



ELSEVIER

Contents lists available at ScienceDirect

Engineering

journal homepage: www.elsevier.com/locate/eng



Research
Laser Micro/Nano-Manufacturing—Article

利用激光辐照悬臂式扫描近场光学显微镜探针在金纳米薄膜上直写纳米结构

王学文^a, 梅雪松^{a,*}, 尹海龙^a, 王志军^b, 何小桥^c, 崔健磊^{a,b,*}

^a State Key Laboratory for Manufacturing Systems Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an, 710049, China

^b State Key Laboratory of Solidification Processing, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China

^c Department of Architecture and Civil Engineering, City University of Hong Kong, Hong Kong 999077, China

ARTICLE INFO

Article history:

Received 22 August 2023

Revised 5 June 2024

Accepted 5 July 2024

Available online 6 August 2024

关键词

激光直写

纳米光刻

悬臂式 SNOM 探针

近场制造

摘要

超越衍射极限的纳米结构制造一直是纳米技术研究的焦点。扫描探针显微镜 (SPM) 在纳米结构的检测和制造方面引起了研究人员的关注。本文介绍了一种纳秒激光辐照悬臂式扫描近场光学显微镜 (SNOM) 探针在金纳米薄膜上直写亚波长纳米结构的方法, 无需掩模或真空环境辅助。该方法稳定且可重复, 可长期使用。写入过程后通过原子力显微镜 (AFM) 进行原位形貌检测。使用扫描电子显微镜 (SEM) 证实了特征线宽约为 $83.6 \text{ nm} (< \lambda/6)$ 。稳定重复制备的线宽为 $(167.8 \pm 6.6) \text{ nm}$ 。理论计算表明, SNOM 探针下的椭圆形热分布在探针垂直和水平扫描时产生不同的线宽。这还解释了单脉冲能量的影响机制。模拟线宽与制造线宽保持一致。根据能量色散谱仪 (EDS) 的元素分析, 该方法的机制可以解释为金纳米薄膜的熔化而非氧化。由于其高定位精度、加工精度和瞬时能量, 该技术被认为是一种方便且经济的纳米结构制造方法, 未来有望应用于多种材料的纳米光刻。

© 2024 THE AUTHORS. Published by Elsevier LTD on behalf of Chinese Academy of Engineering and Higher Education Press Limited Company. This is an open access article under the CC BY-NC-ND license (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>).

1. 引言

自上而下 (光刻) 的纳米结构制造仍然是纳米技术中的重大挑战。衍射极限已成为制约传统光学光刻制造尺寸减小的基本障碍。电子束光刻 (EBL) 为光刻胶的处理提供了高空间分辨率 [1], 但不适用于金属纳米薄膜。基于扫描探针显微镜 (SPM) 的扫描探针光刻 (SPL) 通常用于纳米制造, 包括机械划刻 [2–4]、局部阳极氧化 [5–6]、近场刻蚀 [7–9] 和热 SPL (t-SPL) [10–11] 等。SPL 可在多种材料上实现高分辨率纳米图案制造, 无需传统光学光刻或 EBL 所需的昂贵掩模或真空系统。各类 SPL 技术的应用条

件各不相同: 机械刮擦仅适用于柔软样品和硬质原子力显微镜 (AFM) 探针 (如金刚石和 Si_3N_4); 局部阳极氧化可用于在半导体和金属材料上制备氧化物突起结构; t-SPL 则通过诱导热分解在热敏抗蚀剂上加工纳米图案。

扫描近场光学显微镜 (SNOM) 可用于形貌检测和纳米制造 [12]。悬臂式 SNOM 探针也已用于形貌检测 [13–14]。基于金属涂层纳米结构的纳米天线探针已被用于实现高通量。SNOM 探针的纳米级孔径具有多种应用, 包括近场显微镜 [15–16]、针尖增强拉曼/光致发光光谱 [17–18]、荧光传感 [19]、光镊 [20]、共振可调性 [21]、碳纳米管 (CNT) 生长和催化剂活化 [22–23] 以及光捕获产热 [24]。

* Corresponding authors.

E-mail addresses: xsmei@mail.xjtu.edu.cn (X. Mei), cjlxjtu@mail.xjtu.edu.cn (J. Cui).

2095-8099/© 2024 THE AUTHORS. Published by Elsevier LTD on behalf of Chinese Academy of Engineering and Higher Education Press Limited Company. This is an open access article under the CC BY-NC-ND license (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>).

英文原文: Engineering 2025, 49(6): 104–112

引用本文: Xuewen Wang, Xuesong Mei, Hailong Yin, Zhijun Wang, Xiaoqiao He, Jianlei Cui. Direct Writing Nanostructures on Au Nano-Film by Laser Irradiating Cantilevered Scanning Near-Field Optical Microscope Tip. *Engineering*, <https://doi.org/10.1016/j.eng.2024.07.014>

在光学波长下，由表面等离子体激元（SPPs）激发和探针纳米孔径对光的高精度约束产生的近场增强，为实现高空间分辨率纳米制造提供了巨大潜力[25]。使用传统的锥形光纤，已在不同材料（如光刻胶[26–29]、共轭聚合物[30–31]、自组装单层膜[32–34]、硅[35–38]和铬纳米薄膜[39]等）上进行了扫描近场光学光刻（SNOL）研究。总而言之，SNOL依赖于激光与材料之间的物理去除过程或光化学反应。这种方法克服了探针和样品在硬度、导电性等特性上的限制，拓展了纳米制造中适用材料的选择范围。

采用纳秒激光辐照悬臂式SNOM探针在金纳米薄膜上直写纳米结构具有重要意义，因为贵金属（特别是金和银）表现出强烈的局域表面等离子体共振效应。然而，关于该技术的可行性及机理的深入研究尚不明确，需要进一步探索。

本文报道了使用纳秒激光照射悬臂式SNOM探针在金纳米薄膜上直写纳米结构的成果。在金纳米薄膜上实现了83.6 nm的最小线宽和约 (167.8 ± 6.6) nm的可重复线宽。这种直写方法无需任何掩模，以相对较低的成本实现了金纳米薄膜表面纳米结构的高精度可控制造。研究了单脉冲能量（ E_L ）和偏振态（ α ）这两个影响纳米结构特征宽度的主要因素。模拟结果表明， E_L 和 α 的影响机制反映了热影响区域的变化。根据能量色散谱仪（EDS）元素分析结果，该方法的机理可解释为金纳米薄膜的熔化而非氧化过程。局部激发的SPPs在探针下方产生高温点。这一具有高定位精度和能量可调性的热点为纳米制造提供了优异的纳米级能量源。该技术不仅可用于多种材料的高分辨率纳米制造，还能应用于纳米焊接领域以实现焊点的精确辐照。

2. 材料与方法

2.1. 激光-SNOM直写系统

激光直写系统由纳秒激光器、若干光学元件和AFM组成，如图1（a）所示。532 nm激光经过衰减和偏振控制，精确聚焦在探针小孔上。使用Nd:YAG激光器（Dawa 100型，镭宝光电，中国）产生直写过程中波长为532 nm的线偏振纳秒激光脉冲。激光脉冲宽度（ τ ）为7 ns，重复频率设置为20 Hz， E_L 最大值为50 mJ。半波片（HWP）和偏振分束器（PBS）组合作为衰减器。该衰减器实现了激光能量的连续精确调节，并保证了沿y轴的入射激光偏振。使用扫描镜精确操纵激光光斑相对于SNOM探针孔径的位置。二向色镜不仅重定

向加工激光，还在电荷耦合器件（CCD）系统的辅助下实现激光光斑和SNOM探针的监控。使用10倍物镜聚焦激光并适应探针孔径尺寸。在AFM（Ntegra Spectra II型，NT-MDT公司，俄罗斯）上装备探针并在接触模式下操作。

图1（b）显示了探针（SNOM_C型，TipsNano公司，爱沙尼亚）的俯视图，悬臂和锥形针尖尺寸分别为 $200 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$ 和 $20 \mu\text{m} \times 20 \mu\text{m}$ 。图1（c）所示为金字塔形针尖结构的细节。锥形针尖结构由500 nm厚的锥形空心二氧化硅和底部蒸发沉积的100 nm厚的铝层组成。由于不透明铝膜的趋肤深度约为10 nm，激光通过涂层的传输可忽略不计。针尖的纳米小孔采用聚焦离子束（FIB）铣削制造。激光从顶部垂直入射到纳米级孔径中，实现纳米结构的直写。探针孔径宽度（ w ）为140 nm，探针的共振频率保持在130 kHz，劲度系数为 $16.5 \text{ N} \cdot \text{m}^{-1}$ 。该探针既可用于纳米结构的直写，也可作为普通AFM探针进行原位形貌检测。

使用扫描电子显微镜（SEM）（Sigma 300 VP型，蔡司，德国）分析制造的纳米结构的形貌，并使用EDS（ULTIM MAX型，牛津仪器，英国）分析微区中的元素类型和含量。

2.2. 样品制备

将硅片依次浸入丙酮和无水乙醇的超声波水浴中，分别处理10 min和5 min。使用电子束蒸发台（TF500，HHV，英国）在硅衬底上以 $0.5 \text{ nm} \cdot \text{s}^{-1}$ 的沉积速度蒸发沉积金纳米薄膜（50 nm）。金源的纯度为99.999%。 $6 \mu\text{m} \times 6 \mu\text{m}$ 金纳米薄膜的形貌如附录A中的图S1所示。其平均粗糙度（Ra）和均方根粗糙度（Rq）分别为1.37和1.76 nm，即衬底表面足够平整，适用于直写过程。

2.3. 近场多物理场模型

为了研究激光通过孔径的传播，使用COMSOL Multiphysics（瑞典）建立了SNOM针尖附近的三维（3D）多物理场模型。使用有限元法（FEM）计算了针尖孔径内的电磁场和热场分布。孔径宽度 w 设置为140 nm。针尖孔径用线偏振纳秒激光束（ $\lambda_0 = 532 \text{ nm}$ ）照射。入射光为平面波（波矢量 \mathbf{k}_0 ），其偏振可设置为 $\alpha = 0^\circ$ [横磁（TM）波]和 $\alpha = 90^\circ$ [横电（TE）波]。

在波动光学模块中，使用麦克斯韦方程在频域计算电磁场分布：

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) - \mathbf{k}_0 \varepsilon(\omega) \mathbf{E} = 0 \quad (1)$$

式中， \mathbf{E} 为电场； \mathbf{k}_0 为波数； ∇ 为哈密顿算符；相对介电

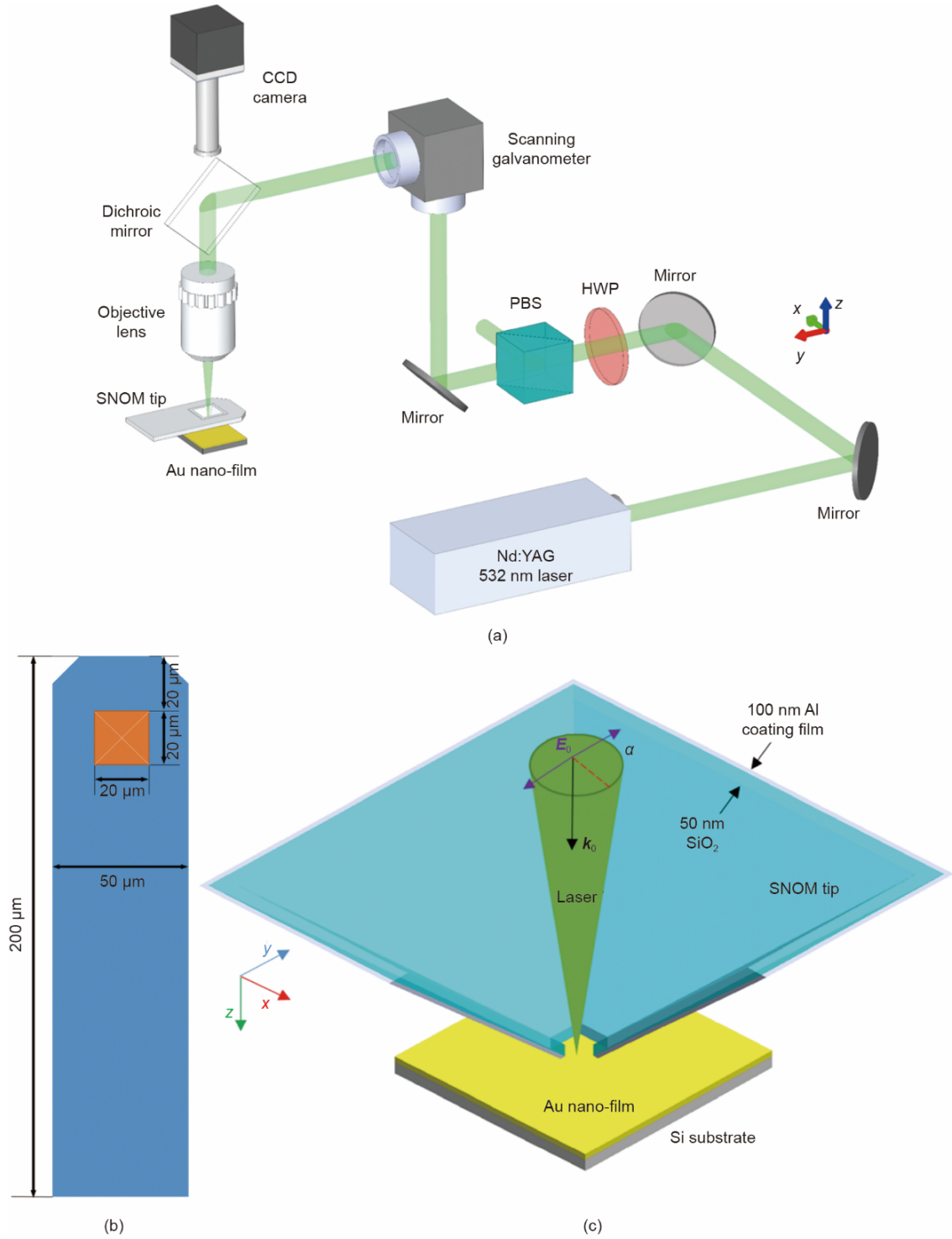


图1. (a) 激光直写系统示意图。(b) SNOM探针悬臂的俯视图。(c) 金字塔形探针针尖结构细节及SNOM顶端附近的三维多物理场模型。其中 E_0 为初始电场， k_0 为波矢， α 为偏振角度。

常数 $\varepsilon(\omega)$ 是激光频率 ω 的复函数。对于模型中的非金属材料（如空气、二氧化硅和硅），相对介电常数 $\varepsilon(\omega)$ 计算公式为

$$\varepsilon(\omega) = [n(\omega) + ik(\omega)]^2 \quad (2)$$

式中， $n(\omega)$ 和 $k(\omega)$ 分别是介质复折射率的实部和虚部。

在波长为532 nm时，空气、二氧化硅和硅的光学特性如附录A中的表S1所列。

模拟中的金属的光学性质（包括铝和金），使用Drude-Lorentz振子模型[40]描述。金属的 $\varepsilon(\omega)$ 的计算公式为

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\Omega_p^2}{\omega(\omega + i\Gamma_0)} + \sum_{j=1}^K \frac{f_j \omega_p^2}{(\omega_j^2 - \omega^2) - i\omega\Gamma_j} \quad (3)$$

式中， ω_p 为等离子体频率； K 表示振荡器数量，每个振荡器具有频率 ω_j 、强度 f_j 和寿命 $1/\Gamma_j$ ； $\Omega_p = \sqrt{f_0} \omega_p$ 为与带内跃迁相关的等离子体频率，其中包含振荡器强度 f_0 和阻尼常数 Γ_0 ； i 为虚数单位， $j \in N^*$ 。铝和金在Drude-Lorentz模型中的光学参数分别列于附录A中的表S2与表S3中。

在传热模块中，获得光场分布后，在时域内模拟了金纳米薄膜上的热分布。温度分布计算公式为

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} + \rho C_p \mathbf{u} \cdot \nabla T - \nabla \cdot (k \nabla T) = Q_0 \quad (4)$$

式中， ρ 、 C_p 和 k 分别代表材料的密度、等压比热容和热导率； T 为温度； t 为时间； \mathbf{u} 为热流密度矢量；热源项 Q_0 从计算的电场分布结果中获得

$$Q_0 = \int_V \mathbf{E} \cdot \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} dV = \int_V \mathbf{J} \cdot \mathbf{E} dV \quad (5)$$

式中， \mathbf{D} 为电位移矢量； V 为体积； \mathbf{J} 为电流密度。

激光功率密度 P 可根据电场强度 $|\mathbf{E}|$ 通过以下公式计算：

$$P = \frac{c}{2} \varepsilon_0 |\mathbf{E}|^2 \quad (6)$$

式中， c 为真空中的光速； ε_0 为真空介电常数。

激光功率密度 P 与 E_L 的关系表示为

$$P = \frac{E_L}{s \cdot \tau} \quad (7)$$

式中， s 是聚焦激光束的面积； τ 是激光的脉冲宽度。在本文中，测得 s 为 $2500\pi \mu\text{m}^2$ ， τ 为 7 ns 。

根据公式(6)和(7)，在多物理场模型中，当激光能量 E_L 分别为 $450 \mu\text{J}$ 、 $475 \mu\text{J}$ 和 $500 \mu\text{J}$ 时，初始电场强度 $|\mathbf{E}_0|$ 分别设置为 $7.86 \times 10^7 \text{ V} \cdot \text{m}^{-1}$ 、 $8.07 \times 10^7 \text{ V} \cdot \text{m}^{-1}$ 和 $8.28 \times 10^7 \text{ V} \cdot \text{m}^{-1}$ 。

3. 结果

在金纳米薄膜上直接写入了多种类型的纳米结构，如纳米线、纳米字母和纳米图案。在此过程中，激光的重复频率设置为 20 Hz ，扫描速度为 $0.2 \mu\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ ， E_L 调整为 $500 \mu\text{J}$ 。写入过程在接触模式下进行，确保了针尖和纳米薄膜之间的充分接近。写入过程中的设定点与扫描模式中的设定点相同，没有任何额外载荷，确保摩擦力不足以引起衬底表面的机械刻蚀。图2(a)显示了加工后立即原位检测的写入线条形貌。线条长度为 $8 \mu\text{m}$ ，两条线之间的间距为 $2 \mu\text{m}$ 。图2(b)是图2(a)中纳米线的SEM图像。值得

注意的是，图2(b)中红色矩形指示的纳米线不完整。当该区域被加工时，激光被关闭，这导致约 $1 \mu\text{m}$ 长的线条消失。如图2(a)所示，在AFM图像的边缘观察到白色区域。与顶端半径为几纳米的传统AFM针尖相比，悬臂式SNOM针尖的顶端不够尖锐，这可能对AFM模式下原位形貌检测的图像质量产生负面影响。SEM图像更准确地说明了纳米结构的形貌。尽管图像质量受到影响，但进行原位检测对于确保纳米结构的重要性不容忽视。图2(c)显示了图2(b)中白线的横截面分析。纳米线在横截面视图中呈V字形。线条的宽度(x 方向的绿色和红色标志的距离)和深度(y 方向的红色和蓝色标志的距离)列于表1中。平均线宽为 167.8 nm ，标准偏差为 6.554 nm ，线宽约等于孔径宽度 w 。激光被良好地限制在SNOM针尖孔径中，并在亚波长尺度上诱导了纳米结构。在垂直方向上，平均线深为 23 nm ，标准偏差为 3.633 nm 。根据先前发表的模拟结果[41]，光场强度在大约 20 nm 内的深度内呈指数衰减，这解释了实验深度为约 20 nm 的成因。在制造的纳米线的两侧观察到突起。我们将在本文后面讨论突起形成的原因。

使用该方法获得了复杂的纳米图案。图3(a)和(b)分别描绘了纳米字母“XJTU”的AFM和SEM图像。图3(b)显示了垂直和水平线条的宽度。垂直线的平均宽度为 162.7 nm ，标准偏差为 7.84 nm ，接近图2(c)中测量的值。然而，水平线的平均宽度增加到 220.6 nm ，标准偏差为 22.46 nm 。我们的理论计算表明，宽度的增加受到偏振和扫描方向的影响。图3(c)显示了单激光脉冲照射后的表面热分布。偏振沿 y 方向。热分布范围略大于针尖孔径(黑色方框)。纳米薄膜表面上的热峰形状近似椭圆形，其长轴沿偏振方向。通过光学系统中的PBS保证偏振平行于垂直方向。直写过程是表面材料熔化和再成形的结合作用。高于金熔点($T_m = 1337 \text{ K}$)的热峰区域熔化并产生凹槽。图3(d)显示了沿 $x = 0 \text{ nm}$ 和 $y = 0 \text{ nm}$ 线的温度分布。沿椭圆短轴的热影响区宽度约为 163 nm 。同时，沿椭圆长轴的热影响区宽度增至约 240 nm 。这些计算结果与实验值接近。当针尖垂直扫描(平行于偏振)时，制造的线宽接近椭圆短轴的长度。当水平扫描(垂直于偏振)时，线宽增加至椭圆长轴的长度。在倾斜和水平方向上制造的纳米线比在垂直方向上制造的纳米线浅。不同偏振下的深度差异是由激光与材料之间的相互作用时间引起的。椭圆形的热影响区导致不同的相互作用时间。在相同的扫描速度下，垂直扫描(长轴)的相互作用时间明显长于水平(短轴)和倾斜扫描方向。当扫描方向平行于偏振时，材料被更多的激光

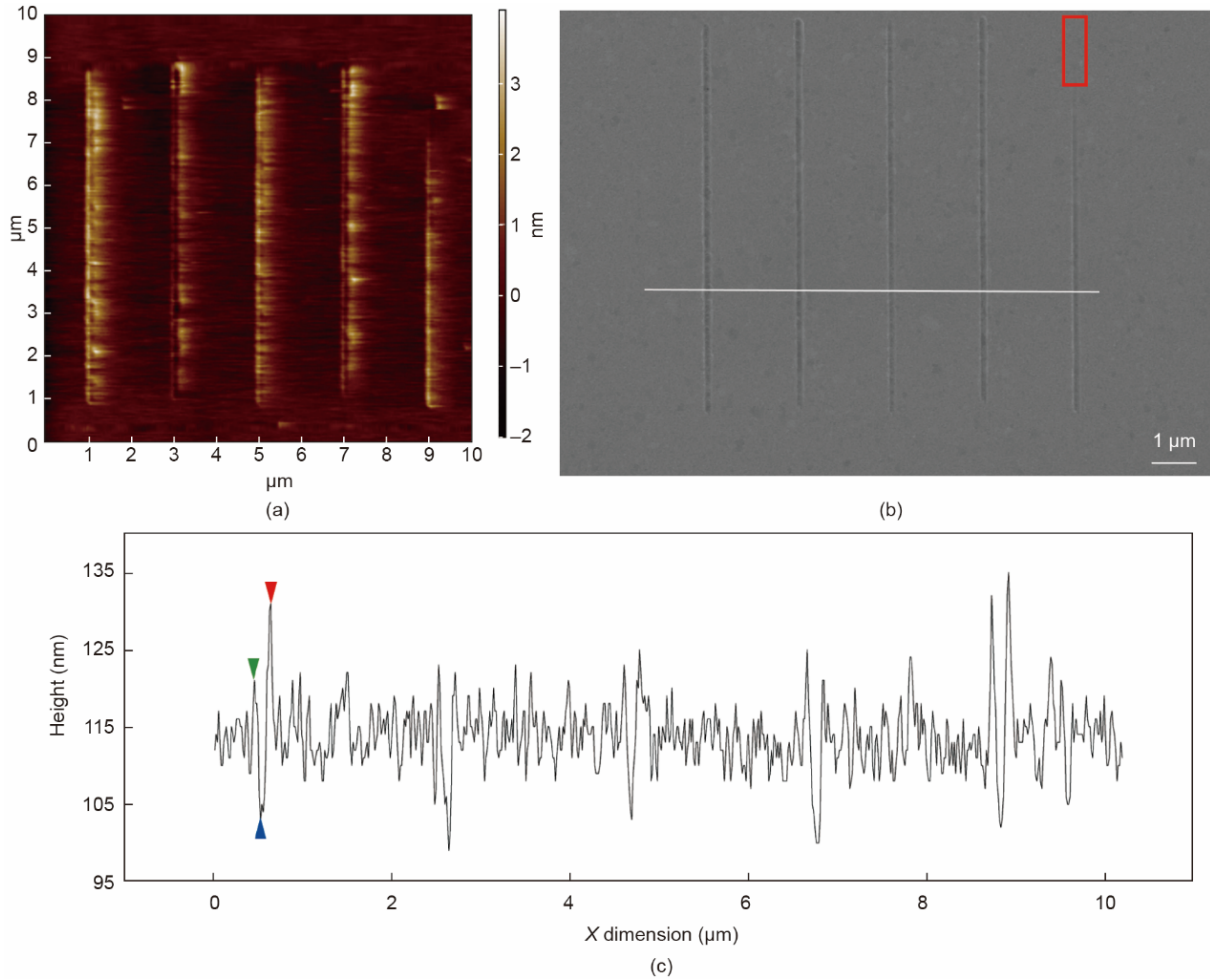


图2. (a) 写入线条的原位形貌检测结果；(b) 图(a)中纳米结构的SEM图像；(c) 图(b)中白色线条的截面分析。

表1 图2(c)中检测到的纳米线的宽度和深度

Line	1	2	3	4	5
Width (nm)	167	166	157	173	176
Depth (nm)	28	23	22	25	32

脉冲照射。材料与激光之间相互作用时间的延长加深了纳米线。

通过EDS分析研究了元素组成。在图3(b)中四个点和一个黄线上进行了元素含量分析。点1和点2在写入的纳米线中，点3和点4在未受影响区域。四个点和线的EDS谱如附录A中的图S2所示。元素的重量百分比如图3(e)所示。衬底中的主要元素是金、硅、碳和氧。样品表面在制备和运输过程中随机吸附了空气中的有机物质，导致碳和氧的存在。点1和点2处的金重量百分比约为45%，低于点3和点4以及线平均值(约55%)。硅的情况则相反。图3(f)说明了沿该线的元素分布。在两条制造的纳米线位置，硅谱线(红线)突出，而金谱线(绿线)成为谷值。氧含量在此过程中几乎没有变化，这意味着突起不是

由氧化形成的。我们将利用这种新技术直接写入的机制归因于金纳米薄膜的局部熔化和再成形。受限于针尖孔径的激光影响区域中的金发生熔化。熔化的金在凹槽的两侧堆积，产生突起。

图4(a)说明了使用不同 E_L 制造的特征线宽。在 $E_{L1} = 450 \mu\text{J}$ 、 $E_{L2} = 475 \mu\text{J}$ 和 $E_{L3} = 500 \mu\text{J}$ 条件下，检测到的线宽分别为83.6 nm、125.3 nm和167.1 nm。随着 E_L 的减小，线宽和线深逐渐衰减。当 E_L 极小时，纳米线极浅，无法通过SEM观察到。此外，SNOM的针尖在非常高的激光强度下容易损坏。因此，激光能量控制在该技术中具有重要意义。图4(b)显示了不同 E_L 下沿 x 方向的计算热分布。沿椭圆短轴的热影响区宽度约为71 nm、124 nm和163 nm。这与图4(a)所示的结果一致。图4(c)和(d)显示了纳米图案的制造。激光在红色矩形区域被关闭，没有产生可辨别的特征，这排除了机械划刻作为直写机制的可能性。

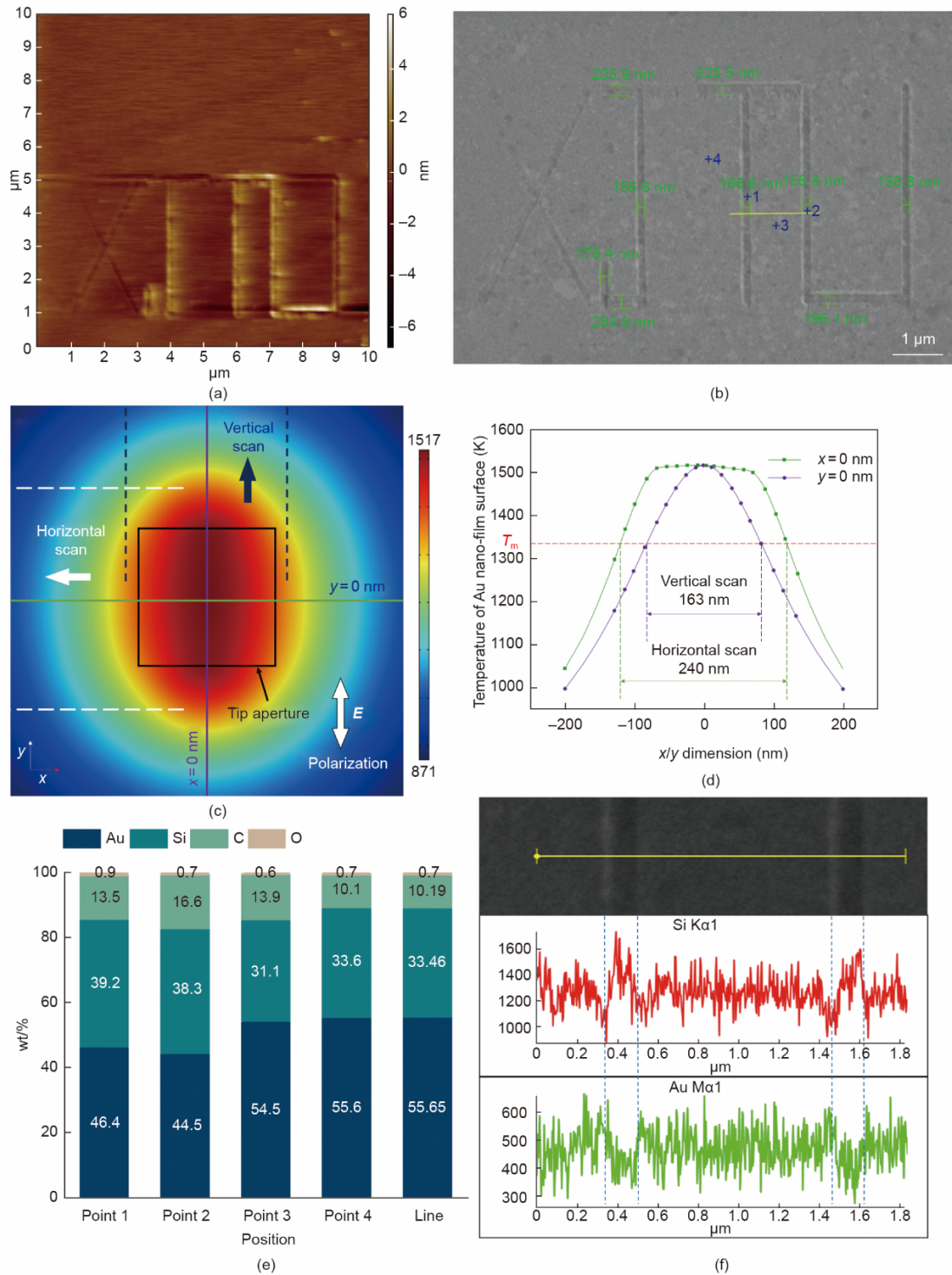


图3. (a) 所直写字母“XJTU”的原位检测形貌图；(b) 图(a)中纳米结构的SEM图像及线宽测量结果；(c) 单脉冲激光照射后的表面热分布图，以及垂直与水平方向线宽差异的说明；(d) 沿 $x=0$ nm和 $y=0$ nm直线的温度分布；(e) 四个点及一条线上各元素的重量百分比 (wt%)；(f) 沿直线的硅和金元素分布情况。

4. 讨论

激光直写过程的纳米结构最小特征宽度约为83.6 nm (小于 $\lambda/6$)，这超出了衍射极限。直写过程稳定且可重复，可在金纳米薄膜上实现线宽约为 (167.8 ± 6.6) nm的

纳米图案的可控制造。由垂直和水平扫描引起的线宽和深度差异通过SNOM针尖下的椭圆形热分布解释。随着 E_L 的减小，线宽和深度都衰减。控制 E_L 对于制造清晰的纳米线和防止SNOM针尖损坏是必要的。EDS元素分析表明，该机制是金纳米薄膜的熔化而非氧化。理论模拟

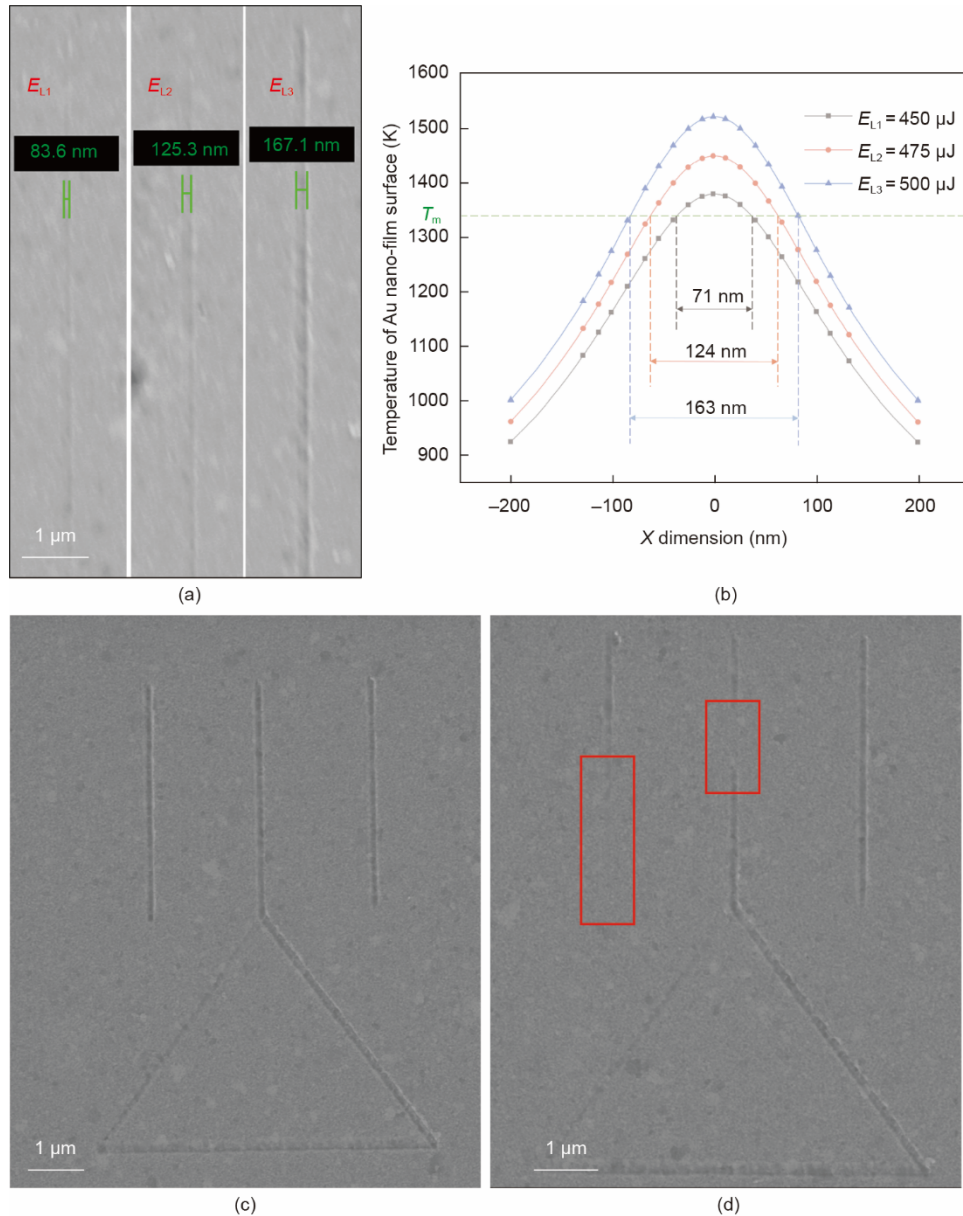


图4. (a) 使用不同单脉冲能量 (E_L) 制备的特征线宽; 其中, $E_{L1} = 450 \mu\text{J}$, $E_{L2} = 475 \mu\text{J}$, $E_{L3} = 500 \mu\text{J}$; (b) 不同 E_L 条件下沿 x 方向的计算热分布; (c) 所直写纳米图案的 SEM 图像; (d) 图 (c) 中纳米图案的对照组, 红色矩形区域内激光处于关闭状态。

结果验证了该机制, 并阐明了偏振 α 和 E_L 对制造线宽的影响。

将金纳米薄膜上的 SNOL 技术与第 1 节中提到的其他 SPL 方法进行了比较。每种方法的机制、可行性和分辨率列于表 2 中。这些技术的优缺点总结如下。总之, SNOL 克服了针尖和样品特性 (如硬度和导电性) 的限制, 并扩大了适用于纳米制造的材料选择范围, 避免了机械力引起的碎屑。与近场刻蚀方法不同, SNOL 中的激光偏振不一定是 P 偏振, 但其特征尺寸受到 SNOM 探针孔径尺寸的影响。因此, 基于各种参数的影响机制, 我们提出了提高特征分辨率、深宽比和加工效率的优化方法。

我们考虑了两种改进特征尺寸的方法。第一种是减小 SNOM 针尖的孔径尺寸, 从而将激光限制在更小的区域以提高分辨率。然而, 较小的孔径会引起传输衰减。因此, 在优化孔径宽度时, 应同时考虑分辨率和传输率。第二种是在 SNOM 针尖处应用领结型脊孔径代替方形孔径。领结型脊之间的间隙可以是几十纳米, 这将提高特征尺寸的分辨率。

结果表明, 较高的激光单脉冲能量 E_L 会导致深沟槽, 但这也同时拓宽纳米线, 使得增加它们的深宽比变得困难。此外, 极高的 E_L 会损坏 SNOM 针尖。延长扫描时间或降低扫描速度会延长近场激光与纳米薄膜之间的反应时

表2 金纳米薄膜上的SNOL与其他SPL方法的对比

Item	Mechanical scratching	Local anodic oxidation	Near-field etching	t-SPL	SNOL
Mechanism	Mechanical force modification	Localization of electrical field near the tip apex	Local field enhancement in the near-field of a sharp tip probe	Thermal decomposition	Locally excited SPPs induced hot spot
Applicability on Au nano-film	Yes	Yes	Yes	No	Yes
Feature sizes on Au nano-film	~328 nm [4]	—	~14 nm [9]	—	~83.6 nm
Advantages	Easy to conduct and no extra energy source	High resolution	High resolution and more applicable material	High resolution and no development process for resists	High resolution, more applicable material and arbitrary polarization
Disadvantages	Low resolution need hard tips and chips remain on tips and samples	Applicable only to semiconductor or metals and protrusions only	P-polarization needed	Applicable to thermally sensitive resist	Features sizes affected by the aperture

间。线深随着热扩散时间的增加而增加。然而，深化效果受到近场影响区域的限制。纳米线的重复扫描有助于加深沟槽。由于SNOM针尖在接触模式下工作，因此它在第二次扫描过程中下降到纳米线的底部。直写过程从纳米线的底部重新开始。

建议采用高激光重复频率和高扫描速度以提高加工效率。高重复频率能够显著增加特定时间内的激光脉冲数，高扫描速度则有助于提高加工速度。在这里，我们可以用具有高重复频率的新激光设备替换现有激光设备。 $0.2 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 的扫描速度远低于AFM系统的扫描速度极限。

5. 结论

我们利用悬臂式SNOM针尖实现了在金纳米薄膜上进行超越衍射极限的复杂纳米结构的激光直写。通过理论计算和实验解释了这种新技术的机制。SNOM针尖能够将激光限制在孔径尺寸内，并产生高温点以熔化金纳米薄膜。最后，我们强调这种纳米结构制造方法方便且经济，未来有可能应用于多种材料的纳米光刻，甚至延伸至纳米焊接。

CRediT authorship contribution statement

Xuwen Wang: Writing-review & editing, Writing-original draft, Methodology, Investigation, Data curation. **Xuesong Mei:** Validation, Supervision, Funding acquisition, Conceptualization. **Hailong Yin:** Investigation.

Zhijun Wang: Visualization. **Xiaoqiao He:** Visualization, Validation, Supervision. **Jianlei Cui:** Validation, Supervision, Funding acquisition, Conceptualization.

Declaration of competing interest

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

致谢

本研究得到了国家重点研发计划(2023YFB4605100)、陕西省重点研发计划(2019ZDLGY01-09、2021ZDLGY10-02)以及凝固技术国家重点实验室(SKLS202203)的资助。

Appendix A. Supplementary data

Supplementary data to this article can be found online at <https://doi.org/10.1016/j.eng.2024.07.014>.

References

- [1] Steinmann P, Weaver JMR. Nanometer-scale gaps between metallic electrodes fabricated using a statistical alignment technique. *Appl Phys Lett* 2005;86(6):063104.
- [2] Geng YQ, Yan YD, Zhao XS, Hu ZJ, Liang YC, Sun T, et al. Fabrication of millimeter scale nanochannels using the AFM tip-based nanomachining method. *Appl Surf Sci* 2013;266:386–94.

- [3] Sun Y, Yan Y, Liang Y, Hu Z, Zhao X, Sun T, et al. Effect of the molecular weight on deformation states of the polystyrene film by AFM single scanning. *Scanning* 2013;35(5):308–15.
- [4] Ramiaczek-Krasowska M, Prazmowska J, Szyszka A, Paszkiewicz R, Tlaczala M. Application of afm microscope as a nanolithography tool. In: *Proceedings of the 2010 International Students and Young Scientists Workshop "Photonics and Microsystems*; 2010 Jun 25–27; Szklarska Poreba, Poland. Piscataway: IEEE; 2011. p. 69–72.
- [5] Liu X, Chen KS, Wells SA, Balla I, Zhu J, Wood JD, et al. Scanning probe nanopatterning and layer-by-layer thinning of black phosphorus. *Adv Mater* 2017;29(1):1604121.
- [6] Tello M, García F, Physics R. Linewidth determination in local oxidation nanolithography of silicon surfaces. *J Appl Phys* 2002;92(7):4075–9.
- [7] Yin H, Dong X, Wang X, Cui J, Wang W, Mei X. Advanced mechanism of multiphysics fields tip enhancement induced with varied laser power to fabricate pattern-transformable subdiffraction limit nanostructures. *Appl Opt* 2021; 60(36):11018–26.
- [8] Yin H, Zhang J, Wang X, Cui J, Wang W, Mei X. Recent progress in near-field tip enhancement: principles and applications. *Phys Status Solidi-RRL* 2022;16: 2100456.
- [9] Chimmalgi A, Choi TY, Grigoropoulos CP, KJAPLKomvopoulos. Femtosecond laser aperturless near-field nanomachining of metals assisted by scanning probe microscopy. *Appl Phys Lett* 2003;82(8):1146–8.
- [10] Wolf H, Rawlings C, Mensch P, Hedrick JL, Coody DJ, Duerig U, et al. Sub-20nm silicon patterning and metal lift-off using thermal scanning probe lithography. *J Vac Sci Technol B* 2015;33(2):02B102.
- [11] Conde-Rubio A, Liu X, Boero G, Brugger J. Edge-contact MoS₂ transistors fabricated using thermal scanning probe lithography. *ACS Appl Mater Interfaces* 2022;14(37):42328–36.
- [12] Lo S, Wang H. Near-field photolithography by a fiber probe. In: *Proceedings of the 2001 1st IEEE Conference on Nanotechnology*; 2001 Oct 30–30; Maui, HI, USA. Piscataway: IEEE; 2002. p. 36–9.
- [13] Schürmann G, Noell W, Staufer U, de Rooij NF. Microfabrication of a combined AFM–SNOM sensor. *Ultramicroscopy* 2000;82:33–8.
- [14] Stopka M, Drews D, Mayr K, Lacher M, Ehrfeld W, Kalkbrenner T, et al. Multifunctional AFM/SNOM cantilever probes: fabrication and measurements. *Microelectron Eng* 2000;53(1–4):183–6.
- [15] Shi X, Coca-López N, Janik J, Hartschuh A. Advances in tip-enhanced near-field Raman microscopy using nanoantennas. *Chem Rev* 2017;117(7):4945–60.
- [16] Heydarian H, Yazdanfar P, Zarif A, Rashidian B. Near field differential interference contrast microscopy. *Sci Rep* 2020;10(1):9644.
- [17] Verma P. Tip-enhanced Raman spectroscopy: technique and recent advances. *Chem Rev* 2017;117(9):6447–66.
- [18] Lee H, Lee DY, Kang MG, Koo Y, Kim T, Park KD. Tip-enhanced photoluminescence nano-spectroscopy and nano-imaging. *Nanophotonics* 2020; 9(10):3089–110.
- [19] Berneschi S, Barucci A, Baldini F, Cosi F, Quercioli F, Pelli S, et al. Optical fibre micro/nano tips as fluorescence-based sensors and interrogation probes. *Optics* 2020;1(2):213–42.
- [20] Kotsifaki DG, Chormaic SN. Plasmonic optical tweezers based on nanostructures: fundamentals, advances and prospects. *Nanophotonics* 2019; 8(7):1227–45.
- [21] Heydarian H, Yazdanfar P, Shahmansouri A, Rashidian B. Tunable wide-band graphene plasmonic nano-color-sorter: application in scanning near-field optical microscopy. *J Opt Soc Am B* 2019;36(2):435–42.
- [22] Yazdanfar P, Heydarian H, Rashidian B. Controlled optical near-field growth of individual free-standing well-oriented carbon nanotubes, application for scattering SNOM/AFM probes. *Nanophotonics* 2022;11(21):4671–86.
- [23] Yazdanfar P, Heydarian H, Rashidian B. Photothermal heating using a near-field plasmonic probe, application in NFO–CVD. In: *Proceedings of the 2018 Fifth International Conference on Millimeter-Wave and Terahertz Technologies (MMWaTT)*; 2018 Dec 18–20; Tehran, Iran. Piscataway: IEEE; 2018. p. 94–6.
- [24] Yazdanfar P, Heydarian H, Rashidian B. Modal control of thermoplasmonic behavior of nanostructures based on excitation of perfect absorption resonances. *J Opt Soc Am B* 2020;37(8):2238–47.
- [25] Wang X, Cui J, Yin H, Wang Z, He X, Mei X. Fabrication of nanostructure on Au nano-film by nanosecond laser coupled with cantilevered scanning near-field optical microscopy probe. *Nanotechnology* 2023;34(7):075301.
- [26] Aghaei SM, Yasrebi N, Rashidian B. Characterization of line nanopatterns on positive photoresist produced by scanning near-field optical microscope. *J Nanomater* 2015;2015:936876.
- [27] Naber A, Kock H, Fuchs H. High-resolution lithography with near-field optical microscopy. *Scanning* 1996;18(8):567–71.
- [28] Lin Y, Hong MH, Wang WJ, Law YZ, Chong TC. Sub-30 nm lithography with near-field scanning optical microscope combined with femtosecond laser. *Appl Phys A* 2005;80(3):461–5.
- [29] Roszkiewicz A, Jain A, Teodorczyk M, Nasalski W. Formation and characterization of hole nanopattern on photoresist layer by scanning near-field optical microscope. *Nanomaterials* 2019;9(10):1452.
- [30] Credgington D, Fenwick O, Charas A, Morgado J, Suhling K, Cacialli F. High-resolution scanning near-field optical lithography of conjugated polymers. *Adv Funct Mater* 2010;20(17):2842–7.
- [31] Cacialli F, Riehn R, Downes A, Latini G, Charas A, Morgado J. Fabrication of conjugated polymers nanostructures via direct near-field optical lithography. *Ultramicroscopy* 2004;100(3–4):449–55.
- [32] Sun S, Leggett GJ. Matching the resolution of electron beam lithography by scanning near-field photolithography. *Nano Lett* 2004;4(8):1381–4.
- [33] Sun S, Chong KSL, Leggett GJ. Nanoscale molecular patterns fabricated by using scanning near-field optical lithography. *J Am Chem Soc* 2002; 124(11): 2414–5.
- [34] Sun S, Leggett GJ. Generation of nanostructures by scanning near-field photolithography of self-assembled monolayers and wet chemical etching. *Nano Lett* 2002;2(11):1223–7.
- [35] Wysocki G, Heitz J, Bäuerle D. Near-field optical nanopatterning of crystalline silicon. *Appl Phys Lett* 2004;84(12):2025–7.
- [36] Heitz J, Yakunin S, Stehrer T, Wysocki G, Bäuerle D. Laser-induced nanopatterning, ablation, and plasma spectroscopy in the near-field of an optical fiber tip. In: *Vilar R, Conde O, Fajardo M, Silva LO, Pires M, Utkin A, editors. XVII International Symposium on Gas Flow, Chemical Lasers, and High-power Lasers*. Bellingham: WA, USA; 2009. p. 71311W.
- [37] Madsen S, Müllenborn M, Birkelund K, Grey F. Optical near-field lithography on hydrogen-passivated silicon surfaces. *Appl Phys Lett* 1996; 69(4):544–6.
- [38] Madsen S, Bozhevolnyi SI, Birkelund K, Müllenborn M, Hvam JM, Grey F. Oxidation of hydrogen-passivated silicon surfaces by scanning near-field optical lithography using uncoated and aluminum-coated fiber probes. *J Appl Phys* 1997;82(1):49–53.
- [39] Nolte S, Chichkov BN, Welling H, Shani Y, Lieberman K, Terkel H. Nanostructuring with spatially localized femtosecond laser pulses. *Opt Lett* 1999;24(13):914–6.
- [40] Rakić AD, Djurisić AB, Elazar JM, Majewski ML. Optical properties of metallic films for vertical-cavity optoelectronic devices. *Appl Opt* 1998;37(22): 5271–83.
- [41] Wang X, Cui J, Yin H, Wang Z, He X, Mei X. Mechanism of nanostructure processing on Au and Ag nano-film by a nanosecond laser illuminating cantilevered scanning near-field optical microscopy tip. *Appl Opt* 2022;61(33): 9773–80.