

太赫兹超分辨近场成像方法研究综述

张泽亮, 齐鹏飞, 郭兰军, 张楠, 林列, 刘伟伟*

南开大学现代光学研究所天津市微尺度光学信息技术科学重点实验室, 天津 300350

摘要 受衍射极限的限制,传统太赫兹成像分辨率在毫米量级,无法满足目前前沿研究向微纳米尺度发展的主要趋势。高时空分辨率太赫兹成像技术成为当下太赫兹领域最重要的研究热点之一。近场太赫兹成像技术是实验中将太赫兹成像分辨率提升至微纳米量级的重要方法。介绍了近场太赫兹成像技术的基本原理,详述了多种近场太赫兹成像技术的发展历程与技术路线,从时空分辨能力、频谱分辨能力、成像质量、成像信噪比和适用场景等多个角度分析并总结了各种近场太赫兹成像技术的优势和不足。最后,讨论并展望了太赫兹超分辨成像未来的发展趋势。

关键词 成像系统; 太赫兹技术; 超分辨太赫兹成像; 太赫兹近场成像

中图分类号 O439 **文献标志码** A

DOI: 10.3788/AOS221632

1 引言

太赫兹 (THz) ($1 \text{ THz} = 10^{12} \text{ Hz}$) 辐射频率范围为 $0.1 \sim 10 \text{ THz}$, 处于电子学和光学频率之间, 因此具备众多独特的光电子特性。THz 辐射具有类似微波的穿透性, 可以用于探测大部分介质材料的内部信息。THz 辐射光子能量低, 不会引起生物组织电离损伤, 非常适合进行生物组织检测^[1-4]。同时, 水对 THz 辐射的吸收较强, THz 辐射可以被用于检测生物组织含水量。许多生物分子的振动和转动能级以及介电材料的声子振动能级一般处于 THz 波段, 因此可以利用 THz 频段的指纹光谱特性对材料进行特异性检测^[5-10]。

THz 成像是 THz 技术中最为重要的应用之一。在生物医学领域, 传统 THz 成像技术已经被用于检测神经组织响应^[11]、组织含水量分布^[12]和骨组织缺陷等^[13]。但是, 面对更高空间分辨率的应用需求, 比如单细胞成像和分子层面病理学分析等, 传统 THz 成像技术的空间分辨率较低。在新材料领域, 传统 THz 成像技术已经被用于研究二维材料光电特性、二维材料 THz 器件特性^[14]和量子阱光电探测器^[15]等, 但是一系列复杂的微观动力学过程如光泵浦条件下材料载流子分布和转移过程等, 对 THz 成像技术的时空分辨率提出了更高要求。究其原因, THz 波段的波长范围为 $30 \sim 1000 \mu\text{m}$, 由于衍射极限 [$d = \lambda / (2n \sin \theta)$, λ 表示光波长, n 表示介质折射率, θ 表示半收集角] 的存在, THz 成像的分辨率一般被限制在毫米量级。因此, 亟

待发展具有高时空分辨率的 THz 成像技术, 用于探究微纳尺度的科学问题。THz 近场成像技术是突破传统 THz 成像技术衍射极限、获得更高空间分辨率的有效方式。传统 THz 成像技术探测传播信号时, 亚波长尺度细节信息随着传播距离的增加而迅速衰减, 在传播信号中占比很小, 因此传统 THz 成像技术无法用于检测亚波长尺度细节信息。在近场范围内, 利用孔径探针或者散射探针可以探测表面亚波长尺度细节信息, 也可以将近场区域内产生的信号传输到远场进行探测^[16]。近场成像效果主要取决于探针针尖空间尺度、探针与样品表面的距离、输入信号强度和信号提取方式等。

目前实现 THz 近场成像的技术路线主要有孔径探针 THz 近场成像和散射探针 THz 近场成像两种^[16]。孔径探针 THz 近场成像的基本原理是使用微孔制作亚波长 THz 辐射源或者亚波长 THz 探测器。孔径探针 THz 近场成像的空间分辨率在 $1 \sim 100 \mu\text{m}$ 内, 孔径近场探针方案非常丰富, 如物理孔径、动态孔径、人工表面等离子激元结构和 THz 近场天线等都是目前较为成熟的方案。由于孔径近场探针方案的成像分辨率和孔径的空间尺度有关, 孔径通光直径需要平衡截止频率、空间分辨率和近场耦合效率之间的关系, 所以成像质量和空间分辨率无法得到进一步提升。散射探针 THz 近场成像的基本原理是在探针尖端将入射光限制在局部区域, 入射光场与样品表面在近场区域相互作用, 通过测量近场散射信号可以有效还原样品表面

收稿日期: 2022-08-23; 修回日期: 2022-09-19; 录用日期: 2022-10-25; 网络首发日期: 2022-11-05

基金项目: 国家自然科学基金(12061131010, 12074198)、天津市自然科学基金(20JCYBJC01040)、中央高校基本科研业务费专项资金(63223052)

通信作者: *liuweiwei@nankai.edu.cn

信息。扫描探针显微技术是实现该过程的重要方法,其中基于原子力显微镜的散射近场探针 THz 成像的空间分辨率可以达到约 10 nm,基于扫描隧道显微镜的散射近场探针 THz 成像的空间分辨率可以达到约 0.3 nm。此方案的成像分辨率只与探针针尖曲率半径和探针与样品之间的相对位置有关,而与入射 THz 波长无关,其技术难点在于提取信号和抑制背景噪声。图 1 总结了不同空间分辨率 THz 成像的实现方法和应用场景。

本文主要介绍基于孔径探针和散射探针的 THz 近场成像系统,详述了 THz 近场成像技术的基本原理,总结了多种 THz 近场成像技术的发展历程与技术路线,从时空分辨能力、频谱分辨能力、成像质量、成像信噪比和适用场景等多个角度分析并归纳了各种 THz 近场成像技术的优势和不足。最后,讨论并展望了 THz 超分辨成像的未来发展趋势。

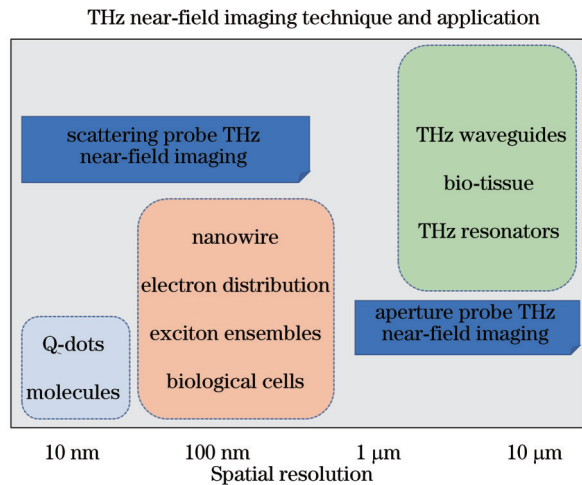


图 1 孔径探针和散射探针 THz 近场成像分辨率范围以及对应的应用场景

Fig. 1 Resolution range of THz near-field imaging based on aperture-probe and scattering probe and corresponding application scenarios

2 孔径探针 THz 近场成像

孔径探针 THz 近场成像技术主要利用亚波长结构形成一个 THz 辐射源或者利用 THz 探测器在近场范围内扫描样品来提升成像系统的空间分辨率。成像系统的空间分辨率取决于孔径结构、探测系统信噪比和孔径结构和样品之间的距离等因素。根据形成的亚波长孔径结构,THz 近场成像技术可以分为物理孔径 THz 成像、动态孔径 THz 成像、基于人工表面等离子激元聚焦结构的 THz 成像和近场天线 THz 成像等。

2.1 物理孔径 THz 近场成像

物理孔径 THz 近场成像技术使用微孔和介质材料锥形波导等亚波长结构,将 THz 辐射局域成一个亚波长 THz 辐射源并扫描样品,实现超分辨。较早出现

的物理孔径为金属锥形孔,通过改变锥角和孔径直径可以调节 THz 耦合效率与截止频率。为了提升微孔结构的聚焦效率,介质材料锥形波导被提出,内部介质材料外表面由半开放的金属膜覆盖,THz 在波导中形成共振模式,在锥尖输出位置形成聚焦效果,从而提高 THz 的近场耦合效率。

1998 年,Nuss 团队^[17]提出并使用金属锥形孔将 THz 辐射限制到亚波长量级,他们使用尖端对样品进行扫描,获得 $\lambda/4$ 空间分辨率。锥形波导尖端微孔为 $50 \mu\text{m} \times 80 \mu\text{m}$ 椭圆形微孔和 $100 \mu\text{m}$ 圆形微孔,不同的微孔结构对入射 THz 偏振和波长有选择作用。如图 2 所示,随着微孔直径的减小,微孔对 THz 波长的选择作用就更加明显。在入射频率为 1.36 THz 的情况下,椭圆形微孔锥形波导的空间分辨率可以达到 $50 \mu\text{m}$,频谱分辨率宽度约为 1 THz。金属锥形孔的另一优势是在合适的波导结构下,在微孔位置实现 THz 场增强,提升成像信噪比。

为了进一步提升金属锥形孔耦合效率,2009 年,Kadlec 团队^[18]设计了一种半开放式锥形波导,探针侧面被金属覆盖其余部分,不再设置金属边界。如图 3 (a) 所示,THz 波在半开放式锥形波导中形成共振模式,波导端口处 THz 信号得到增强。Kadlec 团队测试了一种高度各向异性的 BaTiO_3 晶体,并证明该探针对晶格方向的敏感性。2019 年,南开大学刘伟伟和龚诚团队^[19]基于 3D 打印技术设计了一种共聚焦波导,在不借助聚焦结构的情况下在 0.1 THz 实现了 $1/2\lambda$ 的空间分辨率[图 3(e)、(f)]。THz 波在波导中呈现周期聚焦结构,在波导出口位置 THz 焦点远小于波导直径,实现了对 THz 波的聚焦,在出射端口还实现 THz 局域场增强。2020 年,崔洪亮团队^[20]设计并制作了一种半开放式锥形波导[图 3(b)]。针对锥形波导内部阻抗失配导致 THz 在波导内反射损耗的问题进行了结构优化,锥形孔位置(近场范围内)THz 电场强度提高了 3 倍,结构优化在提升 THz 成像空间分辨率的同时,减小了 THz 在锥形波导中的损耗,从而使更多的能量可以从波导转移到锥形孔位置。Nahata 团队^[21]进一步优化了锥形孔探针,在锥形波导内壁制作周期结构并在锥角中心位置放置金属细线,将锥形波导转化为锥形同轴波导,进一步提升了锥形波导的 THz 输出效率[图 3(c)、(d)]。

另一种方案是周期结构微孔,THz 波在周期结构表面形成等离子激元模式同时满足共振增强条件,提升了 THz 波聚焦效率和透过率。2005 年,Ito 团队^[22]加工了一种牛眼结构(金属板中被同心周期性凹槽包围的单个亚波长孔径)进行 THz 近场成像。如图 4(a) 所示,孔径直径为 $100 \mu\text{m}$,孔径周围为 10 个宽度为 $100 \mu\text{m}$ 、深度为 $20 \mu\text{m}$ 、周期为 $200 \mu\text{m}$ 的凹槽。实验证明这种结构在 1.15~2.00 THz 具有良好的透过率,尤其是在 1.5 THz 处透过率达到最大值。环形周期结

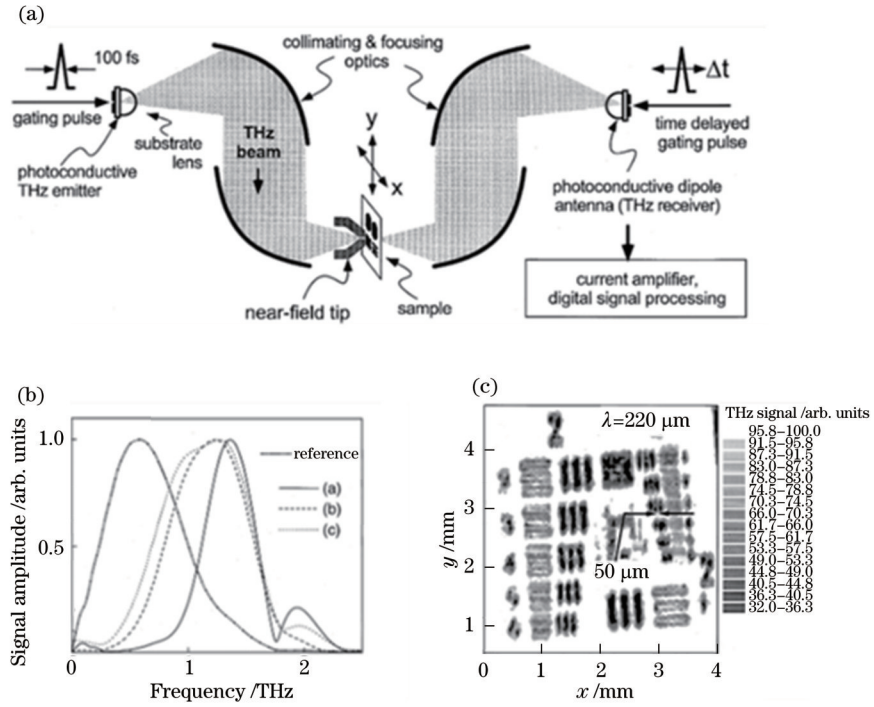


图 2 锥形孔径实验装置示意图及其成像结果。(a)锥形 THz 波导实验光路图^[17]；(b)锥形波导对 THz 波长的选择作用,其频谱宽度约为 1 THz；(c)锥形波导对分辨率板的成像效果
 Fig. 2 Schematic diagram of conical aperture experimental setup and its imaging results. (a) Experimental optical path of tapered THz waveguide^[17]; (b) selection of THz wavelength by tapered waveguide (frequency spectrum width of taper waveguide is about 1 THz); (c) imaging effect of tapered waveguide on resolution plate

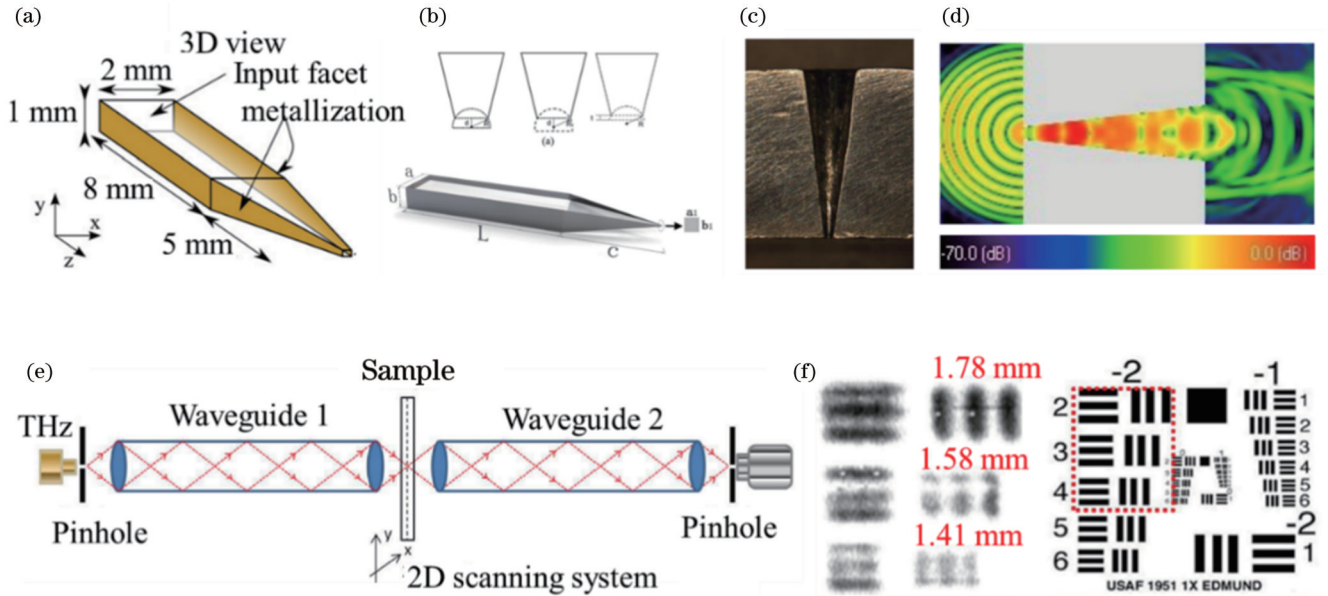


图 3 多种物理孔径波导示意图。(a)(b)半开放型传播锥形波导示意图^[18,20]；(c)金属封闭锥形波导实物图^[21]；(d)锥形波导电场强度模拟；(e)共聚焦 THz 波导原理图；(f)共聚焦波导对分辨率板的成像效果^[19]
 Fig. 3 Schematic diagrams of multiple physical aperture waveguides. (a)(b) Structures of semi-open tapered waveguides^[18,20]; (c) picture of metal enclosed tapered waveguide^[21]; (d) electric field distribution of tapered waveguide; (e) schematic of confocal THz waveguide; (f) imaging effect of confocal waveguide for resolution plate^[19]

构凹槽对特定波长 THz 的共振增强作用使得牛眼结构可以在特定波段完成高对比度 THz 近场成像。此类方案的另一优势在于:可以根据预设成像需求设计

具有提高对应波长透过率的周期结构凹槽器件。图 4 (b)、(c)是牛眼结构对金属线二维扫描的成像效果,其空间分辨率可以达到 70 μm。

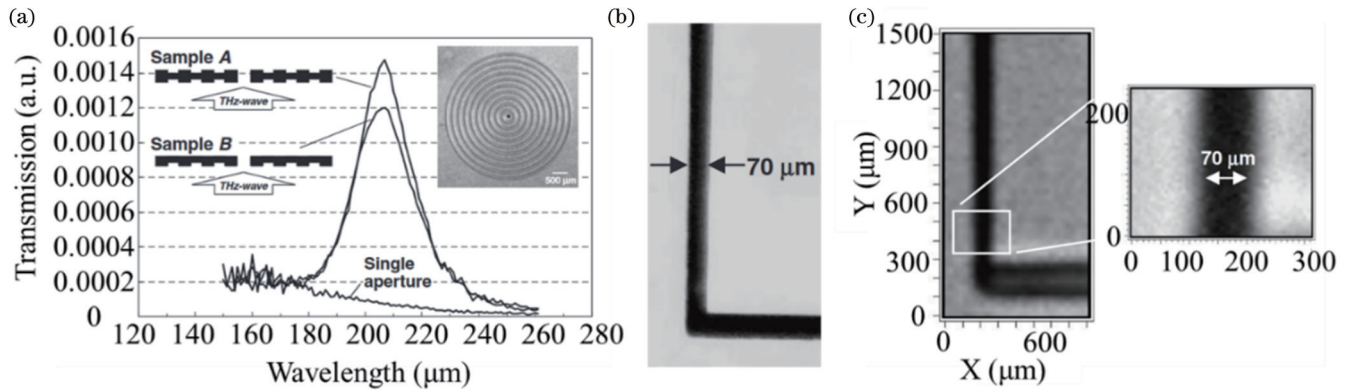


图4 牛眼结构孔径与其成像效果^[22]。(a)牛眼结构对特定波长的THz透过率;(b)待成像金属线样品;(c)使用牛眼结构扫描图4(b)的成像结果

Fig. 4 Bull's eye structure and its imaging effect^[22]. (a) THz transmission spectrum of bull's eye structure for specific wavelength; (b) sample of metal wires to be imaged; (c) imaging result for Fig. 4(b) obtained by bull's eye structure

2.2 动态孔径 THz 近场成像系统

与物理孔径相比,动态孔径是一种直径实时动态可调的微孔结构。目前实现动态孔径的方式主要有两种:一种类似光泵浦方案,该方案激发半导体形成特定分布的载流子,进而调制 THz 空间分布,形成动态 THz 微孔;另一种是基于飞秒激光光丝的方案,该方案基于飞秒激光光丝对 THz 的束缚作用形成微孔或是使用交叉光丝形成微孔。动态孔径可以自由调制微孔直径,是一种较为灵活的成像方案。

2000年,张希成团队^[23]通过在半导体晶片上引入光学选通光束,实现动态孔径 THz 近场成像。如图 5(a)所示,由选通光束引起的瞬态光载流子变化可以对透过的 THz 脉冲进行调制,其成像分辨率由选通光束的聚焦条件决定,可以达到 50 μm 。这种动态孔径成像技术的核心思想不再局限于直接改变 THz 脉冲的光斑大小,而是基于 THz 脉冲对样品载流子浓度的敏感特性,通过类似光泵浦的方式局域改变材料载流子分布情况,进而控制 THz 近场光斑直径。

动态孔径 THz 近场成像技术的特殊优势是可以和压缩感知技术结合,在保证成像分辨率的前提下极大地提升成像速度。如图 5(b)所示,Mittleman 团队使用一系列掩模版对 THz 脉冲进行空间调制,在远场使用单像素强度探测器采集信号,通过压缩感知算法对采集到的信号进行重建,即可得到样品图像。该方案不需要对样品进行二维扫描,成像速度快,然而由于模版结构以及掩模版与样品的间距均未达到亚波长级别,并没有实现超分辨率成像。随着空间光调制器和数字微镜器件(DMD)等高精度高速调制器件的发展,THz 波段压缩感知成像技术迎来新发展。2016年,Hornett 团队^[24]使用数字微镜器件对激光进行二维空间编码,进而激发石墨烯形成动态编码孔径调制的 THz 波。进行多次测量后,使用压缩感知算法重构图像,就可以得到石墨烯电导率分布图像。在光学波段

制作动态孔径使得掩模版的空间结构轻易达到 THz 波对应的亚波长级别。石墨烯既是调制器也是成像目标,掩模版和样品的间距达到近场级别。此方案解决了上述的两个问题。同年,该团队进一步使用薄硅片作为预调制器,在硅片表面使用数字微镜进行二维调制,通过将样品放置在硅片另一面,极大地提升了此方案的实用性,其空间分辨率达到 9 μm ^[25]。2018年,朱礼国团队^[26]使用类似的方案,结合 180 nm 厚的 VO_2 样品数字微镜器件对 THz 近场表面波进行空间编码,获得了 4.5 μm 的空间分辨率。

飞秒激光成丝是高功率超快激光在透明光学介质中传输时出现的一种独特非线性光学现象,在空气中光丝直径为 10^{-4} m 量级,同时飞秒激光成丝现象中 THz 波强空间束缚效应在 THz 超分辨成像方面具有重要应用价值。如图 5(c)所示,2014年刘伟伟团队^[27]以飞秒激光成丝作为 THz 波导,利用光丝对 THz 波的强束缚效应,直接使用光丝作为近场探针对陶瓷片和集成电路板进行二维成像,其空间分辨率达到了 20 μm 。近期,张岩团队^[28]利用两束正交的飞秒激光光丝开发了一种新型动态孔径 THz 近场成像技术,他们使用光丝重合位置作为动态孔径调制 THz 脉冲。如图 5(d)所示,他们在不接触样品的情况下实现了对金属、半导体、塑料和油性样品的 THz 近场成像,分辨率可以达到 150 μm 。这种技术在实现 THz 波段亚波长分辨的同时保证激光光丝不会损坏样品,拓展了飞秒激光成丝现象在 THz 近场成像领域的应用范围。

2.3 人工表面等离子激元聚焦结构

常见的金属材料等离子体频率 ω_p 处于光学波段(以金属银为例, $\omega_p = 11.9989 \times 10^{15}$ Hz),因此表面等离子激元器件主要被应用于光学波段。尽管金属的介电常数在 THz 波段仍然小于 0,但是 THz 波在金属表面的损耗较大,很难形成局域或传播等离子激元模式。因此,需要在金属表面制备亚波长周期结构,以调节其

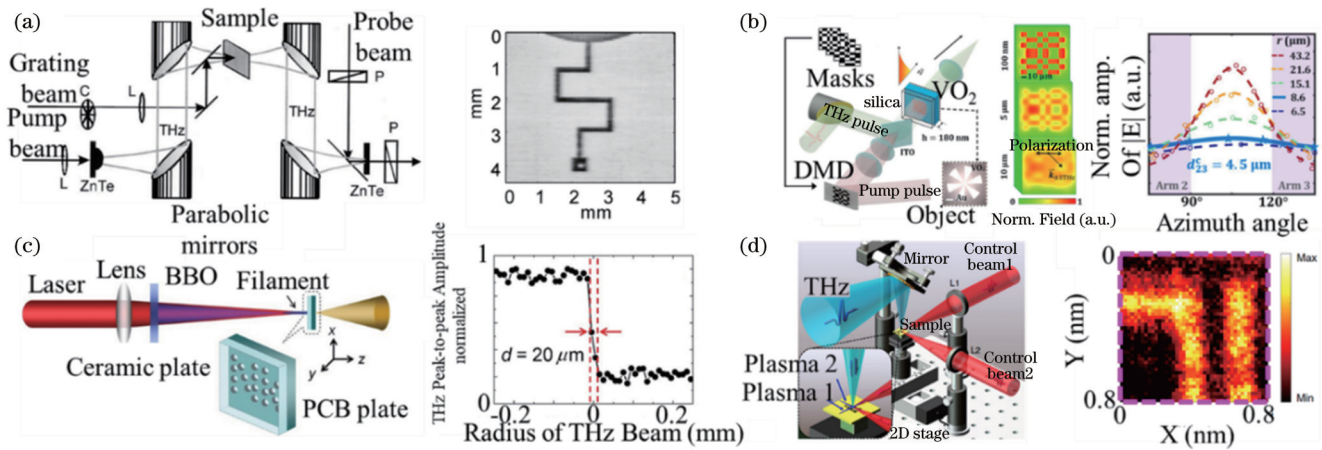


图 5 动态孔径 THz 近场成像。(a) 基于光泵浦方式调控局域载流子浓度的 THz 近场成像系统, 右图为此系统对金属线的成像效果^[23]; (b) 基于压缩感知成像技术的动态孔径 THz 成像系统, 右图为此系统对金属线的成像效果^[26]; (c) 基于双色飞秒激光光丝的动态孔径 THz 成像系统, 右图为此系统对金属孔的成像效果^[27]; (d) 基于正交双光丝的 THz 近场成像系统, 右图为此系统对金属线结构的成像效果^[28]

Fig. 5 Dynamic aperture THz near-field imaging. (a) THz near-field imaging system based on optical pump to control local carrier concentration (image on the right shows imaging effect of system on metal wires^[23]); (b) dynamic aperture THz imaging system based on compressed sensing imaging technology (image on the right shows imaging effect of system on metal wires^[26]); (c) dynamic aperture THz imaging system based on two-color femtosecond laser filament (image on the right is imaging effect of system on metal holes^[27]); (d) THz near-field imaging system based on orthogonal double filaments (image on the right shows imaging effect of system on metal wire structure^[28])

有效介电常数, 将表面等离子体频率降低至 THz 波段, 减少 THz 波段等离子体激发损耗, 从而有效在 THz 波段激发表面等离子体激发。人工表面等离子体激发结构包括金属锥形结构聚焦探针、金属周期结构 THz 超透镜和石墨烯 THz 超透镜等。

如图 6(a) 所示, 2006 年, Vidal 团队^[29]首先提出锥形表面周期结构探针, 在 0.6 THz 实现了 10 μm 空间分辨率。如图 6(b) 所示, 2010 年, Martin-Cano^[30]使用类似的锥形多米诺周期结构将入射面 THz 信号聚焦到亚波长量级。另一种基于人工表面等离子体激发结构的器件为 THz 超透镜, 其本质上是借助亚波长周期结构放大并收集表面波。如图 6(c)~(e) 所示, Jung 等^[31-33]在理论上分析了多孔金属薄膜中的超透镜效应, 即亚波长分辨率信息可以从多孔金属薄膜的输入端口转换到输出端口, 并在实验中使用超薄扇形金属光栅验证超透镜效应, 实现 THz 超分辨率成像, 成像分辨率可以达到 $\lambda/10$ (λ 为波长)。金属线结构也可以用来构建人工表面等离子体激发结构, 2007 年, Ikonen 等^[34]设计了一种阵列金属线锥形结构, 阵列金属线间距从入射端口到出射端口逐渐增加。当输入 THz 频率与 Fabry-Perot 共振条件一致时, 在远场位置可以收集表面波信号, 其成像分辨率达到 $\lambda/4$ 。2013 年, Kuhlmeier 团队^[35]使用类似锥形阵列不仅将 THz 波聚焦到亚波长尺度, 同时提高了出射端口功率, 其成像分辨率在 0.11 THz 达到 $\lambda/28$ 。

石墨烯作为一种特殊的半金属材料, 其调控方式多样, 如掺杂调控、电场调控和磁场调控等, 因此可以

适用宽带 THz 波调控。如图 6(f) 所示, Li 等^[36]模拟了单层石墨烯上金属狭缝在红外至 THz 波段的电场分布情况, 金属狭缝附近出现明显的基于石墨烯表面等离子体激发的电场增强。如图 6(g)、(i) 所示, 刘濮鲲团队^[37]使用电场调制石墨烯表面, 形成扇形结构, 其主要思想是基于石墨烯边缘等离子体激发的 Fabry-Perot 共振, 其空间分辨率达到 400 nm, 工作频段为 4.3~9 THz。如图 6(h) 所示, 他们还设计了一种基于四波混频过程的石墨烯超透镜, 应用石墨烯在 THz 波段的非线性效应, 使存储高频信息的表面波可以被非线性地转化为行波, 从而能够在远场进行观测, 其成像分辨率达到 $\lambda/5$ ^[38]。然而, 多数基于 THz 人工表面等离子体激发的研究工作都停留在理论设计和数值模拟阶段, 究其原因是: 1) 制备大面积均匀稳定的石墨烯表面有难度; 2) 在石墨烯表面制备周期结构或者进行电场磁场调控的难度较大。

THz 人工表面等离子体激发为 THz 超分辨领域提供了具有前景的技术方案, 尽管目前还处于实验室阶段, 但是随着效率更高的 THz 人工表面等离子体器件的出现, 基于该方法的 THz 超分辨成像系统会逐步走向实用化。

2.4 近场天线 THz 成像系统

与孔径式 THz 近场成像方案类似, 近场天线等微空间尺度探测器也可以显著提升 THz 近场成像空间分辨率。近场天线一般与 THz 时域光谱系统 (THz-TDS) 相结合, 可以同时采集 THz 信号的强度、相位、频谱等信息。同时, 光电导天线作为一种装置简单的

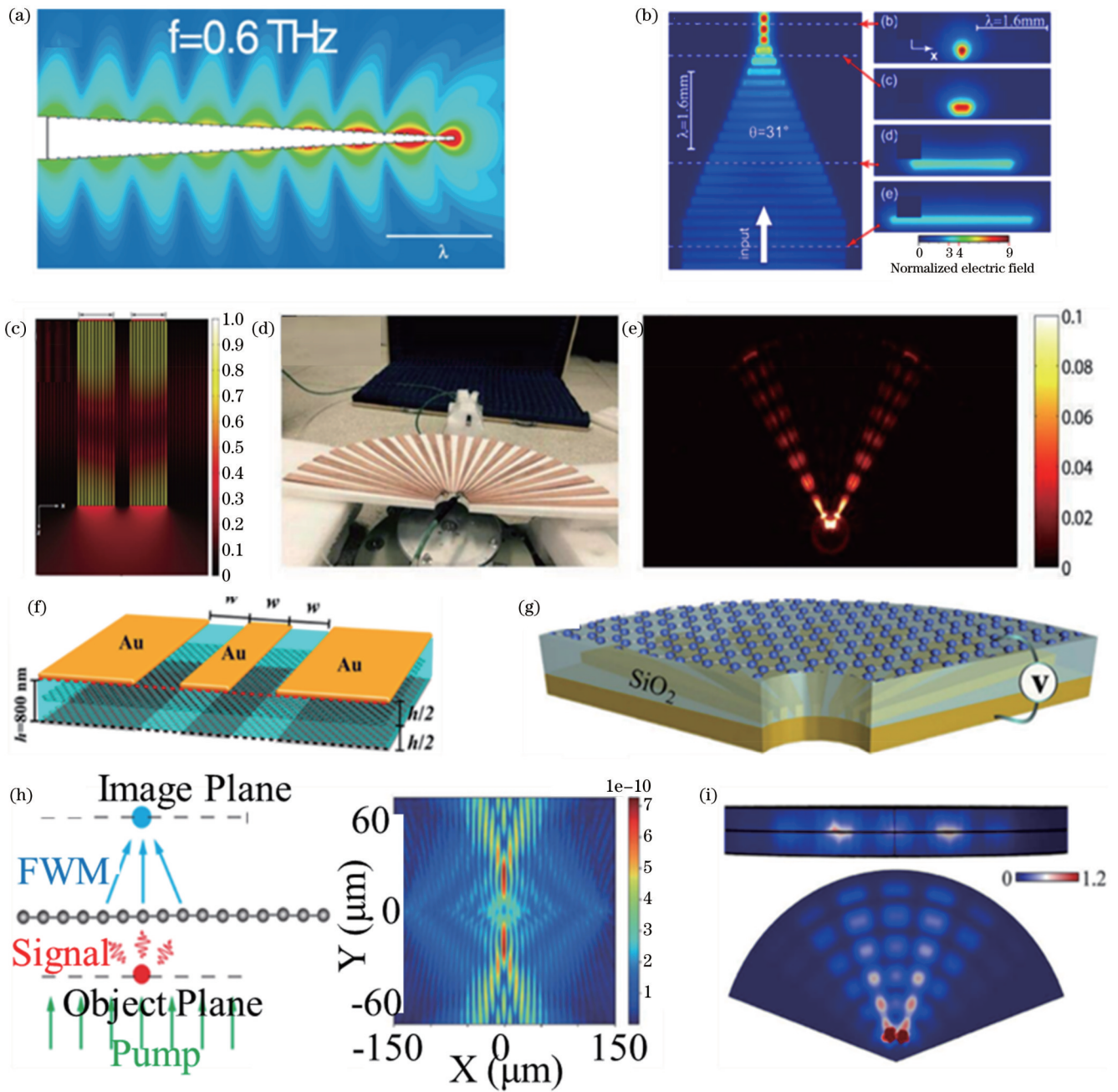


图 6 等离子激元聚焦结构。(a)金属锥形 THz 聚焦周期结构^[29];(b)多米诺式金属锥形 THz 聚焦周期结构^[30];(c)金属周期结构超透镜^[31];(d)扇形金属周期结构超透镜;(e)图 6(d)的聚焦电场分布图^[33];(f)石墨烯表面等离激元对金狭缝的成像建模效果图^[36];(g)电场调控锥形石墨烯等离激元聚焦结构;(h)基于四波混频的石墨烯超透镜原理,右图为超透镜聚焦电场分布图^[38];(i)图 6(g)中结构的电场计算效果图^[37]

Fig. 6 Plasmon focusing structures. (a) THz focusing period structure with metal cone^[29]; (b) THz focusing period structure with Domino metal cone^[30]; (c) superlens with metallic period structure^[31]; (d) superlens with fan-shaped metallic period structure; (e) focused electric field distribution of Fig. 6(d)^[33]; (f) imaging modeling effect of graphene surface plasmon for gold slit^[36]; (g) electric field controlled conical graphene plasmon focusing structure; (h) principle of graphene superlens based on four wave mixing (image on the right is superlens focusing electric field distribution^[38]); (i) calculated electric field effect of structure in Fig. 6(g)^[37]

宽带高信噪比采样方案,也是搭建紧凑型 THz 近场成像系统的理想选择。近场天线方案于 2000 年由 Mitrofanov 团队^[39]提出,他们在 1 mm 厚低温砷化镓 (LT-GaAs) 上制作带隙为 30 μm 和 50 μm 的单带隙近

场天线,实现了 50~60 μm 的空间分辨率。近场天线研制主要分为两个方向,一种是追求具有更高时空分辨率的针尖形式的近场天线,另一种是追求集成化和微型化片上集成孔径天线。

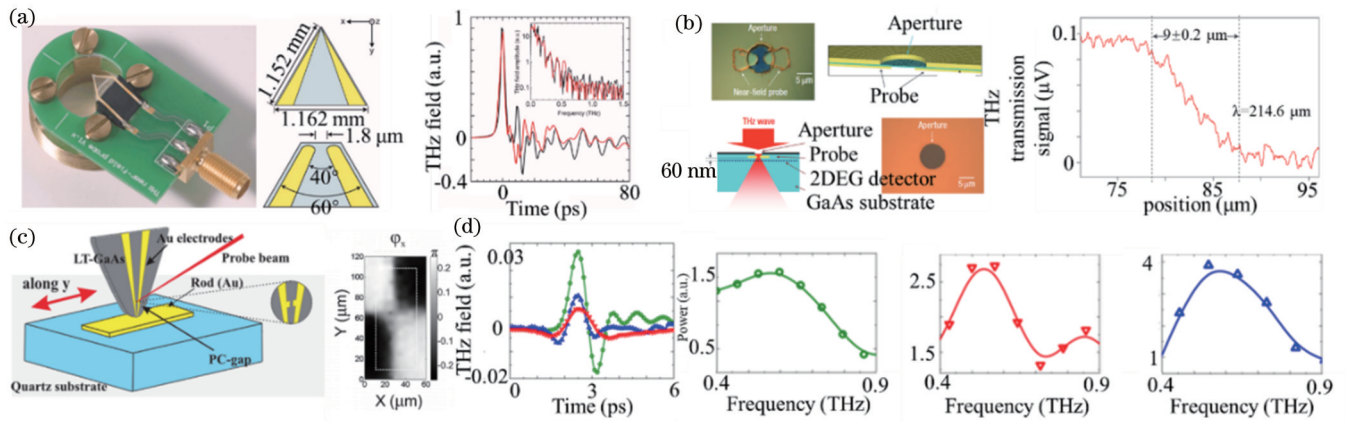


图 7 近场天线结构。(a)单带隙近场天线结构图,两个金属线尖端间距为 $1.8\ \mu\text{m}$,右图为不同入射 THz 偏振状态下此近场天线的扫描结果^[40]; (b)片上集成孔径 THz 近场天线结构图,右图为此天线的透射信号^[41]; (c)(d)入射光偏振对 THz 近场天线扫描结果的影响^[42]

Fig. 7 Near-field antenna structures. (a) Structure diagram of single-band gap near-field antenna (distance between two metal wire tips is $1.8\ \mu\text{m}$, and right image shows scanning results of this near-field antenna for different incident THz polarization states^[40]); (b) on-chip integrated aperture near-field THz antenna structure, and image on the right shows transmission signal of this antenna^[41]; (c)(d) influence of incident light polarization on scanning results of near-field THz antennas^[42]

2009年,Wächter团队^[40]在三角形低温砷化镓(LT-GaAs)基底(厚度为 $1.3\ \mu\text{m}$)上制作了一对锥形金属线,金属线尖端间距为 $1.8\ \mu\text{m}$ 。图7为近场天线结构。如图7(a)所示,当THz照射到金属线尖端时,基于两个金属线尖端的局域场增强效应可以直接对尖端间距部分进行采样,实现 $5\ \mu\text{m}$ 的空间分辨率和约 $1\ \text{ps}$ 量级的时间分辨率,频谱宽度约为 $1\ \text{THz}$ 。图7(a)右图表示在不同入射THz偏振状态下采集的近场时域信号和对应的频谱信号。2016年,Gómez Rivas团队^[42]进一步研究了入射THz偏振方向与近场信号之间的关系。图7(d)所示为入射THz偏振与扫描方向相同时的近场信号、入射THz偏振与扫描方向不同时的近场信号,以及沿着Z方向扫描时的近场信号。当扫描方向与入射THz偏振方向相同时,除了近场信号,更多的人射THz信号进入近场天线,因此时域信号较强,但是无法真实反映近场信息。图7(c)中频谱为排除入射THz波干扰之后的频谱,因此沿着垂直入射THz波偏振方向扫描可以更真实地反映近场信息。由此可见,对于近场天线的结构,电极之间带隙宽度都对THz波偏振有选择作用。针尖形式的近场天线不仅可以实现高分辨率,还可以用于高性能THz器件方面的研究。臧小飞团队^[43]使用针尖形式近场天线设计验证了偏振无关的几何超表面,实现偏振无关的THz波的超长聚焦焦深调控,并实现纵向高分辨、高宽容性的扫描成像。

另一种近场天线结构为孔径天线,天线被集成在微孔和基底中间。2008年,Ishibashi团队^[41]将孔径、单带隙天线和THz探测器等所有必要检测组件集成于单个半导体芯片。如图7(b)所示,这种集成芯片和近场探针类似,也是贴近样品使用,不同点在于:探测器

同样位于近场位置,不需要再进行远场检测,消除了背景信号和远场传播信号的影响。这种集成芯片可以直接检测近场表面波,不需要复杂的降噪系统就可以获得高对比度和高分辨率图像,其成像分辨率可以达到 $9\ \mu\text{m}$ 。

综上所述,孔径探针THz近场成像系统的主要发展方向可以概括为动态孔径、物理孔径和近场天线。传统动态孔径和物理孔径的THz成像的空间分辨率都在 $100\ \mu\text{m}$ 左右^[42]。基于数字显微镜器件的动态孔径THz成像的空间分辨率可以达到 $4.5\ \mu\text{m}$ ^[26]。基于激光光丝的近场成像系统的空间分辨率可以达到 $20\ \mu\text{m}$,但是光丝会破坏样品,限制了其使用场景^[27]。近场天线方案借助微米级电极间距,同样可以获得 $5\ \mu\text{m}$ 空间分辨率,同时近场天线本身和THz时域光谱系统结合,其时间分辨率可以达到 $1\ \text{ps}$,频谱宽度可以达到 $1\ \text{THz}$ 。

3 散射探针 THz 近场成像

散射探针THz近场成像和孔径探针方案不同,不再直接通过探针将THz波耦合到近场表面,而是在入射THz波作用下,借助空间尺度极小的探针与样品之间的散射表征样品表面亚波长尺度信息。和孔径探针相比,散射探针的优势在于不再受截止频率限制,可以适用宽光谱THz光源。散射探针THz近场成像技术的难点在于近场散射信号较弱,需要在抑制强背景噪声的同时提升成像对比度。下面介绍散射探针THz近场成像的具体原理、信号采集方法和前沿应用。

3.1 散射探针近场成像与信号提取技术

如图8(a)左图所示,散射探针THz近场成像系统一般由3部分组成。第1部分是THz光源。产生THz

波的光学方案包括以下几个部分: 1) 在商用超快激光器基础上, 使用光电导天线、非线性晶体或飞秒激光成丝等方案产生相干 THz 辐射; 2) 在自由电子激光器基础上搭建高功率相干 THz 辐射源; 3) 在量子级联器件基础上搭建高功率 THz 量子级联光源。第 2 部分是自相干光路, 通过干涉消除背景噪声。第 3 部分是原子力显微镜。原子力显微镜为针尖和样品提供近场条

件。针尖和样品之间的距离远小于 THz 波长^[44]。当 THz 入射到针尖和样品时, 针尖和样品之间的强作用区形成近场散射信号, 该信号包含了非常丰富的物理信息, 通过近场探针对样品进行二维扫描, 在远场就可以重构样品表面的二维图像。该技术于 1994 年首次被应用于光频率, Zenhausern 等^[45]使用原子力显微镜作为夹装和调制探针平台, 随后散射近场显微被推广

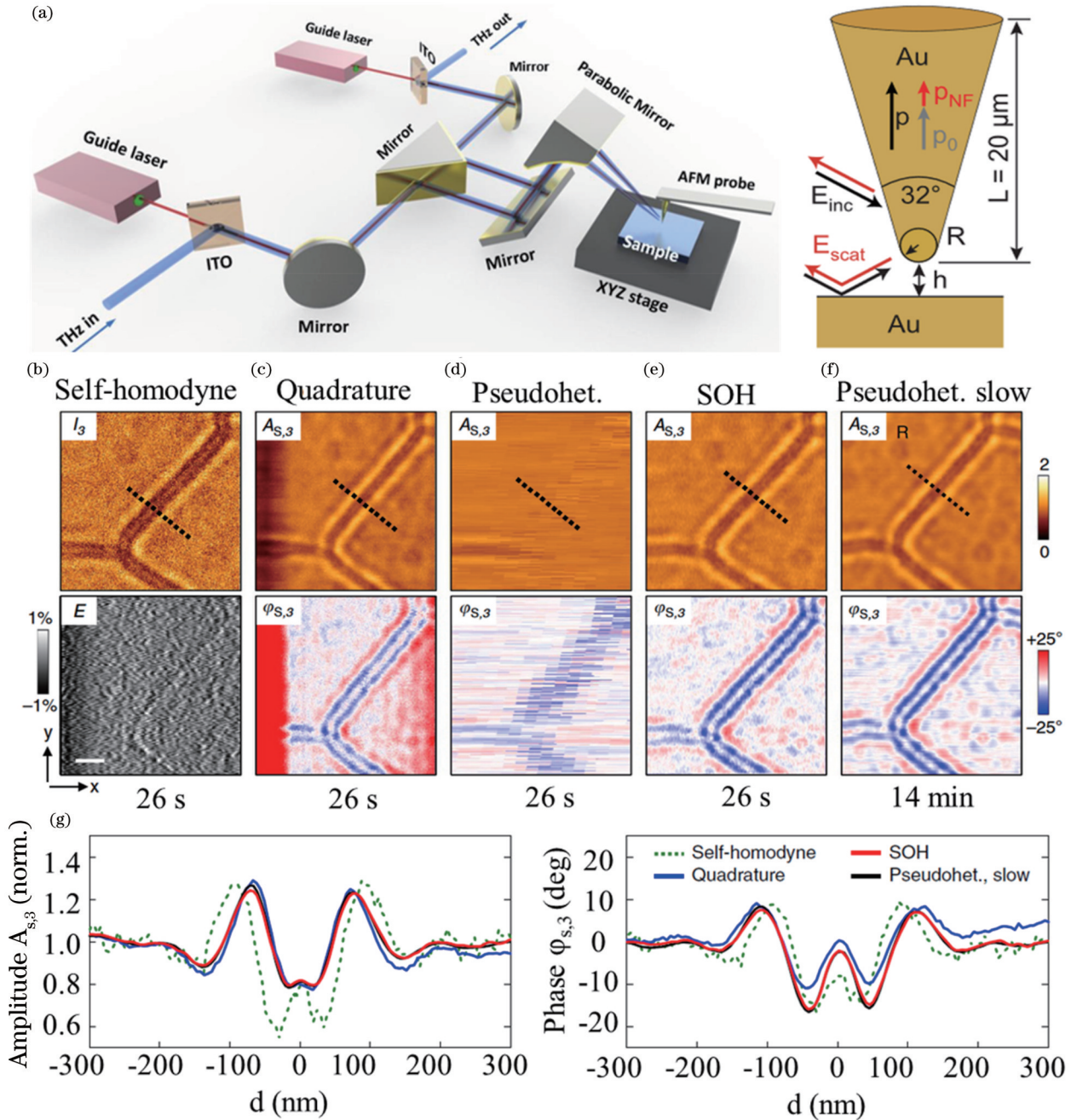


图 8 散射探针 THz 近场成像系统^[46]。(a) 散射探针 THz 近场成像装置示意图(左图)和入射脉冲照射到针尖与样品表面示意图(右图), 其中 E_{inc} 为入射脉冲, E_{scat} 为散射脉冲; (b) 自零差方案结果; (c) 正交零差方案结果; (d) 伪外差方案结果; (e) 合成光学全息方案结果; (f) 伪外差方案结果; (g) 图 8(b)~(f) 中虚线位置的单次扫描 THz 近场信号的强度曲线和相位曲线

Fig. 8 Scattering probe THz near-field imaging system^[46]. (a) Schematic diagram of scattering probe THz near-field imaging (left image) and schematic diagram of incident pulse irradiating tip of needle and surface of sample (right picture) (E_{inc} is incident signal, and E_{scat} is scattering signal); (b) result of self-homodyne scheme; (c) result of quadrature homodyne scheme; (d) result of pseudoheterodyne scheme; (e) result of synthetic optical holography; (f) result of pseudoheterodyne scheme; (g) intensity curves and phase curves of single-scan THz near-field signal at dotted line positions in Figs. 8(b)-(f)

到 THz 波段。

图 8(a) 右图展示了散射探针 THz 近场成像的近场偶极子模型。在近场范围内, 被照射的针尖与样品表面在针尖范围内相互作用, 形成垂直方向净偶极矩 p 。近场散射信号 E_{scat} 与净偶极矩 p 的强度成正比。净偶极矩 p 由入射电场诱导偶极矩 p_0 和近场效应诱导偶极矩 p_{NF} 组成。在入射电场强度不变的情况下, 近场散射信号强度与针尖和样品表面的间距 h 紧密相关。当针尖和样品表面的间距 h 远大于针尖半径 R 时, 近场效应微弱, 几乎不能被观测到。当针尖和样品表面的间距 h 逐渐趋于 0 时, 近场相互作用逐渐增强, 近场散射信号 E_{scat} 增强。通过逐点扫描并记录近场散射信号 E_{scat} 就可以对样品表面进行成像。然而, 和背景噪声相比, 近场散射信号 E_{scat} 依然很微弱。

散射探针 THz 近场成像系统的主要技术难点在于收集近场信号和滤除背景噪声。一方面, 近场散射信号本身较弱, 常规 THz 源能量不高, 散射信号的强度就较低; 另一方面, 近场散射信号强度远低于背景信号强度, 如何从背景信号中将近场信号提取出来也是近场散射系统面临的一大难题。2014 年, Hillenbrand 团队^[46]对比了常用的 THz 近场成像检测方案, 如自零差探测、正交零差探测、伪外差探测和合成光学全息方案。在限定成像时间为 26 s 的情况下, 对面积为 $1.3 \mu\text{m} \times 1.3 \mu\text{m}$ 的石墨烯样品进行扫描。图 8(b) 为自零差探测成像结果, 从该图可以清晰地看到石墨烯边界的强度分布, 但是无法清晰分辨相位; 图 8(c)~(e) 分别为基于正交零差的探测技术、伪外差探测技术和合成光学全息技术^[47]的成像结果; 图 8(f) 为伪外差探测技术扫描 14 min 的结果。正交零差探测技术的成像晶轮廓对比度不够高, 尤其反映在相位图中, 对比度低的原因主要在于背景对近场信号的干扰, 这是正交干涉

法无法避免的。通常使用探针对样品边界的单次扫描结果定义散射探针 THz 近场成像的分辨率与信噪比。散射探针 THz 近场成像的分辨率为对样品边界进行单次扫描得到的曲线导数的半峰全宽; 信噪比为样品单次扫描平均值与背景样品单次扫描平均值的比值^[44]。图 8(g) 展示了上述几种信号提取方案对样品的单次扫描结果。此外, 自零差探测方案的强度信号可以表示为 $I_n \approx |U_{\text{NF},n}| |U_{\text{B},0}| \cos(\varphi_{\text{NF},n} - \varphi_{\text{B},0})$, 其中 I_n 为近场散射强度, $U_{\text{NF},n}$ 为近场散射信号, $U_{\text{B},0}$ 为背景。由于近场散射信号和背景的相位差项 $\varphi_{\text{NF},n} - \varphi_{\text{B},0}$ 不能被精确控制, 即便自零差方案的近场散射信号强度较大, 仍然不适用于相位信号。正交零差方案无法排除背景信号对近场信号的干扰, 此干扰影响其提取相位信息的能力。伪外差技术的成像效果较好, 在扫描时间充分的前提下, 可以得到高对比度且准确的幅值和强度图像。合成光学全息方案是伪外差方案的一种改进, 主要提升了成像速度, 其对信号的解调方式与伪外差方案近似。

如图 9(a) 所示, 在伪外差探测方案中, 降噪系统调制部分由高频振动探针、自相干光路和压电陶瓷振动镜组成。降噪系统电学部分为多通道锁相放大器, 根据扫描探针的振动频率和振动镜的振动频率解调近场散射信号的高阶信号。图 9(b) 为原子力显微镜扫描成像结果, 图 9(c) 为伪外差方案探测扫描成像结果, 图 9(d) 为自零差探测方案扫描成像结果。伪外差方案可以明显区分两种不同材料 (4H SiC 与 6H SiC) 的边界, 但是自零差探测方案的扫描结果显示 6 个不同区域, 据此不能准确地区分两种材料 (4H SiC 与 6H SiC) 的边界。下面以伪外差探测技术为例^[48], 介绍散射探针 THz 近场成像系统提取高信噪比近场信号的基本原理。

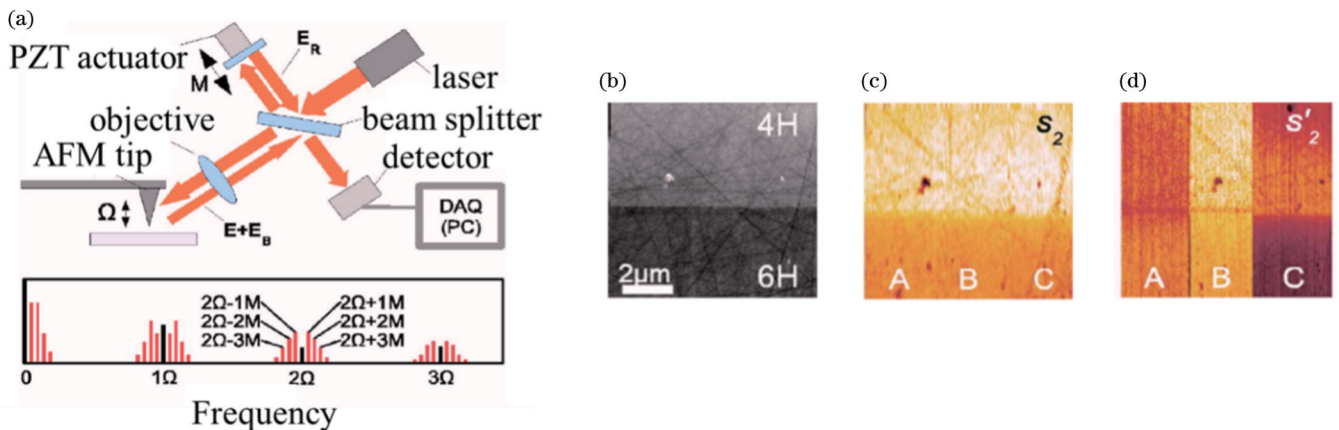


图 9 伪外差探测方案。(a) 伪外差探测实验装置和原理图^[48] (下图表示提取近场信号的频率为探针振动频率和压电陶瓷振动频率的高阶谐波之和); (b) 原子力显微镜成像结果; (c) 伪外差探测成像结果; (d) 自零差探测成像结果

Fig. 9 Pseudoheterodyne detection scheme. (a) Experimental setup and schematic diagram of pseudoheterodyne detection^[48] (following figure shows that extracted frequency of near-field signal is sum of higher order harmonics of probe vibration frequency and piezoelectric ceramic vibration frequency); (b) result of atomic force microscopy imaging; (c) result of pseudoheterodyne detection imaging; (d) result of homodyne detection image

伪外差探测技术的基本原理为:在自相干光路原子力显微镜一臂使用探针高频(频率为 Ω)振动为近场信号施加高频调制,同时在干涉仪的另一臂使用压电控制器为参考镜同样施加调制(频率为 M)。探测器测量到的信号可以简要表示为

$$I_{\text{detector}} = (E_{\text{NF}} + E_{\text{BG}} + E_{\text{ref}})^2 \propto E_{\text{NF}}^2 + E_{\text{BG}}^2 + E_{\text{ref}}^2 + 2E_{\text{NF}}E_{\text{BG}} + 2E_{\text{NF}}E_{\text{ref}} + 2E_{\text{BG}}E_{\text{ref}}, \quad (1)$$

式中: E_{NF} 表示与探针振动频率 Ω 相关的高频调制项; E_{BG} 表示背景噪声; E_{ref} 表示与参考镜振动频率 M 相关的调制项。式(4)只有一项($2E_{\text{NF}}E_{\text{ref}}$)与频率 Ω 和频率 M 都相关,提取这一部分信号就可以对背景噪声进行完全抑制。不仅如此, E_{NF} 由于只与近场效应强度有关,其数值很小,而合并项 $2E_{\text{NF}}E_{\text{ref}}$ 是两个调制信号的乘积(E_{ref} 数值较大),提取这部分信号更利于提升信噪比和成像对比度。尽管散射探针 THz 近场成像的装置复杂并且提取信号难度高,这种方案仍是目前将 THz 成像分辨率提升至纳米量级的有效手段。

3.2 基于扫描隧道显微镜的散射探针 THz 成像系统

基于扫描隧道显微镜的散射探针 THz 成像系统是目前实现 THz 成像空间分辨率最高的方案。2013 年, Hegmann 团队^[49]使用飞秒激光(波长为 800 nm, 能量为 6 μJ , 频率为 250 kHz, 脉宽为 150 fs)驱动光电导天线的方案产生 THz 脉冲(电场强度为 0.12 kV/cm, 斩波器调制频率为 1 kHz), 再将此光源与高精度扫描隧道显微镜结合, 对 InAs 纳米颗粒进行 THz 波段成像, 其成像分辨率达到 2 nm。不仅如此, 基于扫描隧道显微镜的特性, 他们还对样品隧穿电流进行了超快时间分辨。图 10(a)为他们所使用的近场成像装置示意图, 图 10(b)为此 THz 扫描隧道显微系统对高定向热解石墨基底上金纳米颗粒的成像效果图。图中白圈位置表示两个金纳米颗粒之间的边界, 从图中可以清晰地看出 THz 扫描隧道显微镜对金和高定向热解石墨具有非常好的分辨能力, 两种材料交界处近场散射信号曲线的半峰全宽可以达到 2 nm。图 10(c)为输入 THz 脉冲的时域曲线和对应的频谱曲线。

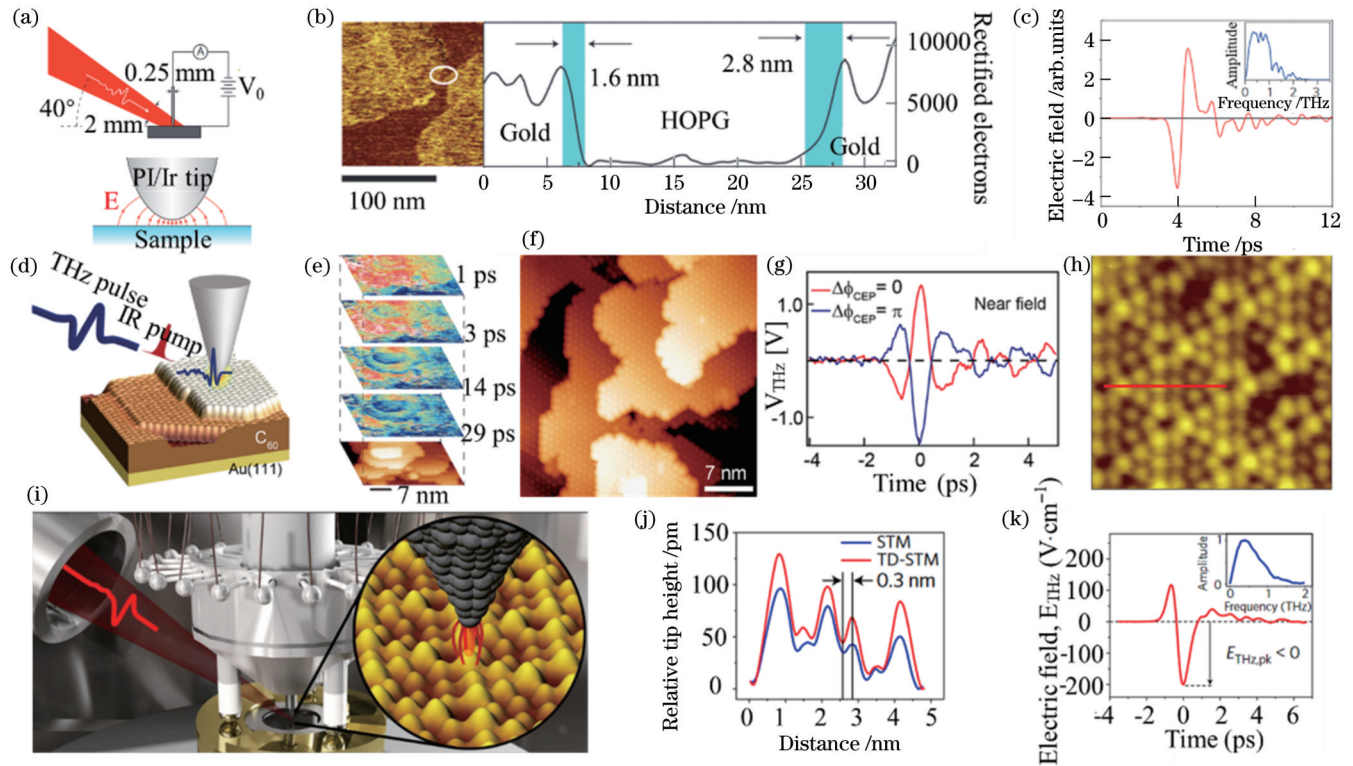


图 10 基于扫描隧道显微镜搭建的 THz 近场成像系统。(a) THz 扫描隧道显微镜成像原理示意图^[49]; (b) 对金纳米颗粒的成像效果; (c) 输入的 THz 时域信号和对应的频谱; (d) 对金基底上多层 C_{60} 进行时间分辨^[50]; (e) 亚纳米尺度空间分辨率和少周期时间分辨率的超快电子动力学测量过程; (f) 扫描隧道显微镜成像结果; (g) 近场时域信号^[50]; (h)~(j) 扫描隧道显微镜二维扫描和 THz 辅助增强隧穿电流后 THz 近场二维扫描对比^[51]; (k) 输入的 THz 时域信号和对应的频谱^[51]

Fig. 10 THz near-field imaging system based on scanning tunneling microscopy. (a) Imaging principle of THz scanning tunneling microscope^[49]; (b) imaging effect of gold nanoparticles; (c) incident time-domain signal and corresponding spectrum; (d) time resolution of multilayer C_{60} on gold substrate^[50]; (e) measurement process of ultrafast electron dynamics with sub-nanoscale spatial resolution and subcycle time resolution; (f) imaging result of scanning tunneling microscope; (g) near field time-domain signal^[50]; (h)~(j) THz near field 2D scanning results after two-dimensional scanning of scanning tunneling microscope and THz assisted tunneling current enhancement^[51]; (k) incident THz time-domain signal and corresponding spectrum^[51]

THz 扫描隧道显微系统也被用于表征瞬态过程中材料表面载流子分布和迁移率。2021 年, Shigekawa 团队^[50]将包络相位稳定的 THz 脉冲(铌酸锂方案)和扫描隧道显微镜结合,探测光泵浦状态下的金基底上多层 C₆₀ 结构。如图 10(d)~(g)所示,通过结合超高空间分辨率和超快时间分辨的优势,可表征在红外光泵浦状态下由最低未占分子轨道中的电子运动过程。强 THz 源的另一个优势是可以增强探针与样品之间的隧穿电流,辅助扫描隧道显微镜成像。2017 年, Hegmann 团队^[51]同样研究了原子尺度下超快非匀质隧穿动力学过程。图 10(h)~(k)为 Hegmann 团队^[51]的实验结果图,图 10(j)对比了强 THz 脉冲作用和无 THz 脉冲作用下扫描隧道显微镜的成像效果。与无 THz 脉冲的作用条件相比,在强 THz 脉冲照射条件下,扫描隧道显微镜中隧穿电流强度增强了 107 倍,同时空间分辨率被提升至 0.3 nm。

3.3 基于原子力显微镜的散射探针 THz 成像系统

尽管 THz 扫描隧道显微镜具有优异的时空分辨能力,但是扫描隧道显微镜需要测量针尖到样品的隧穿电流以表征样品,导致其无法测量绝缘样品,这在一定程度上限制了 THz 扫描隧道显微镜的应用范围。和扫描隧道显微镜类似,原子力显微镜以其卓越的空间分辨能力,成为目前搭建散射 THz 近场成像装置的主流设备。原子力显微镜能够精确地控制探针到样品之间的距离(可以达到 1 nm),这是近场成像的先决条件。原子力显微镜中使用压电陶瓷等器件保持探针与样品之间的间距,和扫描隧道显微镜不同,原子力显微

镜可检测针尖与样品之间的作用力,因此可以对介质材料、半金属材料、二维材料和生物样品等多种材料进行表征^[52]。同时,原子力显微镜可以精确地对探针进行高频调制,由于近场信号只与探针样品间距和探针针尖尺寸有关,因此近场信号与探针振动频率直接相关。对探针进行高频调制是后续收集并解调出高信噪比信号的必要条件。

2014 年, Huber 团队^[53]使用非线性差频方案将两束飞秒激光(两束激光参数分别为:波长为 1.96 μm , 能量为 1.5 nJ, 脉宽为 30 fs; 波长为 1.56 μm , 能量为 5 nJ, 脉宽为 30 fs)入射到 1 mm 厚 GaSe 晶体中,通过调整 GaSe 中的相位匹配条件,获得了频率范围在 15~60 THz 内可调谐、脉冲宽度为 60 fs、单脉冲能量为 30 pJ 的 THz 脉冲输出。将这种宽带可调谐的 THz 光源聚焦到以轻敲模式工作的扫描近场成像系统(Neaspec GmbH)的近场探针尖端(振动频率为 270 kHz),通过扫描 InAs 纳米线实现了 10 nm 空间分辨率。探测系统是基于电光取样的 THz 时域光谱系统,用来提取近场散射信号的相位、振幅和频谱信息。图 11(a)为纳米线结构的时间分辨 THz 近场成像结果,右图为纳米线结构和基底的二维扫描曲线,系统分辨率达到 10 nm。图 11(b)为输入 THz 脉冲的时域信号和对应的频谱和相位曲线。这表明基于原子力显微镜的散射探针 THz 近场成像系统不仅具有超高空间分辨能力,而且还具有超快时间分辨能力。在凝聚态物理领域,这种技术已经被应用到多种二维材料的物理性质研究中,如石墨烯(半金属)、六方氮化硼

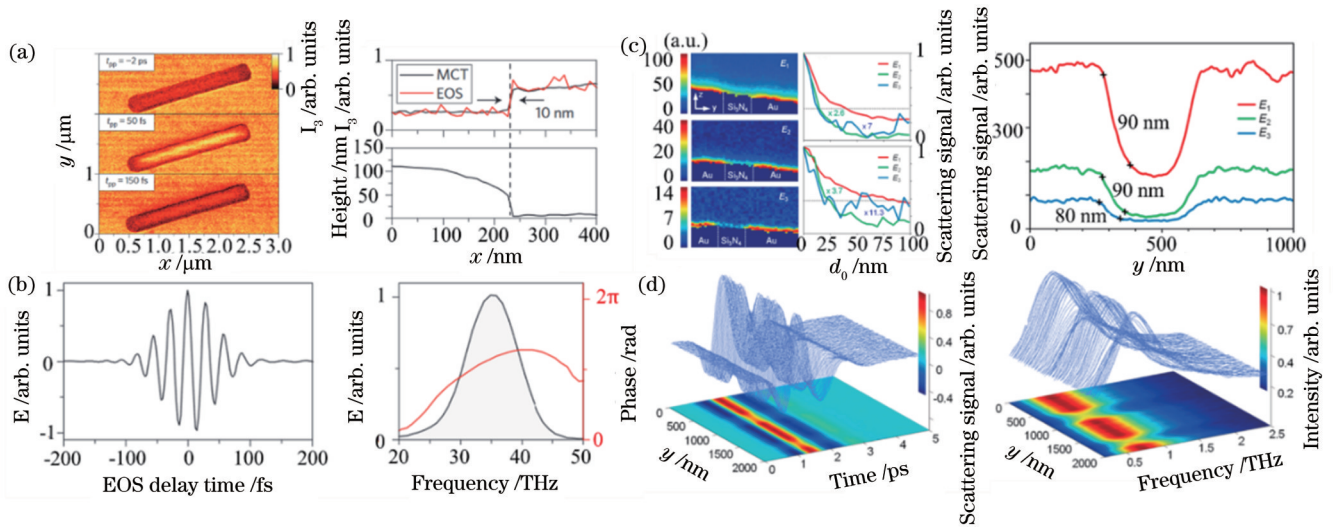


图 11 基于原子力显微镜搭建的近场成像系统的特征。(a)光泵浦状态下 THz 近场成像的时间演化,右图为二维扫描结果,成像分辨率可以达到 10 nm;(b)输入 THz 信号的时域曲线和对应的频谱^[53];(c)对介电材料薄膜覆盖的金属光栅进行 3 种 THz 电场强度下的成像;(d)近场散射测量得到的时域信号和对应的频谱^[54]

Fig. 11 Features of THz near-field imaging system based on atomic force microscopy. (a) THz near field time evolution under optical pump (right image is 2D scanning result, and imaging resolution is 10 nm); (b) time-domain curve and corresponding spectrum and phase of incident THz signal^[53]; (c) imaging results of metal grating covered by thin film of dielectric material under three different electric field intensity; (d) time-domain curve and corresponding spectrum obtained by near field scattering measurement^[54]

(介质材料)和过渡金属二硫化物(半导体)。2015年, Han 团队^[54]使用同样的技术表征了介电材料薄膜覆盖下的金属光栅, 在 1 THz 入射脉冲情况下实现了 90 nm 的分辨率。图 11(c) 为样品表面在 3 种入射 THz 强度下的扫描结果, 右图为金和 Si_3N_4 边界处的二维扫描结果。图 11(d) 为图 11(c) 对应的时域信号和频谱, 其时间分辨率约为 1 ps, 频谱宽度约为 2 THz。

散射探针 THz 近场成像系统有着极高的空间分辨率, 与可见光波段和红外波段相比, THz 波段在物质探测方面有着特殊性。有掺杂的半导体或者半金属材料的载流子密度高, 更容易吸收 THz 辐射。借助散射探针 THz 近场成像技术, 不仅可以获得半导体或者半金属样品的表面形貌信息, 还可以在纳米尺

度表征其载流子数目和载流子分布情况。2008 年, Hillenbrand 团队^[55]使用散射探针 THz 近场成像系统对纳米晶体管中的载流子进行了定量研究。图 12(a) 为仅使用原子力显微镜表征纳米晶体管的表面形貌照片, 图 12(b) 为 THz 近场成像照片, 图 12(c) 为红外近场显微成像照片。另一方面, 样品种类、尺寸以及解调方案对载流子分布具有一定影响。2020 年 Chen 等^[56]使用 THz 近场成像系统研究了亚波长金属纳米结构, 验证了近场成像对比度受到纳米结构样品横向尺寸的影响, 而空间分辨率与其无关。图 12(d)~(g) 分别为原子力显微镜本身的成像结果和 THz 近场成像结果, THz 近场成像对比度主要由样品的局部介电特性和采集参数有关(如针尖尖端半径和解调阶次等)。

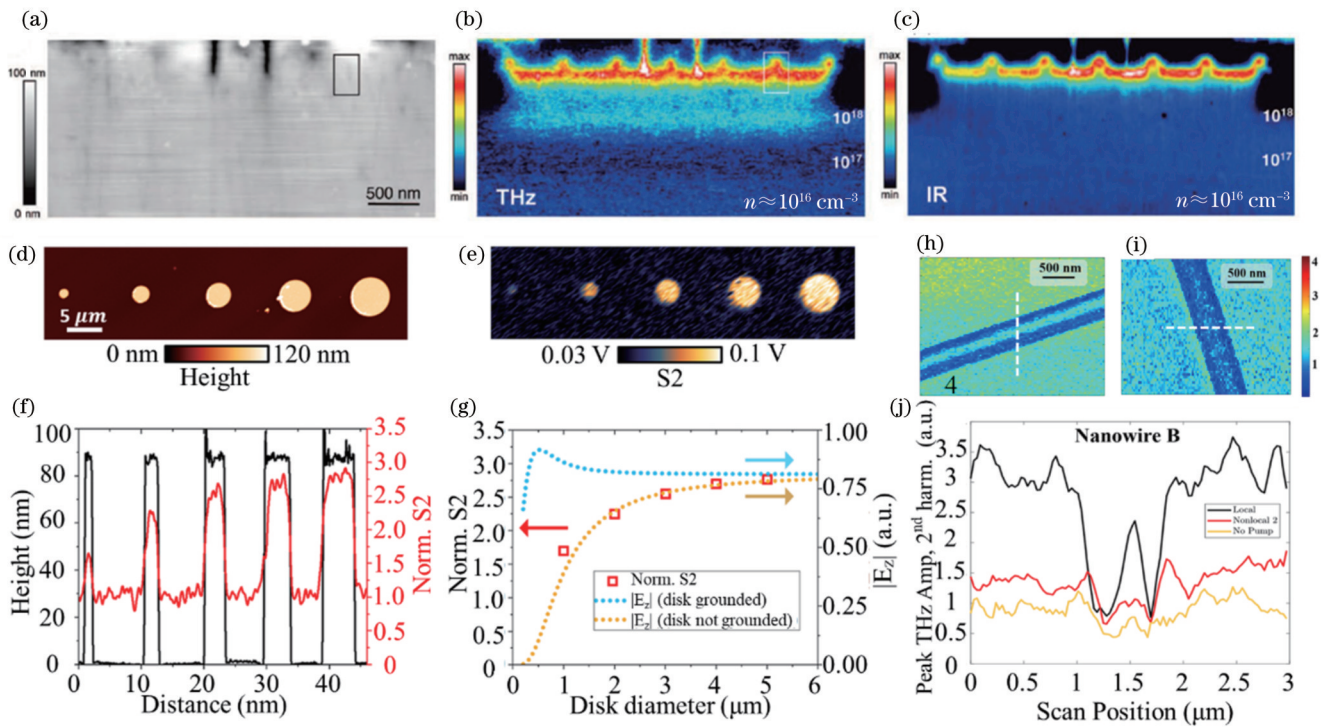


图 12 基于原子力显微镜搭建的近场成像系统的效果对比。(a)原子力显微镜成像结果;(b) THz 近场显微成像结果;(c)红外近场显微成像结果^[55];(d)金薄片的原子力显微镜照片;(e)金薄片的 THz 近场显微照片;(f) THz 近场显微一维扫描信号曲线;(g)二阶近场散射信号和金薄片在接地和未接地情况下计算的电场曲线^[56];(h)(i)局域化探测和非局域化探测结果;(j)图 12(h)中白线位置的二维扫描结果^[57]

Fig. 12 Effect comparison of THz near-field imaging system based on atomic force microscopy. (a) Result of atomic force microscopy imaging; (b) THz near field microscopy imaging result; (c) infrared near-field microscopy imaging result^[55]; (d) atomic force microscopy image of gold disks; (e) THz near field microscopy image of gold disks; (f) 1D scanning signal curves of THz near field microscopy; (g) two-order near-field scattering signal and calculated electric field curves at point charge for ungrounded and grounded disks, respectively^[56]; (h)(i) results of local detection and unlocal detection; (j) 2D scanning result at position of white lines in Fig. 12(h)^[57]

与红外近场成像相比, 通过 THz 近场成像可以清晰地观察到纳米晶体管中载流子分布情况。2021 年, Mittleman 团队^[57]将光泵浦技术与 THz 近场成像技术相结合, 研究了在非局域泵浦条件下样品载流子从泵浦区域向外部运动的规律。在常规的 THz 近场成像

实验中, 泵浦脉冲和探测脉冲一般都要照射到针尖与样品耦合的近场区域, 进行局域探测。在光泵浦条件下, 样品表面载流子发生微观运动, 在泵浦脉冲之外的区域进行近场探测(仅有探测脉冲照射到针尖与样品耦合的近场区域), 可以捕捉到样品表面的载流子运动

情况。图 12(h)、(i)分别为在光泵浦脉冲作用 3 ps 之后,局域和非局域探测纳米线的成像结果。图 12(j)表示图 12(h)中白线位置的二维强度扫描结果,清楚地记录了局域和非局域探测状态下载流子运动过程。

综上所述,孔径式 THz 近场成像系统和散射式 THz 近场成像系统是目前实验中较为成熟的 THz 超分辨成像技术。如表 1 所示,从空间分辨率角度分析,

孔径式 THz 近场成像系统的空间分辨率可以达到约 3 μm ,更高的空间分辨率则依赖于散射式 THz 近场成像系统。从时间分辨率角度分析,使用 THz 时域光谱系统作为检测方案的 THz 近场成像系统具有时间分辨能力,且时间分辨能力与光源和探测系统有关,如使用的少周期 THz 光源的时域半峰全宽只有 100 fs,其时间分辨能力远超一般未经调制的脉冲 THz 光源。

表 1 THz 近场成像方案总结
Table 1 Review of THz near field microscopy

Type of imaging	Probe type	Spatial resolution	Time resolution	Bandwidth / THz	Sample materials
Aperture probe THz near-field imaging	Physical aperture ^[15-20]	~50 μm	~1 ps	~1.5	—
	Dynamic aperture ^[21-26]	4.5-150 μm	—	—	—
	THz surface plasmon ^[27-34]	50-100 μm	—	—	—
	Near-field photoconductive antenna ^[35-39]	3-20 μm	~1 ps	~2	—
Scattering probe THz near-field imaging	Scattering probe based on scanning tunneling microscopy ^[48-51]	0.3-10 nm	~0.5 ps	~2	Conductor
	Scattering probe based on atomic force microscopy ^[52-57]	10-100 nm	~0.5 ps	~2	Conductor, semiconductor dielectric material

4 展 望

超分辨 THz 成像技术随着强 THz 源、高灵敏 THz 探测器和微纳加工技术的发展逐渐从理论走向实验再逐步走向实用化。目前,超分辨 THz 成像技术还有很多亟待解决的问题:

1) 成像速度。目前大部分超分辨 THz 成像技术都是对样品进行二维扫描并记录图像,其成像速度一般都需要 30 min 甚至更久,压缩感知成像方案的引入为提高成像速度提供了行之有效的方案。

2) 设备集成化与轻量化。设备集成化与轻量化是超分辨 THz 成像技术走向应用的前提。

3) 样品多样性。受限于光源或者成像设备,目前可以进行超分辨 THz 成像的样品有一定局限性。未来成像样品应该扩展至生物大分子甚至活体细胞领域,发挥 THz 光源的无损检测特性。

4) 大范围成像。目前超分辨 THz 成像范围较小,难以对大面积样品进行表征,未来超分辨 THz 成像技术可以向大面积快速成像方式扩展。发展 THz 近场成像技术有利于促进基础科学的发展,同时也能够带动应用科学的发展。

目前国内的高空间分辨率 THz 近场成像技术仍不成熟,希望不久的将来国内的研究者们可以带动相关技术的发展和完善,为高分辨率 THz 近场成像技术的应用做出贡献。

参 考 文 献

[1] Wang H B, Yang Z B, Li D D, et al. Imaging biological

samples using far- and near-field THz microscopy[C]//2019 44th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz), September 1-6, 2019, Paris, France. New York: IEEE Press, 2019.

- [2] Ma J J, Shrestha R, Adelberg J, et al. Security and eavesdropping in terahertz wireless links[J]. *Nature*, 2018, 563(7729): 89-93.
- [3] Tonouchi M. Cutting-edge terahertz technology[J]. *Nature Photonics*, 2007, 1(2): 97-105.
- [4] Seo C, Kim T T. Terahertz near-field spectroscopy for various applications[J]. *Journal of the Korean Physical Society*, 2022, 81(6): 549-561.
- [5] Bhadra C M, Khanh Truong V, Pham V T H, et al. Antibacterial titanium nano-patterned arrays inspired by dragonfly wings[J]. *Scientific Reports*, 2015, 5: 16817.
- [6] Buron J D, MacKenzie D M A, Petersen D H, et al. Terahertz wafer-scale mobility mapping of graphene on insulating substrates without a gate[J]. *Optics Express*, 2015, 23(24): 30721-30729.
- [7] Davoyan A R, Popov V V, Nikitov S A. Tailoring terahertz near-field enhancement via two-dimensional plasmons[J]. *Physical Review Letters*, 2012, 108(12): 127401.
- [8] Docherty C J, Parkinson P, Joyce H J, et al. Ultrafast transient terahertz conductivity of monolayer MoS₂ and WSe₂ grown by chemical vapor deposition[J]. *ACS Nano*, 2014, 8(11): 11147-11153.
- [9] Yang X, Zhao X, Yang K, et al. Biomedical applications of terahertz spectroscopy and imaging[J]. *Trends in Biotechnology*, 2016, 34(10): 810-824.
- [10] D'Arco A, di Fabrizio M D, Dolci V, et al. THz pulsed imaging in biomedical applications[J]. *Condensed Matter*, 2020, 5(2): 25.
- [11] Geng G S, Dai G B, Li D D, et al. Imaging brain tissue slices with terahertz near-field microscopy[J]. *Biotechnology Progress*, 2019, 35(2): e2741.
- [12] Shiraga K, Suzuki T, Kondo N, et al. Hydration state inside HeLa cell monolayer investigated with terahertz spectroscopy[J]. *Applied Physics Letters*, 2015, 106(25): 253701.

- [13] Guerboukha H, Nallappan K, Skorobogatiy M. Toward real-time terahertz imaging[J]. *Advances in Optics and Photonics*, 2018, 10(4): 843-938.
- [14] Wang Z M, Qiao J, Zhao S Q, et al. Recent progress in terahertz modulation using photonic structures based on two-dimensional materials[J]. *InfoMat*, 2021, 3(10): 1110-1133.
- [15] Shao D X, Fu Z L, Tan Z Y, et al. Research progress on terahertz quantum-well photodetector and its application[J]. *Frontiers in Physics*, 2021, 9: 751018.
- [16] Mitrofanov O. Terahertz near-field microscopy: science, technology, and insights[EB/OL]. [2022-05-06]. https://discovery.ucl.ac.uk/id/eprint/1573073/1/Mitrofanov_document_compressed.pdf.
- [17] Hunsche S, Koch M, Brener I, et al. THz near-field imaging[J]. *Optics Communications*, 1998, 150(1/2/3/4/5/6): 22-26.
- [18] Berta M, Kužel P, Kadlec F. Study of responsiveness of near-field terahertz imaging probes[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2009, 42(15): 155501.
- [19] Yu T, Zuo X, Liu W W, et al. 0.1 THz super-resolution imaging based on 3D printed confocal waveguides[J]. *Optics Communications*, 2020, 459: 124896.
- [20] Wang N, Zhang X X, Liang J, et al. Novel configuration of aperture-type terahertz near-field imaging probe[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2020, 53(29): 295102.
- [21] Nguyen T D, Vardeny Z V, Nahata A. Concentration of terahertz radiation through a conically tapered aperture[J]. *Optics Express*, 2010, 18(24): 25441-25448.
- [22] Ishihara K, Ikari T, Minamide H, et al. Terahertz near-field imaging using enhanced transmission through a single subwavelength aperture[J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2005, 44(7L): L929-L931.
- [23] Chen Q, Jiang Z, Xu G X, et al. Near-field terahertz imaging with a dynamic aperture[J]. *Optics Letters*, 2000, 25(15): 1122-1124.
- [24] Hornett S M, Stantchev R I, Vardaki M Z, et al. Subwavelength terahertz imaging of graphene photoconductivity [J]. *Nano Letters*, 2016, 16(11): 7019-7024.
- [25] Stantchev R I, Sun B Q, Hornett S M, et al. Noninvasive, near-field terahertz imaging of hidden objects using a single-pixel detector[J]. *Science Advances*, 2016, 2(6): 1600190.
- [26] Chen S C, Du L H, Meng K, et al. Terahertz wave near-field compressive imaging with a spatial resolution of over $\lambda/100$ [J]. *Optics Letters*, 2018, 44(1): 21-24.
- [27] Zhao J Y, Chu W, Guo L J, et al. Terahertz imaging with sub-wavelength resolution by femtosecond laser filament in air[J]. *Scientific Reports*, 2014, 4: 3880.
- [28] Wang X K, Ye J S, Sun W F, et al. Terahertz near-field microscopy based on an air-plasma dynamic aperture[J]. *Light: Science & Applications*, 2022, 11: 129.
- [29] Maier S A, Andrews S R, Martín-Moreno L, et al. Terahertz surface plasmon-polariton propagation and focusing on periodically corrugated metal wires[J]. *Physical Review Letters*, 2006, 97(17): 176805.
- [30] Martín-Cano D, Nesterov M L, Fernández-Domínguez A I, et al. Domino plasmons for subwavelength terahertz circuitry[J]. *Optics Express*, 2010, 18(2): 754-764.
- [31] Jung J, García-Vidal F J, Martín-Moreno L, et al. Holey metal films make perfect endoscopes[J]. *Physical Review B*, 2009, 79(15): 153407.
- [32] Jung J, Martín-Moreno L, García-Vidal F J. Light transmission properties of holey metal films in the metamaterial limit: effective medium theory and subwavelength imaging[J]. *New Journal of Physics*, 2009, 11(12): 123013.
- [33] Tiejun H, Tang H H, Tan Y H, et al. Terahertz super-resolution imaging based on subwavelength metallic grating[J]. *IEEE Transactions on Antennas and Propagation*, 2019, 67(5): 3358-3365.
- [34] Ikonen P, Simovski C, Tretyakov S, et al. Magnification of subwavelength field distributions at microwave frequencies using a wire medium slab operating in the canalization regime[J]. *Applied Physics Letters*, 2007, 91(10): 104102.
- [35] Tuniz A, Kaltenecker K J, Fischer B M, et al. Metamaterial fibres for subdiffraction imaging and focusing at terahertz frequencies over optically long distances[J]. *Nature Communications*, 2013, 4: 2706.
- [36] Li P N, Taubner T. Broadband subwavelength imaging using a tunable graphene-lens[J]. *ACS Nano*, 2012, 6(11): 10107-10114.
- [37] Tang H H, Huang T J, Liu J Y, et al. Tunable terahertz deep subwavelength imaging based on a graphene monolayer[J]. *Scientific Reports*, 2017, 7: 46283.
- [38] Liu J Y, Tiejun H, Liu P K. Terahertz super-resolution imaging using four-wave mixing in graphene[J]. *Optics Letters*, 2018, 43(9): 2102-2105.
- [39] Mitrofanov O, Brener I, Harel R, et al. Terahertz near-field microscopy based on a collection mode detector[J]. *Applied Physics Letters*, 2000, 77(22): 3496-3498.
- [40] Wächter M, Nagel M, Kurz H. Tapered photoconductive terahertz field probe tip with subwavelength spatial resolution[J]. *Applied Physics Letters*, 2009, 95(4): 041112.
- [41] Kawano Y, Ishibashi K. An on-chip near-field terahertz probe and detector[J]. *Nature Photonics*, 2008, 2(10): 618-621.
- [42] Bhattacharya A, Gómez Rivas J. Full vectorial mapping of the complex electric near-fields of THz resonators[J]. *APL Photonics*, 2016, 1(8): 086103.
- [43] Zang X F, Xu W W, Gu M, et al. Polarization-insensitive metalens with extended focal depth and longitudinal high-tolerance imaging[J]. *Advanced Optical Materials*, 2020, 8(2): 1901342.
- [44] Maissen C, Chen S, Nikulina E, et al. Probes for ultrasensitive THz nanoscopy[J]. *ACS Photonics*, 2019, 6(5): 1279-1288.
- [45] Zenhausern F, O'Boyle M P, Wickramasinghe H K. Apertureless near-field optical microscope[J]. *Applied Physics Letters*, 1994, 65(13): 1623-1625.
- [46] Schnell M, Carney P S, Hillenbrand R. Synthetic optical holography for rapid nanoimaging[J]. *Nature Communications*, 2014, 5: 3499.
- [47] Deutsch B, Schnell M, Hillenbrand R, et al. Synthetic optical holography with nonlinear-phase reference[J]. *Optics Express*, 2014, 22(22): 26621-26634.
- [48] Ocelic N, Huber A, Hillenbrand R. Pseudoheterodyne detection for background-free near-field spectroscopy[J]. *Applied Physics Letters*, 2006, 89(10): 101124.
- [49] Cocker T L, Jelic V, Gupta M, et al. An ultrafast terahertz scanning tunnelling microscope[J]. *Nature Photonics*, 2013, 7(8): 620-625.
- [50] Yoshida S, Arashida Y, Hirori H, et al. Terahertz scanning tunneling microscopy for visualizing ultrafast electron motion in nanoscale potential variations[J]. *ACS Photonics*, 2021, 8(1): 315-323.
- [51] Jelic V, Iwaszczuk K, Nguyen P H, et al. Ultrafast terahertz control of extreme tunnel currents through single atoms on a silicon surface[J]. *Nature Physics*, 2017, 13(6): 591-598.
- [52] Deng Y T, McKinney J A, George D K, et al. Near-field stationary sample terahertz spectroscopic polarimetry for biomolecular structural dynamics determination[J]. *ACS Photonics*, 2021, 8(2): 658-668.
- [53] Eisele M, Cocker T L, Huber M A, et al. Ultrafast multi-terahertz nano-spectroscopy with sub-cycle temporal resolution [J]. *Nature Photonics*, 2014, 8(11): 841-845.
- [54] Moon K, Park H, Kim J, et al. Subsurface nanoimaging by broadband terahertz pulse near-field microscopy[J]. *Nano Letters*, 2015, 15(1): 549-552.
- [55] Huber A J, Keilmann F, Wittborn J, et al. Terahertz near-field

- nanoscopy of mobile carriers in single semiconductor nanodevices [J]. *Nano Letters*, 2008, 8(11): 3766-3770.
- [56] Chen X Z, Liu X, Guo X D, et al. THz near-field imaging of extreme subwavelength metal structures[J]. *ACS Photonics*, 2020, 7(3): 687-694.
- [57] Pizzuto A, Castro-Camus E, Wilson W, et al. Nonlocal time-resolved terahertz spectroscopy in the near field[J]. *ACS Photonics*, 2021, 8(10): 2904-2911.

Review on Super-Resolution Near-Field Terahertz Imaging Methods

Zhang Zeliang, Qi Pengfei, Guo Lanjun, Zhang Nan, Lin Lie, Liu Weiwei*

Tianjin Key Laboratory of Micro-Scale Optical Information Science and Technology, Institute of Modern Optics, Nankai University, Tianjin 300350, China

Abstract

Significance The unique physical properties of terahertz (THz) waves, such as their low photon energy, characteristic spectra, and penetration, provide THz technology with essential application value in basic science and applied science. In biomedical science, traditional THz imaging techniques have been used to detect neural tissue responses, water content distribution in tissues, and bone tissue defects. However, the traditional THz imaging techniques can not satisfy the requirements of single-cell imaging and molecular-level pathological analysis as their spatial resolution is low. In material research, traditional THz imaging techniques have been employed to study the optoelectronic responses of two-dimensional materials, two-dimensional material devices, and quantum well devices. However, the traditional THz imaging techniques are insufficient in detecting the carrier's distribution and electron transportation since the wavelength range of the THz band is 30–3000 μm . Moreover, due to the diffraction limit, the resolution of the conventional THz imaging is on the millimeter scale ($\lambda_{\text{THz}}=300 \mu\text{m}$) and thus cannot meet the requirement of the rapid development of scientific research towards the nano-scale. Therefore, THz microscopy with high spatial and temporal resolutions needs to be developed as soon as possible to explore scientific issues at the micro- and nano-scale.

Near-field THz imaging techniques are important methods to improve the spatial and temporal resolutions of THz imaging in experiments. The near-field coupling system that captures the information contained in evanescent waves can be used to create super-resolution images. The high-frequency signals in the evanescent waves can be used to reconstruct surface information, including surface structure, carrier concentration, and phase evaluation.

Progress Aperture probes and scattering probes are the common techniques used in near-field THz imaging. The basic principle of near-field THz imaging with aperture probes is to create subwavelength THz radiation sources or subwavelength THz detectors with micropores. Physical apertures, dynamic apertures, and spoof surface plasmon polaritons are mature solutions for the fostering of near-field THz imaging systems with aperture probes (Figs. 2–7). The spatial resolution and the cut-off frequency are both related to the structure of the aperture probe and the diameter of the aperture. As the cut-off frequency and the coupling efficiency reach the limit, the imaging quality and the spatial resolution of the aperture probe cannot be further improved. Scattering probe microscopy requires a scanning tunnel microscope (STM) and an atomic force microscope (AFM) to provide near-field conditions for the tip-sample system (Figs. 8–12). The distance between the tip and the sample is much smaller than the wavelength of the THz signal. When the THz signal is incident on the tip and the sample, the polarization of the tip and the sample generates the near-field scattering signal. Information on the sample surface can be reconstructed as the tip scans the surface of the sample two-dimensionally.

Conclusions and Prospects This paper summarizes the basic principle of near-field THz imaging and demonstrates the development history and technical routes of various near-field THz imaging techniques. It analyzes the characteristics of those near-field THz imaging techniques and discusses their temporal and spatial resolutions, spectral resolution, imaging quality, signal-to-noise ratio, and application scenarios. Finally, the paper suggests the future development of super-resolution THz imaging.

Key words imaging systems; terahertz technology; super-resolution terahertz imaging; near-field terahertz imaging