

Abbildung und Messung lokaler mechanischer Materialparameter mittels Ultraschall-Kraftmikroskopie

U. Rabe, M. Kopycinska, S. Hirsekorn, W. Arnold

Fraunhofer Institut für zerstörungsfreie Prüfverfahren (IZFP), Universität, Geb. 37, D-66123 Saarbrücken, Deutschland

In der Ultraschall-Kraftmikroskopie /1-5/ wird die Oberfläche einer Probe im Kontaktmodus abgerastert, während die Blattfeder des Kraftmikroskops hochfrequent schwingt. Der Kontakt zwischen Sensorspitze und Probe bewirkt, daß sowohl Amplitude und Phase der Blattfederschwingungen als auch Änderungen in der mittleren Blattfederauslenkung und den Resonanzfrequenzen der Blattfeder Informationen über lokale mechanische Eigenschaften der Probenoberfläche enthalten und als akustische Abbildungsparameter genutzt werden können. Die theoretische Beschreibung und Berechnung der Ultraschallübertragung im Kraftmikroskop mit einem geeigneten Modell für die Wechselwirkungskraft zwischen Sensorspitze und Probe ermöglicht eine quantitative Auswertung der Bildkontraste und damit die Bestimmung lokaler mechanischer Materialparameter der Probenoberfläche. Für kleine Schwingungsamplituden von Probenoberfläche und Blattfeder, die näherungsweise eine Linearisierung der Wechselwirkungskraft erlauben, wurde dies bereits mit der Kontaktresonanz-Spektroskopie /6/ realisiert. Mit diesem Verfahren wird die Kontaktsteifigkeit zwischen Sensorspitze und Probe gemessen, aus der dann mit Hilfe der Hertz'schen Kontakttheorie /7/ der reduzierte E-Modul des Kontaktes berechnet werden kann.

Kraftmikroskop-Blattfedern sind kleine Balken (Länge: einige 100 µm, Breite: einige 10 µm, Dicke im µm-Bereich) mit einem fest eingeklemmten und, ohne Probenkontakt, einem freien Ende. Die Balken können Biegeschwingungen ausführen und besitzen durch Geometrie und Material festgelegte Resonanzfrequenzen /2/. Diese können bei ausreichender Bandweite der Empfangselektronik mit einem kommerziellen Instrument, z.B. dem Dimension 3000 Nanoscope (Digital Instruments, Santa Barbara, CA, USA) gemessen werden. Ist die Sensorspitze der Blattfeder in Kontakt mit einer Probe (Abb. 1), modifizieren die Wechselwirkungskräfte zwischen Spitze und Probe die Randbedingungen der schwingenden Blattfeder und damit auch die Resonanzfrequenzen und die Dämpfung. Die Kontaktresonanzen werden durch einen Schallwandler unter der Probe angeregt, der longitudinale Ultraschallwellen in die Probe emittiert und so Vertikalschwingungen der Probenoberfläche erzeugt. Die Oberflächenschwingungen werden über den Kontakt der Spitze mit der Probe auf die Blattfeder übertragen.

Die Kräfte zwischen Spitze und Probe besitzen i.a. Komponenten vertikal und lateral zur Probenoberfläche. Der Beitrag der Lateralkräfte, der von dem Winkel zwischen der schräg aufgehängten Blattfeder und der Probenoberfläche sowie der

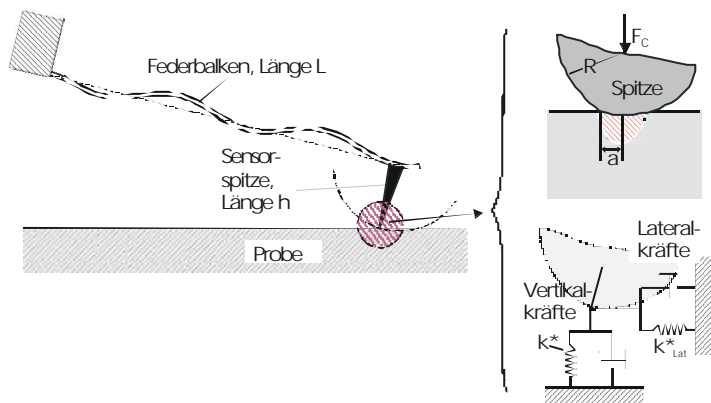


Abb. 1: Kraftmikroskop-Blattfeder mit Probenkontakt

Länge der Sensorspitze abhängt (Abb. 1), wird in unserer Auswertung vernachlässigt. Ist die auf die Spitze durch die Auslenkung Δz der Blattfeder mit Federkonstante k_c wirkende statische Kraft $F_c = k_c \Delta z$ groß im Vergleich zu den adhäsiven Kräften, können diese vernachlässigt und die Wechselwirkung allein durch elastische Kräfte mit der Hertz'schen Kontakttheorie /7/ beschrieben werden. Die Adhäsionskräfte liegen i.a. im Bereich von ca. 10^{-8} bis maximal 10^{-7} N. Um etwa eine Größenordnung höhere statische Auflagekräfte zu erreichen, sind steife Balken mit Federkonstanten von ca. $k_c \cong 40-70$ N/m und statische Auslenkungen im Bereich von $\Delta z \cong 10$ nm erforderlich. Bei Reduzierung der Spitzenradien verringern sich die Adhäsionskräfte, so daß dadurch Kontaktspektroskopiemessungen mit weicheren Blattfedern werden.

Wenn eine kugelförmige Sensorspitze mit Radius R auf eine ebene Probenoberfläche drückt, entsteht eine kreisförmige Kontaktfläche mit dem Radius

$$(1) a = \sqrt[3]{3F_c R / (4E^*)} .$$

Der reduzierte Youngsche Modul des Kontaktes E^* enthält die E-Moduli E_S und E_T sowie die Poissonzahlen ν_S und ν_T des Proben- und Spitzenmaterials,

$$(2) 1/E^* = (1-\nu_S^2)/E_S + (1-\nu_T^2)/E_T .$$

Der Kontaktradius a bestimmt die laterale Auflösung. Das elastische Spannungsfeld erstreckt sich bis etwa 3a tief in die Probe.

Bei kleinen Schwingungsamplituden von Probenoberfläche und Blattfeder ist die Wechselwirkung näherungsweise allein durch die Steigung der Kraftkurve in der statischen Gleichgewichtslage der Spitze, der Kontaktsteifigkeit

$$(3) k^* = \sqrt[3]{6E^*{}^2 R F_c} ,$$

bestimmt. In diesem Fall können die Kontaktresonanzfrequenzen der Blattfeder-Biegeschwingungen analytisch als Funktion der Kontaktsteifigkeit angegeben werden, so daß diese aus gemessenen Kontaktresonanzen bestimmt werden kann.

Im allgemeinen ist die Sensorspitze nicht kugelförmig, kann aber, wie bei Nanoindenter - Experimenten üblich, durch einen Rotationskörper um ihre Längsachse beschrieben werden, und es gilt weiterhin die für das Hertz'sche Modell abgeleitete Beziehung /8/

$$(4) E^* = k^* / (2a) .$$

Im Hertz'schen Kontaktmodell wurde angenommen, daß sowohl das Indenter- als auch das Probenmaterial isotrop sind. Typische Kontaktradien im Kraftmikroskop betragen einige nm bis einige 10 nm, je nach Radius der Sensorspitze und statischer Auflagekraft. Viele makroskopisch isotrope Polykristalle erscheinen deshalb in kraftmikroskopischen Messungen anisotrop, denn die Spitze kontaktiert jeweils nur ein einzelnes Korn. In der Literatur sind Beschreibungen von Kontakten zwischen Körpern allgemeiner Form und Materialanisotropie nach der Hertz'schen Theorie zu finden /7, 9/. Es wurde gezeigt, daß bei drei- oder vierachsiger Rotationsymmetrie der Körper um eine Achse senkrecht zur Kontaktfläche diese kreisförmig bleibt. Dann können die Gleichungen für isotrope Materialien übernommen werden, wenn man die isotropen Größen $E/(1-\nu^2)$ durch die entsprechenden Indentations-Moduli der anisotropen Einkristalle ersetzt /10/. Für verschiedene ausgezeichnete Richtungen in kubischen Kristallen wurden die Indentations-

Moduli in /10/ berechnet. Statt Gleichung (2) gilt dann für den reduzierten E-Modul des Kontaktes

$$(5) \quad 1/E^* = 1/M_S + 1/M_T.$$

Hier sind M_S und M_T die Indentations-Moduli von Probe und Spitze.

Kontaktresonanzfrequenzen der einzelnen Schwingungsmoden der Blattfeder sind höher als ihre entsprechenden freien Resonanzen, aber niedriger als die freie Resonanz des jeweils nächsthöheren Schwingungsmodes. Die Kontaktsteifigkeiten und damit auch die Kontaktresonanzfrequenzen steigen gemäß Gleichung (3) mit zunehmender statischer Auflagekraft. Für die quantitative Bestimmung der mechanischen Steifigkeit einer Probenoberfläche werden zunächst drei freie Resonanzfrequenzen der Blattfeder bestimmt. Dann wird eine Reihe von Kontaktresonanzspektren von mindestens zwei Schwingungsmodes mit drei verschiedenen statischen Auflagekräften aufgenommen. Die Messungen werden abwechselnd auf einem Referenzmaterial mit bekannten elastischen Eigenschaften (z.B. (100)-Oberfläche eines Siliziumkristalls) und der zu untersuchenden Probe durchgeführt. Die freien Resonanzfrequenzen beinhalten Informationen über die Blattfedergeometrie, die Kontaktresonanzen erlauben dann die Berechnung der Kontaktsteifigkeit k^* auf der unbekannt Probe /11/. Aus den als Funktion der statischen Auflagekraft auf der Referenzprobe gemessenen Kontaktresonanzen wird der Kontaktradius und effektive Spitzenradius gemäß der Hertz'schen Kontakttheorie bestimmt. Der reduzierte E-Modul des Kontaktes auf der unbekannt Probe folgt dann mit Gleichung (3) aus dem reduziertem E-Modul E_R^* und der Steifigkeit k_R^* des Kontaktes auf der Referenzprobe,

$$(6) \quad E^* = E_R^* \sqrt{k^*{}^3 / k_R^*{}^3}.$$

Bei Messungen mit Sensorspitzen aus Silizium ergeben sich häufig abnehmende effektive Spitzenradien mit zunehmender statischer Auflagekraft. Dies ist ein Hinweis darauf, daß die Spitze nicht kugelförmig ist, sondern eher einem Zylinder mit flachem Ende gleicht. Die Kontaktfläche hängt dann nicht von der statischen Auflagekraft ab, und der reduzierte Youngsche Modul des Kontaktes auf der unbekannt Probe folgt aus

$$(7) \quad E^* = E_R^* k^* / k_R^*.$$

Die Gleichungen (6) und (7) geben die untere und die obere Grenze des reduzierten Youngschen Kontaktmoduls an. Der Indentations-Modul der Spitze ist bekannt. Damit erhält man aus Gleichung (5) den Indentations-Modul der untersuchten Probe.

Abb. 2 zeigt Kraftmikroskopieaufnahmen einer polierten Piezokeramik-Probe. Das konventionelle Topographie-Bild 2a) einer Fläche von $2,5 \times 2,5 \mu\text{m}^2$ gibt Höhenunterschiede bis zu 10 nm wieder, die die verschiedenen Körner in der Keramik erkennen lassen. Gleichzeitig wurde ein Ultraschall-Bild 2b) der Fläche mit der Schwingungsamplitude der Blattfeder als abbildende Größe aufgenommen. Die Anregungsfrequenz bleibt während der Aufnahme eines Bildes konstant und muß nahe einer Kontaktresonanz gewählt werden, um einen meßbaren Kontrast in den akustischen Bildern zu bekommen. Ist die Anregungsfrequenz höher als die Resonanz, werden Bereiche hoher Kontaktsteifigkeit heller als solche mit niedriger Steifigkeit abgebildet. Anregungsfrequenzen niedriger als die Kontaktresonanz zeigen demgegenüber eine Kontrastumkehr /6/.

Das akustische Bild 2b) der Probenoberfläche enthält Strukturen, die im reinen Höhenbild 2a) nicht sichtbar sind. Derartige streifenförmige Muster sind typisch für 90° -Domänen in ferroelektrischen Materialien mit tetragonaler Kristall

symmetrie /12/. In piezoelektrischen Materialien beeinflußt die elektrische Polarisierung das elastische Verhalten, so daß mit Ultraschallabbildungsverfahren, deren laterales Auflösungsvermögen kleiner ist als die Linearabmessungen der ferroelektrischen Domänen, diese wegen ihrer unterschiedlichen Orientierung sichtbar gemacht werden können. In Abb. 2c) sind die längs der in Abb. 2b) gekennzeichneten Linie gemessenen Kontaktresonanzfrequenzen dargestellt.

Die quantitative Auswertung der Kontaktresonanzfrequenzen an zwei Stellen der Keramikprobe lieferte Indentations-Modulivon $M_{PIC} = 147 \pm 19 \text{ GPa}$ und $137 \pm 18 \text{ GPa}$. Die Meßungenauigkeiten des Verfahrens gehen primär auf die Geometrie der Blattfeder, wie nicht konstanter Querschnitt und Sensorspitzenposition nicht mittig auf der Längsachse des Balkens, zurück. Mit den z.Z. verfügbaren Blattfedern resultieren daraus Fehler von etwa 20% im Indentations-Modul. Die Änderung der Spitzenform während der Messung aufgrund von Abnutzung bedingt eine zusätzliche Ungenauigkeit.

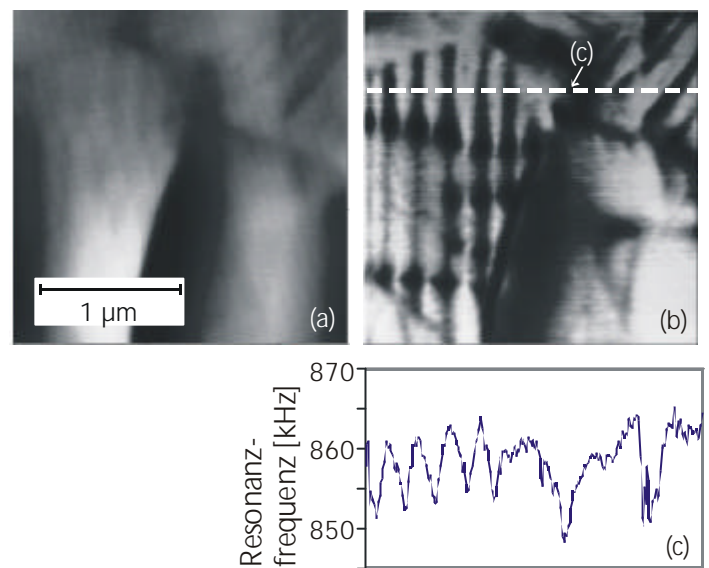


Abb. 2: a) Topographie- und b) Ultraschall-AFM-Bild einer PIC 151 Probe, c) Kontaktresonanzfrequenzen längs der Linie in b)

- /1/ P. E. Mazeran, J. L. Loubet, Trib. Let. **3**, 125 (1995).
- /2/ U. Rabe, K. Janser, W. Arnold, Rev. Sci. Instrum. **67**, 3281 (1996).
- /3/ N. A. Burnham, G. Gremaud, A. J. Kulik, P. J. Gallo, F. Oulevy, Jour. Vac. Sci. Tech. **B14**, 1308 (1996).
- /4/ O. Wright, N. Nishiguchi, Appl. Phys. Lett. **71**, 626 (1997).
- /5/ K. Yamanaka, S. Nakano, Appl. Phys. **A66**, S313 (1998).
- /6/ U. Rabe, S. Amelio, M. Kopycinska, S. Hirsekorn, M. Kempf, M. Göken, W. Arnold, Surf. Interf. Anal. (im Druck).
- /7/ K. L. Johnson, Contact Mechanics, Cambridge University Press, Cambridge, 1995.
- /8/ G. M. Pharr, W. C. Oliver, F. Brotzen, J. Mat. Res. **7**, 613 (1992).
- /9/ J. R. Willis, J. Mech. Phys. Solids **14**, 163 (1966).
- /10/ J. J. Vlassak, and W. D. Nix, Phil. Mag. **A67**, 1045 (1993).
- /11/ E. Kester, U. Rabe, L. Presmanes, Ph. Tailhades, and W. Arnold, J. Phys. Chem. of Solids **61**, 1275 (2000).
- /12/ B. Jaffe, W. R. Cook, and H. Jaffe, Piezoelectric Ceramics, Academic Press, London, 1971.