



中国科学院大学
University of Chinese Academy of Sciences

硕士学位论文

太赫兹近场显微镜偶极子模型及实验验证

作者姓名: 吴昌林

指导教师: 王长 研究员

中国科学院上海微系统与信息技术研究所

学位类别: 工学硕士

学科专业: 微电子学与固体电子学

培养单位: 中国科学院上海微系统与信息技术研究所

2023 年 6 月

**Terahertz near-field optical microscopy source dipole model and
experimental verification**

**A thesis submitted to
University of Chinese Academy of Sciences
in partial fulfillment of the requirement
for the degree of
Master of Engineering
in Microelectronics and Solid-State Electronics**

**By
Wu Changlin
Supervisor: Wang Chang**

**Shanghai Institute of Microsystems and Information Technology,
Chinese Academy of Sciences**

June, 2023

中国科学院大学 学位论文原创性声明

本人郑重声明：所呈交的学位论文是本人在导师的指导下独立进行研究工作所取得的成果。承诺除文中已经注明引用的内容外，本论文不包含任何其他个人或集体享有著作权的研究成果，未在以往任何学位申请中全部或部分提交。对本论文所涉及的研究工作做出贡献的其他个人或集体，均已在文中以明确方式标明或致谢。本人完全意识到本声明的法律结果由本人承担。

作者签名：

日 期：

中国科学院大学 学位论文授权使用声明

本人完全了解并同意遵守中国科学院大学有关收集、保存和使用学位论文的规定，即中国科学院大学有权按照学术研究公开原则和保护知识产权的原则，保留并向国家指定或中国科学院指定机构送交学位论文的电子版和印刷版文件，且电子版与印刷版内容应完全相同，允许该论文被检索、查阅和借阅，公布本学位论文的全部或部分内容，可以采用扫描、影印、缩印等复制手段以及其他法律许可的方式保存、汇编本学位论文。

涉密及延迟公开的学位论文在解密或延迟期后适用本声明。

作者签名：

日 期：

导师签名：

日 期：

摘 要

近场显微镜技术可以克服光学衍射极限，实现纳米级别的成像分辨率和光学性质探测。太赫兹近场显微镜技术利用扫描探针与太赫兹波的相互作用，将探针与待测样品视为在一个小点上的连结，局限太赫兹波与样品的相互作用在结内，从而突破太赫兹成像分辨率低的缺点。这项技术因其成像范围极小和对光源功率要求低等优点而备受关注和发展。近场显微镜的成像分辨率主要受探针样品结和电磁波的耦合影响，通过使用定制化的探针和先进的光源和探测装置，已经实现了 10 纳米以下的空间分辨率和飞秒级的时间分辨率。太赫兹和红外近场显微镜已广泛应用于半导体器件、金属结构、生物样品和二维材料的探测，并成为该领域的前沿研究。随着实验现象越来越丰富，但理论分析仍相对匮乏，点偶极子模型已被有限元仿真模型所取代，并逐渐导向使用数学模型简化仿真计算的方法。

本文主要研究散射型太赫兹近场显微镜，并从介绍近场显微镜的发展开始，详细探讨了其在实验上的广泛应用和在对近场成像原理进行仿真时所存在的困难和挑战。为了解决全波仿真所需的巨大计算量和磁盘占用问题，本文提出了基于点偶极子模型的分析方法，以简化模型，通过解析求解得到外电场在探针上的作用等效于电偶极子的结论。本文进一步提出了基于源偶极子的仿真模型，更加高效地进行仿真研究。在实验方面，本文采用聚焦离子束刻蚀工艺制备金膜样品，验证了连接状态金片比非连接状态金片具有更高近场信号强度的现象。同时，在衬底上也观察到了异常增强的近场信号，并发现靠近连接状态金片附近的信号更强。通过多物理场仿真软件 COSMOL Multiphysics 成功解释了这些实验现象，并提供了良好的基础，为进一步的研究提供了支持。本文的主要内容和创新点如下：

(1) 太赫兹辐照下金属探针近场增强效应机理及成像过程研究。通过数学推导，求解圆锥形金属探针在外电场作用下产生的电势分布，将其用于解释探针针尖上的电场增强效应。研究结果显示，探针尖端的作用等效于一个电偶极子，而探针轴的作用类似于在接受尖端上电偶极子激励所产生的反向电偶极子。电场的增强效应可被尖端上的源电偶极子和探针所描述。然后对近场成像过程进行电磁学仿真。首先进行完全模拟外加电磁波的全波仿真，并引入电磁仿真的相关概念。然后，使用简化的全波仿真方法对探针样品结进行电磁仿真，模拟其上的电磁场分布、电场矢量分布以及近场成像图像。随后，将数学推导的结果融入仿真中，即用源偶极子替代入射电磁波对探针的激励。通过对比全波仿真和源偶极子模型仿真的结果，证明了源偶极子模型可以直接在远场获得散射的近场信号。

(2) 开展了使用太赫兹近场成像技术探测高阻硅上样品近场信号增强效应的实验研究。在该实验中，使用聚焦离子束刻蚀高阻硅上的金质薄膜，将其刻蚀成与外部金属连接或者非连接的金片，其特征尺寸为微米和百纳米。随后，使用

太赫兹近场成像仪器进行近场光学和表面形貌探测。实验结果表明，连接状态的金片具有和周围导体一样强度的近场信号，而非连接状态的金片具有较弱的近场信号。电荷的流动在其中起到了关键的作用，连接状态金片处于类似于接地的状态，因此能够更多地吸收入射电磁波的能量，产生更强的频率红移。然而，在使用聚焦离子束刻蚀的窗口上却观察到了异常的信号增强。此外，发现靠近连接状态金片附近的硅衬底具有较其它位置更强的近场信号。分析表明，经过聚焦离子束刻蚀过程中镓离子的注入，高阻硅的光学性质发生了改变，从原本透明的材料转变为吸收太赫兹波的新状态，这解释了实验中观察到的反常增强现象。多物理场仿真进一步验证了这一现象，表明靠近连接状态金片的硅衬底确实会产生更多的热量，对应着更高的近场信号强度。因此，处于连接状态的金片附近温度升高较快，导致太赫兹近场信号更强。

关键词：太赫兹近场成像，物理建模，电磁仿真，电磁热仿真，聚焦离子束刻蚀

Abstract

Near-field microscopy techniques can overcome the optical diffraction limit to achieve nanoscale imaging resolution and optical property detection. The terahertz near-field microscopy technique uses the interaction between the scanning probe and terahertz waves, treating the probe and the tested sample as a junction at a small point, confining the interaction between the terahertz waves and the sample within the junction, thus breaking through the shortcomings of low terahertz imaging resolution. This technology is of great interest and development because of its advantages such as very small imaging range and low power requirement of the light source. The imaging resolution of near-field microscopy is mainly affected by the coupling of the tip-sample junction and electromagnetic waves, and spatial resolution below 10 nm and femtosecond temporal resolution have been achieved by using customized probes and advanced light sources and detection devices. Terahertz and infrared near-field microscopy has been widely used for the detection of semiconductor devices, metallic structures, biological samples, and two-dimensional materials, and has become frontier research in the field. As experimental phenomena become more abundant but theoretical analysis remains relatively scarce, point dipole models have been replaced by finite element simulation methods and are gradually oriented toward the use of mathematical models to simplify simulation calculations.

This thesis focuses on scattering-type terahertz near-field optical microscopy, and begins with an introduction to the development of near-field microscopy, discussing in detail its wide experimental applications and the difficulties and challenges in performing simulations of near-field imaging principles. In order to solve the huge computation and disk occupation problems required for full-wave simulation, this thesis proposes an analytical method based on the point dipole model to simplify the model and obtain the conclusion that the enhancement of the external electric field on the probe is equivalent to that of an electric dipole by analytical solution. This thesis further proposes a simulation model based on source dipole for more efficient simulation study. In terms of experiments, this thesis uses a focused ion beam etching process to prepare gold film samples and verifies that the connected gold patches have higher near-field signal intensity than the unconnected gold patches. At the same time, anomalously enhanced near-field signals were also observed on the substrate, and stronger signals were found near the connected state metal. These experimental phenomena were successfully explained by the simulation software COSMOL Multiphysics, and provided a good basis for further research. The main contents and innovations of this thesis are as follows:

- (1) A study on the mechanism of near-field enhancement effect and imaging pro-

cess of metal probes under terahertz irradiation. Through mathematical derivation, the potential distribution generated by the conical metal probe under the action of external electric field is solved, and it is used to explain the electric field enhancement effect on the probe tip. The results of the study show that the action of the probe tip is equivalent to an electric dipole, while the action of the probe shaft is similar to a reverse electric dipole produced while receiving an electric dipole excitation on the tip. The enhancement effect of the electric field can be described by the source electric dipole on the tip and the probe. The near-field imaging process is then simulated electromagnetically. A full-wave simulation that fully simulates the applied electromagnetic wave is first performed and the related concepts of electromagnetic simulation are introduced. Then, the electromagnetic simulation of the tip-sample junction is performed using a simplified full-wave simulation method to simulate the electromagnetic field distribution, the electric field vector distribution, and the near-field imaging image on it. Subsequently, the results of the mathematical derivation are incorporated into the simulation, i.e., the source dipole is used to replace the excitation of the probe by the incident electromagnetic wave. By comparing the results of the full-wave simulation with those of the source dipole model simulation, it is demonstrated that the source dipole model can directly obtain the scattered near-field signal in the far field.

(2) An experimental study on detecting the near-field signal enhancement effect of samples on highly resistive silicon by terahertz near-field imaging technology is carried out. In this experiment, the focused ion beam was used to etch gold thin films on highly resistive silicon into either connected or unconnected gold sheets with external metal with characteristic sizes of micrometers and hundreds of nanometers. Subsequently, near-field optical and surface morphology probes were performed using a terahertz near-field imaging instrument. The experimental results show that the connected gold patches have the same near-field signal strength as the surrounding conductor, while the unconnected gold patches have a weaker near-field signal. The charge flow plays a key role in this, and the connected state is in a ground-like state, so it can absorb more energy from the incident electromagnetic waves and produce stronger frequency redshift. However, anomalous signal enhancement was observed on the window etched by the focused ion beam. In addition, the silicon substrate near the connected gold patch was found to have a stronger near-field signal than other locations. The analysis indicates that after the injection of gallium ions during focused ion beam etching, the optical properties of the high-resistance silicon are changed from the originally transparent material to a new state that absorbs terahertz waves, which explains the anomalous enhancement observed in the experiments. Multiphysics field simulations further validate this phenomenon, showing that silicon substrates close to the connected gold patches do generate more heat, corresponding to higher near-field signal strength. Therefore, the temperature near the gold patch in the connected state increases faster, leading to a

stronger terahertz near-field signal.

Key Words: terahertz near-field imaging, physical modeling , electromagnetic simulation, electromagnetic heating simulation, focused ion beam etching

目 录

第 1 章 引言	1
1.1 太赫兹及扫描探针显微镜简介	1
1.1.1 太赫兹成像	1
1.1.2 扫描探针显微镜	2
1.2 近场成像	3
1.2.1 近场成像原理	3
1.2.2 近场显微镜分类	4
1.3 近场成像的研究进展	6
1.3.1 使用近场显微镜探测各类样品	6
1.3.2 近场成像的物理机制探究	13
1.3.3 国内外研究展望	16
1.4 本章小结	17
第 2 章 近场显微镜成像的物理基础和机制	19
2.1 数学模型在近场成像系统中的应用与意义	19
2.2 外加电场下理想球体和圆锥形探针的解析解推导	20
2.3 本章小结	24
第 3 章 近场成像的仿真研究	27
3.1 COMSOL 多物理场仿真软件概述	27
3.2 近场扫描光学显微镜的建模与仿真	28
3.3 对探针与 Au/Si 样品进行频域仿真	29
3.3.1 探针样品结的模型描述及简化方法概述	33
3.3.2 仿真结果	36
3.4 基于源偶极子模型的仿真	40
3.4.1 模型描述	41
3.4.2 源偶极子模型的仿真及其与全波仿真的对比	42
3.5 本章小结	48
第 4 章 近场成像实验	51
4.1 太赫兹波段成像的特点	51
4.2 样品制备	53
4.2.1 Lift-Off 工艺	54
4.2.2 FIB 加工	56

4.3 微纳样品加工过程	57
4.3.1 SEM 蒸金	57
4.3.2 聚焦离子束刻蚀	59
4.4 太赫兹近场成像实验	60
4.4.1 实验装置	60
4.4.2 实验步骤	60
4.4.3 实验结果	61
4.5 使用电磁热仿真解释实验现象	63
4.5.1 电磁热仿真概述	63
4.5.2 耦合电磁热的多物理场仿真模型	64
4.5.3 仿真结果	64
4.6 本章小结	66
4.7 补充资料	66
第 5 章 研究总结	69
参考文献	71
附录	77
.1 勒让德多项式	77
.1.1 定义	77
.1.2 性质	77
.2 电磁热和固体传热方程	77
.2.1 电磁热方程	77
.2.2 固体传热方程	78
.3 加工样品展示	78
致谢	81
作者简历及攻读学位期间发表的学术论文与研究成果	83

图目录

图 1-1 太赫兹在频谱中的位置	2
图 1-2 近场显微镜的分类	4
图 1-3 近场成像原理示意图	6
图 1-4 透射电子显微镜及红外和太赫兹近场显微镜探测结果对比	7
图 1-5 金膜/硅衬底样品界面的 AFM 形貌图	8
图 1-6 利用 THz s-SNOM 探测 InG 的实验装置示意图	9
图 1-7 THz s-SNOM 探测 InG 的实验结果	9
图 1-8 使用 s-SNOM 研究表面极化激元	11
图 1-9 探测石墨烯声学太赫兹等离子激发的实验装置示意图	12
图 1-10 连接不同长度导线的圆形金片周围会产生光晕现象	15
图 2-1 不同形状导体在 1 V/m 外加电场下产生的电场模空间分布	21
图 2-2 对圆锥形金属探针进行数学建模	23
图 3-1 仿真带有悬臂梁的电场强度分布	29
图 3-2 对比使用金属实体和阻抗边界条件来仿真探针对电场分布造成的影响	34
图 3-3 电磁波频域仿真中对探针样品结的几何结构进行建模和网格剖分，并绘制探针样品结上的电场分布	37
图 3-4 在 COMSOL Multiphysics 中模拟样品扫描过程，并将仿真结果转化为近场图像	38
图 3-5 仿真样品表面电场矢量分布	39
图 3-6 仿真随着探针形状改变产生的近场信号和远场信号变化	42
图 3-7 仿真近场信号随探针样品距离 d 的增加所产生的变化	45
图 3-8 源偶极子模型仿真远场的散射信号，并加入探针振幅对其进行调制的影响	46
图 3-9 仿真不同大小，连接状态的金片所具有的近场信号强弱	47
图 4-1 电镜下金膜上金颗粒的连接状态展示	58
图 4-2 用电镜从侧面测量金膜厚度	58
图 4-3 电镜下观察金片样品 (Sample-2) 的 FIB 加工质量	60
图 4-4 TDS s-SNOM 近场显微镜对金片样品 (Sample-1) 的测试结果	61
图 4-5 TDS s-SNOM 对金片样品 (Sample-2) 的表面形貌及三阶近场信号测试结果	63
图 4-6 包含电磁热效应的多物理场仿真结果	65

图 4-7 在多物理场仿真中模拟探针扫描过程，获得样品内部的电场分布 及温度分布	65
图 -1 使用电镜观察微米尺度金片样品 (Sample-1)	79
图 -2 使用电镜观察多个微米尺度金片样品	79

表目录

表 4-1 材料属性	64
------------------	----

符号列表

字符

Symbol	Description	Unit
δ	光学分辨率	m
λ	光波长	m
$N.A.$	数值孔径	1
d	探针样品距离	nm
x	坐标	m
k_x	波矢	$\text{rad} \cdot \text{m}^{-1}$
p	动量	$\text{kg} \cdot \text{m} \cdot \text{s}^{-1}$
ω	电磁波角频率	$\text{rad} \cdot \text{s}^{-1}$
ω_p	等离子频率	$\text{rad} \cdot \text{s}^{-1}$
ε	介电常数	$\text{F} \cdot \text{m}^{-1}$
ε_∞	高频介电常数	$\text{F} \cdot \text{m}^{-1}$
γ	阻尼系数	1
$L_{res,n}$	天线长度	m
E	电场强度	$\text{V} \cdot \text{m}^{-1}$
\mathbf{E}_0	入射电磁场强度	$\text{V} \cdot \text{m}^{-1}$
\vec{E}	电场矢量	$\text{V} \cdot \text{m}^{-1}$
\vec{B}	磁场矢量	T
ρ	电荷量	C
\vec{j}	电流量	A
t	时间	s
Φ	电势	V
R_{tip}	针尖半径	nm
L	探针轴长	μm
E_b	背景电场强度	$\text{V} \cdot \text{m}^{-1}$
\mathbf{p}	电偶极子强度	$\text{A} \cdot \text{m}$
h	传热系数	$\text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$
S_n	n 阶近场信号	V
$normE$	电场强度模	$\text{V} \cdot \text{m}^{-1}$
f_0	AFM Tapping 模式探针振动频率	Hz
E_{far}	远场信号	$\text{V} \cdot \text{m}^{-1}$
E_{near}	近场信号	$\text{V} \cdot \text{m}^{-1}$

算子

Symbol	Description
Δ	difference
∇	gradient operator
∂	partial-differential operator
$P_n(x)$	Legendre polynomials

缩写

THz	Terahertz
SPM	Scanning Probe Microscope
STM	Scanning Tunneling Microscope
AFM	Atomic Force Microscope
SNOM	Scanning Near-field Optical Microscopy
TEM	Transmission Electron Microscope
SEM	Scanning Electron Microscope
PEC	Perfect Electric Conductor
SP	Surface Plasmon
FDTD	Finite Differential Time Domain
LTEN	Laser Terahertz Emission Nanoscopy
PDM	Point Dipole Model
FDM	Finite Dipole Model
SDM	Source Dipole Model
FWS	Full-wave Simulation
FEM	Finite Element Method
MoM	Method Of Moment
TDS	Time-domain Spectroscopy
EBL	Electron Beam Lithography
DUV	Deep Ultra-violet
FIB-SEM	Focused Ion Beam Scanning Electron Microscopy

第 1 章 引言

1.1 太赫兹及扫描探针显微镜简介

太赫兹 (Terahertz, THz) 波是指频率在 0.1 THz 到 10 THz 范围内, 对应波长 0.03 mm 到 3 mm 的电磁辐射。高于 1 千赫兹的电磁波就具有在空间中传播的能力, 生活中用于通信的射频波段可以达到吉赫兹以上的频率, 而在射频与红外波段之间就是 THz 波段。由于射频和微波波段的产生常使用电子学的方法, 超短的激光脉冲又可以引起电学上可测量的变化, 光与电的关系常常密不可分。在物理学上, 电子与光子依靠着量子力学联系在一起, 光和电按照量子化的规律传递着能量。而 THz 波也被认为是联系电子学与光子学的一个桥梁, 具有与二者相似也迥乎不同的性质。表现在实验上, THz 波兼具了与特定材料发生共振的红外波性质, 也具有类似微波信号的空间传播能力。例如, 其与大分子和水等一些材料会产生强的相互作用, 而对于纸张这样的物品又几乎是透明的; 其在湿润的空气中衰减极快, 却可以在扬尘浑浊的空气中进行探测; 同时其具备远高于射频的信号传输频率, 传输距离却很短安全性很强。

不同于微波和红外, 可见光技术手段的成熟, THz 波的产生和接收在过去一直是个难题。无论从电子振荡产生高次谐波的方式, 例如肖特基二极管; 还是从能量更高的波段下变频到 THz 波段, 例如光电导天线; 或者通过调节半导体的带隙来发射低频光子, 例如量子级联激光器, 都较难产生高强度 THz 波。因此 THz 波段在过去也被形容为“太赫兹空隙 (THz gap)”^[1-4]。随着科学技术的发展, 太赫兹辐射源也有了长足的进步, 例如目前的自由电子激光器已经可以产生宽频可调谐大功率的 THz 辐射^[5]。纯粹从研究的角度, 太赫兹波的产生已经不再具有障碍。

这一背景下, 太赫兹与其它学科的结合成为了具有重大意义的前沿研究领域。作为光波, 可以将 THz 波用于物体检测和成像^[6]; 而作为高频的微波, 其也有望用于未来的高速无线通信^[7]; 此外, 该波段在雷达和宇宙学探测上也极具潜力^[4,8]。本文将主要介绍太赫兹近场成像的仿真与实验工作, 同时在其中也包含红外近场成像和微纳加工的内容。

1.1.1 太赫兹成像

近年来将 THz 波应用在成像上的技术引起了广泛的关注, 也就是太赫兹成像。所谓太赫兹成像就是利用太赫兹波与某些材料作用的性质, 来对器件的结构, 材料的光学和电学性质进行探测和成像的技术。从 1995 年到现在, 太赫兹成像的研究已经从如何实现更高的分辨率向着多维度快速成像的方向转变^[6,9,10]。作为成像, 一定是利用粒子的波动性质, 由于光波叠加产生的强弱变化来生成图像。在科学研究的早期, 人类就已经掌握了使用可见光来成像的技术。随着人类掌握的光谱扩展到红外和 X-射线, 成像仪器的种类也得到了极大地扩充。但是

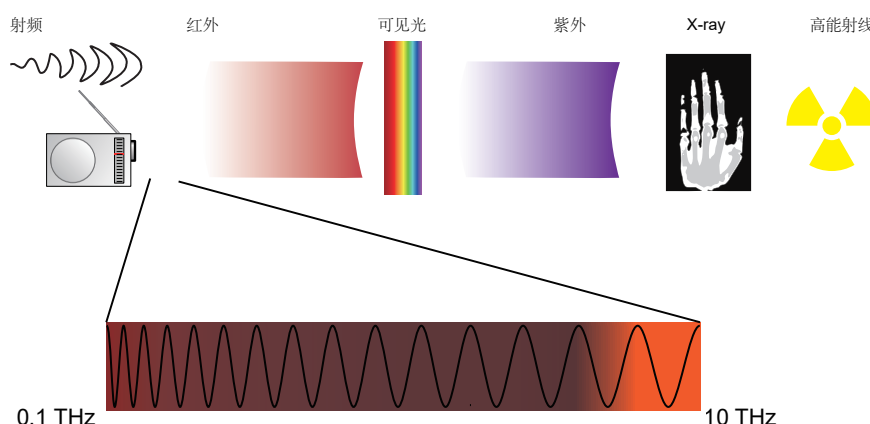


图 1-1 太赫兹在频谱中的位置

Figure 1-1 Position of Terahertz in the spectrum

传统的成像装置因为光学的衍射效应，成像分辨率受限于光源的波长，其识别空间中两个点的最小距离一般大于波长的一半，即阿贝衍射极限（Abbe diffraction limit）。若要突破半个波长的分辨率限制，科学家发展了超分辨光学成像技术，这项技术目前已经广泛应用于生物科学研究中，其发明者 Eric Betzig 等人也获得了 2014 年诺贝尔化学奖^[11]。

远红外和太赫兹波段的波长在微米量级，但实际发生的电磁波与材料相互作用的微观物理机制却常常发生在纳米尺度上。在不借助电磁波的情况下，想要实现微米和纳米尺度分辨率，目前只能借助扫描探针显微镜平台（Scanning Probe Microscope, SPM）。可以认为太赫兹成像完全依靠光学的方式无法实现原子尺度的分辨率，因此引入具有强大成像能力的扫描探针显微镜作为依托平台；也可以认为是在扫描探针平台上通过施加 THz 波来增加其探测的物理量，拓展其探测维度。在此简单地介绍扫描探针显微镜的相关背景知识。

1.1.2 扫描探针显微镜

扫描探针显微镜主要包括扫描隧道显微镜（Scanning Tunneling Microscope, STM）和原子力显微镜（Atomic Force Microscope, AFM）两种类型。从历史发展来看，Gerd Binnig 和 Heinrich Rohrer 对扫描探针显微镜技术的发展做出了突破性的贡献。STM 是最早被发明的扫描探针显微镜^[12,13]，它利用量子隧穿效应测量电子流经样品表面的隧穿电流。一个性能良好的 STM 可以实现亚埃米分辨率的表面拓扑成像，并能够探测到样品表面的局域电子性质。目前 STM 主要被应用于表面物理学、表面化学、纳米电子学和生物物理学等领域的研究。

与 STM 不同，AFM 利用微小力的测量来探测样品表面的形貌和力学性质^[14]。AFM 通过在探针和样品之间施加探测力，测量探针在垂直于样品表面方向上的偏移量，并以此建立起样品表面的形貌图像。AFM 还能够测量样品表

面的力学性质，如硬度、弹性模量和粘性等，其已被广泛应用于材料科学、生物学、化学和物理学等领域的研究。

近年来，随着扫描探针显微镜技术的不断发展，STM 和 AFM 在分辨率、速度和功能等方面都有了显著的提高和扩展^[15,16]。例如，STM 的时间分辨率已经提高到纳秒级别，使得可以研究样品表面的动态过程^[17]。基于 AFM 的磁力显微镜^[18]、导电探针原子力显微镜^[19]和电化学反应检测^[20]等技术也得到了广泛的应用。

由于扫描探针显微镜平台的优越性能，其已经成为进行纳米结构测量，甚至量子效应探测的重要工具。而扫描探针平台具有的强大扩展能力，也吸引着研究者将各类技术与其融合。将电磁波成像的技术与扫描探针显微镜平台进行融合，就产生了扫描近场光学显微镜技术（Scanning Near-field Optical Microscopy, SNOM）。

1.2 近场成像

本章节将回顾了太赫兹散射式扫描近场光学显微镜的基本原理及其关键技术。从一般的近场光学显微镜入手，使用倏逝波解释近场成像的原理，指出其不足。接着对常见的三种近场显微镜做简要介绍，并比较其优缺点和适用的待测样品。

1.2.1 近场成像原理

首先介绍太赫兹散射式扫描近场光学显微镜的工作原理。自从显微镜发明以来，光学手段就是最重要的观测微观世界的方法。受制于 Abbe 衍射极限，即 $\delta \geq 0.61\lambda/NA$ （其中 δ 是光学分辨率， λ 为光波长， NA 为数值孔径），传统的光学显微镜无法实现小于百纳米尺度的空间分辨率。但这是在样品和探针距离远大于波长的远场条件下（ $d \gg \lambda$ ），也就是没有扫描探针显微镜参与时得到的结论。而在近场条件下（ $\lambda \gg d \gg 0.01\lambda$ ），由于倏逝波的存在，分辨率不再受制于衍射极限。事实上，近场成像的分辨率是由样品到探针之间的距离，探针，样品和入射光所共同决定的，一个耦合良好的探针目前已经可以实现 5 nm 级别的成像分辨率^[21]，小于波长的千分之一。

近场成像之所以能够突破光学衍射极限的限制，就在于探针的引入破坏了光波入射在材料表面时的电磁场分布。设待测样品表面为 XY 平面，平面上的任意点投影在 +X 轴上的位置和波矢为 x ， k_x 。已知光学的不确定关系：

$$\Delta x \cdot \Delta k_x \geq 2\pi. \quad (1-1)$$

设此时平面上有 A，B 两点，且入射光波在两点上产生散射。由于 A 和 B 处的波矢方向可以发散在空间中任意角度，不妨设为 \vec{k}_1 和 \vec{k}_2 ，且其模为 k 。因此 A 和 B 两点散射出的波矢投射到 X 轴上的不确定度大小为：

$$\Delta k_x = \hat{x} \cdot (\vec{k}_1 - \vec{k}_2) = 2k \cdot \sin(\theta). \quad (1-2)$$

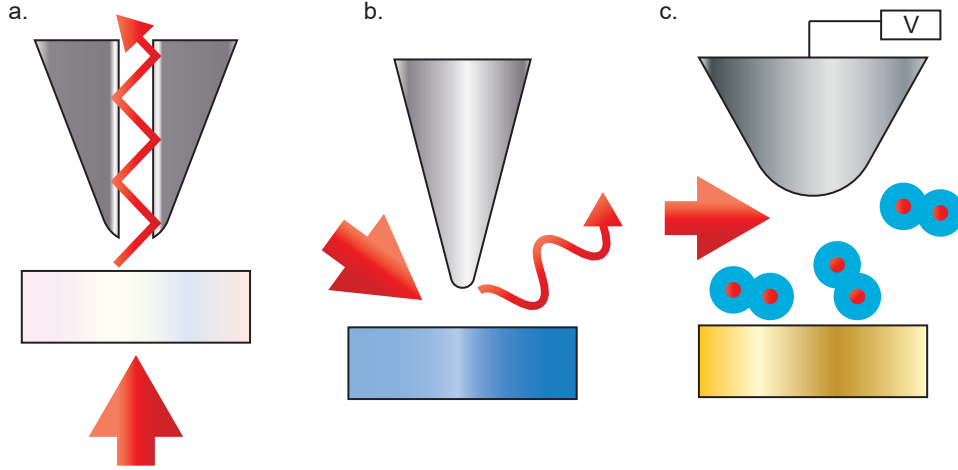


图 1-2 (a) 小孔型近场光学显微镜 a-SNOM; (b) 散射型近场光学显微镜 s-SNOM; (c) 太赫兹扫描隧道显微镜 THz-STM

Figure 1-2 (a) Aperture-type Scanning Near-field Optical Microscope. (b) Scattering-type Scanning Near-field Optical Microscope. (c) Terahertz Scanning Tunneling Microscope

在 $\theta = 90^\circ$ 时, 波矢的不确定度最大, 此时可以得到 $\Delta x \geq \lambda/2$, 这也就是 Rayleigh 判据给出的能够分清两个点的极限距离。这里隐含的一个要求是 $|k_x|$ 总是比 k 要小, 但是在倏逝波存在的情况下, 垂直于表面的 Z 方向波矢 k_z 是一个复数。也就是说 $k_x = \sqrt{k^2 - k_y^2 - k_z^2}$ 可以是大于 k 的数, Δk_x 也可以大于 $2k$, 因而突破了衍射极限且有 $\Delta x < \lambda/2$, 甚至可以实现远小于波长的分辨率^[22]。这就是利用倏逝波解释 SNOM 实现超高分辨率的原理, 其物理图像非常清晰, 得到结论很容易理解。

但是, 倏逝波理论只能解释为什么分辨率可以突破光波长的限制, 却无法解释分辨率为何与探针的针尖半径相同。为此, 必须要引入近场增强 (near-field enhancement) 的概念: 即在电磁波均匀入射的条件下, XY 平面上电磁场的分布并不是均匀的。实际上, 位于探针下方的 (x_p, y_p) 点有着远强于周围的电场强度, 且这一增强效应只会局域在探针针尖附近。由于探针的加入, 使得针尖附近的电磁场特别地强, 与探针下方样品相互作用所产生的物理量变化也会较与其它位置作用所贡献的效应更大。

1.2.2 近场显微镜分类

近场光学显微镜按照成像的原理, 主要有三种类型: 小孔型近场光学显微镜 (a-SNOM)、散射型近场光学显微镜 (s-SNOM) 和太赫兹扫描隧道显微镜 (THz-STM)。

如图1-2(a)所示, a-SNOM 使用光纤探针来探测透射过样品的光波。实际上也存在直接通过光纤探针将入射激光耦合到样品表面, 并接收近场倏逝波的 a-SNOM。简单来说, a-SNOM 就是在探针上制造一个通光小孔, 使得近场的光可

以耦合进探针，从而被探测到。其最大的优点在于可以有效地去除背景光波的影响，精准且局域地探测探针下方的光学信号。但是 a-SNOM 要想得到高信噪比就需要大的通光孔径以获取更多的光流量，而孔径做大的直接后果就是成像的分辨率会比较差，只能达到约 50 nm^[22]。

如图1-2(b)所示是 s-SNOM，因为其直接使用探针尖端来增强电场，能够实现远强于 a-SNOM 的空间分辨率。通过光路将光源出射的电磁波聚焦在探针尖端上，相当于在探针周围添加了一个背景电磁场，并造成探针针尖出现局域增强的场分布，从而与样品相互作用得到强度上足以与背景散射相区分的近场散射信号。散射信号实际上往往是在距离探针两个波长距离以外的远场进行探测和记录的，因此也在此将其称为远场信号（far-field signal）。远场信号中既包括背景场在各处的散射信号，也包括探针周围局域增强的电场与样品相互作用所产生的散射。分离出其中局域增强电场和样品的相互作用所产生的信号，才是近场成像需要的信息^[23,24]。至于如何将近场信号在远场解调出来，目前已经有了相当多成熟的方法^[25]，不在此赘述。与此同时，s-SNOM 还会得到原子力显微镜的原子力及其相位的图像，可将其与 s-SNOM 的近场图像进行比对，增强对于近场成像结果的分析和处理能力。

而 THz-STM 是在光电导门控扫描隧道显微镜（photoconductive gate STM）^[26,27]和结混合扫描隧道显微镜（junction mixing STM）^[28-30]技术的基础上发展起来的。其最大的优势就是实现超越皮秒量级的时间分辨率，以及原子尺度的空间分辨率^[31]。如图1-2(c)所示，探针和金属样品之间构成类似金属平板电容器腔体的结构，入射光波与腔体内的分子相互作用，激发其不同的能量状态，从而实现对其量子态的观测。这一研究目前仍是前沿的研究热点，且具有极大的基础研究价值。

本文主要研究太赫兹散射型近场光学显微镜（THz s-SNOM），其具有适应于各类样品探测且分辨率高的优点。如图1-3所示，利用 AFM 处于 Tapping 模式时探针与样品距离的变化，对入射电磁波进行调制，并在远场解调出近场图像。在探针针尖远离样品时 (a)，探针上聚集的电荷与增强的电场对于样品的作用很小；而一旦探针接近了样品 (b)，力学的、电学的、热学的和各类非线性的效应就会参与扫描成像的过程，影响近场成像的结果。实际上，近场光学显微镜的成像结果不止取决于仪器的自身的性能和待测样品的光电性质，还与样品的大小结构等因素有关。比如图中 3 个金属方片虽然是同一种材料，却可能有着截然不同的近场探测结果。

接下来介绍近场成像领域的研究进展，讨论其发展的历史，并重点介绍 s-SNOM 的工作机制。接下来将着手建立电磁仿真模型，目标是进行高效快速的仿真，尽可能地根据探针样品结的特点对实际模型进行简化，以实现近场成像原理性问题的探索。最后在实验的基础上，利用多物理场仿真的方法，将整个近场成像的仿真和实验设计统一起来，发现新现象，找到新规律，推动近场成像领域向前发展。

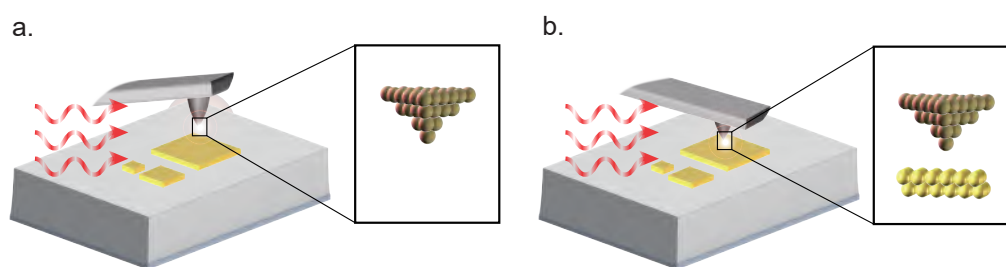


图 1-3 近场成像原理示意图 (a) 在振动中悬臂梁带动探针远离样品表面，针尖与样品相互作用弱，针尖上的近场增强与样品相互作用也小；(b) 悬臂梁将探针针尖拍击在样品上，针尖与样品之间相互作用强，近场增强与样品的相互作用也大

Figure 1-3 Schematic diagram of near-field imaging principle. (a) The cantilever beam drives the probe away from the sample surface in vibration, the interaction between the tip and the sample is weak, and the near-field enhancement on the tip interacts with the sample is also small. (b) The cantilever beam slaps the probe tip on the sample, the interaction between the tip and the sample is strong, and the interaction between the near-field enhancement and the sample is also large

1.3 近场成像的研究进展

太赫兹波段的电磁波从光子学的角度看就是低能量的红外光子，其与材料作用时会有类似红外的效应。目前太赫兹近场显微镜的应用和研究进展多与半导体器件、生物化学技术相结合，这是因为其结构尺寸正好位于微纳尺度且与 THz 波有强的相互作用，能体现出太赫兹近场成像的技术优势。而新兴的二维材料，低维器件的大量出现，也使得近场成像大有可为。但是，当前对于近场成像的量化仿真仍然是个问题，各种新的理论和仿真方法被引入来解决近场成像的理论问题。

1.3.1 使用近场显微镜探测各类样品

近场显微镜技术适用于扫描探针显微镜所能探测的各类样品，尤其是固体材料和器件。对于扫描探针显微镜来说，探测溶液环境下的样品以及对活体细胞进行探测是较为困难的，当耦合上电磁波后这一困难仍然存在。因此目前近场成像在上述领域的探索仍然不多。下面介绍近场显微镜的典型应用，并在其中穿插近场成像的相关技术知识。

• 探测载流子浓度

太赫兹近场成像目前最为成功的应用在于对半导体中载流子浓度和载流子输运性质的探测。目前已有的测量材料中载流子浓度的方法，包括霍尔效应测量和 PN 结电流测量等，是对大块的半导体材料进行检测的手段，只能给出材料平均的导电性质，无法进行微纳尺度的测量。但是现代的微电子工艺已经日趋精

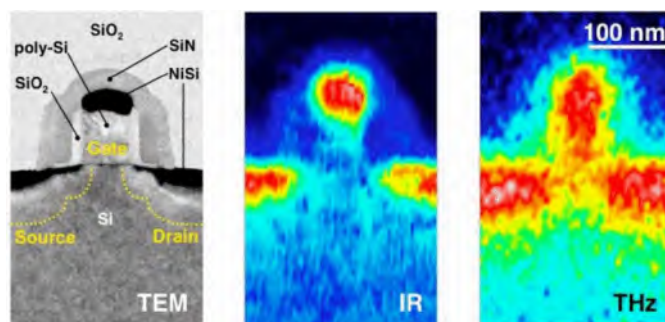


图 1-4 使用 65 nm 工艺制造的单晶体管（左）使用透射电子显微镜 TEM 扫描得到的样品形貌；（中）由波长为 $11\ \mu\text{m}$ 的红外近场显微镜得到红外图像；（右）由波长为 $118\ \mu\text{m}$ 的太赫兹近场显微镜得到的图像^[33]

Figure 1-4 Single transistor fabricated using 65 nm process (Left) Shape of the sample obtained by using transmission electron microscopy. (Middle) Infrared image obtained by infrared near-field microscopy with a wavelength of $11\ \mu\text{m}$. (Right) Image obtained by THz near-field microscopy at wavelengths of $118\ \mu\text{m}$ ^[33]

密，当前最为先进的集成电路工艺已经进入了纳米的时代，器件的最小线宽甚至已经到了 $3\ \text{nm}$ 。工程师们迫切地需要一种可以直接在半导体器件上探测载流子浓度的装置。在 2008 年 Huber 等人就率先使用 $2.54\ \text{THz}$ 的近场成像装置对晶体管实现了 $40\ \text{nm}$ 分辨率的成像^[32]。如图 1-4 所示，Rainer Hillenbrand 等人将透射电子显微镜（Transmission Electron Microscope, TEM），红外近场成像和太赫兹近场成像进行对比，对晶体管上 NiSi 电极下载流子的运动进行了表征^[33]。Tyler L. Cocker 等人在 2016 年的报告中展示了其获得的太赫兹成像结果，其空间分辨率优于 $10\ \text{nm}$ ，并实现了每个脉冲上存在少于一个的相干光子的亚周期探测（即时间分辨率优于 $10\ \text{fs}$ ）。由此，在一个高精度的条件下，可以研究 InAs 纳米管载流子在耗尽层上建立的超快动力学过程（物理过程发生时间短于 $50\ \text{fs}$ ）^[34]。

国内在使用 THz s-SNOM 平台对半导体材料进行表征方面的研究并不落后于国际。如图 1-5 所示是国内自主研发的 $0.4\ \text{THz}$ 以下波段的 THz s-SNOM 系统，可以在 $110 \sim 310\ \text{GHz}$ 的频率范围内对半导体材料和器件进行近场测试。获得一阶到三阶的近场信号与 AFM 形貌具有相当高的一致性^[35,36]。

从图 1-5 中可以看到，金膜的高度要高于下方硅衬底约 $100\ \text{nm}$ ，相较于探针的振动来说这是个非常大的高度差。但是如果样品过薄，又会使金膜在蒸镀成膜时金原子的小岛不互连，导致金膜的导电性变差，无法体现出金属特性的问题。在金属金的边界，可以看到明显的亮信号边带，这是普遍存在的问题，在锐利的导体边缘常常产生略高于四周的近场信号。相反如果金属导体的边缘信号更暗，说明探测信号多来源于样品表面反射的背景信号，而在转角边缘等位置反射信号较差，才导致探测的信号变弱。

● 纳米尺度生物化学样品探测

太赫兹和红外波段互为补充，尤其是在分子的化学特征识别（分子指纹）

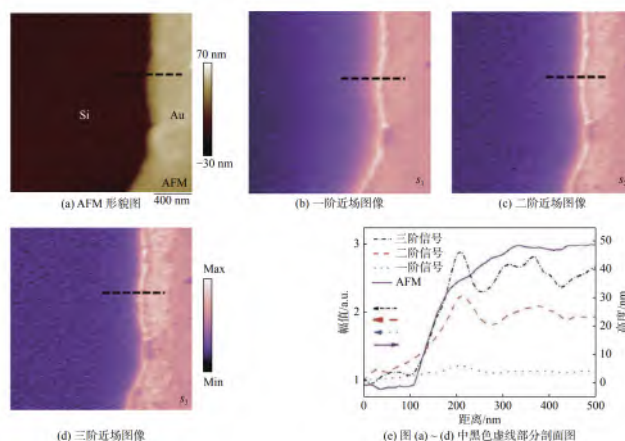


图 1-5 金膜/硅衬底样品界面的 AFM 形貌图（左上图）和太赫兹近场成像结果（分别为一阶，二阶和三阶）及四幅图中剖线对应的信号强度（右下图）^[35]

Figure 1-5 AFM morphology (top left panel) and THz near-field imaging results (first-order, second-order and third-order, respectively) of the gold film/silicon substrate sample interface and the signal intensity corresponding to the profile lines in the four panels (bottom right panel) ^[35]

上^[37,38]。不同的分子具有不同的拉曼谱、红外吸收谱和太赫兹光谱，在纳米尺度空间分辨率上的检测也就是对应所谓：TERS^[39]、Nano-FTIR^[40]、s-SNTS^[41] 技术。红外和太赫兹电磁波一个非常吸引人的特性是其光子具有的低能量属性，将其应用在活体组织上可以进行无损伤探测。虽然 THz 波与许多生物大分子的振动和转动频率一致，能够产生共振并激发特殊的介电响应，产生相应的吸收峰。但是生物样品都是独立的颗粒，其吸收 THz 波的能力终究是有限制。为了解决小颗粒的生物样品难以在太赫兹波段成像的问题，Yang 等人的研究利用一个高反射能力的石墨烯衬底作为与生物分子的对比背景，来对 G 免疫球蛋白（IgG）进行太赫兹近场成像^[42]。该方案类似于光学超分辨技术，通过对比处理来修正探测的单个分子的情况，从而反推出一个可能存在的样品图像。其实验装置如图1-6所示，承载生物分子的衬底是从高指向性热解离石墨片（HOPG）中用胶带揭下的单层石墨烯。之所以要用石墨烯，是因为其电子迁移率非常高，能够高效地反射太赫兹波。实际上不止局限于单层的石墨烯，多层石墨片一样可以，另外也可以用金。由于这些材料在太赫兹波段的导电性非常好，其产生的近场信号也特别强。在理论上，这些材料在 THz 波入射时是可以被当作完美电导体（Perfect Electric Conductor, PEC）的。从图1-7中可以明显观察到，尽管 IgG 的形貌起伏只有数个纳米，但是对于 THz 近场信号的减弱效果却很强。这就给未来生物化学分子的研究提供了一个新颖的维度，为生化材料的探索提供新的视角。

从图1-6中可以看到一个完整的太赫兹近场成像装置。左侧是入射光路，THz 波从光电导天线 PCA 光源上出射，硅作为该波段良好的透光材料可以用于制作透镜，用来汇聚从 PCA 上出射的电磁波。入射光路一侧还有指引激光（guide laser）用于对光。实际上在探测光路一侧也需要指引激光，它们的作用就是与

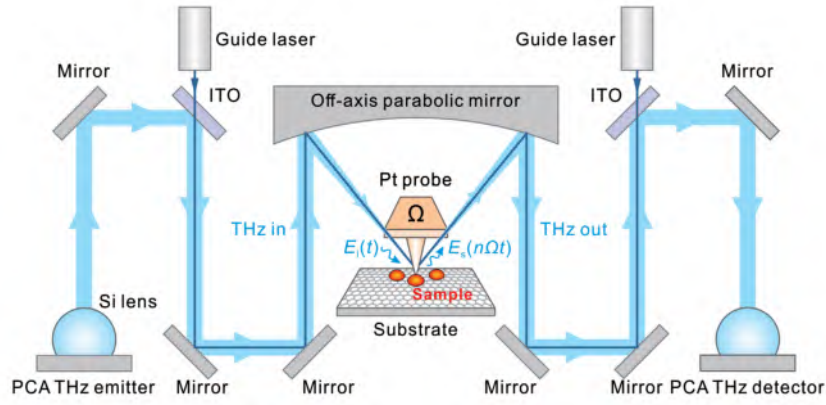


图 1-6 利用 THz s-SNOM 探测 InG 的实验装置示意图^[42]

Figure 1-6 Schematic diagram of the experimental setup for InG detection using THz s-SNOM^[42]

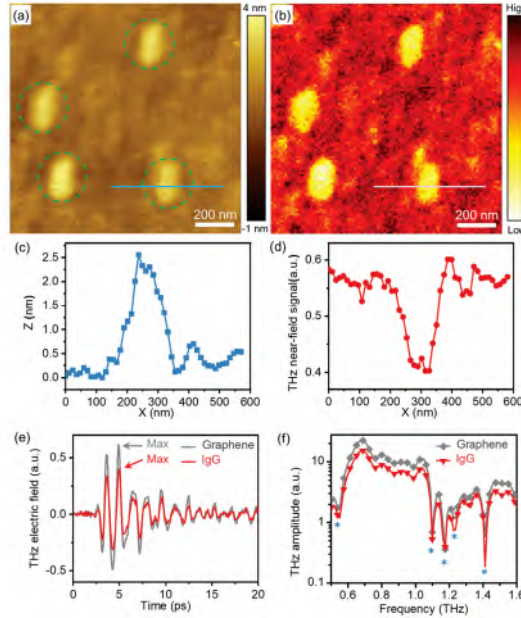


图 1-7 (a) 使用 AFM 测量 InG 蛋白得到的表面形貌，每个蛋白都被圆形虚线圈出；(b) 使用 THz s-SNOM 测量得到的太赫兹近场成像结果， 200×200 像素，比例尺为 200 nm；(c,d) 分别对应图 a. 和图 b. 中的剖面图；(e) 解调 2Ω 的信号所得到的 THz 波的时域波形，其中箭头所指是成像时最大的电场强度；(f) 时域波形对应的频域波形，其中 (*) 代表水汽的吸收线^[42]

Figure 1-7 (a) InG surface topography obtained using AFM measurements, with each protein circled by a circular dashed line. (b) THz near-field imaging results obtained using THz s-SNOM measurements, 200×200 pixels, scale bar 200 nm. (c,d) Corresponding to the profile line plots in Figs (a) and (b), respectively. (e) Demodulated time domain waveform of the THz wave obtained from the signal of 2Ω , where the arrow points to the maximum electric field intensity at the time of imaging. (f) The frequency domain waveform corresponding to the time domain waveform, where (*) represents the absorption line of water vapor^[42]

THz 波一同入射，根据光学器件上反射的指引激光变化来调节光学器件。前面的光路要尽可能地使入射光变为平行光，因为指引激光和 THz 波在透镜上焦距不同，对可见的指引激光进行大量优化，最后对 THz 波的汇聚效果可能反而更差。在指引激光足够平行地入射到离轴抛物面镜上后，位于抛物面镜焦点上的探针针尖就会汇聚上 THz 波，实现最佳的成像效果。而探测光路基本和入射光路对称，不在此赘述。唯一不同的点在于，在光电导天线 PCA 探测器上需要外接解调装置，以探测散射到远场的 n 阶近场信号。

• 固体中元激发的探测

元激发是人为引入的准粒子，用以简化对固体中多体现象的描述。比如晶格振动、等离子体振荡这样的集体行为就可以用声子、等离激元来描述；而准电子、极化子属于个别激发的元激发；激子和极化激元则可归类于复合型元激发。晶体的声子振动频率一般在 $10^{12} \sim 10^{14}$ Hz 之间，恰好位于太赫兹和中红外波段，因此可以在该频谱上观察到介质吸收和介电异常现象。但是自然界中声子-光子耦合频率恰好处在太赫兹波段的材料并不多，研究中使用压电/压磁超结构材料，可以形成人工声子极化激元，将耦合频率下降到太赫兹波段。表面声子极化激元、太赫兹表面等离子极化激元对于 s-SNOM 这个装置来讲会是非常合适的探测目标，也在最近吸引了研究者广泛的兴趣。

一个最常出现的元激发就是声子（phonon），这是一种用来描述晶格集体振动模式的准粒子。本身声子的量子化能量大小就接近于红外和太赫兹光子的能量。作为材料中的低能激发，使用 THz s-SNOM 来激发并探测材料中的声子模式是可行的。有文献报道使用从红外到太赫兹的几种不同频段的光波来激发 BiFeO₃（缩写为 BFO，钙钛矿结构）中的声子共振模式。实验表明，随着波长的变化，介电常数的实部和虚部随之改变。利用自由电子激光器和 AFM 平台，研究改变入射光频率和探针高度时造成的声子谐振变化，寻找近场的最佳增强位置^[43]。

在表面等离激元（Surface Plasmon, SP）的理论中，由于载流子密度会随外加场（频率为 ω ）的变化，以等离子频率 ω_p 形成振荡。这一改变可以认为是材料的光学性质随着入射电磁波发生了变化，其介电系数可以写成 Drude 形式：

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_{\infty} \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega} \right) \quad (1-1)$$

其中 ϵ_{∞} 是高频介电常数， γ 是阻尼系数。可见，表面等离子极化激元在 $\omega < \omega_p$ 时，可得负的介电系数，可以使用 THz s-SNOM 对其进行研究。根据 Drude 模型，一般二维材料等离激元的频率为 $\omega_{pl} \propto n^{1/2}$ ，其中 n 为电荷浓度。而能带结构较为特殊的石墨烯，因为量子效应，则为 $\omega_{pl} \propto n^{1/4}$ 。通过改变石墨烯的掺杂浓度来调节等离激元的共振频率，进而使用包括太赫兹波段在内的各个频段来对材料进行研究，可以帮助我们更加深入地认识微观电荷的响应机制^[44]。

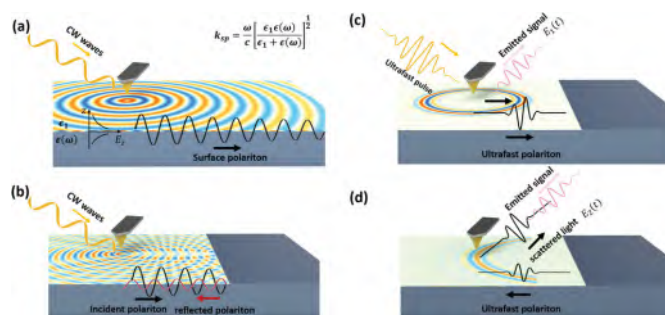


图 1-8 使用 s-SNOM 研究表面极化激元 (a) 在绝缘和色散物质的界面上, 由外加连续的太赫兹波在探针针尖上所激发的表面极化子, 可将针尖处看成一个点源, 传播的极化波就是一个柱形波; (b) 极化波碰到界面的边缘, 反射回来形成的驻波条纹, 其波长约为极化波波长的一半; (c) 使用超快脉冲打在探针针尖上, 形成的远场散射信号 $E_1(t)$; (d) 超短脉冲被边缘反射回来, 再在探针上产生散射信号 $E_2(t)$ [45]

Figure 1-8 Study of surface polarization excitons using s-SNOM. (a) The surface polarization exciton excited by an applied continuous terahertz wave at the probe tip at the interface of insulating and dispersive material can be viewed as a point source at the tip, and the propagating polarization wave is a column wave. (b) The polarization wave hits the edge of the interface and is reflected back to form a standing wave stripe whose wavelength is about half the wavelength of the polarization wave. (c) The far-field scattering signal $E_1(t)$ formed by hitting the probe tip with an ultrafast pulse. (d) The ultrashort pulse is reflected back by the edge, and the scattered signal $E_2(t)$ is generated on the probe again [45]

表面极化波的产生其实是比较困难的, 实验中产生表面极化激元的装置如图1-8所示。使用连续和脉冲式的太赫兹光源在探针针尖上激发极化波, 在一个足够大的样品表面就会产生反射和驻波的现象。实际上, 除了探针针尖, 样品表面上的缺陷和样品边缘也是产生表面等离激元的源。当驻波的两波节(波腹)之间的距离接近半个极化子波长, 形成的是半波长图纹, 而边缘和缺陷产生的是整波长图纹。

• 使用近场成像对低维材料和器件进行研究

目前被人广泛关注的范德瓦尔斯材料, 包括单层的或者多层的二维材料正在引领着新型器件的发展。前人的研究已经表明, 对于掺杂了空穴的石墨烯可以使用中红外近场光学显微术进行观察, 并研究其等离激元的性质 [46]。Pablo Alonso 等人在前人对于用 s-SNOM 探测石墨烯的红外等离激元的工作上, 设计了图1-9中所示的探测石墨烯声学太赫兹等离激元(acoustic THz plasmons in graphene)的实验。实验中使用一片被 h-BN 封装的单层石墨烯, 将其置于一对分离的栅结构之上, 由此可以控制石墨烯左右两边具有不同的掺杂电荷浓度。再将石墨烯的两边接上电极, 从中读取出 THz 波激发的光电流, 进而得到纳米尺度上单层石墨烯对太赫兹波段的光电响应 [47]。

在范德瓦尔斯材料(vdW)中, 除了石墨烯, 还有六角氮化硼(h-BN)和过渡

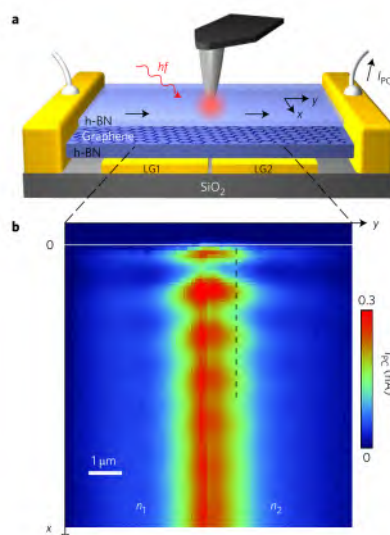


图 1-9 (a) 实验装置示意图，以二氧化硅为衬底，图中 LG1, LG2 为 AuPb 合金的两个栅极，控制石墨烯左右两边的掺杂浓度 n_1, n_2 ，通过镀上 PtIr 合金的 AFM 探针和照射的 THz 波对于石墨烯加以作用，通过读取两个电极上的电流 I_{PC} 来获取相互作用的信息；(b) 测量所得的探针位于不同位置处时，石墨烯产生的光生电流大小^[47]

Figure 1-9 (a) Schematic diagram of the experimental setup, using silica as the substrate and LG1 and LG2 as the two gates of AuPb alloy, controlling the doping concentrations n_1, n_2 on the left and right sides of graphene, acting on graphene by an AFM probe coated with PtIr alloy and irradiated THz waves, and obtaining the interaction information by reading the current I_{PC} on the two electrodes. (b) The magnitude of the photogenerated current generated by the graphene when the resulting probes are located at different positions^[47]

金属硫化物 (TMDs)。实验上常常使用剥离好的六角氮化硼薄层，将其加入低维器件的结构中改善器件性能。Peining Li 等人的实验将 40 nm 的 h-BN 置于厚度为 250 nm 的 Si/SiO₂ 衬底上，测量得到双曲表面极化子基模 (HSP-M0)，并与双曲极化子基模 (HP-M0) 波导模式相比较。并与商用软件 COMSOL Multiphysics 的仿真计算结果进行对比^[48]。过渡金属硫化物的化学成分更加复杂，具有诸多值得研究的新颖性质。已经有研究使用 a-SNOM 平台来研究置于 SiO₂ 上的 WSe₂ 所产生的激子，通过收集从小孔反射的以及在边缘出射的光波，来获取该二维材料上所具有的波导模式，并进一步研究其激子的性质^[49]。该类研究日益引起关注，多种产生于堆叠的二维材料上的极化子都已经使用 SNOM 进行了探测^[50]。尤其是最近几年转角石墨烯引起了广泛讨论，其具有被称为摩尔超晶格的特殊结构，同时也带来很多新奇的性质^[51]。而不同的过渡金属硫化物也可以形成摩尔超晶格，目前已经在实验上探测到堆叠的 TMDs 中产生的激子^[52]。相信在此基础上，结合 SNOM 的强大的近场成像能力和对于电荷的敏感性，可以进一步研究摩尔超晶格中形成激子的性质。

1.3.2 近场成像的物理机制探究

在近场成像实验中希望获得的是样品上所产生的光学信号响应，但是近场成像系统与样品的相互作用过程很复杂，目前仍未对其物理机制形成统一的认识。在此提供分析近场成像的因素，理论和仿真的相关研究。

• 影响近场成像的因素

之所以要进行近场成像，是希望通过探针提取材料和器件上局域的光学性质。但是随着研究的深入，各种环境中的干扰因素、扫描探针平台的性能、材料的结构和多物理场效应在近场成像中的作用变得越发不可忽视。近场成像系统自身受限于光源和探测器的稳定性和灵敏度，都会对探测近场信号有影响。但是，这些影响是由外部的器件所带来的，是以对长时间的信号探测造成波动的方式来影响实验结果的因素。真正直接决定近场信号的是被称为探针样品结（tip-sample junction）的结构：与一般结型器件不同，探针与样品构成的结是可动且可分离的。下面将分别介绍探针和样品这两个部分影响近场信号探测的机制。

探针的长度和探针尖端的大小都会给近场成像带来非常大的影响，但是具体如何产生作用在目前仍未有所定论。有研究表明将探针的长度设置在偶极共振频率上效果最好，并且建议对于工作在 1 THz 以上的探针，其探针长度应在 150 μm 以下^[53]。而最近的研究发现越长的探针其散射的效果越好，但是系统的稳定性会下降^[42]。其实探针的选取本身就有很多值得研究的地方，比如在探针材质上就可以有多种选择。早期的近场实验会使用铜制造探针，将其用氯化亚铁腐蚀，使其变得尖锐^[23]。将针尖变锐是一种直观的提高分辨率的途径，Stefan Mastel 等人使用聚焦离子束 FIB 加工钨探针，将针尖半径减小至半径仅有 3 nm，得到相当高的分辨率^[21]。但现在的研究大都认为由于大的探针针尖半径会增加远场散射信号的对比度，提高散射到远场的近场信号信噪比。在实验上往往会使用定制的具有较大尖端半径的探针，其中有的探针针尖半径已经达到 100 nm^[54]。

分析探针长度带来的影响可以使用天线增强效应的理论，即把探针看成单极天线。对于波长为 λ 的电磁信号，对比天线设计的长度： $L_{res,n} = n\lambda/2$ ，其中 n 为共振阶次。通过数值计算得到在探针与太赫兹波共振时，增强的效应本该让针尖附近的电场强度变为背景电场的 10^7 倍。实际在实验上确实会有增强，但是强度只提高了 9 倍^[55]。这说明使用天线增强效应来解释散射型近场光学显微镜的理论还不够完善，需要更进一步地优化单极天线的假设。除了针尖大小的影响，以及天线谐振的效应，金属在入射光波的驱动下还会形成自由电子的集体振荡，也会对入射光波产生共振吸收和散射^[56]。在 60 GHz 的毫米波亚波长成像技术中，有研究发现使用刀片形状的探针能更加灵敏地探测散射信号，其近场信号增幅可达 20 dB^[57]。这启示我们，或许也可以通过设计探针的形状来获得高的针尖增强效应。可以预见到，发展 s-SNOM 理论的研究会极大地推动近场成像技术的发展，这项工作的意义不言而喻，其面临的困难也非常艰巨。

实验上通常会使用镀上铂铱合金的 AFM 探针^[58]，因为该类型探针已经得

到了大规模商业化生产。介电材料，比如硅也是常用的探针材质^[24]，但是普遍认为金属探针反射电磁信号的能力更强，并获得更佳的成像效果。有研究专门对介电材料探针的性能做了评估，其实由于针尖的极化（表现在散射光的幅值上），在太赫兹波段大多数绝缘体的介电常数都较大，介电材料探针的极化其实和金属探针的差不多（实验上约为金属探针效果的 83%），而在时间响应上甚至较金属探针还要稍强。使用时域有限差分（Finite Differential Time Domain, FDTD）方法得到的结论也表明绝缘探针和导电探针的近场增强效果相差不大^[59]。

探针的散射效率也很重要，因为对 THz 波来说其穿透和吸收特性往往非常显著，通过研究散射的效率可以间接地研究材料的吸收特性。此外，由于 THz 波的特点就是衰减很大，其实比较难知道到达探针针尖位置的光强和散射信号的光强比例。通过激光太赫兹发射纳米显微镜（Laser Terahertz Emission Nanoscopy, LTEN）可以将红外脉冲照射在 InAs 样品上并进行探测。在有探针时测量一次 $E_{det,1} = E_{InAs} + E_{tip}$ ，无探针散射时测量一次 $E_{det,2} = E_{InAs}$ 。将两次测量结果的做差就可得到 E_{tip} ，并得到散射效率 E_{tip}/E_{InAs} ^[53]。这种思想非常有借鉴意义，在后续的仿真中会反复提及“探针存在”、“探针远离”、“样品存在”和“去除样品”等概念，其本质也是控制变量的思想。实际的近场成像系统非常复杂，包括各类机械结构和复杂的边界。遵循控制变量的原则，在仿真中去除悬臂梁、替换探针实体、替换激励电场、更改调制解调方式以及与实际实验中的成像结果做对比等，一步一步地进行优化，实现对高效仿真的需求。

此外，现在还出现了不需要探针的近场成像技术。Sandeep Inampudi 等人基于局域表面等离子体共振（LSPR）效应，使用石墨烯制备了一种可重构光栅，通过调整光栅的间距和形状来调节局域表面等离子体共振的波长和强度。这种可重构光栅具有高度的可调节能力，并且可以在显微镜下实时地观察到其形态和位置的变化。目前已经在波长为 λ 的光学实验上对 2λ 大小的物体实现了分辨率达到 $\lambda/16$ 的成像效果^[60]。

随着近场成像技术的日趋成熟，越来越多新的实验现象被发现。例如，Xinzhong Chen 等人的研究发现在对衬底上的金质薄片成像时，尽管成像分辨率远比这些金属结构大，但是较大的金片以及接地的金片会有更强的近场信号。文献中将其解释为电子在金属中的迁移能力强，对较大的金属上做探测就会有增强的效果。电磁仿真可以得出和实验在现象上保持一致的结果，但是由于仿真采取了许多近似，更进一步的研究还需要对其物理机制做进一步的解释^[54]。

与上述研究类似，Angela Pizzuto 等人的研究表明，置于二氧化硅衬底上形成的 Au/SiO₂ 或 Au/Air 介质界面，可能会产生 Goubau-Sommerfeld 波。如图1-10所示，进而在连着不同长度接地导线的圆形金片周围产生光晕（Halos）的现象^[58]。

实际上，近场信号的改变也并不单独是由探针或者样品的不同所造成的。探针样品结在随着探针振动的过程中会产生复杂的变化，例如探针会陷于样品表面的狭缝中，造成近场信号的异常增强^[61]。其它诸如样品温度的变化，样品表面沾污也都可能影响近场成像的结果。

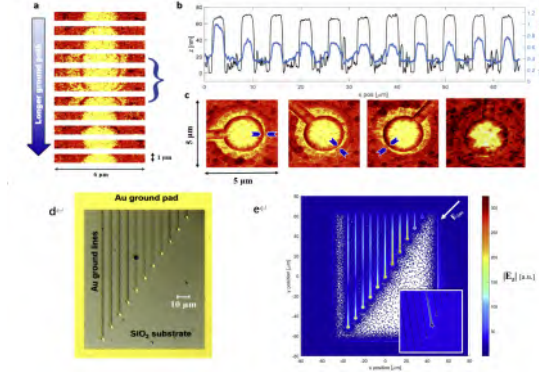


图 1-10 (a) 随着金圆盘的接地导线长度变化，其产生的光晕会产生变化，红色表示弱反射区；(b) 蓝线代表三次谐波信号，黑色是相应位置的表面起伏；(c) 63 μm 地线组 #6 所对应的 THz 成像的一些结果；(d) 光学显微镜所拍摄的金在二氧化硅上的结构，由不同长度的导线接地；(e) 数值模拟所得到的反射波能量^[58]

Figure 1-10 (a) The variation of the halo as the ground wire length of the gold disc is varied, and the red color indicates the weak reflection area. (b) The blue line represents the third harmonic signal, and the black color is the surface undulation at the corresponding position. (c) Some results of the THz imaging corresponding to 63 μm ground group #6. (d) Structure of gold on silica photographed by optical microscopy, grounded by wires of different lengths. (e) The reflected wave energy obtained by numerical simulation^[58]

• 近场成像的理论和仿真

近场成像的物理机制似乎很简单，但是想要构建一个准确的理论模型却并不容易。点偶极子模型（Point Dipole Model, PDM）和有限偶极子模型（Finite Dipole Model, FDM）是常用的两个简化模型^[62,63]，此外还有避雷针模型^[64]等。

PDM 模型是一种基于偶极子近似的理论模型，它假设样品中的分子可以被视为一组偶极子。在这个模型中，探针与样品之间的相互作用可以表示为：

$$V(r) = \frac{1}{4\pi\epsilon} \frac{1}{r^3} [\vec{p} \cdot \vec{r} - 3(\vec{p} \cdot \hat{r})(\hat{r} \cdot \vec{r})]$$

其中 \vec{p} 是偶极矩， \hat{r} 是从探针到样品表面的单位向量， r 是距离， ϵ 是介电常数。探针与样品之间的相互作用能量可以用 PDM 模型计算。虽然 PDM 模型是一种简单而有效的理论模型，可以用于描述大多数近场成像中的现象，但是 PDM 模型忽略了高阶多极矩的贡献，因此在一些情况下可能不够精确。

FDM 模型是一种基于有限差分法的理论模型，它将样品划分为一系列小的立方体单元，然后在每个单元内计算电场分布。在 FDM 模型中，样品与探针之间的相互作用可以表示为：

$$V = -\frac{1}{2} \int \int \frac{\rho(\vec{r})\rho(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d\vec{r} d\vec{r}'$$

其中 $\rho(\vec{r})$ 是电荷密度分布。通过在每个单元内求解泊松方程，可以计算出样品表面的电荷密度分布，从而得到探针与样品之间的相互作用能量。FDM 模型可以

考虑高阶多极矩的贡献,因此在一些情况下比 PDM 模型更加精确。但是, FDM 模型的计算量比较大,需要使用计算机进行求解。

而避雷针模型是一种基于局部增强电场效应的理论模型。在这个模型中,当样品表面存在尖锐结构时,电场会在尖峰附近出现局部增强。探针通过加工使得针尖位置极细极锐,这样才可以在扫描过程中提高像素的分辨率。尖锐的探针就可以看成一根金属避雷针,其实质就是电荷容易在金属尖端积累,容易积累电场并产生电流击穿。在探针与样品距离变化时,电荷与样品间的距离也随之改变,造成边界条件的变化并产生对电磁场的调制。

电磁仿真技术可以用于预测探针与样品之间的相互作用,并帮助优化探针的设计。在电磁仿真中,通过数值求解 Maxwell 方程来模拟电磁波的传播和相互作用。通过改变探针的形状、大小和材料等参数,可以预测探针与样品之间的相互作用的变化,从而优化 SNOM 的设计和性能。此外,电磁仿真技术还可用于仿真样品的近场成像效果。在太赫兹频率下,样品的表面形貌对于成像分辨率和信噪比都有很大的影响。通过电磁仿真技术,可以预测样品表面的太赫兹响应,并优化样品的结构和表面形貌。综上所述,电磁仿真技术在太赫兹近场成像显微镜中具有重要的价值,可以用于预测探针与样品之间的相互作用,并优化探针和样品的设计,帮助研究者提高其成像分辨率和灵敏度。

有限元法(Finite Element Method, FEM),有限差分域法和矩量法(Method Of Moment, MoM)是常用的仿真方法^[21,33,65-67]。本文选用多物理场仿真软件 COMSOL Multiphysics 做有限元法仿真,其具体内容将在后续章节做详细介绍。

1.3.3 国内外研究展望

目前在红外波段,s-SNOM 技术已经相对成熟了,很多研究相对于太赫兹波段的进展要超前。有研究已经使用 IR s-SNOM 来研究纳米多孔的石墨烯(nanoporous graphene)结构,理解其光学和热学性质^[68]。反过来,纳米多孔石墨烯结构也具有作为太赫兹波段的一种新型探测器件的潜力。而在理论和仿真方面,目前已经进行了相当多的尝试,其研究结果也能在一定程度上与实验结果形成对照。但是,近场的物理机制目前仍未被完全理解,仿真工作难以与实验结果精确吻合,甚至还存在仿真计算量过大的问题。

在国内,对 s-SNOM 的研究已经取得了重大的进展,在对低维材料和生物样品的近场探测的研究上走在了国际前列。包括华中科技大学^[69,70]、中国地质大学-武汉^[71]、国防科学技术大学^[72]、上海理工大学^[54]、吉林大学^[73]、中国科学院重庆绿色智能技术研究院^[74,75]、中国科学院上海微系统与信息技术研究所^[76]等单位都开展了相关的研究。

THz-STM 的发展是值得关注的,其与 STM 结合,空间上可以对原子大小的物体进行探测^[77];更由于其结合了 THz 波超高的时间分辨率,可以进行超快物理过程的探测^[31,78]。对其进行仿真建模时,由于探测物体即使相比探针针尖都非常地小,需要将探针与下方金属衬底视为金属微腔来考虑^[79]。最近的研究中

使用 THz-STM 甚至对氢分子进行了量子探测，这也标志着其探测能力已经实现了对常规能量下最小原子的超快量子力学探测^[80]。

2022 年 2 月，中国在该领域也取得了突破。中国科学院空天信息研究院（广州园区）-广东大湾区空天信息研究院成功研发了太赫兹扫描隧道显微镜系统，其空间分辨率优于原子级（埃级），时间分辨率优于 500 飞秒，是国内首个自主研发的太赫兹扫描隧道显微镜系统。

1.4 本章小结

本章回顾了三种近场光学显微镜：小孔型，散射型和 THz-STM，介绍了其结构和原理上的区别。重点对散射型近场光学显微镜做了介绍，对近年来该系统在实验和理论仿真上的文章进行了综述。实验上，近场显微镜技术常被用来测量半导体器件和生物样品，这是因为这类型的样品本身就是微纳尺度的结构，且其与红外和太赫兹电磁波具有相当强的相互作用。近些年来兴起的二维材料及器件，给了近场成像新的研究方向。如何设计并利用低维器件与入射电磁波的相互作用，研究其具有的物理机制，探索新的测量维度等，都是富有意义且极具挑战性的研究课题。而在理论和仿真领域，由于目前仍未对近场成像的物理机制达成共识，且在时域对 s-SNOM 成像过程进行仿真的难度较大。目前该领域仍处于不断探索的阶段，国内外相关的研究工作正在不断地推进之中。

第2章 近场显微镜成像的物理基础和机制

2.1 数学模型在近场成像系统中的应用与意义

近场成像系统是一种用于实现微观尺度下图像采集的技术，可以在不破坏样本的情况下获取高分辨率的图像。对近场成像系统进行数学建模具有重要意义，主要表现在以下几个方面：

(1) 可以对成像系统进行优化设计：数学建模可以帮助优化成像系统的设计，提高成像系统的性能，使其更加适合特定的应用场景。例如，可以通过数学模型来优化近场扫描光学显微镜的探测器、物镜的孔径以及光路的选择，以达到更高的成像分辨率和图像质量；

(2) 可以预测和模拟成像系统的性能：通过数学模型，可以模拟成像系统的成像过程，并预测成像系统的性能，这可以为实验提供指导和帮助。例如，可以通过数学模型来预测近场扫描光学显微镜在不同工作模式下的成像分辨率、深度和对比度等性能指标，并优化实验方案；

(3) 可以探究物质的光学性质：数学模型可以帮助探究物质的光学性质，如折射率、透过率、反射率等，从而深入研究物质的性质和行为。例如，通过数学模型可以研究纳米颗粒和生物分子等微小结构的光学特性，探索它们的形态、大小、形变等对光场的影响，为纳米光学和生物光学等领域的研究提供理论基础和指导；

(4) 可以为近场成像技术的发展提供理论指导：数学模型可以为近场成像技术的发展提供理论指导。例如，基于数学模型的研究可以指导近场光学显微镜的设计和优化，提高成像分辨率和灵敏度，促进近场光学显微镜在物理、化学、生物等领域的应用，同时为开发新的成像技术提供思路和方法。

综上所述，对近场成像系统进行数学建模的意义是非常重要的。通过数学模型的建立和研究，可以更好地理解和探究物体的光学特性，为优化成像系统的设计和性能提供指导，同时为近场成像技术的发展和應用提供理论基础和方法支持。下面将使用电动力学的分析方法，来对近场成像机制进行数学建模。

使用电动力学的方法求解近场成像的意义在于，可以更加精确地描述和预测成像系统的行为和性能。电动力学是描述电场和电荷之间相互作用的物理学理论，它能够描述近场成像中的光与样品之间的相互作用。近场成像中的电磁场是高度非均匀的，并且通常存在强烈的场增强效应。传统的光学理论难以描述这种非均匀场，并且往往需要基于经验参数来进行建模。使用电动力学的方法，可以更加精确地描述非均匀场的物理特性，并计算出更精确的成像结果。另外，使用电动力学的方法还可以研究不同样品的电学特性对成像结果的影响，比如样品的折射率、透过率、吸收率等。通过建立数学模型，可以预测和优化不同样品的成像结果，为成像系统的应用提供更加全面和准确的信息。

总的来说，使用电动力学方法来求解近场成像的意义在于能够更加精确地

描述和预测成像系统的行为和性能。这种方法不仅可以帮助研究人员深入了解探针与样品之间的电磁相互作用规律，而且还可以研究不同样品的电学特性对成像结果的影响。这为成像系统的优化设计和应用提供了更准确和全面的指导。除此之外，数学求解还可以得到电磁场与探针相互作用的普遍规律，这些规律对于近场成像技术的发展具有重要意义。通过将这些规律与仿真技术相结合，研究人员可以更加深入地探究近场成像技术的性能、特性和应用，为其在材料科学、生物医学等领域的应用带来新的前景。

2.2 外加电场下理想球体和圆锥形探针的解析解推导

麦克斯韦方程组是由自然界中所有电和磁的物理规律，总结出来的一套优美的理论。常用其微分形式来进行描述：

$$\begin{aligned}\nabla \cdot \vec{E} &= \frac{\rho}{\epsilon_0}, \\ \nabla \times \vec{E} &= -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}, \\ \nabla \cdot \vec{B} &= 0, \\ c^2 \nabla \times \vec{B} &= \frac{\vec{j}}{\epsilon_0} + \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} c^2.\end{aligned}\tag{2-1}$$

其中穿过一闭合面的电流通量 \vec{j} 和闭合面内电荷量 ρ 还需要满足电荷守恒关系：

$$\nabla \cdot \vec{j} + \frac{\partial \rho}{\partial t} = 0.\tag{2-2}$$

虽然所有的电动力学问题都可以在麦克斯韦方程组的框架下得到答案，但是边界条件往往会导致解析解的不可得。近场成像显微镜是一个复杂的系统，其中样品、扫描位移平台、悬臂梁和顶部探针与入射电磁波相互作用。研究近场相互作用的目的是探究在外部电磁场作用下探针尖端和样品之间的电磁场分布，即局部增强效应的产生机制。为此，可以考虑使用一个简化的球形针尖模型来进行理论求解。由于大多数待测样品具有良好的导电能力，可以使用镜像电荷法来获得针尖和样品产生的电场分布，这也是探针样品结构的 PDM 模型所采用的简化方法^[62,81]。

如图2-1(a,b)所示，考虑空间中只存在一个金属球，在外加电磁场的作用下，球体会产生极化，并使得空间中的电磁场重新分布。使用电磁学方法对该现象进行分析，设针尖半径为 $R_{tip} = a$ ，设置球心位于球坐标 (r, θ, ϕ) 原点，且其电势为 0（即 $\Phi(r=0) = 0$ ）。由于探针本身不带电荷，可以认为金属球也是电中性导体，只有在外加电场的作用下才会产生极化电荷。且电荷分布于金属球表面，做任意包围金属球的同心球面都不包含自由电荷，并可用 Laplace 方程（球坐标系）描述：

$$\begin{aligned}\nabla^2 \Phi &= 0, \\ \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial \Phi}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial \Phi}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{r^2 \sin^2 \theta} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial \phi^2} &= 0.\end{aligned}\tag{2-3}$$

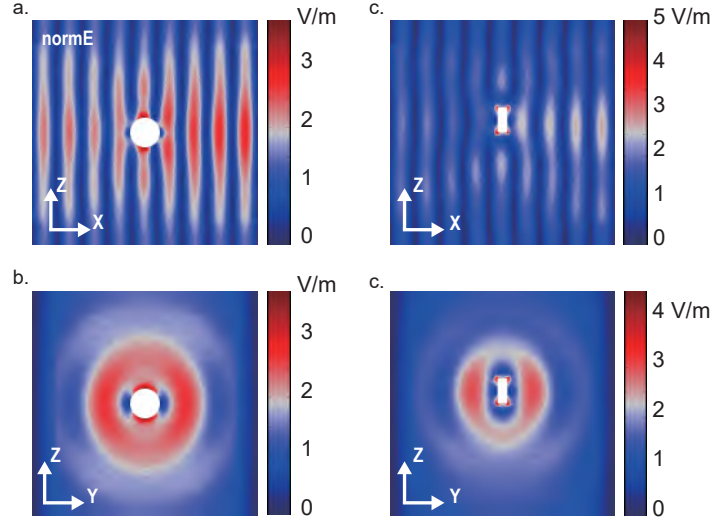


图 2-1 不同形状导体在 1 V/m 外加电场下产生的电场模空间分布；(a) 球形导体 ZX 平面视图；(b) 球形导体 ZY 平面视图；(c) 圆柱形导体 ZX 平面视图；(d) 圆柱形导体 ZY 平面视图

Figure 2-1 Spatial distribution of electric field modes generated by 1 V/m applied electric field in conductors of different shapes. (a) Planar view of spherical conductor ZX. (b) Plan view of spherical conductor ZY. (c) Plan view of the cylindrical conductor ZX. (d) Cylindrical conductor ZY plane view

考虑到探针轴相对于入射电磁场 \mathbf{E}_0 的夹角是固定的，且实际的近场相互作用基本只有与探针轴平行的电场分量才有贡献，可以认为电势分布与方位角 ϕ 无关。其通解形式为：

$$\Phi(r, \theta) = \sum_{n=0}^{\infty} [A_n r^n + B_n r^{-(n+1)}] P_n(\cos \theta), \quad (2-4)$$

其中 A_n 和 B_n 是待定的系数， $P_n(\cos \theta)$ 是以 $\cos \theta$ 为变量的勒让德多项式 (Legendre polynomials)。由于金属球面上有电荷分布，金属球内电势 $\Phi_{in}^{(s)}(r, \theta)$ 和金属球外电势 $\Phi_{out}^{(s)}(r, \theta)$ 需要用不同的方程描述。由于原点处电势设为 0，且金属球内电势为有限值，所以金属球内不存在 $r^{-(n+1)}$ 的项。考虑边界条件：

$$\begin{aligned} \phi_{out}^{(s)}|_{r \rightarrow \infty} &\longrightarrow -E_0 r \cos \theta, \\ -\frac{1}{a} \frac{\partial \Phi_{in}^{(s)}}{\partial \theta} &= -\frac{1}{a} \frac{\partial \Phi_{out}^{(s)}}{\partial \theta}, \quad \text{when } r = a, \\ -\epsilon_0 \epsilon \frac{\partial \Phi_{in}^{(s)}}{\partial r} &= -\epsilon_0 \epsilon_d \frac{\partial \Phi_{out}^{(s)}}{\partial r}, \quad \text{when } r = a. \end{aligned} \quad (2-5)$$

探针处于空气中时，相对介电常数 $\epsilon_d = 1$ 。求解可得包含金属球的空中，任意方位角的电势分布如下：

$$\begin{aligned} \Phi_{in}^{(s)}(r, \theta) &= -\frac{3}{\epsilon+2} E_0 r \cos \theta, \\ \Phi_{out}^{(s)}(r, \theta) &= -E_0 r \cos \theta + \frac{\epsilon-1}{\epsilon+2} E_0 a^3 \frac{\cos \theta}{r^2} = -E_0 r \cos \theta + \frac{\mathbf{p} \cdot \mathbf{r}}{4\pi \epsilon_0 r^3}. \end{aligned} \quad (2-6)$$

外部空间的电势分布相当于大小为 $\mathbf{p} = 4\pi\epsilon_0 a^3 \frac{\epsilon-1}{\epsilon+2} \mathbf{E}_0$ 的电偶极子被置于原点位置。这一数学结果的物理解释是非常清晰且有用的。当入射电场作用于探针时，由外加电场产生的极化在金属圆球的近似条件下就等效于等量异号电荷沿着电场极化方向在金属球的两端积累并随着电场极化方向的改变而振荡。由于净电荷附近的电势梯度变化很大，电场强度相比远场会有不一样的分布，具体来说就是会在一些时刻发生电场增强。由于外加电场是随时间时刻变化的，电荷的极化跟随着外加电场做受迫振荡，金属圆球上产生的电场强度也跟随着发生变化。

对于具有良好导电性的物体，施加上外部电场时就会产生电荷的不均匀分布。如图2-1(c,d)所示，圆柱形导体的存在也会影响空间中的电场分布。尤其是在圆柱形导体的边界面上，会产生很强的电场分布。造成这一现象的原因是自由电荷在导电材料表面的重新分布。当达到静电平衡时，导体的边界上会积累大量的净电荷，进而改变空间中的电场分布。使用高斯定理可以简单地说明这一现象的原因：做任意包围净电荷的球面，随着球面的半径增加，能够包围的净电荷达到最大值，此时球面的半径几乎和该部分材料的尺寸相当。如果继续增大球面半径，球面面积以半径的平方增加，而净电荷却还在减少。这样就导致电场的增强效应迅速减弱，或者说电场只存在局域增强效应。因为导电材料所形成的净电荷更倾向于堆积在较小的结构上，且不可避免地相互影响，使得电荷的分布并不均匀。而导电材料的形状无疑是最大的变量，使用完美的球体替代并不非常规则的探针，无疑是缺乏说服力的。

由于上述的解析模型均是对探针做了理想化的近似，为了更加实际地解释电场对电荷作用的物理过程，需要考虑实际的探针结构。在近场成像中使用金属镀层的硅探针或金属圆锥探针。前者与硅的晶格结构有关，形状为四面体，镀上铂铱金属后尖端可近似为金属球；后者则是定制化的金属丝，且一般尖端半径较大，轴长较长。考虑到圆锥形具有旋转对称性，解析计算的结果可以大幅简化，且不丢失关键的物理机制，下面对圆锥形探针进行解析分析。

如图2-2所示，考虑平行于 Z -轴的圆锥形金属探针，其结构主要为圆台、圆球、以及连接圆台和圆球的部分。为了便于在球坐标系下进行计算，将圆球的球心也设置在坐标原点，该模型同样与方位角无关。圆台部分可以认为是距离圆球较远的探针轴，在远离针尖的位置具有较大的体积，且电场矢量会垂直于导体表面。而连接圆球与圆台的位置将与球面相切。为了形象地描述这一划分，将球空间简化为圆形区域，并划分为4个部分：金属球 I ，空气域 II ，探针远端 III 和连接处 IV 。

假设金属球半径 $R_{tip} = a$ ，圆锥顶角为 $2\theta_0$ ，不计探针轴长度，整个轴可以用下式表示：

$$\begin{cases} \theta = \theta_0, & \text{if } r > a \\ r = a, & \text{if } r \leq a \end{cases} \quad (2-7)$$

求解拉普拉斯方程 $\nabla^2 \Phi = 0$ ，通解为方程(2-4)。该结果意味着 Φ_I 和 Φ_{II} 具

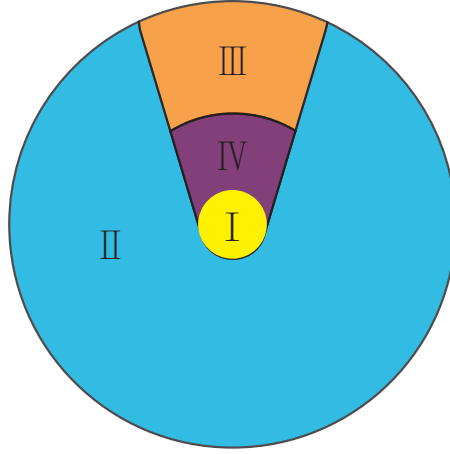


图 2-2 在球形导体（金属球 I，空气域 II）的基础上增加圆锥金属轴（探针远端 III 和连接处 IV）

Figure 2-2 Adding conical metal shafts (distal end of the probe III and the connection IV) to the spherical conductor (metal sphere I, air domain II)

有和方程(2-6)一样的形式，因为金属球面和空气的界面的边界条件没有发生变化。事实上，如果探针轴是无限长的导体，在恒定电场条件下积累的电场能将是无限大的值，而这显然是不物理的。为了保留探针长度的影响，同时简化计算，可以假设圆球和外界空气中的电势分布与方程(2-6)一致，这样就可以得到与 PDM 模型吻合的结果，同时进一步讨论探针轴产生的影响。对于远离球形顶端位置的电势 Φ_{III} ，可以根据电场矢量垂直于导体表面的边界条件进行计算。通过类似于对空气中金属球的分析，可以知道方程(2-4)中只会留下 $n = 1$ 的项：

$$\begin{aligned}\Phi_I(r, \theta) &= A_1^{(1)} r \cos \theta \quad (r \leq a), \\ \Phi_{II}(r, \theta) &= -A_1^{(2)} r \cos \theta + \frac{B_1^{(2)}}{r^2} \cos \theta \quad (r > a \text{ and } \theta > \theta_0), \\ \Phi_{III}(r, \theta) &= A_1^{(3)} r \cos \theta + \frac{B_1^{(3)}}{r^2} \cos \theta \quad (r \gg a \text{ and } \theta \leq \theta_0).\end{aligned}\tag{2-8}$$

求解得到 Φ_I 与 Φ_{II} 是与前面分析相一致的结果：

$$\begin{aligned}\Phi_I(r, \theta) &= -\frac{3}{\epsilon+2} E_0 r \cos \theta \quad (\text{zone I}), \\ \Phi_{II}(r, \theta) &= -E_0 r \cos \theta + \frac{\epsilon-1}{\epsilon+2} E_0 a^3 \frac{\cos \theta}{r^2} \quad (\text{zone II}).\end{aligned}\tag{2-9}$$

与金属圆球中的解析结果相同，可以将这些部分的电势分布等效为源电偶极子 \mathbf{p} 在坐标原点处产生的效果。

在方程(2-8)中，考虑到 $r \gg a$ 时，根据界面上的边界条件有：

$$\Phi_{III}(r, \theta) = -\frac{1}{\epsilon} E_0 r \cos \theta \quad (\text{zone III}).\tag{2-10}$$

这一结果意味着在探针较大一端的位置（定义的无穷远处），电位移矢量 \mathbf{D} 在端面上是连续的，在探针较大端上电荷积累量很少。这一结果是显然的，因为无穷远处电荷不为 0 将导致电场力做功无穷大。认为探针较大端接地也可以解释上述结果。区域 IV 的求解会比较困难，因为探针的尖端和大端实际上是根据不同的边界条件求解得到的，如果区域 IV 要同时满足两边的约束条件，就必然导致约束条件过多，求不出解析解。在此，根据远场的电势分布对该连接处的电势进行预估：

$$\Phi_{IV}(r, \theta) = -\frac{1}{\epsilon} E_0 r \cos \theta + \frac{\epsilon - 1}{\epsilon(\epsilon + 2)} E_0 a^3 \frac{\cos \theta}{r^2} \quad (\text{zone IV}). \quad (2-11)$$

其中第二项可以认为是响应位于原点处的源电偶极子 \mathbf{p} ，而在金属探针轴上产生的电偶极子 $\mathbf{p}_{\text{resp}} = \mathbf{p}/\epsilon$ 。由于金属的介电常数实部小于 0，但绝对值远大于 1 ($|\epsilon| > 1$ 且 $\epsilon < 0$)，所以 \mathbf{p}_{resp} 和 \mathbf{p} 反相。由于两个电偶极子之间有一定的距离，电势叠加之后形成的电场强度分布会比较复杂。在此，仅做一个概念上的分析和解释：假设探针的所有效应可以用一个位于针尖位置，半径为 a 的金属球替代，此时可以对探针下方的电场分布进行准确的描述；但是，额外的探针轴也会对电场的分布产生贡献，相当于一个较小的方向相反的电偶极子被置于探针轴上，根据电势的叠加原理，两个电偶极子会共同作用于待测样品。

对于本例中讨论的一端大一端小的金属锥，直接采用静电学的分析方法可以有很直观的物理解释。假设金属锥远端接地，而针尖位置及相邻的部分等效为一大一小两个金属导体球，假设外电场的影响就是让针尖附近带上电荷，且在针尖附近的电势是几乎相等的。由于曲率半径较小的位置电场强度大，可以认为探针的针尖尖端位置贡献了大部分的电场，而探针轴剩下的部分对于电场的贡献是次要的。除此之外，也可以使用量子力学的理论对该现象进行解释。设电子在探针中的横向位移量为 Δx ，而外加电场加速的电荷动量变化 Δp ，根据不确定性原理，越是尺寸狭小的区域，其具有的电荷动量越大，相应的对电场的贡献也越大。

2.3 本章小结

本章主要使用解析求解的方法，分析并给出了外加电场的条件下，金属探针周围电势的分布情况。一种简单且实用的模型是将整个探针等效为金属圆球，其在外电场作用下被极化为电偶极子，通过对比实验结果寻找合适的球体半径。而作者基于该金属球模型，保留其在探针针尖下方的结果，但是添加了探针轴体的边界条件。探针针尖仍是一个电偶极子，在这里我们称其为源电偶极子。通过一定的近似，发现探针轴上电荷被极化的效果相当于源电偶极子作用在探针轴上，引起电荷的逆着外电场方向的堆积。这些反向堆积的电荷也可以近似为电偶极子，而且根据电势叠加原理，整个探针轴上的自由电荷都会对空间中电场的分布产生贡献。

解析求解的优点在于物理图像清晰，能够很好地从公式中获取关键的信息；缺点也十分明显，除了少数的规则形状导体可以获得简单的解析解，大部分的问题都需要经过相当大的近似，才能获得数学形式的解。

第3章 近场成像的仿真研究

3.1 COMSOL 多物理场仿真软件概述

麦克斯韦方程组的提出,是19世纪最重大的科学成就之一。利用麦克斯韦方程组,人类理解了电磁世界,进一步还发展了相对论理论。而计算机的发明,则是20世纪重大的科技发明之一,通过计算机强大的数值计算能力,人们可以完成海量的数值计算。理论计算是根据总结出的物理规律精确求解理论结果并预测实验现象的方法,而数值计算是建立在0-1逻辑上的近似求解方法。其实早在计算机发明以前,人们就有了数值计算的概念,例如:17世纪时就有了牛顿迭代法,1900年卡尔·龙格和马丁·威尔海姆·库塔发明了龙格库塔法。直到今天,计算机中运行的数值计算方法仍是以前数学家们智慧的结晶。电磁学问题的解析计算是理想的解决方案,但是只有在少数情况下才可以对数学方程分离变量并计算出结果。而数值方法普适性强,使用起来也更加方便,不需要大量的理论知识和相关经验。随着计算机性能的提高,计算电磁学的方法和相应的软件逐渐发展成熟并获得广泛应用。

科学计算软件MATLAB中带有图形用户界面的微分方程计算工具箱PDE Toolbox是一个简单但是有效的数值计算工具。在命令行中输入>> *pdetool*命令后即可使用。其具有定义微分方程表达式,构建实体,进行网格剖分和求解计算的功能。计算得到的结果还可以直接画图,进行直观的分析。但是,求解器内部的方程还需要自行输入参数,且无法进行大规模的计算。

多物理场仿真软件COMSOL Multiphysics是基于PDE Toolbox发展而来的一款专门用于数值计算的软件。其优点在于物理公式完整,且实例丰富,和MATLAB的联动性好。COMSOL Multiphysics的操作逻辑和MATLAB非常类似,采用尽可能少的命令输入,并提供尽可能多的函数和分析工具。COMSOL Multiphysics求解不同的物理场需要借助不同的模块,例如求解光学问题可以借助射线光学模块和波动光学模块,而求解力学问题可以借助结构力学模块和岩土力学模块。但是对同一个问题都可行的模块,其计算效率也是存在差别的,一个简单的原则是根据不同模块的优点,以及求解的目的,选择尽可能简化的计算方案以减少数值计算的消耗。

以在COMSOL Multiphysics中求解一个射频模块(RF module)下的问题为例说明该软件的使用方法:

- (1) 设计好需要仿真的物理情景,确定要得到的结果是一定频率下的稳态解,还是随时间变化的时域解;
- (2) 打开软件,通过模型向导选择RF模块,选择需要的求解器类型,例如频域求解器,并选择研究的类型;
- (3) 设置各项模型参数,例如结构尺寸,频率和电场强度;
- (4) 利用软件内部的几何模型或者导入外部的几何模型,构建仿真域;

- (5) 赋予几何模型相应的材料属性，例如光学问题需要提供材料的折射率和电导率；
- (6) 利用模块内部提供的功能，设置完美吸收层和各处的边界条件，设置初始值；
- (7) 最后设置求解器，包括扫描的频率范围和使用的迭代方法；
- (8) 开始求解，等待结果，并可直接在 COMSOL Multiphysics 中做简单的数据处理和图像导出。

3.2 近场扫描光学显微镜的建模与仿真

近场成像显微镜系统包括扫描探针与样品构成的探针样品结，入射光源和探测器。此外悬臂梁和探针轴也会对近场信号产生贡献^[64]，特别是在探测器中解调出的一阶和二阶信号中，存在大量从悬臂梁上反射的入射光。考虑悬臂梁的影响对于研究近场的探针样品结是有意义的，但是因为引入了大块的金属作为悬臂梁，会极大地增加仿真计算的计算量。

如图3-1所示，电场沿着悬臂梁长轴方向有很大的增强，特别是在远离探针的端面上，这是导体聚积电荷的效应所导致的。其相关原理与对图2-1的讨论一致，均是在导体端面上更容易积累电荷，并形成电场增强。如果关注入射电磁波与悬臂梁的相互作用，可以研究散射出的高阶信号的噪声来源。例如，模拟入射光在存在悬臂梁时产生的电磁波散射和不存在悬臂梁时的电磁波散射，比较空间中电磁场分布的差异就可以评估其对于近场信号探测的影响。此外，还可以研究改变光波入射角度对探测信号的影响。由于悬臂梁的一端固定在 AFM 上，而另一端悬空，这种空间上的不对称性对于不同角度的入射光也必然具有不同的响应。

虽然支撑探针的悬臂梁在实验中会大幅增加背景噪声，使得探测近场信号的信噪比变差。但是探针悬臂梁是 AFM 探针不可缺少的承载部分，若要满足一定的振动频率，其必须具有相应的几何尺寸和力学强度。若是需要通过反射探测激光进行探针振动测量的 AFM 平台，还要求探针悬臂梁具有一定的宽度，以便激光光斑准确地对准悬臂梁顶端。考虑通过减小悬臂梁面积，降低散射信号中噪声的做法并不可行。而且，若是需要考虑探针悬臂梁对电磁场分布的扰动，必然不可以忽视悬臂梁振动所产生的形变。悬臂梁固定的一端受到压电陶瓷施加的动力，在受迫状态下进行振动。为了实现最佳的振动效果，需要通过扫频将探针工作在其谐振频率上。设自由端（即靠近探针针尖那端）的振动幅度为 A ，悬臂梁的形变是逐渐减小，直到在固定端上几乎不产生形变。如果要对其进行建模，需要考虑的就是一个连续变形的结构，这会相当消耗计算量。

为了减少计算量，并突出探针-样品结与入射电磁波的相互作用，仅在仿真中考虑探针尖端和探针轴的作用。如章节2所述，探针的贡献相当于一对极化相反的电偶极子。而探针的振动会带来电偶极子的位移，造成不同高度处探针对样品的作用效果变化。这个过程中，针尖位置聚集的电荷量最多，形成的电场分布

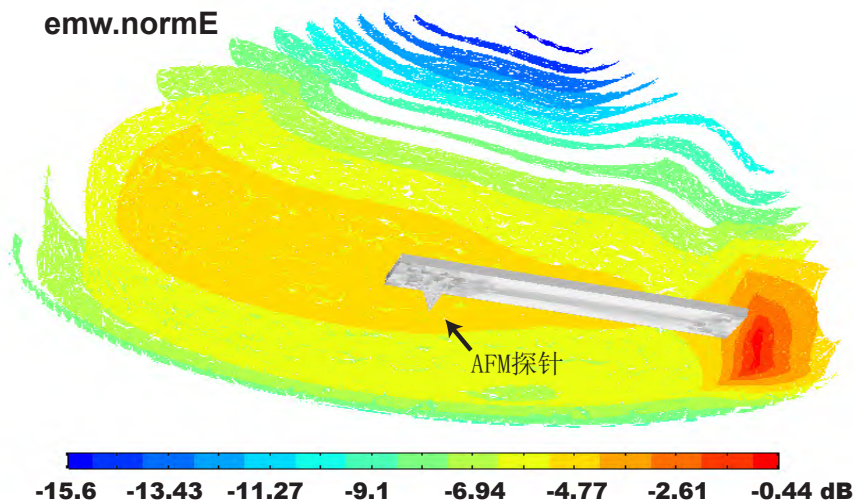


图 3-1 仿真带有悬臂梁的电场强度分布，绘制等值面图；设电场最强处的值为 0 dB

Figure 3-1 Simulate the electric field distribution with a cantilever beam and plot the contour surface. Set the value at the strongest electric field as 0 dB

最强，与样品的相互作用最强，对近场信号的贡献最多。从样品上反射回探针轴上的电磁波，会再次影响探针上的电荷分布，进而影响针尖处的电荷量。

设探针的谐振频率为 f_0 ，通常其数值在千赫兹量级。探针敲击时，探针与样品的距离为 d ，探针的运动可以用如下数学表达式描述：

$$d = A [\cos(f_0 t) + 1] \quad (3-1)$$

这一方程假设探针自由端进行简谐振动，但是如果考虑探针会与样品相互作用，其结果将不会保持一个完美的波动形式。如果探针振动的幅度特别大，敲击在样品表面的形变也会越大。对于这种情况，不妨直接将简谐振动考虑为锯齿波，即探针以固定速度在样品表面和自由端最高点间匀速来回振动。

3.3 对探针与 Au/Si 样品进行频域仿真

实际的近场成像问题是一个轻敲频率在几十到几百 kHz 的金属探针，在频率为几百 GHz 到几十 THz 的入射电磁波作用下，产生高阶信号调制的过程。之所以称为调制，是因为探针样品结会按照公式(3-1)的规律改变。当探针和样品间的距离很小时 ($d \rightarrow 0$)，探针与样品间的相互作用很强。可以认为此时近场信号会大量地辐射到远场位置，在远场探测的信号里既包括从探针和样品上散射

出来的背景信号，也包括探针针尖上局域增强电场与样品相互作用的近场信号；而当探针和样品间的距离很大时（ $d \rightarrow \infty$ ），可以认为探针对于样品不会产生作用，此时在远场探测的仅为探针和样品上产生的散射信号的和。这种随着时间演变，近场信号时而变强时而消失的过程，就是在散射型近场光学显微镜中定义的调制过程。

调制并不会影响近场信号的产生。其实按照探测方法来对近场成像进行分类，既有结合 STM 直接对探针上的电流进行探测，以及通过探针上的小孔直接探测下方光强的直接探测手段；也有在远离探针位置放置探测器，解调 AFM 散射信号的远场探测手段。以 THz-STM 为例，其上的探针可以自由改变位置和高度，选取一个合适的位置，将探针保持固定即可。在外加 THz 波激励的条件下，探针上会产生超快的电流信号变化。直接探测探针上的电信号即可知道 THz 波在探针样品结上产生的近场信号。尽管本文重点围绕 s-SNOM 进行论述，但是直接探测探针附近产生的电磁场变化的方法是有参考意义的。特别是通过电磁仿真揭示探针样品结与电磁波相互作用的过程中可以得到整个空间中的电场分布，既包括探针附近的电场也包括远处的电场。定义探针样品结内的电场强度为近场信号（ E_{near} ），而远离探针-样品结（2 个波长距离）位置处的电场强度为远场信号（ E_{far} ）。假设探针样品结上产生的近场信号为 S_0 ，其作为一种电磁辐射会向无穷远的空间中传播。不考虑入射光的影响和介质对电磁波的衰减，根据能量守恒定律，电磁场能量对包裹探针样品结的任意球面进行积分都是一个常数，也就是说近场信号在空间中的衰减以 $1/r^2$ 速度进行。定义位置 \vec{r} 处的近场信号强度为 $S(\vec{r}) = S_0/r^2$ ，那么在考虑背景场强度 E_b 的情况下，近场信号和远场信号可以分别写为：

$$\begin{aligned} E_{near} &= E_b + S_0/r^2 & (\text{near-field}), \\ E_{far} &= E_b + S_0/r^2 & (\text{far-field}). \end{aligned} \quad (3-2)$$

显然，在距离 $|\vec{r}|$ 很小时， S_0/r^2 贡献更大；而当探测的位置处于两个波长距离之外的远处时，背景电场的强度将淹没近场信号（ $E_b \gg S_0/r^2$ ）。换言之，探针下方的电场强度几乎全部来源于近场信号，入射电磁波作为背景电场，只贡献了很小一部分的电场强度；而在远离探针样品结的位置上探测的近场信号，类似于在平静的湖面上被风吹起的涟漪，从越远的位置看去整个湖面就越平，风所带来的信息就越少。

因为 THz-STM 是直接测量探针上产生的电信号，其与探针附近的电磁场分布直接相关。而近场位置的电场强度主要来源于近场增强，所以具有相当高的信噪比。实际上，近场增强效应显著以及高信噪比还意味着在探针存在和不存在时，产生的电磁场分布的变化会非常显著，因而也会提高近场成像的能力。一般在仿真中通过添加探针获得的近场增强信号将比入射光场强的背景信号强上 1 ~ 2 个数量级，因此常常可以直接将探针下方测得的近场信号视为近场增强信号。但是在实际的 s-SNOM 的近场成像过程中，由于 AFM 不具备 STM 那样直

接对探针进行电信号测量的能力，必须依赖于放置在远场的仪器来探测增强信号的散射。换言之，s-SNOM 的成像必须对远场信号进行解调，从背景信号占据多数的远场信号中，求解出参与了探针样品结调制的近场增强信号的远场散射。由于 s-SNOM 解调的信号是淹没在高背景噪声上的小信号，而且随着探测距离的增加会导致散射信号强度快速地趋于 0，所以 s-SNOM 的信噪比和分辨率都比 THz-STM 更加逊色。

在电磁仿真中可以复现 s-SNOM 的远场信号解调过程。设入射光波是随时间变化的函数，在不同时刻探针的高度变化会造成探针样品结的状态改变。因为探针样品结的变化，整个仿真空间中的电磁场分布都会改变。当选取的计算远场信号的位置离探针不太远且仿真计算的精度足够高时，可以认为远场信号中包含了散射的近场增强信号。以公式(3-1)或者锯齿波的形式改变探针与样品间的高度，由于仿真中样品材料的非线性以及电磁波在探针和样品间的反复反射，散射到远场的近场增强信号的调制频率实际上是 AFM 振动频率的 n 倍。很容易想到，在去掉样品只保留探针的仿真中，探针的振动同样会影响仿真空间中的电磁场分布。但是因为不存在非线性效应，探针造成的调制频率只会是 $1f_0$ ，而不存在高阶的 nf_0 信号。所以，无论是在仿真还是实验中，在背景场激励下，对散射到远场的近场增强信号按照频率 nf_0 进行解调时，最强的信号都是一阶近场信号 S_1 。而且一阶信号在探针振动时就会存在，其包含除了近场散射信号以外的，来自背景和悬臂梁上散射出的信号成分。想要获取更多的近场增强信息，减少从衬底和探针上散射信号的影响，就必须解调更高阶的信号。常用三阶近场信号来代表 s-SNOM 对样品的近场成像结果，如果一味追求更高阶的信号，实际上还面临着高阶信号幅值太小，而信噪比过低的问题。如果入射光波为单色光，即只有一个频率 ω_0 ，将调制后的远场信号进行傅立叶变换，获得的频谱即是在 $\omega_0 \pm nf_0$ 位置上的一系列尖峰。虽然解调的原理就是傅立叶变换，但是通过电磁仿真获得足够进行频域变换的时域信号序列是很难的。

要实现对高阶信号从时域到频域的傅立叶变换，就要求采集的时域信号足够多且时间步长间隔足够小。换言之对时域信号的采集必须满足采样定理，即采集数据的速率至少为信号最高频率的 2 倍。考虑到此处参与近场信号调制的探针振动频率为千赫兹量级 (10^3)，而作为背景激励的入射光波频率为太赫兹 (10^{12})，两者在数量级上相差过大。即使采用欠采样的方法，仅计算高阶调制信号 ($\omega_0 \pm nf_0$) 的窄频带，也至少需要采集 10^8 量级的点数。如果采用电磁时域仿真，还要考虑到仿真结构的尺寸对于仿真中定义时间步长的影响。由于光速在 10^8 量级，而仿真的最小尺寸在 10^{-9} 量级，要想还原每时每刻电磁波对探针的影响，仿真的时间步长甚至需要达到 10^{-17} 量级。而对 s-SNOM 进行仿真建模，需要考虑数个波长大小的区域 (既是为了模拟光波的变化，也是为了考虑整个探针的长度)，而探针的针尖半径可能只有几个纳米。这样空间尺寸的巨大差异会在网格剖分时要求极高的精细化程度，或者说需要极大的网格点数和计算自由度来还原整个探针样品结的结构。所有这些都导致电磁仿真的过程中计算量的

大幅增加。对于一个探针振动的时间周期，若取探针振动的频率为 100 kHz，为了获得 300 kHz 的调制信号，至少需要计算 10^6 个电磁波振动周期。在对结构进行网格剖分时，通过设定阻抗边界条件等方法是可以减小网格点数量和计算自由度的。但即使如此，也必须满足一个波长的距离上剖分 6 个网格，和网格点密度足够覆盖最小特征尺寸的条件。一般经过优化后，仿真模型的计算自由度在一百万个。考虑每个网格点需要用 6 个电磁场分量进行描述，因此完整描述每个时刻电磁场分布的数据量大小接近 100 MB。可以想象这样带来的将会是极大的计算消耗和硬盘占用，更为严重的是，在计算迭代的过程中，由于时域计算会继承上一个时间的计算结果，同时也会继承上一个时间步所留下的计算误差。和通常定义的计算机精度不同，例如计算机中数据以 32 位或者 64 位的精度位数进行存储，此处的计算误差不仅是来源于存储器的限制，还来源于算法。电磁仿真都是通过麦克斯韦方程组获得满足边界条件的数值解，且按照电磁学的理论，这样的解是唯一的。但是建模的过程中只将仿真的空间剖分成了有限个网格单元，而想用有限个点的数值描述整个空间中电磁场分布唯一的解显然是不可行的。通常在仿真中会通过迭代计算的方式求解出一个相对稳定的结果，保留上一次计算的结果并将其与当前计算结果进行比较，若两次结果间产生的误差小于一定的数值，就可以认为求解的结果收敛。上一时间步计算的结果要作为下一个时刻开始的初始值，因此前后两个时间步并不是独立的，其计算误差也不会是独立的。因为每一次计算都无法达到理想的结果，且计算结果间相关联，经过大量迭代和时间步计算以后就会产生大量的误差累积。为了克服这一问题，一个在文献中广泛使用的方法是使用准静态近似（quasi-static approximation），选取不同时刻下不同的探针高度进行频域的稳态计算。

定义准静态近似为任意时刻系统都可以被视为静止不动，且在外加电磁波的作用下导体上电荷的重新分布速度足够快，因此整个系统可以在任意时刻达到稳态。由于在 Tapping 模式工作时探针上下振动的速率相比入射电磁波的传播速度很慢，且探针振动的频率也远低于太赫兹，另外 THz 波在金等良导体上的趋肤深度也很低，甚至可以认为这些良导体在太赫兹频段就是完美电导体，所以在任意时刻，THz 波与探针样品结的相互作用都可以看成是处于准静态。由于探针和样品间的距离会随着时间改变，离散化的时刻对应离散化的探针样品距离，且任意时刻探针样品结都可以在 THz 波入射下达到准静态。这就意味着，可以用有限个离散化的距离 d （不少于 5 个点）来描述探针的振动。实际上，这样做等同于忽略了探针振动频率和采样定理的限制，将空间中电磁场分布的变化直接与探针振动周期联系起来。这是一种普遍采用的将时域仿真转化为有限个稳态仿真结果的方法，其优点就是节省计算量，但是缺点在于过度简化了真实的物理过程，尤其是将系统在任意时刻的状态都视为稳态显然无法反映探针轴上电荷随外电场重新分布的效应。

近场光学显微镜虽然具有突破传统光学成像分辨率限制的能力，但是其仍需要依赖传统的光路对入射光进行耦合和探测。在红外与太赫兹波段，由于透射

式的光学元件对光波的损耗较大,常用表面镀金或镀银的反射式光学元件进行替代。由于微反射镜阵列技术的成熟,考虑将这类可编程反射式光学元件结合进近场成像的光路是有意义的。通过离轴抛面镜汇聚的光波仍受限于光学衍射极限,其无法将镜面上接收到的光都汇聚到一个理想的几何点上,因而焦点处的光斑会具有一定大小。例如使用太赫兹相机测量 4.2 THz 的 QCL 激光器汇聚的最小光斑半径约为 2 mm。通常入射电磁波的功率会在几个毫瓦,而最小光斑的面积约为几个平方毫米。相比于微米甚至纳米尺寸的探针,光斑照射的面积非常大。尽管光斑上的场强分布并不均匀,但在探针附近仍可视为均匀的背景场激励。因此在仿真中只选择包含探针样品结的数个波长大小的区域进行仿真,并将原本的 THz 波入射条件设置为仿真空间中的均匀背景场激励。

3.3.1 探针样品结的模型描述及简化方法概述

对近场成像的电磁仿真最关键的两个部分是金属探针和待测样品。金属探针的材料常选为钨或表面镀铂铱合金的硅探针,虽然铂铱合金探针是非常灵敏的商业化探针,但是为了实现更好的近场成像效果,定制化的钨探针是更为常用的选择。金属和半导体等材料在红外和太赫兹波段往往存在较强的反射和吸收,换言之材料的介电常数虚部较大。这种由于材料内部自由电荷振荡造成的光电响应可以用 Drude 模型^[82]和 Drude-Lorentz 模型^[83,84]进行描述。这是一种在红外和太赫兹波段常用的模型,但是近年来的研究表明这一模型在太赫兹波段并不准确^[85]。为了避免材料在入射光波段下响应太弱且介电参数未知的问题,本研究的仿真计算和实验都是基于高阻硅和金属金构成的样品。高阻硅由于其自由电荷浓度低,对于 THz 波的吸收较小,是常用的太赫兹透镜材料。而金属金因为其良好的导电特性,在太赫兹波段可以视为完全反射电磁波的材料。由于实际样品中金属金是一层极薄的通过蒸镀形成的金膜,可以用完美电导体边界条件对其进行替代。对于其它的金属材料,如果其特征尺寸过小,例如达到探针针尖这样的纳米级,对其进行仿真求解的计算量将会变得非常大。尤其是在模拟金属内部的电磁场分布时,由于电磁波在金属内部衰减极快,实际上就要求对导体内部进行极密的网格剖分。对此,一个可以大幅降低网格剖分自由度,进而降低仿真计算量的方法就是将导体内部挖空并使用阻抗边界条件替代。外部的仿真空间需要使用空气填充,这是由于电磁仿真依赖于物理域的设置,不能忽略外部包裹探针样品结的介质材料。尽管目前存在大量真空低温的近场光学显微镜,理论上设置空气域并不是必要的,但是为了给电磁波传播提供空间和介质,必须要设置一定的材料区域用于仿真。一个小的技巧是,需要设置空气的导电率为一个小数,这也是符合实际物理条件的一个设置。此外空气的传热系数 $h = 5$,也是在后续电磁热仿真中非常重要的一个参数。

阻抗边界条件和完美电导体边界条件都是电磁场理论中用来描述边界条件的概念。阻抗边界条件是指在边界面上,电场和磁场的法向分量的比值等于该面上阻抗的大小,其中阻抗是指电场和磁场的比例关系。相比之下,完美电导体边界条件是指在边界面上,电场切向分量为零,而磁场法向分量为零。这个条件实

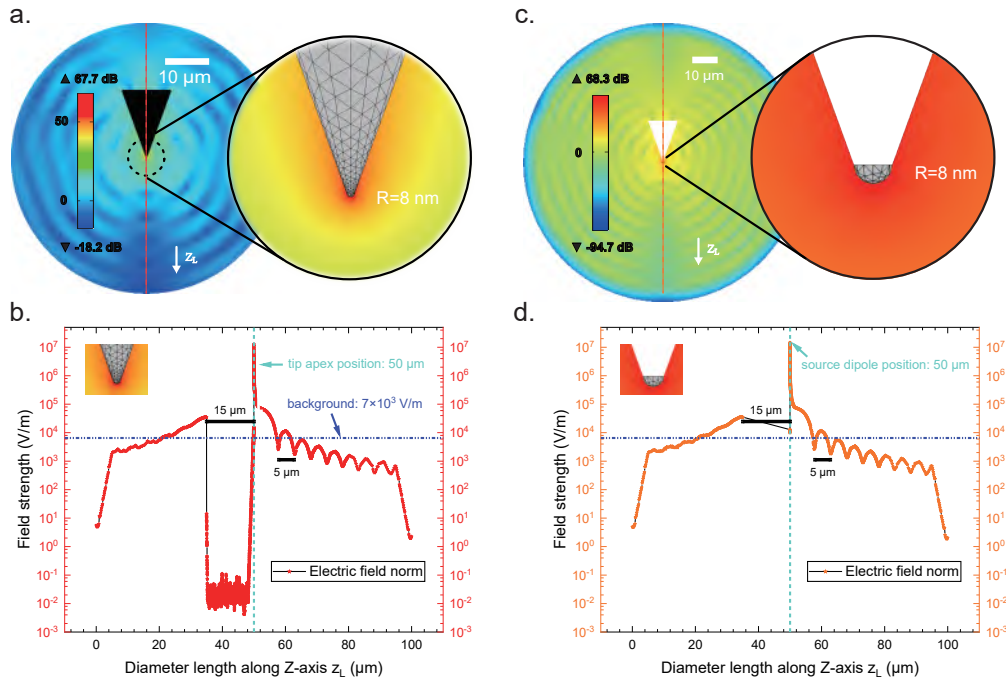


图 3-2 (a) 使用金属实体计算整个空间中的电场分布；(b) 对应图 a. 沿着 Z_L 轴方向电场强度随 Z_L 变化；(c) 使用挖空的金属和阻抗边界条件计算整个空间中的电场分布；(d) 对应图 c. 沿着 Z_L 轴方向电场强度随 Z_L 变化；定义背景电场强度为 0 dB，电磁波频率为 30 THz

Figure 3-2 (a) Calculation of the electric field distribution in the whole space using metallic solids. (b) Corresponding variation of electric field strength with Z_L along the Z-axis to Fig. (a). (c) Calculation of the electric field distribution in the whole space using the hollowed-out metal and impedance boundary conditions. (d) Corresponding variation of electric field strength along the Z-axis with Z_L to Fig. (c). Define the background electric field strength as 0 dB and the electromagnetic wave frequency as 30 THz

际上是基于一个假设，即完美电导体是一种能够无限制地传导电流的材料，因此电场不能存在于其内部，而磁场必须垂直于其表面。总的来说，阻抗边界条件通常用于描述非理想的边界条件，而完美电导体边界条件则是一种理想化的情况，在这种情况下，电场和磁场的行为是非常简单和可预测的。

下面以仿真实例简单地对比阻抗边界条件和金属实体在计算结果上产生的差异。一个使用金属实体的仿真如图3-2(a)所示，在背景电场激励下，探针针尖附近有 67 dB 以上的电场增强。球形空间中电磁场强度沿着半径方向强弱变化，这并不是物理上的原因造成的，而同样属于一种计算误差。由于设置背景场激励，电磁场在到达最外围的边界时被完美吸收层吸收，导致边界上电场强度为 0。由于边界上不存在反射，唯一的反射体就是中心位置的金属探针，且其存在类似于天线。最终呈现的结果就是空间中的电场会出现明暗交替的圆环，其是在球形仿真空间中产生的对沿着 Z 方向偏振的入射平面波所产生的扭曲。这样强弱变

化的电场分布也是使用频域计算所必须保留的结果，因为不同于时域计算可以直观地观察电场随时间的变化，频域计算的结果是一个无法通过动态呈现的稳态值。因此只能将电磁波形随时间的变化体现在相位上，而虚数的呈现仍然需要通过实数，体现在描绘出的电场分布上就是强度明暗变化的条纹。仿真中入射电磁波频率为 30 THz，相应的波长为 $10\ \mu\text{m}$ 。这与图中 $5\ \mu\text{m}$ 长的电场强度模的明暗变化相一致。如果使用波长更长的 THz 波，由于明暗变化的间隔更大，在仿真中就不会有如此明显的圆环图案。沿着 Z-轴方向向下，通过探针轴和球心做一条竖直的剖面，电场强度的分布如图3-2(a)所示。由于此处设置的是金属实体，可以看到金属探针内部的电场强度是很弱的，其强度甚至还弱于背景电场。这说明导体对电磁场的屏蔽作用很强，导体的电荷会在外加电磁场作用下很快地重新分布到导体表面，进而屏蔽外界电磁场进入导体内部。而图3-2(c,d)则描绘的是简化的建模方法。通过将金属探针的实体部分挖空（布尔运算），留下探针的内部边界。此时就可以在探针的边界上使用阻抗边界条件，来替代原本的金属实体。为了避免对探针附近的空气区域进行网格剖分时产生网格密度不够的问题，在这里的探针针尖位置还保留了一部分实体结构用来限制最小的网格单元尺寸。对比左右两图，图3-2(a,c)看起来有着不太一样的电场分布，毕竟两者的模型不一样，导致电场强度的最大最小值不一致，颜色条和视角的选择也不一样。但是实际上二者的电场强度分布高度一致。对比图3-2(b,d)，两条剖面有着几乎完全一致的电场分布，其区别仅是挖空的结构上不再具有电场分布。这一结果是显然的，因为挖空的金属探针本质上就不是仿真空间，而即使考虑了金属内部的电场分布，也几乎是具有为 0 的电场强度分布。所以使用阻抗边界条件的方案是高效且精确的，如果将阻抗边界条件替换为理想电导体边界条件，在大多数的情况下也是适用的。

到目前为止的论述，从本质上都只是在对探针样品结进行描述，也就是建立描述某一个像素点上近场信号产生机制的模型。但在实际的近场成像过程中，探针需要在样品上进行连续扫描，对每一个像素点采集信号，按照扫描顺序重新将像素点构成图像。将单点的近场光学信号转换为图片有如下优点：

(1) 与 AFM 表面形貌成像结果做对比，在同一个空间维度上同时得到样品表面高度起伏，力学相位（粘滞力），样品上光学信号强度和光学相位（介电常数虚部）的信息，拓展了探测的维度；

(2) 采集大量像素点可以减少光源和探测器噪声抖动的影响，也就是在平均的意义上，减少在评估样品光学性质时局部噪点恰好被探测到所产生的测量误差；

(3) 近场成像的光学信号强度受各类因素影响，即使只是更换样品的操作都可能得到不同的信号强度，因此在一次测量里尽可能多地测量样品和结构，也就是将其置于一张图里是最精确的测量和对比方法；

(4) 对由于样品结构所造成的近场信号变化，必须要通过对整个结构的描绘来进行研究。

而仿真本身就是追求对实验的完全复制，实验上出现的上述问题，同样会在模拟中出现。虽然仿真中设置的背景场激励可以非常稳定，但是空间网格的剖分，求解器对稳态的判定都会存在误差。例如探针在与样品距离更近时，网格剖分密度自然会更高，而如果求解器收敛到精确解附近，针尖附近电场强度的计算结果会更加精确，如果没有满足这些条件就会存在较大的计算误差。因此，模拟实验上的探针扫描成像过程，对于仿真计算也是很有意义的。这样做对后续分析金属样品结构所造成电场分布差异，以及讨论成像分辨率问题都有不可替代的作用。

3.3.2 仿真结果

首先计算探针轴长 $70\ \mu\text{m}$ ，针尖半径 $40\ \text{nm}$ 的模型。如图3-3所示，在 $Z = 0$ 的平面上使用完美电导体替代金的薄膜。这样就将仿真空间剖分为上下两个区域，由于完美电导体对于电磁波是全反射的，两个区域的电场分布也因此被分割开来。在真实的物理模型中，金属上半部分是空气区域，而下半部分是介电材料高阻硅。由于介电材料中的波长更短，为了满足网格剖分的密度条件，在高阻硅内部划分的网格数量要远多于对空气区域的划分。建模中可以通过减少模型上硅衬底区域面积对仿真速度进行优化。在金属薄膜的中心位置开窗，挖去一部分完美电导体，并在窗口下方添加一小块高阻硅衬底。在窗口内暴露出来的硅衬底上利用二维几何图形构建金属样品，常用的结构为圆或方形金属条带，通过长条形金属线可将金属条带与外部的金薄膜连接起来。通过这样的设计，可以直接使用 COMSOL Multiphysics 的自动网格剖分功能，且剖分的网格自由度较少，有利于节约计算时间和硬盘空间。设置背景电场强度为 $E_b = 6500\ \text{V/m}$ ，探针针尖与样品的距离为 $50\ \text{nm}$ ，电磁波频率设为 $2\ \text{THz}$ ，进行频域稳态计算。

探针针尖附近可以观察到明显的近场增强效应，通过分析不同电场分量的场强分布可以验证章节2中的假设。电场强度模 (normE) 几乎完全由 E_z 分量贡献，这也是背景电场 E_b 完全处于 Z 方向偏振的必然结果。但是探针针尖的形状不是无限细的金属线，而是由具有一定弧度的圆锥和球体所组成的结构。电场矢量大体上会垂直于导体表面，这也就决定了 XY 平面上电场分量的存在。其数值虽然相对 normE 而言很小，但是其反映了探针轴体对电场分布的贡献，且由于不存在 E_b 的干扰因而具有清晰的边界。图3-3中对 $\log_{10}(|E_x|)$ 的描绘显示出两个圆形的增强区域，这正好对应理论讨论部分描述的源电偶极子和在探针轴上产生的另一个电偶极子的推论（见公式(2-11)）。

在电磁仿真中模拟探针在样品表面扫描的过程，对探针位于每个像素点处的电磁信号进行记录，并将其转化为灰度图像。图3-4展示了对两组样品进行扫描时的结果，其中 (a,b) 为非连接状态的金片样品，而 (c,d) 为连接状态的金片样品。这些样品的四周区域均是金薄膜，或者说是模拟地，可以作为电势的参考点。一个从图3-4(c) 中可以直观得到的结论是，连接状态的金片具有与外部金膜一致的近场信号强度。从表面看来这是非常自然的结论，因为待测的样品均为金属金，且样品远大探针针尖尺寸，不存在分辨率不足的问题。如果按照样品的材料属性决定其近场信号强度的理念，任意形状，大小和连接状态的同一种材

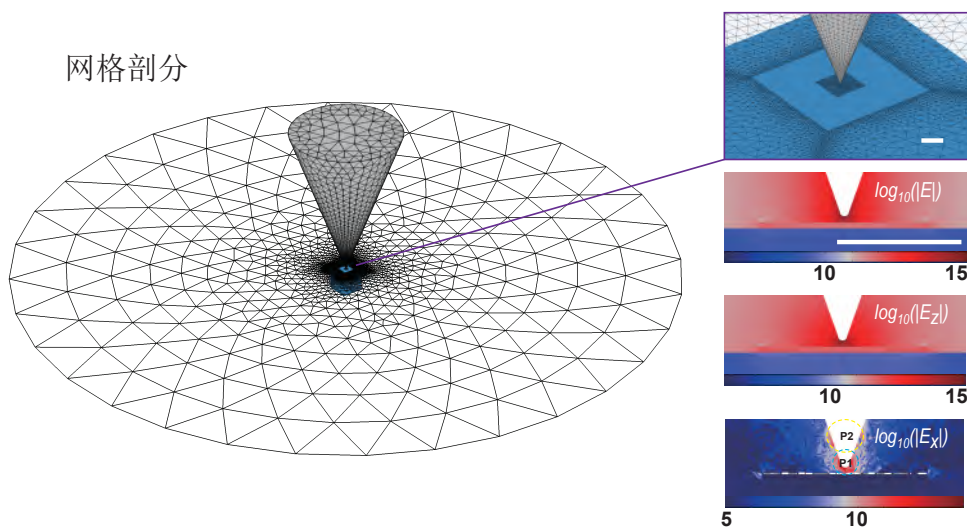


图 3-3 进行电磁波频域仿真 [Electromagnetic Waves, Frequency Domain (emw)] 时，对探针样品结的几何结构进行建模和网格剖分（左），放大探针针尖附近的区域并绘制其电场分布： E ， E_z 和 E_x （右）；比例尺为 $1\ \mu\text{m}$

Figure 3-3 For Electromagnetic Waves, Frequency Domain simulation, the geometry of the probe sample junction is modeled and the mesh is dissected (left), the area near the probe tip is enlarged and its electric field distribution is plotted: E , E_z and E_x (right). Scale bars are $1\ \mu\text{m}$

料，在进行近场成像时都会具有相同的探测值。但是无论是已有的实验^[54]还是本图中展示的仿真结果，都表明太赫兹近场成像的信号受形状等因素影响很大。图3-4(a) 中心位置处的金片具有较四周金片更弱的近场信号强度，换言之非连接状态的金片会比连接状态的金片拥有更弱的近场信号强度。此外在金属金的边沿还存在着比金属内部更高的信号强度，二维图形边界作为一种特殊的一维图形，对近场信号存在的影响也值得深入讨论。为了研究上述问题，需要更精确地分析金膜与探针之间电场的变化。一个非常有效，且之前的研究中很少被使用的方法是对样品上的电场矢量进行分析。

在物理学中，电场矢量是一种非常重要的工具，因为它可以用来描述电场的强度和方向。电场是由电荷产生的力场，它可以对周围的电荷和物体施加力。因此，理解电场的分布和性质对于电学和电子学等领域非常关键。电场矢量的主要作用是提供电场的可视化和定量描述。通过观察电场矢量图，我们可以了解电场的强度和方向如何随着空间位置的变化而变化。这种信息对于设计电子元件和电路非常重要。例如，在设计传感器或电容器等设备时，需要了解设备周围的电场分布，以便更好地优化设计。此外，电场矢量还可以用于计算电场的能量密度和势能。这些参数在分析电场的特性时非常有用。总之，电场矢量是电场研究和应用中不可或缺的工具。通过电场矢量可以更好地理解和描述电场的性质和行为，从而更好地设计和优化电子设备和电路。如图3-5所示，在 COMSOL Multiphysics 中绘制电场矢量，意味着将电场表示为向量场，其中每个箭头表示

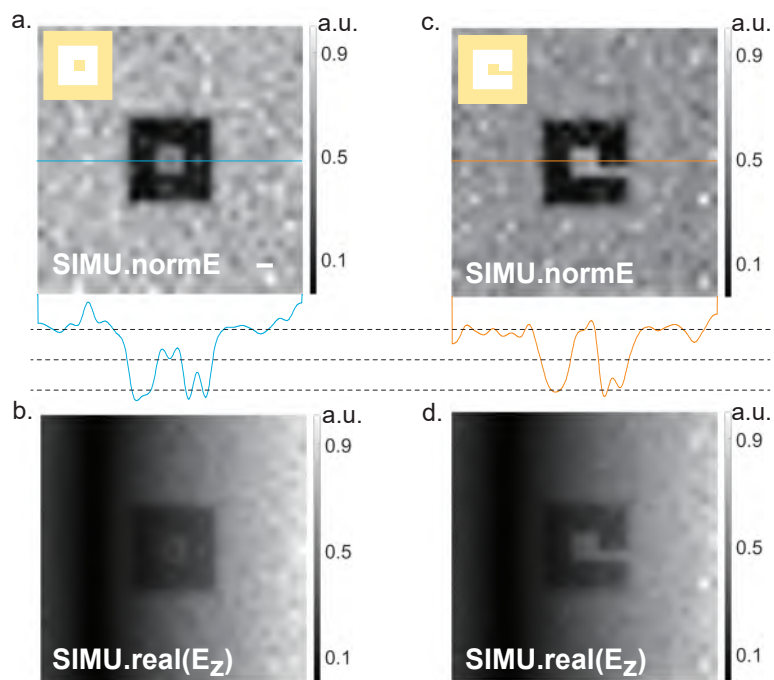


图 3-4 在 COMSOL Multiphysics 中模拟扫描样品的过程，测量探针位置下方电场分布，将测量的数值进行规范化并绘制为灰度图 (a) 非连接状态金片样品的电场强度模；(b) 非连接状态金片样品的 Z 方向电场分量实部；(c) 连接状态金片样品电场强度模；(d) 连接状态金片样品的 Z 方向电场分量实部；比例尺为 $1 \mu\text{m}$

Figure 3-4 The process of scanning the sample is simulated in COMSOL Multiphysics, the electric field distribution below the probe position is measured, and the measured values are normalized and plotted as grayscale plots. (a) The normE of the unconnected state gold flake sample. (b) The real part of the electric field component in the Z direction of the unconnected sample. (c) The normE of the connected sample. (d) The real part of the electric field component in the Z -direction of the connected sample. Scale bar is $1 \mu\text{m}$

电场的强度和方向。

非连接状态的金片受到探针上向下的电场作用非常明显，因为非连接状态的金片面积很小，屏蔽外部电场的能力很弱。如图3-5(a)所示，探针针尖上积累大量的自由电荷，这就会使得探针下方近场增强且电场矢量方向向下。按照一般的规律，电场矢量均应该垂直于导体表面，且在无限大的导体上电场矢量大小处处相同。但是对于孤立的小块导体，探针下方局域增强的电场可以直接决定其上的电场分布，甚至造成小块导体上的电场矢量与四周导体表面的电场矢量方向相反的现象。探针在探测过程中连续地敲击振动，探针与样品间的距离不会只是图中的 50 nm 。随着针尖接近样品表面，样品表面上感受到近场增强信号的强度会大幅增加，但是本质上没有新的物理。不必选取多个探针样品距离 d 进行仿真，一个非常具有技巧性的方法是直接在样品上的平移位置另取一点，两个仿真可以互相视为距离无穷远的对比。将探针移动到窗口的边界上，可以观察到探针下方导体表面的电场矢量变得极小，与此同时中间孤立金片上的电场矢量也变

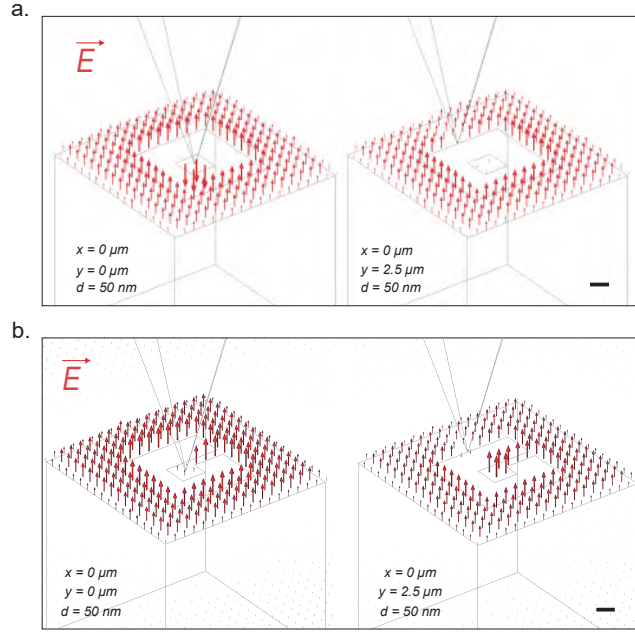


图 3-5 仿真样品表面电场矢量分布 (a) 非连接状态金片样品；(b) 连接状态金片样品，左图为探针位于金片正上方位置，右图为探针位于硅衬底窗口边缘上方；比例尺为 $1 \mu\text{m}$

Figure 3-5 Electric field vector distribution on the surface of the simulated sample. (a) Non-connected gold sample. (b) Connected gold sample. The left image shows the probe located directly above the gold chip, and the right image shows the probe located above the window edge of the silicon substrate. The scale bar is $1 \mu\text{m}$

得极小。综合来看：在探针处于远离位置时，四周大面积的金膜具有比小块的金片强得多的表面电场矢量；而在与探针相互作用时，大面积的金膜也具有远强于小块金片的屏蔽能力。探针样品结产生近场信号的机制归结起来就是非线性效应，如果认为大面积金膜表面的电场矢量为 $E_b \hat{e}_z$ ，那么在探针振动过程中大面积金膜表面的电场变化就是从 $+E_b \hat{e}_z$ 到 $+0$ 。但是孤立的小块金片上电场的变化却是从 $+0$ 到 $-E_{near} \hat{e}_z$ 。

而连接状态的金片在图3-5(b)中显示出类似于四周大块金膜的电场矢量变化模式。当探针位于连接状态金片上方位置时，整个方形金片表面（不止局限在探针针尖大小范围）的电场矢量都被拉低，而金属导线和四周的金膜具有相似水平的电场强度。探针在金膜上的情况与之类似，也是周围一定范围内的电场强度都被压低，但是离得较远的导体保持比较一致的电场矢量水平。换言之，连接状态金片的表面电场从 $+E_b \hat{e}_z$ 变化到 $+0$ 。

至此，可以知道近场信号的强度不是只由材料的光学性质所决定，金片的连接状态同样对其有所影响。对图3-4(a,c)的仿真结果以及实验结果均显示连接状态的导体具有更强的近场信号强度，其对应电场矢量从 $+E_b \hat{e}_z$ 变化到 $+0$ ，也就是说导体表面产生的抵抗外电场的电荷才会对近场强度有贡献。当金片与四周导体相连接时金片上相当于连接了大量的外界自由电荷，它们可以维持金片上的电势与周围的金膜一致。而非连接状态的金片只能依靠仅有的一点电荷来抵

抗外加电磁场的影响。这其实也是一种法拉第笼效应，只不过发生在纳米尺度。法拉第笼效应是一种电磁学现象，指的是当一个金属笼子（也称为法拉第笼）用来包裹一个电子设备时，可以防止电磁辐射干扰外部环境和受到外部电磁辐射的干扰。这是由于法拉第笼可以阻止电磁波通过其表面进入笼内或从笼内泄漏出来。金属笼的表面充当一个外部电场的导体，当外部电场作用于笼子上时，电场会在导体表面上感应出等量异号的电荷，并产生一种与外部电场完全相反的电场。这个内部电场可以抵消外部电场，从而阻止电磁辐射穿过笼体。对于被金膜覆盖的高阻硅样品，其也可以等效于被金属笼子包裹的硅衬底。由于探针的近场增强作用，相当于拿着一个源偶极子去激励金属笼子产生响应，而且由于其作用范围是相当局域的，只会在一个小的范围内引起较强的电磁相互作用。当探针位于连接状态金片上方时，四周的导体金膜可以提供大量的自由电荷来抵消探针上的局域增强电场，使得由探针尖端指向样品表面的电场矢量无法穿透金片进入下方高阻硅衬底。但是当探针位于非连接状态的金片上方时，孤立状态的金片容易被外界的电场矢量所极化，也就是跟随探针上的增强电场变化而变化，这样近场增强信号就更容易进入下方衬底而不是被导体所反射。

除了用电磁屏蔽的理论解释连接状态金片上产生更强近场信号的原理，还可以借用电子输运产生损耗来解释上述现象。在非连接状态的金片上施加源偶极子时，即使金片上的所有电荷都随着偶极子极化方向的改变而振荡，也仅仅只会包含有限量的电荷振荡。电子在有限大小的金片上能够消耗的能量，所吸收的电磁波或者光子能量最终被有限的电荷总量所限制。而连接状态的金片由于可以直接与外界导体交换电子，当外界源电偶极子被置于金片上方时整个导体上的电荷都会参与实现电磁平衡的过程。大量的电荷在达到电磁平衡的过程中通过导线进行输运，该过程相当于就是在无穷大导体上放置镜像偶极子所需要消耗的能量，所吸收的电磁波或光子能量等效于生成一个镜像电荷所需要的能量。

3.4 基于源偶极子模型的仿真

上一节已经介绍了一个定制探针（ $70\ \mu\text{m}$ ）在仿真中是如何增强近场信号，并与样品结构进行相互作用的。下面进一步介绍从仿真的角度，如何优化探针和探测方式。探针的参数包括探针形状和探针材料，对其进行调整有些类似于设计金属天线，优化的方向是获得更好的近场成像分辨率和信号对比度。此外，进行全波仿真时需要通过添加入射光或者背景电场，以激励探针产生近场增强效应。这样做带来的缺点就是远场信号中近场散射成分非常少，如果不是进行近场探测，而是采取远场探测的手段就会得到很差的信噪比。仿真中因为计算机和算法的限制，无法进行时域的电磁仿真。为了能够对仿真结果进行傅立叶变换，需要使用很多的近似手段。如果有一种仿真方法可以直接获得近场信号在远场的散射信号，即使其与实验结果相差较大，在理论研究上也非常重要。这种方法可以帮助我们更好地理解近场和远场之间的联系，以及在设计纳米光学器件时如何优化近场信号。

3.4.1 模型描述

一方面是对探针的优化。讨论探针对于近场成像的影响,最简单的参数就是在仿真中改变探针的几何形状。例如对圆锥形探针,调整针尖半径和探针轴的长度,记录仿真结果的差异。探针的形状其实由其制造工艺所决定,以晶体为基材的探针会具有晶体的形状,以金属为基材的探针便于通过电化学和 FIB 切削等手段塑形。以 $15\text{ }\mu\text{m}$ 长,针尖半径 8 nm 的表面镀金属的硅探针 RTESPA-300 为例,因为其基材的加工方式是基于硅晶体晶格的腐蚀加工,制成品会具有特定的倾角特征(四面体)。而金属钨探针质地坚硬,可塑性强,且其性质与金属金极为类似,在近场成像中常常使用定制化的圆锥形钨探针来增强近场成像效果。钨探针的制造并不复杂,从纯净的钨块中抽出钨丝然后对钨丝末端进行电化学腐蚀,还可以对探针进行精细化调整^[86,87]。为了仿真模型的简化,避免在诸如四面体的棱角上出现空间结构的跳变,导致计算麦克斯韦方程时的不连续,选用圆锥形的探针进行形状的分析。圆锥形相比四面体,形状上不平滑的突变点变少了,但在锥角顶端还是存在一个奇异点。为了避免这个顶点在进行网格剖分时将网格格点大小过度精细化,需要将其钝化为一个球面。换言之,将探针抽象为圆锥和圆球的组合,圆锥的顶角设置为 20° ,忽略悬臂梁及其余部分对空间中电磁场分布的影响。

另一方面是对探测方式的优化。在上一小节3.3中为了模拟全空间中的电磁场分布,使用的是全波仿真(Full-Wave Simulation, FWS)的方法,实现了对整个探针样品结上电场分布的准确评估。但是该方法在进行远场信号的解调时会存在许多问题。为此,在本节提出基于源电偶极子模型的仿真方法,避免远场探测中背景信号的影响,直接在远场探测探针样品结的相互作用结果。而实现这一突破的基础就是章节2中在背景电场作用下,探针针尖等效于源偶极子的数学模型。虽然源偶极子的产生以及其能量均来源于背景电场,但是探针样品结上的增强电场几乎完全来源于源偶极子。背景电场除了激励源偶极子的产生,并不对近场光学的探测起到积极的作用,相反还是一个强度很高且不太稳定的背景场。如果剔除背景电场,保留近场增强效应,那实际上就可以在仿真空间的任意位置探测到近场光学信号。这就是基于源偶极子模型(Source Dipole Model, SDM)的电磁仿真原理。

仿真本身还是依赖于 COMSOL Multiphysics 的电磁波频域求解器,几何模型和材料参数也保持不变。只需要在建模时在探针顶端添加一个几何点,将其设置为点偶极子 \mathbf{p} ,同时去除施加在仿真实间上的背景电场 \mathbf{E}_b ,使得空间中的背景场激励为零。这样做可以控制变量,方便地将基于源偶极子模型与全波仿真模型进行对比。作为评估简化的仿真模型 SDM 的重要一环,将其结果与目前普遍使用的 FWS 进行对比是有必要的。尽管 FWS 仿真的结果在数值上与实验结果常常难以弥合,但是经过多年的发展其已经成为解释近场成像机制最重要的方法。尽管已经对 SDM 的建模过程进行了大篇幅的解释,对该方法优点也尽可能地进行了设想,但如果其求解得到的结果与 FWS 方法获得的结果相差过大,这种方

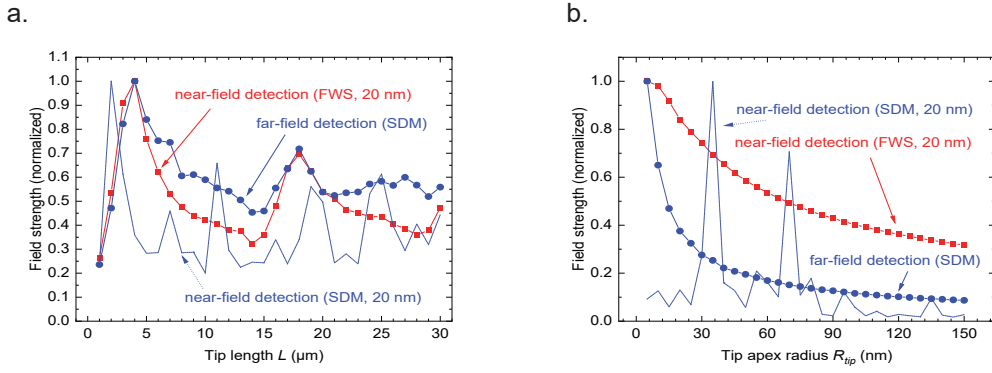


图 3-6 仿真随着探针形状改变产生的近场信号和远场信号变化，蓝线为基于源偶极子模型的仿真结果，红线为基于全波仿真的结果 (a) 电场强度模随探针长度变化；(b) 电场强度模随探针针尖半径变化

Figure 3-6 Simulation of near-field and far-field signal variations with probe shape change, blue line is based on the source dipole model, red line is based on the full-wave simulation. (a) Variation of normE with probe length. (b) Variation of normE with the probe tip radius

法也会难以得到广泛的支持。

3.4.2 源偶极子模型的仿真及其与全波仿真的对比

全波仿真在近场成像机制的研究中已经得到了广泛应用，并可将其视为一个参考标准，用来评估 SDM 方法。要评估 SDM 方法和 FWS 方法在仿真结果上的差异，比较精确的方法是先对背景场 E_b 和电偶极子强度 \mathbf{p} 进行参数扫描，找出两个仿真中达到相同的近场信号时参数的对应关系。但是考虑到探针下方的样品会对整个探针样品结的电场分布产生影响，通过背景场激励的源偶极子会随着待测样品的不同产生显著的变化；而 SDM 方法中是将 \mathbf{p} 设置为一个固定值，其不会随着样品不同而改变。为此，首先研究去除样品时，随着探针形状改变，近场和远场的电场强度变化。

比较使用 FWS 和 SDM 方法，改变探针轴长 L 和针尖半径 R_{tip} 时电场强度的改变。只考虑探针时不存在探针样品结的概念，也就没有必要对远场信号进行傅立叶变换，空间中的探针只能以自身作为参考位置。由于没有进行远场解调，FWS 方法只能从近场的场强中获取信息；而 SDM 方法不但适用于近场检测，还可以实施直接的远场检测。考虑到空间中只有探针的情况，选择探针下端 20 nm 位置处的电场强度模为近场信号强度（FWS: 方点红线，SDM: 蓝色实线），选择两个波长外的电场强度模来作为远场信号强度（圆点蓝线）。从图3-6(a)中可以看到，归一化的电场强度不是随着 L 单调变化，而是波动的曲线，在 $3 \mu\text{m}$ 和 $17 \mu\text{m}$ 位置处具有较强的电场强度，而在 $14 \mu\text{m}$ 和 $28 \mu\text{m}$ 位置处却呈现明显较弱的场强。这种明显的谐振现象可以归结于金属探针的天线效应：当探针长度恰

好满足电流在金属探针轴上稳定地增强时，探针对于整个空间中电磁场分布的影响最强。红色曲线代表的全波仿真和蓝线代表的 SDM 方法仿真在这个问题上吻合得很好，谐振点的位置和归一化的场强大小都比较精准地形成对应。但是使用 SDM 方法仿真的近场信号强度却出现了更多的谐振峰，且偏离了上述的谐振位置。造成这一结果的原因主要是在针尖上设置点源时，由于改变探针形状需要重新剖分网格，而点源在不同的网格剖分下具有不同的边界网格点。由于去除了样品，不存在探针样品距离 d ，进行网格剖分的网格大小也就被限制在 8 nm 量级。计算探针下方 20 nm 位置处的电场强度实际上也是由周围数个网格格点的计算结果通过插值得到的。全波仿真中的解是全空间中达到稳态时的结果，因此随着探针形状的改变其曲线变化更加平滑；而使用 SDM 时，本质上就是在空间中增加了一个奇点，其具有无限的能量，因此才能保持电偶极子的强度为一个恒定值。所以，在使用 SDM 方法计算探针下方的近场信号强度时，网格剖分的大小和精细程度是主要的影响因素，因此可能会出现大量的噪声尖峰。尽管增加网格剖分的密度和缩小网格尺寸可以减少 SDM 计算中出现的噪声尖峰，但会大大增加计算量。如果去掉探针实体，只保留点电偶极子与待测样品的相互作用，可以避免探针形状所引入的计算误差，但无法体现探针针尖对近场增强和成像分辨率的作用。因此，在保留探针实体的情况下，在合理的计算消耗的条件下，对 SDM 方法进行优化，使其仿真结果与实验结果更好地对应，仍然是一个值得探索的课题。

图3-6(b) 描绘的是改变探针针尖半径 R_{tip} ，探测的电场强度随 R_{tip} 增大而减弱的曲线。在不存在样品时，检测的信号强度将随着探针的“变钝”而减弱，这在全波仿真中是很自然的现象，因为随着针尖半径的增大其增强电场的能力会下降。用一个简单的物理模型可以对这一现象的原理进行高度抽象的解释：假设一大一小两个金属球通过导线连接在一起，在电磁场环境中，假设正负电荷被分别极化到两个导体球上，根据高斯定理可知距离球心一定距离的电场强度与距离的平方成反比（ $E(r+d) \sim \pm Q/(r+d)^2$ ），因此半径越小的金属附近场强越强。这样可以很好地解释只有探针存在时 FWS 的仿真结果，但是若将探针样品结视为电容器，过小的探针半径不利于耦合电磁波，其散射电磁波的能力较差。以上是对 FWS 结果的讨论，其与物理模型和实验结果都符合得较好，而利用完全不同的激励方式进行仿真的 SDM 方法也呈现了类似的结果。如图3-6(b) 中蓝线所示， 20 nm 下的 SDM 结果得到了与 (a) 中类似的大量噪声尖峰。而 SDM 的远场计算结果也具有单调下降逐渐趋于稳定值的曲线形式，但是因为 p 是固定值，针尖上的电荷量也是固定的，且其位于针尖上的某一点而不是分布在整个探针上。本身点电偶极子和探针针尖就可以看成一对金属导体球，电偶极子上的场强是固定的，那么探针针尖上的场强就比电偶极子的要弱。而探针针尖与探针轴体又可以看成一对金属导体球，这样就会使得探针远端的电场强度更弱。再加上是在远场进行探测，就会观察到图中圆点蓝线的下降速度远快于方点红线的现象。

通过上述 SDM 方法和 FWS 方法的对比验证，探针轴的天线效应和针尖上

的电荷积累被证实将影响近场增强效果，并改变远场探测信号的大小。探针长度的不同可以导致检测信号有数量级上的强度差异，因而对于一些特定长度的探针会出现明显的谐振增强效果。实际上，当 L 远小于电磁波波长时（此处为 $10\ \mu\text{m}$ ），显示出场强随 L 的线性增加。而增加尖顶半径 R_{tip} 会降低信号强度，因为更大的金属结构会导致更低的电荷积累密度。图中还显示，使用 SDM 方法计算近场信号的结果不稳定。出现这种情况是因为将电偶极子放置在纳米级的尖端顶点上，随着几何形状的变化，网状轮廓也会发生变化，而电偶极子作为一个源会增强它附近的这种差异。

在仿真中增加样品，与探针构成探针样品结，改变探针样品间的距离 d 会改变其内部的近场强度。当 $d \rightarrow \infty$ ，探针与样品可以认为互不影响，从图3-7可以看到 $d > 75\ \text{nm}$ 以后电场强度就趋于稳定值。而在 d 较小时，体现出的是随距离减小场强非线性地由弱增强的过程。由右图探针逐渐远离时，电场强度分布的变化图可以看出：近场增强仍是被局域于探针附近，但是在 d 较小时相互作用的尺寸小于样品的结构尺寸，无法从电场分布图中获得信息。数学模型中，可以用电偶极子与镜像电偶极子来描述探针样品结上的电场分布，由此得到的电场强度可以用最高为 6 次幂的多项式 $((1/d)^6 \sim (1/d)^0)$ 来描述。而在模拟中更喜欢把探针与样品的结构理解成电容器，电容内的电场强度随距离的增加而按照 $1/d$ 规律减小。仿真中对比了高阻硅 Si 和不同厚度的金属金 Au 对场强的影响，无论是从电容器辐射电磁波的角度还是样品与电磁波相互作用的角度，近场信号的强弱反映的都是材料在太赫兹波段光学性质的不同。金膜厚度引起的差异在仿真中并不明显，这也很好地佐证了使用完美电导体边界条件替代真实金属金结构的合理性。而硅衬底上的近场信号较金属金会更弱，但是这一差距没有原先预想的那样大。实际的实验中，由于该类样品常使用 Lift-Off 工艺制造，金膜厚度较大，表面与下方衬底距离较大。实施近场成像时两个样品位于不同的高度上，附加的距离变化量 Δd 会给衬底上的场强造成较大的削弱。此外，实际工作在 Tapping 模式的探针会与样品相接触，如果样品是金属，则会在接触过程中将探针上的电荷传输到金属金样品上。在后续电磁热的仿真中可以看到，这样的电子输运过程会产生更强的近场信号。一增一减之下，实际上的 Au-Si 信号强度对比应该比仿真中的对比强一些。

在 SDM 方法中没有背景场激励，测试样品之间的尖端增强的差异比 FWS 结果大一些。使用 SDM 方法的近场强度模拟结果见图3-8(a)，其结果随着 d 的增加相比图3-7有较大的变化。场强随着探针样品距离 d 的增加而减少，且在距离大于 $30\ \text{nm}$ 时场强的变化很小。实验中从远场解调近场散射信号的过程类似于傅立叶变换，这一过程可以被简化为不同探针位置的散射场信号的平均化。在 Tapping 模式下，探针会遍历图3-8(a) 上各点，取一个振动幅度 A 相当于在图中取一段距离内的电场强度进行平均。这样还有一个好处，在 $A \rightarrow \infty$ 时可以得到为 0 的平均场强，这是对近场信号探测的合理推论。得到不同振动幅度 A 下的远场信号，如图3-8(b) 所示。振幅 A 的增加会拉高电场强度的水平，这一结论与

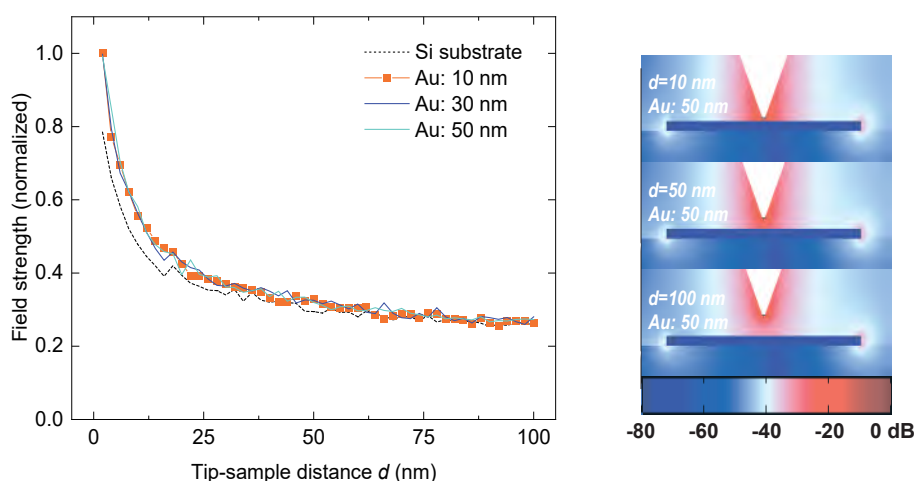


图 3-7 左图为仿真近场信号随探针样品距离 d 增加而产生的变化, 样品为硅和不同厚度的金膜. 右图为选取 10 nm, 50 nm 和 100 nm 的针尖附近电场分布, 定义场强最强处为 0 dB

Figure 3-7 The left panel shows the variation of the simulated near-field signal with increasing distance d from the probe sample, which is silicon and gold film of different thicknesses. The right figure shows the electric field distribution near the tip of the selected 10 nm, 50 nm and 100 nm, defining the strongest field intensity at 0 dB

实验结果^[88] 和使用傅立叶变换得到的仿真结果^[65] 相符。同时这也给仿真中参数的调整增加了维度: 对 SDM 方法仿真出来的结果, 若其与实验结果相差较大, 还可以通过调整平均的振幅大小, 来修改场强的水平。

对比 FWS 和 SDM 的仿真方法, 一般而言, FWS 具有更广泛的适用性, 适用于各种电磁场仿真问题的求解。然而, FWS 的缺点通常在于其计算量过大, 且求解精度依赖于网格剖分的精度。在对近场成像显微镜进行仿真建模时, 我们通常对从探针针尖与样品上散射出的电磁信号感兴趣, 这些信号相对于背景场的激励强度非常弱。虽然理论上可以对远场的电磁信号进行傅立叶变换以获得散射的高阶信号, 但由于网格重新剖分所引入的计算误差以及使用准静态近似替代实际的时域求解, 解调远场信号所得的近场散射信号难以真实地反映电磁波与探针样品结的相互作用。由于仿真近场成像的物理机制并不需要对全空间的电磁波模式进行分析, 因此, 其最终追求只是获取从探针样品结上散射的电磁波幅值及相位, 或者散射信号的时域波形。因此, 对近场显微镜进行全波仿真的建模并不是必要的。相反, 我们可以考虑直接在探针样品结内添加源电偶极子, 模拟背景电场的激励作用, 这也是 SDM 方法的基本思想。利用 SDM 仿真方法可以在忽略背景电场的情况下, 直接获取近场信号在远场的散射, 换句话说, 避免了其他因素对测量远场信号所造成的误差。SDM 仿真方法中使用的几何模型与全波仿真完全一致, 即可以复制最接近真实的探针和样品结构, 体现探针轴和样品的导电状态对近场信号的影响。然而, 由于电偶极子被抽象为一个数值固定的

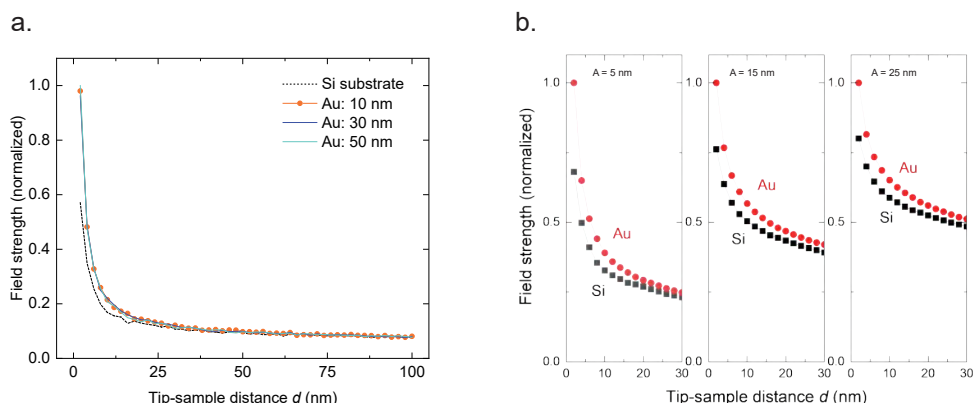


图 3-8 (a) 仿真远场信号随探针样品距离 d 的变化; (b) 探针振动幅度 A 对解调远场信号的影响

Figure 3-8 (a) Variation of the simulated far-field signal with the probe sample distance d . (b) The effect of probe vibration amplitude A on the demodulated far-field signal

点源, 且其被置于结构极小的探针样品结内, 在仿真过程中就不可避免地存在失真和计算结果的误差。从结果来看, SDM 与 FWS 的仿真方法比较吻合, 但在某些情况下, SDM 仿真中存在噪声尖峰, 说明该方法目前仍然存在缺陷。

接下来使用 COMSOL Multiphysics 来计算模拟不同大小的金属金样品产生近场信号的强弱。之前的仿真 (见图3-4) 中已经验证了不同的连接状态会对近场信号产生影响, 且原理上类似于法拉第笼效应。自然地, 金属金的面积大小不同也会影响探测到的近场信号强度。下面对不同边长的 50 nm 厚非连接状态方形金片为样品, 计算探针样品结上的电场分布。以两组各 3 个不同大小, 不同连接状态的方形金片为样品, 模拟探针扫描过程, 获得模拟的近场成像灰度图。

如图3-9(a)所示, 孤立的金属金样品在小尺寸时表现出与扫描探针相似的尖端增强效应。随着样品尺寸的增加, 样品尖端变钝, 电场的增强效果也下降。当样品的尺寸与针尖半径相当时, 该探针样品结可以被看作是针尖样品腔或纳米尺度的平板电容器。随着样品宽度的进一步增加, 更多的源偶极子辐射将与样品相互作用, 导致更大的检测场强。当样品宽度远远大于针尖样品腔尺寸时, 增加样品宽度将不再有明显的影响。对于连接到外部金属的金样品, 整个连接的样品形成一个天线结构, 类似于不同大小的金属金球体连接在一起。但是很特殊的现象在于, 连接状态的金片在靠近连接线位置的近场信号强度比较一致, 基本等于四周金膜上的近场信号强度, 但是较大的金片在远离导线的位置会具有更大的近场信号强度。而更大面积的金片本身就具有更多的自由电荷量, 作为金属片阻挡电磁波能力也就更强一些。换言之, 面积较大的金片接收源偶极子电场线的能力强, 消耗电磁波能力更强, 检测出的场强也会更强。这一现象对于孤立导体也是适用的, 不过随着样品尺寸的增加, 孤立和连接状态金属样品的场强逐渐趋于稳定, 比如样品的尺寸趋于无限大就得到无限大金属平面的近场结果。在模拟中

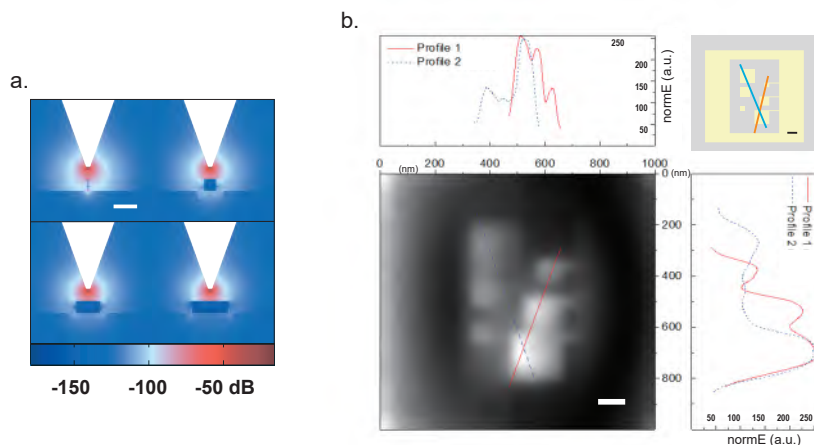


图 3-9 仿真不同大小，连接状态的金片所具有的近场信号强弱 (a) 仿真样品的宽度分别为 2 nm，50 nm，100 nm 和 150 nm，以 2 nm 样品的最强场强为 0 dB；(b) 左侧从大到小的 3 个非连接状态金片宽度为 200 nm，150 nm 和 100 nm；右侧从小到大的 3 个连接状态金片宽度为 100 nm，150 nm 和 200 nm，连接线的宽度为 10 nm；扫描步长为 50 nm；比例尺为 100 nm

Figure 3-9 Simulation of the near-field signal strength of gold patches with different sizes and connection states. (a) The width of the simulated samples are 2 nm, 50 nm, 100 nm and 150 nm, with the strongest field strength of 2 nm sample is 0 dB. (b) The widths of the three unconnected gold patches from large to small on the left side are 200 nm, 150 nm and 100 nm. The widths of the three connected gold patches from small to large on the right side are 100 nm, 150 nm and 200 nm, and the widths of the connected lines is 10 nm. The scanning step is 50 nm. The scale bar is 100 nm

扫描样品并将近场信号 E_z 转换为灰度图3-9(b)后，可以更清楚地观察到连接状态样品的场强随着样品的增大而增加。对于孤立的样品，信号强度几乎保持不变，这是因为此处孤立样品的尺寸不够大，不足以产生明显的差异。

本章的最后，再从图中获取一个有趣的结论：即使在仿真中，近场成像的分辨率也取决于探针的针尖半径。如果读者足够细心就会注意到，探针扫描的步长为 50 nm，而灰度图上最小的结构尺寸为 10 nm，也就是说用了一把较大刻度的尺子量到了较小尺寸的物体。分辨率是衡量图像质量的一个重要指标，从公式(2-9)来看，电势的一阶微分是电场强度，按照电场被局域在探针针尖附近的概念，SNOM 的分辨率可以被认为就是针尖半径。但是从图像的角度，扫描像素点的大小才是决定图片像素的唯一因素。在图3-9(b)中， d 和扫描步长都是 50 nm，这意味着构建灰度图像的分辨率不会优于 50 nm。然而，电磁场的分布不仅受局部条件影响，而是由所有边界条件共同决定。我们可以在灰度图中隐约看到 10 nm 宽的导线，这说明模拟图像的真正分辨率仍然由针尖半径所决定。

至此，已经对描述近场成像机制的电磁仿真进行了详细介绍。电磁仿真在研究探针对样品表面电场强度分布、探针对样品表面电场矢量的影响以及探针形

状和样品性质对近场信号的影响方面发挥着不可替代的作用。从仿真结果来看, 探针轴体对近场信号具有类似于天线的谐振增强效应, 而探针的针尖半径既会影响近场信号的强度, 也会最终决定成像的分辨率。近场成像的物理机制可以简单地概括为探针对电磁波具有汇聚作用, 在探针尖端会产生电场增强效应。如果应用电动力学的结论, 这种增强效应等效于点电偶极子。从仿真结果中可以发现, 样品与增强电场之间的相互作用不完全取决于样品的光学常数, 而且还与样品的结构相关。当电磁波在样品上耗散更多的能量时, 就会产生更强的近场信号。

虽然电磁仿真在相关研究中已经获得了广泛的应用, 但是引入其它物理场的方法目前仍属空白。声光电热磁力等物理量, 甚至描述物体在空间中的运动都可以看成场。对近场成像的电磁场仿真只能揭示电磁波是如何与探针样品结相互作用的, 而不能提供更多的信息。如果想要研究电磁波入射下产生的电磁热现象, 例如由发热造成的固体膨胀, 由膨胀产生的材料表面粗糙程度改变等现象, 或者研究上述现象对入射和反射电磁波的作用, 例如材料的光学性质和电导率随温度的变化, 就必须考虑多物理场的耦合。多物理场仿真需要讨论不同物理场间的耦合, 这样的关系是比较难确定的, 常常需要从实验中发现现象, 再反过来利用仿真进行相关的分析验证。在下一章中将以实验现象为基础, 使用电磁热仿真来进一步说明多物理仿真在近场成像中的应用。

3.5 本章小结

本章是本论文的核心章节, 对近场成像的仿真问题进行了详细的诠释。从介绍仿真软件 COMSOL Multiphysics 开始, 引入使用有限元仿真软件建模和求解的概念。所谓建模就是从实际的系统出发建立数学模型用以代表实体, 而求解则是在给定的边界条件初始条件下, 通过偏微分方程组求解出收敛的结果。通常来讲, 仿真追求对真实发生的物理过程进行完全地还原, 因此希望设置的所有条件都依照真实, 也就是进行全波仿真。但是, 有时候为了降低求解难度和简化计算, 可以人为地对仿真模型进行修改, 讨论在较为特殊的情况下所存在的现象。本章节完整展示了使用电磁仿真分析近场成像机制的过程, 还提出了一种使用理想的点电偶极子进行简化计算的方法。

近场成像物理机制的仿真包括对探针样品结的建模, 对探针振动机制的解释以及对远场散射信号的解调。探针样品结包括探针和样品两个部分, 但是仿真过程中还可以调节两者之间的距离, 距离的变化会给探针样品结内的电场强度分布带来非线性变化, 也就是近场信号的调制。若使用外加电磁场, 或者说背景场激励的仿真方式, 就是全波仿真 FWS, 其具有较好的适应性且被广泛用于这类问题的研究。使用全波仿真方法可以探究探针样品结上电磁场的强度及矢量分布情况。结果显示探针样品结对近场信号的影响不止来源于其材料属性, 还与其结构的形状和连接状态有关。探针的形状会决定电场增强的范围和强度, 样品的连接状态会影响电荷输运的能量耗散进而影响近场强度。而去除背景场, 将

探针针尖上的电场增强效应取代为点电偶极子的方法是本工作的一个创新之处,并将其命名为源偶极子模型方法 **SDM**。使用 **SDM** 方法可以直接模拟由探针产生的近场增强在整个空间中产生的电场分布,尤其是在进行远场探测时可以直接得到近场信号散射到远场的情况,这就省去了对仿真的结果进行解调的步骤。实际的近场成像过程需要收集远场散射信号,通过傅立叶变换获得不同阶的近场信号。但是使用全波仿真难以模拟探针振动的同时入射电磁波的过程,一个好的简化是将探针固定在不同的探针样品距离上,用准静态的方法求解出频域稳态的结果,以替代连续的时域迭代求解。若是对这样的仿真结果进行远场信息的提取,仍要进行傅立叶变换。此处为了尽可能减小仿真中的计算误差,仿真了近场成像中的扫描过程,得到近场的灰度图像。为了实现这一目的,也要求仿真速度足够快,占用内存足够小,为此进行了相当程度的模型分析与计算简化。

仿真中主要研究连接状态和非连接状态金片样品的近场信号差异。连接状态金片由于可以与四周导体交换电荷,其屏蔽电磁波,或者说反射电磁波的能力较强,因此具有相比孤立的金片更强的近场信号。这一现象还体现在不同大小的金片具有的近场信号强度不同,越大的金片面积越能引起电荷的响应,消耗的电磁波能量也越大。使用电场矢量图可以很好地对这一现象进行解释,当探针靠近金属样品表面,两者表面向外的电场矢量就会相互抵消,待测样品表面的电场被抵消越多电荷输运损耗的电磁波能量也会越大,造成近场信号的增强。这一仿真结果有力地佐证了在亚波长尺度上,样品的近场成像结果不完全由材料的属性决定,还会受包括结构尺寸,连接状态等因素的影响。

第4章 近场成像实验

本章节介绍太赫兹近场成像实验的结果及理论分析，但在进行实验前，需要对样品进行特殊的加工处理。由于加工方式的特殊性，实验中出现了新的现象。为了解释这些新现象，我们引入了多物理场仿真。因此，本章实际上是对多领域知识进行高度综合和总结，是一章高度凝练的内容。

4.1 太赫兹波段成像的特点

太赫兹成像技术虽然重要，而且应用前景巨大，但也存在许多实际使用时的的问题。如前文所述，金属和水对 THz 波几乎是不透明的，而大部分的绝缘体则几乎不会对 THz 波产生损耗。虽然金属和水这两种材料对 THz 都是不透明的，其物理机制和响应却有所不同。

对于金属来说，THz 波的响应主要体现在反射和透射上。由于金属具有良好的电导率，当太赫兹波射入金属时，会被金属表面的自由电子吸收，产生电流，并被反射。在 THz 波频率较高时，金属的电导率也相应较高，因此反射率也相应较高。透射方面，金属对 THz 波的透射率相对较低，主要是因为 THz 波的能量会被自由电子吸收，导致能量损失较大。对于水来说，THz 波的响应主要体现在吸收上。由于水分子具有不同的振动模式，当 THz 波射入水中时，会被水分子的振动吸收，产生一定的能量损失。此外，水分子中氢原子和氧原子之间的共价键也会对 THz 波的吸收产生影响，因此不同类型的水分子对 THz 波的响应也有所不同。对于透射式成像来说，金属和水的结果很类似，但是对于反射式成像就会有截然不同效果。

空气中 THz 波的衰减主要是由于空气分子对电磁波的吸收和散射。首先，THz 波在空气中的部分能量会被空气中的分子吸收。特别是在水分子的共振频率附近，吸收会变得更强烈。此外，其他分子的旋转、振动、自由电子和分子间相互作用也会导致能量的吸收。其次，THz 波在空气中也会散射，这是由于空气分子的尺寸与其波长相当，会导致波的偏转和扩散。这种散射会使太赫兹波的强度逐渐降低，直到波能量被完全散射或吸收。在大气环境下，THz 波衰减很快，但是对烟雾和灰尘的穿透能力强，因此适合短距离的厘米级别成像。另外，THz 波在太空中几乎没有衰减，同时因为其空间分辨率和时间分辨率高的特性，特别适合应用在空间技术上^[89]。

与材料相互作用机制尚待研究，且成像给出的信息很少。日常生活中常见的材料，如纸张、衣物、塑料和木材等都对 THz 波是透明的，从成像结果上难以对不同类型材料进行区分。通常，光波在介质中传播所造成的传输延迟和损耗可以用介电常数来描述。对于红外波段，Drude 模型是有效且被反复验证的一种估计材料介电常数函数的方法。通常在太赫兹波段也会使用 Drude 模型或者修

正的 Drude-Lorentz 模型。但是, 最新的研究表明在太赫兹波段, 材料的性质与理论结果有高达 3 个数量级的差距^[85]。这些现象还只是针对大块的材料, 忽略了由材料结构所导致的散射衍射等效应。这一方面揭示了当下太赫兹实验技术仍不成熟, 无法从探测中获取足够的信息; 另一方面也显示了对于 THz 波与材料相互作用的理论模型处于亟待突破的瓶颈阶段。

上述仅是对太赫兹成像普遍存在的问题进行描述, 太赫兹成像分辨率还受限于 THz 波的波长限制。由于太赫兹波段的波长在微米到毫米量级, 其最大分辨率往往受限于其衍射极限。但是, THz 波与微小结构的相互作用是一个具有重大科学意义的问题, 研究者往往对亚波长尺度的物体与电磁波的相互作用感兴趣。当问题转到亚波长分辨率的成像, 尤其是近场成像时, 又存在新的问题。近场成像利用扫描探针显微镜的探针将电磁波耦合到探针针尖位置, 产生局域增强, 并在近场与样品产生相互作用。对基于 STM 的近场显微镜, 提取出局域的信号值只需要读取相应位置的太赫兹电流信号即可, 因此分辨率较高; 而基于 AFM 的近场显微镜则依赖于远场的探测, 例如使用锁相放大器 (Lock-in) 或者时域光谱仪 (Time-Domain Spectroscopy, TDS)。除此之外, 待测样品为金属时, 还存在金属与外部电磁场的相互作用, 尤其是电荷的堆积。电荷在导体不同曲率的位置会有不同的堆积量, 产生不一样的电场分布, 而该现象是难以用理论计算确定的。

因此, 采用实验方法研究近场成像与样品结构的关系具有重要的现实意义和应用价值。一方面, 实验可以用来验证理论模型和仿真的准确性; 另一方面, 实验中发现的新现象有助于我们更好地理解近场成像的机制, 并帮助我们在未来的设计中避免不利效应的影响。

进行太赫兹近场成像实验时可能会遇到以下问题:

- (1) 太赫兹信号的弱度: 太赫兹信号的强度通常比较弱, 需要采用高灵敏度的探测器和放大器等设备来检测信号, 这可能会增加实验的难度和成本;
- (2) 成像分辨率问题: 太赫兹近场成像技术的分辨率受到许多因素的影响, 例如探测器的灵敏度、探测器和样品之间的距离、样品的性质等等。这些因素可能会影响实验结果的准确性和可靠性;
- (3) 样品的制备和处理问题: 样品的制备和处理可能会对实验结果产生影响, 例如样品的表面粗糙度、尺寸、形状、组成等等。这些因素可能会导致实验结果的不确定性和可重复性问题;
- (4) 环境噪声的影响: 太赫兹信号容易受到环境噪声的影响, 例如电磁干扰、温度变化等等。为了获得准确的实验结果, 需要采取措施来减少环境噪声的影响;
- (5) 实验设备的限制: 太赫兹近场成像技术需要一些特殊的实验设备, 例如太赫兹源、太赫兹探测器、扫描器等等。这些设备可能不容易获得, 或者需要高成本的投资。

本章节的实验仪器为德国 Neaspec 公司制造的太赫兹时域光学扫描近场显

显微镜 (THz TDS s-SNOM)，其是一种高分辨率的近场光学显微镜，可以在太赫兹波段（约 0.1 – 10 THz）下进行显微观察。它结合了两种技术：太赫兹时域光学扫描 THz-TDS 和近场光学显微镜 SNOM，可以实现高分辨率的表面成像和化学分析。THz-TDS 是一种基于太赫兹脉冲的技术，可以测量样品的电磁波响应，从而获取样品的光学性质和结构信息。SNOM 是一种可以将光束聚焦到非常小的尺寸（纳米级别）的近场光学显微镜技术，可以实现高分辨率的成像和光谱分析。德国 Neaspec 公司的 THz TDS s-SNOM 可以实现非常高的空间分辨率（约 10 纳米），并且可以在各种样品（如半导体、聚合物、生物材料等）上进行非接触式的高分辨率成像和分析。

由于大部分的材料在太赫兹波段都没有相关的材料性质，选用半导体和金属金样品进行太赫兹近场成像会更合适。FIB 和 Lift-Off 工艺都是制备金膜结构样品的常见方法。FIB 加工相比 Lift-Off 工艺具有以下优点：

(1) 高精度加工：FIB 可以实现非常高的加工精度，可以在纳米尺度上进行加工和雕刻。相比之下，Lift-Off 工艺通常只能制备微米尺度的结构；

(2) 直接加工：FIB 是一种直接加工方法，可以在样品表面进行加工，因此可以制备非常复杂的结构。相比之下，Lift-Off 工艺需要通过先制备一个掩模，然后在掩模上进行金膜沉积和蚀刻来制备结构，所以比较受掩模制备质量的限制；

(3) 非接触加工：FIB 加工是一种非接触的加工方法，不会对样品造成热或机械应力，因此适用于制备比较脆弱的材料或器件。相比之下，Lift-Off 工艺需要通过化学或物理方法将金膜从掩模上剥离，可能会对样品造成损伤；

(4) 适用于小样品：FIB 加工可以对非常小的样品进行加工，甚至可以在单个细胞或微粒子上进行加工。相比之下，Lift-Off 工艺通常需要大面积的掩模，不适用于小样品制备；

(5) 单步加工：FIB 加工可以一次性完成加工、雕刻和探测等多种功能，因此可以大大提高样品制备和分析的效率。相比之下，Lift-Off 工艺需要多个步骤，制备周期较长。

总之，FIB 加工比 Lift-Off 工艺更加灵活和高效，适用于制备非常小或非常复杂的金膜结构样品。近场成像实验中的样品选用 FIB 技术进行加工。

4.2 样品制备

制备微纳尺度的样品通常需要使用微纳加工技术。微纳加工指在超净间内，利用微米乃至纳米级别的加工手段，制造微纳器件的技术，其包括以下一些常见的方法：

(1) 光刻技术：利用光刻胶掩膜和蚀刻工艺，通过控制紫外线曝光和显影等步骤，将微米甚至亚微米的图形和结构制备在基片上；

(2) 电子束光刻技术 (EBL)：利用电子束曝光技术，对光刻胶进行局部曝光，形成微米级别的掩膜图形，再进行显影和蚀刻等步骤，制备微纳结构；

(3) 聚焦离子束刻蚀技术：利用离子束对材料表面进行加工，通过控制离子

束的能量和束流密度等参数,可以实现高精度的微纳加工,可制备出纳米级别的图形和结构;

(4) 热压印技术:将金属或者聚合物材料加热到一定温度,在高压下使其塑性变形,可制备出微纳米级别的图形和结构;

(5) 激光刻蚀技术:利用激光对材料表面进行刻蚀,可制备出微纳米级别的结构和孔洞等.

以上这些技术常常需要配合其他微纳加工工艺(如薄膜沉积、离子注入、化学蚀刻等)以及制备工艺的优化,才能制备出高精度的微纳尺度样品。

一个表面平坦,厚度均匀,边界清晰的样品,既利于扫描探针显微镜的扫描探测,也有利于排除干扰和理解物理现象的本质。太赫兹近场成像的优势在于,能够对亚波长甚至纳米尺度的结构进行探测。为此,需要准备的样品应该要远小于波长,且有一定的结构。目前,太赫兹近场显微镜探测生物样品的研究不多,原因在于干燥的生物样品对 THz 波几乎透明,而含水的活体样本难以在扫描探针显微镜下保持形状。因此,使用微纳工艺加工的介质-金属样品,是本实验研究的首选对象。目前最纯净的固体材料是电子级的硅晶圆,基于该材料,工程师们发展出了现代的集成电路。除了硅,还有其它类型的半导体材料,例如锗,碳化硅,和砷化镓等。但是硅材料的纯度最高,工艺最成熟,是最理想的样品衬底。在硅衬底上制造微纳金属金结构的最成熟方法是 Lift-Off 工艺。

4.2.1 Lift-Off 工艺

所谓 Lift-Off 工艺是一种用于微纳加工中制造金属/半导体结构的技术。它通常用于制造电路、传感器和 MEMS 等微型电子设备。Lift-Off 工艺的基本原理是在光刻过程中将光刻胶(通常是正胶)覆盖在待加工的衬底上,然后将其曝光和显影,形成一个光刻图案。接着,通过蒸镀或溅射等方法,在衬底上沉积一层金属(例如铝、铜、钛等)或半导体材料(例如硅、锗等)。然后,在化学溶液中溶解掉光刻胶,将不需要的金属层或半导体材料层剥离掉,形成所需的结构。Lift-Off 工艺的主要优点是可以制造复杂的金属结构,如微型线路和微型电子器件,同时能够避免电子束曝光过程中可能出现的伪像。但是, Lift-Off 工艺也有一些缺点。其中一个是在溶解光刻胶时可能会损坏沉积的金属层或半导体材料层。此外, Lift-Off 工艺需要准确控制沉积的金属/半导体材料的厚度和精度,否则可能会影响结构的质量和性能。总的来说, Lift-Off 工艺是一种非常有用的微纳加工技术。Lift-Off 工艺的基本步骤包括:

(1) 基板准备:首先需要选择合适的基板材料,并将其进行清洗和处理,以保证表面的平整度和清洁度。这通常包括使用酸碱溶液进行清洗,去除基板表面的杂质和污垢;

(2) 底层沉积:接下来,需要在基板上沉积一层底层材料,例如金属或半导体材料,作为后续加工的基础。这可以通过物理气相沉积或化学气相沉积等方法实现;

(3) 光刻：然后，在底层材料上涂覆一层光刻胶，并使用光刻技术进行图案的制作。光刻技术使用光刻机将图案转移到光刻胶层上，从而形成所需的结构；

(4) 金属沉积：接下来，使用物理气相沉积或化学气相沉积等方法，在光刻胶上沉积一层金属薄膜。这一层金属薄膜将在后续的加工中被用作模板；

(5) Lift-Off：Lift-Off 是 Lift-Off 工艺的核心步骤，也是该工艺得名的原因。在 Lift-Off 步骤中，使用溶剂溶解光刻胶，从而将其从基板表面剥离，同时带走覆盖在其上的金属薄膜。这样，基板表面就形成了所需的微结构和纳米结构；

(6) 清洗：最后，需要对基板进行清洗，以去除残留的化学物质和污垢，并保证器件表面的平整度和清洁度。这通常包括使用酸碱溶液进行清洗和烘干。

该工艺的主要优点是能够在制造过程中形成清晰的图案，同时也可以使得器件的结构更加复杂。结合电子束光刻技术，能够实现 10 nm 以下特征尺寸的样品加工。然而，Lift-Off 工艺也存在一些缺点，包括：

(1) 复杂性高：Lift-Off 工艺需要使用大量的化学品和昂贵的设备，因此成本较高。同时，该工艺需要进行多次处理步骤，容易出现制造过程中的误差和缺陷；

(2) 应用范围受限：Lift-Off 工艺只能在表面光滑的基板上使用，因为在不平整的表面上会出现图案不清晰的问题。此外，该工艺的应用范围也受限于图案的尺寸和形状；

(3) 腐蚀问题：Lift-Off 工艺使用的化学品可能会对基板和其他材料产生腐蚀作用，导致器件的质量下降。此外，这些化学品可能对环境 and 人体健康造成危害；

(4) 成本高：Lift-Off 工艺的成本相对较高，因为它需要多次处理步骤和昂贵的设备。这使得该工艺在某些应用领域中不是最优选择；

(5) 低生产率：Lift-Off 工艺需要多次处理步骤，导致制造周期较长，生产率较低。此外，由于处理过程中的误差和缺陷，一些器件可能需要被废弃，从而进一步降低了生产率。

在半导体工艺中，“recipe”是指进行某一个加工步骤的“菜谱”，也就是制造工艺的详细步骤和参数的设定值。这些步骤和参数的设定值是根据半导体器件的设计和要求来确定的，它们决定了半导体器件的制造过程和最终的性能。在半导体工艺中，制造工艺流程包括多个步骤，如沉积、刻蚀、清洗、光刻等。每个步骤都有特定的条件和参数，例如气体流量、温度、时间、压力等。这些条件和参数的设定值需要精确控制和监测，以确保半导体器件符合设计要求和质量标准。除了制造工艺流程的步骤和参数的设定值之外，“recipe”还可以包括材料的选择和处理方法，例如半导体晶片的材料和处理方法。此外，“recipe”还可以包括检测和测试步骤，以确保半导体器件符合设计要求和质量标准。总之，“recipe”在半导体工艺中是非常重要的，因为它们决定了半导体器件的性能和质量。制造过程中任何一个参数的微小变化都可能会影响器件的最终性能，因此需要精确控制和监测每个步骤和参数的设定值。每一个超净间想要得到新工艺的“recipe”

都需要经过多次实验，使用不同的参数进行测试，并用高精度的测量手段对加工结果进行检测，耗费大量心血才能获得一份值得写在无尘纸上的加工流程。越是先进的工艺，调试参数的成本和难度就越大。可以说一份好的“recipe”是每一个实验室最为宝贵的财富。

4.2.2 FIB 加工

FIB 是一种常用的微纳加工技术，其全称为“Focused Ion Beam”，中文翻译为聚焦离子束。使用 FIB 可以实现对样品表面的高精度切割、打孔、雕刻等加工，通常用于微纳电子学、纳米材料研究和集成电路制造等领域。

下面是使用 FIB 加工样品的工艺过程：

- (1) 样品准备：将需要加工的样品放置在 FIB 加工台上，并使用真空泵抽取空气，使加工区域处于真空状态；
- (2) 样品定位：使用 FIB 显微镜观察样品表面，并使用 FIB 控制软件将样品表面上需要加工的区域定位出来；
- (3) 加工参数设置：根据需要加工的样品材料和加工目的，设置合适的加工参数，包括离子束束流密度、加速电压、扫描速度等；
- (4) 加工操作：将设置好的加工参数输入 FIB 控制软件，并开始加工操作。在加工过程中，离子束会在样品表面上切割、打孔或雕刻，形成需要的结构；
- (5) 检查和调整：加工完成后，使用 FIB 显微镜观察样品表面，检查加工结果是否符合要求。如果需要，可以进行调整和修整；
- (6) 清洗和处理：将加工完成的样品从加工台取出，并进行清洗和处理，以去除加工过程中可能残留的污染物或碎屑。

需要注意的是，FIB 加工是一种非常精密的技术，需要高度专业化的操作技能和设备维护能力。加工过程中需要保持稳定的加工参数和环境条件，以获得高质量的加工结果。

由于本实验对样品的结构尺寸要求很高，要求使用的样品达到探针针尖的尺寸，也就是百纳米大小。如果通过光刻进行制造，需要使用 DUV 光刻机（波长 193 nm，多次曝光可达 7 nm 工艺）或者电子束光刻技术。作为科学研究，使用电子束光刻技术是较好的选择，其成本相对 DUV 光刻也低很多。即使是使用电子束光刻，由于该工艺使用的光刻胶、匀胶速度和真空条件等参数最终影响的是纳米级别的光刻图样，其调试参数的过程也会非常耗时。

由于 Lift-Off 工艺是在衬底基板上溅射一些金属，无法通过简单的步骤直接获得平坦且完整的微纳结构。对此，不妨转换思路，先在衬底材料上蒸镀上金属，再利用微纳级别的 FIB 刻蚀技术对金膜进行加工，直接得到所需的金属微纳结构。下面分为 SEM 蒸金和聚焦离子束刻蚀两个部分进行介绍。

4.3 微纳样品加工过程

选用4寸<111>晶向的高阻硅作为衬底，电阻率高于 $20\text{ k}\Omega\cdot\text{cm}$ ，厚度约为 $512\text{ }\mu\text{m}$ 。将硅片裂片成为 1.5 cm^2 的小块，这样的大小适合放入原子力显微镜的载物台。聚焦离子束扫描电子显微镜（Focused Ion Beam Scanning Electron Microscopy, FIB-SEM）是实现样品加工的核心装置。首先在硅衬底的表面通过蒸金镀上一层 10 nm 厚的金膜。为了检验金膜的质量，可以直接使用FIB-SEM进行检测，其步骤包括：覆盖铂金属，离子束刻蚀出观察窗口，使用原位电子显微镜观察刻蚀的界面。接着选取薄膜质量较佳处，使用FIB-SEM的图形发生器中设定好的图形进行样品加工，设定离子束流量为 $1\text{--}7\text{ pA}$ ，只需几秒钟即可完成金膜结构的加工。

由于加工的样品特征尺寸小于 400 nm ，传统的光学显微镜难以观察到这样尺寸的结构。因此，在实际的样品附近，需要寻找一处洁净的区域，制造数十微米大小的标记点。在放入近场成像装置前，可先用光学显微镜确认标记点的位置，便于后续寻找样品位置。

4.3.1 SEM 蒸金

SEM 蒸金技术（Scanning Electron Microscopy Sputter Coating）是一种表面处理技术，它使用电子束在样品表面产生微小的氧化物和碳化物颗粒，以形成一层均匀的金属薄膜覆盖在样品表面上。这种技术通常用于电子显微镜（Scanning Electron Microscope, SEM）分析中，以增强样品的导电性，减少样品表面充电现象，并提高样品在电子束下的分辨率和图像质量。SEM 蒸金技术也可用于其他表面分析和加工领域。SEM 蒸金技术的具体实施方法是将金属靶材放置在真空室中的蒸镀装置中，并利用高能粒子轰击金属靶材表面，使其形成薄层金属气体蒸发，并沉积在样品表面上。这个过程被称为“物理气相沉积”。这种技术可以用于多种金属材料，如铬、铝、钨、铜、银和金等。金属薄膜的厚度可以通过调整蒸镀时间和气压来控制。

经过SEM 蒸金的高阻硅衬底还需要进行检测，以保证进行下一步微纳加工时没有影响成品的缺陷。对薄膜工艺的检测会使用椭偏仪或电镜，椭偏仪适合测量透光的样品，如硅氧化物；而电镜的适用性更广，反射式电镜尤其适合检测金属等对电子反射能力强的材料。这里直接使用FIB-SEM内部自带的电子显微镜进行样品观察。如图4-1所示，金属金的岛状结构清晰均匀，连接状态良好，说明蒸镀效果很好，金属金已经在衬底表面成膜。

除了对金属成膜的均匀性及平坦度有要求，还希望金膜尽可能地薄，以减小探针在金/硅界面上探测的高度差。为了测量金膜的厚度，需要进行破坏性的测量，从金膜的横截面上测量膜厚。FIB-SEM在测量膜厚上有一套标准化的流程。首先需要在待测区域上用FIB自带的金属源给薄膜表面涂上一层金属铂，起到防止切割截面时对界面造成破坏或者薄膜材料堆积在截面上方的作用。接着用聚焦离子束扫描金属铂，使其平坦后，再对样品表面进行轰击，刻蚀出穿透薄膜

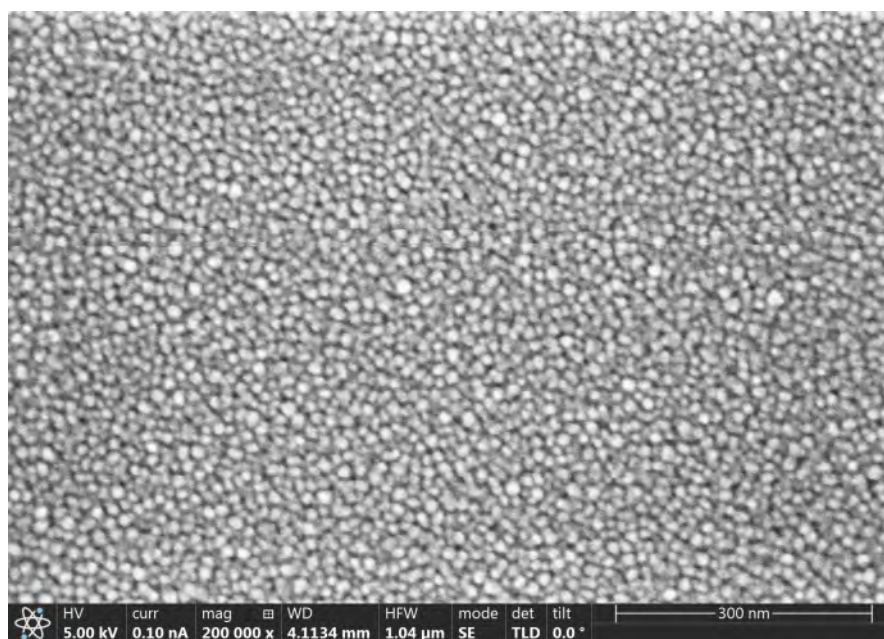


图 4-1 电镜下金膜上金颗粒的连接状态展示

Figure 4-1 The connection state of gold particles on gold film under electron microscope

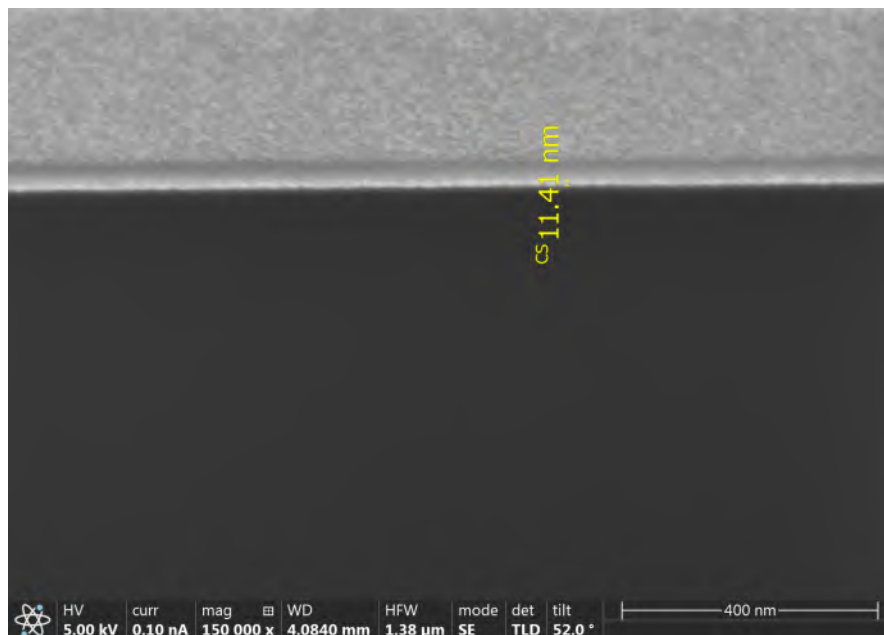


图 4-2 使用 FIB 在金膜上涂上金属铂，并对该区域刻蚀出探测窗口，用电镜从侧面测量金膜厚度

Figure 4-2 The gold film was coated with metallic platinum using FIB and the detection window was etched on the area, and the thickness of the gold film was measured from the side using an electron microscope

和衬底的窗口。最后对窗口靠近薄膜的位置进行清理,利用电镜从侧面测量,根据倾角计算薄膜的实际厚度。如图4-2所示,电镜图片中从上到下将截面分成了3层:较为明亮的金属铂膜,非常明亮的金属金膜和纯黑的高阻硅衬底。当然,在层与层之间会存在渐变的过渡区域,使得界面变得不那么清晰。此外,在金膜表面涂布铂膜时,上层金属会对下层造成挤压,使其变薄。考虑到上述情况,并结合工程师的经验,确定金膜为 11.41 nm,这是一个相当薄的薄膜,无论是从绝对值的角度还是相对探针的振幅 A 来说。

4.3.2 聚焦离子束刻蚀

太赫兹近场显微镜在低掺杂半导体和金属探测领域颇有成效。在硅上掺入杂质的方法主要是离子注入,通过将纯净的带电离子均匀地注入硅衬底,实现掺杂的目的。而在硅上制造微纳尺度的金属结构,常常使用成熟的 Lift-Off 工艺,在硅衬底上先制造掩膜图案,然后沉积金属,在去除掩膜的同时在硅衬底上留下金属条带。一个完整的硅基半导体工艺流程包括:光刻,刻蚀,镀膜和掺杂等工艺步骤。无论是离子注入,还是 Lift-Off 工艺,都需要在加工在由光阻或其它掩膜层定义出的图形位置。而定义掩膜窗口图形就需要高分辨率的光刻。受限于实验室光刻条件,只能制造微米尺度的光刻图形,无法曝光纳米级分辨率的光刻图形。考虑到原子力显微镜的定制探针具有 50 nm 的针尖半径,其分辨率甚至优于 50 nm,因此准备纳米尺寸结构的样品是有必要的。而聚焦离子束刻蚀恰好是既包含离子注入加工,也能够实现纳米尺度刻蚀的装置。

聚焦离子束扫描电子显微镜是使用离子束和电子束对微纳尺度样品进行直接加工的仪器。其工作原理是将离子从离子枪中加速,并轰击靶材,精准地削去离子束下方的材料,直接构建出想要的微纳结构。另有从电子枪中发射的电子束也对准了待加工的样品区域,通过散射回探测器的电子可以进行原位的扫描电子显微镜成像。因此, FIB-SEM 相比电子束直写和极紫外光刻,具有直接加工下方样品并进行原位观察的能力。本实验中使用美国 THERMO FISHER 公司的 Helios G4 UX 进行镓离子的聚焦离子束加工,其工艺线宽优于 100 nm,而电子显微镜的分辨率优于 1.2 nm,能够满足制造样品的需求。

将蒸镀好金膜的硅片放入 Helios G4 UX,在图形界面编辑好所需要刻蚀的图样,设定镓离子束的工作电压为 30 kV,短暂地刻蚀后即可得到所需的微纳样品。以纳米尺度样品为例,如图4-3所示可一次性加工 3 组金片,分别为与四周导体连接的方金片、非连接状态的方金片和非连接状态的圆金片。每组金片的大小从 100 nm 到 300 nm,接近该仪器的极限加工精度。

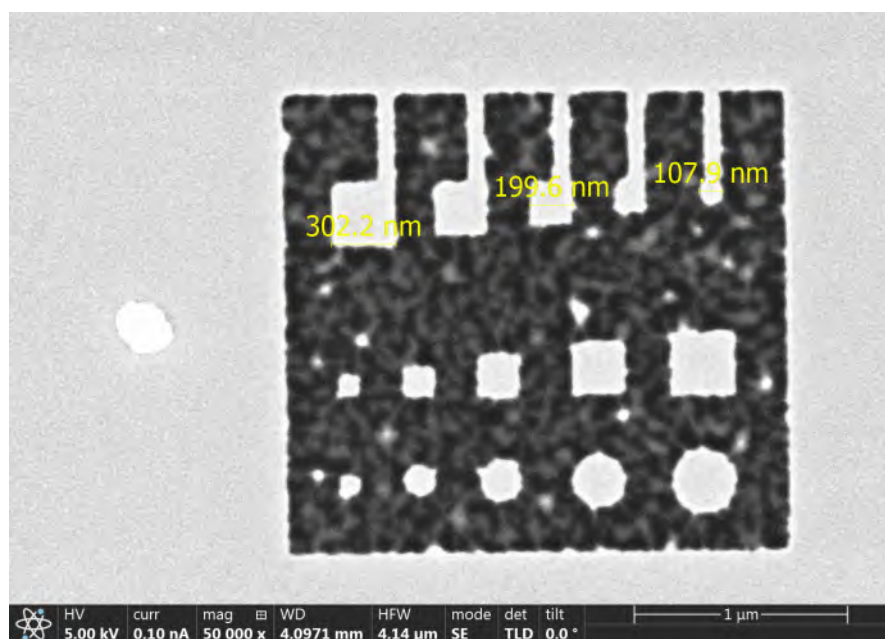


图 4-3 电镜下观察金片样品 (Sample-2) 的 FIB 加工质量

Figure 4-3 FIB processing quality of gold sheet sample (Sample-2) observed under electron microscope

4.4 太赫兹近场成像实验

4.4.1 实验装置

本实验使用德国 Neaspec 公司的商用 THz TDS s-SNOM 系统^[90]。AFM 工作在 Tapping 模式下，针尖周期性地接触样品表面。此外，为了寻找微米尺度的标记，借助了高倍率的光学显微镜。

4.4.2 实验步骤

商用 TDS s-SNOM 近场显微镜 (Neaspec, GmbH) 装置的主体是一台 AFM，使用的光源工作在 0.2 – 2.5 THz。为了最大化近场成像的效果，需要使用轴长较长的定制金属探针：其轴长达 70 μm ，尖端半径为 40 nm。AFM 针尖扫描的区域为 (256 \times 256) 像素，针尖频率为 46.09 kHz，探针振幅为 175 nm。

实验开始，将样品置于载物台，关闭遮光罩。将 AFM 设置在 Tapping 模式，扫描出工作频率为 46.09 kHz，并设置振幅为 175 nm，此时近场成像的信号几乎不会再随着振幅的增加而改变。由于制造的结构是在金膜上刻蚀出窗口和图形，且图形最小线宽为百纳米，使用光学显微镜观察较为困难，在寻找到标记点（大小在数十微米）后，仍需要使用 AFM 大范围扫描，最终确认样品位置。开启对感兴趣区域的扫描，AFM 的探针将在设定的范围内均匀地扫描 256 \times 256 个像素。最后获得的图像，既有 AFM 扫描的样品表面形貌和相位，也有近场光学信号的强度和相位。

商用的 TDS s-SNOM 集成了信号处理的工具，会将每个像素点上的信号保留成频谱，并将不同阶次的高阶信号分别生成灰度图片。获得的 AFM 和近场成

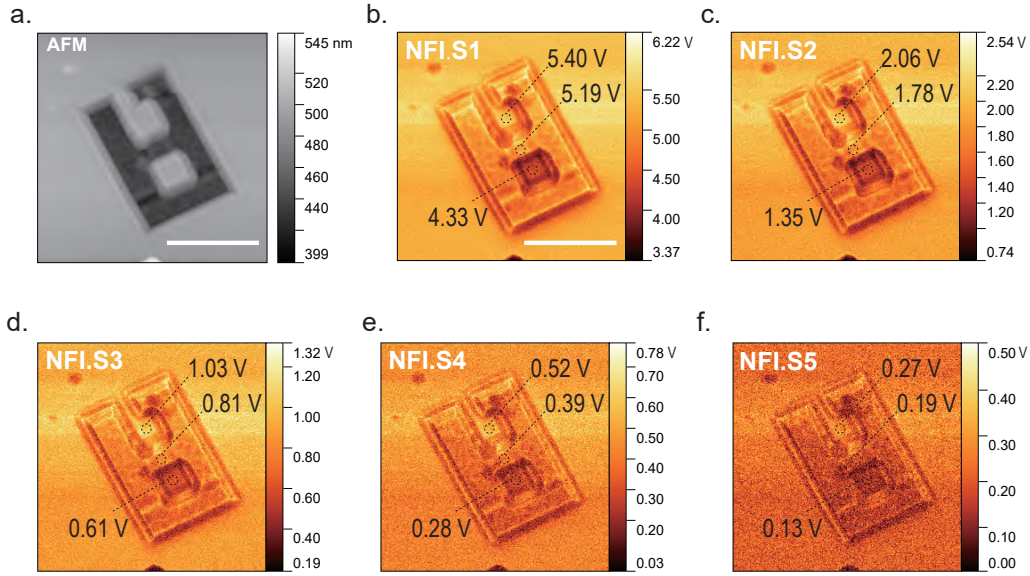


图 4-4 (a) 原子力显微镜扫描获得的样品表面形貌；(b-f) 为一阶到五阶近场光学信号；比例尺为 4 μm

Figure 4-4 (a) Surface morphology of the sample obtained by AFM scanning. (b-f) First-order to fifth-order near-field optical signals. Scale bars are 4 μm

像图片使用开源的扫描探针平台图像分析软件 Gwyddion 进行分析。

4.4.3 实验结果

在一个简化的描述中，探针针尖具有汇聚电场的作用，等效于一个电偶极子。这样一个电偶极子会伴随着探针的敲击做近似的简谐振动。由于电偶极子产生的电场是局域的，其影响的范围只局限在探针半径范围。通过检测散射出的远场信号，解调出高阶近场光学信号 S_1 , S_2 , S_3 , S_4 , S_5 。

首先对尺寸约为 1 μm 的金片样品 (Sample-1) 进行测试。如图4-4(a) 所示，FIB 刻蚀金膜和高阻硅的深度在 100 nm 以上。制造的金膜厚度为 10 nm，但是原子力显微镜扫描得到的表面形貌显示，刻蚀的深度在 100 nm，方形金片的边长约为 1.4 μm 。在刻蚀窗口的边缘可以看到高亮的区域，这是镓离子刻蚀的过程中多余的材料堆积所造成的，其突出处的高度约为 10 nm。这样的表面形貌对于微米尺度的结构来说是非常平整的，但是在 THz TDS s-SNOM 的光学探测中却会有显著的效应。

如图4-4(b-f) 所示，通过解调从样品上散射的 THz 波，得到其频谱，并选择出带有近场信息的高阶信号。由于仪器的性能卓越，可以检测从一阶到五阶的近场信号。在样品上选取 3 个位置，分别为连接状态金片，中间衬底和非连接状态金片。由于扫描的过程中仪器并不是一直处在稳定工作的状态，实际实验中不可避免地将引入没有数值的像素点。因此，选取 3 个点周围 0.39 $\mu\text{m} \times 0.39 \mu\text{m}$ 方

形区域的平均数值作为该点数值，以减少成像过程中偶然误差的影响。

观察图4-4中 5 幅近场光学信号的规律，可以发现连接状态金片与非连接状态金片的电场强度之和恰好等于硅衬底上电场强度的两倍，这也与章节3的仿真结果相一致（见图3-4的剖线对比）。由于近场显微镜获得的高阶信号只与背景信号和探针样品结有关，而随着阶数的增加，背景信号的影响将会减弱。因此，3 个点上近场信号的关系反映的是样品结构和材料所引起的光学信号强度的变化。图4-4(b-f) 的 FIB 刻蚀窗口具有非常特殊的现象，一是窗口边缘和衬底上的高亮条带，这可以归因于样品表面形貌凹凸起伏的影响；二是刻蚀出的硅衬底窗口具有异常高的近场信号值，该现象未在之前的研究中被发现过。一个合理的猜想是镓离子注入到高阻硅衬底上，改变其光学特性。相比于纳米尺度的金膜，可能经过大量离子注入的硅会产生更多的近场信号。由于一阶和二阶信号背景场的影响太大，而四阶和五阶信号过于微弱，选择三阶信号 NFI.S3 进行研究是较为合适的。

为了解释该现象，加工了更为精细的 100–300 nm 大小的金片样品 (Sample-2)，其刻蚀深度只有 10 nm。如图4-5(a) 所示，包含三种类型的金片：连接状态方形金片，非连接状态方形金片和非连接状态圆形金片。其尺寸大小为 300 nm, 250 nm, 200 nm, 150 nm 和 100 nm。

在三阶信号 NFI.S3（图4-5(b)）上标注出每个金片的近场信号强度。可以发现连接状态方形金片具有一致的近场信号值，约为 1.194 V。而非连接状态的方形和圆形金片，其近场信号的强度与金片的大小相关。而硅衬底上异常的增强效应在该小尺寸样品上更加明显，刻蚀窗口的近场信号值甚至超过了 3 V，远强于周围的金膜信号值。一方面，这是由于 FIB 刻蚀窗口较小时， Ga^+ 离子注入的量和刻蚀深度都更大，对硅片造成的晶格结构破坏更强，产生的光学性质改变更大；另一方面，金属的结构也会影响衬底上近场信号的强弱，特别是连接状态的金片周围会聚集更强的电场，造成与衬底更加强烈的相互作用。如图4-5(c) 所示，使用仿真计算同样结构的金片样品上电场强度的分布，以步长 100 nm 扫描刻蚀窗口区域上每个像素点的电场强度模 normE 。可以看到，连接状态的金片具有远高于非连接状态金片的电场强度。而靠近连接状态金片的衬底也具有比非连接状态金片周围衬底更强的电场分布。由于目前为止的仿真只考虑电磁场分布对近场信号的影响，没有考虑电磁热和温度变化所带来的材料性质改变，仅就可能的原因在此做简要的说明。一个简单的解释是，与探针针尖尺寸大小相近的金片会随着入射电磁波迅速地改变自由电子密度，产生天线效应。此时连接状态的金片会与周围大片的金片交换电荷，这一过程会吸收大量的电磁波能量，并贡献于 TDS s-SNOM 探测的频谱幅值。此外，太赫兹波可以加热探针，随后改变衬底的载流子密度^[9]。而高度掺杂的衬底是存在损耗的，无论是电流还是电磁场的入射，都会在其内部产生大量的热量。基于上述事实，不妨假设该过程如下：(1) 刻蚀窗口下方硅衬底具有高的损耗角正切；(2) 入射电磁波导致的电场强度分布在连接状态的导体周围更强；(3) 连接状态导体周围衬底发热现象更严重，吸

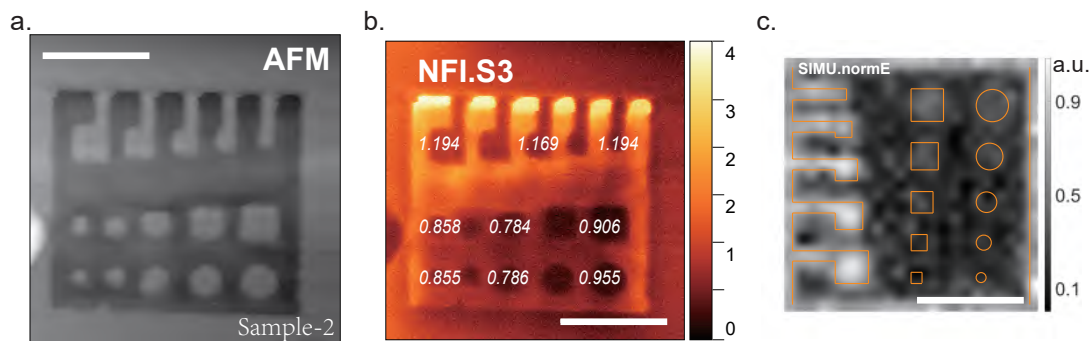


图 4-5 (a) 原子力显微镜扫描获得的样品表面形貌；(b) 三阶近场信号 [单位：V]；(c) 模拟扫描过程得到的近场信号，扫描步长 100 nm；比例尺为 1 μm

Figure 4-5 (a) Surface morphology of the sample obtained by AFM scanning. (b) Third-order near-field signal [unit: V]. (c) Near-field signal obtained by simulating the scanning process with a scanning step of 100 nm. The scale bar is 1 μm

收大量 THz 波能量；(4) 电子和热量倾向于从连接状态的导体上流出，这也带走了大量的电磁能量，导致近场信号的异常增强。

4.5 使用电磁热仿真解释实验现象

为了进一步理解掺杂了镓离子的高阻硅衬底上发生的物理现象，我们进行了结合电磁热的多物理场仿真。电磁热仿真是基于电磁场仿真的，原则上可以使用结合 SDM 方法来进行多物理场仿真。但是，考虑到介质材料和外部金属都对产热有所贡献，设置一个在空间中均匀的背景电场激励会是更好的选择。因此，本章节中所使用的电磁仿真将是全波仿真，以样品体内及表面的电场强度作为产生电磁热的能量来源。

4.5.1 电磁热仿真概述

电磁热是日常生活中常见的现象，例如保险丝的熔断，电磁炉和微波炉的加热等。其按照相互作用材料的不同，可以分为在导体中的焦耳热现象和在介质中的电磁损耗。导体在外加电磁场的作用下，驱使电流中的电子与材料中的原子分子碰撞，将损失的电子动能转换为焦耳热的形式；而介电材料与电磁波的相互作用则更加复杂，例如 THz 波在含水的空气中传播，电磁能量被吸收也会转化为热量；一个比较特殊的例子是电磁炉的加热，其利用的是电磁感应的原理，将电磁波转化为导体内部的电流，进而产生焦耳热。

热力学第一定律描述了能量守恒的基本规律，一个封闭系统中内能和动能的变化等于对外吸收的热量减去对外做功 $\Delta(U + E) = Q - W$ 。在通过外界电磁场做功，使物体达到热平衡时，物体的内能不再变化，此时有 $\Delta W = \Delta Q$ 。考虑热量从系统中流入的速率 $dQ/dt = hA(T_1 - T_2)$ ，其中 h 为传热系数， A 为系统交换热量的面积， T_1 为系统外的温度， T_2 为系统内的温度。

4.5.2 耦合电磁热的多物理场仿真模型

为了计算 Au/Si-空气样品中的电磁加热效应，有必要考虑真实的材料特性和结构。几何建模时，选择了包括 FIB 蚀刻窗口的 $3^3 \mu\text{m}^3$ 区域，其中上半部分是空气，下半部分是一块独立的硅衬底，构建探针针尖位置形状。FIB 蚀刻的硅区域被定义为一个有损的电介质区域，具有复数形式的介电常数 ($11.7 - 10 * j$)。保留连接状态金片和非连接状态金片，其尺寸为 $300 \times 300 \text{ nm}^2$ 。这里的模拟并不包含整个探针，所以计算量很小，仅需约 20 秒即可完成一次频域稳态计算。定义的材料属性列于表4-1，初始温度和外界空气温度设为 293.15 K，定义硅衬底向 6 个外界面进行空气传热，传热系数为 $h = 5 \text{ W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$ 。

表 4-1 材料属性

Table 4-1 Material Properties

材料	恒压热容 C_p ($\text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$)	密度 ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$)	热导率 ($\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$)
硅	700	2329	130
金	129	19300	317
钨	130	19000	200

COMSOL Multiphysics 进行多物理场的求解需要定义多个物理场，并建立物理场间的耦合关系。电磁热是常见的电磁与传热问题的耦合，因此有成熟的物理接口可以调用。由于电磁波传输的速度远大于传热速度，一般先求解稳态情况下的电场分布，再计算由于电场强度分布所引起的材料发热及热传输。设置背景电场强度 6500 V/m，电磁波频率 2 THz，进行电磁场的频域稳态计算，再进行固体传热的稳态计算。

4.5.3 仿真结果

经过 1 s 后，该仿真域内固体的温度已经接近热平衡状态。实际上尽管固体传热速度较电磁波传输速度较慢，但在这样小的结构上也会很快就达到热平衡状态。因此，需要考虑样品上的温度梯度分布，而不是温度的具体数值。温度的负梯度方向实际上就是热流的方向，根据热流的运动可以有效地判断发热位置及其贡献。如图4-6所示，连接状态的金片周围温度梯度的数值更大，表明其热量的产生速率高，而非连接状态的金片几乎不影响周围衬底的发热。

考虑探针扫描时，衬底内部电场强度的响应及温度分布。如图4-7所示，此处扫描的步长设置为 40 nm，优于探针半径，具有足够的成像分辨率。选取的测量位置在高阻硅内部，距离上表面 1 nm 位置处。其结果显示，电场只有在非金片覆盖区域才有数值，而金属在 THz 波的照射下仍然可以认为是一个理想电导体。由于仿真区域过小，稳态情况下，探针扫描位置的变化对于衬底的影响很小。可以看到在硅衬底内部，温度的变化是很小的。

因此，可以认为稳态情况下，连接状态的金片周围具有更大的发热量 $-\Delta Q$ 。由于能量守恒，可以知道外界入射的 THz 波对连接状态金片周围的硅衬底做功

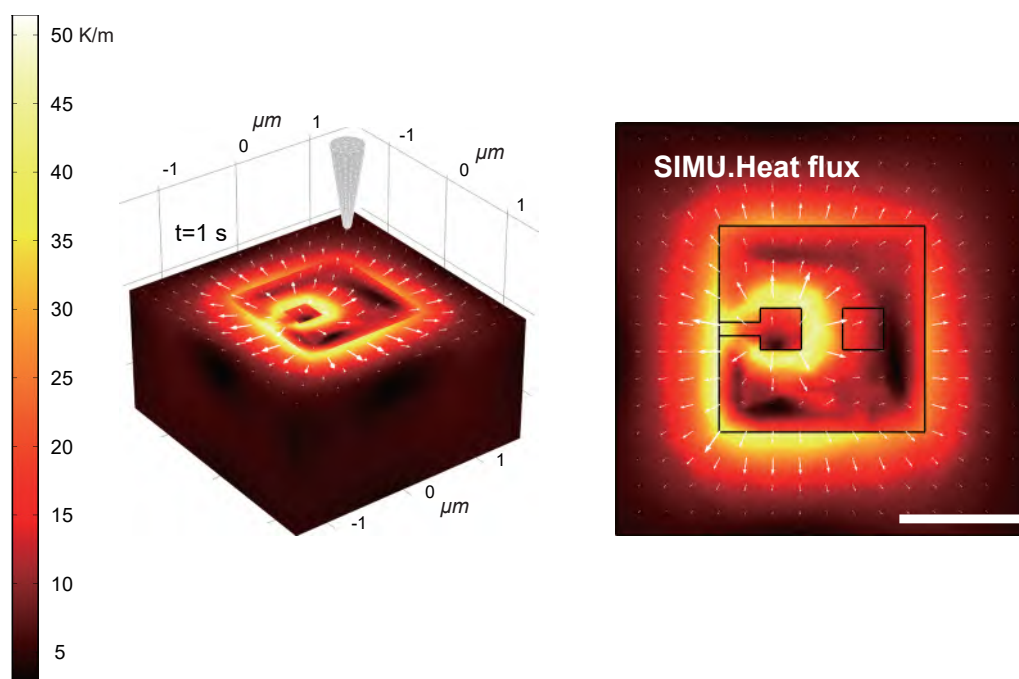


图 4-6 使用电磁热仿真，模拟经过 1 秒钟 THz 波照射后样品表面温度梯度分布以及热流量方向；比例尺为 $1\ \mu\text{m}$

Figure 4-6 Use electromagnetic heating simulation to simulate the temperature gradient distribution on the sample surface after 1 second of THz wave irradiation and the heat flow direction. The scale is $1\ \mu\text{m}$

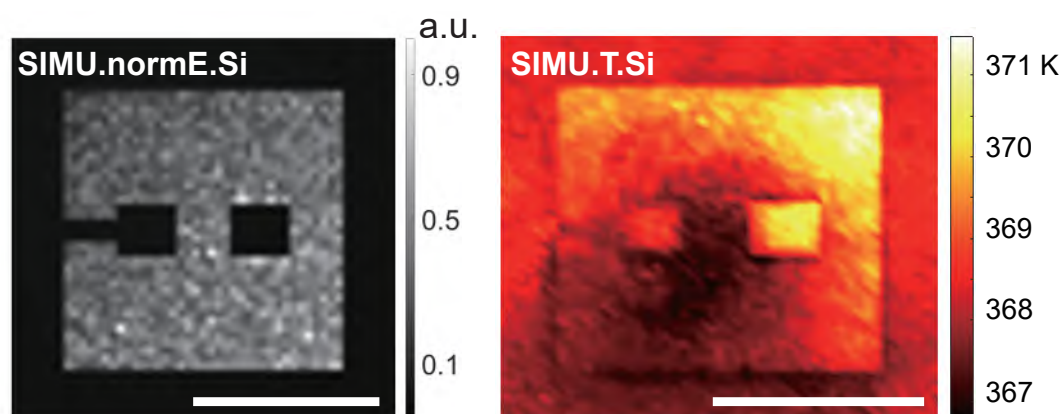


图 4-7 扫描步长 $40\ \text{nm}$ ，仿真计算硅衬底内部电场强度分布（左）及稳态时温度分布（右）；比例尺为 $1\ \mu\text{m}$

Figure 4-7 Scan step $40\ \text{nm}$, simulation of the electric field intensity distribution inside the silicon substrate (left) and the temperature distribution at steady state (right). The scale bar is $1\ \mu\text{m}$

$-\Delta W$ 更多。由于近场成像是利用 THz 波红移所造成的频谱变化进行成像的, 吸收更多 THz 波能量的位置, 反而会具有更大的近场信号。这也就解释了掺杂的硅衬底上为何会出现异常的增强, 甚至其数值还高于金片上的近场信号强度的现象。但是这一现象仍然十分反常, 因为硅衬底上的导电能力并不应该超过金膜, 可是近场信号强度却更高。虽然前面的介绍中已经阐述过了比如连接状态和样品形状都会对近场成像的结果造成影响, 但是具体的原因必然是深刻的, 需要开展进一步探索研究的。比如一个纳米级别的电流和温度探测器, 一个考虑了镓离子对 Thz 波吸收的物理模型等都会对揭示这一物理现象有参考意义。

4.6 本章小结

本章叙述了如何进行一个近场成像实验, 包括样品制备, 实验, 数据分析以及仿真验证。本实验选用 FIB-SEM 对高阻硅上的金膜进行样品的加工和原位显微探测。加工的样品 Sample-1 和 Sample-2 分别具有微米和百纳米的特征尺寸, 样品结构清晰, 无明显缺陷。在近场成像实验中, 对微米尺度样品上金属部分的近场成像结果可以很好地与仿真结果进行对照。从实验中可以发现连接状态金片确实比非连接状态金片的近场信号强度要高, 但是高阻硅衬底上的近场信号也出现了异常的增强效应。通过纳米尺度的样品可以进一步发现这些衬底上的近场信号会在靠近连接状态金片的附近变得更强。这是之前的研究中所没能发现的现象, 目前也缺乏相应的实验方法来对其进行检测和验证。因此, 在本文的结尾使用结合了电磁热的多物理场仿真对该实验现象进行分析。考虑到 FIB 对衬底的镓离子注入会给衬底引入耗散, 由于其数值未知, 将其影响直接设为一定大小的介电常数虚部。

多物理场仿真结果显示, 在连接状态金片附近的发热量比其它位置要高很多, 热量从导体快速地扩散到整个衬底上。从能量转换的角度来看, 连接状态的金片附近电磁波转化为热量的效应远比其它位置要强, 而电磁波能量的损耗意味着非线性效应带来的频率移动。因为衬底会损耗电磁波能量产热, 所以衬底上的近场信号变强; 而又因为靠近导体的产热量更大, 连接状态金片附近的衬底具有比别处更强的近场信号。从实验结果上看, 衬底上的近场信号甚至可以强于金膜上的近场信号大小, 这仍然是让人困惑的一个结果, 为了揭示近场成像在这些样品上发生的物理机制, 还需要从实验和仿真上对其做进一步的探索。

4.7 补充资料

下面是实验和仿真中使用的仪器设备, 软件及补充资料的网页链接, 对于重复实验及仿真会有所帮助。

Neaspec 官网: <https://www.neaspec.com/>

赛默飞官网: <https://www.thermofisher.cn/>

Gwyddion 软件官网: <http://gwyddion.net/>

热流扩散的动态图:http://home.ustc.edu.cn/~clwu/img/SupportingInformation_THzNano.gif

第5章 研究总结

本文的核心是对近场成像系统进行建模和仿真。乍看之下近场成像无非是使用探针汇聚电场，将其与下方的样品相互作用，产生远场辐射，并对其进行检测。但是从底层的物理机制来看，其是超高频率的太赫兹信号被加载在缓慢移动的探针上，并在探针样品结的非线性作用下产生高阶信号调制。从时间上讲，是超快的物理过程发生在一个缓慢变化的系统里，其性质由变化慢的物理量所决定；从几何上讲，探针样品结的尺寸远小于电磁波波长，求解精度要控制在最小特征尺寸上。这里所面临的困难直接用仿真的术语来说就是仿真所需要的自由度和磁盘占用过大，无法在现有的计算条件下满足求解需求。因此若要对近场成像进行直接仿真就必须要在时间和空间上对模型进行极大简化。简化的一方面是将时域求解的问题转化为准静态的问题，通过使用不同高度探针样品结的频域仿真结果，规避时域上采样定理和迭代误差积累的限制。另一方面是对空间几何的建模进行简化，去除不重要的仿真区域，挖空探针轴并以边界条件进行替代，以此来减少计算量和收敛误差。在此基础上实施全波仿真，可以得到与实验结果吻合得很好的全波仿真结果，并对连接状态和非连接状态金片上产生的近场信号进行对比分析。

在电磁仿真的基础上，结合电动力学和数学分析得到了源偶极子模型 **SDM**。该模型利用点电偶极子替代背景电场对探针的激励，直接与探针样品结作用，产生近场散射信号。**SDM** 方法的优点在于其可以直接在远场进行检测，而不必借助傅立叶变换对远场信号进行解调。但是其缺点也比较明显，由于点电偶极子的强度固定，探针针尖位置的网格剖分会极大地影响其与下方样品相互作用的强度，因此仿真计算的误差较大，会在仿真中看到较多的噪声尖峰。研究表明，**SDM** 方法与全波仿真的结果较为一致，并且都能够反映金属样品结构对近场信号的影响。在近场成像领域，全波仿真已经被广泛使用，并且被视为一种参考标准。因此，可以将 **SDM** 方法与全波仿真进行比较，并将全波仿真作为解释后续实验现象的基础。**SDM** 方法的有效性间接地通过全波仿真进行评估，可以将其视为全波仿真在远场探测时的一个延伸。换句话说，**SDM** 方法是为了弥补全波仿真在某些方面的不足而开发出来的一种方法。

最后，进行样品加工并对样品进行太赫兹近场成像实验。样品制备使用 **FIB** 加工金膜样品以获取微纳金片结构，并用商业的近场成像装置 **THz TDS s-SNOM** 对微纳结构样品进行近场成像实验。实验中对金片的近场成像结果与仿真一致，即样品的大小和连接状态都会影响近场成像的结果。但是观察到衬底上存在异常增强的近场信号，甚至在硅衬底上的近场信号强度还会高于金膜上的测量值。使用多物理场仿真的方法，结合电磁热仿真对这一现象进行分析，其结果验证了连接状态导体附近产生热量更高的假设，证明了多物理场的效果也会对近场成像造成影响。总结起来，近场增强的过程不单只是电磁场在针尖上产生的增强效

应，还与样品的大小、连接状态甚至和衬底上发生的多物理场的效应有关。

最后展望未来，希望能有研究者进行更进一步的探索来揭示近场成像的物理机制。尽管本文力图从各个角度对近场成像的原理进行解释，但是仍未达到对其有完整认知的程度。从仿真上，希望将来的研究中能够真正实施时域仿真，对电子在纳米级别结构中的输运过程进行解释。对于实验，目前迫切地需要能够对各类物理量进行纳米尺度探测的技术手段，比如对纳米结构上电流、温度和掺杂浓度的检测，以此来辅证近场成像的结果。只有从两个维度都对近场成像有所突破，这一领域才能有更进一步的发展。

本文总结了作者在硕士阶段对近场成像所做的工作，包括文献阅读，提出源偶极子模型 **SDM** 并将其用于电磁仿真，以及在聚焦离子束加工的金膜样品上观察到反常的近场信号增强现象等。在文献阅读中，作者主要关注太赫兹近场显微镜技术研究的不足，并探讨了太赫兹和红外波段近场光学显微镜在半导体器件、金属结构、生物样品等方面的应用。作者提出了源偶极子模型 **SDM** 并将其用于电磁仿真中，该方法能够实现更快速的计算，并且能够直接从远场得到近场相互作用的散射信息。最后，作者介绍了使用聚焦离子束加工的金膜样品观察到的反常增强现象，该现象需要通过更精确的实验来验证。本文的工作为太赫兹近场显微镜技术的研究提供了有益的参考，并在电磁仿真和实验方面做出了实质性的贡献。

参考文献

- [1] 赵康. 太赫兹技术的研究和展望 [J]. 西南民族大学学报 (自然科学版), 2011(140-143).
- [2] 魏华. 太赫兹探测技术发展及展望 [J]. 红外技术, 2010(231-234).
- [3] 朱彬, 陈彦, 邓科, 等. 太赫兹科学技术及其应用 [J]. 成都大学学报 (自然科学版), 2008 (304-307).
- [4] 王宏强, 邓彬, 秦玉亮. 太赫兹雷达技术 [J]. 雷达学报, 2018(1-21).
- [5] Dekorsy T, Yakovlev V A, Seidel W, et al. Infrared-phonon-polariton resonance of the non-linear susceptibility in GaAs [J]. Physical Review Letters, 2003, 90(5): 055508.
- [6] Hu B B, Nuss M C. Imaging with terahertz waves [J]. Optics Letters, 1995, 20(16): 1716-1718.
- [7] 顾立, 谭智勇, 曹俊诚. 太赫兹通信技术研究进展 [J]. 物理, 2013(695-707).
- [8] Kulesa C. Terahertz spectroscopy for astronomy: From comets to cosmology [J]. IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology, 2011, 1(1): 232-240.
- [9] Mittleman D, Gupta M, Neelamani R, et al. Recent advances in terahertz imaging [J]. Applied Physics B, 1999, 68: 1085-1094.
- [10] Castro-Camus E, Koch M, Mittleman D M. Recent advances in terahertz imaging: 1999 to 2021 [J]. Applied Physics B, 2022, 128(1): 12.
- [11] Betzig E, Patterson G H, Sougrat R, et al. Imaging intracellular fluorescent proteins at nanometer resolution [J]. Science, 2006, 313(5793): 1642-1645.
- [12] Binnig G, Rohrer H, Gerber C, et al. Surface studies by scanning tunneling microscopy [J]. Physical Review Letters, 1982, 49(1): 57.
- [13] Binnig G, Rohrer H. Scanning tunneling microscopy—from birth to adolescence [J]. Reviews of Modern Physics, 1987, 59(3): 615.
- [14] Binnig G, Quate C F, Gerber C. Atomic force microscope [J]. Physical Review Letters, 1986, 56(9): 930.
- [15] Bian K, Gerber C, Heinrich A J, et al. Scanning probe microscopy [J]. Nature Reviews Methods Primers, 2021, 1(1): 36.
- [16] Wiesendanger R. Scanning probe microscopy and spectroscopy: methods and applications [M]. Cambridge university press, 1994.
- [17] Garg M, Martin-Jimenez A, Pizarra M, et al. Real-space subfemtosecond imaging of quantum electronic coherences in molecules [J]. Nature Photonics, 2022, 16(3): 196-202.
- [18] Hartmann U. Magnetic force microscopy [J]. Annual Review of Materials Science, 1999, 29 (1): 53-87.
- [19] Leatherman G, Durantini E, Gust D, et al. Carotene as a molecular wire: Conducting atomic force microscopy [J]. The Journal of Physical Chemistry B, 1999, 103(20): 4006-4010.
- [20] Beaulieu L, Hatchard T, Bonakdarpour A, et al. Reaction of Li with alloy thin films studied by in situ AFM [J]. Journal of the Electrochemical Society, 2003, 150(11): A1457.
- [21] Mastel S, Govyadinov A A, Maissen C, et al. Understanding the image contrast of material boundaries in IR nanoscopy reaching 5 nm spatial resolution [J]. ACS Photonics, 2018, 5(8): 3372-3378.
- [22] Duan J, Li Y, Zhou Y, et al. Near-field optics on flatland: from noble metals to van der Waals materials [J]. Advances in Physics: X, 2019, 4(1): 1593051.

- [23] Van Der Valk N, Planken P. Electro-optic detection of subwavelength terahertz spot sizes in the near field of a metal tip [J]. *Applied Physics Letters*, 2002, 81(9): 1558-1560.
- [24] Von Ribbeck H G, Brehm M, Van der Weide D, et al. Spectroscopic thz near-field microscope [J]. *Optics Express*, 2008, 16(5): 3430-3438.
- [25] 代广斌. 太赫兹近场扫描显微镜研制 [D]. 吉林大学, 2019.
- [26] Botkin D, Glass J, Chemla D, et al. Advances in ultrafast scanning tunneling microscopy [J]. *Applied Physics Letters*, 1996, 69(9): 1321-1323.
- [27] Groeneveld R, Van Kempen H. The capacitive origin of the picosecond electrical transients detected by a photoconductively gated scanning tunneling microscope [J]. *Applied Physics Letters*, 1996, 69(15): 2294-2296.
- [28] Nunes Jr G, Freeman M. Picosecond resolution in scanning tunneling microscopy [J]. *Science*, 1993, 262(5136): 1029-1032.
- [29] Steeves G, Elezzabi A, Freeman M. Nanometer-scale imaging with an ultrafast scanning tunneling microscope [J]. *Applied Physics Letters*, 1998, 72(4): 504-506.
- [30] 孙丽欢. 时间分辨扫描隧道显微镜技术及半导体表面超快动力学研究 [D]. 中国科学院大学 (中国科学院物理研究所), 2018.
- [31] Cocker T L, Jelic V, Gupta M, et al. An ultrafast terahertz scanning tunnelling microscope [J]. *Nature Photonics*, 2013, 7(8): 620-625.
- [32] 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.
- [33] Hillenbrand R. Infrared and terahertz nanoscopy for dielectric imaging and near-field mapping of antennas and transmission-lines [C]//2011 International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves. IEEE, 2011: 1-3.
- [34] Cocker T L, Huber M A, Eisele M, et al. Terahertz imaging with ultimate resolution [C]//2016 Progress in Electromagnetic Research Symposium (PIERS). IEEE, 2016: 3339-3339.
- [35] 岳东东, 游冠军. 散射式太赫兹扫描近场光学显微技术研究 [J]. *光学仪器*, 2020(64-69).
- [36] 刘逍, 吴佩颖, 屈明墨, 等. 半导体载流子分布的太赫兹近场显微表征 [J]. *光学仪器*, 2020 (28-34).
- [37] Walther M, Fischer B M, Ortner A, et al. Chemical sensing and imaging with pulsed terahertz radiation [J]. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 2010, 397: 1009-1017.
- [38] Say Z, Kaya M, Kaderoğlu C, et al. Unraveling molecular fingerprints of catalytic sulfur poisoning at the nanometer scale with near-field infrared spectroscopy [J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2022, 144(19): 8848-8860.
- [39] Pettinger B, Ren B, Picardi G, et al. Tip-enhanced raman spectroscopy (ters) of malachite green isothiocyanate at au (111): bleaching behavior under the influence of high electromagnetic fields [J]. *Journal of Raman Spectroscopy: An International Journal for Original Work in all Aspects of Raman Spectroscopy, Including Higher Order Processes, and also Brillouin and Rayleigh Scattering*, 2005, 36(6-7): 541-550.
- [40] Huth F, Govyadinov A, Amarie S, et al. Nano-ftir absorption spectroscopy of molecular fingerprints at 20 nm spatial resolution [J]. *Nano Letters*, 2012, 12(8): 3973-3978.
- [41] Gong A, Qiu Y, Chen X, et al. Biomedical applications of terahertz technology [J]. *Applied Spectroscopy Reviews*, 2020, 55(5): 418-438.
- [42] Yang Z, Tang D, Hu J, et al. Near-field nanoscopic terahertz imaging of single proteins [J]. *Small*, 2021, 17(3): 2005814.

- [43] Wehmeier L, Nörenberg T, de Oliveira T V, et al. Phonon-induced near-field resonances in multiferroic bifeo₃ thin films at infrared and thz wavelengths [J]. *Applied Physics Letters*, 2020, 116(7): 071103.
- [44] Xiao-Xia Y, Xiang-Tian K, Qing D. Optical properties of graphene plasmons and their potential applications [J/OL]. *ACTA PHYSICA SINICA*, 2015, 64(10). DOI: [10.7498/aps.64.106801](https://doi.org/10.7498/aps.64.106801).
- [45] Yao Z, Xu S, Hu D, et al. Nanoimaging and nanospectroscopy of polaritons with time resolved s-snom [J]. *Advanced Optical Materials*, 2020, 8(5): 1901042.
- [46] Zheng Z, Wang W, Ma T, et al. Chemically-doped graphene with improved surface plasmon characteristics: an optical near-field study [J]. *Nanoscale*, 2016, 8(37): 16621-16630.
- [47] Alonso-González P, Nikitin A Y, Gao Y, et al. Acoustic terahertz graphene plasmons revealed by photocurrent nanoscopy [J]. *Nature Nanotechnology*, 2017, 12(1): 31-35.
- [48] Li P, Dolado I, Alfaro-Mozaz F, et al. Optical nanoimaging of hyperbolic surface polaritons at the edges of van der waals materials [J]. *Nano Letters*, 2017, 17(1): 228-235.
- [49] Fei Z, Scott M, Gosztola D, et al. Nano-optical imaging of ws e₂ waveguide modes revealing light-exciton interactions [J]. *Physical Review B*, 2016, 94(8): 081402.
- [50] Low T, Chaves A, Caldwell J D, et al. Polaritons in layered two-dimensional materials [J]. *Nature materials*, 2017, 16(2): 182-194.
- [51] Cao Y, Fatemi V, Demir A, et al. Correlated insulator behaviour at half-filling in magic-angle graphene superlattices [J]. *Nature*, 2018, 556(7699): 80-84.
- [52] Xu Y, Liu S, Rhodes D A, et al. Correlated insulating states at fractional fillings of moiré superlattices [J]. *Nature*, 2020, 587(7833): 214-218.
- [53] Siday T, Natrella M, Wu J, et al. Resonant scattering probes for terahertz near-field microscopy [C]//Quantum Sensing and Nano Electronics and Photonics XV: volume 10540. SPIE, 2018: 283-289.
- [54] Chen X, Liu X, Guo X, et al. Thz near-field imaging of extreme subwavelength metal structures [J]. *ACS Photonics*, 2020, 7(3): 687-694.
- [55] Mastel S, Lundeborg M B, Alonso-González P, et al. Terahertz nanofocusing with cantilevered terahertz-resonant antenna tips [J]. *Nano Letters*, 2017, 17(11): 6526-6533.
- [56] Zhong-Bo Y, Hua-Bin W, Xiao-Yu P, et al. Recent progress in scanning probe microscope based super-resolution near-field fingerprint microscopy [J]. *JOURNAL OF INFRARED AND MILLIMETER WAVES*, 2016, 35(1): 87-98.
- [57] Nakahashi Y, Ohmiya Y, Yamamoto K, et al. Millimeter-wave scattering microscopy using a knife blade as a scanning probe [C]//Asia-Pacific Microwave Conference 2011. IEEE, 2011: 1578-1581.
- [58] Pizzuto A, Chen X, Hu H, et al. Anomalous contrast in broadband thz near-field imaging of gold microstructures [J]. *Optics Express*, 2021, 29(10): 15190-15198.
- [59] Kurihara T, Yamaguchi K, Watanabe H, et al. Dielectric probe for scattering-type terahertz scanning near-field optical microscopy [J]. *Applied Physics Letters*, 2013, 103(15): 151105.
- [60] Inampudi S, Cheng J, Mosallaei H. Graphene-based near-field optical microscopy: high-resolution imaging using reconfigurable gratings [J]. *Applied Optics*, 2017, 56(11): 3132-3141.
- [61] Zhang Z, Hu M, Zhang X, et al. Direct observation of tip-gap interactions in thz scattering-type scanning near-field optical microscopy [J]. *Applied Physics Express*, 2021, 14(10): 102004.

- [62] Cvitkovic A, Ocelic N, Hillenbrand R. Analytical model for quantitative prediction of material contrasts in scattering-type near-field optical microscopy [J]. *Optics Express*, 2007, 15(14): 8550-8565.
- [63] Govyadinov A A, Amenabar I, Huth F, et al. Quantitative measurement of local infrared absorption and dielectric function with tip-enhanced near-field microscopy [J]. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, 2013, 4(9): 1526-1531.
- [64] McLeod A S, Kelly P, Goldflam M, et al. Model for quantitative tip-enhanced spectroscopy and the extraction of nanoscale-resolved optical constants [J]. *Physical Review B*, 2014, 90(8): 085136.
- [65] Mooshammer F, Huber M A, Sandner F, et al. Quantifying nanoscale electromagnetic fields in near-field microscopy by fourier demodulation analysis [J]. *Acs Photonics*, 2020, 7(2): 344-351.
- [66] McArdle P, Lahneman D, Biswas A, et al. Near-field infrared nanospectroscopy of surface phonon-polariton resonances [J]. *Physical Review Research*, 2020, 2(2): 023272.
- [67] Chen X, Lo C F B, Zheng W, et al. Rigorous numerical modeling of scattering-type scanning near-field optical microscopy and spectroscopy [J]. *Applied Physics Letters*, 2017, 111(22): 223110.
- [68] Okamoto T, Suzuki D, Ito Y, et al. Analyzing nanoscale optical and thermal properties in nanoporous graphene by near-field infrared microscopy [C]//2017 42nd International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz). *IEEE*, 2017: 1-2.
- [69] Chen C, Chen S, Lobo R P, et al. Terahertz nanoimaging and nanospectroscopy of chalcogenide phase-change materials [J]. *ACS Photonics*, 2020, 7(12): 3499-3506.
- [70] Li P, Hu G, Dolado I, et al. Collective near-field coupling and nonlocal phenomena in infrared-phononic metasurfaces for nano-light canalization [J]. *Nature Communications*, 2020, 11(1): 3663.
- [71] Dai Z, Hu G, Si G, et al. Edge-oriented and steerable hyperbolic polaritons in anisotropic van der waals nanocavities [J]. *Nature Communications*, 2020, 11(1): 6086.
- [72] Zhang J, Han J, Peng G, et al. Light-induced irreversible structural phase transition in trilayer graphene [J]. *Light: Science & Applications*, 2020, 9(1): 174.
- [73] Dai G, Yang Z, Geng G, et al. Signal detection techniques for scattering-type scanning near-field optical microscopy [J]. *Applied Spectroscopy Reviews*, 2018, 53(10): 806-835.
- [74] Geng G, Dai G, Li D, et al. Imaging brain tissue slices with terahertz near-field microscopy [J]. *Biotechnology Progress*, 2019, 35(2): e2741.
- [75] Li Z, Yan S, Zang Z, et al. Single cell imaging with near-field terahertz scanning microscopy [J]. *Cell Proliferation*, 2020, 53(4): e12788.
- [76] Qiu F, You G, Tan Z, et al. A terahertz near-field nanoscopy revealing edge fringes with a fast and highly sensitive quantum-well photodetector [J]. *Iscience*, 2022, 25(7): 104637.
- [77] Wagner C, Green M F, Maiworm M, et al. Quantitative imaging of electric surface potentials with single-atom sensitivity [J]. *Nature materials*, 2019, 18(8): 853-859.
- [78] Gutzler R, Garg M, Ast C R, et al. Light-matter interaction at atomic scales [J]. *Nature Reviews Physics*, 2021, 3(6): 441-453.
- [79] Neuman T, Esteban R, Casanova D, et al. Coupling of molecular emitters and plasmonic cavities beyond the point-dipole approximation [J]. *Nano Letters*, 2018, 18(4): 2358-2364.
- [80] Wang L, Xia Y, Ho W. Atomic-scale quantum sensing based on the ultrafast coherence of an h₂ molecule in an stm cavity [J]. *Science*, 2022, 376(6591): 401-405.

-
- [81] Knoll B, Keilmann F. Enhanced dielectric contrast in scattering-type scanning near-field optical microscopy [J]. Optics communications, 2000, 182(4-6): 321-328.
- [82] Ordal M A, Long L, Bell R, et al. Optical properties of the metals al, co, cu, au, fe, pb, ni, pd, pt, ag, ti, and w in the infrared and far infrared [J]. Applied Optics, 1983, 22(7): 1099-1119.
- [83] Jeon T I, Kim K J, Kang C, et al. Optical and electrical properties of preferentially anisotropic single-walled carbon-nanotube films in terahertz region [J]. Journal of Applied Physics, 2004, 95(10): 5736-5740.
- [84] Benavides-Cruz M, Calderón-Ramón C, Gomez-Aguilar J, et al. Numerical simulation of metallic nanostructures interacting with electromagnetic fields using the lorentz–drude model and fdtd method [J]. International Journal of Modern Physics C, 2016, 27(04): 1650043.
- [85] Pandey S, Gupta B, Chanana A, et al. Non-drude like behaviour of metals in the terahertz spectral range [J]. Advances in Physics: X, 2016, 1(2): 176-193.
- [86] Ju B F, Chen Y L, Ge Y. The art of electrochemical etching for preparing tungsten probes with controllable tip profile and characteristic parameters [J]. Review of Scientific Instruments, 2011, 82(1): 013707.
- [87] Ageev O, Kolomiytsev A S, Bykov A, et al. Fabrication of advanced probes for atomic force microscopy using focused ion beam [J]. Microelectronics Reliability, 2015, 55(9-10): 2131-2134.
- [88] Eisele M, Cocker T, Huber M, et al. Ultrafast single-nanowire multi-terahertz spectroscopy with sub-cycle temporal resolution [J]. arXiv preprint arXiv:1604.04304, 2016.
- [89] 雷红文, 王虎, 杨旭, 等. 太赫兹技术空间应用进展分析与展望 [J]. 空间电子技术, 2017 (1-7+12).
- [90] Wu C, Wang C, You G, et al. Terahertz nanoscopy of metal and gallium implanted silicon [J]. ACS Applied Optical Materials, 2023.
- [91] Wiecha M M, Kapoor R, Roskos H G. Terahertz scattering-type near-field microscopy quantitatively determines the conductivity and charge carrier density of optically doped and impurity-doped silicon [J]. APL Photonics, 2021, 6(12): 126108.

附录

.1 勒让德多项式

勒让德多项式 (Legendre polynomials) 是一类具有重要物理意义的正交多项式。它们在数学、物理学和工程学中都有广泛的应用。

.1.1 定义

勒让德多项式可以通过下列公式定义：

$$P_l(x) = \frac{1}{2^l l!} \frac{d^l}{dx^l} (x^2 - 1)^l$$

其中 l 是多项式的阶数， x 是自变量。

.1.2 性质

勒让德多项式具有很多重要的性质，下面列出其中一些：

- 正交性：勒让德多项式满足正交性质，即

$$\int_{-1}^1 P_l(x) P_m(x) dx = \frac{2}{2l+1} \delta_{lm}$$

其中 δ_{lm} 为克罗内克 (Kronecker) 符号，当 $l = m$ 时为 1，否则为 0。

- 递推公式：勒让德多项式之间有递推公式，即

$$(l+1)P_{l+1}(x) = (2l+1)xP_l(x) - lP_{l-1}(x)$$

其中 $P_{-1}(x) = 0$ ， $P_0(x) = 1$ 。

- 关联勒让德方程：勒让德多项式是关联勒让德方程的解，即

$$(1-x^2)y'' - 2xy' + l(l+1)y = 0$$

其中 $y(x)$ 是待求函数， l 是非负整数。

- 积分表达式：勒让德多项式也有积分表达式，即

$$P_l(x) = \frac{1}{\pi} \int_0^\pi (x + \sqrt{x^2 - 1} \cos \theta)^l d\theta$$

.2 电磁热和固体传热方程

.2.1 电磁热方程

电磁热方程是用于描述电磁场和热场之间耦合作用的偏微分方程组。其一般形式为：

$$\nabla \cdot \mathbf{J} = -\frac{\partial \rho}{\partial t} \quad (-1)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = \frac{\rho}{\epsilon} \quad (-2)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (-3)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} + \mathbf{M} \quad (-4)$$

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla \cdot (k \nabla T) + \mathbf{J} \cdot \mathbf{E} + Q \quad (-5)$$

其中 \mathbf{J} 是电流密度, ρ 是电荷密度, \mathbf{E} 是电场强度, \mathbf{B} 是磁感应强度, \mathbf{H} 是磁场强度, \mathbf{D} 是电通量密度, \mathbf{M} 是磁化强度, T 是温度, k 是热导率, c_p 是比热容, Q 是体积源项。

电磁热方程的求解需要利用数值方法, 如有限元法、有限差分法等。

2.2 固体传热方程

固体传热方程是用于描述固体物质内部温度分布随时间演化的偏微分方程。其一般形式为:

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla \cdot (k \nabla T) + Q \quad (-6)$$

其中 T 是温度, ρ 是密度, c_p 是比热容, k 是热导率, Q 是体积源项。

固体传热方程的求解需要考虑边界条件和初始条件。常见的边界条件有第一类边界条件(温度已知)、第二类边界条件(热通量已知)和第三类边界条件(表面温度梯度已知)。初始条件通常是系统在初始时刻的温度分布。

固体传热方程的解法包括解析解法和数值解法。

3 加工样品展示

实际的加工过程中需要多次尝试, 制造多个样品。一方面, 这样可以通过调整参数制造不同大小、不同刻蚀深度的样品; 另一方面, 多个重复样品还可以避免样品在意外损坏后需要重新制造样品的问题。同一批次加工出的样品具有最好的一致性, 将同一批样品放入近场成像装置中所得到的结果也最具有说服力, 这也是控制变量法在实际实验上的应用。

如图-1是微米级别金片样品的电镜图, 实际上其还有很多份备份位于同一个硅片上(见图-2)。

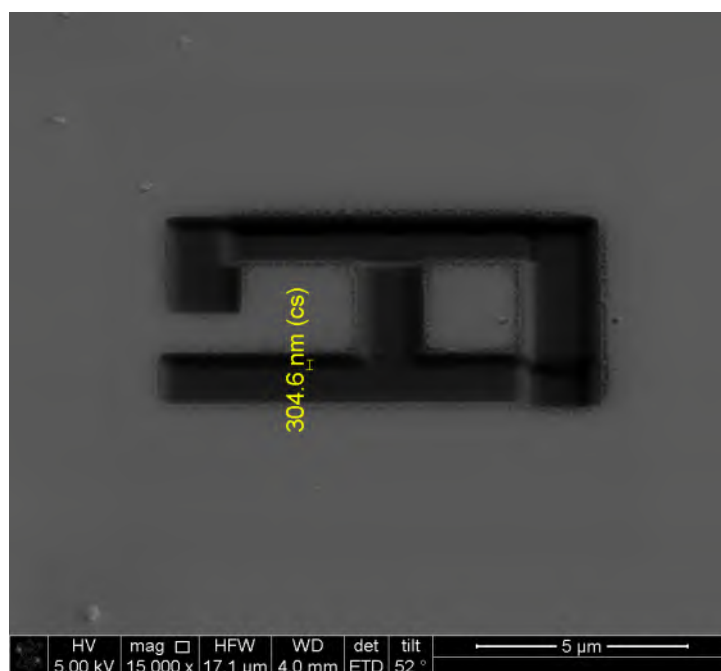


图 -1 使用电镜观察微米尺度金片样品 (Sample-1)

Figure -1 Electron microscopy was used to observe the micron-scale gold flake sample (Sample-1)

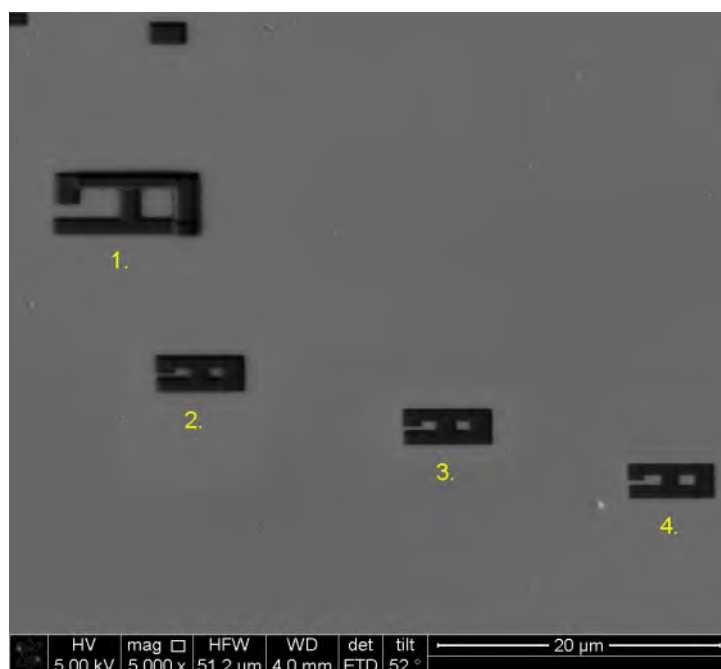


图 -2 使用电镜观察多个微米尺度金片样品

Figure -2 Electron microscopy was used to observe multiple micron-scale gold flake samples

致 谢

一路以来磕磕绊绊，感谢一路帮助我成长的那些人。谢谢我的家人，感谢她们总是和我一起直面困难。感谢大学室友晏小虎、程玉峰和任帅飞长期以来的鼓励。感谢叶静文对我的开导，理解我的不善言辞。感谢导师王长研究员提供的科研经费。感谢黎华老师帮我修改文章。感谢 COMSOL 中国工程师贝新卫，鲍伟等人在多物理场仿真软件使用上提供的帮助。感谢上海微系统所丁惠凤，孙浩等人及上海科技大学-量子器件中心吴文一，朱兆鑫等老师对我在半导体加工及培训上的帮助。感谢朱玉来工程师对 FIB-SEM 样品加工所提供的帮助，并在后续继续帮助我分析衬底上异常增强现象的原因。感谢上海理工大学游冠军老师课题组提供的实验支持。感谢上海微系统所的老师同学们对我提供的帮助和指导。

读研三年，回首惊觉已经过完了整个疫情。还记得第一年在中国科学技术大学上课，那时候真是踌躇满志，常常参加活动，认识了很多好朋友。跑步和学英语居然直到现在仍然在人生兴趣的菜单里。我尤其感谢遇到的朋友，在我读研这段艰难的时光里一直陪着我。这是我学习生涯里第一次觉得做一件事情很难，也是我人生中一次巨大的磨砺和挑战。和学习不同，科研很大程度上依赖的是团队合作和灵感，而我只能依靠自己。一路从仿真学起，好不容易掌握了仿真软件的使用，却发现其并不适合研究近场成像的机制。当时真是吓坏了，感觉找了一个完全无解的方向。灵感却在几乎绝望时突然出现，或者说冷静了之后反而更能思考了。灵感往往要先于数学的推导。在之后一路写论文，画图，修改... 回想起来竟然历历在目。这段经历的痛苦还于在给身心造成了不好的影响，我和家人都常常焦虑苦闷，尤其是我的姐姐。尤其感谢为我操心的家人和朋友，很多人评价我坚韧，因为我的身后总有你们。

昨夜小楼又西风，吹起梧桐无数；今朝鸿日乃当空，不负少年一游。

梁实秋写的自传《百年梦忆》开头，娓娓道来飘忽而逝的百年岁月，戏谑人老了就爱啰嗦地讲故事，接着便以一句“现在我要开始回忆了”开启全书。今天我是在最好的年纪写下的这段话，往后也许会面临更多困难和挫折，也会收获很多感动与惊喜。希望自己在未来重读这段话时，回想自己不到一百年的时光，选择怀抱热诚去面对生活，接受自己的渺小和平凡，坚定值得付出心力的事业、人和理想。人们常常评价无法容纳对立观点以及直接表达自己理念的人为幼稚，他们在人群里常常想说什么就说什么，很容易一眼就分辨出来。下面，我要开始想说什么就说什么了。

至少在今天，我仍然觉得学习是塑造人的唯一手段，只是有些时候人是被迫进行学习。小猫和我讲了一个有趣的概念：人的价值观也是被“世界”所塑造的。也难怪在当下这样一个混乱的“世界”，人人都有自认为正确的价值观。普世价值崇尚真善美，头文字 D 的飙车党认为成功就是要去实践自己想做的事，哲学家的价值观是“应该”，佛系躺平的愿望是无病无灾，而胸怀大志者常想改变世

界……那人不就像无序宇宙中的一团原子了吗？因为遇到太阳所以开花，因为遇见暴风所以化为灰烟。我仿佛听见虚无主义的旗帜在呐喊，在鼓动四方的灵魂献祭于无端的火焰。但是人是有序的，人和动物一样获取能量（E）以对抗时间的无序（t），还创造出了伟大的信息。人最大的理想，应该就是给世界留下自己的痕迹吧，至少我在写下这段文字的时候已经在文章中留下了名字，已经无愧共和国予我教育的恩情。

解决了最崇高的理想，又要脚踏实地起来。671 是人本主义的小专家，贡献了在场的反馈，帮助我寻找内心的匮乏。但是我发现匮乏的东西实在是太多了，海贼王的开头是哥尔多·罗杰的呼喊：荣誉、地位、财富、名声，想要这一切吗？那就去大海吧，我把一切都放在那里了。希望再次读这段话时，我找到了我的那片大海，摘下了那一片秘宝，成为大海上最快乐的男孩。

写下这段话的时间是 2023 年 5 月 10 日，马上我就要毕业了。真的非常感谢在我低谷时在我身边的家人，朋友，长辈和帮助我成长的大家。未来的自己如果有所成就，莫要自负，要想起这一路走来受到的许多帮助；如果平平庸庸也不要气馁，要有坦荡接受平凡的勇气，也要有满心满眼的光明。

作者简历及攻读学位期间发表的学术论文与研究成果

作者简历：

吴昌林

吴昌林，福建连城县人。16-20 年，本科毕业于华中科技大学物理学院物理学拔尖班。20-23 年，硕士就读于中国科学院上海微系统与信息技术研究所。

已发表（或正式接受）的学术论文：

- (1) Wu C, Wang C, You G, et al. Terahertz Nanoscopy of Metal and Gallium Implanted Silicon[J]. ACS Applied Optical Materials, 2023, 1(4): 843-851.
- (2) 吴昌林，王长，曹俊诚，Numerical simulation of scanning near-field optical microscopy based on the source dipole model, 红外与毫米波学报 (已接收).

申请或已获得的专利：

申请专利：吴昌林，王长，曹俊诚，一种近场光学显微镜系统及成像方法，申请号：202210770383.5，申请日期：2022-06-30

