利用金刚石钟形探针对局部激发的光电流进行亚波长中红外成像

Rajasekhar Medapalli[1], *，Nathan D. Cottam[2], Khushboo Agarwal[1,3], Benjamin T. Dewes [2]，Nils Dessmann[4]，Sergio Gonzalez-Munoz[1]，Wenjing Yan[3]，Vaidotas Mišeikis[5]，Sergey Kafanov[1]，Rostislav V. Mikhaylovskiy[1]，Samuel P. Jarvis[1],Camilla Coletti[5], Britta Redlich[4], Amalia Patanè[2] 和 Oleg V. Kolosov[1], *

[1]兰开斯特大学物理系，英国兰开斯特 LA1 4YB[2]诺丁汉大学物理与天文学学院，英国诺丁汉 NG7 2RD[3]Shiv Nadar 卓越学术机构自然科学学院物理系（德里-国家首都辖区），印度北方邦达德里 201314[4]拉德堡德大学 HFML-FELIX 实验室，Toernooiveld 7，6525 ED，荷兰奈[illegible]，

***通讯作者**
邮箱： rajasekhar.medapalli@gmail.com; o.kolosov@lancaster.ac.uk

摘要

将中红外（mid-IR）光精确、高效地聚焦到亚波长体积中，对于探测低能激发和实现强场增强至关重要；然而，长波长下的吸收损耗和耦合效率低下可能会妨碍这一过程。本文介绍了一种创新的金刚石基金属-绝缘体-金属钟形探针，可将自由空间中红外光（10 μm）绝热压缩至≈1 μm的区域。该探针集成于扫描光电压显微镜中，可对石墨烯中局部驱动的光电流进行亚波长成像，并解析能量低至≈0.1 eV时与偏振相关及接触敏感的响应。实验表明，光电流信号密度增强了10^3 ，耦合效率接近80%，与数值模拟结果一致。该探针与量子级联激光器和自由电子激光器配合使用，展示了一种稳定、光谱可调的平台，可用于高分辨率研究原子级薄材料中的低能载流子动力学，并为中红外光电子学和量子光子学开辟了新机遇。

引言

中红外光为理解低能电子与振动激发提供了有力视角，使我们能够探测传统光学技术难以揭示的非平衡现象[1-5] 。与光学光子相比，中红外光子的能量较低，因此强中红外场会选择性地与低能模式耦合，驱动非热载流子再分布[6]， 、热光电流[7]， 和瞬态对称性破缺[8]。当这些电场被限制在纳米尺度内时，其强度会显著增强，从而开启原本无法观测的强非线性和超快响应。要捕捉这些效应，需要进行亚波长中红外成像，以增强光与物质耦合[9,10] ，并直接探测由以下因素主导的机制：

准粒子之间电磁相互作用的强度，尤其是在石墨烯[11,12]等二维材料中。实现与电荷和热载流子的本征扩散长度相当的空间分辨率[7] ，对于直接探究光电流产生和输运路径尤为重要，并能为理解非平衡电荷动力学的微观本质提供关键见解。综合运用这些能力，可以揭示光与物质相互作用，拓展平衡态和半经典框架[13-15]，并为阐明低能量子系统中光诱导能量流与耗散的微观机制开辟新途径[16]。当同一探针既能集中电场以实现空间定位，又能直接探测中红外驱动的光电流产生时，这一点尤为重要。

采用钟形探针实现的绝热场压缩，为传统孔径式扫描近场光学显微镜（SNOM）或散射型（无孔径）S-SNOM 提供了一种宽带、非共振且高效的替代方案。它能将相当大比例的入射光（约为孔径式 SNOM 中 10^{-3}-10^{-4} 的 50%）专门传输至微纳尺度的目标区域，而不会像无孔径 S-SNOM 那样同时照亮邻近区域；并且还能以很高的效率从同一区域收集与物体相互作用后的光。然而，在中红外波段，光学元件面临固有挑战，包括贵金属中的自由载流子阻尼导致吸收损耗增加，以及通常用于远场到近场变压器的电介质材料中的声子极化激元吸收。在此，我们介绍一种定制制造的金属-绝缘体-金属（MIM）钟形金刚石探针，该探针针对中红外工作进行了优化，并集成到商用扫描近场显微平台中；其在尖端实现了 80% 的耦合效率，将光耦合至亚波长焦点，这与数值模拟结果吻合良好。该探针采用渐缩四棱锥几何结构，由一个电介质芯和两片相对的金属镀层面构成，另外两侧则不镀层（图 1a-c）。它能够以平滑、宽带的方式汇聚自由空间辐射，同时将反射或散射降至最低。这种非共振原理无需承受等离激元或基于孔径的设计所固有的光谱限制和耗散损耗，即可实现强场增强。尽管相关概念已在可见光和近红外光谱范围内得到研究[17-20]，但我们的方法独特地实现了向中红外的绝热压缩，并有望拓展至太赫兹波段，展现出宽带适用性（8.5 - 10.5 μm）以及在高功率脉冲自由电子激光器（FEL）下的稳健性；这些能力是传统 SNOM 技术无法实现的。

我们利用这一平台，对图案化栅极可调石墨烯器件中与光伏（PV）信号成正比的光电流进行空间映射，直接揭示出与偏振相关且对接触敏感的响应。Au/金刚石/Au钟形探针能够实现中红外光的深度限制，并将场增强提高3个数量级，达到≈1 微米的空间分辨率，从而直接成像结和接触附近微米尺度的光电流分布。这为中红外纳米尺度光谱学树立了新的基准；正如时域有限差分（FDTD）模拟所预测的那样，进一步减小尖端尺寸后，性能尤为突出。通过将绝热压缩与空间分辨光电流映射相结合，我们

建立了一个广泛适用的框架，用于研究低能载流子对光热电效应的贡献，为研究复杂量子系统提供了一个灵活且可调控的平台。

结果

表面等离激元极化激元（SPPs）由入射光子与金属中自由电子的集体振荡耦合，在金属-介质界面处形成。在钟形金字塔中，表面等离激元极化激元的产生覆盖宽广的光谱范围，其范围更多由结构几何形状以及介质和金属的宽带特性决定，而非材料本身的等离激元特性。对于大于金字塔晶面之间横向间隙（定义为 *a*）的波长，动量匹配条件得以满足，从而使光能够在尖端实现绝热聚光[21-25]。 与共振固定的传统等离激元天线不同——这类天线的耦合发生在由材料介电常数和几何形状决定的固定共振处——钟形设计通过逐渐渐缩支持连续模式谱，从而实现宽带光聚集。当底部宽度大于波长时，便可实现高效耦合，将远场光转化为沿介质/金属界面传播并汇聚至尖端的近场模式。Polyakov 等人[26] 的理论研究预测，倒置绝缘体-金属-绝缘体（IMI）金字塔可在远超近红外的波长下维持强烈的顶端电场增强，最高可达 ≈10 微米及更长波长，前提是介质在所用波长下透明。

为验证我们的假设，我们制备了金刚石基 MIM 钟形金字塔（图 1c），并使用 ANSYS Lumerical 软件进行了三维时域有限差分法（FDTD）仿真，以模拟其特性[18,19,26]。仿真针对中红外光参数进行设置，脉冲持续时间为 100 fs，中心波长（λ）为 10 微米。为优化几何结构，增强中红外光在尖端的聚焦效果，我们系统地改变了尖端尺寸（沿 x 轴和 y 轴）以及金字塔尖端角度（θ）（见补充图 1 和 2）。我们策略性地放置了频域场监视器和时域监视器，以捕获绝热压缩过程中尖端处稳态和时变电场的横截面，以及金字塔内部 xy 和 yz 平面上的电场行为（见补充图 1）。

图1d中的仿真表明，所选几何结构能够有效地将中红外远场耦合至近场区域。对于尺寸为 2000 nm 的尖端　100 nm 和 $\theta = 40°$，可实现绝热压缩光斑尺寸，且背景几乎为零。金刚石/金属界面处强烈的 *E*场增强证实，中红外从远场到近场的转换由表面等离激元极化激元介导（波矢 S_0）。顶端尺寸依赖性进一步证实了这一点：随着尖端尺寸缩小至 10 nm，*E*场增强显著增加　10 nm。补充图2d中的数据点对应不同的尖端尺寸，具体尺寸在插图中标出。如图1b所示，我们在化学气相沉积（CVD）生长的金刚石上制作了一个带有镀金晶面的钟形金字塔，形成了顶端尺寸为 3 μm 的金/金刚石/金钟形金字塔　100 nm（较长尺寸与探针棱柱边缘及镀金晶面平行），且 $\theta = 80°$。为评估中红外变压器的功能，我们使用了

化学气相沉积生长的图案化石墨烯器件。在实验中，我们考察了两种不同类型的器件：覆盖有一片二维材料 GaSe 的石墨烯沟道，以及未覆盖的石墨烯。石墨烯器件的光学图像如图2a所示。这两种不同类型器件在远场配置下的光伏响应几乎完全相同（补充图3）。我们测量了石墨烯的中红外光伏响应，以表征绝热压缩光斑尺寸并探测局域光伏响应，从而展示中红外变压器的有效性。

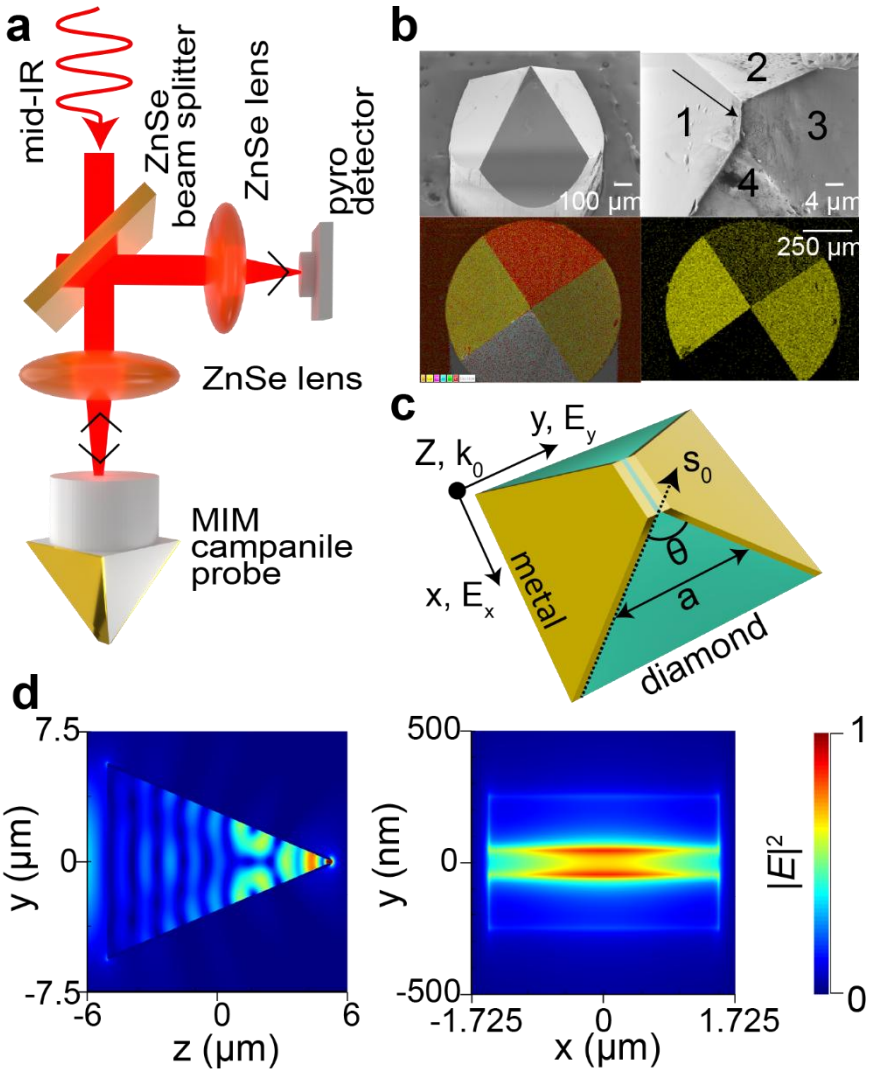


图1｜金属-绝缘体-金属（MIM）钟形光变换器及其工作原理。(a) 近场中红外激光激发装置示意图，可同时检测光伏响应与反射光信号。对于远场测量，将MIM钟形探针缩回，以便以更大的光斑尺寸（≈30 μm）直接进行样品照明。激光偏振通过半波片与偏振片的组合（未示出）设置为E_x 或E_y 。(b) 上图：扫描电子显微镜（SEM）图像展示了钟形金刚石棱锥的结构。右侧图像中的数字标识金字塔的晶面，箭头标出尖端处的棱柱线。标记为"1"和"3"的晶面经金属化，以在尖端产生绝热光斑。下图：能量色散X射线光谱（EDS）分布图显示金属化棱锥的化学成分。分布图显示碳呈橙色分布（左），Cu-kα1 呈黄色分布（右），从而确认了制造过程中所用材料以及对晶面1和3的选择性金属化。(c) MIM钟形四棱锥示意图。(d) 有限元模拟显示：（左）钟形金字塔内中红外光（≈10 微米）在聚焦光时由远场向近场转换的yz截面；（右）金属/金刚石/金属钟形金字塔尖端处无背景的近场增强，其中尖端尺寸设定为3 μm　100 nm，每侧金属厚度为200 nm。

首先，我们按照图 2b 所示的光伏测量方案，研究了石墨烯器件在中红外远场下的光伏响应；器件由量子级联激光器（QCL，λ = 9.5 微米）发出的脉冲列激发。作为参考，在远场

测量中，我们移除了 MIM钟形探针，从而以较大的光斑尺寸（≈30 μm）直接照射样品。该测试不使用钟形探针，而是使用硒化锌透镜聚焦光线。图 2c 和图 2d 分别展示了远场配置下同时测得的反射率和光电压（V_{PV}）响应的面积映射。这些图通过沿平行于样品平面的方向移动透镜，将激光束聚焦到样品表面的不同区域而获得。强度图概览了器件的反射率，并标示出金接触电极和石墨烯层等关键区域。无背景的光伏信号测量显示出两个明显的光斑（图 2d），表明光束聚焦在金接触电极中心时，光伏信号达到最大值。两个接触区的光伏响应符号相反，证实了预期的极性依赖性。

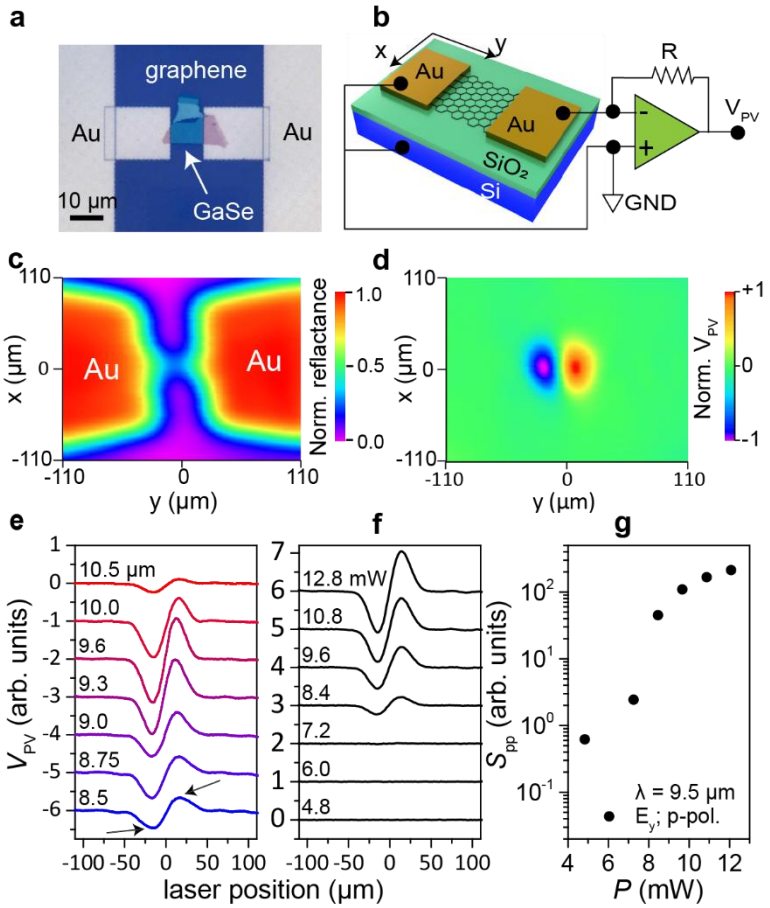


图2｜中远场中红外光伏响应参考。 (a) 覆有 GaSe薄片的金-石墨烯-金平面器件的光学显微图。(b) 石墨烯器件及光电压测量配置示意图。Au/石墨烯界面沿 y 轴分布。(c,d) 扫描 9.5 微米光束（光斑尺寸为 ≈30 微米）使其横跨 GaSe/石墨烯表面时，反射光强度 (c) 和光伏信号 (d) 的空间分布图。(e) 不同激发条件下测得的光伏响应；(f) 在 λ = 9.5 μm 下不同P对应的光伏响应。对于每种 λ，均采用量子级联激光器可提供的最大输出功率。箭头指示金电极边缘。样品平面处最大功率P_{max} 的光谱依赖性见补充图 4。(g) 提取的S_{pp} 值随P（λ = 9.5 μm）的变化关系。

为探测空间变化，通过将激光束移动220微米的距离并覆盖石墨烯/金属结，获得了波长范围为8.5–10.5微米的线剖面，如图2e所示。这些剖面表明，当激光束位于任一接触时，V_{PV} 达到最大，且左右金接触区域观察到相反的极性。相比之下，在样品中心，光伏信号降至零。图2f显示了激发激光功率

在λ = 9.5 μm处的（P）依赖关系。光伏响应强度S_{pp}（左右峰之间的峰峰值）相对于P绘制于图2g中。超过阈值功率后，光伏信号随P增大，并在P = 12 mW处饱和，表明存在非线性响应。

图 3 展示了石墨烯器件的中红外近场响应。在本例中，采用尖端尺寸为 100 nm x 4 μm 的 Au/金刚石/Au钟形探针，既将入射光聚焦到高度受限的狭缝中，也收集反射光（见图 1a）。使用 Au/金刚石/Au钟形探针同时采集器件的形貌、反射光强度和 V_{PV}，分别如图 3a、3b 和 3c 所示。入射光的偏振和功率分别设为 E_y 和 12 mW。对 Au/石墨烯左侧界面表面进行近场扫描得到的反射率数据绘于图 3b 的插图中。高、低强度值分别对应 Au 和石墨烯样品区域。强度曲线中的斜坡状变化表明了聚焦在金字塔尖端的光斑尺寸。使用误差函数（Erf）拟合图 3b 插图所示数据，得到 1.01 ± 0.06 μm 的空间分辨率，约比激发波长（λ = 9.5 μm）小一个数量级。拟合曲线以红色叠加在图中，有力地证明了使用 MIM钟形金字塔成功实现了远场到近场转换。

类似地，图 3d 显示了 MIM 探针扫描器件表面时获得的V_{PV} 信号的水平线剖面，分别对应激光的两种正交偏振（E_y 和E_x）。器件极性反转后，光伏信号的符号也随之反转（见补充图 5），这表明该信号来自光伏效应，而非光电导响应。光伏信号呈现出多个峰，与远场配置下观察到的峰不同，且这些峰局限于金/石墨烯界面。作为对比，图 3d 中以蓝色叠加了相应的远场数据，表明其空间分辨率较低。器件光响应中观察到的精细特征凸显了 MIM 钟形探针能够对中红外光进行亚波长聚焦，从而实现对器件空间响应的局域探测与调控。最重要的是，当激光偏振切换为E_x时，器件中心处（探针位置为 0 μm）出现显著差异：中心处的光伏信号明显增强，而金/石墨烯界面附近的信号则减弱。这与E_y 激发时的情况形成鲜明对比，而其他特征的位置保持不变。

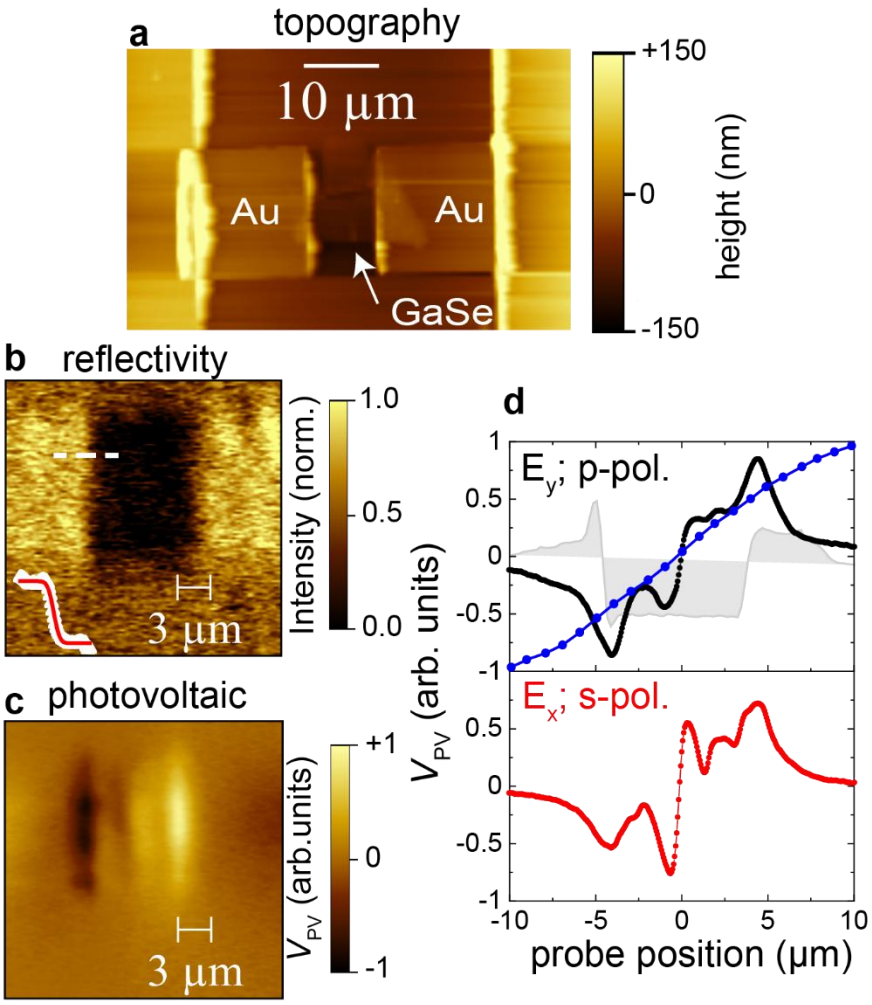


图3｜近场中红外光伏响应。 (a) 在扫描探针显微镜模式下，以MIM金刚石探针作为尖端扫描针尖获得的、带有用于电学测量的金接触电极的石墨烯器件形貌图像。石墨烯层上覆盖有GaSe，以白色箭头标出。在MIM探针扫描器件表面的同时测量反射率(b)和光伏响应(c)，重点关注金-石墨烯/GaSe-金区域。金与样品区域之间的反射率下降显示于(b)的插图中，对应水平长度为5 µm（白色虚线）。红色曲线为误差函数拟合，所得空间分辨率为1.01 ± 0.06 µm。(d) 两种正交激发激光偏振下光伏信号的水平线剖面。灰色阴影曲线显示相应的高度水平线剖面。蓝色曲线显示空间分辨率较低的远场数据。箭头指示金电极边缘。

在石墨烯器件中观察到的中红外V_{PV}信号强烈局限于金/石墨烯接触附近，并且对P呈现阈值型非线性依赖关系，表明这是一个热驱动过程。由于中红外光子能量过低（在 9.5 µm 波长下为 130 meV），无法有效驱动带间跃迁，却非常适合通过带内（类德鲁德）吸收加热电子系统，因此光伏信号主要由热效应而非直接光伏机制主导[12,27,28]。这与电子加热及其后续热电转换产生强烈光伏响应的情况相符。如图 3d 所示，光伏信号还明显依赖于入射光的偏振。在E_y偏振下，电场E平行于金/石墨烯界面，接触区的信号增强。相较之下，在正交偏振E_x（垂直于界面）下，石墨烯沟道内的光伏信号更强。这种偏振依赖行为表明存在各向异性吸收机制，例如在金属边缘附近对近场或等离激元模式的偏振选择性激发[29-34]，这些模式能够汇聚中红外光能，从而

增强局部加热效应。由此产生的空间局域温度梯度通过光热电效应驱动光电压，尤其是在塞贝克系数随空间变化（可能源于接触诱导的掺杂梯度）的情况下[27,35]。此外，光电压随栅极电压变化呈现平滑的符号反转（补充图6），这与跨越狄拉克点的双极性塞贝克响应一致。这种可由栅极调控的行为，结合中红外热激发和偏振依赖吸收[2]，，有力地表明，在中红外照射下，我们的石墨烯器件中由低能激发主导的光电流产生机制源于光热电效应。

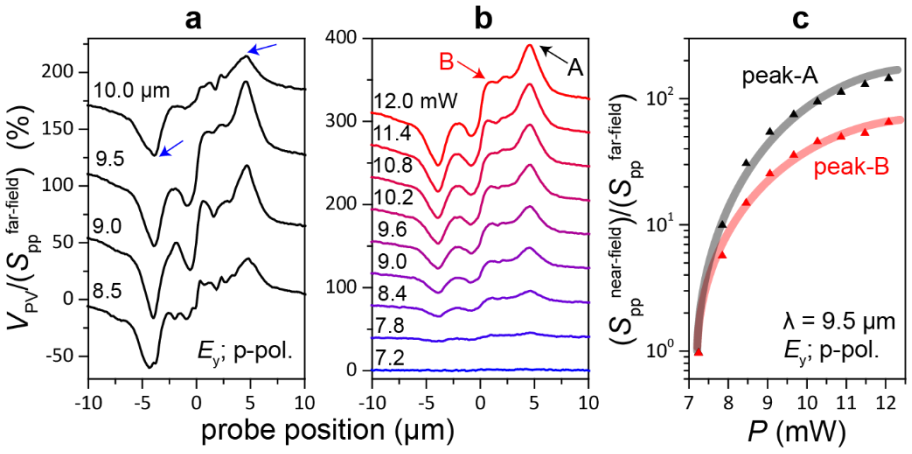


图4｜近场中红外光伏响应的光谱和功率依赖性。(a) 探针从左向右扫描器件中心、水平距离为 20 微米时，在四种不同λ下测得的V_{PV} 响应线剖面。石墨烯层覆盖有一片 GaSe薄片。蓝色箭头标示金电极边缘。(b) 在不同激光功率（7.2 至 12.8 mW）下测得的V_{PV} 响应线剖面，其中λ 固定为 9.5 微米，且E场设为E_y。(c) 两个不同峰的归一化$|S_{pp}|$ 值随P的变化关系，峰以(b)部分中的 A（黑色三角形）和 B（红色三角形）标示。实线为视觉引导线。

图4a和图4b分别展示了石墨烯器件上空间分辨的近场V_{PV} 信号线剖面，其分别随 λ 和P变化；数值均归一化为远场测量情况下获得的$|S_{PP}|$ 值（λ = 9.5 um，P = 12.8 mW，E_y偏振）。在较短波长（λ = 8.5 μm）下，光伏信号在金接触区域附近的主要峰之外还出现了次级峰。这些较弱的空间分辨特征会随激发波长变化（见图4a），表明其对入射光的光谱特性敏感。我们将其归因于石墨烯层内波长依赖的空间吸收调制，该调制源于Si/SiO2衬底中的干涉增强吸收或与衬底声子极化激元模式的耦合[12,36,37]。这些效应会导致电子温度梯度的局部变化，尤其是在中红外光谱范围内，此时石墨烯有限的光学电导率与衬底的介电对比会造成非均匀吸收[36,38,39]。这些局部热梯度与空间变化的塞贝克系数结合后，会产生空间上彼此 distinct 的光伏信号，与光热机制相一致。只有使用MIM钟形探针，才能观测到石墨烯沟道内、远离金属接触的这些 distinct 且依赖波长的特征。所实现的空间分辨率约为1 μm，这比远场几何结构中使用的≈30 μm光斑尺寸提高了近30倍。这种分辨率提升使光伏响应的成像成为可能，因为在远场测量中该响应会被空间平均掉

在远场测量中。近场配置使我们能够以极高精度将中红外能量集中到微米尺度区域，从而选择性地激发局部光热梯度。这一能力使我们得以探测空间上彼此 distinct 的光热电响应，揭示出更小尺度上的特征，例如石墨烯有源层内无法在远场中分辨的偏振和波长依赖吸收。

图4c突出显示了E_y 偏振下的归一化$S_{PP}|$ 值，分别对应图4b中A和B所示的接触区及沟道区域内。尽管信号强度的绝对值不同，两条曲线都表现出相似的非线性功率依赖性。这种趋势在不同空间区域中保持一致，表明观测到的响应由共同的光热机制驱动。

图4a所示V_{PV} 信号对λ的依赖关系清楚表明，近场V_{PV}信号（λ = 9.5 μm）最高可达远场最大值的≈80%，这说明大部分入射中红外能量都有效集中在微米尺度区域内，主要集中于Au/石墨烯界面附近；在E_y偏振下，此处的局域光热梯度最强。这表明，尽管空气/金刚石界面存在反射损耗且受到极强的亚波长限制，大部分可用光能仍得以保留，并有效传递至探针尖端。时域有限差分仿真表明，金属-绝缘体-金属探针的尖端处E场强增强了≈104倍（见补充图2d）。然而，实验观测到的信号密度增强（单位面积增加近850倍）略低，这可能是针尖-样品间距和样品吸收损耗等实际因素造成的。尽管如此，近场配置在探测面积缩小近三个数量级的同时，仍产生了与远场响应相当的信号，证实了显著的局域场集中和有效的能量传递。由于E_x-偏振方向与沟道轴对齐，石墨烯沟道预计会在该偏振下产生最大光响应；而E_Y偏振下观测到的非线性功率依赖性仍符合热电机制。未来在E_X 下进行测量，将有助于更精确地分辨各向异性响应贡献。

我们使用自由电子激光器（自由电子激光）评估了探针的工作性能。自由电子激光器采用脉冲工作模式，其时间特征与量子级联激光器（QCL）截然不同（见补充图7）。图5a展示了使用中红外探针、以自由电子激光器为光源在10.5 μm处成像得到的石墨烯器件形貌图（上图）和光伏响应图（下图）。从图像中心提取的水平线剖面绘于图5b，可直接比较器件形貌与其局域光伏行为的空间变化。基于仿真结果，我们发现面积平均场强增强与尖端面积（$\langle|E|^2\rangle/|E_0|^2 \propto A^{-0.95}$）近乎成反比，表明进一步缩小聚焦区域可显著增强光学限制。外推至尖端尺寸接近10 nm × 10 nm时，预计中红外光谱范围内的近场强度可提高数个数量级，同时仍能保持绝热能量传递。

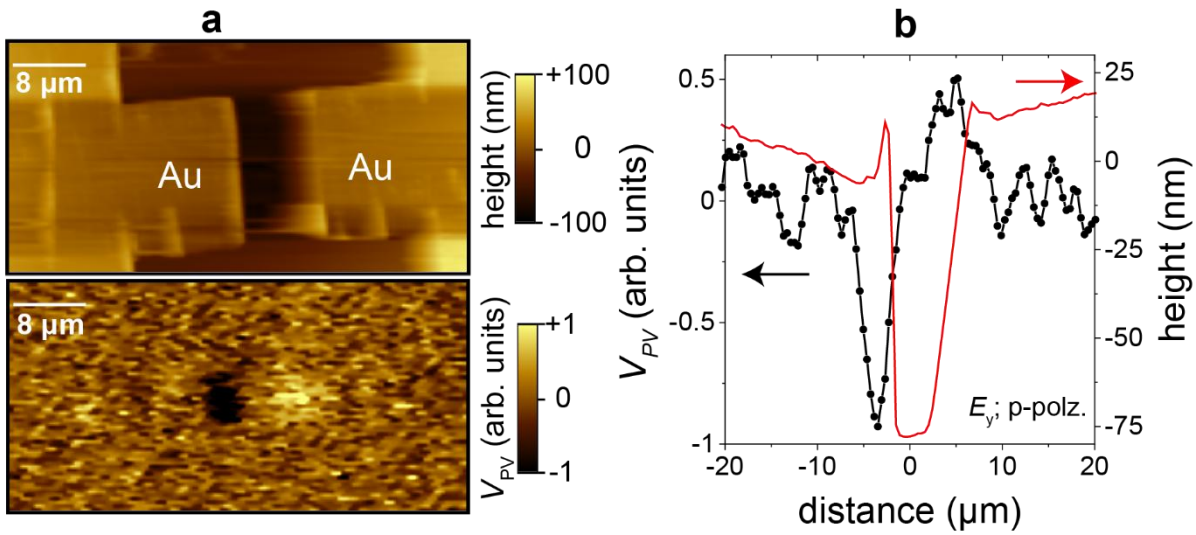


图5 | 中红外近场光伏响应（使用自由电子激光器）。 (a) 扫描近场光穿过石墨烯表面时获得的形貌（上）和光伏响应（下）图。(b) 在器件中心处沿 40 微米长度测得的高度（红色）和光伏信号（黑色）水平线剖面。

结论

我们开发了一种金属-绝缘体-金属钟形金刚石探针，通过非共振宽带绝热光压缩，将≈80 %的自由空间中红外光耦合至≈1 μm焦斑，损耗极低，并与高功率脉冲光源完全兼容。将其集成到扫描光电压显微镜后，可对石墨烯中的偏振和接触敏感光电流进行亚波长分辨率（≈1 μm）成像。通过局部追踪信号随激光功率和栅极电压的变化，我们分离出光热电机制的贡献；在本例中，该贡献源于局域非平衡载流子加热，而非体热效应。这凸显了中红外激发对微观结区环境的独特敏感性。使用自由电子激光器运行，可将这一能力扩展至极端中红外激发条件，建立一个稳健、光谱可调的平台，重新定义二维材料纳米尺度光电成像的极限[40-43]。这种新型金刚石基MIM钟形探针凭借精心设计的尖端和宽带高效性，为中红外纳米光子学树立了基准，并为在前所未有的空间和时间尺度上解析新兴量子材料中的载流子动力学 及光响应提供了强有力的途径。

方法

实验装置与方法

使用量子级联激光器（QCL）和自由电子激光器（FEL），分别在远场和近场配置下进行实验。进行远场测量时，使用硒化锌透镜（NA = 0.25）将激光束直接聚焦到样品表面，光斑尺寸为 ≈30 微米。相比之下，进行近场测量时，则使用同一硒化锌透镜将光束聚焦到MIM钟形金字塔的正面；该金字塔通过绝热压缩过程将远场照明转化为其尖端处的近场光斑，从而实现亚波长空间分辨率，具体说明见正文。QCL提供光

脉冲，重复频率为200 kHz，脉冲持续时间为1 ns，可调波长范围为 λ = 8.5至10.5 微米。量子级联激光器的激光束以500 Hz调制，从而便于对光伏响应和反射光信号进行锁相检测。使用带有$LiTaO_3$热释电元件的混合式热释电传感器（GENTEC-AO）测量反射光强度信号。用于检测光伏响应的电子电路如图2b所示。光伏响应通过定制的可变增益高速跨阻放大器进行测量。为精确控制MIM金字塔尖端接近样品表面的过程，钟形金字塔连接在$LiNbO_3$ 音叉[44]的一根叉齿上。音叉共振时叉齿振幅的变化用作样品与金字塔间距的反馈信号（补充图8）。

自由电子激光测量在荷兰的FELIX设施进行。自由电子激光以5、10或20 Hz的重复频率输出持续时间为≈8 微秒的宏脉冲。每个宏脉冲由傅里叶变换极限谱的微脉冲组成（典型持续时间为数皮秒），微脉冲的重复频率为25、50或1000 MHz，中心波长可在3至150微米的宽光谱范围内调谐（补充图8）。在我们的实验中，使用了10至15 μ米之间的波长。将自由电子激光聚焦到样品表面的操作与上述量子级联激光器实验类似。自由电子激光宏脉冲的能量设定为1 mJ。为准确测量自由电子激光照射引起的光伏响应，使用了盒式平均器（UHFLI，Zurich Instruments），从而有效滤除宏脉冲窗口之外的噪声贡献。入射光的电场分量<style id='3'>E_x 和E_y分别代表沿x轴和y轴的s偏振光和p偏振光。为精确控制激发激光的偏振和功率，使用了波片和偏振片的组合。请注意，对于使用量子级联激光器进行的λ 依赖性测量，样品平面处的激光功率设定为Hedgehog激光器输出功率的最大值。

时域有限差分仿真

我们使用商用时域有限差分模拟软件（ANSYS Lumerical）。在金属镀层介质钟形探针中，光耦合与限制通过一种结合波导模式转换和等离激元辅助绝热压缩的混合机制实现。金刚石芯充当低损耗介质波导，使光能够在探针基部实现高效的远场耦合；金涂层则形成金属-介质界面，支持表面等离激元极化激元（SPPs）。这两种机制相互作用，使电磁能沿渐缩结构向下传播，同时逐渐压缩至尖端的亚波长区域。与无孔径散射型扫描近场光学显微镜 **或** 孔径式扫描近场光学显微镜不同，后者的场增强主要源于近场散射或偶极天线效应，而钟形探针几何结构支持持续演变的导模。在扫描近场光学显微镜中，局域场增强仅发生于金属针尖，这是由局域表面等离激元的激发所致，而其激发强烈依赖于针尖曲率和入射偏振。然而，自由空间与探针近场之间的突变限制了能量耦合效率。相比之下，钟形探针利用锥形介质波导实现绝热模式压缩，使基部的光学模式与尖端的纳米尺度模式之间逐渐实现阻抗匹配。这种绝热演变最大限度地减少了后向反射和辐射损耗，

使光场在探针几何尺寸达到纳米尺度之前始终束缚于探针内。

沿渐缩结构的局部传播常数 β(z) 决定了光学模式向尖端传播时的演变。当渐缩结构的尺寸变得与波长（或 $\lambda \approx a$，见图 1(c)）相当时，由于金属/介电质界面处的等离激元耦合增强，渐缩结构上 z 位置处光学模式的有效折射率 n_{eff}(z) 会增大。这种增强的耦合有助于实现模式的绝热能量压缩，同时最大限度地减少反射或散射损耗。随着有效横截面积 (A(z)) 逐渐减小，光能量密度按 $U_E \propto |E|^2/A(z)$变化，从而使电磁场在尖端附近受到强烈限制。为对此进行定量分析，我们计算了面积平均场强增强，其定义为 $\frac{<|E|^2>}{|E_0|^2} = KA^m, w$其中 *K* 为比例常数，*m* 表征增强程度随聚焦模式（尖端）面积的变化关系。图 S2(d) 所示数据采用幂律关系拟合，得到 K = 340 ，且 m ≈ -1，表明面积平均强度增强与模式面积成反比，这与绝热压缩过程中的能流守恒一致。

渐缩结构的尖端角在决定绝热性和聚焦效率方面起着关键作用。较小的尖端角会使 β(z)的空间变化更为缓慢，从而更好地满足绝热条件，进而实现更高效的模式转换和场局域化。相反，较大的角度会导致传播常数迅速变化，增加反射和模式失配，从而降低聚焦效率。因此，较小尖端角下观察到的增强场局域化可归因于改善的阻抗匹配以及更强的等离激元-介电质混合约束。然而，在我们的实验中，我们使用了具有θ = 80^0的钟形探针。

样品制备。单晶化学气相沉积石墨烯在铜箔上确定性生长，并通过半干法转移[45]转移到SiO_2/Si衬底（285 nm的SiO_2）上。两端器件制备采用电子束光刻，随后进行反应离子刻蚀以定义器件沟道，并通过热蒸发沉积金/镍电极（60/7 nm）。每个制备步骤之后均使用聚合物去除剂（AR 600-71），以确保超洁净的石墨烯表面[46]。高质量硒化镓薄片从布里奇曼法生长的硒化镓块体晶体上剥离，并干法转移到石墨烯上，覆盖石墨烯沟道。在金/石墨烯/金器件中，两个金电极分别作为长度为*l* = 10 μm的方形石墨烯沟道的源极（*s*）和漏极（*d*）。

参考文献

1) Stanley, R.，中红外等离激元学。《自然·光子学》 **6**，409-411（2012年）。2) Cas[illegible]现基[illegible]《自然·通讯》 **11**，4872（2020年）。3) R. Chikkaraddy 等。等离激元纳米腔中受抗动的分子中红外振动特征。《光：科学与应用》 **11**，19（2022年）。

4) Chikkaraddy, R., Arul, R., Jakob, L. A. 等。通过振动辅助发光实现单分子中红外光谱与探测。《自然·光子学》17，865-871（2023年）。5) Sentef, M. A., Ruggenthaler, M., Rubio, A.，腔量子电动力学中的极化激元增强电子-声子耦合及其对超导性的影响。《科学进展》4，eaau6969（2018年）。6) Ma, Q., Krishna Kumar, R., Xu, SY. 等。光电流作为量子材料的多物理诊断。《自然综述：物理》5，170-184（2023年）。7) Fu, S., Huang, X., (
145. Sirica, N. 等。新兴对称性破缺
材料
N. L
。
10) 的超强耦合。
《自
Bro 墨烯的增强电子-声子耦合。《物理评论B》95，
024 的石墨烯中红外光响应。《纳米快报》
14，6374（2014年）。13) Lu, W. 等。在GaAs/$Al_xGa_{1-x}As$/真空异质结构中直接观测到高于量子阶跃的准束缚态。《物理评论B》57，9787–9791（1998年）。14) Lu, W. 等。在强磁场下通过远红外光谱直接观测NENP中的Haldane能隙。《物理评论快报》67，3716–3719（1991年）。15) Cortese, E., Carusotto, I., Colombelli, R. 和 De Liberato, S. 电离
跃迁
Bas
201 离激元波
导中
纳米光谱成像脉动映射局部电荷复合异质性。《科学》338，1317–1321（2012年）。
19) Gramotnev, D. K. 和 Vernon, K. C. 利用尖锐金属楔形结构对等离激元进行绝热纳米聚焦。《应用物理B辑》86，7–17（2007年）。20) Caldwell, J. D. 等。用于中红外和太赫兹纳米光子学的原子尺度光子混合结构。《自然·纳米技术》11，9–15（2016年）。21) Koshelev, A., Munechika, K. 和 Cabrini, S. 用于将光高效转换至纳米尺度热点的光子-等离激元混合近场探针。《光学快报》42，4339（2017年）。22) Calafiore, G. 等。在光纤端面上通过纳米压印光刻制备Campanile近场探针。《科学报告》7，1651（2017年）。
23) Umakoshi, T. 等。用于光学纳米成像的白色纳米光源。《科学进展》6，eaba4179（2020年）。24) Stockman, M. I. 锥形等离激元波导中的光能纳米聚焦。《物理评论快报》93，137404（2004年）。25) Muis, D. 等。拓扑光子波导终端处的宽带光局域。《科学进展》11，eadr9569（2025年）。26) Polyakov, A. 等。扩展范围等离激元光学变换器扫描探针的耦合模型。《光：科学与应用》3，（2014年）。27) Gabor, N. M. 等。石墨烯中的热载流子辅助本征光响应。《科学》334，648–652（2011年）。

28) Luo, Y., Sun, Z., Sun, Z., 等，《超快红外等离激元学》。《先进材料》37, 2413748（2025年）。29) Freitag, M. 等。石墨烯中基底敏感的中红外光响应。《ACS 纳米》8, 8350（2014年）。30) Grigorenko, A. N. 等。石墨烯等离激元学。《自然·光子学》6, 749–758（2012年）。31) Echtermeyer, T. J. 等。石墨烯中光电压的强等离激元增强。《自然·通讯》2, 458（2011年）。32) Chen, J. 等。栅极可调石墨烯等离激元的光学纳米成像。《自然》487, 77 2012( )。33) Wang, Y. X., Zhang, X. Y., Li, C. 等。各向异性外尔半金属中体态与边缘光电流流动的可视化。《自然·物理》19, 507–514（2023年）。34) Zhou, H., Li, D., Ren, Z., 等。用于中红外高光谱成像的表面等离激元声子。《科学进展》10, [illegible], M., 等。石墨烯中高度局域且可调的中红外等离激元学。《纳米快报》13, 2541–2547（2013年）。36) Song, J. C. W. 等。石墨烯中的热载流子输运与光电流响应。《纳米快报》11, 4688–4692（2011年）。37) Fratini, S. & Guinea, F. 石墨烯中基底限制的电子动力学。《物理评论B》77, 195415（2008年）。38) Zhang, L. M. 等。二氧化硅薄膜的近场光谱学。《物理评论B》85, 075419（2012年）。39) Cal, Y., Xu, K-D., Feng, N., 等。基于石墨烯-黑磷多层结构的各向异性红外等离激元宽带吸收体。《光学快报》27, 3101–3112（2019年）。40) Zeng, Z. 等。低维材料中的超快光电流探测。《固体物理学评论快报》18, 2300120（2024年）。41) Xia, F. 等。二维材料纳米光子学。《自然·光子学》8, 899–907（2014年）。42) Reserbat-Plantey, A. 等。二维材料中的量子纳米光子学。《ACS 光子学》8, 85–101（2021年）。43) McLaughlin, N. J. 等。通过纳米尺度工程化磁畴壁运动对单个氮-空位中心进行局域控制。《ACS 纳米》17, 25689–25696（2023年）。44) Ahlstrom, S. L. 等。固态氦-4中机械振荡器的响应。《低温物理学杂志》175, 140–146（2014年）。45) Miseikis, V. 等。高迁移率大晶粒石墨烯的确定性图案化生长：迈向晶圆级集成。《二维材料》4, 021004（2017年）。46) Tyagi, A. 等。具有技术应用价值的基底上的超洁净高迁移率石墨烯。《纳米尺度》14, 2167–2176（2022年）。

致谢

本研究得到英国研究与创新署（UKRI）研究资助项目“高性能宽光谱范围纳米探针”（HiWiN，EP/V00787X/1）、工程与物理科学研究理事会（资助编号：EP/X020304/1、EP/T019018/1 和 EP/X524967/1）、欧盟石墨烯旗舰计划核心3项目以及国防科学与技术实验室（DSTL）的支持。我们感谢 HFML-FELIX 和 Ben Murdin 为基于自由电子激光的实验提供所需的实验室空间，并将 HiWiN 作为用户设施设于 FELIX，向开展红外至太赫兹光谱物理和化学前沿研究的用户开放。作者特别感谢 Britta Redlich（现任德国电子同步加速器主任）和利物浦大学的 Peter Weightman，

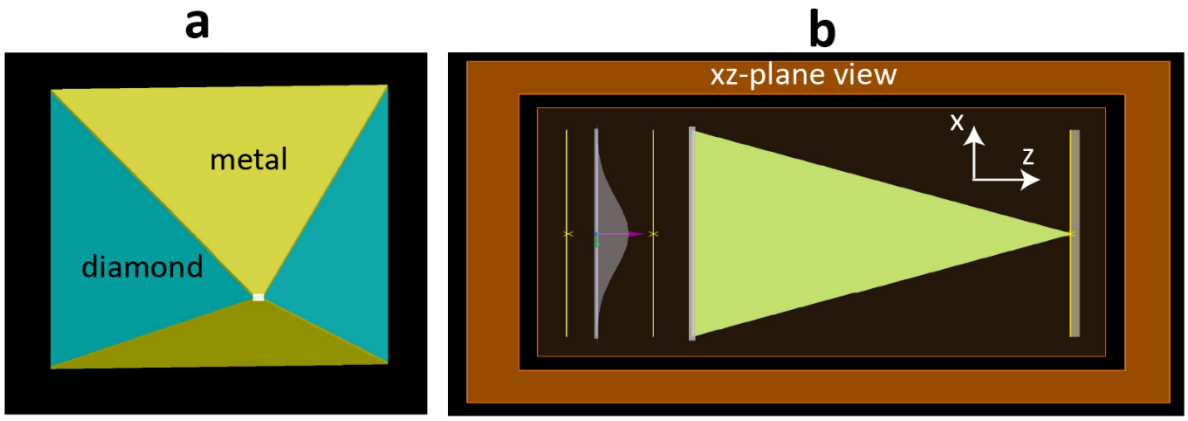
感谢他们提出并支持结合自由电子激光与扫描探针显微镜的构想；同时感谢 Andrei Kirilyuk（FELIX、拉德堡德大学）、Matteo Savoini（苏黎世联邦理工学院，瑞士）和 Sam Khorsand（阿斯麦，荷兰）进行了富有启发性的讨论。我们感谢 Dutch Diamond Technologies（荷兰）的 Loek van den Boom 精湛地制作金刚石钟形探针，也感谢布鲁克有限公司的 Peter De Wolf 和 Hartmut Stadler 提供专业技术建议，支持扫描探针显微镜的集成。作者感谢诺丁汉大学的 Zakhar Kudrynskyi 提供 GaSe 块体晶体。

作者贡献

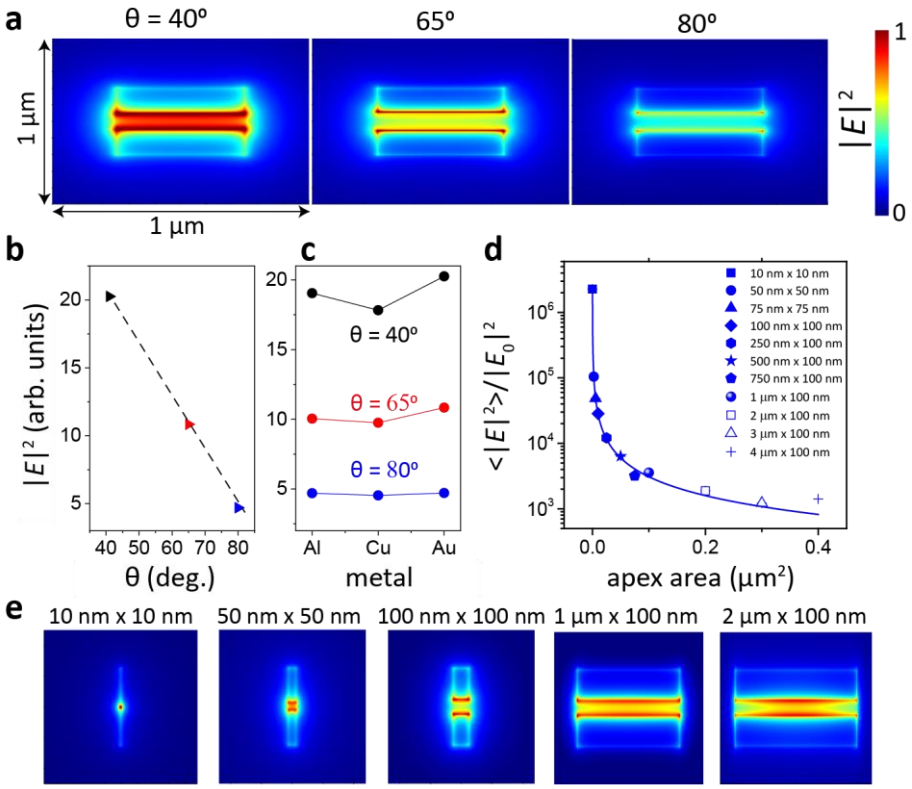
O.V.K.和B.R.发起并构思了该项目；O.V.K.和R.M.设计了金刚石钟楼四棱锥，并将其集成到Bruker Innova显微镜中。R.M.搭建了远场和近场配置下的测量装置，并对金刚石钟形探针进行了金属化。R.M.和K.A.进行了时域有限差分仿真并分析了结果。O.V.K.设计了用于低噪声和中红外探测的电子设备，采用热释电探测器。N.D.C.、B.T.D.和A.P.对石墨烯器件和GaSe/石墨烯器件进行了表征。R.M.、N.D.C.、B.T.D.和N.D.使用量子级联激光器和自由电子激光测量了器件的光伏响应。R.M.起草了论文初稿，所有合著者共同完成了最终版本。O.V.K.负责监督该项目。

补充信息

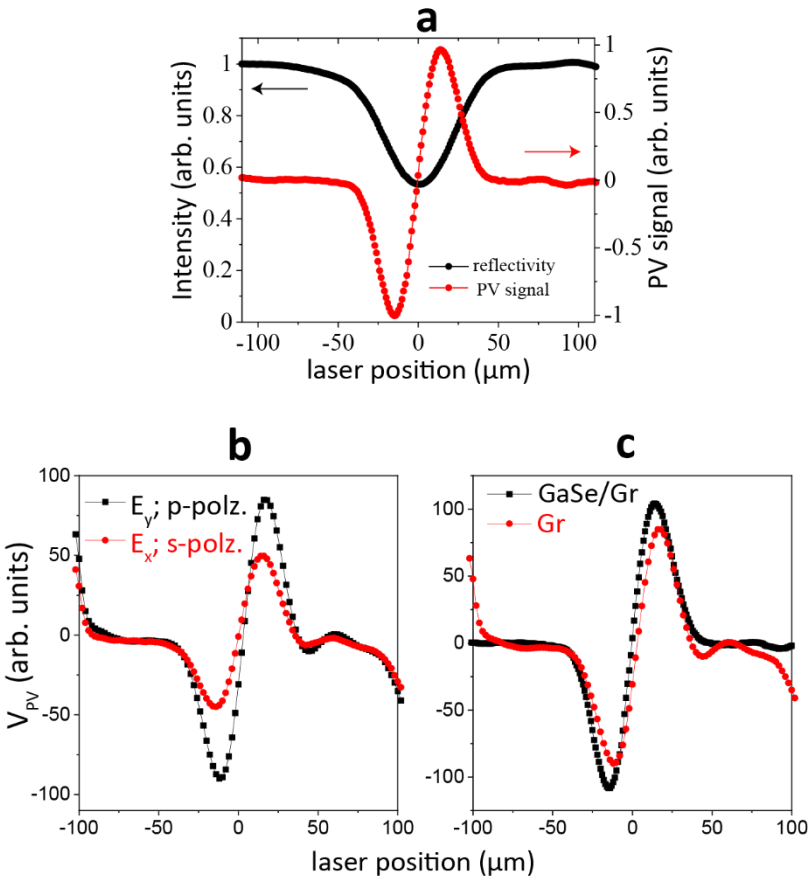
亚波长中红外成像
利用金刚石钟形探针对局部驱动的光电流进行成像



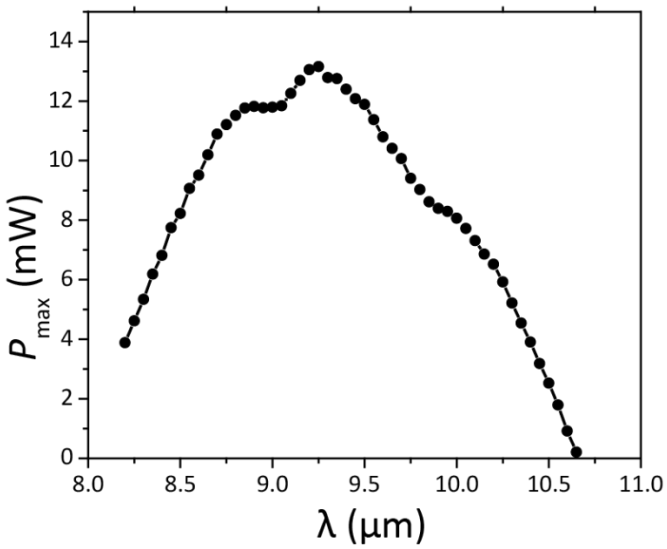
补充图1. 时域有限差分模拟设置。(a) 模拟中使用的金属/金刚石/金属（金属/绝缘体/金属；MIM）钟形金字塔结构示意图。(b) 所示为仿真方案的 xz 平面视图。黄色竖线表示二维监视器，用于采集模拟区域内不同位置的场分布。此外，在尖端中心外数纳米处设置了一个点监视器，用于测量局域场强度。紫色箭头表示入射光脉冲（灰色高斯脉冲）的传播方向。金字塔底部的开口为 15 μm x 15 μm，而尖端尺寸经过了调整。为改变 θ 的值，底部与尖端之间的距离也进行了调整。



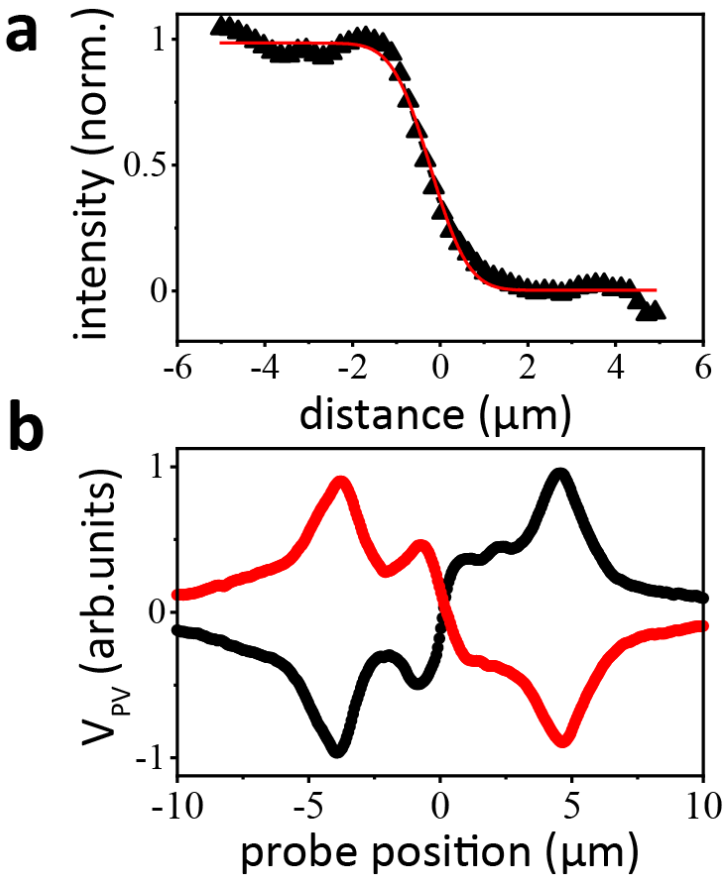
补充图2。时域有限差分模拟——中红外近场*E*-场分布及 MIM钟形金字塔尖端处的强度分析。(a) 展示了三种不同尖端角下 MIM钟形金字塔尖端处 *E*-场强度分布的 xy平面视图；分别为 θ = 40^0、65_0 和 80^0。这些情况展示了绝热光斑效率随尖端角的变化；随着 θ 减小，场约束明显增强。(b) 绘出了图像原点（尖端中心）处像素的积分*E*-场强度随 θ 的变化。(d) 同样展示了使用三种不同元素（铝、铜和金）对金字塔进行金属化时的尖端处积分*E*-场强度。(e) 面积平均强度增强 $\langle|E|^2\rangle/|E_0|^2$ 随尖端面积的变化。这里，$|E_0|$ 是入射*E*-场的振幅。蓝色实线表示对模拟数据进行的幂律拟合。不同符号对应仿真中使用的不同尖端 (x, y) 尺寸。(e) *E*-场强度 $|E|^2$，展示了五种不同尖端尺寸 (x, y) 下尖端平面处的场局域化。



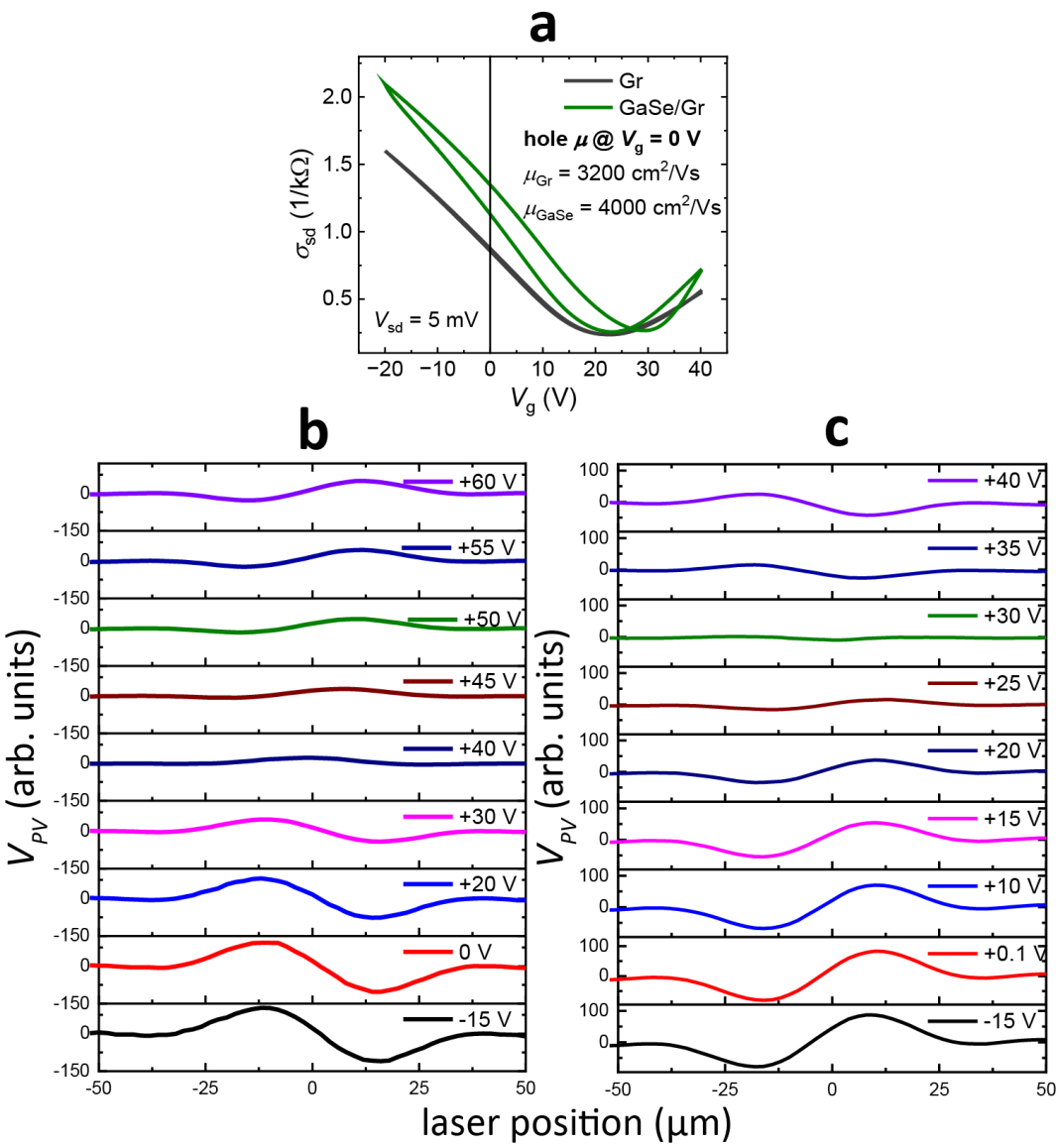
补充图 3. 远场测量：偏振和样品叠层的依赖性。 绘出了正文图 3(a)（黑色）和 3(b)（红色）所示图像中心处的水平线剖面，对应反射率和 V_{PV} 响应。(a) 在石墨烯器件中测得的 V_{PV} 信号的水平线剖面，激发激光偏振相互正交。(b) 与 (a) 相同，但针对给定的激发激光偏振 E_Y，分别在 GaSe/石墨烯（黑色）和石墨烯（红色）器件中测量，显示出几乎相同的趋势。



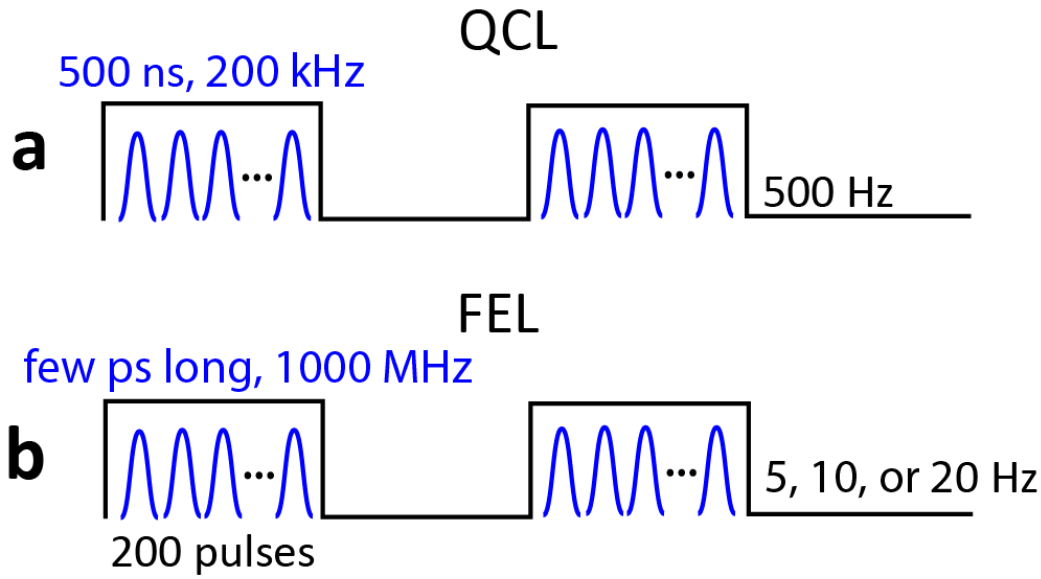
补充图 4. 最大激光功率随工作波长的变化。图中绘出了由量子级联激光器产生、在样品平面处的最大激光功率与 λ 的关系。



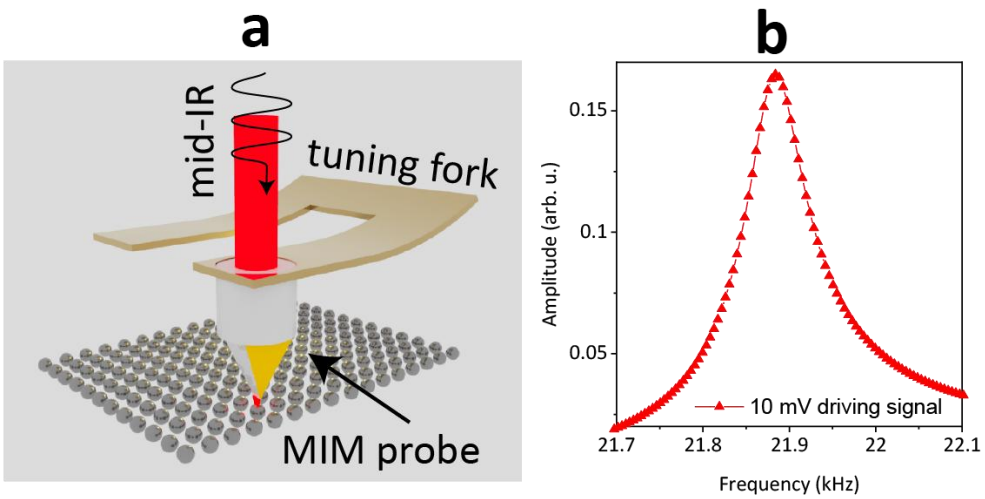
补充图5. 近场测量——绝热光斑校准及 GaSe/石墨烯器件的近场响应。(a) 沿金接触区与样品区域之间的边界，在水平 10 微米长度范围内测得的归一化反射光强度线剖面（见正文图4b）。(b) 变压器沿水平方向扫描器件中心 20 微米距离时测得的V_{PV} 响应（见正文图4c）。图中还显示了 Au 接触端极性反转时的V_{PV} 响应。



补充图6. 远场测量：背栅电压依赖性。源漏电导率，σ_{Sd} 随背栅电压V_g 变化，分别对应石墨烯（黑色）和 GaSe/石墨烯（绿色）器件，并标示各自狄拉克点的位置。(b、c) 对于跨越狄拉克点扫描的不同V_g 值，在石墨烯器件（b）和 GaSe/石墨烯器件（c）中测得的V_{PV} 信号水平线剖面。注意，在两种情况下，狄拉克点上方和下方的峰值V_{PV} 信号极性均发生反转。



补充图 7. 激发激光参数。示意图展示了由量子级联激光器（a）和 FELIX（b）产生的激光脉冲序列。



补充图 8. 用于扫描探针显微镜反馈的音叉共振机制示意图。（a）MIM钟形金字塔安装在 $LiNbO_3$ 音叉的一个叉齿上，作为灵敏的探针，在接近样品表面时维持反馈。此配置可精确控制金字塔尖端与样品表面之间的距离，这对于获得准确测量结果并确保近场测量过程中的稳定性至关重要。（b）展示了由 Bruker Innova 扫描探针显微镜内部的锁相放大器驱动的 $LiNbO_3$ 音叉的共振行为。共振附近的音叉振荡振幅用作反馈信号。