocube-Dreiachsentisches mit einem Interferometer. Der Verschiebetisch wurde im Interferometeraufbau in seinem vollen Fahrbereich (0-10 V Eingangsspannung) verfahren und dabei das Signal der Photodiode aufgezeichnet.

2.2.2 Thermisches Rauschen der Stimmgabel

Das thermische Rauschen definiert das fundamentale Limit der Stimmgabel als Kraft- bzw. Abstandssensor. Man wird mit klassischen Messverfahren nie kleinere Kräfte oder Abstandsschwankungen auflösen können, als jene, die durch das thermische Rauschen bei Raumtemperatur und ohne externe Anregung bereits stattfinden.
Das nachfolgende Experiment zeigt die Grenzen der in den AFM- bzw. SNOM-Aufbauten verwendeten Stimmgabeln. Durch Charakterisierung und Verständnis des Rauschens lassen sich weiterhin wichtige Parameter, wie der Umrechnungsfaktor zwischen Anregung und Amplitude der Stimmgabel, überprüfen.
Zunächst ist es von Vorteil sich das System aus Stimmgabel und Vorverstärker als einen RLC-Resonator mit paralleler parasitärer Kapazität vorzustellen (vgl. Abbildung 2.12). Dieses Modell ist in der Literatur auch unter dem Namen Butterworth-van-Dyke-Schwingkreis bekannt. Dabei ist der Widerstand R das elektrische Pendant zur Dämpfung, die Induktivität L vergleichbar mit der Masse der Stimmgabel und die inverse Kapazität $1/C$ entspricht der Federkonstante k der Stimmgabel. Die parasitäre Kapazität C_p beschreibt Störeinflüsse durch lange Kabel, Kontakte etc. und führt zu einer Asymmetrie in der ge-

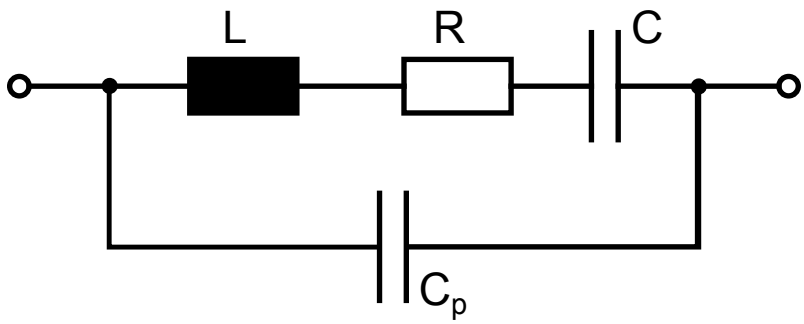

Abbildung 2.12: Skizze zum Butterworth-Van-Dyke-Schwingkreis.

messenen Resonanzkurve. In dem verwendeten Vorverstärker war aus diesem Grund ein invertierender Verstärker eingebaut um C_p weitestgehend zu kompensieren.

Abbildung 2.13 zeigt eine aufgenommene Resonanzkurve für eine Anregungsspannung mit einer Amplitude von 2 mV. Ein Einfluss der parasitären Kapazität ist hier nicht zu sehen. Das verwendete System aus Stimmgabel und Vorverstärker kann also im Folgenden als RLC-Schwingkreis charakterisiert werden. Ein Fit der Daten in Abbildung 2.13 mit der bereits bekannten Formel

$$Af_0 f / \sqrt{(f_0^2 - f^2)^2 + \left(\frac{f_0 f}{Q}\right)^2} \tag{2.18}$$

für das Lorentzprofil der Resonanzkurve liefert die Parameter $A = 4909 \pm 31$,
$f_0 =$ 32,7649 kHz und $Q = 42328 \pm 674$.
Mit diesen Parametern lassen sich auch die äquivalenten Größen vom RLC-Schwingkreis berechnen. Nach [25] gilt:

$$R = \frac{Z_\mathrm{Gain}}{A} = (30{,}55 \pm 0{,}19)\,\mathrm{k\Omega}, \tag{2.19}$$

$$L = \frac{RQ}{2\pi f_0} = (6{,}3 \pm 0{,}1)\,\mathrm{kH} \tag{2.20}$$

und

$$C = 1/(4\pi^2 f_0^2 L) = (3{,}76 \pm 0{,}08)\,\mathrm{fF}. \tag{2.21}$$

$Z_\mathrm{Gain} = 150\,\mathrm{M\Omega}$ steht für den Verstärkungsfaktor des verwendeten Vorverstärkers.
Als nächstes wurde das thermische Rauschen der Stimmgabel gemessen. Dazu wurde ein Lock-In-Verstärker von Zürich Instruments verwendet (Zürich Instruments HFLI). Die

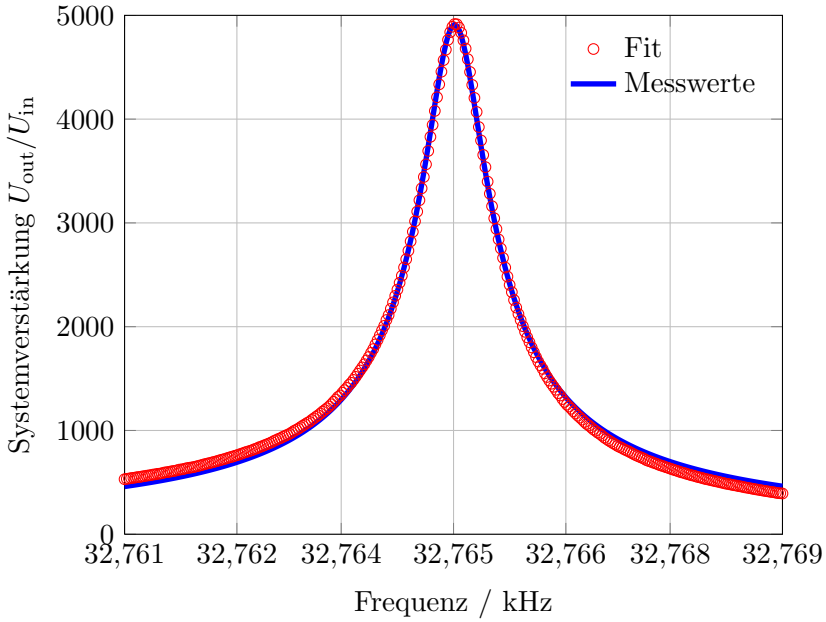

Abbildung 2.13: Resonanzkurve einer Quarz-Stimmgabel in Vakuum mit einer Resonanzfrequenz von 32,7649 kHz bei Anregung mit einer Wechselspannung mit einer Amplitude von 2mV_{rms}.

Anregung wurde auf 0 V gesetzt und das Spektrum mit einer Mittelung von 256 Punkten pro Wert gemessen. Das Ergebnis ist in Abbildung 2.14 aufgetragen.

Zusätzlich zu den gemessenen Werten ist in der Abbildung das erwartete Rauschen aufgetragen. Nach [25] lässt sich dieses durch Johnson-Rauschen des Vorverstärker-Widerstands R_g

$$V_{noise} = \sqrt{4k_BTR_g} \tag{2.22}$$

und Johnson-Rauschen in Verbindung mit mechanischer Dissipation der Stimmgabel

$$V_{\text{noise}} = \sqrt{4k_BTR}(Z_{\text{Gain}}/R) \cdot \frac{ff_0}{Q\sqrt{(f_0^2 - f^2)^2 + (ff_0/Q)^2}} \tag{2.23}$$

ausdrücken. k_B entspricht der Boltzmann-Konstante, $T = 300\,\text{K}$ der Temperatur und $R_g = 100\,\text{M}\Omega$ dem Widerstand im verwendeten Vorverstärker.

Beide Rauschterme überlagern sich quadratisch.

Das nach dieser Vorgehensweise berechnete Rauschen passt sehr gut zu den Messungen. Die Messwerte zeigen nur eine leicht breitere Resonanzkurve als nach den Formeln erwartet. Das kann zum Beispiel ein Indiz für eine zu kurze Integrationszeit des Lock-In-Verstärkers

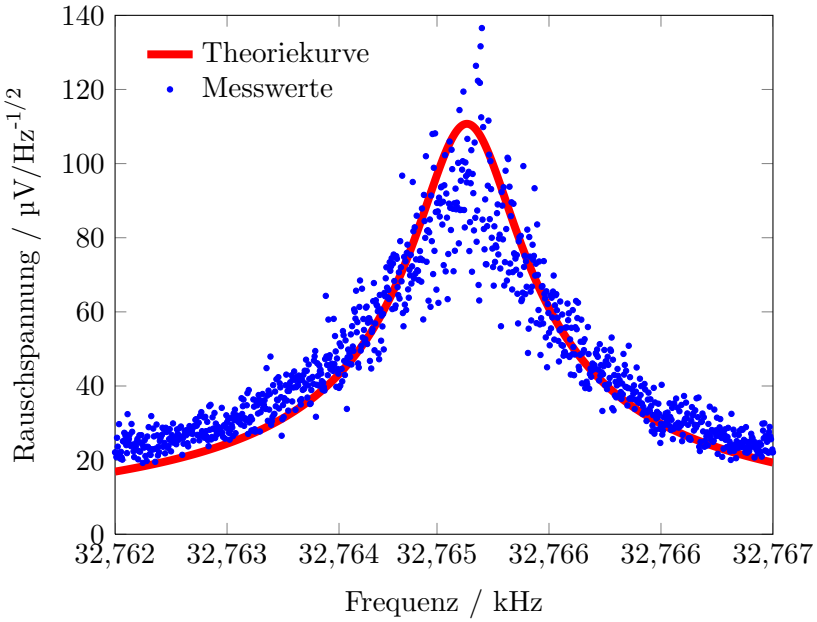

Abbildung 2.14: Rauschspektrum einer Quarz-Stimmgabel. Die durchgezogene Linie zeigt die Theoriekurve basierend auf den Berechnungen zum Johnson-Rauschen.

sein. Man kann sich den Lock-In-Verstärker als Bandpass-Filter vorstellen. Die gemessene Kurve ist dann eine Faltung der eigentlichen Resonanzkurve mit der Filterfunktion des Lock-In-Verstärkers. Für lange Integrationszeiten lässt sich diese Filterfunktion durch eine Delta-Funktion beschreiben, wodurch die tatsächlich Resonanzkurve wiedergegeben wird. Bei zu kleiner Integrationszeit kommt es durch die Messung zu einer Verbreiterung der gemessenen Daten im Frequenzraum. Im Fall der Messung des Rauschens stellen jedoch zu große Integrationszeiten auch ein Problem dar. Wird die Integrationszeit größer als die Kohärenzzeit des Rauschens, wird das Rauschen weggemittelt. Die gewählte Integrationszeit von 900 ms stellte einen guten Kompromiss dar.
Die Übereinstimmung der Messdaten mit der Theoriekurve zeigt somit, dass das Rauschverhalten mit dem Johnson-Rauschen sehr gut beschrieben werden kann.
In einem nächsten Schritt lässt sich nun aus Formel (2.23) das Energiespektrum des Rauschens der Stimmgabel extrahieren. Dazu wird Formel (2.23) integriert um die mittlere quadratische Abweichung (rms) zu erhalten [25]. Es folgt:

$$V_{\mathrm{rms}}^2 = 4k_B T R (Z_{\mathrm{Gain}}/R)^2 (\pi f_0/2Q). \tag{2.24}$$

Einsetzen der bekannten Parameter liefert $V_{rms} = (122{,}09 \pm 1{,}36)\,\mu\mathrm{V}$.
Dieser Wert gibt direkte Information über die Stimmgabelamplitude. Es gilt:

$$V_{\mathrm{rms}}^2 = \left\langle c(x_1 - x_2)^2 \right\rangle = c^2(\left\langle x_1^2 \right\rangle + \left\langle x_2^2 \right\rangle - 2\left\langle x_1 x_2 \right\rangle)). \tag{2.25}$$

Dabei beschreiben x_1 und x_2 die Auslenkungen der beiden Stimmgabelarme. c ist eine Konstante. Unter der Annahme, dass beide Arme nur wenig miteinander gekoppelt sind und sie sich unkorreliert voneinander mit der gleichen Auslenkung bewegen, vereinfacht sich Formel (2.25) zu

$$V_{\mathrm{rms}} = 2c^2 \left\langle x_1^2 \right\rangle. \tag{2.26}$$

Weiterhin gilt für das Ausgangssignal nach Anregung der Stimmgabel

$$V_{\mathrm{out}} = c(x_1 - x_2). \tag{2.27}$$

Da die Stimmgabel so kontaktiert ist, dass nur die antisymmetrische Mode mit $x_1 = -x_2$ angeregt wird, vereinfacht sich Formel (2.27) zu

$$V_{\mathrm{out}} = 2cx_1 = x_1/\alpha = x_1 \frac{\beta}{Z_{\mathrm{Gain}}}, \tag{2.28}$$

wobei $\beta = Z_{\mathrm{Gain}}/\alpha$ den Umrechnungsfaktor zwischen den der Stimmgabel durchfließenden Stroms und der Stimmgabelauslenkung entspricht (Einheit A/m), welcher bereits in den interferometrischen Messungen ermittelt wurde.
Umformung nach c und Einsetzen in Formel (2.26) ergibt schließlich

$$x_{\mathrm{rms}} = \sqrt{2}\alpha V_{\mathrm{rms}} = \frac{\sqrt{2}}{\beta} Z_{\mathrm{Gain}} V_{\mathrm{rms}}. \tag{2.29}$$

Mit $\beta \approx 1{,}9\,\mathrm{A/m}$ aus Kapitel 2.2.1 ergibt sich so eine Auslenkung der Stimmgabelzinke durch thermische Fluktuationen um $x_{\mathrm{rms}} = (0{,}606 \pm 0{,}007)\,\mathrm{pm}$.
Hiermit lässt sich wiederum eine effektive Federkonstante berechnen:

$$K = \frac{k_B T}{x_{\mathrm{rms}}^2}. \tag{2.30}$$

Die Berechnung ergibt $K = (11{,}28 \pm 0{,}25)\,\mathrm{kN/m}$.
Zur Überprüfung der Ergebnisse kann die Federkonstante auch unter Kenntnisse der

Stimmgabelabmessungen berechnet werden. K lässt sich in diesem Fall ausdrücken als

$$K = \frac{Ewt^3}{l^3}. \tag{2.31}$$

E entspricht dem Elastizitätsmodul, welches für Quarz $E = 7{,}87 \cdot 10^{10}\,\mathrm{N/m^2}$ beträgt. $w = 400\,\mu\mathrm{m}$ ist die Breite, $t = 360\,\mu\mathrm{m}$ die Dicke und $l = 3{,}2\,\mathrm{mm}$ die Länge der verwendeten Stimmgabel (vgl. Abbildung A.1 und A.2 im Anhang). Daraus folgt eine Federkonstante $K = 11{,}21\,\mathrm{kN/m}$. Diese stimmt mit der bereits ermittelten Federkonstante aus den Messungen sehr gut überein. Das zeigt, dass der Wert $\beta \approx 1{,}9\,\mathrm{A/m}$ aus den Interferometer-Messungen sehr gut zu diesen Berechnungen passt. Ein falscher Wert für β hätte sonst zu einer abweichenden Federkonstante geführt. Der Wert für V_{rms} ist nämlich durch die zu den Messwerten kompatible Theoriekurve hinreichend genau bekannt. Weiterhin geben die Messungen Aufschluss über das maximale Auflösungsvermögen der verwendeten Stimmgabeln, denn die Auslenkung der Stimmgabelzinken um ca. 0,6 pm tritt ohne Anlegen einer Spannung alleine durch thermische Fluktuationen auf. Eine Auflösung unterhalb dieses Wertes ist nur bei tiefen Temperaturen möglich.

2.2.3 Messung der Frequenzverschiebung mit einem PLL

Wie bereits in Kapitel 2.1.2 angemerkt wurde, ist eine reine Regelung auf das Amplitudensignal der Stimmgabelschwingung in einem AFM oder SNOM ineffektiv, denn bei einem hohen Q-Faktor dauert es relativ lange, bis die veränderte Amplitude ihren Endwert erreicht. Man muss somit für jeden Messpunkt auf der Probe einige 100 ms warten. In den durchgeführten SNOM Messungen wurde daher auf das Produkt $A \cos \phi$ geregelt, welches standardmäßig von einem Lock-In-Verstärker ausgegeben wird. Dadurch wird die Regelung schneller, jedoch ist die gemessene (Misch-) Größe nur schwer zu interpretieren. Man kann z.B. keine Aussagen zur Dissipation machen.
Ein nächster Schritt in der Verbesserung der Regelung liegt also in der Verwendung des Selbstanregungsmodus, wobei die auftretende Frequenzverschiebung die Regelgröße darstellt. Damit ist eine schnelle Regelung möglich und man kann trotzdem Aussagen über physikalisch relevante Größen machen, da das System durch Kenntnis aller Parameter genau definiert ist (vgl. Kapitel 2.1.2.2). Um die Frequenzverschiebung zur Regulierung des Abstandes von Spitze und Probe zu verwenden, ist jedoch eine genaue Kenntnis der Abhängigkeit nötig. Diese soll mit den folgenden Messungen untersucht werden.
Dazu wurde die PLL-Funktion des Zürich Instruments Lock-In-Verstärkers (ZI HFLI) verwendet. Zur Einstellung des PLLs wurde als erstes eine Resonanzkurve bei großem Abstand von der Probe aufgenommen. Die Resonanzfrequenz, sowie die Phase in der Resonanzfrequenz, konnten nun in den PLL-Einstellungen eingesetzt werden. Nach Aktivierung des PLLs war dieser auf die eingestellten Werte „gelockt“, d.h. Frequenz und Phase des internen Oszillators entsprachen den Werten des äußeren zu untersuchenden Systems. Die PID-Parameter des PLLs wurden so eingestellt, dass eine Frequenzänderung schnell erfasst werden konnte.
Nun wurde eine Annäherung an die Probe durchgeführt. Dazu wurde eine Spannung auf den Piezo-Controller gegeben, welcher den Abstand von Spitze und Probe reguliert. Die Amplitude, sowie die Frequenzverschiebung wurden mit einem Computer aufgezeichnet. Bei Überschreiten eines einstellbaren Grenzwertes wurde die Spitze wieder von der Probe entfernt.
Die so ermittelten Daten sind in Abbildung 2.15 für ein Eigenbau-AFM mit einer Quarz-Stimmgabel und aufgeklebter Goldspitze als Abstandssensor aufgetragen. Für eine Stimmgabel mit aufgeklebter Cantilever-Spitze ergeben sich ähnliche Ergebnisse. Abbildung 2.16 zeigt die gleiche Messung für ein kommerzielles AFM (AGILENT SPM 5500) mit einem Cantilever als Abstandssensor. Der Cantilever hatte eine Resonanzfrequenz von ca. 190 kHz und eine Federkonstante von 48 N/m (Vistaprobes T190R-25).

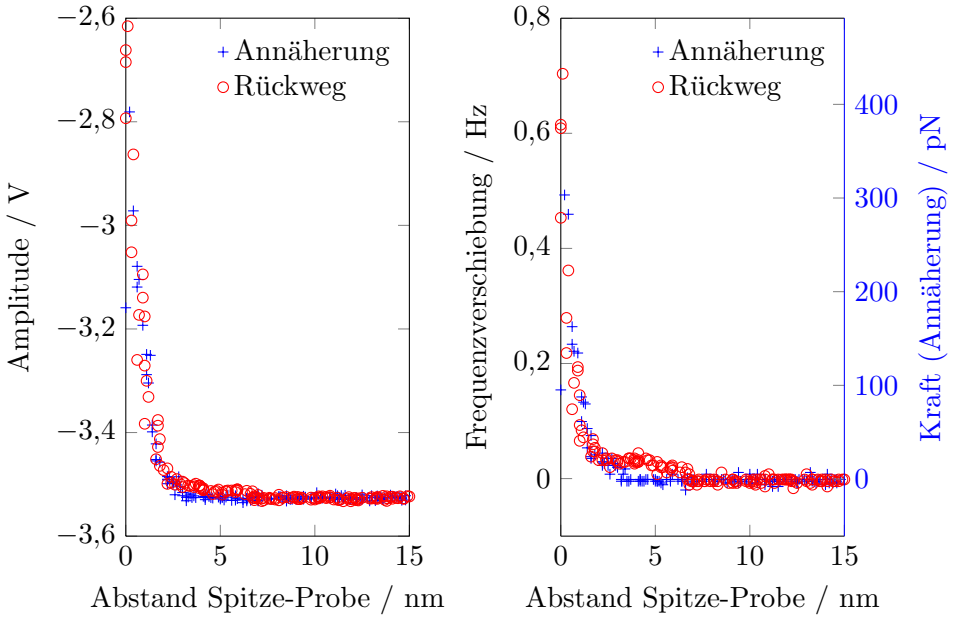

Abbildung 2.15: Annäherungskurve für eine Quarz-Stimmgabel mit aufgeklebter Goldspitze. Aufgezeichnet wurde sowohl die Frequenzverschiebung als auch die Amplitude im Selbstanregungsmodus.

Man sieht, dass es sowohl für die Amplitude als auch für die Frequenzverschiebung einen exponentiellen Anstieg in Abhängigkeit des Abstandes gibt. Weiterhin fällt auf, dass die Frequenzverschiebung bei dem kommerziellen AFM mit einem Cantilever um mehr als einen Faktor 100 größer ist. Das hängt damit zusammen, dass der Cantilever eine höhere Resonanzfrequenz und eine kleinere Federkonstante hat. Nach Formel (2.6) ist $\Delta\omega$ proportional zur Resonanzfrequenz ω_0 und antiproportional zur Federkonstante k. Dementsprechend hat der Cantilever mit einer mehr als fünf mal so großen Resonanzfrequenz wie die Quarzstimmgabel auch eine größere Frequenzverschiebung. Außerdem ist die spezifizierte Federkonstante von 48 N/m um ca. einen Faktor 230 kleiner als die Federkonstante der Stimmgabel ohne aufgeklebte Spitze aus dem vorherigen Kapitel und sorgt somit ebenfalls für einen Beitrag zur Frequenzverschiebung.
Die Abklinglänge ist in beiden Messungen ähnlich. Leichte Unterscheide können hier auf die Stabilität des Aufbaus und die genaue Geometrie der Spitze zurückgeführt werden. Eine oft benutze Spitze ist zum Beispiel nicht mehr so scharf wie am Anfang und führt zu einer größeren Abklinglänge. Weiterhin fällt auf, dass im kommerziellen AFM der Rückweg der Annäherungskurve oberhalb des Hinwegs liegt. Das ist stark ausgeprägt in der Frequenzverschiebung zu sehen, tritt aber auch bei der Amplitudenabhängigkeit auf. Es

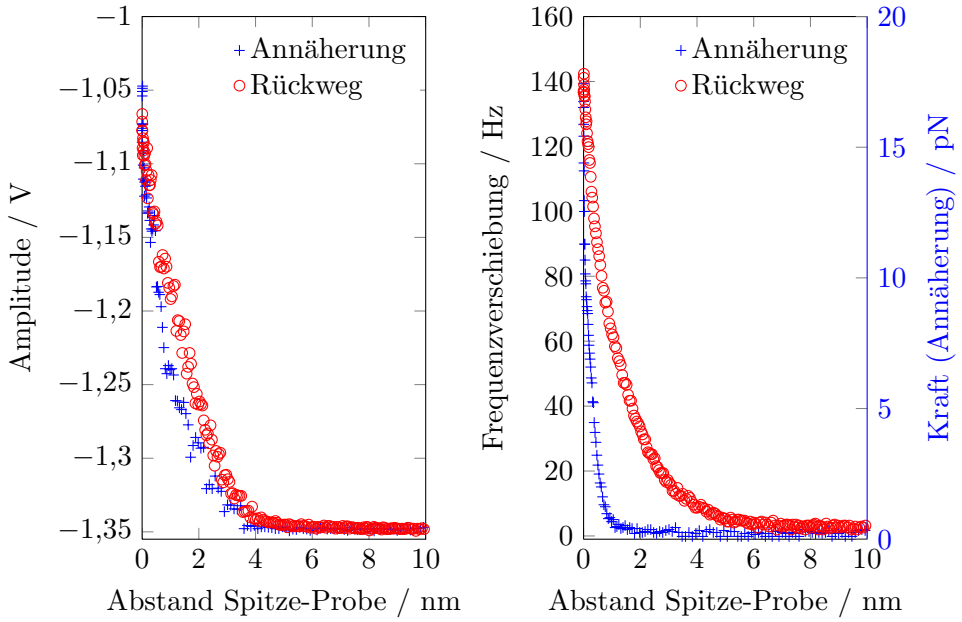

Abbildung 2.16: Annäherungskurve für einen Cantilever in einem kommerziellen AFM. Aufgezeichnet wurde sowohl die Frequenzverschiebung als auch die Amplitude im Selbstanregungsmodus.

ist ein Zeichen dafür, dass die Spitze an der Probe „festgehalten“ wird, z.B. durch einen Wasserfilm auf der Probe. Dadurch kommt es zu einem hystereseartigen Verhalten.

Mit Hilfe der Frequenzverschiebung lässt sich durch Umstellen von Gleichung (2.6) außerdem eine Abschätzung für die zwischen Spitze und Probe wirkenden Kräfte berechnen. Ohne Berücksichtigung von Dämpfungseffekten gilt:

$$\frac{\partial F_{ts}}{\partial z} = -\Delta\omega(z)\frac{2k}{\omega_0} \tag{2.32}$$

Durch Integration nach z, dem Abstand von Spitze zu Probe, erhält man einen Ausdruck für die Kraft:

$$F_{ts}(z) = -\frac{2k}{\omega_0}\int \Delta\omega(z)dz \tag{2.33}$$

Da sich $\Delta\omega(z)$ sehr gut durch einen Fit mit einer Exponentialfunktion beschreiben lässt, ergibt die Integration ebenfalls eine Exponentialfunktion. Die Kraft F(z) ist also proportional zur Frequenzverschiebung und ist für die Annäherung in Abbildung 2.15 und Abbildung 2.16 als zweite Ordinatenachse (blau) eingezeichnet. Bei dem kommerziellen AFM

mit Cantilever als Abstandssensor wirken bei der Annäherung Kräfte bis zu 16 pN. Für das AFM mit einer Stimmgabel und aufgeklebter Goldspitze als Abstandssensor erhält man Werte bis zu 300 pN. Gerade beim Eigenbau-AFM kann sich der Wert der Federkonstante des Systems aus Stimmgabel und Goldspitze jedoch von dem Wert $k \approx 11{,}2\,\mathrm{kN/m}$ einer Stimmgabel ohne Spitze aus dem vorherigen Kapitel unterscheiden. Auch Dämpfungseffekte könnten je nach genauer Geometrie der Spitze einen größeren Beitrag zur Kraft liefern. Diese wurden hier nicht berücksichtigt. Daher stellen die Angaben nur eine Abschätzung dar. Es zeigt sich jedoch, dass die Kräfte prinzipiell mit Hilfe der Frequenzverschiebung berechnet werden können. Für eine detaillierte Betrachtung zur Berechnung der Kräfte mit Hilfe eines FM-AFM sei auf [11, 12] verwiesen.

Insgesamt konnte die Frequenzverschiebung in den durchgeführten Messungen recht genau ermittelt werden und mit dem Abklingen der Amplitude verglichen werden. Eine Regelung auf 85% der Anfangsamplitude, etwa $A = 3\,\mathrm{V}$ im Eigenbau-AFM, ist vergleichbar mit einer Regelung auf ca. 500 mHz Frequenzverschiebung. Es zeigt sich jedoch auch, dass eine größere Resonanzfrequenz für eine Regelung von Vorteil ist, da dann die Änderungen größer und besser zu detektieren sind. In einem nächsten Schritt kann man mit diesem Wissen nun den AFM- bzw. SNOM-Aufbau so modifizieren, dass nicht mehr auf ein Mischprodukt von Amplitude und dem Kosinus der Phase, sondern auf die Frequenzverschiebung geregelt wird. Dazu wird ein weiterer PID-Regler benötigt, welcher als Eingangssignal die Frequenzverschiebung des PLLs erhält und als Ausgangssignal eine Spannung auf den Piezo-Kontroller zur Abstandsregelung gibt. Ein weiterer PID-Regler kann dazu genutzt werden, die Anregungsspannung zu regulieren, um die Amplitude der Schwingung konstant zu halten. Dadurch ist das System vollständig beschrieben.
Die Schwierigkeit in der Umsetzung liegt in der Bestimmung der richtigen PID-Parameter. Hier ist ein systematisches Auswerten verschiedener Konfigurationen nötig. Das war jedoch im zeitlich begrenzten Rahmen der Masterarbeit nicht mehr möglich.

2.2.4 Zusammenfassung der Ergebnisse

In den vorherigen Kapiteln wurden verschiedene Experimente und deren Ergebnisse vorgestellt, um eine Quarz-Stimmgabel als Kraft-Abstandssensor besser zu charakterisieren. Die wichtigsten Erkenntnisse aus diesen Messungen sollen an dieser Stelle kurz zusammengefasst werden.
So konnte durch interferometrische Messung der Schwingungsamplitude entlang einer Quarz-Stimmgabel die Schwingungsmode vermessen werden. Es hat sich gezeigt, dass sich das Schwingungsverhalten sehr gut mit der Formel für die Verbiegung eines Stabes beschreiben lässt. Aus dem Schwingungsverhalten entlang der Stimmgabel konnte nun ein Umrechnungsfaktor $\beta = \frac{\Delta I}{\Delta x}$ zwischen der Auslenkung und dem die Stimmgabel durchfließenden Strom ermittelt werden. In einem SNOM wird beispielsweise eine Goldspitze an das Ende der Stimmgabelzinke aufgeklebt. Daher ist der Umrechnungsfaktor zwischen Strom und Auslenkung vor allem am Ende der Stimmgabel von Interesse. Hier wurde in guter Übereinstimmung mit der Literatur ein Wert von etwa $\beta = 1{,}9\,\mathrm{A/m}$ ermittelt.
In einer weiteren Messung wurde das thermische Rauschen der Stimmgabel bestimmt. Dieses konnte sehr gut mit einer analytischen Formel für Johnson-Rauschen beschrieben werden. Daraus konnte weiterhin die Auslenkung der Stimmgabel durch thermische Fluktuation auf $x \approx 0{,}6\,\mathrm{pm}$ bestimmt werden, welche das maximale Auflösungsvermögen der Stimmgabeln limitiert. Außerdem konnte durch diese Messung der vorher ermittelte Umrechnungsfaktor von $\beta = 1{,}9\,\mathrm{A/m}$ bestätigt werden.
Letztlich wurde die Verschiebung der Resonanzfrequenz der Stimmgabel bei Annäherung an eine Probe untersucht und mit der Frequenzverschiebung eines kommerziellen AFM-Systems mit einem Cantilever als Abstandssensor verglichen. Dazu wurde das System im Selbstanregungsmodus betrieben und die Frequenzverschiebung wurde mit einem PLL ermittelt. Mit dieser Art der Messmethode konnte die Frequenzverschiebung sehr genau gemessen werden und mit dem Abklingen der Schwingungsamplitude verglichen werden. Der Vergleich zwischen beiden Systemen hat gezeigt, dass die Frequenzverschiebung bei dem Cantilever um einen Faktor 100 größer ist, da dieser eine höhere Resonanzfrequenz und eine viel kleinere Federkonstante hat. Bei dem kommerziellen System mit Cantilever zeigt sich jedoch auch, dass der Cantilever z.B. durch einen Wasserfilm auf der Probe an dieser „festgehalten“ wurde. Dadurch ergibt sich ein hystereseartiges Verhalten zwischen Hin- und Rückweg. Dieser Effekt war für die Stimmgabel nicht zu beobachten. Durch die ermittelten Ergebnisse lässt sich das verwendete AFM bzw. SNOM in Zukunft auf die viel aussagekräftigere und trotzdem schnelle frequenzmodulierte Regelung (FM-AFM) umbauen. So können mit der ermittelten Frequenzverschiebung auch Aussagen über wirkende

Kräfte gemacht werden. Eine erste Abschätzung dafür wurde an dieser Stelle ebenfalls vorgestellt.

3 Optische Rasternahfeldmikrosopie

3.1 Grundlagen aperturloser Rasternahfeldmikroskope

Wenn man kleine Strukturen im Nanometerbereich optisch untersuchen will, kommt man mit normalen optischen Lichtmikroskopen schnell an seine Grenze. Durch auftretende Beugungseffekte lassen sich hiermit maximal Strukturen in der Größe der halben Wellenlänge auflösen. Optische Rasternahfeldmikroskope (engl.: scanning nearfield optical microscope - SNOM) hingegen bieten eine weitaus bessere Auflösung. So konnte zum Beispiel von Schmidt et al. eine laterale optische Auflösung von etwa 10 nm demonstriert werden [10]. Das Prinzip dieser Nahfeld-Mikroskope besteht darin, die Probe mit einer Sonde in einem geringen Abstand abzurastern. Die Abbildung der Strukturen erfolgt durch das evaneszente, also exponentiell abklingende, optische Nahfeld der Sonde (vgl. Abbildung 3.1). Als Sonde verwendet man beispielsweise eine auf einer Stimmgabel aufgeklebte Metall-Spitze, welche mit einem Laser bestrahlt wird. Die Stimmgabel dient dabei, analog zu einem AFM, zur Regulierung des Abstandes der Spitze zur Probe. Ein SNOM stellt also gewissermaßen die optische Erweiterung eines AFMs dar (vgl. Kapitel 2.1). Neben scharfen, metallischen Spitzen sind in einem SNOM-Aufbau auch optische Fasern als SNOM-Spitze möglich (Apertur-SNOM).

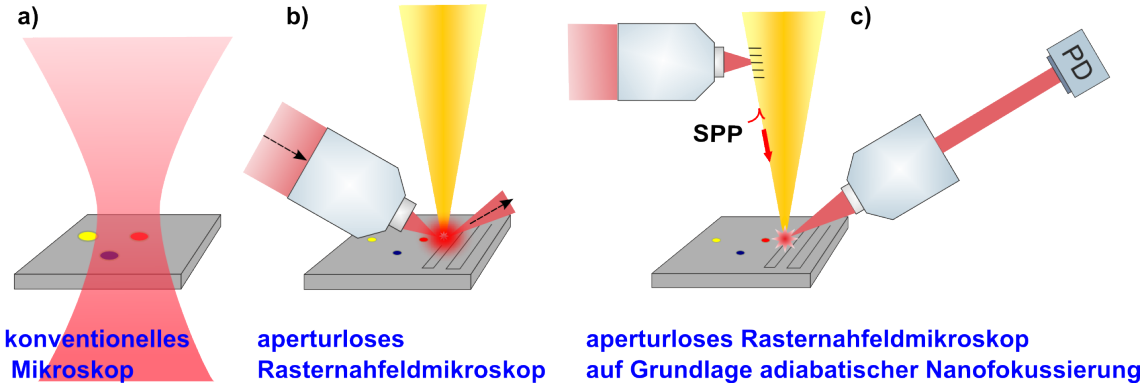

Abbildung 3.1: Vergleich des Prinzips eines üblichen Lichtmikroskops (a) mit einem sSNOM (b) und einem SNOM basierend auf dem Konzept der adiabatischen Nanofokussierung (c).

Insgesamt gibt es verschiedene SNOM-Arten, die sich durch Art der verwendeten Sonde

oder in der Art der Beleuchtung unterscheiden. Da in den durchgeführten Experimenten eine Version eines Streu-Nahfeld-Mikroskops (engl.: scattering type scanning nearfield optical microscope - sSNOM) verwendet wurde, wird nur dieses im Folgenden näher betrachtet.
Beim sSNOM bestrahlt man eine scharfe Metall-Spitze an deren Spitzenende mit einem Laser. Dabei kommt es zu einer starken Feldüberhöhung des Nahfeldes am Spitzenapex [3]. Das lässt sich auf die Spitzen-Geometrie zurückführen, denn es kommt zu einer Art Antenneneffekt, da die Feldlinien des elektrischen Feldes alle senkrecht zum Metall verlaufen. An starken Krümmungen ist somit die Dichte der Feldlinien groß und damit auch das elektrische Feld. Weiterhin werden lokalisierte Oberflächenplasmonen, resonante Anregungen des Elektronengases in einer abgeschlossenen Geometrie, erzeugt. Dies führt ebenfalls zu einer Verstärkung des Nahfeldes. Am Apex der Spitze werden die Felder als elektromagnetische Wellen abgestrahlt. Das so gestreute Licht kann als nahezu punktförmige Lichtquelle angesehen werden und dient zur optischen Untersuchung der Probe (vgl. Abbildung 3.1(b)). Da der Spitzendurchmesser meist kleiner ist als bei Spitzen mit Apertur, lässt sich mit dieser Art der Nahfeldmikroskopie eine höhere Auflösung erreichen (z.B. [26]).

3.1.1 Oberflächenplasmonen

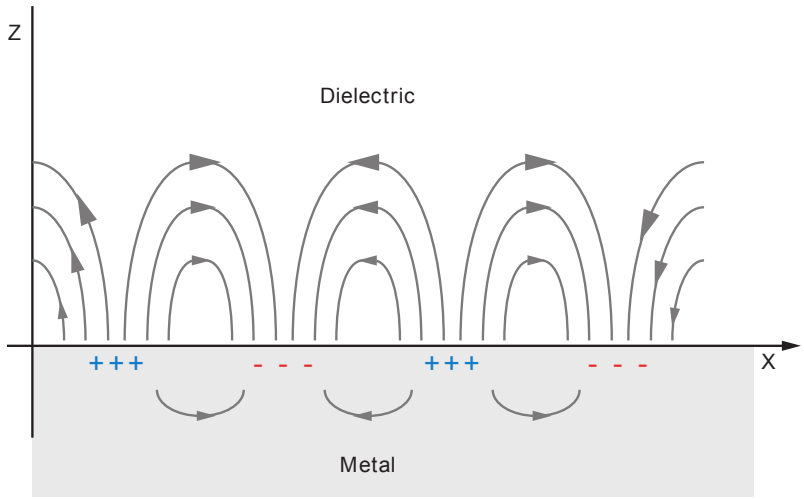

Abbildung 3.2: Skizze zu Oberflächenplasmonpolaritonen. (aus [27])

Ein Plasma bezeichnet ein vollständiges oder teilweise ionisiertes Gas aus frei beweglichen Ladungsträgern, welches nach außen hin neutral ist. Fügt man einem Gas genügend Energie zu erhält man dementsprechend ein Plasma. Daher wird das Plasma oft als der vierte

Aggregatzustand bezeichnet [28]. Ein Beispiel eines Plasmas ist u.a. die heiße Korona der Sonne, ein vollständig ionisiertes Gasgemisch. Aber auch die Leitungselektronen in einem Metall können als Plasma angesehen werden. Metalle weisen eine große Anzahl an freien Elektronen im Leitungsband auf, welche nicht mehr an ihren Atomrümpfe lokalisiert sind und sich weitgehend frei durch das Metall bewegen. Sie spüren keine Rückstellkräfte durch die Metallionenrümpfe sondern nur eine Art Reibungskraft, die im Drude-Modell durch Stöße mit Defekten und den ortsfesten Ionenrümpfen erklärt wird [29]. Man spricht daher von einem Elektronengas oder Elektronenplasma.

Das Oberflächenplasmon, als Analogie zum Photon oder Phonon, ist ein Quasi-Teilchen, welches die auftretenden Elektronendichteschwankungen beschreibt, die sich an einer Grenzfläche Metall-Dielektrikum ausbreiten können (vgl. Abbildung 3.2). Oberflächenplasmonen können durch Wechselwirkung mit Licht angeregt werden und sich entlang der Grenzfläche fortbewegen, wobei die Ausbreitung senkrecht zur Grenzfläche exponentiell abklingt (evaneszente Welle). Diese mit Licht gekoppelten propagierenden Moden bezeichnet man als Oberflächenplasmonpolaritonen (engl.: surface plasmon polartion - SPP).

Da die Dispersionsrelation der Oberflächenplasmonen [30]

$$k_{x,\mathrm{SPP}} = \frac{\omega}{c}\sqrt{\frac{\epsilon_1\epsilon_2}{\epsilon_1+\epsilon_2}} \tag{3.1}$$

keinen Schnittpunkt mit der Dispersionsrelation von ebenen Lichtwellen ($k_x = \omega/c$) aufweist (vgl. Abbildung 3.3), muss man den Wellenvektor des einfallenden Lichtes künstlich verändern, um Oberflächenplasmonen anzuregen. Eine mögliche Realisierung erfolgt durch Benutzung einer gittermodulierten Metalloberfläche mit Gitterabstand a. Für diesen Fall lässt sich der Wellenvektor durch Formel (3.2) beschreiben.

$$k_{x,Gitter} = k_{x,\mathrm{SPP}} + n \cdot \frac{2\pi}{a}, \quad n \in \mathbb{N} \tag{3.2}$$

Das Gitter überträgt einen Impuls $k = \frac{2\pi}{a}$ an das einfallende Licht. Dadurch kommt es zu einem Schnittpunkt in den Dispersionsrelationen (gleicher k_x-Wert bei bestimmter Frequenz ω) und eine Kopplung zwischen einfallendem Licht und Oberflächenplasmonen findet statt.

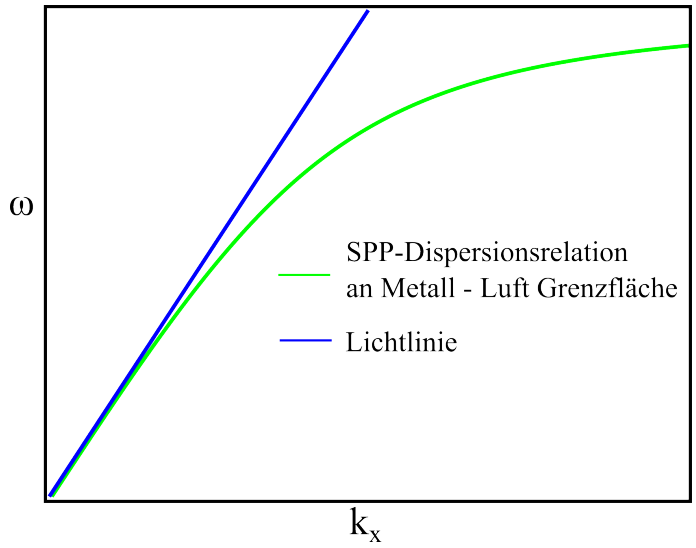

Abbildung 3.3: Dispersionsrelation von Oberflächenplasmonen an einer Metall-Luft Grenzschicht im Vergleich mit der Lichtlinie.

3.1.2 Adiabatische Nanofokussierung

Der Nachteil bei der Verwendung eines sSNOMs besteht darin, dass der Laserstrahl mit einem Durchmesser von ca. 1-2 µm im Verhältnis zum Spitzenapex groß ist und somit auch den Spitzenschaft beleuchtet. Dadurch erhält man einen unerwünschten optischen Hintergrund von der Spitze, wodurch die Messung erschwert wird. Bei einer Beleuchtung der Spitze wie in Abbildung 3.1(b) wird außerdem die Probe bestrahlt, was ebenso zu einer verschlechterten Auflösung führt und bei großer Laserleistung gegebenenfalls sogar die Probe beschädigen kann. Bei diesem Verfahren ist man schließlich auf komplizierte Modulationstechniken angewiesen, um die unerwünschte Streuintensität herauszufiltern.

Eine neuartigere Methode umgeht diese Schwierigkeiten durch Anregungen von Oberflächenplasmonpolaritonen (vgl. Kapitel 3.1.1) einige Mikrometer vom Spitzenapex entfernt. Dazu wird eine Spitze mit Hilfe eines fokussierten Ionenstrahls (engl.: focused ion beam - FIB) mit einem Gitter beschrieben. Das Gitter, der in den Experimenten benutzen Spitzen, hatte einen Abstand von ca. 30 µm zum Spitzenapex. Durch Bestrahlung des Gitters mit einem Laser werden Oberflächenplasmonpolaritonen angeregt, welche entlang des Spitzenschafts zu deren Apex laufen und dort ein starkes Nahfeld erzeugen. Da die Anregung also relativ weit vom Apex entfernt stattfindet, trägt das am Gitter gestreute Licht fast gar nicht zum Signal-Hintergrund bei. Experimentell konnte dies erstmals von Ropers

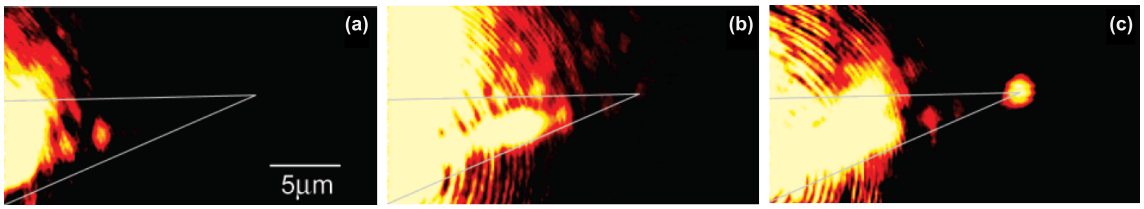

Abbildung 3.4: Experimentelle Beobachtung der adiabatischen Nanofokussierung. (a) und (b) zeigen den Fall der Beleuchtung neben dem Gitter. In (c) trifft der Laser genau auf das Gitter auf der Spitze und es werden Oberflächenplasmonpolaritonen angeregt, welche am Spitzenapex abstrahlen. (aus [31])

et al. [31] demonstriert werden (vgl. Abbildung 3.4). Durch Verwendung dieses Prinzips in einem SNOM kann so eine nahezu hintergrundfreie Messung durchgeführt werden [7] ohne Modulationstechniken einsetzen zu müssen. Abbildung 3.1(c) demonstriert das Prinzip dieses SNOMs und zeigt den von Sadiq et al. verwendeten Aufbau zur Untersuchung von Gold-Nano-Partikel (vgl. [7]). Dazu wurde das von den Goldpartikeln emittierte Licht im Fernfeld mit einem Photodetektor gemessen. Der optische Kontrast ergibt sich dadurch, dass die Streuung von dem gekoppelten System aus Spitze und Partikel viel effizienter ist, als von der Spitze allein.

Eine theoretische Betrachtung dieser propagierenden Oberflächenmoden wurde von Babadjanyan et al. [9] und Stockman et al. [8] hergeleitet. Es konnte gezeigt werden, dass der SPP-Wellenvektor invers-proportional mit dem Abstand zum Spitzenapex abnimmt. Das heißt, die Wellenlänge der Oberflächenplasmonpolaritonen wird kleiner und geht im Grenzfall für eine ideale Spitze an deren Apex gegen 0. Sowohl die Phasengeschwindigkeit als auch die Gruppengeschwindigkeit geht dann gegen 0. Das SPP Wellenpaket wird somit immer langsamer und kommt schließlich für eine ideale Spitze zum Stoppen. Da Änderungen im SPP-Wellenvektor klein sind auf der Längenskala der SPP-Wellenlänge, handelt es sich hierbei um eine adiabatische Abnahme der Gruppengeschwindigkeit. Dadurch kommt es zur Anhäufung von Energie und dementsprechend stark überhöhten Feldern am Apex. Man spricht aus diesem Grund auch von **adiabatischer Nanofokussierung**.

3.2 Berechnung der Eigenmoden einer scharfen Goldspitze

Durch das Konzept der adiabatischen Nanofokussierung und einer neuen Klasse von Rasternahfeldmikroskopen wurde die Erzeugung und das Überführen von SPP-Wellenpaketen in lokalisierte Oberflächenplasmonen (LSP) in den letzten Jahren zu einem wichtigen Thema auf dem Gebiet der Optik. [32]
Dennoch ist dieses Konzept noch längst nicht zum Standard für optische Nahfeldmikroskope geworden. Ein großes Problem besteht darin, dass sich nicht jede Goldspitze gleichermaßen für den Einsatz als SNOM-Spitze eignet. Trotz nahezu identischem Aussehen, ähnlichem Öffnungswinkel und gleichem Herstellungsprozess durch chemisches Ätzen gibt es Unterschiede bei den Goldspitzen und der Abstrahlung von Oberflächenplasmonpolaritonen ins Fernfeld.
Eine mögliche Erklärung hierfür liegt in dem unterschiedlichen Verhalten der SPP-Eigenmoden der Spitze. Regt man Oberflächenplasmonpolaritonen an, indem man mit einem Laser auf ein Gitter auf einer Goldspitze leuchtet, werden verschiedene Moden angeregt. Welche Mode wie stark angeregt wird, hängt stark von der Einkopplung und der genauen Struktur der Spitze ab. Das Verständnis zur Propagation der Eigenmoden und deren Abstrahlung ins Fernfeld stellt also einen wichtigen Schritt zur Verbesserung des SNOM Aufbaus und zur Standardisierung des Konzepts der adiabatischen Nanofokussierung dar.

Um die Eigenmoden entlang einer Goldspitze im Rahmen der klassischen Elektrodynamik zu berechnen, teilt man die Goldspitze in infinitesimal kleine Ringe mit Radius R auf. Diese „Zerstückelung“ ist für das Konzept der adiabatischen Nanofokussierung zulässig, da angenommen werden kann, dass sich der Durchmesser einer konischen Goldspitze in der Größenordnung einer Wellenlänge nur leicht ändert [8].
Das Modenverhalten in den einzelnen Ringelementen kann nun in guter Näherung durch die Eigenmoden eines unendlich langen zylindrischen Stabes mit dem entsprechenden Radius beschrieben werden. Diese Drahtmoden sind bereits bekannt und zeigen eine Rotationssymmetrie im Bezug auf den Winkel φ in einem zylindrischen Koordinatensystem, bei dem die z-Achse entlang der Stabachse zeigt (Abb. 3.5(d)).
Die Feldverteilung lässt sich nach Formel (3.3) beschreiben. Dabei entspricht n einem quantisierten Drehimpuls.

$$\vec{E}(r, z, \varphi) = \vec{E}(r, z) \cdot \exp(in\varphi) \tag{3.3}$$

Die Ausbreitung dieser Drahtmoden lässt sich mit einer abgeleiteten Formel aus den

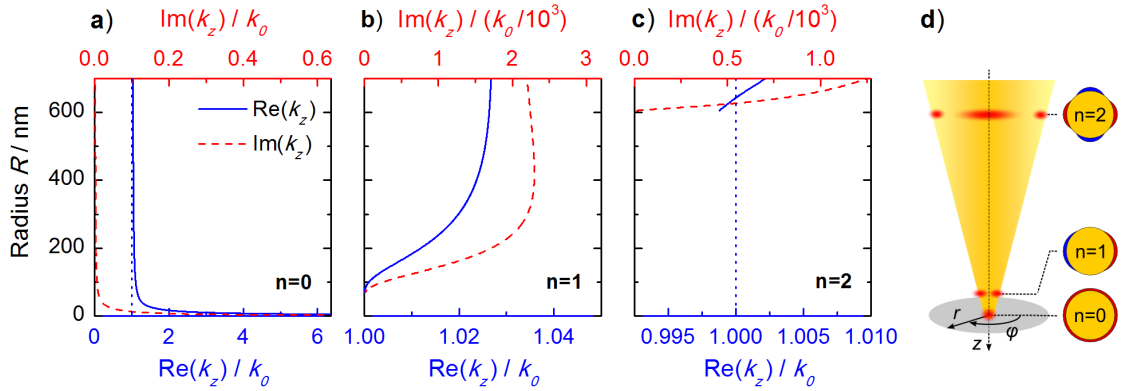

Abbildung 3.5: Berechnete Dispersionsrelation für einen unendlich langen Draht mit Durchmesser R. Aufgezeigt ist der Radius des Drahtes als Funktion des Wellenvektors k_z/k_0 für (a) die $n = 0$ Mode, (b) die $n = 1$ Mode und (c) die $n = 2$ Mode. $k_0 = \omega/c$ entspricht dem Wellenvektor einer ebenen Welle. (aus [33])

Maxwell-Gleichungen und den entsprechenden Randbedingen für eine Grenzfläche Metall-Dielektrikum berechnen. Man erhält so die Ausbreitungskonstante k_z in Abhängigkeit des Radius R, der dielektrischen Materialkonstante ϵ und der Frequenz der SPP-Mode.

Abbildung 3.5 zeigt die numerische Berechnung für diesen Ansatz. In den Experimenten wurde ein Titan-Saphir Laser benutzt, um Oberflächenplasmonpolaritonen anzuregen. Dementsprechend wurde für die Berechnung eine SPP-Frequenz für eine Vakuum-Wellenlänge von 800 nm verwendet. Die Berechnungen wurden für eine Goldspitze ($\epsilon_1 = -24.7470 + 1.8834i$) in Luft ($\epsilon_2 = 1$) durchgeführt. Aufgezeigt sind die Berechnungen für die ersten drei Eigenmoden.

Es zeigen sich große Unterschiede in der Ausbreitung dieser Moden.
Für $n = 0$ (Abb. 3.5(a)) geht sowohl $\mathrm{Re}(k_z)$ als auch $\mathrm{Im}(k_z)$ gegen unendlich, wenn R gegen 0 geht. Hier stellt sich das in 3.1.1 bereits beschriebene Verhalten dar, dass das SPP-Wellenpaket langsamer wird und am Spitzenapex in ein gebundenes, lokalisiertes Oberflächenplasmon (LSP) überführt wird. Das elektrische Feld kann hier als das Feld eines oszillierenden Punkt-Dipols angesehen werden, dessen Dipolachse entlang der Spitzenachse gerichtet ist. Somit erwartet man, dass das vom Spitzenapex abgestrahlte Feld die Rotationssymetrie der $n = 0$ Mode beibehält.

Für $n = 1$ hingegen nähert sich der Wert von $\mathrm{Re}(k_z)$ in den dargestellten Kurven in Abb. 3.5(b) dem Wert der Lichtlinie $k_0 = \frac{\omega}{c}$ an. Das bedeutet für einen Radius von $R \approx 70\,\mathrm{nm}$ ist die Mode nur noch schwach gebunden und kann ins Fernfeld abstrahlen. Für $n = 2$ zeigt sich ein ähnliches Verhalten. Hier findet eine direkte Abstrahlung der Drahtmode als elektromagnetische Welle bereits bei einem Radius von ca. $R = 600\,\mathrm{nm}$ statt.

Insgesamt tragen besonders die $n = 0$ und die $n = 1$ Mode zu einem Beitrag im Nahfeld der Spitze bei. Die $n = 2$ und höhere Moden strahlen bereits bei großen Radien ($R > 600\,\mathrm{nm}$) ab und können somit für die Betrachtung des Nahfeldes vernachlässigt werden. Der in einem SNOM-Aufbau für die Auflösung begrenzende Faktor ist somit die $n = 1$ Mode. Diese liefert einen unerwünschten optischen Hintergrund, wenn man die gestreuten Signale im Fernfeld betrachtet (vgl. Kapitel 3.1). Das eigentliche gewünschte Signal liefert die rotationssymmetrische und stark lokalisierte $n = 0$ Mode am Spitzenapex. Um die räumliche Auflösung also weiter zu verbessern ist es notwendig, die beiden ersten Eigenmoden zu identifizieren bzw. zu unterscheiden und die $n = 1$ Mode herauszufiltern.

3.3 Dipol-Modell zur Veranschaulichung der Eigenmoden

Um einen Eindruck von den an der Spitze erzeugten Feldern und deren Abstrahlung ins Fernfeld zu erhalten, wurde die Spitze durch viele einzelne Dipole modelliert und die Felder durch Addition der Dipolfelder berechnet.
Zunächst gilt für das elektrische Feld eines Dipols nach [34, S.395] der Zusammenhang

$$\vec{E}_{\text{Dipol}} = \frac{1}{4\pi\varepsilon_0}\frac{\omega^2}{c^2 r}\left[(\hat{\vec{r}}\times\vec{p})\times\hat{\vec{r}} + \left(\frac{1}{r^3} - \frac{i\omega}{cr^2}\right)\left[3\hat{\vec{r}}(\hat{\vec{r}}\cdot\vec{p}) - \vec{p}\right]\right] e^{i\omega r/c}. \tag{3.4}$$

$\vec{p}$ beschreibt das Dipolmoment, also die Orientierung des Dipols im Raum. Die Länge des Vektors beschreibt die Dipol-Stärke. $r = \sqrt{r_x^2 + r_y^2 + r_z^2}$ beschreibt den Betrag des Ortsvektors.
Der Betrag des Realteils des elektrischen Feldes eines in x-Richtung ausgerichteten Dipols ist in Abbildung 3.6(a) dargestellt. Hierbei wurde die Farbskala auf einen kleineren Ausschnitt begrenzt, da das Feld am Ort des Punktdipols divergiert und man dadurch die Abstrahlcharakteristik gar nicht auflösen kann. Wie erwartet, strahlt der Dipol senkrecht zur Dipol-Achse ins Fernfeld ab. Für kleine Abstände vom Dipolmittelpunkt sind außerdem Teile des Nahfeldes zu erkennen, welche hauptsächlich entlang der Dipol-Achse vorzufinden sind.
Abbildungen (b)-(d) zeigen die Abstrahlung einer Dipolkette, die mit einer ebenen elektromagnetische Welle $\vec{E} = \vec{E}_0 e^{i\vec{k}\vec{r}}$ mit dem Wellenvektor $\vec{k} = (k_x, k_y, 0)$ angeregt wird. Die Dipole sind auch hier in x-Richtung ausgerichtet und ausschließlich in der Ebene mit y=0 platziert. Durch den k-Vektor wird die feste Phasenbeziehung zwischen den einzelnen Dipolen beschrieben. Dafür wurde Gleichung (3.4) um einen Phasenfaktor erweitert:

$$\vec{E}_{\text{Dipol,neu}} = \vec{E}\cdot e^{ik_x x}. \tag{3.5}$$

x entspricht dem Ort des jeweiligen Dipols. Da alle Dipole in der z-Ebene mit $z = 0$ platziert sind, kann die z-Komponente des k-Vektors unbeachtet bleiben. Das E-Feld der entstandenen ebenen Welle zur Zeit $t = 0$ lässt sich nun ausdrücken als

$$\vec{E}(\vec{r}) = \vec{E}_0 e^{i\vec{k}\vec{r}} \tag{3.6}$$

mit $|\vec{k}| = \frac{2\pi}{\lambda} = \frac{\omega}{c} = \sqrt{k_x^2 + k_y^2}$. In Abbildung 3.6(b) ist $k_x = 0$, woraus $|\vec{k}| = k_y$ folgt. In Übereinstimmung mit der Abbildung erhält man eine ebene Welle in y-Richtung. Der Abstand zwischen den Wellenzügen beträgt gerade eine halbe Wellenlänge $\lambda/2 = 400\,\text{nm}$.

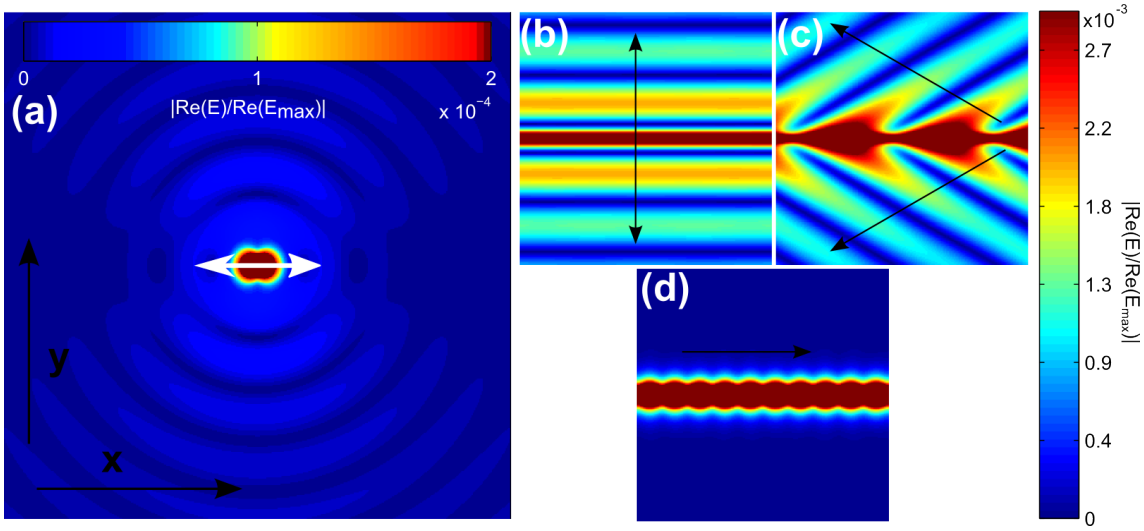

Abbildung 3.6: (a) Betrag des Realteils des elektrischen Feldes eines Dipols. Der gezeigt Bereich beträgt 2x2 µm^2. (b)-(d) zeigen das elektrische Feld für eine Kette von Dipolen in einem 1x1 µm^2 Bereich. Daraus ergibt sich die Abstrahlung von ebenen Wellen für (b) $k_x = 0$ und (c) $k_x < k_0 = \omega/c$. Mit (d) $k_x > k_0$ erhält man eine Welle in x-Richtung , welche in y-Richtung exponentiell abklingt.

Für $k_x \neq 0$ strahlt die ebene Welle unter einem Winkel ab. Das ist in Abbildung 3.6(c) für $k_x = 0.5k_0 = 0.5\frac{\omega}{c}$ aufgetragen. Für $k_x > k_0$ wird $k_y = \sqrt{k_0^2 - k_x^2}$ imaginär. Die Welle wird in y-Richtung gedämpft und bewegt sich als Oberflächenwelle entlang der x-Richtung.

Nachdem die berechneten Felder die erwarteten Ergebnisse widerspiegeln, kann nun die Spitze modelliert werden. Dazu wird die Spitze aus einzelnen Dipolen aufgebaut, bei denen die Dipolmomente $\vec{p}$ anhand der Spitzengeometrie ausgerichtet sind. Die Spitze wird komplett mit Dipolen gefüllt, wobei der Abstand zwischen zwei Dipolen in x-Richtung 50 nm und in y-Richtung 20 nm beträgt. Der Öffnungswinkel beträgt ca. 22°. Unter realen Bedingungen ist die Spitze aus Gold und die Felder der Oberflächenplasmonen fallen innerhalb des Metalls mit einer Skin-Tiefe von etwa 25 nm auf 1/e ihrer maximalen Feldstärke ab [30]. Um dieses ebenfalls in der Simulation zu berücksichtigen wurde das E-Feld für jeden Dipol vor der Addition der Felder mit $e^{-y \cdot 1/25\,\mathrm{nm}}$ multipliziert. Die in Kapitel 3.2 berechneten k-Vektoren für die $n = 0$ und die $n = 1$ Mode einer Goldspitze wurden für die Berechnung der Phasenbeziehung zwischen den Dipolen verwendet. Weiterhin wurde berücksichtigt, dass aufgrund der adiabatischen Nanofokussierung die Feldstärke am Spitzenapex stark zunimmt. Dafür wurde die Dipolstärke, also die Länge des Vektors $\vec{p}$,

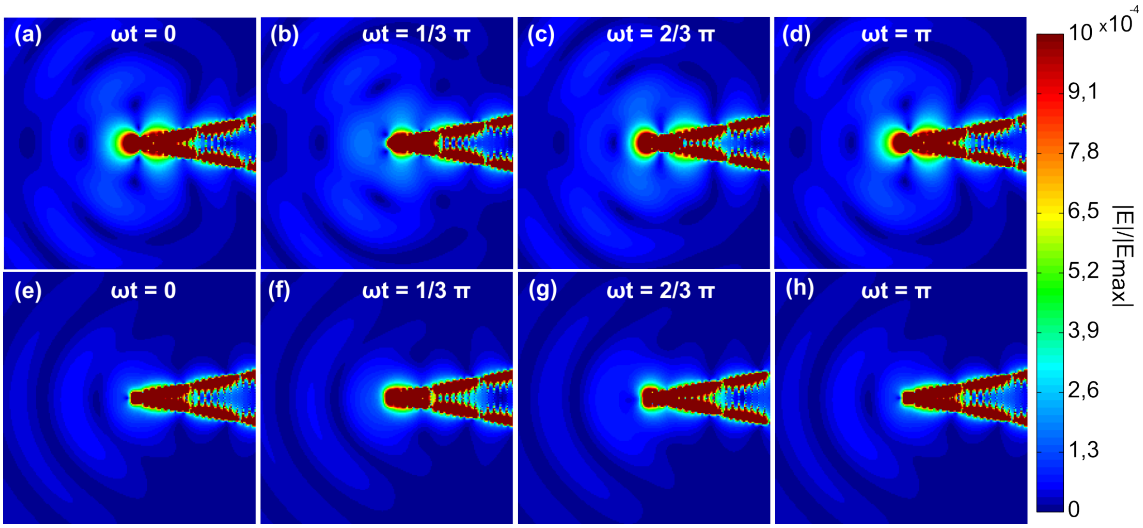

Abbildung 3.7: Betrag vom Realteil des elektrischen Feld für eine Goldspitze, welche durch Platzierung von Dipolen modelliert wird. (a)-(d) zeigen die Feldverteilung für verschiedene Zeitpunkte für die $n = 0$ Mode, (e)-(f) für die $n = 1$ Mode. Der gezeigte Ausschnitt hat eine Größe von 1x1 µm^2

für jeden Radius angepasst, sodass jede Schicht dR in der Summe die gleiche Feldstärke ergibt. Dadurch ist auch die Energieerhaltung erfüllt.
Abbildung 3.7 zeigt die Ergebnisse dieser Rechnungen.

Hier zeigt sich das bereits unter 3.2 beschriebene Verhalten, dass die $n = 0$ Mode eine am Spitzenapex lokalisierte Nahfeld-Abstrahlung erzeugt, während die $n = 1$ Mode schon früher ins Fernfeld abstrahlt. Es zeigt sich also, dass die Vorstellung der Spitze aus vielen Dipolen durchaus zu richtigen Ergebnissen führt und zu einem Verständnis der physikalischen Effekte herangezogen werden kann. Gerade bei der $n = 0$ Mode zeigt sich aber auch eine unerwartete Abstrahlung der Felder um den Spitzenapex herum. Hier zeigen sich die Grenzen des Modells.

Letztlich ist die durchgeführte Simulation also nur eine qualitative Präsentation des Modenverlaufs bzw. der Darstellung der Felder und sollte nur zur Veranschaulichung und zum Verständnis der physikalischen Vorgänge dienen. Es wurden möglichst viele physikalische Effekte einbezogen, wie die auftretende Dämpfung, die zuvor berechneten k-Vektoren und die Zunahme der Feldstärke am Spitzenapex. Trotzdem ist es nur ein Modell und kann nicht alles genau beschreiben. Zum Beispiel wurde vernachlässigt, dass die verschiedenen Dipole sich beeinflussen. Dadurch wird das Feld am Spitzenapex bei der $n = 1$ Mode nie ganz verschwinden. Weiterhin nimmt nicht nur die Feldstärke am Spitzenapex zu, sondern die

Wellenlänge der Oberflächenplasmonpolaritonen wird größer. Außerdem verlangsamen sich diese, je näher sie dem Ende der Spitze entgegenlaufen. Um diese Effekte optimal zu modellieren, wäre es nötig, die Gruppengeschwindigkeitsdispersion mit in die Berechnungen einzubeziehen. Weiterhin könnte man die Dipole noch enger beieinander setzen, am besten im Abstand der Ausdehnung eins Atoms. Das alles würde den Rechenaufwand jedoch enorm in die Höhe treiben und wäre kaum noch in angemessenem Zeitraum durchführbar. Daher sollte man für ein besseres Modell auf Techniken wie die Finite-Differenzen-Methode im Zeitbereich (FDTD) auf Grundlage der Maxwell-Gleichungen setzen. Diese Art der Berechnungen überschreitet jedoch den Rahmen dieser Arbeit. Aus diesem Grund wurde für ein grundlegendes Verständnis lediglich das Dipol-Modell herangezogen. Das FDTD-Modell wird in weiteren, zukünftigen Arbeiten angewandt werden.

3.4 Impulsraumabbildung der Eigenmoden von Goldspitzen

In den vorherigen Kapiteln wurde das Abstrahlverhalten der Eigenmoden einer scharfen Goldspitze im Rahmen der klassischen Elektrodynamik untersucht. Die folgenden Unterkapitel zeigen, wie sich die Abstrahlung der Eigenmoden experimentell durch Abbildungen im Impulsraum darstellen lassen.

3.4.1 Optische Fouriertransformation

In den Experimenten wurde ein sogenannter 4f-Aufbau verwendet, bei dem man mit Hilfe einer Anordnung von Linsen die k-Vektoren des Ortsfrequenzraums messen kann. Dieses Kapitel soll dazu dienen, das Prinzip der optischen Fouriertransformation durch eine Linse zu verstehen.

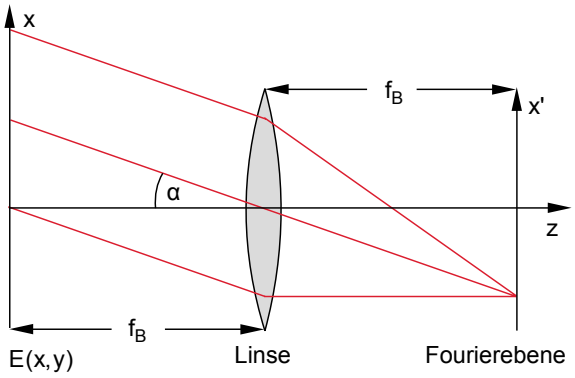

Abbildung 3.8: Prinzip einer Fourier-Linse. (aus [35])

Lässt man eine ebene Welle mit Wellenfronten senkrecht zur optischen Achse auf eine Linse propagieren, werden die Strahlen in einen Punkt im Abstand der Brennweite f auf der optischen Achse fokussiert.
Sind die Wellenfronten zur optischen Achse gekippt, der Wellenvektor also um einen Winkel α zur x-Achse bzw. einen Winkel β zur y-Achse geneigt, wird der Fokuspunkt zwar wieder in der Ebene $z = f_B$ abgebildet, die genauen Koordinaten in dieser Ebene hängen aber von den Winkeln α und β ab. Da die Linse in diesem Fall eine Fouriertransformation ausführt, wird die Ebene $z = f_B$ auch als Fourierebene bezeichnet. Man kann leicht zeigen, dass das E-Feld in dieser Ebene durch eine Fouriertransformation beschrieben werden kann [35]:

$$E(x', y') = A(x', y', f_B) \cdot \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} E(x, y) e^{-2\pi i(\nu_x x + \nu_y y)} dx dy. \tag{3.7}$$

$A(x', y', f_B)$ ist ein Phasenfaktor mit $|A| = 1$. ν_x und ν_y sind die Ortsraumfrequenzen, welche durch die Winkel α und β bestimmt werden:

$$\begin{aligned} \nu_x &= \frac{x'}{\lambda z} = f_B \frac{\tan\alpha}{\lambda z} \approx \frac{\alpha}{\lambda}, \\ \nu_y &= \frac{y'}{\lambda z} = f_B \frac{\tan\beta}{\lambda z} \approx \frac{\beta}{\lambda}, \end{aligned} \tag{3.8}$$

mit der Wellenlänge λ und $z = f_B$, sowie $\tan\alpha \approx \alpha$. Für den Fall, dass die Objektebene genau in der vorderen Brennebene liegt ($z_0 = -f_B$), hängt der Phasenfaktor A nicht mehr von den Koordinaten (x', y') der Fourierebene ab:

$$A(x', y', f_B) = e^{ikz} e^{(i\pi/\lambda z)(x'^2 + y'^2)} = e^{-ikf_b} e^{(i\pi f_B/\lambda)(\alpha^2+\beta^2)}. \tag{3.9}$$

Man erhält durch die Linse somit eine exakte zweidimensionale Fouriertransformation in die hintere Brennebene ($E(x', y') \propto \mathcal{F}[E(x, y)](x', y')$). Durch das Betragsquadrat von $E(x', y')$ erhält man schließlich die gemessene Intensität in der Beobachtungsebene:

$$I = |E(x', y')|^2 = |\mathcal{F}(E(x, y))|^2. \tag{3.10}$$

I ist unabhängig von A und ist dementsprechend für jede Ebene vor der Linse gültig.

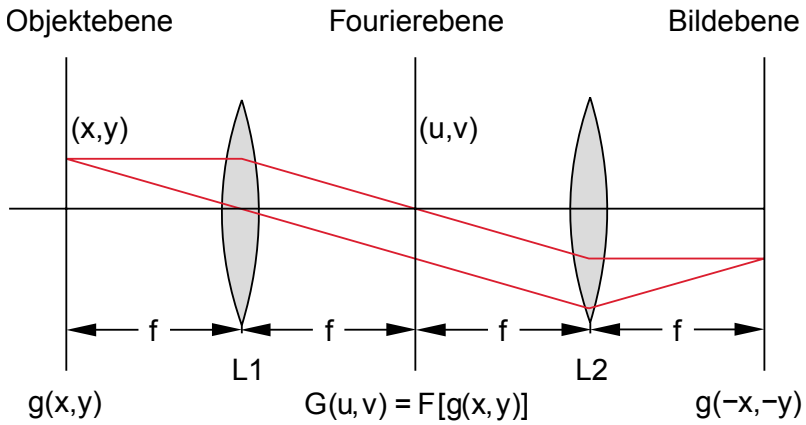

Abbildung 3.9: Typische 4f-Linsenanordnung zur Filterung im Impulsraum. (aus [35])

Eine Linse als Fouriertransformator kann in einer 4f-Linsen-Anordnung (vgl. Abbildung 3.9) weiterhin dazu genutzt werden das abzubildende Objekt optisch zu filtern. Dazu wird die erste Linse zur Fouriertransformation genutzt. Stellt man nun zum Beispiel eine enge Blende in der Fourierebene auf, kann man damit hohe Raumfrequenzen herausfiltern.

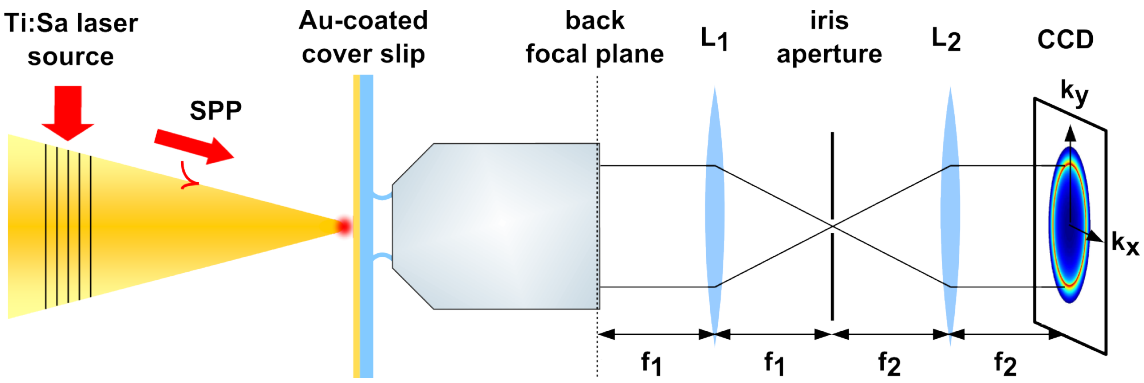

Abbildung 3.10: Experimentelle Realisierung des Aufbaus zur Impulsraumabbildung. (aus [33])

Durch eine zweite Linse, in deren Brennweite die Blende steht, wird die Fouriertransformation wieder rückgängig gemacht.

3.4.2 Experimenteller Aufbau

Um die Eigenmoden experimentell zu untersuchen, wurde ein Aufbau wie in Abbildung 3.10 verwendet. Mit diesem Aufbau lässt sich ein k-Raum Bild erzeugen. Hierbei wurde wieder eine mit einem Gitter versehene Goldspitze verwendet, um mit einem Titan-Saphir Laser der Wellenlänge $\lambda = 800\,\text{nm}$ Oberflächenplasmonpolaritonen anzuregen. Diese propagieren entlang des Spitzen-Schafts und laufen im Idealfall bis zum Spitzenapex. Durch Anbringung eines goldbeschichteten Deckglases in unmittelbarer Nähe der Spitze wird ein Teil der evaneszenten optischen Nahfelder in propagierende Fernfeldmoden umgewandelt. Der 20 nm dicke Goldfilm dient hier dazu, die Ausbeute an propagierenden Fernfeldmoden zu verbessern. Wie eine Abschätzung durch das Modell eines einzelnen Punkt-Dipols zeigt [36, Ch.10], kann die Ausbeute um einen Faktor 2 gesteigert werden. Außerdem sorgt der Goldfilm dafür, dass propagierende Wellen mit $k < k_0$ um 20% abgeschwächt werden, da sie nur durch Tunneleffekte durch den Goldfilm zum Detektor gelangen können.
Durch das Mikroskopobjektiv und den nachfolgenden 4f-Aufbau lässt sich eine winkelaufgelöste Messung im k-Raum durchführen. Genauer gilt, dass das Mikroskopobjektiv als Fourier-Linse dient. Anders als in Kapitel 3.4.1 erklärt, dient der nachfolgende 4f-Aufbau zur Filterung im Realraum. Dazu wird eine Iris-Blende im Fokus der Linse L_1 mit einer Brennweite $f_1 = 150\,\text{mm}$ verwendet. Hier wird hauptsächlich das am Gitter gestreute Licht und die abgestrahlten höheren Moden gefiltert. Danach wird das Realraum-Bild durch die zweite Linse L_2 mit einer Brennweite $f_2 = 100\,\text{mm}$ wieder in den Impulsraum transfor-

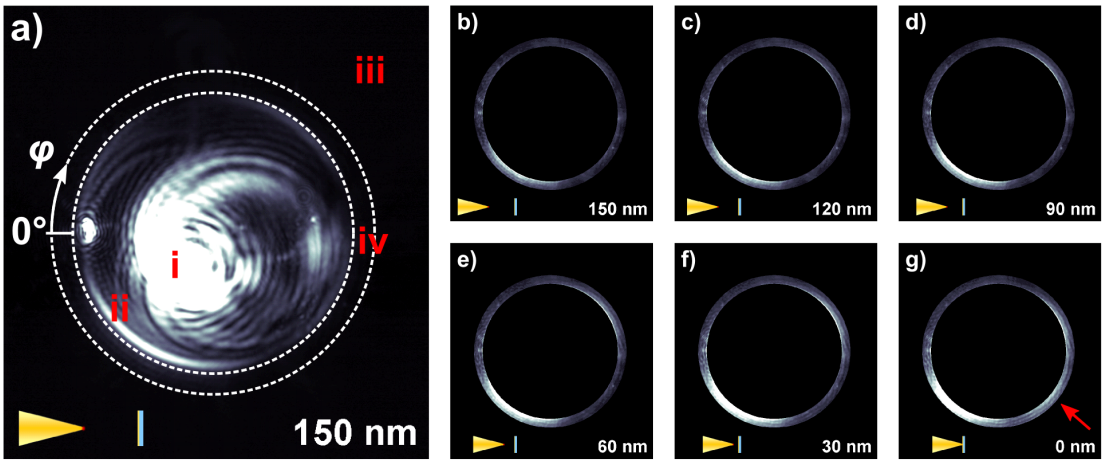

Abbildung 3.11: [Impulsraumabbildungen bei verschiedenen Abständen von Spitze und Probe eines SNOM-Aufbaus. (a) zeigt die Rohdaten, wobei der Bereich zwischen den gestrichelten Kreisen den für die Experimente wichtigen Bereich darstellt. (b)-(g) zeigen Abbildungen für unterschiedliche Abstände zur Probe. Zur besseren Übersicht wird hier nur der gestrichelte Bereich dargestellt, welcher zusätzlich umskaliert wurde (vgl. Text). (aus [33])

miert und mit einer CCD Kamera (Thorlabs DCC1545M-GL) erfasst.
Außerdem ist zwischen dem Deckglas und dem Mikroskopobjektiv ein Immersionsöl aufgetragen. Dieses dient dazu, den Bereich der emittierten Moden, die durch das Mikroskopobjektiv aufgesammelt werden, zu vergrößern. Die numerische Apertur wird somit vergrößert. Ohne Immersionsöl würden alle Lichtwellen mit einem Wellenvektor $k_{\|} > k_0 = \frac{\omega}{c}$ an der Grenzfläche von Deckglas zu Luft totalreflektiert. Aufgrund des Brechungsindexes von Luft ($n_{\text{Luft}} = 1$) kann in dem Fall maximal eine theoretische numerische Apertur von $NA = n\sin(\alpha) = 1$ erreicht werden. Das für diesen Aufbau verwendete Immersionsobjektiv (Olympus UPlan FLN 100x) hatte eine numerische Apertur von $NA = 1.3$. Dadurch können auch Wellenvektoren aus dem „verbotenen Bereich“ mit $k_{\|} > k_0$ detektiert werden.

3.4.3 Ergebnisse

Abbildung 3.11 zeigt die mit diesem Aufbau aufgenommenen Messdaten. Beginnend mit einem Abstand von 150 nm wurde die Spitze langsam an den Goldfilm herangefahren und für jeden Schritt das k-Raum-Bild auf der CCD Kamera aufgenommen. Die Abstandsregelung erfolgte dabei mit einer Quarz-Stimmgabel mit einer Resonanzfrequenz $f_{\text{res}} = 32{,}768\,\text{kHz}$

im AM-Tapping-Mode. Es wurde auf das Produkt von Amplitude und Kosinus der Phase geregelt. Abbildung 3.11(a) zeigt eine typische unbearbeitete Aufnahme bei 150 nm Abstand. Die Abbildung ist in vier Bereiche unterteilt:

- Die starke Intensität im Bereich i wird durch Fernfeld Abstrahlung mit Wellenvektoren $k_{\|} < k_0 = \omega/c_0$ verursacht. Diese kommt hauptsächlich durch Streuung vom Gitter und durch die Abstrahlung höherer Moden ins Fernfeld.
- Der Bereich ii, der ein ring-ähnliches Muster aufweist, wird durch k-Vektoren $k_{\|}$ verursacht, die etwas größer sind, als der Wellenvektor der ebenen Lichtwelle k_0. Dies ist mit einer ungewollten Abstrahlung von SPP-Wellenpaketen auf dem Goldfilm zu erklären.
- Der für die nachfolgenden Betrachtungen interessante Bereich ist der mit iv markierte Ring. Die Intensität in diesem Bereich kommt durch k-Vektoren mit $k_0 < k_{\|} < 1.3k_0$ zustande. Sämtliches Licht, was in diesem Bereich detektiert wird, kann nur durch evaneszente Felder am Spitzenapex kommen. Für Licht aus dem Fernfeld ist dies ein verbotener Bereich.
- Licht mit Wellenvektoren $k_{\|} > 1.3k_0$ kann mit dem verwendeten Immersionsobjektiv mit einer numerischen Apertur $NA = 1.3$ nicht eingesammelt werden und ist in der Abbildung als Bereich iii markiert.

Die nachfolgenden Abbildungen (b)-(g) zeigen nur noch den interessanten Bereich iv und wurden zur besseren Sichtbarkeit auf die Intensitäten in dem Kreissegment umskaliert. Es ist klar zu erkennen, dass sich die Intensitäten je nach Abstand zwischen Spitze und Goldfilm ändern. Besonders bemerkenswert ist der Anstieg der Intensität im direkten Nahfeld bei kleinem Abstand. Das ist in Abbildung 3.11(g) mit einem roten Pfeil markiert. Der hier aufleuchtende Bereich ist in keinem der vorherigen Bilder zu erkennen und zeigt, dass hier eine Intensität aufgezeichnet wurde, die nur in einem sehr kurzreichweitigen Bereich zu finden ist und dementsprechend sehr schnell abfällt.

Zur genaueren Auswertung der ermittelten Messdaten wurden die Intensität innerhalb des Kreissegments nun für jeden Winkel φ (vgl. Abb. 3.11(a)) entlang der radialen Koordinate integriert. Das wurde zusätzlich für jeden Schritt der Annäherung durchgeführt. Man erhält somit die Intensität als Funktion des Winkels φ und des Abstandes der Spitze zur Probe d. Das Ergebnis ist in Abbildung 3.12(a) aufgetragen. Um die Ergebnisse besser

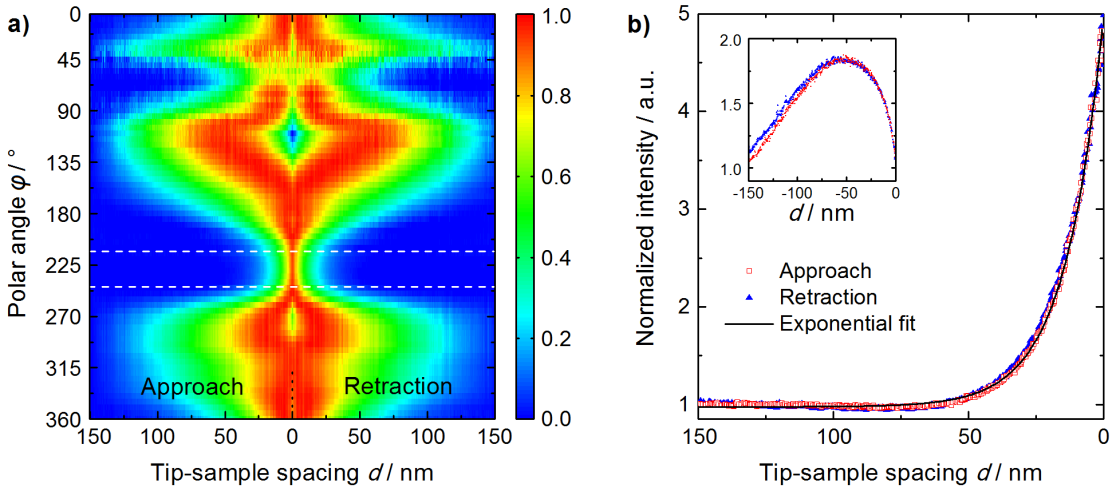

Abbildung 3.12: Quantitative Auswertung der Ergebnisse aus Abbildung 3.11. (a) zeigt die Intensitätsverteilung in Abhängigkeit des Winkels φ und des Abstandes zur Probe. Dazu wurden die Intensitäten innerhalb des Kreissegments radial aufintegriert. Die Werte wurden für jeden Winkel normiert. (b) zeigt die bezüglich des Winkels integrierten Daten zwischen den weißen Linien aus (a). Die Daten wurden bzgl. des Hintergrundes normiert. Durch den exponentiellen Fit durch die Daten wurde eine Abklinglänge von 14 nm ermittelt. Das eingelassene Bild zeigt die integrierten Daten für einen Winkel von etwa 110°. (aus [33])

deuten zu können, wurde hier zusätzlich für jede horizontale Linie, also jeden Winkel φ, der entsprechende Wert dieses Winkels für $d = 150\,\text{nm}$ abgezogen und die Linie auf ihr Maximum normiert.
Die Ergebnisse zeigen, dass es zwei ausgeprägte Strukturen bei 90°-180° und 270°-360° gibt, die an die Feldverteilung eines elektrischen Dipols erinnern. Weiterhin ist im Bereich um 225° eine Intensität zu sehen, welche sehr schnell abklingt. Das ist genau der Bereich, der in Abbildung 3.11(g) durch den roten Pfeil angedeutet wurde. Die Abklinglänge beträgt hier weniger als 30 nm. Zur genaueren Charakterisierung der Abklinglänge wurde der durch die gestrichelten Linien markierte Bereich für jeden Spitzen-Proben Abstand integriert. Das Ergebnis ist in Abbildung 3.12(b) gezeigt. Hierbei wurde der Offset bei $d = 150\,\text{nm}$ zur Normierung benutzt, sodass die y-Achse die relative Zunahme der Intensität im Vergleich zum Hintergrundsignal zeigt.
Die Abbildung zeigt eine Annäherungskurve mit exponentiellem Verhalten, bei der Hinweg und Rückweg sehr gut übereinstimmen. Ein exponentieller Fit durch die Daten liefert eine Abklinglänge von 14 nm.
Messungen an anderen Stellen auf dem Goldfilm zeigen ähnliche Ergebnisse. Das ist ein klares Zeichen dafür, dass die Ergebnisse tatsächlich die Abstrahleigenschaften der Goldspitze wiedergeben und die ungewollte Anregung und Abstrahlung von lokalisierten SPP-Wellenpaketen auf dem Goldfilm vernachlässigt werden kann.

3.4.4 Diskussion

Insgesamt zeigen die Daten sowohl das Verhalten der $n = 0$ als auch der $n = 1$ Eigenmode.
So wurde für die $n = 0$ Mode erwartet, dass sie bis zum Apex der Spitze läuft und dort rotationssymmetrisch abstrahlt. Die Abklinglänge dieser Mode wurde nach theoretischen Modellen auf eine Länge berechnet, welche etwas kleiner als der Spitzenapex-Radius ist. [37–39] Die in diesen Experimenten verwendeten Goldspitzen wurden nach der Herstellung mit einem Elektronenrastermikroskop vermessen und hatten Apex-Radien von 10-20 nm. Die gemessene Abklinglänge von 14 nm stimmt also sehr gut mit den theoretischen Vorhersagen überein.
Für die $n = 1$ Mode erwartet man eine Abstrahlcharakteristik eines in der Ebene liegenden Dipols, jedoch sollte dieser im Unterschied zur $n = 0$ Mode parallel zur Probe liegen. Man erwartet also in der Winkelverteilung die Abstrahlcharakteristik eines elektrischen Dipols mit zwei „Bäuchen“. Genau das ist in Abbildung 3.12(a) zu erkennen.

Weiterhin ist zu erwarten, dass Interferenz zwischen den Moden mit $n = 0$ und $n = 1$ in einem der „Bäuche“ zu einer konstruktiven Interferenz und in dem anderen zu einer destruktiven Interferenz führt. Denn die rotationssymmetrische $n = 0$ Mode sollte für alle Winkel gleichermaßen auftreten. Dadurch kommt es auch insgesamt zu einer asymmetrischen Intensitätsverteilung. Die Messung zeigt ebenfalls eine solche Asymmetrie, allerdings reicht die Intensität der Mode mit $n = 0$ nicht aus, um die Ergebnisse mit dieser Argumentation zu begründen. Vielmehr spielen weitere Effekte eine Rolle. Eine mögliche Ursache stellt die ungewollte Abstrahlung der SPP-Wellenpakete aus dem Goldfilm dar, welche hauptsächlich durch Streuung vom Gitter und Abstrahlung höherer Moden erzeugt werden. Wie man bereits in den Rohdaten in Abbildung 3.11(a) im Bereich ii sehen kann, zeigt sich auch hier eine asymmetrische Abstrahlung. Es ist möglich, dass ein Teil dieser Felder auch in dem Kreissegment (iv) vorhanden ist und sich in den k-Raum Bildern mit den Beiträgen der $n = 0$ und $n = 1$ Mode überlagert und so zu der vorhandenen Asymmetrie führt.

Neben der Asymmetrie in der Intensitätsverteilung zeigt Abbildung 3.12(a) ebenfalls eine verringerte Intensität bei $80° - 135°$ bzw. bei $\phi \approx 270°$ (vgl. die verkleinerte Abbildung in Abbildung 3.12(b)). Eine Ursache könnte in der asymmetrischen Bestrahlung des Gitters auf nur einer Seite der Spitze liegen. FDTD Simulationen deuten darauf hin [40], dass das Feld am Apex der Spitze nicht nur das Feld eines Dipols in Richtung der Achse der Spitze zeigt. Vielmehr wird ein leicht asymmetrisches Nahfeld vorausgesagt. Dadurch kommt es zur Ausbildung eines lateral orientierten Dipols, welcher für die verringerte Intensität verantwortlich gemacht werden kann.

Eine Analyse der Rohdaten aus Abbildung 3.12 (ohne Normierung) hat weiterhin gezeigt, dass die Intensität im Bereich um 225°, also hauptsächlich der Anteil der Mode mit $n = 0$, geringer ist, als die Intensität für die Mode mit $n = 1$. Das fällt ebenfalls bei Betrachtung von Abbildung 3.11(g) auf. Nachfolgende Berechnungen konnten jedoch zeigen, dass die relative Amplitude der beiden Moden bei Annäherung an die Probe ähnlich sind. Diese Beobachtung ist auf das Mikroskopobjektiv mit Immersionsöl zurückzuführen, denn es werden nur Impulsraumvektoren $k < 1.3k_0$ abgebildet. Die Imupulsraumverteilung der niedrigsten Mode enthält jedoch Anteile bei viel größeren k-Vektoren, als dies bei der $n = 1$ Mode der Fall ist [33]. Mit dem verwendeten Aufbau können diese Anteile jedoch nicht abgebildet werden.

Zusammenfassend spiegeln die Messungen die erwarteten theoretischen Zusammenhänge wieder. Im Nahfeld sind es hauptsächlich die rotationssymmetrische $n = 0$ Mode und die

$n = 1$ Mode, die einen Beitrag liefern. Diese konnte anhand ihrer erwarteten Winkelverteilung identifiziert werden. Höhere Moden tragen nicht zu dem für Licht aus dem Fernfeld verbotenen Teil im Impulsraum bei und strahlen schon viel früher ab.Die ermittelten Ergebnisse zeigen, dass es prinzipiell möglich ist, die n=1 und n=0 Mode zu unterscheiden bzw. zu filtern. Nutzt man dies aus, um in einem modifizierten SNOM-Aufbau auf das Signal der $n = 0$ Mode zu regeln, könnte die Auflösung um ein Vielfaches gesteigert werden. Vor allem sollte es dabei möglich sein das Signal zu Hintergrund Verhältnis noch stark zu verbessern, da das Signal der n=1 Mode im Impulsraum gefiltert werden könnte und gerade diese Mode für den größten Beitrag zum optischen Hintergrund sorgt. Ein mögliches Anwendungsfeld mit dieser neuen Methode der Impulsraumabbildung stellt beispielsweise die spektroskopische Untersuchung der Kopplung zwischen nanofokussierten Feldern und einzelnen Quantenobjekten dar (vgl. Kapitel 4).

4 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Masterarbeit wurden verschiedene Experimente und theoretische Überlegungen zur Verbesserung des bestehenden SNOM-Aufbaus dargelegt.
In einem ersten Teil wurden dabei Experimente zur Bestimmung des genauen Verhaltens der Schwingung einer Quarzstimmgabel als Abstandssensor für ein SNOM durchgeführt. So konnte mittels interferometrischer Messungen die Schwingungsmode der Stimmgabel bestimmt werden. Dabei wurde ein Wert für den Umrechnungsfaktor zwischen dem die Stimmgabel durchfließenden Strom und der Stimmgabelamplitude ermittelt. Durch Messung des thermischen Rauschens dieser Stimmgabel und anschließenden Berechnungen konnte dieser Wert überprüft und bestätigt werden. Weiterhin zeigte das Rauschspektrum, wie stark die Stimmgabel ohne angelegte Spannung und allein durch thermische Fluktuationen angeregt wird. Dieser Faktor limitiert letztlich die maximal mögliche Auflösung, die in einem AFM- oder SNOM-Aufbau mit einer Quarz-Stimmgabel als Abstandssensor erreicht werden kann.
Außerdem wurden erste Untersuchungen zur Abstandsregelung mittels der auftretenden Frequenzverschiebung im dynamischen AFM Modus durchgeführt. Anders als die bisher verwendete Abstandsregelung auf das Produkt von Amplitude und Kosinus der Phase, können in einem FM-AFM eindeutige Aussagen zu physikalischen Größen gemacht werden, ohne dabei eine Verringerung der Scangeschwindigkeit hinnehmen zu müssen.
In einem zweiten Teil wurde das Abstrahlverhalten der verschiedenen Moden bei dem auf adiabatischer Nanofokussierung basierenden sSNOM untersucht. Es wurde gezeigt, dass die niedrigste Mode ($n = 0$) maßgebend für die Bildgebung ist und eine Abklinglänge in der Größenordnung des Spitzenradius hat. Die Mode mit $n = 1$ sorgt für einen unerwünschten optischen Hintergrund. Mit der beschriebenen experimentellen Anordnung lassen sich die Moden im Impulsraum jedoch filtern. Dies könnte in Zukunft zu einem neuen sSNOM-Aufbau mit einer verbesserten Auflösung führen.
Das Modenverhalten konnte weiterhin mit Hilfe eines Dipolmodells aufgezeigt werden. Die durchgeführten Simulationen zeigen die elektrischen Felder an der Spitze und um die Spitze herum und veranschaulichen die berechneten Ergebnisse.

Als weiteres Projekt zur Modifizierung des SNOM-Aufbaus könnte die Verbesserung der Einkoppeleffizienz in die Mode mit $n = 0$ und damit die Verbesserung des Verhältnisses der Nahfeld-Intensität zum optischen Hintergrund stehen. Das ließe sich zum Beispiel mit

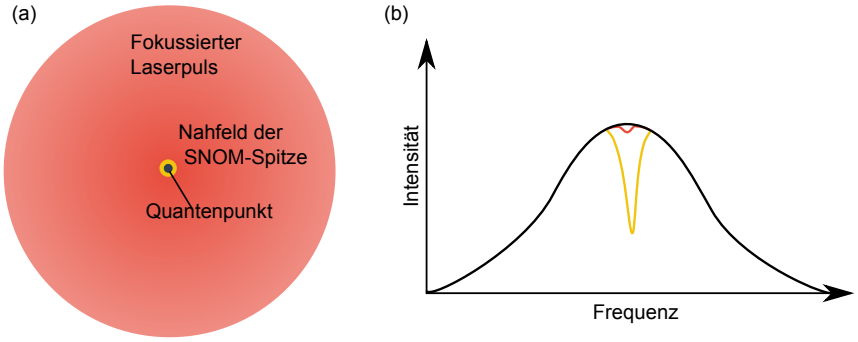

Abbildung 4.1: Größenvergleich bei spektroskopischer Untersuchung eines Quantenpunkts mit einem fokussierten Laserpuls und einem SNOM (a). (b) zeigt das Spektrum des Laserpulses (schwarz) und das Spektrum nach Absorption durch den Quantenpunkts bei Verwendung des SNOMs (gelb) und des fokussierten Laserpulses (rot) (vgl. Text).

einem deformierbaren und elektrisch ansteuerbarem Spiegel erreichen.

Außerdem könnte das verbesserte SNOM zur spektroskopischen Untersuchung der Kopplung zwischen nanofokussierten Feldern und einzelnen Quantenobjekten eingesetzt werden und stellt in dem Zusammenhang ein sehr mächtiges Werkzeug dar. So ist es mit bisherigen Methoden nur schwer möglich z.B. das Absorptionsspektrum eines einzelnen Quantenpunktes zu messen. Eine mögliche Vorgehensweise zur Aufnahme eines Absorptionsspektrums besteht darin, einen Laserpuls mit einem breiten Spektrum auf das zu untersuchende Objekt zu fokussieren und das Spektrum des transmittierten Lichts zu messen. Bei bekanntem Spektrum vor dem Objekt (schwarze Linie in Abbildung 4.1(b)) kann das Absorptionsspektrum leicht extrahiert werden. Bei einem Quantenpunkt besteht jedoch das Problem, dass dieser viel kleiner ist und einen viel kleineren Absorptionsquerschnitt hat als der Durchmesser des fokussierten Lasers. Abbildung 4.1(a) veranschaulicht schematisch die Größenverhältnisse.
Nach grober Abschätzung hat der Quantenpunkt dabei etwa einen Radius von 5 nm und einen Absorptionsquerschnitt von etwa $10^2\,\mathrm{nm}^2$, während der Radius des fokussierten Lasers ca. 200 nm beträgt. Es ergibt sich also ein Verhältnis des Absorptionsquerschnitts zur Fläche des Laserflecks von etwa $\frac{10^2\mathrm{nm}^2}{\pi 200\mathrm{nm}^2} \approx \frac{1}{1256}$. Es werden also nur relativ wenige Photonen aus der gesamten Anzahl aller Photonen absorbiert. Dadurch lässt sich das Absorptionsspektrum nur schlecht abbilden. Das ist schematisch durch die rote Kurve im Spektrum in Abbildung 4.1(b) dargestellt. Dabei müsste der Einbruch in der Intensität durch Absorption noch viel geringer sein und ist nur zur Visualisierung in dem Maße einge-

zeichnet. Unter realen Bedingungen würde das Absorptionsspektrum nahezu im Rauschen untergehen.

Benutzt man jetzt das auf dem Konzept der adiabatischen Nanofokussierung basierende SNOM und fokussiert einen Laserpuls mit einem breiten Spektrum auf das Gitter der Spitze ein, sollte es genauso möglich sein das Spektrum hinter dem Quantenpunkt zu messen. Der Vorteil besteht jetzt jedoch darin, dass der Durchmesser vom Spitzenapex nur ca. doppelt so groß ist wie der des Quantenpunkts. Dadurch ergibt sich ein Verhältnis von Absorptionsquerschnitt zur Fläche der Bestrahlung von etwa $\frac{1}{\pi}$. Hiermit ließe sich das Absorptionsspektrum viel besser abbilden, denn die relative Anzahl an Photonen innerhalb des Absorptionsquerschnitts ist jetzt um etwa zwei Größenordnungen größer gegenüber dem fokussierten Laser (vgl. gelbe Linie in Abbildung 4.1(b)). Mit einem normalen sSNOM wäre eine solche Messung ebenfalls nur schwer zu realisieren, da auch hier ein großer Teil der Probe beleuchtet wird und somit Modulations- und Demodulationstechniken eingesetzt werden müssten. In dem Fall ist die Verwendung von kurzen Laserpulsen in Verbindung mit dem direkten Auslesen des Spektrum z.B. mittels eines Multi-Kanal-Spektrometers nicht ohne weiteres möglich.
Mit dem SNOM auf Grundlage der adiabatischen Nanofokussierung sind somit Messungen möglich, die mit bisherigen Geräten nicht oder nur mit großem technischen Aufwand zu realisieren sind.

A Anhang

A.1 Mikroskopbilder der Stimmgabelzinke

Die folgenden Bilder wurden mit einem Carl-Zeiss Mikroskop (Axio Observer A1m) aufgenommen.

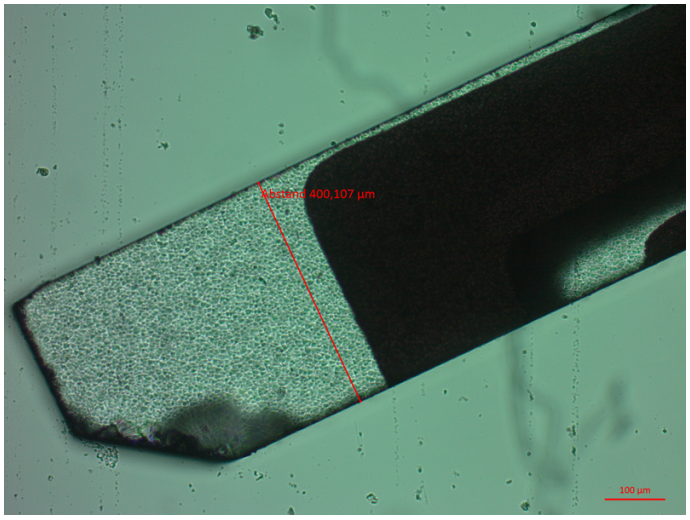

Abbildung A.1: Mikroskopbild Stimmgabelzinke Länge

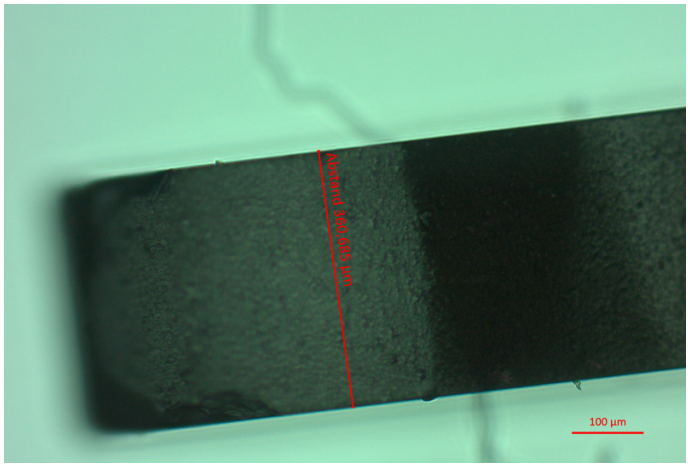

Abbildung A.2: Mikroskopbild Stimmgabelzinke Breite

A.2 Herleitungen

Gedämpfter harmonischer Oszillator

Die Differentialgleichung:

$$\frac{d^2}{dt^2} z\left(t\right) + \frac{\omega_0 \frac{d}{dt} z\left(t\right)}{Q} + {\omega_0}^2 z\left(t\right) - A_{Anregung} {\omega_0}^2 \cos\left(\omega\, t\right) = 0 \tag{A.1}$$

Der Lösungsansatz für den stationären Zustand hat folgende Form:

$$z(t) = A_0 \cos(\omega t - \phi) \tag{A.2}$$

Nach Einsetzen in die DGL liefert das:

$$-A_0 \cos\left(\omega\, t + \phi\right) \omega^2 - \frac{\omega_0 A_0 \sin\left(\omega\, t + \phi\right) \omega}{Q} + {\omega_0}^2 A_0 \cos\left(\omega\, t + \phi\right) - A_{Anregung} {\omega_0}^2 \cos\left(\omega\, t\right) = 0 \tag{A.3}$$

Mithilfe der Additionstheoreme

$$\begin{aligned} \sin(\omega \pm \phi) &= \sin\omega\ \cos\phi \pm \sin\phi\ \cos\omega \\ \cos(\omega \pm \phi) &= \cos\omega\ \cos\phi \mp \sin\omega\ \sin\phi \end{aligned} \tag{A.4}$$

lässt sich Gleichung (A.3) schreiben als :

$$C_1 \cos(\omega t) + C_2 \sin(\omega t) = 0 \tag{A.5}$$

mit

$$\begin{aligned} C_1 &= -A_0 \omega^2 \cos\left(\phi\right) - \frac{\omega_0 A_0 \omega\ \sin\left(\phi\right)}{Q} + {\omega_0}^2 A_0 \cos\left(\phi\right) - A_{Anregung} {\omega_0}^2 \\ C_2 &= A_0 \omega^2 \sin\left(\phi\right) - \frac{\omega_0 A_0 \omega\ \cos\left(\phi\right)}{Q} - {\omega_0}^2 A_0 \sin\left(\phi\right) \end{aligned} \tag{A.6}$$

Die Gleichung soll für jede Zeit t gelten. Damit folgt, dass beide Koeffizienten 0 sein müssen.
Aus $C_2 = 0$ erhält man die Phasenverschiebung zwischen Oszillator und der treibenden Kraft:

$$\tan(\phi) = \frac{\omega_0 \omega}{Q} \frac{1}{\omega^2 - \omega_0^2} \tag{A.7}$$

bzw.

$$\phi = \arctan\left(\frac{\omega_0\omega}{Q}\frac{1}{\omega^2-\omega_0^2}\right) \tag{A.8}$$

Lösen von $C_1 = 0$ und Verwendung der soeben berechneten Phase ergibt schließlich:

$$|A_d(\omega)| = \frac{A\omega_0^2 Q}{\sqrt{(\omega_0^2-\omega^2)^2Q^2+\omega_0^2\omega^2}} \tag{A.9}$$

A.3 Matlab-Code

Interferometer

Code zur Ansteuerung des Interferometers. „Board“, „Stage“ etc. sind Objekte der jeweiligen Klassen zur Ansteuerung der Geräte. Diese wurde im Rahmen der Masterarbeit programmiert und befinden sich auf der beiliegenden CD.

```
%% Interferometer
%% Initialize AttoCube Stage + Move to 0
devicenumber=0;
stage = AttocubeECC(devicenumber); %Create object for AttoCube-Stage

ret = stage.init(); %Check for Devices, Connect, Set Axis = First Axis Availabe
if(ret~=1), error('Something went wrong. Check connections.'),end

stage.setOutput(1); %Enable Output
stage.setTargetPosition(0);
stage.setMoveStatus(1); %Enable Move Status + move to Target Position

%% Initialize DT Card
Board = DTOL(); %Create Object for the Data Translation Card
Board.init();
Board.addAiChannel(3:5); %PD, Lockin1 , Lockin2 (Resonance Curve)
%Sample Rate etc
set(Board.aiDevice,'SampleRate',1e3)

%% Resonance Curve
FG = Function_Generator_TTi_TG1010A('COM13'); %Create Object for the function generator
FG.init();
FG.setVoltagePP(0.04);
FG.setFrequency(32768);
FG.setOutput('ON');
resonanz = Resonance_Curve(FG,Board.aiChannels(3));

%% Interferometer
%Measure Resonance Curve and set Frequency
[f_measure, dt_value] = resonanz.startMeasurement(32730,32760,0.2);
pause(0.3);
max_val = find(max(dt_value)==dt_value);
FG.setFrequency(f_measure(max_val));
pause(0.5);
```

```
% Start Moving Stage + measure DT Signals
waitbar();
for i=0:900
    stage.setTargetPosition(i); %Move Stage
    pause(0.04)
    position(i+1)=i;
    pd_signal(i+1)      = Board.aiChannels(1).getValue(true);
    lockin_signal(i+1) = Board.aiChannels(2).getValue(true);
    waitbar(i/900);
end

%PLOT
figure(2);
plot(position,pd_signal,'.'); xlabel('Position / nm');ylabel('PD Signal / V');
figure(3)
plot(position,lockin_signal); xlabel('Position / nm');ylabel('Dem. PD Signal / V');

% SAVE
n = input('Save to number #');
save(['lockin',num2str(n),'.mat'],'pd_signal','position','lockin_signal');
save(['resonanz',num2str(n),'.mat'],'dt_value','f_measure');
```

Literaturverzeichnis

[1] Hecht, B. , Sick, B. , Wild, U. P. , Deckert, V. , Zenobi, R. , Martin, O. J. F. , Pohl, D. W.: Scanning near-field optical microscopy with aperture probes: Fundamentals and applications. In: *The Journal of Chemical Physics* 112 (2000), Nr. 18, S. 7761–7774

[2] Keilmann, F. : Scattering-type near-field optical microscopy. In: *Journal of Electron Microscopy* 53 (2004), Nr. 2, S. 187–192

[3] Brehm, M. , Frey, H. G. , Guckenberger, R. , Hillenbrand, R. , Kazantsev, D. , Keilmann, F. , Ocelic, N. , Taubner, . T.: Consolidating Apertureless SNOM. In: *Journal of the Korean Physical Society* 47 (2005), Aug, S. 80–85

[4] Binnig, G. , Quate, C. F. , Gerber, C. : Atomic force microscope. In: *Physical review letters* 56 (1986), Nr. 9, S. 930

[5] Hell, S. W. , Wichmann, J. : Breaking the diffraction resolution limit by stimulated emission: stimulated-emission-depletion fluorescence microscopy. In: *Opt. Lett.* 19 (1994), Jun, Nr. 11, S. 780–782

[6] Klar, T. A. , Jakobs, S. , Dyba, M. , Egner, A. , Hell, S. W.: Fluorescence microscopy with diffraction resolution barrier broken by stimulated emission. In: *Proceedings of the National Academy of Sciences* 97 (2000), Nr. 15, S. 8206–8210

[7] Sadiq, D. , Shirdel, J. , Lee, J. S. , Selishcheva, E. , Park, N. , Lienau, C. : Adiabatic Nanofocusing Scattering-Type Optical Nanoscopy of Individual Gold Nanoparticles. In: *Nano Letters* 11 (2011), April, Nr. 4, S. 1609–1613

[8] Stockman, M. : Nanofocusing of Optical Energy in Tapered Plasmonic Waveguides. In: *Physical Review Letters* 93 (2004), September, Nr. 13

[9] Babadjanyan, A. J. , Margaryan, N. L. , Nerkararyan, K. V.: Superfocusing of surface polaritons in the conical structure. In: *Journal of Applied Physics* 87 (2000), Nr. 8, S. 3785–3788

[10] Schmidt, S. , Piglosiewicz, B. , Sadiq, D. , Shirdel, J. , Lee, J. S. , Vasa, P. , Park, N. , Kim, D.-S. , Lienau, C. : Adiabatic Nanofocusing on Ultrasmooth

Single-Crystalline Gold Tapers Creates a 10-nm-Sized Light Source with Few-Cycle Time Resolution. In: *ACS Nano* 6 (2012), Juli, Nr. 7, S. 6040–6048

[11] Uchihashi, T. , Higgins, M. J. , Yasuda, S. , Jarvis, S. P. , Akita, S. , Nakayama, Y. , Sader, J. E.: Quantitative force measurements in liquid using frequency modulation atomic force microscopy. In: *Applied physics letters* 85 (2004), Nr. 16, S. 3575–3577

[12] Sader, J. E. , Uchihashi, T. , Higgins, M. J. , Farrell, A. , Nakayama, Y. , Jarvis, S. P.: Quantitative force measurements using frequency modulation atomic force microscopy—theoretical foundations. In: *Nanotechnology* 16 (2005), März, Nr. 3, S. S94

[13] Bhushan, B. : Dynamic Modes of Atomic Force Microscopy. In: *Springer Handbook of Nanotechnology.* Springer Science+Business Media, Incorporated, 2007. – ISBN 9783540298571, S. 737–765

[14] Jalili, N. , Laxminarayana, K. : A review of atomic force microscopy imaging systems: application to molecular metrology and biological sciences. In: *Mechatronics* 14 (2004), Nr. 8, S. 907 – 945

[15] Seo, Y. , Jhe, W. : Atomic force microscopy and spectroscopy. In: *Reports on Progress in Physics* 71 (2008), Nr. 1, S. 016101

[16] Giessibl, F. J.: Advances in atomic force microscopy. In: *Rev. Mod. Phys.* 75 (2003), Jul, S. 949–983

[17] Bradley, D. I. , Crookston, P. , Fear, M. J. , Fisher, S. N. , Foulds, G. , Garg, D. , Guénault, A. M. , Guise, E. , Haley, R. P. , Kolosov, O. , Pickett, G. R. , Schanen, R. , Tsepelin, V. : Measuring the Prong Velocity of Quartz Tuning Forks Used to Probe Quantum Fluids. In: *Journal of Low Temperature Physics* 161 (2010), Oktober, Nr. 5-6, S. 536–547

[18] Qin, Y. , Reifenberger, R. : Calibrating a tuning fork for use as a scanning probe microscope force sensor. In: *Review of Scientific Instruments* 78 (2007), Nr. 6, S. 063704

[19] Wastl, D. S. , Weymouth, A. J. , Giessibl, F. J.: Optimizing atomic resolution of force microscopy in ambient conditions. In: *Physical Review B* 87 (2013), Juni, Nr. 24

[20] Giessibl, F. J.: Atomic resolution on Si(111)-(7x7) by noncontact atomic force microscopy with a force sensor based on a quartz tuning fork. In: *Applied Physics Letters* 76 (2000), Nr. 11, S. 1470

[21] Giessibl, F. : *Progress in atomic force microscopy.* November 2000. – (Habitilationsschrift)

[22] Albrecht, T. R. , Grütter, P. , Horne, D. , Rugar, D. : Frequency modulation detection using high-Q cantilevers for enhanced force microscope sensitivity. In: *Journal of Applied Physics* 69 (1991), Nr. 2, S. 668

[23] Engineers Edge: *Structural Beam Bending Equations / Calculation Cantilevered Beam with Uniform Load.* http://www.engineersedge.com/beam_bending/beam_bending8.htm. – [Online; Stand 1. September 2013]

[24] Karrai, K. : Lecture notes on shear and friction force detection with quartz tuning forks. In: *Work presented at the "Ecole Thématique du CNRS" on near-field optics* (2000). http://www.nano.physik.uni-muenchen.de/publikationen/Preprints/p-00-03_Karrai.pdf

[25] Grober, R. D. , Acimovic, J. , Schuck, J. , Hessman, D. , Kindlemann, P. J. , Hespanha, J. , Morse, A. S. , Karrai, K. , Tiemann, I. , Manus, S. : Fundamental limits to force detection using quartz tuning forks. In: *Review of Scientific Instruments* 71 (2000), Nr. 7, S. 2776

[26] Ichimura, T. , Fujii, S. , Verma, P. , Yano, T. , Inouye, Y. , Kawata, S. : Subnanometric Near-Field Raman Investigation in the Vicinity of a Metallic Nanostructure. In: *Phys. Rev. Lett.* 102 (2009), May, S. 186101

[27] Willets, K. , Van Duyne, R. : Localized Surface Plasmon Resonance Spectroscopy and Sensing. In: *Annual Review of Physical Chemistry* 58 (2007), S. 267–297

[28] Kegel, W. : *Plasmaphysik.* Springer Verlag, 1998

[29] Mendach, S. , Bröll, M. : *Oberflächenplasmonen.* Fortgeschrittenen Praktikum im Institut f¨ur Angewandte Physik der Universit¨at Hamburg, 2008. – [Online; Stand 1. September 2013]

[30] In: Muiño, R. D. , Krasovskii, E. E. , Schattke, W. , Lienau, C. , Petek, H. : *Electromagnetic Interactions with Solids.* Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2012, S. 181–237

[31] Ropers, C. , Neacsu, C. C. , Elsaesser, T. , Albrecht, M. , Raschke, M. B. , Lienau, C. : Grating-Coupling of Surface Plasmons onto Metallic Tips. In: *Nano Letters* 7 (2007), September, Nr. 9, S. 2784–2788

[32] Gramotnev, D. K. , Bozhevolnyi, S. I.: Plasmonics beyond the diffraction limit. In: *Nature Photonics* 4 (2010), Januar, Nr. 2, S. 83–91. – ISSN 1749–4885, 1749–4893

[33] Esmann, M. , Becker, S. F. , Cunha, B. B. , Brauer, J. H. , Vogelgesang, R. , Gross, P. , Lienau, C. : k-space Imaging of the Eigenmodes of Sharp Gold Tapers for Scanning Near-Field Optical Microscopy. In: *Beilstein Journal of Nanotechnology* (2013). – (angenommen, Vordruck unter arXiv:1304.6060)

[34] Jackson, J. : *Classical Electrodynamics 2nd Edition.* Wiley, 1975

[35] Demtröder, W. : *Experimentalphysik 2:.* Springer, 2008 (Experimentalphysik / Wolfgang Demtröder). – ISBN 9783540682196

[36] Novotny, L. , Hecht, B. : *Principles of Nano-Optics.* Cambridge University Press, 2006 (Principles of Nano-optics)

[37] Esteban, R. , Vogelgesang, R. , Kern, K. : Tip-substrate interaction in optical near-field microscopy. In: *Phys. Rev. B* 75 (2007), May, S. 195410

[38] Behr, N. , Raschke, M. B.: Optical Antenna Properties of Scanning Probe Tips: Plasmonic Light Scattering, Tip-Sample Coupling, and Near-Field Enhancement. In: *The Journal of Physical Chemistry C* 112 (2008), Nr. 10, S. 3766–3773

[39] Park, D. J. , Piglosiewicz, B. , Schmidt, S. , Kollmann, H. , Mascheck, M. , Gross, P. , Lienau, C. : Characterizing the optical near-field in the vicinity of a sharp metallic nanoprobe by angle-resolved electron kinetic energy spectroscopy. In: *Annalen der Physik* 525 (2013), Nr. 1-2, S. 135–142

[40] Lee, J. S. , Han, S. , Shirdel, J. , Koo, S. , Sadiq, D. , Lienau, C. , Park, N. : Superfocusing of electric or magnetic fields using conical metal tips: effect of mode symmetry on the plasmon excitation method. In: *Opt. Express* 19 (2011), Jun, Nr. 13, S. 12342–12347

Danksagung

Hiermit möchte ich mich herzlich bedanken bei

Prof. Dr. Christoph Lienau für die Bereitstellung eines spannenden Themas als Masterarbeit und für die hilfreichen Diskussionen die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben

Dr. Petra Groß für die vielen guten Tipps und dafür dass sie sich als Zweitprüferin zur Verfügung gestellt hat

Simon Becker und Martin Esmann für die tolle Zusammenarbeit und die stets hilfreiche Unterstützung

Jan Vogelsang für die Mitarbeit an dem Matlab-Projekt zur Ansteuerung der Geräte im Labor

Dr. Ralf Vogelgesang für Ratschläge und Hilfestellungen

Raimond Angermann für die Unterstützung bei technischen Fragen und insbesondere bei der Anfertigung/Bestellung von neuen Komponenten für die Aufbauten im Labor

der Arbeitsgruppe UNO für die nette Atmosphäre

meinen Eltern für die Unterstützung während des ganzen Studiums.

Abschließende Erklärung

Hiermit versichere ich, dass ich diese Arbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe. Außerdem versichere ich, dass ich die allgemeinen Prinzipien wissenschaftlicher Arbeit und Veröffentlichung, wie sie in den Leitlinien guter wissenschaftlicher Praxis der Carl von Ossietzky Universität Oldenburg festgelegt sind, befolgt habe.

Oldenburg, den 16. September 2013 Jens Brauer