



(19)
Bundesrepublik Deutschland
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 197 14 346 B4 2006.01.05**

(12)

Patentschrift

(21) Aktenzeichen: **197 14 346.6**
 (22) Anmeldetag: **26.03.1997**
 (43) Offenlegungstag: **01.10.1998**
 (45) Veröffentlichungstag
 der Patenterteilung: **05.01.2006**

(51) Int Cl.⁸: **G01N 13/14 (2006.01)**
H01J 37/28 (2006.01)
H01J 37/20 (2006.01)
G12B 5/00 (2006.01)

Innerhalb von drei Monaten nach Veröffentlichung der Patenterteilung kann nach § 59 Patentgesetz gegen das Patent Einspruch erhoben werden. Der Einspruch ist schriftlich zu erklären und zu begründen. Innerhalb der Einspruchsfrist ist eine Einspruchsgebühr in Höhe von 200 Euro zu entrichten (§ 6 Patentkostengesetz in Verbindung mit der Anlage zu § 2 Abs. 2 Patentkostengesetz).

(73) Patentinhaber:
Forschungsverbund Berlin e.V., 12489 Berlin, DE

(74) Vertreter:
Anwaltskanzlei Gulde Hengelhaupt Ziebig & Schneider, 10179 Berlin

(72) Erfinder:
Lienau, Christoph, Dr., 12355 Berlin, DE; Behme, Gerd, 12437 Berlin, DE; Richter, Alexander, 15732 Eichwalde, DE; Süptitz, Marko, 12527 Berlin, DE; Elsässer, Thomas, Prof. Dr., 12355 Berlin, DE

(56) Für die Beurteilung der Patentfähigkeit in Betracht gezogene Druckschriften:
DE 30 34 857 A1
CH 6 40 980 A5
FR 13 23 336
US 54 73 157
Lang, C.A.: Low-temperature ultrahigh-vacuum STM.
In: Rev. Sci. Instr. 60 (10), (1989), S. 3109-12;
IKEDA, K.: A low-temperature ultrahigh-vacuum STM system. in: Rev. Sci. Instr. 64 (8) (1993), S. 2221-24;

(54) Bezeichnung: **Verfahren und Vorrichtung zur optischen Mikroskopie mit Subwellenlängenauflösung mittels eines Tieftemperatur-Nahfeldmikroskops**

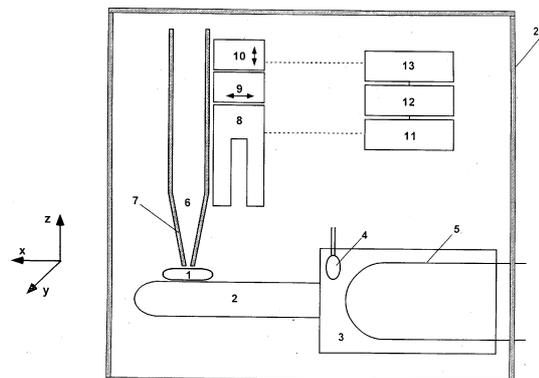
(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft ein Verfahren und eine Vorrichtung zur optischen Mikroskopie mit Subwellenlängenauflösung mittels eines Tieftemperatur-Nahfeldmikroskops unter Einsatz von Kältemitteln und Verwendung einer Nahfeldsonde.

Vorgeschlagen wird ein Verfahren, bei dem
 - die sich im Vakuum in thermischen Kontakt mit einem Kühlfinger befindliche Probe indirekt mittels des Kühlfingers, ohne direkten Kontakt der Probenoberfläche zu dem Kältemittel, abgekühlt wird und/oder

- mittels einer Gegenheizung bei weiterhin aktiver indirekter oder abgestellter Kühlung eine Temperatur der Probe im Bereich zwischen 5 und 500 Kelvin eingestellt wird, nachfolgend

- die temperierte Probe mit Licht beaufschlagt und
 - das durch die Probe transmittierte und/oder von der Probe reflektierte und/oder emittierte Licht erfasst und ausgewertet wird.

Bei einer entsprechenden Vorrichtung ist die zu untersuchende Probe (1) in einer Vakuumkammer (25) auf einem Probenhalter (2) in unmittelbarer Nähe der Nahfeldsonde (6) angeordnet und der Probenhalter (2) mit einem Wärmetauscher, bestehend aus Kühlfinger (3) und Gegenheizung (5), mechanisch und thermisch verbunden (Fig. 1).



Beschreibung

[0001] Die Erfindung betrifft ein Verfahren und eine Vorrichtung zur optischen Mikroskopie mit Subwellenlängenauflösung mittels eines Tieftemperatur-Nahfeldmikroskops unter Einsatz von Kältemitteln und Verwendung einer Nahfeldsonde. Die Mikroskopie erfolgt im Hochvakuum bei Proben Temperaturen zwischen 5 und 500 Kelvin und ist anwendbar insbesondere zur optischen Untersuchung und Charakterisierung von Nanostrukturen.

[0002] Die optische Mikroskopie ist eine Standardtechnik zur spektroskopischen Charakterisierung von biologischen, chemischen und physikalischen Substanzen. Die mit konventionellen optischen Mikroskopen erreichbare räumliche Auflösung wird durch Beugungseffekte begrenzt auf $\lambda/(2 \cdot \text{N.A.})$, wobei λ die Wellenlänge des das Objekt beleuchtenden Lichtes und N.A. die numerische Apertur des verwendeten Mikroskopobjektivs ist. Bei Raumtemperatur und unter Atmosphärendruck können hoch vergrößernde Immersionsobjektive mit einer numerischen Apertur von typ. 1.4 verwendet werden, so daß sich für eine Lichtwellenlänge von 800 nm eine Auflösung von ca. 300 nm ergibt. Soll eine Probe bei tiefen Temperaturen oder im Vakuum untersucht werden, so verringert sich die numerische Apertur der einsetzbaren Objektive deutlich und es werden bestenfalls Auflösungen von 500 nm erreicht. Typische mit kommerziellen Mikroskopen erreichbare Auflösungen liegen bei ca. 1 μm . Soll diese beugungsbegrenzte Auflösung unterschritten werden, so bietet sich neben, unter bestimmten Bedingungen einsetzbaren, nichtlinear-optischen Mikroskopietechniken insbesondere die Technik der optischen Nahfeldmikroskopie an. Hierbei handelt es sich um ein Rastersondenmikroskop, in welchem der die Probe beleuchtende Lichtfleck durch Transmission von Licht durch eine Apertur erzeugt wird, deren Durchmesser kleiner als die Wellenlänge des Lichtes ist. Solche nanoskopischen Aperturen können z. B. am Ende einer zu einer Spitze ausgezogenen und anschließend außen metallisierten optischen Glasfaser realisiert werden. Mit solchen Nahfeldsonden konnten Aperturen zwischen 20 nm und 200 nm realisiert werden. In optischen Nahfeldmikroskopen wird die erreichbare räumliche Auflösung durch den Durchmesser dieser Aperturen bestimmt und es wurden räumliche Auflösungen bis hinunter zu 12 nm nachgewiesen.

[0003] Diese Technik der optischen Nahfeldmikroskopie eignet sich insbesondere zur optischen Untersuchung und Charakterisierung von Nanostrukturen, insbesondere solchen aus Halbleitermaterialien. Solche Strukturen sind gegenwärtig Gegenstand intensiver Forschung und werden in vielen optoelektronischen Bauelementen wie z. B. Halbleiterlaserdioden oder Photodioden kommerziell eingesetzt. Die räumlichen Dimensionen solcher Nanostrukturen liegen

im Bereich von 5 bis 100 nm, so daß die Auflösung konventioneller optischer Technik nicht ausreicht, um einzelne Strukturen aufzulösen. Diese Limitierung läßt sich mit der Technik der optischen Nahfeldmikroskopie überwinden, wodurch erstmals die selektive optische Spektroskopie einzelner Nanostrukturen ermöglicht wurde. Eine vollständige Charakterisierung der elektrischen und optischen Eigenschaften derartiger Strukturen erfordert nahfeldoptische Untersuchungen an Proben bei tiefen Temperaturen im Bereich zwischen 4 K und ca. 150 K.

[0004] Über erste experimentelle Realisierungen von Tieftemperaturnahfeldmikroskopen sowie erste Anwendungen dieser Geräte ist umfangreich berichtet worden. Ein derartiges optisches Nahfeldmikroskop ist in der US 54 73 157 beschrieben. In den bisher realisierten Geräten wird sowohl die zu untersuchende Probe, als auch der komplette Mikroskopaufbau, bestehend aus Nahfeldsonde, x-y-z-Feinpositionierung der Sonde, x-y-z-Grobpositionierung und evtl. zusätzlich noch Detektionsoptik, in das Kältemittel eingetaucht und auf tiefe Temperaturen abgekühlt. Als Kältemittel wird dabei entweder flüssiges Helium oder Heliumaustauschgas, welches in thermischer Verbindung mit einem Bad aus flüssigem Helium steht, benutzt. Sämtliche berichteten Experimente wurden bei einer festen Temperatur von ca. 5 K durchgeführt, über die Möglichkeit einer Temperaturregulierung wurde nicht berichtet.

[0005] Die gegenwärtig realisierten Konzepte weisen folgende grundsätzliche Unzulänglichkeiten auf:

- Eine mikroskopische Untersuchung von im Vakuum befindlichen Proben mit Subwellenlängenauflösung ist bisher nicht möglich.
- In den bisher realisierten Tieftemperatur-Nahfeldmikroskopen wird die zu untersuchende Probenoberfläche von einem Kältemittel umgeben und ist daher einer hohen Konzentration an im Kältemittel befindlichen Verunreinigungen ausgesetzt. Eine Untersuchung reiner Probenoberflächen im Ultrahochvakuum kann nicht erfolgen.
- Der komplette Mikroskopaufbau muß auf tiefe Temperaturen abgekühlt werden. Daher treten lange Abkühlzeiten von mehreren Stunden auf, bevor sich der gesamte Mikroskopaufbau im thermischen Gleichgewicht mit dem Kältemittel befindet – typische Thermalisierungszeiten betragen ca. 6 Stunden. Vorher sind Messungen nicht möglich, da die durch Temperaturgradienten hervorgerufene thermische Drift des mechanischen Aufbaus zu einer Verfälschung des Meßergebnisses führt. Dieses führt zu langen Proben- bzw. Nahfeldsondenwechselzeiten und damit zu langen Totzeiten des Geräts.
- Der Scanbereich der eingesetzten x-y-z Piezoaktuatoren sinkt bei tiefen Temperaturen auf etwa ein Fünftel des Scanbereichs bei Raumtemperatur. Dadurch verringert sich der maximal mögliche

Scanbereich in x-, y- und z-Richtung auf gegenwärtig maximal 10 µm.

- Der Scanbereich der eingesetzten x-y-z-Piezoaktuatoren ist temperaturabhängig und variiert im Temperaturbereich zwischen 5 und 300 K um mehr als einen Faktor fünf. Dies erfordert bei jeder gewünschten Betriebstemperatur erneut eine unabhängige Eichung der Piezoaktuatorenausdehnung.
- Die Verwendung von kapazitiv hardware-linearisierten x-y-z-Piezoscannern zur Kompensation der Piezohysterese ist bei Betrieb des Scanners bei tiefen Temperaturen nicht möglich.
- Eine Variation der Proben temperatur erfordert wieder eine Thermalisierung des kompletten Mikroskopaufbaus und ist daher nur sehr erschwert möglich. Über den Betrieb von Tieftemperaturnahfeldmikroskopen bei variablen Temperaturen wurde bisher noch nicht berichtet.
- Eine Variation der Proben temperatur geht mit einer Variation der Betriebstemperatur der unten näher beschriebenen Scherkraft-Abstandsregulierung einher, was die Wirkungsweise der Abstandsregulierung deutlich verschlechtert.
- Durch Absorption der während der Messung in die Nahfeldsonde eingekoppelten optischen Strahlung wird die Nahfeldsonde erhitzt. Schon bei eingekoppelten Leistungen von wenigen mWatt können die Temperaturen an der Spitze der Nahfeldsonde mehrere hundert Grad Celsius betragen. Dies führt zu einer Erwärmung des mit der Nahfeldsonde in thermischen Kontakt stehenden Kältemittels in der Umgebung der Nahfeldsonde. Dieses limitiert damit die in die Nahfeldsonde einkoppelbare Leistung auf deutlich weniger als 1 mWatt, bzw. führt bei zu hohen eingekoppelten optischen Leistungen zu thermischen Gradienten innerhalb des Mikroskopaufbaus und der zu untersuchenden Probe. Bei Verwendung von flüssigem Helium als Kältemittel führt die Erwärmung der Nahfeldsonde zur Blasenentstehung und kann damit zur Erzeugung von Vibrationen im Mikroskopaufbau führen.

Aufgabenstellung

[0006] Der Erfindung liegt daher die Aufgabe zugrunde, ein effektives Verfahren und eine preiswert zu realisierende Vorrichtung zu schaffen, welche eine spektral- und zeitlich aufgelöste Mikroskopie mit Subwellenlängenauflösung von Festkörper-Probenoberflächen im Hoch- bzw. Ultrahochvakuum bei variablen Temperaturen zwischen 10 und 500 K ermöglichen.

[0007] Diese Aufgabe wird gelöst durch die Merkmale der Ansprüche 1 und 14. Zweckmäßige Ausgestaltungen der Erfindung sind in den Unteransprüchen enthalten.

[0008] Detailliert beschrieben wird die Aufgabe gelöst, indem (a) die zu untersuchende Probe auf einem im Vakuum befindlichen Kühlfinger montiert wird, (b) der Kühlfinger mit einem Kältemittel (flüssigem Helium oder Stickstoff) durchspült und damit Probe und Kühlfinger zunächst auf die Temperatur des Kältemittels abgekühlt werden, (c) Kühlfinger und Probe mit einer im Kühlfinger angebrachten Gegenheizung bei durchfließendem Kühlmittel auf die gewünschte, variable Temperatur reguliert werden, (d) eine unten näher spezifizierte Nahfeldsonde in dichtem, konstanten Abstand (typ. 15 ± 5 nm) zur Probenoberfläche gebracht wird, (e) die Probe mit Licht beschienen wird, das durch die Apertur der Sonde mit einem Öffnungsdurchmesser von typ. 50 – 300 nm transmittiert wird, (f) das durch die Probe transmittierte, das von der Probe reflektierte bzw. das nach Lichtanregung von der Probe emittierte Licht durch die Nahfeldsonde oder durch eine extern angeordnete Fernfeld-Optik eingesammelt und mit geeigneten Photodetektoren nachgewiesen wird. Alternativ kann Subwellenlängenauflösung auch dadurch erzielt werden, daß die Probe durch eine Fernfeld-Optik beschienen wird und das durch die Probe transmittierte, das von der Probe reflektierte oder emittierte Licht durch die Nahfeldsonde mit Subwellenlängenauflösung eingesammelt und nachgewiesen wird.

[0009] Spektrale Auflösung kann dabei entweder durch Wellenlängenselektion des Anregungslichtes und/oder des detektierten Lichtes erzielt werden. Zeitliche Auflösung kann dabei durch Verwendung kurzer Lichtimpulse und zeitaufgelöstem Nachweis des detektierten Lichtes, z.B. durch Techniken wie zeitaufgelöstes Einzelphotonenzählen oder mittels einer sog. Schmierbildkamera, oder auch durch nichtlinear-optische Techniken wie das Anrege-Abtast-Verfahren erzielt werden.

Stand der Technik

[0010] Bei Elektronenmikroskopen war es zwar bekannt, die jeweilige Probe indirekt zu kühlen oder zu beheizen. So werden zum Beispiel nach DE 30 34 857 A1, CH 640 980 A5 oder FR 1 323 336 elektronenmikroskopische Präparate indirekt über Trägerplatten bzw. -tische gekühlt und/oder beheizt. Auch für Rastertunnelmikroskope wurde bereits vorgeschlagen, anstelle des kompletten Systems nur die Probe zu kühlen, siehe beispielsweise Lang et al., Low-temperature ultrahigh-vacuum scanning tunneling microscope, Rev. Sci. Instrum. 60(10) (1989), Seiten 3109-3112 oder Ikeda et al., A low-temperature ultrahigh vacuum scanning tunneling microscope system ..., Rev. Sci. Instrum. 64(8) (1993), Seiten 2221-2224. Für optische Nahfeldmikroskope wurde aber davon ausgegangen, daß Aufbauten zur Probenkühlung auf optische Tieftemperatur-Nahfeldmikroskope nicht übertragbar sind. Vielmehr wurde vorausgesetzt, daß es notwendig ist, sowohl die Probe

als auch die Nahfeldsonde in einer Tieftemperatur-Umgebung zu halten, um den Wärmeübertrag zwischen Nahfeldsonde und Probe hinreichend gering zu halten und die mechanische Stabilität zu gewährleisten. Das optische Nahfeldmikroskop erfordert nämlich eine äußerst empfindliche Regelung des Abstandes zwischen Apertur und Probenoberfläche während der Rasterbewegung der Probe, woraus sich strenge Anforderungen an die mechanische Stabilität ergeben.

[0011] Es hat sich aber überraschend gezeigt, daß die Erwärmung der Probe beherrschbar ist bzw. bei der verwendeten indirekten Kühlung keine wesentliche Erwärmung der Probe auftritt. Die Störgröße Wärmeübertrag wirkt sich deshalb nur geringfügig auf die mechanische Stabilität aus.

Ausführungsbeispiel

[0012] Die Erfindung soll nachstehend anhand von in den Figuren zumindest teilweise dargestellten Ausführungsbeispielen näher erläutert werden.

[0013] [Fig. 1](#) zeigt die schematische Funktionsweise des realisierten Tieftemperatur-Vakuum-Nahfeldmikroskops.

[0014] [Fig. 2](#) zeigt den schematischen Aufbau des realisierten Tieftemperatur-Vakuum-Nahfeldmikroskops.

[0015] [Fig. 3](#) demonstriert die Funktionsfähigkeit der realisierten Distanzregulierung zwischen Nahfeldsonde und Probe bei zwei verschiedenen Temperaturen von 300 K ([Fig. 3\(a\)](#) und [\(b\)](#)) und 25 K ([Fig. 3\(c\)](#) und [\(d\)](#)), anhand von Scherkraft-Topographieabbildungen der Oberfläche einer Testprobe. Die Bilder [\(a\)](#) und [\(c\)](#) wurden bei Rasterung der Nahfeldsonde in Vorwärtsrichtung relativ zur Probe und die Bilder [\(b\)](#) und [\(d\)](#) bei Rasterung der Nahfeldsonde in Rückwärtsrichtung aufgenommen.

[0016] [Fig. 4](#) demonstriert die Funktionsfähigkeit des realisierten optischen Nahfeldmikroskops bei einer Temperatur von 8 K anhand der detektierten Photolumineszenz einer Quantendrahtstruktur auf GaAs Basis nach Anregung durch eine Nahfeldsonde mit Subwellenlängen-Ortsauflösung.

[0017] [Fig. 5](#) demonstriert die Realisierung der Probenkühlung in Gegenwart der Nahfeldsonde anhand der Photolumineszenzspektren der von einem GaAs Quantentopf umgebenen GaAs Quantendrahtstruktur bei einer Temperatur von 8 K, wobei [\(a\)](#) die Lumineszenz des Quantentopfes und [\(b\)](#) die Lumineszenz des Quantendrahtes zeigt.

[0018] [Fig. 1](#) erläutert den Aufbau des im Vakuum befindlichen Mikroskopkopfes bestehend aus Pro-

benhalter, Wärmetauscher, Nahfeldsonde und Vorrichtung zur Abstandskontrolle zwischen Probe und Sonde. Die Probe **1** wird mechanisch auf einem Probenhalter **2** befestigt, der im vorliegenden Ausführungsbeispiel aus einem hochreinen vergoldeten Kupferblock **2** besteht, welcher mechanisch und thermisch mit dem Kühlfinger **3** eines kommerziell erhältlichen Helium-Durchfluß-Kryostaten verbunden ist. Durch den Wärmetauscher des Kryostaten wird flüssiges Helium bzw. flüssiger Stickstoff als Kühlmittel gesaugt. Das Kühlmittel verdampft im Wärmetauscher, wodurch die Temperatur des Kühlfingers **3** bis auf 5 K gesenkt werden kann. Ein am Kühlfinger **3** befestigter Fe-Rh Sensor **4** erlaubt die Messung der Kühlfingertemperatur. Mit einer im Wärmetauscher integrierten Gegenheizung **5** und einer externen Regelelektronik kann die gewünschte Betriebstemperatur des Kühlfingers **3** zwischen 5 und 500 K eingestellt und auf weniger als 0.1 K konstant gehalten werden. Durch präzise externe Regulierung des Kühlmitteldurchflusses können durch die Verdampfung des Kühlmittels erzeugte Vibrationen des Kühlfingers **3** minimiert werden. Die Abkühlung der Probe auf die gewünschte Proben temperatur ist ca. 30 min nach Einschalten des Kühlmittelflusses erreicht. Der Kühlmittelfluß beträgt im Betrieb ca. 1 Liter He pro Stunde so daß ein ununterbrochener Betrieb der Apparatur über mehrere Tage hinweg möglich ist. Die Nahfeldsonde **6** besteht aus einer zu einer Spitze ausgezogenen optischen single mode Glasfaser. Durch Variation der zum Ziehen der Faser verwendeten Geräteparameter wie Heizleistung, Heizdauer oder Zugkraft, lassen sich die gezogenen Spitzen so formen, daß nach anschließender Metallisierung der Spitze mit einer ca. 100 nm dicken Gold- oder Aluminiumschicht **7** in einer Bedampfungsanlage am Ende der Spitze eine nicht metallisierte Apertur verbleibt. Der Durchmesser der Apertur kann durch Variation der Zieh- und Bedampfungsparameter zwischen 30 und 200 nm variiert werden. Die Metallbeschichtung der Seitenwände der Glasfaserspitze gewährt, daß am gegenüberliegenden Ende der Glasfaser eingekoppeltes Licht nur durch die Apertur, nicht jedoch durch die Seitenwände der Spitze austreten kann. Die mit dieser Apertur-Nahfeldsonde maximal erreichbare optische Auflösung wird durch die Größe der Apertur vorgegeben und ist nicht mehr, wie in klassischen Mikroskopen, durch die Wellenlänge des Lichtes begrenzt. Die Transmission der Nahfeldsonden, also der Bruchteil des in die Faser eingekoppelten Lichtes, welcher durch die Apertur transmittiert wird, hängt von der konkreten Bauform der Nahfeldsonde **6** und der Wellenlänge des eingekoppelten Lichtes ab und liegt im sichtbaren Spektralbereich typischerweise zwischen 10^{-7} und 10^{-3} . Zur Erreichung der maximal möglichen Auflösung muß der Abstand zwischen Apertur und zu untersuchender Probenoberfläche deutlich kleiner sein als die gewünschte Auflösung, da sich die räumliche Ausdehnung der durch die Spitze transmittierten elektromagnetischen Feld-

verteilung mit zunehmendem Abstand von der Apertur stark verbreitert. Da die Intensität des die Apertur verlassenden Lichtbündels mit zunehmenden Abstand von der Apertur stark abnimmt, muß weiterhin der Abstand zwischen Probenoberfläche und Apertur konstant gehalten werden. Dieses wird durch eine sog. Scherkraft-Abstandsregulierung gewährleistet, mit welcher der Abstand zwischen Probenoberfläche und Nahfeldsonde **6** eingestellt und konstant gehalten wird. Diese Scherkraft-Abstandsregulierung wird in dem vorliegenden Ausführungsbeispiel durch einen Aufbau realisiert, der aus einem Schwingquarz **8**, wie er kommerziell in Uhren verwendet wird, einem sog. Ditherpiezo **9**, einem z-Piezoaktuator **10** und einer externen Regelelektronik besteht. Die nicht im Vakuum befindliche Regelelektronik besteht aus einem Lock-In-Verstärker **11**, einem PID-Regler **12** und einem Hochspannungsverstärker **13**. Durch Anlegen einer externen Wechselspannung an den Ditherpiezo **9** mit einer Amplitude von wenigen mV und einer Frequenz nahe der Resonanzfrequenz f_0 des Schwingquarzes **8** wird der Schwingquarz **8** und die mit dem Schwingquarz **8** fest verbundene Nahfeldsonde **6** zu Schwingungen entlang der x-Richtung angeregt. Die Schwingungsamplitude am Spitzenende liegt im Bereich weniger nm. Durch Bestimmung der Amplitude des an den Kontakten des Schwingquarzes **8** durch den piezoelektrischen Effekt erzeugten elektrischen Wechselspannungssignals wird die Schwingungsamplitude mit Hilfe des Lock-In-Verstärkers **11** gemessen. Wird die Nahfeldsonde **6** mittels des z-Piezoes der Probenoberfläche bis auf wenige 10 nm angenähert, so wirkt eine Dämpfungskraft auf die Nahfeldsonde **6**, welche zu einer Abnahme der Schwingungsamplitude des Sonde-Schwingquarz-Systems führt. Es gibt einen monotonen nichtlinearen Zusammenhang zwischen Schwingquarzamplitude und damit Lock-In-Ausgangsspannung und Abstand zwischen Probe **1** und Nahfeldsonde **6**. Mit Hilfe einer PID-Regelelektronik wird die z-Piezospaltung so reguliert, daß die Lock-In-Ausgangsspannung und damit die Schwingungsamplitude und somit auch der Abstand zwischen Probe **1** und Nahfeldsonde **6** konstant gehalten werden. Im Betrieb wird dieser Abstand typischerweise auf 15 ± 5 nm eingestellt.

[0019] **Fig. 2** erläutert die Integration des Mikroskopkopfes in eine Vakuumkammer **25** und den dynamischen Betrieb des Nahfeldmikroskops. Probenhalter **2** und Kühlfinger **3** werden über einen thermisch isolierenden Halter **14** mit einem Flansch **15** der aus Edelstahl konzipierten Vakuumkammer **25** befestigt. Durch diesen Flansch **15** werden weiterhin die mit einem Kühlmittelbehälter verbundene Kühlmittelleitung **16** und die elektrischen Kontakte **17** für Temperatursensor **4** und Gegenheizung **5** hindurchgeführt. Der Nahfeldkopf **18**, bestehend aus Nahfeldsonde **6**, Schwingquarz **8**, Ditherpiezo **9** und z-Piezo **10**, ist an einem x-y-Piezoscantisch **19** befestigt, der eine Relativbewegung zwischen Nahfeldsonde **6** und Probe **1**

in x- und y- Richtung ermöglicht. Die Probe wird nicht bewegt. Bei dem verwendeten x-y-Scantisch **19** handelt es sich um einen kapazitiv hardwarelinearisierten Scantisch mit einem maximalen Scanbereich von jeweils 100 mm in x- und y-Richtung. Da sich der Scantisch **19** bei Raumtemperatur befindet, wird dieser maximale Scanbereich auch bei tiefen Proben-temperaturen erreicht. Die Auflösung und die Repositionierbarkeit des Scantisches **19** betragen weniger als 1 nm. Der x-y Scantisch **19** wird von einer externen Steuerelektronik angesteuert. Der x-y-Piezoscantisch **19** ist mit drei von Gleichstrommotor angetriebenen Linearverschiebetischen **20–22** verbunden, die in allen drei Raumrichtungen eine Relativbewegung zwischen Nahfeldsonde **6** und Probe **1** mit einer minimalen Schrittweite von weniger als 1 μm und einem maximalen Verstellweg von 16 mm ermöglichen. Die Motoren werden von einer außerhalb der Vakuumkammer befindlichen Elektronik angesteuert. Das der Apertur gegenüberliegende Ende der Nahfeldsonde **6** wird durch eine spezielle Faserdurchführung aus der Vakuumkammer **25** hinausgeführt, so daß das die Probe **1** beleuchtende Licht außerhalb der Vakuumkammer **25** in die Faser eingekoppelt werden kann. In der Vakuumkammer **25** befinden sich eine Sammeloptik **23** für das durch die Probe **1** transmittierte Licht sowie für das von der Probe **1** reflektierte bzw. nach Lichtanregung emittierte Licht. Sowohl das in Transmissionsals auch in Reflexionsgeometrie eingesammelte Licht wird über Spiegelanordnungen durch an seitlichen Flanschen angebrachte Fenster aus der Vakuumkammer **25** hinausgeführt und, ggf. nach spektraler Selektion in einer Monochromatoranordnung, mit geeigneten Detektoren, wie Sekundärelektronenvervielfachern oder Avalanche-Photodioden, nachgewiesen. Weiterhin kann die Detektionsoptik **24** für das emittierte Licht benutzt werden, um ein vergrößertes Abbild der Nahfeldsonde und der Probenoberfläche auf einer CCD-Kamera darzustellen.

[0020] Die Aufnahme eines mikroskopischen Abbildes der optischen Eigenschaften einer Probe **1** wird im folgenden Absatz am Beispiel der Aufnahme eines Photolumineszenzbildes beschrieben. Dazu wird die Nahfeldsonde **6** mit Hilfe der Grobpositionierung **20–22** über der zu untersuchenden Probenstelle angeordnet. Mit Hilfe der Scherkraftabstandsregulierung wird ein konstanter Abstand von 15 ± 5 nm zwischen Apertur und Probenoberfläche eingestellt. Die Probe **1** wird mit durch die Apertur transmittiertem Anregungslicht beleuchtet und das von der Probe emittierte Licht wird mit der Detektionsoptik **24** eingesammelt, in einem Doppelmonochromator spektral selektiert und mit einer Avalanche-Photodiode nachgewiesen. Mit Hilfe des x-y-Scantisches **19** wird dann die Apertur, bei konstant gehaltenem z-Abstand, mit einer Geschwindigkeit von typ. 2 $\mu\text{m/s}$ relativ zur Probenoberfläche rasterförmig bewegt. Die Intensität der von der Probe **1** emittierten und mit dem De-

tektor nachgewiesenen Photolumineszenz wird an jedem Rasterpunkt unter Zuhilfenahme von Analog-Digital-Wandlern in digitaler Form in einem Rechnersystem gespeichert. Auf diese Weise entsteht ein zweidimensionales Abbild der Probenlumineszenz als Funktion der Nahfeldsondenposition, wie auch in [Fig. 4](#) zu ersehen ist.

[0021] [Fig. 3](#) demonstriert die Funktionsfähigkeit der gewählten Scherkraft-Abstandsregulierung im Vakuum bei zwei verschiedenen Probertemperaturen von 300 K ([Fig. 3\(a\)](#) und [\(b\)](#)) und 25 K ([Fig. 3\(c\)](#) und [\(d\)](#)). Dazu wird die Nahfeldsonde **6** in einem Abstand von 15 ± 5 nm zur Probenfläche über einen Bereich von $10 \cdot 10 \mu\text{m}^2$ relativ zur Probe **1** rasterförmig bewegt und ein Abbild der an den z-Piezo angelegten Spannung als Funktion der Nahfeldsondenposition in der x-y-Ebene aufgenommen. Solch ein Bild spiegelt die Topographie der Probenoberfläche wieder. Zur Aufnahme dieses Topographiebildes wird die Nahfeldsonde **6** zeilenweise in x-Richtung um $10 \mu\text{m}$ vor und zurück bewegt und nach jeder Zeile um eine Rasterschrittweite (hier 100 nm) in y-Richtung vorbeibewegt. Bei der abgebildeten Probe **1** handelt es sich um eine ebene Metalloberfläche, in die zylinderförmige Vertiefungen mit einem Durchmesser von ca. 400 nm und einer Tiefe von ca. 300 nm eingebracht worden sind. Der Abstand zwischen den Zentren benachbarter Vertiefungen beträgt in x- und y-Richtung jeweils $2 \mu\text{m}$. Die Topographie der Vertiefungen wird sowohl bei Raumtemperatur als auch bei tiefen Temperaturen nahezu verzerrungsfrei und reproduzierbar abgebildet. Dies geht insbesondere aus dem Vergleich der in Vorwärts- bzw. Rückwärtsrichtung aufgenommenen Abbildung gemäß [Fig. 3\(a\)](#) und [\(b\)](#) bei Raumtemperatur und [Fig. 3\(c\)](#) und [\(d\)](#) bei 25 K hervor. Dadurch wird die Funktionsfähigkeit der gewählten Abstandsregulierung nachgewiesen.

[0022] Die Funktionsfähigkeit des realisierten optischen Nahfeldmikroskopaufbaus wird in [Fig. 4](#) demonstriert. Hierzu wird, wie oben beschrieben, eine spezielle Quantendrahtprobe auf GaAs Basis auf eine Temperatur von 8 K abgekühlt. Die Probe wird bei einer Wellenlänge von 790 nm bei eingeschalteter Abstandsregulierung durch die Nahfeldsonde **6** angeregt und ihr emittierte Lumineszenz wird nach Dispersion in einem Doppelmonochromator bei einer Wellenlänge von 803 nm spektral selektiert nachgewiesen. Bei dieser Probe **1** handelt es sich um einen ca. 12 nm dicken (z-Richtung) und lateral 50 nm breiten (x-Richtung) GaAs-Quantendraht mit einer Länge von mehreren mm (y-Richtung), der in x-Richtung beidseitig von einem jeweils 6 nm dicken GaAs Quantentopf und in z-Richtung beidseitig von einem jeweils 50 nm $\text{Al}_{.45}\text{Ga}_{.55}\text{As}$ Quantentopf umgeben ist. Die Probenoberfläche der Struktur ist zusätzlich mit einer ca. 20 nm dicken GaAs Deckschicht beschichtet, so daß die eigentliche Quantendrahtstruktur ca. 75 nm unter der Probenoberfläche liegt. Die hier nicht

näher beschriebenen elektronischen Eigenschaften dieser Quantendrahtstruktur sind derart, daß bei einer Probertemperatur von ca. 8 K und einer Anregungswellenlänge von 803 nm nur die Quantendrahtstruktur selber, nicht jedoch die umliegenden Quantentopfstrukturen Licht absorbieren können. Die durch Lichtabsorption generierten Elektron-Loch-Ladungsträgerpaare in der Quantendrahtstruktur rekombinieren zum Teil strahlend. Eine spektral aufgelöste Detektion der dabei entstehenden Lumineszenzstrahlung zeigt eine energetisch schmale Photolumineszenzbande mit einem Maximum der Lumineszenzintensität bei einer Wellenlänge von 803 nm und einer spektralen Breite der Bande von ca. 6 nm . Wird diese Probe mit durch die Nahfeldsonde **6** transmittiertem Licht bei einer Wellenlänge von 790 nm angeregt, so erwartet man, daß Quantendrahtlumineszenz nur dann generiert wird, wenn elektromagnetische Feldverteilung der durch die Apertur transmittierten Strahlung und Quantendrahtstruktur räumlich überlappen. Dieses wird in [Fig. 4](#) beobachtet. Hier wird die Nahfeldsonde **6** in x-Richtung senkrecht zur Quantendrahtstruktur gebracht. Die Quantendrahtlumineszenz erscheint als räumlich scharfe Linie – in Übereinstimmung mit der oben gegebenen qualitativen Diskussion. Die räumliche Halbwertsbreite der beobachteten Lumineszenzlinie entlang der x-Richtung beträgt ca. 400 nm und ist somit gegenüber der lateralen Breite der Drahtstruktur verbreitert. Diese Verbreiterung wird im wesentlichen dadurch hervorgerufen, daß die Quantendrahtstruktur nicht direkt an der Oberfläche ist, sondern in einer Tiefe von ca. 75 nm in einer Struktur mit einem Brechungsindex von ca. 3.5 . Diese Oberflächenschichten führen zu einer räumlichen Verbreiterung der ursprünglich schmalen, nur durch die Aperturbreite begrenzten, elektromagnetischen Feldverteilung direkt unter der Nahfeldsonde **6**. Weiterhin trägt der endliche Aperturdurchmesser der in diesen Experimenten eingesetzten Nahfeldsonden **6** von ca. 200 nm zu einer Verbreiterung bei.

[0023] Nachdem in [Fig. 4](#) die Funktionsfähigkeit des realisierten Tieftemperatur-Vakuum-Nahfeldmikroskops demonstriert wurde, bleibt zu zeigen, daß die lokale Temperatur der untersuchten Probenstelle mit der mit dem Temperatursensor **4** gemessenen Temperatur am Kühlfinger **3** (s. [Fig. 1](#)) übereinstimmt und daß keine nennenswerte Erwärmung der lokalen Probenstelle durch die sich bei Raumtemperatur befindliche Nahfeldsonde **6** erfolgt. Hierzu wird ein Photolumineszenzspektrum der oben beschriebenen Quantendrahtstruktur und der umgebenden GaAs Quantentopfstruktur aufgenommen und mit einem Referenzspektrum verglichen. Das Experiment erfolgt wie oben beschrieben, lediglich wird hier die Probe **1** nicht mit Licht bei einer Wellenlänge von 790 nm sondern bei einer Wellenlänge von 632.8 nm durch die Nahfeldsonde **6** angeregt. Die Nahfeldsonde **6** wird zum einen direkt über der Position der

Quantendrahtstruktur angeordnet, so daß Ladungsträger innerhalb der Quantendrahtstruktur generiert werden. Die resultierende Photolumineszenz wird spektral aufgelöst nachgewiesen und ist in **Fig. 5(b)** gezeigt. Es wird eine Lumineszenzbande mit einem Maximum der Intensität bei einer Wellenlänge von 802 nm und einer spektralen Breite von 4 nm beobachtet. Weiterhin wird in **Fig. 5(a)** ein Lumineszenzspektrum gezeigt, das aufgenommen wurde nach Positionierung der Nahfeldsonde **6** über dem die Drahtstruktur umgebenden 6 nm dicken GaAs Quantentopf. Es wird eine Lumineszenzbande mit einem Maximum der Intensität bei einer Wellenlänge von 774 nm und einer spektralen Breite von 7 nm beobachtet. Beide Spektren sind im Rahmen der spektralen Meßgenauigkeit von ca. ± 0.5 nm und der durch Fluktuationen der Probendicke hervorgerufenen Variationen der Emissionswellenlängen identisch mit Referenzspektren, die an derselben Probe mit einer kommerziellen Mikro-photolumineszenzapparatur bei einer Proben-temperatur von 8 K aufgenommen wurden sind. Weiterhin stimmt die spektrale Position der Lumineszenz des GaAs Quantentopfes gut mit Vorhersagen theoretischer Modellrechnungen zu diesem System überein. Es tritt trotz des geringen Abstandes von 5 ± 1 nm zwischen Probenoberfläche und Nahfeldsonde keine signifikante Erwärmung der Probenoberfläche durch die Nahfeldsonde **6** in dem hier untersuchten Temperaturbereich von 5 bis 500 K auf.

[0024] Dieses demonstriert das Potential der im Rahmen dieser Erfindung realisierten neuartigen Vorrichtung zur optischen Mikroskopie mit Subwellenlängenauflösung im Vakuum bei Proben-temperaturen zwischen 5 und 500 Kelvin.

[0025] Die Erfindung ist nicht auf die hier beschriebenen Ausführungsbeispiele beschränkt. Vielmehr ist es möglich, durch Kombination der genannten Mittel und Merkmale weitere Ausführungsvarianten zu realisieren, ohne den Rahmen der Erfindung zu verlassen.

Patentansprüche

1. Verfahren zur optischen Mikroskopie mit Subwellenlängenauflösung mittels eines Tieftemperatur-Nahfeldmikroskops unter Einsatz von Kältemitteln und Verwendung einer Nahfeldsonde, wobei
 – die sich im Vakuum in thermischen Kontakt mit einem Kühlfinger befindliche Probe indirekt mittels des Kühlfingers, ohne direkten Kontakt der Probenoberfläche zu dem Kältemittel abgekühlt wird und/oder
 – mittels einer Gegenheizung bei weiterhin aktiver indirekter oder abgestellter Kühlung eine Temperatur der Probe im Bereich zwischen 5 und 500 Kelvin eingestellt wird,
 – nachfolgend die temperierte Probe mit Licht beaufschlagt und

– das durch die Probe transmittierte und/oder von der Probe reflektierte und/oder emittierte Licht erfaßt und ausgewertet wird.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Probe im Vakuum auf einer konstanten Temperatur zwischen 5 und 500 Kelvin gehalten wird.

3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der Abstand zwischen Probenoberfläche und Nahfeldsonde auf ein Maß geringer als eine Wellenlänge des Lichtes begrenzt wird.

4. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Lichtquelle die Probe durch die Nahfeldsonde beleuchtet und das durch die Probe transmittierte und/oder von ihr reflektierte Licht und/oder die von der Probe emittierte Strahlung mit einer Fernfeldoptik eingesammelt und detektiert wird.

5. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Lichtquelle die Probe durch die Nahfeldsonde beleuchtet und das von der Probe reflektierte Licht und/oder die von der Probe emittierte Strahlung durch die Nahfeldsonde eingesammelt und detektiert wird.

6. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Lichtquelle die Probe durch die Fernfeldoptik beleuchtet und das durch die Probe transmittierte und/oder von ihr reflektierte Licht und/oder die von der Probe emittierte Strahlung durch die Nahfeldsonde eingesammelt und detektiert wird.

7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1-6, dadurch gekennzeichnet, daß das detektierte Licht spektral aufgelöst nachgewiesen wird.

8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1-6, dadurch gekennzeichnet, daß polarisiertes Licht zur Beleuchtung der Probe verwendet wird und/oder das detektierte Licht polarisationsaufgelöst nachgewiesen wird.

9. Verfahren nach einem der Ansprüche 1-8, dadurch gekennzeichnet, daß transiente Lichtimpulse zur Probenbeleuchtung verwendet werden und das detektierte Licht zeitaufgelöst und/oder spektral aufgelöst nachgewiesen wird.

10. Verfahren nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, daß transiente Lichtimpulse zur Probenbeleuchtung verwendet werden und nichtlinear-optische Techniken, wie Anrege-Abtast-Verfahren, Lumineszenz-Aufkonversion oder Vier- oder Mehr-Wellen-Mischtechniken zur orts- und zeitaufgelösten Spektroskopie der transienten optischen Eigenschaften der Probe angewendet werden.

11. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß die Probe zusätzlich einem Magnetfeld ausgesetzt wird.

12. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß eindimensionale Rasterbewegungen der Nahfeldsonde relativ zur Probe bzw. der Nahfeldsonde relativ zur Probe durchgeführt werden.

13. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß zweidimensionale Rasterbewegungen der Nahfeldsonde relativ zur Probe bzw. der Nahfeldsonde relativ zur Probe durchgeführt werden.

14. Vorrichtung zur optischen Mikroskopie mit Subwellenlängenauflösung mittels eines Tieftemperatur-Nahfeldmikroskops unter Einsatz von Kältemitteln und Verwendung einer Nahfeldsonde, wobei die zu untersuchende Probe (1) in einer Vakuumkammer (25) auf einem Probenhalter (2) in unmittelbarer Nähe der Nahfeldsonde (6) angeordnet ist und der Probenhalter (2) mit einem Wärmetauscher, bestehend aus Kühlfinger (3) und Gegenheizung (5), mechanisch und thermisch verbunden ist.

15. Vorrichtung nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, daß am Wärmetauscher ein Sensor (4) zur Temperaturmessung angeordnet ist.

16. Vorrichtung nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, daß die Nahfeldsonde (6) eine Spitze mit Apertur aufweist und die Spitze metallisiert ist.

17. Vorrichtung nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, daß der Wärmetauscher mindestens einen Kühlfinger (3) mit Kanälen zur Durchspülung mit einem Kühlmittel aufweist.

18. Vorrichtung nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, daß der Wärmetauscher eine als elektrische Widerstandsheizung ausgebildete Gegenheizung (5) aufweist.

19. Vorrichtung nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, daß die Nahfeldsonde (6) mit einer Scherkraft-Abstandsregulierung gekoppelt ist, welche aus Schwingquarz (8), Ditherpiezo (9) und z-Piezoaktuator (10) besteht.

20. Vorrichtung nach Anspruch 19, dadurch gekennzeichnet, daß die Scherkraft-Abstandsregulierung von einer Regelelektronik, bestehend aus Lock-In-Verstärker (11), PID-Regler (12) und Hochspannungsverstärker (13), beaufschlagt wird.

21. Vorrichtung nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, daß aus Nahfeldsonde (6), Schwingquarz (8), Ditherpiezo (9) und z-Piezoaktuator (10)

ein Nahfeldkopf (18) gebildet wird, welcher mit einem x-y-Piezoscantisch (19) verbunden ist.

22. Vorrichtung nach Anspruch 21, dadurch gekennzeichnet, daß der Piezoscantisch (19) mit drei Linearverschiebetischen (20, 12, 22) verbunden ist, die in alle drei Raumrichtungen eine Relativbewegung zwischen Nahfeldsonde (6) und Probe (1) ermöglichen.

23. Vorrichtung nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, daß die Lichtquelle die Probe (1) durch die Nahfeldsonde (6) beleuchtet und das durch die Probe (1) transmittierte und/oder von ihr reflektierte Licht und/oder die von der Probe (1) emittierte Strahlung mit einer Fernfeldoptik eingesammelt und mit einem Photodetektor detektiert wird.

24. Vorrichtung nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, daß die Lichtquelle die Probe (1) durch die Nahfeldsonde (6) beleuchtet und das von der Probe (1) reflektierte Licht und/oder die von der Probe (1) emittierte Strahlung durch die Nahfeldsonde (6) eingesammelt und mit einem Photodetektor detektiert wird.

25. Vorrichtung nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, daß die Lichtquelle die Probe (1) durch eine Fernfeldoptik beleuchtet und das durch die Probe (1) transmittierte und/oder von ihr reflektierte Licht und/oder die von der Probe (1) emittierte Strahlung durch die Nahfeldsonde (6) eingesammelt und mit einem Photodetektor detektiert wird.

Es folgen 5 Blatt Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen

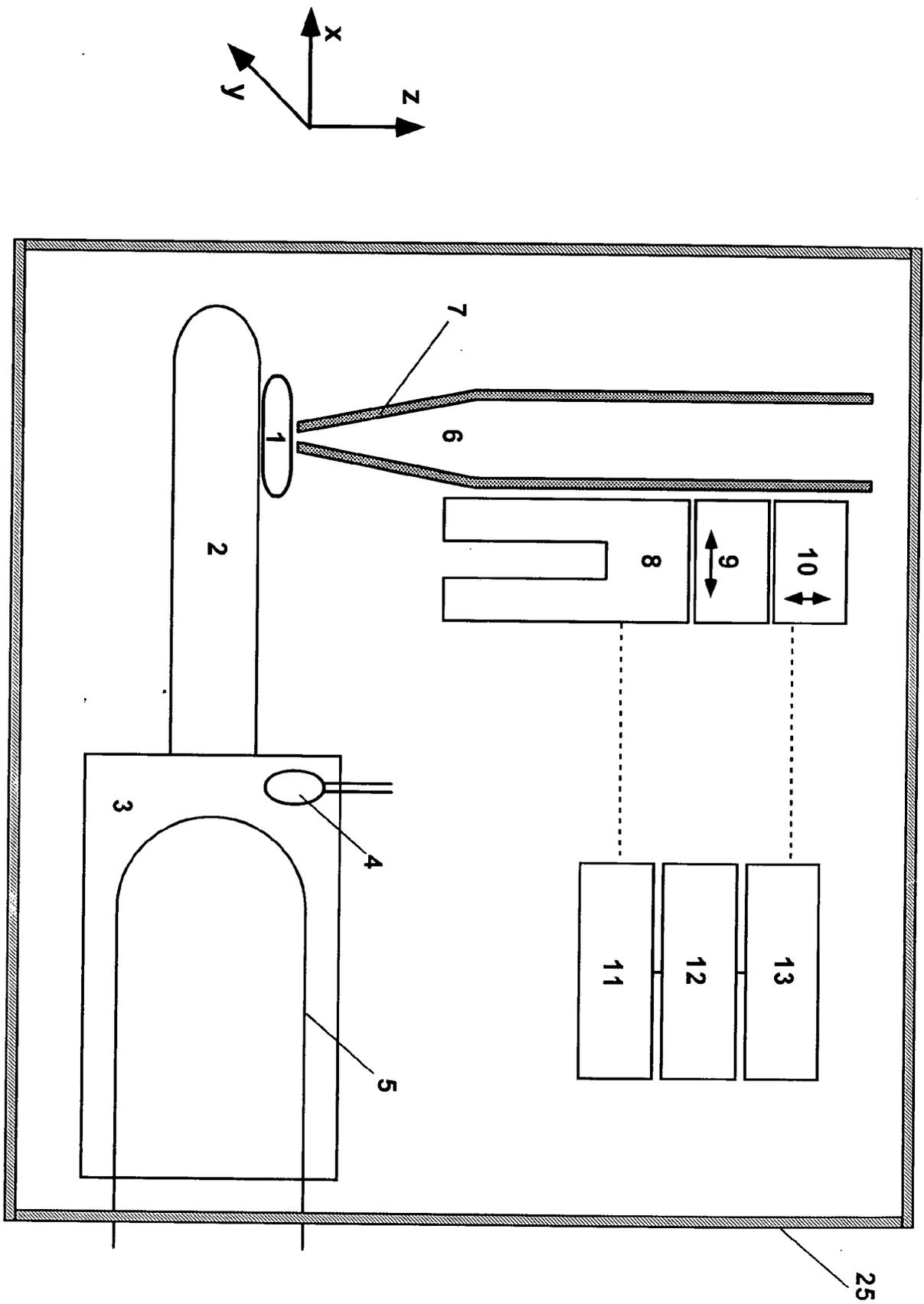


Fig. 1

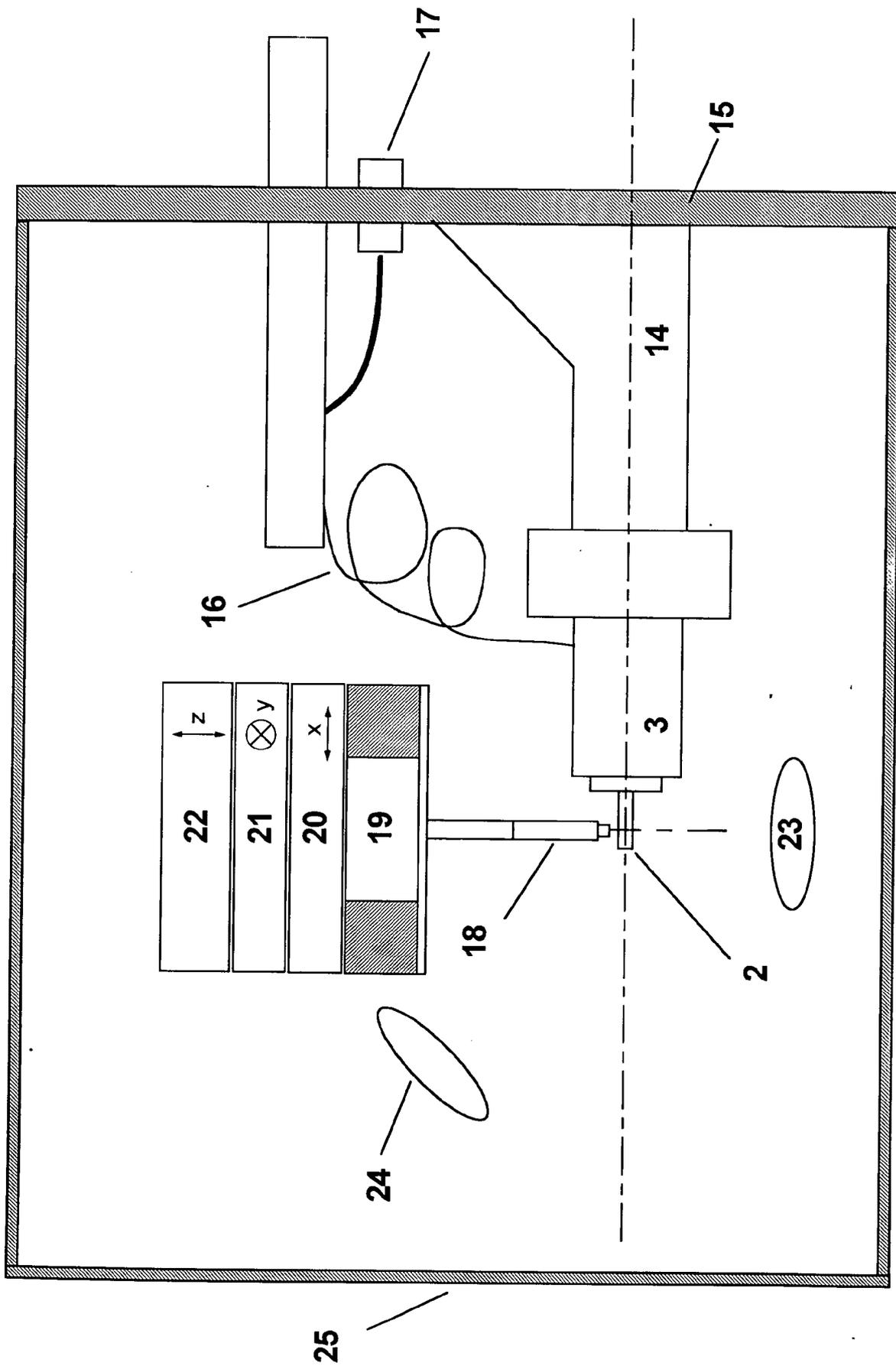
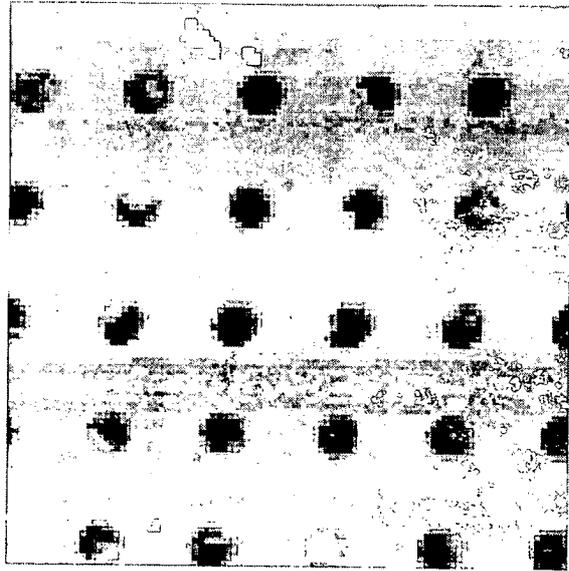
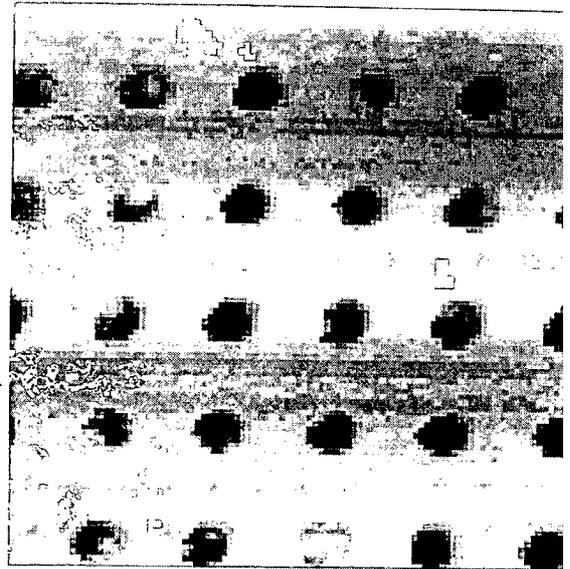


Fig. 2

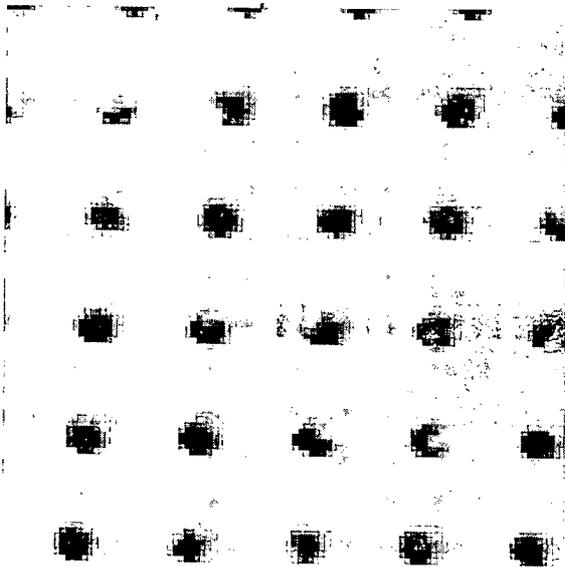
(a) T=300 K



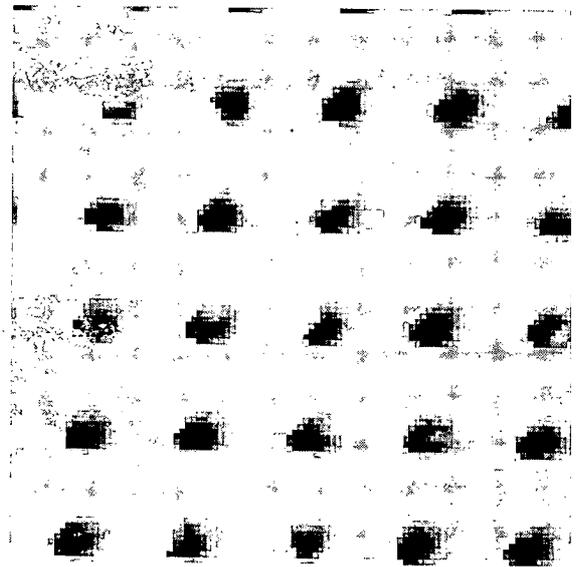
(b) T=300 K



(c) T=25 K



(d) T=25 K



2 μ m

Fig. 3

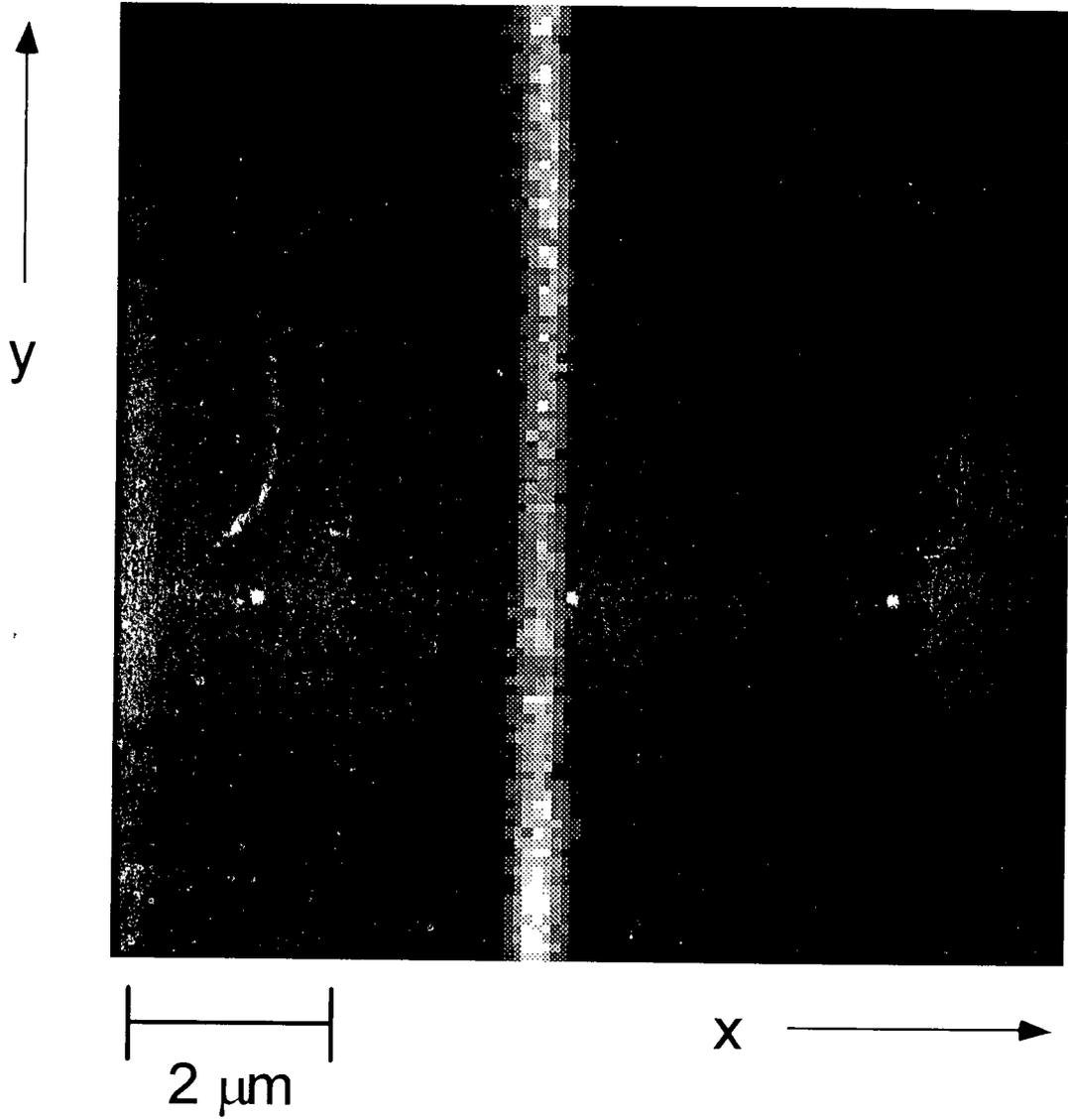


Fig. 4

