

文章编号: 1005-5630(2020)02-0064-06

DOI: 10.3969/j.issn.1005-5630.2020.02.011

# 散射式太赫兹扫描近场光学显微技术研究

岳东东, 游冠军

(上海理工大学 光电信息与计算机工程学院, 上海 200093)

**摘要:** 基于散射式近场探测原理, 设计并搭建了散射式太赫兹扫描近场光学显微系统 (THz s-SNOM), 实现了纳米量级空间分辨率的太赫兹近场显微成像测量。该系统以输出频率范围为 0.1~0.3 THz 的太赫兹倍频模块为发射源, 通过纳米探针的针尖产生纳米光源与样品相互作用, 并将样品表面的倏逝波转化为可在远场测量的辐射波。通过探针逐点扫描样品表面, 同时获得了样品表面的形貌图和太赫兹近场显微图。该系统的显微分辨率取决于探针针尖的曲率半径, 而与太赫兹波的波长无关。使用该系统测量了金薄膜/硅衬底样品和石墨烯样品的近场显微图, 结果表明, 近场显微的空间分辨率优于 60 nm, 波长与空间分辨率之比高达  $\lambda/26\ 000$ 。

**关键词:** 太赫兹; 散射式扫描近场光学显微镜; 外差探测

**中图分类号:** O 433.1 **文献标志码:** A

## Study on scattering-type terahertz scanning near-field optical microscopy

YUE Dongdong, YOU Guanjun

(School of Optical-Electronic and Computer Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China)

**Abstract:** Based on the theory of near-field scanning detection, a scattering terahertz scanning near-field optical microscopy (THz s-SNOM) system is designed and built. The system achieves nanoscale spatial resolution, breaking the diffraction limit. Using a frequency multiplier module with an operating frequency of 0.1–0.3 THz as the emission source, the THz beam is focused onto the tip of an atomic force microscope (AFM) probe. The tip of the needle acts as a nano-light source, interacting with the sample. After the evanescent waves are converted into radiation waves, they are collected by the parabolic mirrors and imaged point by point in the far field. The topography image of the sample surface and the near-field amplitude map without background can be obtained simultaneously. The resolution of the system depends on the tip radius of the AFM

收稿日期: 2019-05-10

作者简介: 岳东东 (1993—), 男, 硕士研究生, 研究方向为散射式近场光学显微镜技术。E-mail: 2941223345@qq.com

通信作者: 游冠军 (1979—), 男, 副教授, 研究方向为散射式近场光学显微镜技术, 超快与太赫兹光谱技术。E-mail: youguanjun@126.com

probe, which is independent on the wavelength of the beam used. The near-field image obtained by scanning different samples shows that the resolution is less than 60 nm and spatial resolution achieves  $\lambda/26\ 000$ .

**Keywords:** terahertz; scattering-type scanning near-field optical microscope; heterodyne detection

## 引言

随着科学技术的发展, 人类对微观世界的研究越来越深入, 光学显微镜作为一种常用工具也在不断发展。然而, 在纳米材料的研究中发现, 传统光学显微镜受衍射极限的限制<sup>[1]</sup>, 难以分辨物体的微观细节。扫描电子显微镜 (SEM)、透射电镜 (TEM) 等方法虽然可以获得较高分辨率的图像, 但是无法做到对样品的无损检测。散射式扫描近场光学显微镜<sup>[2-3]</sup> (s-SNOM) 的出现, 打破了这一局限。s-SNOM 是一种跨越了光学显微镜和电子显微镜两类仪器工作范围的精密成像仪器, 具有独特的优点: 超高的分辨率、无损检测、实时成像、可以获得样品表面的光学信息等。它被广泛应用于科学研究的各个领域, 从基础的表面形貌表征到材料表面的性质分析, 从材料科学到生命科学, s-SNOM 已经逐步演化为研究纳米材料的重要工具。

近年来, 将 s-SNOM 技术扩展到太赫兹波段是近场显微测量领域的研究热点。2008 年, Huber 和 Keilmann 等<sup>[4]</sup> 基于 AFM 平台, 采用在远场探测背向散射信号的 s-SNOM 技术方案, 利用气体 THz 激光器在 2.54 THz 对半导体晶体管进行近场显微成像, 获得了空间分辨率约为 40 nm 的近场图像。2012 年, Moon 等<sup>[5]</sup> 采用光电导天线作为 THz 源, 搭建 THz s-SNOM 系统, 成功提取到近场信号。使用该系统对硅基底上的金薄膜进行扫描, 获得空间分辨率小于 200 nm 的近场图像。2014 年, Moon 等<sup>[6]</sup> 将 THz 时域光谱与采用石英音叉的 AFM 结合, 采用在远场探测前向散射信号的 s-SNOM 技术方案, 对掩埋在 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 表层下的 Au/Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 光栅进行扫描, 实现了分辨率为 90 nm 的 THz 近场显微成像。2016 年, 英国利兹大学的 Dean 等<sup>[7]</sup> 以量子级联激光器 (QCL) 为辐射源, 使用自制的金属探针, 采

用自混频方式检测近场散射信号, 获得了 1  $\mu\text{m}$  空间分辨率的近场图像。同年, Kuschewski 等<sup>[8]</sup> 采用高辐射功率的自由电子激光器作为发射源, 在 1.3~8.5 THz 频段对金纳米颗粒进行超分辨探测, 获得了 50 nm 空间分辨率的 THz 显微成像。2017 年, 英国剑桥大学卡文迪许实验室的 Degl'Innocenti 等<sup>[9]</sup> 采用 QCL 辐射源和自混频检测方式, 利用石英音叉控制纳米探针的振动, 对等离子体共振天线结构进行 s-SNOM 检测, 实现 78 nm 空间分辨率的 THz 近场显微成像。2018 年, Liewald 等<sup>[10]</sup> 采用工作频率为 0.5~0.75 THz 的肖特基二极管为发射源, 搭建 THz s-SNOM 系统。采用外差检测技术, 提取到近场信号的振幅与相位。使用该系统对不同浓度载流子的半导体材料进行扫描, 获得分辨率小于 50 nm 的近场图像。

先前关于 THz s-SNOM 的研究大多采用气体激光器、光电导天线或者 QCL 作为发射源, 工作波长一般在亚毫米波段, 国内外尚未有毫米波段纳米分辨率 THz s-SNOM 的报道。本研究采用 0.1~0.3 THz 频段 (对应波长区间为 1.0~3.0 mm) 的太赫兹倍频模块作为发射源, 设计并建立了具有纳米空间分辨率的 THz s-SNOM 系统, 该系统近场显微成像的空间分辨率优于 60 nm。

## 1 理论分析和系统设计

### 1.1 理论分析

针尖与样品间的近场相互作用是近场探测理论的核心, 将针尖部分简化为一个金属纳米球, s-SNOM 系统可以看作只有针尖与样品的简单模型, 如图 1 所示。在入射光照射时, 探针与基底耦合可以看作在基底内空间对称位置形成的镜像

偶极子与探针金属颗粒的相互作用。镜像偶极子的极化率<sup>[11]</sup>为

$$\alpha_{\text{imag}} = \alpha\beta = \alpha \frac{\epsilon_s - \epsilon_0}{\epsilon_s + \epsilon_0} \quad (1)$$

式中： $\alpha$ 为金属纳米颗粒的极化率； $\beta$ 为镜像偶极子对金属纳米颗粒的响应函数； $\epsilon_s$ 为基底的介电常数， $\epsilon_0$ 为金属纳米颗粒周围环境的介电系数。入射光电场方向垂直于基底表面时，该系统总的有效极化率<sup>[11]</sup>为

$$\alpha_{\text{eff}} = \frac{\alpha(1+\beta)}{1 - \frac{\alpha\beta}{16\pi Z^3}} \quad (2)$$

式中： $Z$ 为金属纳米颗粒到样品表面的距离。

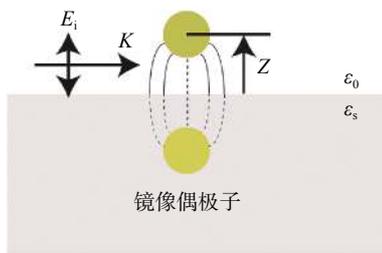
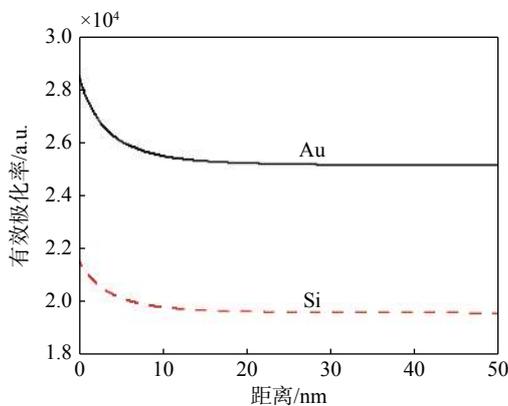


图 1 偶极子模型  
Fig. 1 Dipole model

入射光强为  $E_i^2$ ，偶极子模型中针尖与样品间近场散射光光强  $E_s^2 \propto \alpha_{\text{eff}}^2 E_i^2$ ，因此近场散射光光强受针尖与样品距离  $Z$  非线性调制，针尖与样品之间的距离是正弦变化的，以探针振动频率为基频，对探测器接收到的散射信号做傅里叶变换



(a) 不同样品有效极化率随针尖与样品距离变化曲线

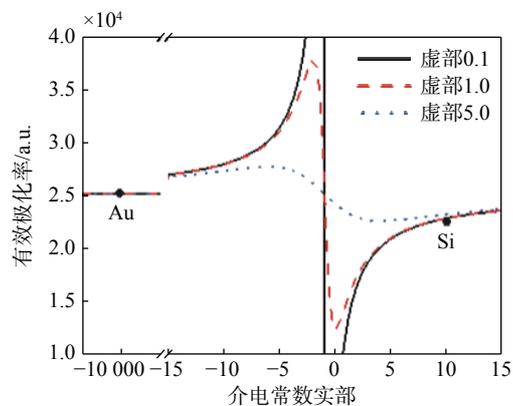
展开可以得到针尖与样品之间的近场信号。

### 1.2 理论计算

以 Pt 为探针介质球，探针的曲率半径为 10 nm，入射光的频率设置为 270 GHz，入射光偏振方向与探针方向平行，将上述参数代入式 (2) 后，模拟出样品为不同材料时，该系统总的有效极化率随针尖与样品距离的变化关系，如图 2(a) 所示。图中实线是采用金样品时计算的结果，虚线是采用硅样品时计算的结果，在针尖与样品距离小于针尖曲率半径时，可以看到，该系统总的有效极化率随针尖与样品距离非线性变化。对比图 2(a) 中两条曲线，采用金样品时该系统总的有效极化率更高，也就是金样品的近场信号强度大于硅样品的近场信号强度。根据偶极子模型的理论公式，计算该系统总的有效极化率随样品介电常数的变化关系，如图 2(b) 所示。入射光频率为 270 GHz 时，金的介电常数为  $-10\,000 + 2\,514i$ ，硅的介电常数为  $11 + 0.01i$ ，样品分别为硅和金样品时，该系统总的有效极化率在图中已经标识出，可以看出金的近场信号强度大于硅的近场信号强度。

### 1.3 系统设计

THz s-SNOM 系统的整体光路图，如图 3(a) 所示。该系统采用背向散射<sup>[12]</sup>的方式，利用倍频模块发射太赫兹波，使用抛物面镜对太赫兹波进行准直，然后聚焦于 AFM 探针的针尖上，针



(b) 有效极化率随样品介电常数的变化曲线

图 2 基于偶极子模型的理论计算结果

Fig. 2 Calculated results based on the dipole model

尖处的散射光沿入射光路原路返回, 经分束器反射后被探测器接收。该系统中的 AFM 工作在轻敲模式(探针的振动频率为  $\omega$ ), 针尖曲率半径约为 10 nm。系统探测器采用差频探测方式输出中频信号(载波频率为  $f$ ), 然后使用锁相放大器在  $f+n\omega(n=1,2,3\cdots)$  频率下对探测器接收的散

射信号进行高阶解调<sup>[10]</sup>, 提取近场信号。对于不同  $n$  值解调得到的近场信号, 我们称为  $n$  阶近场信号。当样品靠近探针的过程中, 不同阶数的返场信号强度随针尖与样品距离的变化曲线, 如图 3(b)所示。

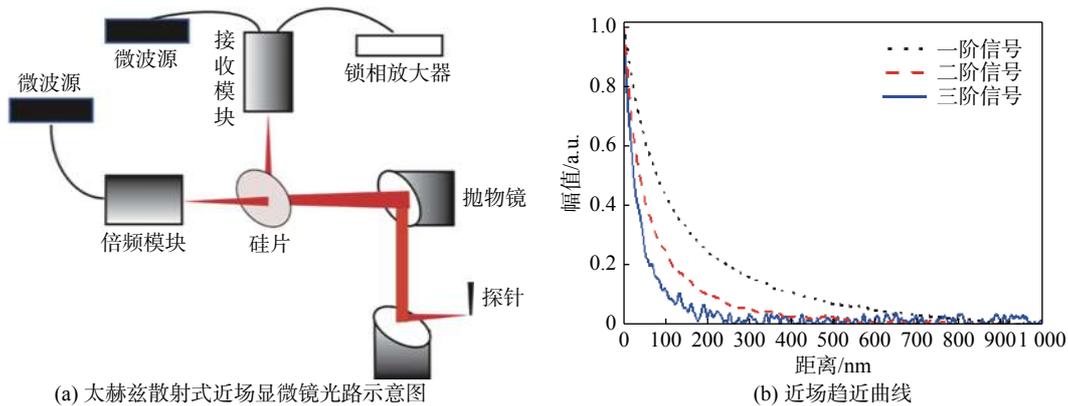


图 3 太赫兹散射式近场扫描显微镜系统示意图和实验测量的太赫兹近场趋近曲线

Fig. 3 Terahertz scattering-type scanning near-field microscope system and near-field approach curves

THz s-SNOM 系统的关键技术是从高的背景散射信号中提取微弱的近场信号。探测器接收的散射信号包括两部分: 一部分来自于探针与样品之间散射的近场信号; 另一部分来自于探针悬臂、探针轴和样品上散射的背景信号。但是, 只有针尖与样品间的近场散射信号受到针尖与样品间距离的非线性调制, 因此以针尖的振动频率为参考频率进行高阶解调, 可有效滤除背景信号<sup>[13]</sup>。可见光波段近场信号易被探针轴、探针悬臂、样品散射的背景信号干扰, 形成伪像<sup>[14]</sup>, 因此多采用外差检测的方法消除背景信号的干扰。在中红外波段通常采用伪外差<sup>[15]</sup>的探测方法消除背景干扰, 提取近场信号。由于 THz 波段波长较长, 针尖与样品之间的近场信号受背景信号影响较小, 可以直接通过高阶解调提取无背景的近场信号。

## 2 数据分析

通过控制 AFM 的扫描管使样品以 20 nm/s 的速度接近针尖, 在 1 000 nm 的范围记录近场信号强度随针尖与样品距离的变化, 做归一化处理, 如图 3(b)所示, 其中黑色曲线为一阶近

场信号, 红色曲线为二阶近场信号, 蓝色曲线为三阶近场信号。在样品靠近针尖过程中, 由于针尖与样品间的近场相互作用, 可以观测到近场信号的显著增强。

对于不同阶数的近场信号, 近场信号强度会随着近场信号阶数的增加而减弱, 但高阶信号可以减少背景信号的干扰。图 3(b)中近场信号随样品与针尖距离的增加而迅速衰减, 但是由于一阶信号中包含部分背景信号, 因此衰减速度要小于二阶信号和三阶信号。在 s-SNOM 的研究中, 通常以近场趋近曲线从峰值衰减到  $1/e$  处的距离近似为系统分辨率<sup>[16]</sup>, 我们搭建的 THz s-SNOM 系统分辨率小于 60 nm。

## 3 实验结果

使用探针逐点扫描样品表面, 可同步得到样品的表面形貌图和近场显微图。在 270 GHz 频点的测量结果如图 4 所示。样品为 Si 基底上的 Au 薄膜, 图 4(a)是 AFM 形貌图, 图中较亮部分为 Au, 较暗部分为 Si, Au 薄膜的高度为 50 nm, 扫描范围为 2  $\mu\text{m}$ , 图(b)是一阶近场幅度图, 图(c)是二阶近场幅度图, 图(d)是三阶近场幅度

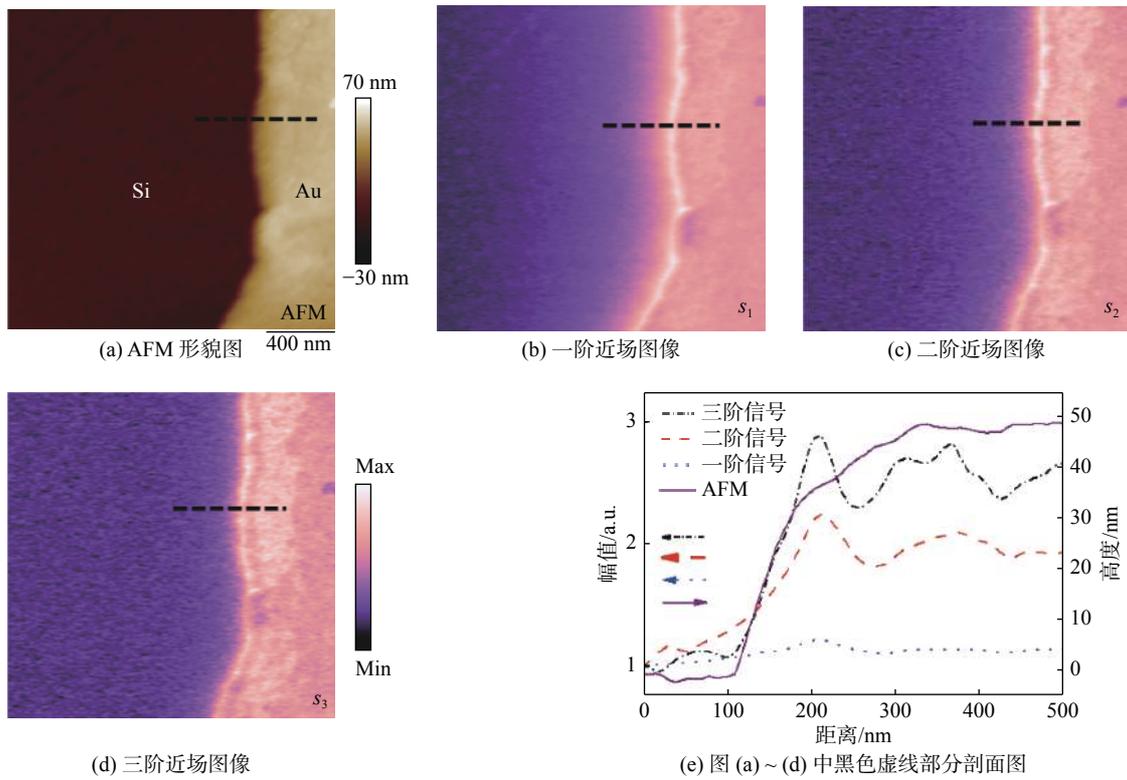


图 4 金薄膜/硅衬底样品的 AFM 形貌图和太赫兹近场显微图

Fig. 4 AFM topography and THz near-field microscopy images of gold thin film/silicon substrate

图，图(e)中的曲线分别是图(a)、(b)、(c)、(d)中黑线虚线处信号的剖面图。对比 AFM 形貌图与近场图形，发现两者具有很好的一致性，我们可以通过近场图像区分 Au 与 Si 样品。在近场信号的剖面图中，可以看到在对样品扫描过程中，由金到硅区域的近场信号变化。由于高阶信号可以减少背景信号的干扰，在近场信号剖面图中，随近场信号阶数的增加，金与硅近场信号的对比度也在增加。对于三阶近场信号由金到硅

过渡区域的宽度小于 100 nm，与近场趋近曲线所估计的分辨率相近。与毫米量级的探测波长相比，该系统具有超高的近场显微空间分辨率。

该系统采用的 THz 源可调谐范围为 0.1~0.3 THz，为进一步测试系统在其他频点的工作性能，我们将倍频模块的发射频率设置为 196 GHz，以少层石墨烯薄片为样品，得到的近场图像如图 5 所示。图 5(a)是 AFM 形貌图，图中左侧微亮部分为石墨烯，中间和右侧区域为二氧化硅/硅基

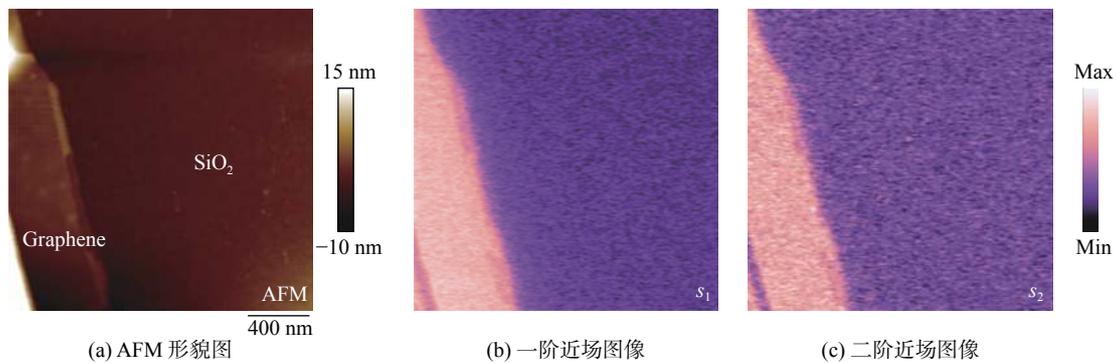


图 5 少层石墨烯薄片的 AFM 形貌图和太赫兹近场显微图

Fig. 5 AFM topography and THz near-field microscopy images of few-layer Graphene on SiO<sub>2</sub>/Si substrate

底, 石墨烯的高度为 8 nm, 扫描范围为 2  $\mu\text{m}$ , 图(b)是一阶近场信号图, 图(c)是二阶近场信号图。在形貌图上二氧化硅与石墨烯并没有太大的高度差, 但是在近场图像上二氧化硅与石墨烯的对比度很高, 左边较亮部分为石墨烯, 右边较暗部分为二氧化硅基底, 对于不同高度的石墨烯, 并不会引起近场信号强度的变化, 近场图像可以很好的对这两种材料进行表征, 而且近场图像的分辨率远大于衍射极限。

## 4 结 论

本研究通过使用可调谐的太赫兹倍频模块, 采用外差探测方法, 成功建立了 THz s-SNOM 系统。分别在 196 GHz 和 270 GHz 的频率下对不同样品进行扫描, 都获得了具有较高衬度的太赫兹近场显微图像, 并证实其空间分辨率小于 60 nm, 波长/空间分辨率之比高达 26 000。THz s-SNOM 以其超高的空间分辨率, 和在纳米尺度下对样品表面近场的有效探测, 为研究微纳材料和结构提供了有效的方法, 具有重要应用价值。THz s-SNOM 在半导体材料、相变材料和生物微结构的探测分析等多个方面都有重要应用, 还有许多课题需要深入研究。

### 参考文献:

- [ 1 ] ABBE E. *Gesammelte abhandlungen III*[M]. Jena: Band, 1906.
- [ 2 ] LAHRECH A, BACHELOT R, GLEYZES P, et al. Infrared-reflection-mode near-field microscopy using an apertureless probe with a resolution of  $\lambda/600$ [J]. *Optics Letters*, 1996, 21(17): 1315 – 1317.
- [ 3 ] KNOLL B, KEILMANN F, KRAMER A, et al. Contrast of microwave near-field microscopy[J]. *Applied Physics Letters*, 1997, 70(20): 2667 – 2669.
- [ 4 ] 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.
- [ 5 ] MOON K, DO Y, LIM M, et al. Quantitative coherent scattering spectra in apertureless terahertz pulse near-field microscopes[J]. *Applied Physics Letters*, 2012, 101(1): 011109.
- [ 6 ] 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.
- [ 7 ] DEAN P, MITROFANOV O, KEELEY J, et al. Apertureless near-field terahertz imaging using the self-mixing effect in a quantum cascade laser[J]. *Applied Physics Letters*, 2016, 108(9): 091113.
- [ 8 ] KUSCHEWSKI F, VON RIBBECK H G, DÖRING J, et al. Narrow-band near-field nanoscopy in the spectral range from 1.3 to 8.5 THz[J]. *Applied Physics Letters*, 2016, 108(11): 113102.
- [ 9 ] DEGL'INNOCENTI R, WALLIS R, WEI B B, et al. Terahertz nanoscopy of plasmonic resonances with a quantum cascade laser[J]. *ACS Photonics*, 2017, 4(9): 2150 – 2157.
- [ 10 ] LIEWALD C, MASTEL S, HESLER J, et al. All-electronic terahertz nanoscopy[J]. *Optica*, 2018, 5(2): 159 – 163.
- [ 11 ] KNOLL B, KEILMANN F. Enhanced dielectric contrast in scattering-type scanning near-field optical microscopy[J]. *Optics Communications*, 2000, 182(4/6): 321 – 328.
- [ 12 ] CHEN H T, KERSTING R, CHO G C. Terahertz imaging with nanometer resolution[J]. *Applied Physics Letters*, 2003, 83(15): 3009 – 3011.
- [ 13 ] HALL J E, WIEDERRECHT G P, GRAY S K, et al. Heterodyne apertureless near-field scanning optical microscopy on periodic gold nanowells[J]. *Optics Express*, 2007, 15(7): 4098 – 4105.
- [ 14 ] HAEFLIGER D, PLITZKO J M, HILLENBRAND R. Contrast and scattering efficiency of scattering-type near-field optical probes[J]. *Applied Physics Letters*, 2004, 85(19): 4466 – 4468.
- [ 15 ] HUTH F, CHUVILIN A, SCHNELL M, et al. Resonant antenna probes for tip-enhanced infrared near-field microscopy[J]. *Nano Letters*, 2013, 13(3): 1065 – 1072.
- [ 16 ] GOMEZ L, BACHELOT R, BOUHELIER A, et al. Apertureless scanning near-field optical microscopy: a comparison between homodyne and heterodyne approaches[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2006, 23(5): 823 – 833.

(编辑: 张 磊)