

轻敲模式下原子力显微镜的能量耗散机理研究

樊康旗, 贾建援, 朱应敏

(西安电子科技大学 机电工程学院, 陕西 西安 710071)

摘要: 为研究原子力显微镜(AFM)在轻敲工作模式下的能量耗散机理,基于 Hamaker 假设和 Lennard-Jones 势能定律得到了原子与球体间的作用力. 通过将球体与平面原子间的作用力等效为球体与平面间的粘着分布力,并结合经典弹性理论建立了一种新型的球体与平面粘着接触的弹性模型,根据所建模型得到了 AFM 针尖与样品表面间的粘着力随其间距的变化规律. 仿真结果表明,粘着力随间距的变化曲线在 AFM 针尖趋近和撤离样品表面,即加载和卸载的两个过程中并不完全相同,产生了粘着滞后现象,而粘着滞后现象的出现表明 AFM 在轻敲工作模式中将耗散能量,因而,所建模型从理论上证实了 AFM 在轻敲工作模式下存在能量耗散现象.

关键词: 原子力显微镜;粘着模型;轻敲模式;能量耗散

中图分类号: TN16; TH724 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-2400(2007)06-0947-06

Energy dissipation in tapping-mode atomic force microscopy

FAN Kang-qi, JIA Jian-yuan, ZHU Ying-min

(School of Mechano-electronic Engineering, Xidian Univ., Xi'an 710071, China)

Abstract: Based on Hamaker hypotheses and Lennard-Jones potential, the interaction between an atom and a sphere is obtained to investigate the energy dissipation in tapping-mode atomic force microscopy (AFM). By considering the interaction between a sphere and an atom of a plane as the distributing adhesion force between a sphere and a plane, and combining with the elastic theory, a novel elastic model is established of adhesive contact between a sphere and a plane. With the adhesive model established, the variation of the adhesive force with the AFM tip-sample distance is obtained. Simulation results indicate that the variation of the adhesive force with the distance in the load process is different from that in the unload process, i. e., the adhesive hysteresis is demonstrated, which is the indication of the energy dissipation. So the energy dissipation is shown by the proposed model in the tapping-mode AFM.

Key Words: AFM; adhesion model; tapping mode; energy dissipation

原子力显微镜(AFM)作为微观领域的主要研究工具之一,不仅可以在纳米级的范围内获取样品表面的形貌,而且可以探测针尖与样品表面间的微小粘着力,为研究样品表面的微观形貌和力学特性提供了新思路^[1]. AFM 通常有 3 种工作模式^[2~4]:非接触模式、轻敲模式和接触模式. 在非接触模式中,由于 AFM 针尖与样品表面间距较大,AFM 的分辨率受到很大的限制. 在接触模式中,当 AFM 沿着样品表面扫描时,AFM 针尖与样品表面间的切向力将引起样品表面发生变形,甚至导致软材料表面发生不可恢复的破坏. AFM 的轻敲工作模式不仅可以得到样品表面的原子级形貌,而且可以克服接触模式导致样品表面变形或破坏的缺点,在实际中得到了广泛的应用.

AFM 的轻敲模式又称为间歇接触模式,其基本原理是对 AFM 的微悬臂梁施加一频率接近其共振频率的激励,通过处理由粘着力导致的变化了的振幅或相位信号来得到样品表面的形貌特征^[5],所以 AFM 针尖与样品表面间的粘着力随间距的变化规律对 AFM 轻敲工作模式的研究至关重要. 虽然许多实验^[5~7]和分子

收稿日期:2007-01-10

基金项目:国家自然科学基金资助(10476019)

作者简介:樊康旗(1979-),男,西安电子科技大学博士研究生.

动力学模拟方法^[6]证实了在 AFM 的轻敲工作模式中存在着粘着滞后和能量耗散现象,但是现有的粘着接触理论,如 JKR 理论^[8]、DMT 理论^[9]、MD 理论^[10]等,无法从理论上解释这些现象的产生机理。

笔者基于 Hamaker 假设^[11]和 Lennard-Jones 势能定律^[12],通过积分得到了球体与平面间的粘着力,同时结合经典弹性理论建立了一种新型的球体与平面粘着接触的弹性模型,旨在研究 AFM 的轻敲工作模式中,由 AFM 针尖与样品表面间的粘着力导致的粘着滞后和能量耗散现象的产生机理。

1 Lennard-Jones 势和 Hamaker 假设

1.1 Lennard-Jones 势能定律

在微观世界中,两原子间的相互作用(粘着能)由 Lennard-Jones 势能定律描述为^[12]

$$W(r) = 4\epsilon \left[(\sigma/l)^6 - (\sigma/l)^{12} \right], \quad (1)$$

式中 ϵ 为势阱参数; σ 为零势能间距; l 为两原子间距。

两原子间的粘着力可通过对 Lennard-Jones 势能求导得到

$$F(l) = dW(l)/dl = -6A/l^7 + 12B/l^{13}, \quad (2)$$

式中 $A = 4\epsilon\sigma^6$ 为引力系数, $B = 4\epsilon\sigma^{12}$ 为斥力系数,且 $B = A\sigma^6$ 。

1.2 Hamaker 假设

由于物质在微观世界具有离散性,为了采用连续方法计算两物体间的相互作用,Hamaker 提出了 3 个假设采用连续方法解决微观物质世界的离散问题奠定了理论基础^[11]:

1) 可加性假设:任何两个物体间的作用力由构成两个物体的原子对之间的作用力累加求和得到;

2) 连续介质假设:每个原子所占体积为 dV ,作用力的累加求和可以通过对相互作用的两物体进行体积积分得到,并且任何物体均由数字密度为 ρ 的 dV 连续构成;

3) 均质材料假设:数字密度和相互作用力系数对整个物体保持不变。

根据 Hamaker 假设,数字密度分别为 ρ_1 和 ρ_2 的两物体间的粘着力可通过对其进行体积积分得到

$$F = \rho_1 \rho_2 \int_{V_2} \int_{V_1} F(l) dV_1 dV_2. \quad (3)$$

2 粘着接触弹性模型的建立

根据现有文献^[3,4]中采用的方法,这里将 AFM 针尖和样品表面分别等效为球体和平面.由于弹性球体与弹性平面的接触可以等效为刚性球体与弹性平面或弹性球体与刚性平面的接触,同时考虑到 AFM 针尖通常由硅(Si)和氮化硅(Si_3N_4)等硬度较高的材料制成,所以将 AFM 针尖和样品表面的接触简化为刚性球体与弹性平面的接触。

2.1 原子-球体粘着模型

原子与球体的粘着作用如图 1 所示, R 为球体的半径; d 为原子与球体的间距; l 为原子与球体上任意一点 M 的间距.在图 1 坐标系中存在如下关系

$$l = \left((d+R)^2 + r^2 - 2r(d+R)\cos\theta \right)^{1/2}, \quad (4)$$

$$\cos\alpha = (R+d-r\cos\theta)/l. \quad (5)$$

由对称性可知 $F_x = F_y = 0$, $F_z = F\cos\alpha$. 根据 Hamaker 假设,原子与数字密度为 ρ_s 的球体间的粘着力为

$$F_{as}(d) = \rho_s \int_{V_s} F(l) dV_s = -F_{as1}(d) + F_{as2}(d), \quad (6)$$

式中 $F_{as1}(d)$ 和 $F_{as2}(d)$ 分别为

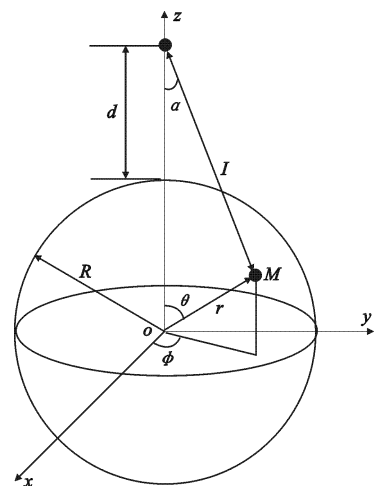


图 1 原子与球体间的相互作用

$$F_{as1}(d) = 6A\rho_s \int_0^{2\pi} \int_0^\pi \int_0^R \frac{r^2 \sin \theta \cos \alpha}{l^7} dr d\theta d\varphi = \frac{8\pi A\rho_s R^3 (d+R)}{d^4 (d+2R)^4} \quad (7)$$

$$F_{as2}(d) = 12B\rho_s \int_0^{2\pi} \int_0^\pi \int_0^R \frac{r^2 \sin \theta \cos \alpha}{l^{13}} dr d\theta d\varphi = \frac{16\pi B\rho_s R^3 (d+R) [d^2 + 2R(d+R)]}{5d^{10} (d+2R)^{10}} \cdot [5d^4 + 4R(d+R)(5d^2 + 8R(d+R))] \quad (8)$$

2.2 球体-平面粘着模型

球体与平面的粘着作用如图 2 所示, h_0 为刚性球体与弹性平面的名义间距; $z(r)$ 为弹性平面在半径为 r 处的变形量; $h(r)$ 为刚性球体与弹性平面在半径为 r 处的实际间距

$$h(r) = h_0 + z(r) \quad (9)$$

球体与平面上半径为 r 的任意一点 K 的间距为

$$d(r) = ([R + h(r)]^2 + r^2)^{1/2} - R \quad (10)$$

同时在图 2 坐标系中存在如下关系

$$\cos \beta = (R + h(r)) / (d(r) + R) \quad (11)$$

由球体与平面的对称性, 并根据 Hamaker 假设可得球体与平面上 $[r, r + dr]$ 环形区域的粘着力为

$$F_d(d) = -F_{d1}(d) + F_{d2}(d) \quad (12)$$

式中 d 由式(10) 给出; $F_{d1}(d)$ 和 $F_{d2}(d)$ 分别为

$$F_{d1}(d) = \rho_p \int_0^{2\pi} \int_0^\infty \int_r^{r+dr} F_{as1}(d) \cos \beta r dr dz d\varphi \quad (13)$$

$$F_{d2}(d) = \rho_p \int_0^{2\pi} \int_0^\infty \int_r^{r+dr} F_{as2}(d) \cos \beta r dr dz d\varphi \quad (14)$$

式中 ρ_p 为平面的数字密度, 式(13), (14) 的积分结果很冗长, 由于篇幅所限, 其结果在此省略. 当 $dr \rightarrow 0$ 时, 可得球体与平面上任意一点的粘着力, 即粘着分布力 $F_d(d)$ 为(同时注意到 $F_d(d)$, $F_{d1}(d)$, $F_{d2}(d)$ 已转变为以 $h(r)$ 为变量的函数)

$$F_d(h) = -F_{d1}(h) + F_{d2}(h) = \lim_{dr \rightarrow 0} \frac{1}{2\pi r dr} F_d(d) = \lim_{dr \rightarrow 0} \frac{1}{2\pi r dr} [-F_{d1}(d) + F_{d2}(d)] \quad (15)$$

式中 $F_{d1}(h)$, $F_{d2}(h)$ 分别为

$$F_{d1}(h) = \frac{4HR^3}{3\pi(h^2 + 2hR + r^2)^3} \quad (16)$$

$$F_{d2}(h) = \frac{2HR^3 r_N^6}{45\pi(h^2 + 2hR + r^2)^9} [15h^6 + 15r^6 + 90h^5 R + 108r^4 R^2 + 216r^2 R^4 + 128R^6 + 9h^4(5r^2 + 32R^2) + 12h^3(15r^2 R + 46R^3) + 9h^2(5r^4 + 44r^2 R^2 + 72R^4) + 18h(5r^4 R + 24r^2 R^3 + 24R^5)] \quad (17)$$

式中 r_N 为晶体中两原子的最近间距^[13], 对面心、体心和金刚石晶体, r_N 分别为 $2^{1/2} a/2$, $3^{1/2} a/2$ 和 $3^{1/2} a/4$ (a 为晶体的晶格常数); H 为 Hamaker 常数^[12]

$$H = \pi^2 A\rho_s \rho_p \quad (18)$$

2.3 球体-平面粘着接触弹性模型

将球体和平面原子间的相互作用力等效为球体与平面间的粘着分布力. 对于球体-平面弹性接触模型, 粘着力分布具有轴对称性, 由弹性理论^[14] 可得分布作用力 $F_d(h)$ 引起平面上任意一点(该点与 Z 轴的间距为 \hat{r}) 的变形量为

$$z(\hat{r}) = \frac{1}{\pi E} \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \frac{F_d(h)}{(\hat{r}^2 + r^2 - 2\hat{r}r \cos \theta)^{1/2}} r d\theta dr = \frac{4}{\pi E} \int_0^\infty \frac{r \cdot F_d(h) K}{\hat{r} + r} \left[\frac{2(\hat{r}r)^{1/2}}{\hat{r} + r} \right] dr \quad (19)$$

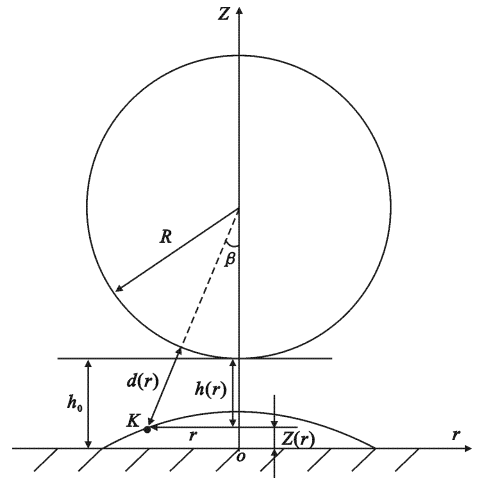


图 2 刚性球体与弹性平面的粘着接触

球体与平面间的总粘着力为
$$F = \int_0^{2\pi} \int_0^{\infty} F_d(h) r dr d\varphi, \quad (20)$$

式中 $K(X)$ 为模 $X = 2(\hat{r}r)^{1/2}/(\hat{r} + r)$ 的第一类完全椭圆积分; $h = h(r)$ 由式(9)给出; E 为球体与平面的接触模量.

基于 Hamaker 假设,由式(9),(15),(19)确定的粘着接触弹性模型,结合了经典弹性理论和 Lennard-Jones 势能定律,同时考虑了平面的变形效应和球体与平面间的粘着力,可以处理粘着力为引力和斥力时的多种问题.当球体与平面间距 $h(r) > l_0 = (2)^{1/6}\sigma$ 时,粘着力为引力($F_d(h) < 0$),平面被拉伸($z(r) < 0$);当间距 $h(r) < l_0$ 时,粘着力为斥力($F_d(h) > 0$),球面被压缩($z(r) > 0$).

3 结果与分析

在 AFM 针尖的加载和卸载过程中,采用文献[15]中给出的自洽迭代算法求解由式(9),(15),(19)确定的粘着接触弹性模型.由于粘着力随间距的增大而急剧减小,所以在实际的仿真计算中将式(19)和式(20)的积分区域取为 $[0, R/2]$,计算中发现当积分上限继续增大时,模拟精度几乎没有改变.文中采用的模拟参数为 $R = 100 \text{ nm}$, $E = 8 \times 10^{10} \text{ N/m}^2$, $\gamma = 0.2 \text{ J/m}^2$, $\epsilon = 0.25 \text{ nm}$,相应的 Tabor 数 $\lambda = 0.34$.

现有的粘着接触理论,如 JKR 理论^[8]、DMT 理论^[9]和 MD 理论^[10]等,虽然都可以给出球体和平面的变形量随粘着力的变化规律,但是三者给出的最大粘着力并不相同. Tabor 通过引入 Tabor 数 λ ^[16]来解释这一矛盾,即 DMT 理论和 JKR 理论分别在 λ 较小和较大时准确,而 MD 理论则适用于 DMT 理论和 JKR 理论之间的过渡区域.图 3 为 DMT 理论、JKR 理论、MD 理论和文中所建的粘着接触模型(加载过程)给出的平面变形量随粘着力的变化规律.由图 3 可见,粘着模型与 JKR 理论、MD 理论给出的变化规律基本相同,证实了文中所建的粘着模型在研究粘着接触问题中的有效性.

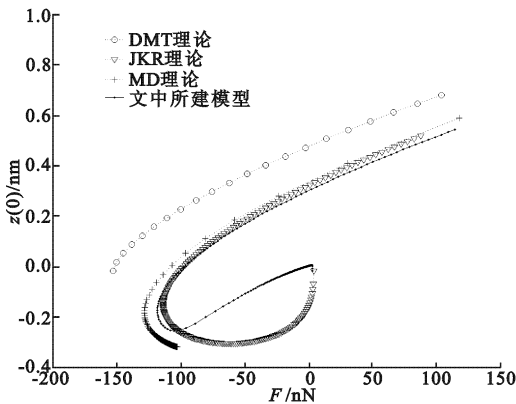


图 3 变形量随粘着力变化曲线

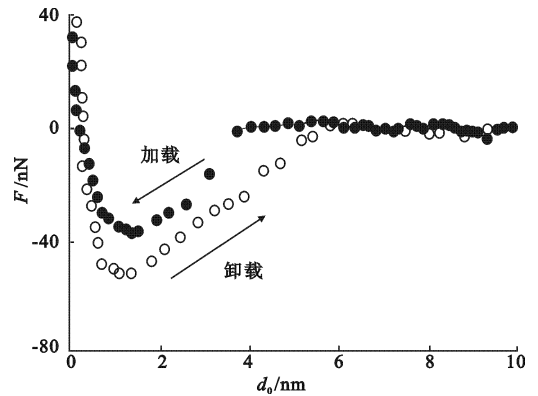


图 4 加载和卸载中粘着力随间距变化的实验曲线

现有的粘着理论虽然可以给出球体和平面间的粘着力与变形量之间的关系,但是很难给出粘着力随间距的变化规律,也不能解释 AFM 针尖在加载和卸载过程中的能量耗散机理,而 AFM 针尖在加载和卸载过程中的粘着滞后和能量耗散现象已被许多实验所证实^[5~7].图 4 为 Tamayo 等^[7]在实验中得到的当 AFM 针尖在石墨表面加载和卸载时粘着力随间距的变化曲线.由图 4 可见,卸载过程的粘着力曲线相比加载过程存在明显的滞后.图 5 为粘着模型给出的粘着力在 AFM 针尖加载和卸载过程中随名义间距的变化曲线.由图 5 可见,文中所建的粘着模型可以反映出粘着力在 AFM 针尖加载和卸载过程中的滞后现象,而粘着滞后现象表明 AFM 在轻敲工作模式中将耗散能量.

图 6 给出了在相同的名义间距处,平面在加载和卸载过程中的轮廓曲线.由图 6 可见,当名义间距相同时,AFM 加载过程中的接触区域小于卸载过程中的接触区域,这是由 AFM 针尖与样品间的粘着引力造成的.粘着引力将引起 AFM 在加载和卸载过程中存在“突跳”现象^[17],即针尖与样品突然的接触或分离,表明了由 AFM 与样品组成的整个系统存在非平衡转变过程,在非转变过程中,系统将以热能的形式耗散能量,

从而导致在相同的名义间距下,AFM 加载过程中的接触区域小于卸载过程中的接触区域^[18].所以当名义间距相同时,加载过程的粘着力(绝对值)小于卸载过程的粘着力(绝对值),导致了粘着滞后和能量耗散现象的出现.所以,文中建立的粘着接触弹性模型可以从理论上解释 AFM 在轻敲模式中的粘着滞后和能量耗散现象的产生机理.

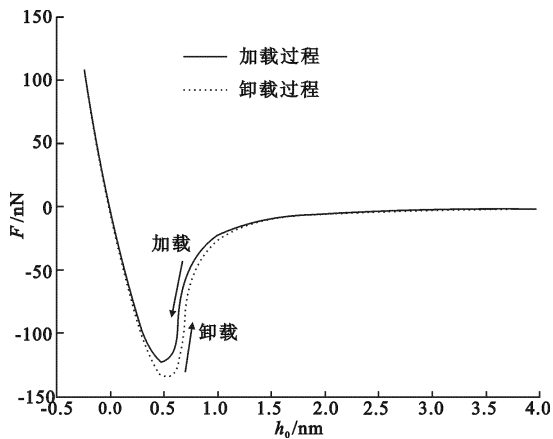


图 5 加载和卸载过程中粘着力随间距的变化曲线

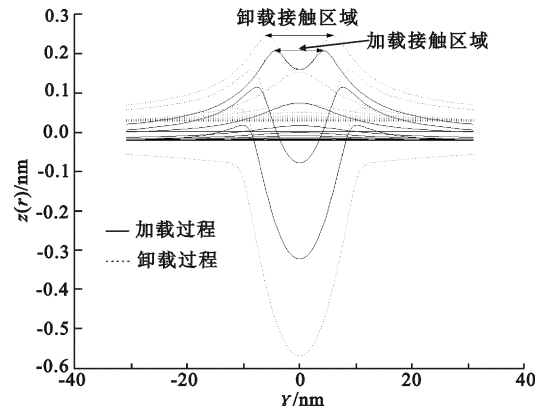


图 6 平面轮廓在 AFM 加载和卸载过程中的变形过程

综合以上分析可见,AFM 针尖与样品间的粘着引力引起 AFM 的“突跳”现象,而 AFM 的“突跳”现象表明了 AFM 在加载和卸载中将耗散能量. AFM 在加载和卸载中的粘着力滞后现象、接触区域在相同名义间距下的不一致现象等只是耗散能量的不同表现形式.同时,由于 AFM 的粘着滞后现象在物理本质上是由针尖与样品间的粘着引力引起的,与 AFM 的加载和卸载速度无关,所以文中所建的粘着模型可以描述不同敲击频率下,粘着力随间距的变化规律.

4 结束语

基于 Hamaker 假设和 Lennard-Jones 势能定律,并结合经典弹性理论建立了一种新型的粘着接触弹性模型,所建模型与现有的粘着理论给出的平面变形量随粘着力的变化规律基本相同,证实了所建模型在研究粘着接触问题中的有效性.同时,根据所建模型研究了 AFM 在轻敲工作模式中粘着滞后和能量耗散现象的产生机理.结果表明,当 AFM 针尖与样品表面的名义间距相同时,由于粘着力的存在,卸载过程中针尖与样品间的接触区域大于加载过程中的接触区域,导致了卸载过程中针尖与样品间的粘着力(绝对值)大于加载过程中的粘着力(绝对值),从而产生了粘着滞后和能量耗散现象.

参考文献:

- [1] 田文超,贾建援. 扫描探针显微镜系列及其应用综述[J]. 西安电子科技大学学报, 2003, 30(1):108-112.
- [2] Burnham N A, Behrend O P, Oulevey F, et al. How Does a Tip Tap? [J]. Nanotechnology, 1997, 8(2): 67-75.
- [3] Paulo A S, Garcia R. Amplitude, Deformation and Phase Shift in Amplitude Modulation Atomic Force Microscopy: a Numerical Study for Compliant Materials [J]. Surface Science, 2001, 471(1): 71-79.
- [4] Dubourg F, Aime J P. Role of the Adhesion Between a Nanotip and a Soft Material in Tapping Mode AFM[J]. Surface Science, 2000, 466(11): 137-143.
- [5] Martinez N F, Garcia R. Measuring Phase Shifts and Energy Dissipation with Amplitude Modulation Atomic Force Microscopy[J]. Nanotechnology, 2006, 17(7): 167-172.
- [6] Landman U, Luedtke W D, Nancy A B. Atomistic Mechanisms and Dynamics of Adhesion, Nanoidentation and Fracture [J]. Science, 1990, 248(4): 454-461.
- [7] Tamayo J, Garcia R. Relationship Between Phase Shift and Energy Dissipation in Tapping-mode Scanning Force Microscopy[J]. Applied Physics Letters, 1998, 73(2): 2926-2928.
- [8] Johnson K L, Kendall K, Roberts A D. Surface Energy and the Contact of Elastic Solids [J]. Proceedings of the Royal

Society of London, 1971, 324(1): 301-313.

- [9] Derjaguin B V, Muller V M, Toprov Yu P J. Effect of Contact Deformation on the Adhesion of Particles [J]. Journal of Colloid and Interface Science, 1975, 53 (2): 314-326.
- [10] Maugis D, Gauthier-Manuel B. JKR-DMT Transition in the Presence of a Liquid Meniscus [J]. Journal of Adhesion Science and Technology, 1994, 8(11): 1 311-1 322.
- [11] Hamaker H C. The London-van Der Waals Attraction Between Spherical Particles [J]. Physica, 1937, (10): 1 058-1 072.
- [12] Muller V M, Yushchenko V S, Derjaguin B V. On the Influence of Molecular Forces on the Deformation of an Elastic Sphere and its Sticking to a Rigid Plane [J]. Journal of Colloid and Interface Science, 1980, 77(1): 91-101.
- [13] Yu Ning, Polycarpou A A. Adhesive Contact Based on the Lennard-Jones Potential; a Correction to the Value of the Equilibrium Distance as Used in the Potential [J]. Journal of Colloid and Interface Science, 2004, 278(2): 428-435.
- [14] Johnson K L. Contact Mechanics[M]. Cambridge: Cambridge University Press, 1985: 11-80.
- [15] James Q F. Contact Behavior of Spherical Elastic Particles; a Computational Study of Particle Adhesion and Deformations [J]. Colloid and Surfaces(A), 2000, 172(3): 175-198.
- [16] Tabor D. Surface Forces and Surface Interactions[J]. Journal of Colloid and Interface Science, 1977, 58 (1): 2-13.
- [17] 樊康旗, 贾建援, 王卫东. AFM 针尖“突跳”研究[J]. 中国机械工程, 2007, 18(3): 339-343
- [18] Attard P, Parker J L. Deformation and Adhesion of Elastic Bodies in Contact[J]. Physical Review A, 1992, 46(12): 7 975-7 971.

(编辑: 齐淑娟)

(上接第 938 页)

4 结束语

笔者提出了图像傅里叶谱灵活分割的思想,研究了基于直接结构多通道线性相位非均匀滤波器组的图像频谱分割与去噪的方法.根据实际应用的要求,设计具有合适采样因子的非均匀滤波器组对图像的频谱进行分割,为图像的频谱分割提供了简便、灵活的工具.将这一频谱分割思想应用到去除特定噪声的处理之中,效果也比较明显.实验结果表明该方法实现简单,尤其是在原始图像的频谱分布比较集中时非常有效.

参考文献:

- [1] Chambolle A, DeVore R A, Lee N Y, et al. Nonlinear Wavelet Image Processing: Variational Problems, Compression, and Noise Removal through Wavelet Shrinkage [J]. IEEE Trans on Image Processing, 1998, 7(3): 319-355.
- [2] Nowak R D, Baraniuk R G. Wavelet-domain Filtering for Photon Imaging Systems [J]. IEEE Trans on Image Processing, 1999, 8(5): 666-678.
- [3] Turkheimer F E, Aston J A D, Banati R B, et al. A Linear Wavelet Filter for Parametric Imaging with Dynamic PET [J]. IEEE Trans on Medical Imaging, 2003, 22(3): 289-301.
- [4] Ercelebi E, Koc S. Lifting-based Wavelet Domain Adaptive Wiener Filter for Image Enhancement [J]. IEE Proc of Vision, Image and Signal Processing, 2006, 153(1): 31-36.
- [5] Mitrovski C D, Kostov M B. NM Images Filtering Using NPR QMF Filters Dependent on the Images Spectrum [C]//Proc of TELSIKS'05. Serbia; IEEE, 2005: 119-122.
- [6] Xie X M. A Novel Method for Designing Low-delay Perfect-reconstruction Tree-structured Filter Banks as Adaptive Frequency Excisers in DSSS Communication Systems [C]//Proc of WIRELESSCOM 2005. Hawaii; IEEE, 2005: 475-480.
- [7] Xie X M, Chen X Y, Shi G M. A Simple Design Method of Linear-phase Nonuniform Filter Banks with Integer Decimation Factors [C]//Proc of MWSCAS 2005. Cincinnati; IEEE, 2005: 724-727.

(编辑: 郭 华)