

# Лазерная адаптивная голографическая система микровзвешивания нанобъектов

Р.В.Ромашко, Т.А.Ефимов, Ю.Н.Кульчин

*Предложена и экспериментально реализована система измерения массы микро- и нанобъектов на основе резонансного микровзвешивания с использованием принципов адаптивной голографической интерферометрии. Чувствительным элементом системы является микрокантилевер, к которому присоединяются объекты, подлежащие взвешиванию. Собственные колебания микрокантилевера возбуждаются лазерным импульсом. Детектирование колебаний осуществляется с помощью адаптивного голографического интерферометра, ключевой элемент которого – динамическая голограмма – формируется в фоторефрактивном кристалле CdTe. Зарегистрированное изменение массы присоединенных к микрокантилеверу частиц составило  $(420 \pm 9) \times 10^{-12}$  г, точность измерений –  $8.5 \times 10^{-12}$  г. Чувствительность измерительной системы равна  $1.7 \times 10^{12}$  Гц/г. Экспериментально продемонстрирована возможность увеличения чувствительности системы в  $6.5 \times 10^6$  раз и снижения порога детектирования массы в  $1.5 \times 10^7$  раз за счет использования микрокантилеверов субмикронных размеров.*

**Ключевые слова:** резонансное микровзвешивание, микрокантилевер, адаптивная интерферометрия.

## 1. Введение

Измерение сверхмалых масс является важной составляющей исследований в области нанотехнологий, биологии, химии, материаловедении, реологии др. [1–3]. Традиционно массы атомов или молекул измеряют методом масс-спектрометрии [4]. Однако применение данного метода для определения массы сложных белковых соединений или наночастиц оказывается крайне затруднительным, а в некоторых случаях практически невозможным, т.к. измерение электрического заряда подобных объектов представляет собой отдельную сложную задачу [5]. С этих позиций более предпочтительным подходом к определению массы микрообъектов является резонансное микровзвешивание, которое заключается в измерении частоты собственных колебаний колебательных систем – микроосцилляторов, к которым присоединяются микро- и нанобъекты [2, 6]. Данный подход используется для определения масс малых частиц, в том числе белковых молекул, вирусов и бактерий [1, 6–9]. Детектирование колебаний микрообъектов и микроосцилляторов осуществляется, в основном, оптическими методами [1–3, 8, 9], из которых наиболее чувствительными являются интерферометрические методы, потенциально позволяющие детектировать колебания амплитудой в несколько ангстрем.

Вместе с тем применение классического интерферометра в подобных системах связано с рядом технических

трудностей. Первая обусловлена высокой чувствительностью интерферометра, которая делает его в значительной степени подверженным влиянию внешних факторов (изменение температуры, давления, неконтролируемые деформации, микросейсмические вибрации и пр.), что влечет за собой нарушение стабильности работы измерительной системы, появление дополнительных шумов и, как следствие, повышение порога детектирования массы. Применение же электронных систем стабилизации рабочей точки интерферометра существенно усложняет измерительную систему в целом и вносит в ее работу дополнительные шумы [10].

Другая ключевая проблема, стоящая на пути создания систем резонансного микровзвешивания на основе интерферометров, обусловлена тем, что увеличение их чувствительности неразрывно связано с необходимостью уменьшения размеров микроосциллятора. Размеры современных микроосцилляторов сопоставимы с поперечным размером зондирующего (объектного) лазерного пучка в месте его фокусировки, а их дальнейшее уменьшение приводит к значительным искажениям фронта объектной волны интерферометра. В свою очередь, рассогласование волновых фронтов интерферирующих пучков влечет за собой падение чувствительности интерферометра вплоть до полного нарушения его работоспособности. Указанная проблема становится особенно актуальной при переходе к использованию осцилляторов субмикронного и нанометрового масштабов. Кроме того, поверхность микроосцилляторов в силу технологических особенностей не всегда может быть выполнена зеркальной, что также вносит дополнительные искажения в волновой фронт, снижает точность определения массы и повышает порог детектирования.

Комплексное решение указанных проблем, по всей видимости, заключается в использовании при создании систем измерения сверхмалых масс принципов адаптивной интерферометрии [11, 12]. Ключевым элементом адап-

Р.В.Ромашко, Ю.Н.Кульчин. Дальневосточный федеральный университет, Россия, 690950 Владивосток, ул. Суханова, 8; Институт автоматизации и процессов управления ДВО РАН, Россия, 690041 Владивосток, ул. Радио, 5; e-mail: romashko@iacp.dvo.ru  
Т.А.Ефимов. Институт автоматизации и процессов управления ДВО РАН, Россия, 690041 Владивосток, ул. Радио, 5; e-mail: tim2vl@yandex.ru

тивного интерферометра является динамическая голограмма, формируемая в фоторефрактивном кристалле (ФРК). Голографический принцип объединения волн в кристалле позволяет обеспечить точное согласование произвольных волновых фронтов опорного и зондирующего световых пучков, а адаптивные свойства динамической голограммы обеспечивают стабилизацию рабочей точки интерферометра в области его максимальной чувствительности, где реализуются квадратурные условия. Последнее позволяет исключить влияние неконтролируемых изменений параметров окружающей среды [13], что делает возможным использование таких систем во внелабораторных условиях. Таким образом, построение систем на основе динамических голограмм в ФРК открывает перспективы существенного увеличения их чувствительности за счет использования микроосцилляторов предельно малых размеров, произвольной формы и с произвольной структурой поверхности.

В связи с этим целью настоящей работы стало построение и практическая апробация системы измерения сверхмалых масс на основе резонансного микровзвешивания с использованием принципов адаптивной голографической интерферометрии.

## 2. Экспериментальная установка

В качестве чувствительного элемента (микроосциллятора) в настоящей работе используется микрокантилевер с размерами  $180 \times 40 \times 15$  мкм, выполненный из кремния. Один из концов микрокантилевера закреплен на жестком основании, другой остается свободным, и к нему присоединяются объекты, подлежащие взвешиванию. Частота собственных колебаний микрокантилевера определяется его геометрией, физическими параметрами, массой присоединенных объектов и может быть рассчитана с помощью следующего выражения [7]:

$$f = \frac{\eta^2 T}{2\pi L^2} \left[ \frac{E}{12\rho(1 + 4\gamma)} \right]^{1/2}, \quad (1)$$

где  $\gamma$  – отношение массы  $m$ , присоединенной к микрокантилеверу, к массе микрокантилевера  $m_0$ ;  $\rho$  – плотность материала микрокантилевера;  $L$  и  $T$  – длина и толщина микрокантилевера соответственно;  $E$  – модуль Юнга материала, из которого изготовлен микрокантилевер;  $\eta$  – зависящий от  $\gamma$  безразмерный параметр,  $\eta(\gamma) = 1.875/(1 + 4\gamma)$ . Отметим, что в довольно широком интервале значений  $\gamma$  (от 0 до 0.01) параметр  $\eta$  изменяется слабо (от 1.875 до 1.803) и в расчетах принимается постоянным.

Схема лазерной адаптивной системы для измерения малых масс представлена на рис.1. Собственные колебания микрокантилевера возбуждаются импульсами лазерного излучения с длиной волны  $\lambda = 532$  нм, длительностью 7 нс, энергией 0.5 мДж и частотой следования 1 Гц. В свою очередь детектирование собственных колебаний микрокантилевера осуществляется с помощью адаптивного интерферометра. В последнем в качестве источника излучения используется непрерывный лазер, генерирующий излучение с  $\lambda = 1064$  нм и мощностью 20 мВт. Излучение лазера делится на объектный и опорный пучки с соотношением интенсивностей 1 : 5. Объектный пучок фокусируется короткофокусной линзой на свободном конце микрокантилевера, после отражения от которого попадает на грань (100) фоторефрактивного кристалла CdTe, где,

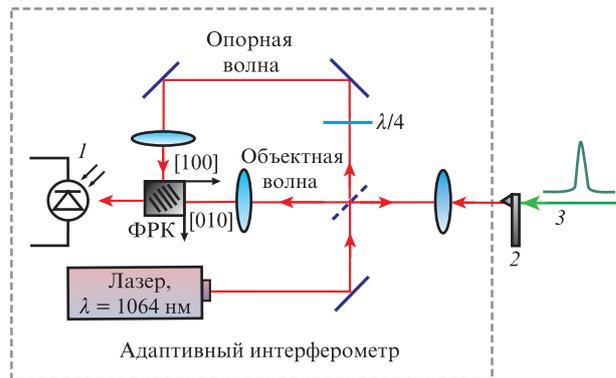


Рис.1. Схема экспериментальной установки для измерения сверхмалых масс:

1 – фотоприемник; 2 – микрокантилевер; 3 – лазерный импульс ( $\lambda = 532$  нм); ФРК – фоторефрактивный кристалл;  $\lambda/4$  – четвертьволновая пластинка.

взаимодействуя с опорным пучком, распространяющимся вдоль оси кристалла [010], формирует динамическую голограмму. Взаимодействие опорного и объектного пучков интерферометра на динамической голограмме обеспечивает преобразование изменений фазы, вызванных колебаниями микрокантилевера, в изменения интенсивности [13], которые регистрируются фотоприемником. С использованием методики, описанной в работе [14], определена чувствительность интерферометра, составившая  $5.2 \times 10^{-8}$  рад·Вт<sup>-1/2</sup>·Гц<sup>-1/2</sup>. Время записи голограммы при интенсивности 13 Вт/см<sup>2</sup> было равно 2.5 мс, что соответствует частоте отсечки 400 Гц. Таким образом, использование в измерительной системе динамической голограммы позволяет исключить влияние шумов с характерной частотой до 400 Гц.

## 3. Методика и результаты эксперимента

Регистрация сигнала, принимаемого фотоприемником, осуществляется с помощью осциллографа, синхронизованного с импульсным лазером. Данные с осциллографа передаются в компьютер, с помощью которого определяется частота колебаний микрокантилевера. Характерный вид регистрируемого сигнала и его фурье-спектр представлены на рис.2. На осциллограмме в момент времени  $t = 0$  с на микрокантилевер попадает лазерный импульс, возбуждающий колебания. Затем происходит установление собственных колебаний, продолжительность которых для использованного в работе кантилевера и исходной энергии лазерного импульса 0.5 мДж составила 0.5 мс.

Измерительная система была экспериментально апробирована при измерении масс нанообъектов, которыми служили наночастицы платины. Перед началом измерений наночастицы с характерными поперечными размерами от 60 до 400 нм помещались на микрокантилевер методом магнетронного вакуумного напыления. В процессе измерения каждый лазерный импульс, возбуждающий колебания, приводил к отсоединению некоторого количества наночастиц от микрокантилевера, что иллюстрируется фотоснимками, сделанными до и после воздействия 62 лазерных импульсов (рис.3). Вызванное постепенным удалением наночастиц уменьшение присоединенной к микрокантилеверу массы приводило к соответствующему росту частоты его собственных колебаний (рис.4). Видно,

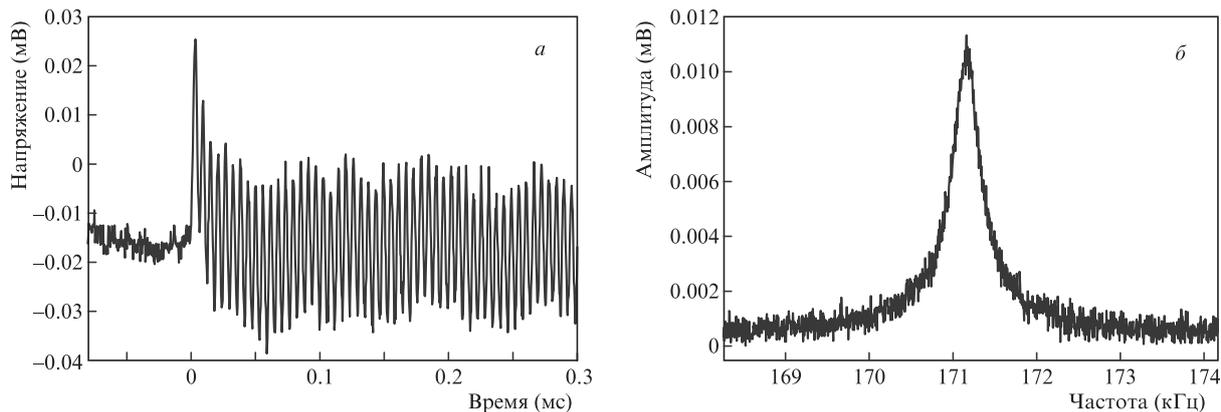


Рис.2. Осциллограмма сигнала, принимаемого фотоприемником (а), и его фурье-спектр (б).

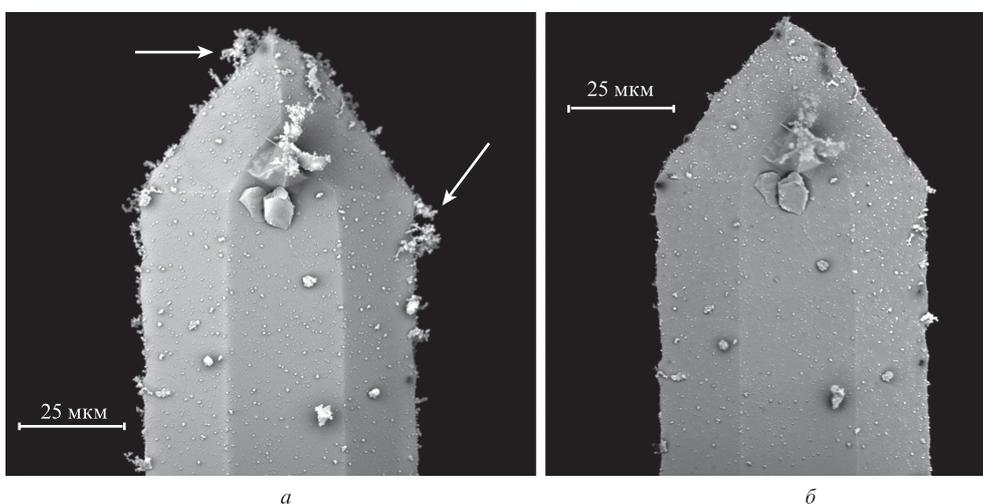


Рис.3. Фотоснимки свободного конца микрокантилевера с помещенными на него наночастицами платины (указаны стрелками) до воздействия лазерных импульсов (а) и после воздействия 62 лазерных импульсов (б).

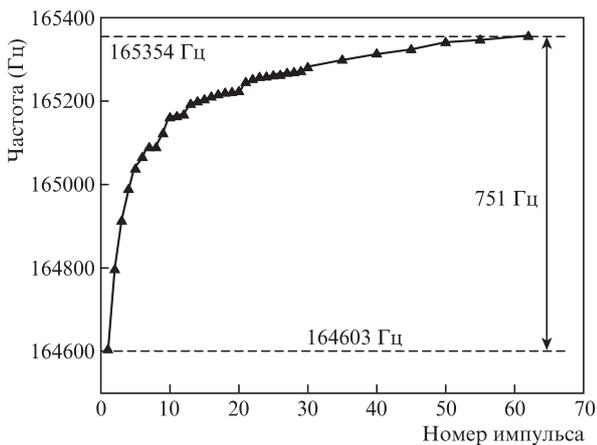


Рис.4. Динамика изменения частоты собственных колебаний микрокантилевера с присоединенной массой в процессе воздействия 62 лазерных импульсов.

что после воздействия 62 лазерных импульсов частота колебаний микрокантилевера увеличилась на 751 Гц. Используя зарегистрированное изменение частоты, с помощью выражения (1) можно определить суммарное изменение массы присоединенных частиц, которое в данном случае составило  $420 \times 10^{-12}$  г.

#### 4. Чувствительность измерительной системы и порог детектирования массы

Из выражения (1) можно получить связь между погрешностью измерения частоты  $\delta f$  и погрешностью определения массы  $\delta m$ :

$$\delta m = \frac{m_0}{2} \frac{\delta f}{f}. \tag{2}$$

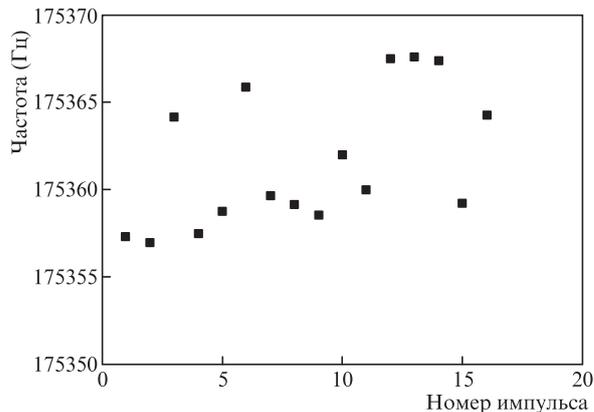


Рис.5. Разброс частот собственных колебаний микрокантилевера.

Фактически выражение (2) определяет порог детектирования массы, присоединенной к микрокантилеверу, который в свою очередь определяется относительной погрешностью измерения частоты. На рис.5 отражен экспериментально полученный статистический разброс частот собственных колебаний в ходе 16 измерений, выполненных при постоянной массе микрокантилевера  $m_0$  (в отсутствие присоединенной массы,  $m = 0$ ), из которого определена погрешность измерения частоты  $\delta f = 15$  Гц. Таким образом, для использованного в данной работе микрокантилевера погрешность определения массы составила  $8.5 \times 10^{-12}$  г.

Чувствительность  $S$  представленной измерительной системы определяется как отношение сдвига частоты колебаний к изменению присоединенной массы:  $S = \partial f / \partial m$ . При условии малости отношения присоединенной массы к массе микрокантилевера ( $m/m_0 \ll 1$ ) чувствительность  $S$  может быть выражена через параметры микрокантилевера следующим образом:

$$S = -a/(WL^3), \quad (3)$$

где  $a = (3/\pi^3)[E/(12\rho)^3]^{1/2}$ ;  $W$  – ширина микрокантилевера.

Для использованного в работе кремниевого микрокантилевера с размерами  $180 \times 40 \times 15$  мкм и модулем Юнга  $E = 82$  ГПа чувствительность системы составила  $-1.7 \times 10^{12}$  Гц/г. Естественно, что уменьшение размеров микрокантилевера обеспечит увеличение чувствительности. При этом, как следует из выражения (3), оно будет наибольшим при уменьшении длины микрокантилевера. В свою очередь, как следует из выражения (2), порог детектирования массы  $\delta m$  определяется не только размерами микрокантилевера, но и погрешностью измерения частоты  $\delta f$ . С одной стороны, уменьшение размеров микрокантилевера приведет к увеличению чувствительности и частоты собственных колебаний (и, как следствие, к уменьшению порога детектирования), с другой – с увеличением частоты можно ожидать и увеличения абсолютной погрешности измерения частоты колебаний. Полагая, что с изменением размера микрокантилевера относительная погрешность измерения частоты колебаний  $\delta f/f$  не изменяется, можно показать, что при уменьшении всех размеров микрокантилевера на два порядка чувствительность возрастет в  $10^8$  раз, а порог детектирования снизится при этом в  $10^6$  раз.

В настоящей работе проверена практическая реализуемость снижения порога детектирования массы путем использования осцилляторов предельно малых размеров. Для этого осциллятором в измерительной системе служил микростержень, сформированный методом термического вытягивания на конце кварцевого световода. Микростержень имел форму цилиндра длиной 15 мкм и диаметром 0.3 мкм (что соответствует уменьшению длины, ширины и толщины исходного микрокантилевера в  $1.27 \times 10$ ,  $1.37 \times 10^2$  и  $0.57 \times 10^2$  раз соответственно).

Кварцевый световод, служащий для микростержня основанием, закреплялся на электродинамическом преобразователе, с помощью которого возбуждались колебания микростержня. Объектный пучок интерферометра с радиусом в перетяжке 17 мкм направлялся на боковую поверхность микростержня, после отражения от которой возвращался в кристалл. Микростержень при этом с помощью транслятора поступательно перемещался относительно объектного пучка вдоль своей оси. На рис.6 пока-

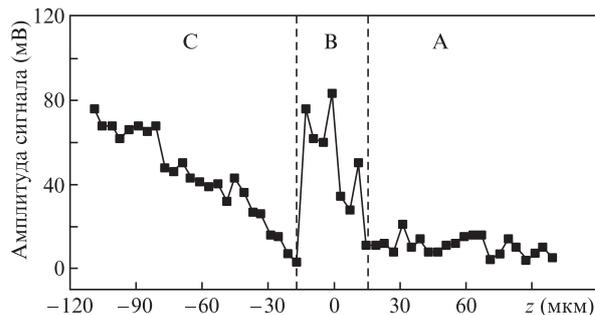


Рис.6. Амплитуда демодулированного сигнала при различных положениях зондирующего светового пучка относительно микростержня; А – объектный пучок не попадает на микростержень; В – объектный пучок попадает на микростержень; С – объектный пучок попадает на основание микростержня (кварцевый световод).

зана экспериментально полученная зависимость амплитуды регистрируемого сигнала от положения объектного пучка относительно края микростержня. Из полученных данных видно, что до тех пор, пока расстояние  $z$  от центра объектного пучка до края микростержня превышает радиус пучка, амплитуда сигнала демодуляции равна нулю. Сигнал появляется лишь при попадании объектного пучка на край микростержня. Последующее резкое уменьшение сигнала (при  $z = -17$  мкм), очевидно, связано с попаданием объектного пучка в место «соединения» микростержня с кварцевым световодом, что приводит к преимущественно боковому отражению объектного пучка. Дальнейшее увеличение амплитуды сигнала обусловлено попаданием пучка на кварцевый световод.

Полученный результат служит экспериментальным подтверждением возможности применения осцилляторов, поперечные размеры которых меньше длины волны зондирующего излучения, в системах резонансного микровзвешивания, построенных на основе динамических фоторефрактивных голограмм. Следует отметить, что использованный в работе микростержень имел цилиндрическую форму и был выполнен из слабоотражающего кварцевого волокна (дополнительные отражающие покрытия на микростержень не наносились). Как следствие, мощность излучения, отраженного от такого микростержня, составляла всего 5 мкВт, что оказалось значительно ниже уровня фоновой засветки фотоприемника, обусловленной рассеянием излучения на дефектах кристалла и оптических элементах. Тем не менее система на основе адаптивного интерферометра оказалась способной зарегистрировать колебания столь малого объекта.

С помощью выражений (2) и (3) можно показать, что порог детектирования массы при использовании кремниевого микрокантилевера, сопоставимого по размерам с протестированным микростержнем ( $15 \times 0.3 \times 0.3$  мкм), составит  $5.8 \times 10^{-19}$  г, а чувствительность –  $2.6 \times 10^{19}$  Гц/г. Таким образом, достигается снижение порога детектирования массы в  $1.5 \times 10^7$  раз и увеличение чувствительности в  $6.5 \times 10^6$  раз.

## 5. Заключение

В настоящей работе создана и экспериментально апробирована система измерения сверхмалых масс на основе резонансного микровзвешивания с использованием микрокантилеверов и динамических голограмм, формируемых в фоторефрактивном кристалле. При апробации

измерительной системы зарегистрировано изменение массы, равное  $420 \times 10^{-12}$  г, порог детектирования массы составил  $8.5 \times 10^{-12}$  г, чувствительность  $-1.7 \times 10^{12}$  Гц/г. Благодаря адаптивным свойствам динамических голограмм система может работать в реальных условиях, характеризующихся неконтролируемыми изменениями параметров окружающей среды. Выполнены предварительные исследования возможности построения измерительной системы с использованием осцилляторов субмикронных размеров, применение которых, ввиду значительного уменьшения их размеров, открывает перспективы создания систем с порогом детектирования до  $5.8 \times 10^{-19}$  г.

Исследование выполнено при поддержке Программы «Научный фонд» ДВФУ, а также Минобрнауки РФ (госконтракт 11.519.11.6045).

1. Salehi-Khojin A., Bashash S., Jalili N., Muller M., Berger R. *J. Appl. Phys.*, **105**, 013506 (2009).
2. Wilkening G., Koenders L. *Nanoscale Calibration Standards and Methods: Dimensional and Related Measurements in the Micro- and Nanometer Range* (Weinheim: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2005).
3. Zhao J., Berger R., Gutmann J. *Appl. Phys. Lett.*, **89**, 033110 (2006).
4. Hoffman E., Stroobant V. *Mass Spectrometry: Principles and Applications* (New York: John Wiley and Sons, 2001).
5. Mojarad N., Krishnan M. *Nature Nanotechnol.*, **7** (7), 448 (2012).
6. Singamaneni S. et al. *Adv. Mater.*, **20**, 653 (2008).
7. Ilic B., Craighead H. G., Krylov S., Senaratne W., Ober C., Neuzil P. *J. Appl. Phys.*, **95**, 3694 (2004).
8. Hwu E.-T., Liao H.-S., Bosco F. G., Chen C.-H., Keller S.S., Boisen A., Huang K.-Y. *J. Sensors*, **2012**, 580939 (2012).
9. Gupta S.V. *J. Metrol. Soc. India*, **23**, 3, 177 (2008).
10. Shi C.-H., Chen J.-P., Wu G.-L., Li X.-W., Zhou J.-H., Ou F. *Opt. Express*, **14** (12), 5098 (2006).
11. Stepanov S.I. *Adaptive Interferometry: a New Area of Applications of Photorefractive Crystals* (New York–London: Acad. Press, 1991).
12. Kamshilin A.A., Romashko R.V., Kulchin Yu.N. *J. Appl. Phys.*, **105**, 031101 (2009).
13. Петров М.П., Степанов С.И., Хоменко А.В. *Фоторефрактивные кристаллы в когерентной оптике* (СПб.: Наука, 1992).
14. Di Girolamo S., Kamshilin A.A., Romashko R.V., Kulchin Yu.N., Launay J.-C. *Opt. Express*, **15** (2), 545 (2007).