

样品表面银膜的粗糙度对钛酸钡微球成像性能的影响

王建国 杨松林 叶永红

Effect of silver film roughness on imaging property of BaTiO₃ microsphere

Wang Jian-Guo Yang Song-Lin Ye Yong-Hong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 67, 214209 (2018) DOI: 10.7498/aps.67.20180823

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20180823>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I21>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[基于电磁超表面的透镜成像技术研究进展](#)

Research progress of imaging technologies based on electromagnetic metasurfaces

物理学报.2017, 66(14): 144208 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.144208>

[基于微球透镜的任选区高分辨光学显微成像新方法研究](#)

Location-free optical microscopic imaging method with high-resolution based on microsphere superlenses

物理学报.2013, 62(3): 034207 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.034207>

[用于 1053nm 高功率脉冲激光的有序介孔减反射膜](#)

Ordered mesoporous antireflective films for 1053 nm high power pulse laser

物理学报.2012, 61(20): 206802 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.206802>

[点缺陷对表面生长动力学标度行为的影响](#)

The effects of point-defects on the dynamic scaling of growing surfaces

物理学报.2012, 61(8): 086801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.086801>

样品表面银膜的粗糙度对钛酸钡微球 成像性能的影响*

王建国 杨松林 叶永红†

(南京师范大学物理系, 南京 210023)

(2018年4月26日收到; 2018年7月5日收到修改稿)

研究了样品表面镀有不同表面粗糙度的银膜对钛酸钡 (BaTiO_3 glass, BTG) 微球成像效果的影响, 发现当银膜表面的粗糙度 (RMS) 从 3.23 nm 增大到 6.80 nm 时, 用直径为 15 μm 的 BTG 微球观察直径为 250 和 580 nm 的微球阵列, 样品的成像范围增大. 另外, BTG 微球还可以清晰分辨原本不可分辨的直径为 200 nm 的微球阵列. 结果表明, 粗糙银膜引起的散射作用和表面等离激元波的局域场增强效应, 使得更多物体的高频信息耦合进微球, 提高了微球成像的分辨率和成像范围.

关键词: 微球, 表面粗糙度, 显微成像

PACS: 42.79.Bh, 68.35.Ct, 42.30.Va

DOI: 10.7498/aps.67.20180823

1 引言

光学显微镜是人类科学史上的一项巨大成就, 被广泛应用于生物、物理和化学等领域. 然而, 由于倏逝波在垂直界面方向复振幅呈指数衰减, 从而无法在远场探测参与成像, 使得传统光学显微镜的分辨率仅能达到 $\lambda/2$ 左右^[1]. 2011年, Wang等^[2]发现了微球的近场聚焦和放大特性, 通过显微镜观察微球对物体所成的放大的像, 在白光照明下, 实现了超分辨成像. 这一成果发表后, 这种微球辅助显微镜成像引起了广泛关注^[3-17]. Darafshen等^[18,19]使用被液体全浸没的高折射率的钛酸钡 (BaTiO_3 glass, BTG) 微球实现了超分辨成像. 此后, Allen等^[20]提出用固态聚二甲硅氧烷 (polydimethylsiloxane, PDMS) 取代液体作为浸没介质. 微球在整个成像系统中作为连接近场中的倏逝波与远场中的传播波的纽带, 由于电场的切向分量在边界处连续, 因而携带物体精细结构部分的倏逝波能够通过微球边界耦合进微球, 形成传播波

进而进行远场成像. 因此, 一种提高微球成像分辨率的思路是将更多近场携带物体精细结构信息的倏逝波耦合进微球, 进而能够提高微球的远场成像效果. Hao等^[21]用酒精半浸没低折射率的 SiO_2 微球, 使得更多光耦合进微球, 增强了微球所成虚像的对比度. Lin和Tsai^[22]将离散的纳米银颗粒作为散射源, 将更多带有物体细节信息的倏逝波转化为传播波, 从而提高了微球的成像分辨率. 在利用微球成像时, 有时需要通过在样品表面镀银以增强样品表面的反射, 不同粗糙度的银膜有着不同的光学特性, 但银膜表面粗糙度对微球成像的影响鲜有研究. 本文研究了样品表面镀有两种不同表面粗糙度 (RMS) 的银膜对直径为 15 μm 的 BTG 微球成像效果的影响. 研究发现, 当银膜的表面粗糙度 RMS 从 3.23 nm 增大到 6.80 nm 时, 用 BTG 微球观察直径为 250, 580 nm 的 SiO_2 微球阵列样品, 样品的像面范围明显增大, 并且可以分辨原本不能分辨的直径为 200 nm 的微球阵列. 我们认为, 在一定范围内, 银膜表面越粗糙, 各个方向散射的光增强, 大角度散射光可以将物体高频信息

* 国家自然科学基金 (批准号: 61475073) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yeyonghong@njnu.edu.cn

耦合进光学系统, 加上表面等离激元波的局域场增强效应能够将更多物体高频信息耦合进微球, 从而提高了微球成像的像面范围和分辨率.

2 实验

如图1所示, 图1(a)为实验装置的示意图, 利用显微镜(Leica DM2500 M)观察BTG微球对SiO₂微球阵列的成像. 在实验中使用了三种不同直径(580, 250和200 nm)的SiO₂微球, 通过自组装的方法对微球进行排列^[23], 形成密排列的SiO₂微球阵列, 进而作为观察的样品. 然后, 用热蒸发的方法, 在微球阵列上沉积30 nm厚的银膜, 采取了两种

沉积速率制备银膜, 沉积速率分别为1.5—3 Å/s和5—10 Å/s. 最后, 在镀有银膜的SiO₂微球阵列上滴加BTG微球, 并旋覆PDMS, 从而达到PDMS全浸没BTG微球的效果. 当样品表面被PDMS层覆盖时, 显微镜的瑞利分辨率极限为261 nm ($r = 0.61\lambda/NA$, $\lambda = 540$ nm, $NA = n \sin \theta$, $n = 1.4$ 是PDMS的折射率, $\sin \theta = 0.9$). 因此, 大尺寸物体(直径为580 nm的微球阵列)远远超过显微镜的分辨极限, 而小尺寸物体(直径为250和200 nm的微球阵列)接近或低于显微镜的分辨极限. 图1(b)为扫描电子显微镜(TEOL YSM-5610LV, SEM)观察到的直径为250 nm的SiO₂微球阵列的图像, 可以看出SiO₂微球为六角密排列.

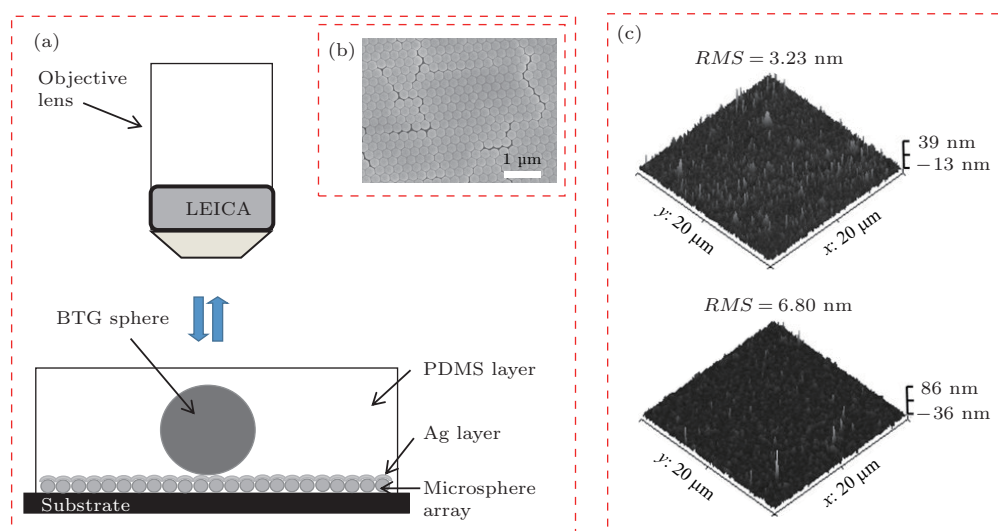


图1 (a) 实验装置图; (b) 直径为250 nm的SiO₂微球阵列SEM图; (c) 不同表面粗糙度银膜的原子力显微镜图像

Fig. 1. (a) Schematic of the experimental setup; (b) SEM image of a 250-nm-diameter SiO₂ microsphere array; (c) AFM images of silver layers with different roughnesses.

此外, 为了具体表征银膜的表面粗糙度, 利用原子力显微镜(Bioscope, AFM)分别对以上两个以不同蒸发速率沉积的银膜表面进行了测量, 结果如图1(c)所示. 结果显示以1.5—3 Å/s蒸发速率沉积的银膜表面的粗糙度RMS为3.23 nm, 以5—10 Å/s蒸发速率沉积的银膜表面的粗糙度RMS为6.80 nm, 表明蒸发速率较低制备的银膜表面更光滑.

3 实验结果与讨论

为具体研究样品表面镀有的不同粗糙度的银膜对BTG微球成像的影响, 先研究了直径为15 μm的BTG微球对直径为250 nm六角密排列的SiO₂

微球阵列样品的成像结果. 图2(a)和图2(b)分别为样品表面镀有RMS = 3.23, 6.80 nm的银膜时, 通过BTG微球观察到的样品的像. 图片右上角Z为BTG微球的像面与微球透镜中心之间的距离, Z = 0时表示像面与微球中心重合. 随着Z值的增大, BTG微球中观察到的SiO₂微球阵列样品会从模糊到清晰, 再到模糊. 此时, 定义BTG微球对样品清晰成像时, Z值的取值区间为像面范围. 从图2(a)可见, 从Z = 10 μm时BTG微球开始对样品清晰成像, 至Z = 16 μm这个范围BTG微球都能对样品清晰成像, 像面范围为6 μm; 从图2(b)可见, 通过BTG微球观察样品所成的虚像, 从Z = 9 μm至Z = 19 μm均可看到物体的清晰图像, 像面范围为10 μm. 通过对比发现, 样品表面

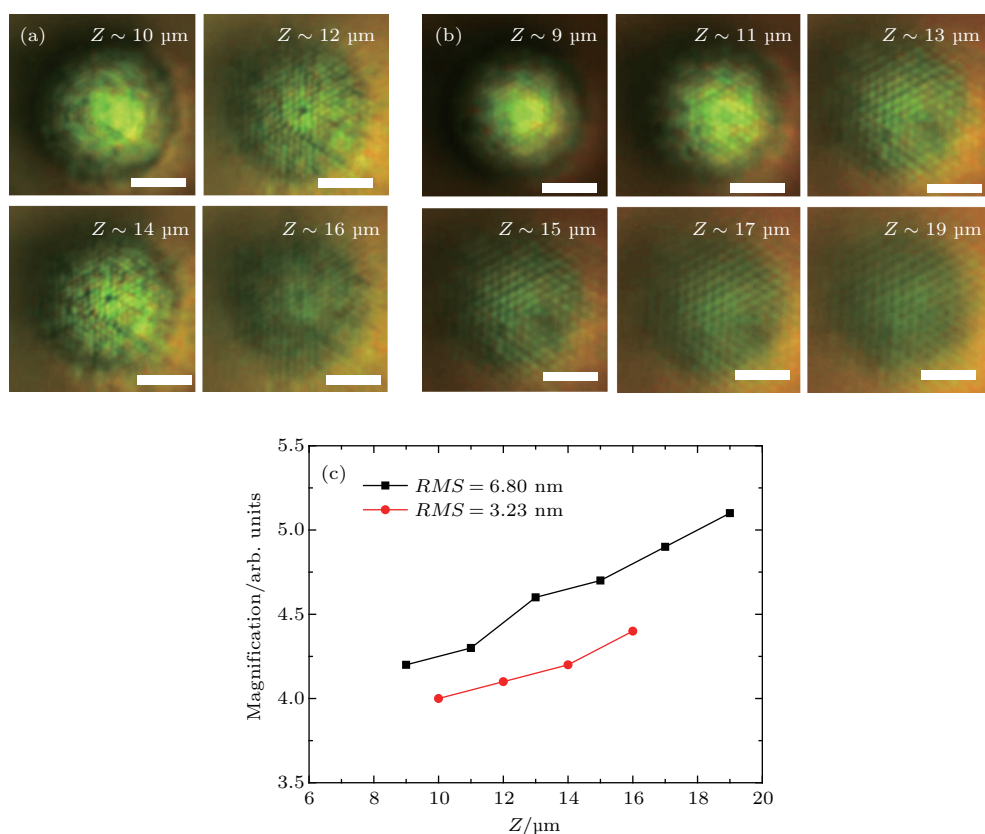


图2 直径为 250 nm 的微球阵列样品表面镀有不同粗糙度的银膜时, 直径为 15 μm 的 BTG 微球的成像结果 (a) $RMS = 3.23$ nm; (b) $RMS = 6.80$ nm; (c) BTG 微球在不同像面位置的成像放大率; 图中标尺为 5 μm

Fig. 2. Optical images of a 250-nm-diameter SiO_2 microsphere array observed through the BTG microsphere. The diameter of the BTG microsphere is 15 μm. The samples are coated by Ag film with different roughnesses: (a) $RMS = 3.23$ nm; (b) $RMS = 6.80$ nm. (c) The magnification as a function of the focal image position. The scale bar is 5 μm.

镀有粗糙度 $RMS = 6.80$ nm 的银膜时, BTG 微球的成像像面范围扩大, 图像清晰度也略有提升. 此外, 还分别对直径为 15 μm 的 BTG 微球在不同成像位置样品的放大率进行了计算和统计, 如图 2(c) 所示. 图 2(c) 中黑色和红色曲线分别为银膜表面粗糙度 RMS 为 6.80 nm 和 3.23 nm 时, BTG 微球的成像放大率. 从图 2(c) 可以看出, 对于银膜的粗糙度 $RMS = 6.80$ nm 的样品, 当像面与微球中心之间的距离从 9 μm 增大到 19 μm 时, BTG 微球的成像放大率从 $4.2 \times$ 变化到 $5.1 \times$, 而对于银膜的粗糙度 $RMS = 3.23$ nm 的样品, BTG 微球的成像放大率仅从 $4.0 \times$ 变化到 $4.4 \times$.

为了进一步探索样品表面镀有不同表面粗糙度的银膜对其他尺寸 BTG 微球成像效果的影响, 还分别对直径为 8—25 μm 的 BTG 微球的像面范围进行了统计. 结果如图 3 所示, 样品表面镀有不同表面粗糙度的银膜时, BTG 微球的像面范围会

发生改变, 样品表面镀有粗糙度 $RMS = 6.80$ nm 的银膜时, 成像范围增大.

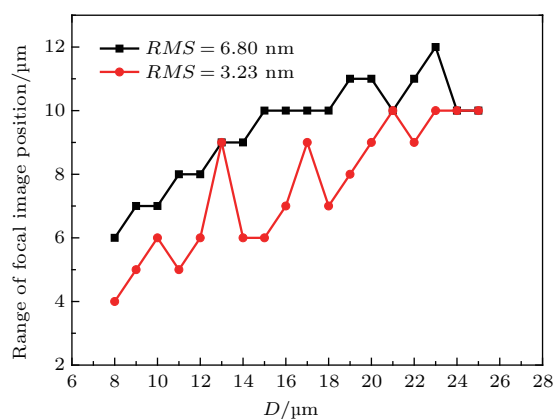


图3 样品表面镀有粗糙度 $RMS = 3.23, 6.80$ nm 的银膜时, 不同直径大小的 BTG 微球的像面范围统计图

Fig. 3. Range of focal image position as a function of the diameter of BTG spheres for samples coated with a Ag layer with different roughnesses ($RMS = 3.23, 6.80$ nm).

我们分别对样品表面镀有以上两种表面粗糙度的银膜时, 直径为15 μm BTG微球对直径为200和580 nm的微球阵列的成像结果进行了研究. 图4是通过全浸没在PDMS的BTG微球观察直径为200 nm微球阵列的成像结果. 如图4(a)所示, 样品表面镀有粗糙度 $RMS = 3.23$ nm的银膜时, BTG微球不可清晰分辨直径为200 nm的微球阵列. 而如图4(b)所示, 样品表面镀有粗糙度 $RMS = 6.80$ nm的银膜时, BTG微球透镜可清晰分辨直径为200 nm的微球阵列, 且像面范围为4 μm . 此外, 使用直径为9 μm 的BTG微球观察直径为200 nm的微球阵列, 如图4(c)所示, 发现微球阵列仍可清晰分辨, 且像面范围为2 μm . 还以14—17 $\text{\AA}/\text{s}$ 的沉积速率在直径200 nm的微球阵列表面沉积30 nm厚的银层, 然后用直径为15 μm 的BTG微球对微球阵列进行观察, 结果发现不可分辨直径为200 nm的微球阵列, 说明在成像时, 若银层表面粗糙度过大, 反而不利于微球成像. 图5(a)和图5(b)分别是样品表面银膜粗糙度 RMS 为3.23和6.80 nm时, BTG微球对直径为580 nm

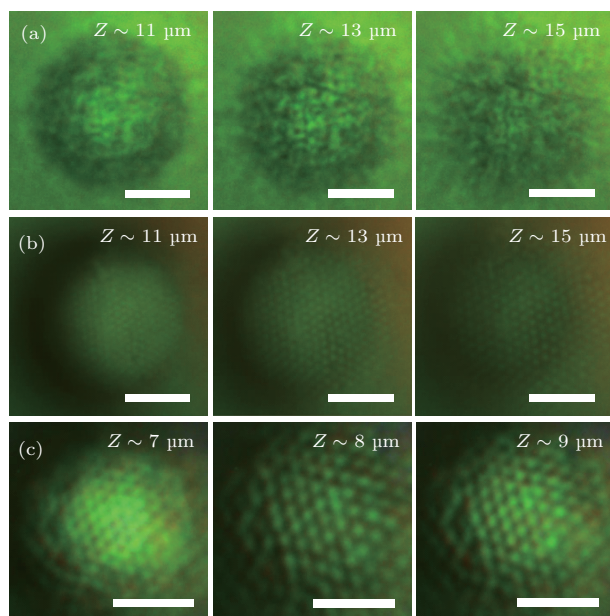


图4 直径为200 nm的微球阵列样品表面镀有不同粗糙度的银膜时, BTG微球的成像结果, 其中银膜的表面粗糙度为(a) 3.23 nm, (b), (c) 6.80 nm; BTG微球直径为(a), (b) 15 μm , (c) 9 μm ; 图中标尺为5 μm

Fig. 4. Optical images of a 200-nm-diameter SiO_2 microsphere array observed through the BTG microsphere. The diameter of BTG microspheres is (a), (b) 15 μm , (c) 9 μm . The samples are coated with a Ag layer with different roughnesses: (a) $RMS = 3.23$ nm; (b), (c) $RMS = 6.80$ nm. The scale bar is 5 μm .

微球阵列的成像情况. 从图5(a)可见, 当阵列表面镀有粗糙度 $RMS = 3.23$ nm的银膜时, 像面范围为10 μm ; 如图5(b)所示, 样品表面镀有粗糙度 $RMS = 6.80$ nm的银膜时, 像面与微球中心之间的距离从8 μm 增大到20 μm , 通过BTG微球均观察到清晰的样品图像, 像面范围为12 μm , 像面范围也略有增大. 以上实验结果说明, 当用BTG微球观察样品时, 样品表面不同表面粗糙度的银膜确实会影响BTG微球的成像分辨率和像面范围.

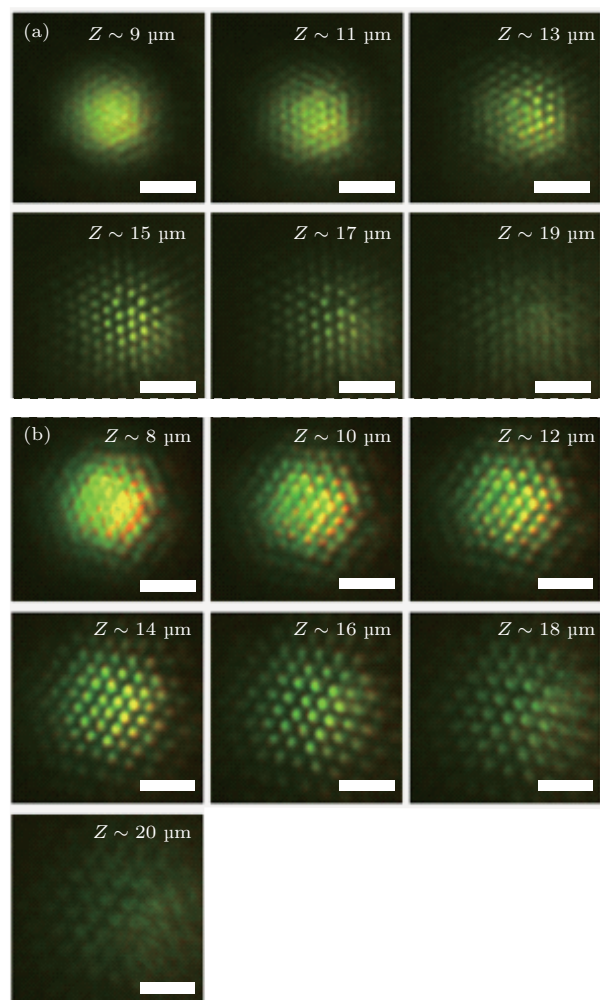


图5 直径为580 nm的微球阵列样品表面镀有不同粗糙度的银膜时, BTG微球的成像结果, 其中银膜的表面粗糙度为(a) 3.23 nm, (b) 6.80 nm; BTG微球直径为15 μm ; 图中标尺为5 μm

Fig. 5. Optical images of a 580-nm-diameter SiO_2 microsphere array observed through a 15- μm -diameter BTG microsphere. The samples are coated with a Ag layer with different roughnesses: (a) $RMS = 3.23$ nm; (b) $RMS = 6.80$ nm. The scale bar is 5 μm .

将BTG微球置于样品表面时, 微球能够收集近场中带有物体精细结构信息的电场能量参与成像. Wang等^[2]在实验中证明, 在样品表面镀有金

膜后, 通过激发表面等离子激元, 不仅能够增强微球的成像分辨率, 而且能够提高微球的成像放大率. 而在样品表面银膜同样可以激发表面等离子激元波, 表面等离子激元波的局域场增强效应可以增强倏逝波的强度, 并且粗糙表面局域场增强效应更强^[24], 银与金同样可以产生表面等离子体波, 可能会产生同样的现象^[25]. 利用 COMSOL 软件对表面镀有银膜的微球阵列表面的电场分布进行了模拟, 图 6(a) 和图 6(b) 是微球阵列表面分别镀有光滑银层与粗糙银层时的电场强度分布. 如图 6(a) 所示, 微球阵列表面镀有光滑银层时, 电场仅在相邻微球间隙处产生增强. 而当微球表面镀有粗糙表面的银层时, 如图 6(b) 所示, 电场不仅仅在相邻微球间隙处产生增强, 在粗糙银颗粒处也产生了明显的电场增强现象, 说明粗糙银层表面更有利于产生局域电场增强现象. 所以认为表面等离子激元波的局域场增强效应也是 BTG 微球成像分辨率提高以及像面范围增大的原因之一. 此外, 当光照射在粗糙程度较大的银膜表面时, 沿各个方向散射的光增强, 并且大角度散射光可以将物体高频信息耦合进光学系统, 会将更多带有物体高频信息的电场能量能够耦合

进 BTG 微球, 并传播到远场参与成像. 所以, 我们认为这也是 BTG 微球成像分辨率提高以及像面范围增大的原因之一.

4 结 论

本文研究了镀在样品表面银膜的粗糙度对 BTG 微球成像特性的影响, 发现相比较于表面粗糙度 $RMS = 3.23$ nm 的银膜, $RMS = 6.80$ nm 的银膜更有利于 BTG 微球进行成像. 当样品表面的银膜粗糙度 $RMS = 6.80$ nm 时, 对于直径为 250 和 580 nm 的微球阵列, BTG 微球的像面范围扩大; 并且可以观察到原本不能分辨的直径为 200 nm 的微球阵列. 我们认为这是由于粗糙银膜引起的散射作用和表面等离子激元波的局域场增强效应, 使更多物体的高频分量进入微球参与成像, 从而提高 BTG 微球透镜的成像分辨率并增大成像范围. 这种通过改变样品表面银膜的粗糙度, 提高 BTG 微球透镜的成像分辨率和成像范围的方法, 为提高微球的成像质量提供了另一种思路.

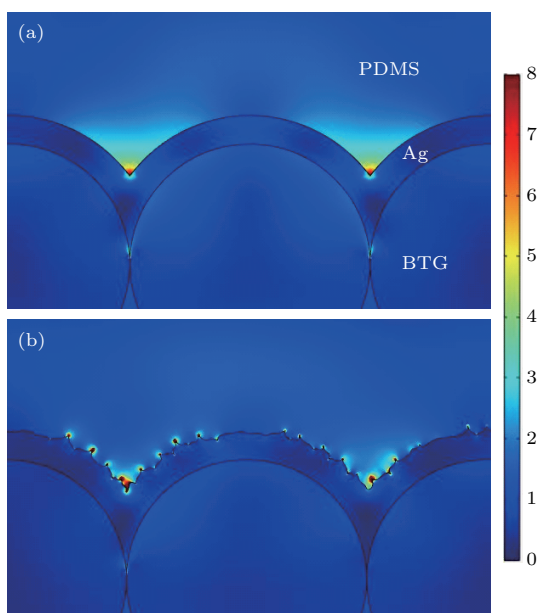


图 6 微球阵列表面分别镀有 (a) 光滑银层与 (b) 粗糙银层时的电场强度分布, 其中微球 $d = 250$ nm, 银层厚度为 30 nm, 入射光中心波长为 540 nm

Fig. 6. Electric field intensity distribution of (a) a smooth silver layer and (b) a rough silver layer, coated on the surface of the microsphere array. The diameter of the microsphere is 250 nm, and the silver layer thickness is 30 nm. The center wavelength of the incident light is 540 nm.

参考文献

- [1] Abbe E 1873 *Archiv. Mikroskop. Anat.* **9** 413
- [2] Wang Z, Guo W, Li L, Luk'Yanchuk B, Khan A, Liu Z, Chen Z, Hong M 2011 *Nat. Commun.* **2** 218
- [3] Li L, Guo W, Yan Y, Lee S, Wang T 2013 *Light: Sci. Appl.* **2** 72
- [4] Wang S, Zhang D, Zhang H, Han X, Xu R 2015 *Microsc. Res. Tech.* **78** 1128
- [5] Lin Q, Wang D, Wang Y, Rong L, Zhao J, Guo S, Wang M 2016 *Opt. Quant. Electron.* **48** 557
- [6] Guo H, Han Y, Weng X, Zhao Y, Sui G, Wang Y, Zhuang S 2013 *Opt. Express* **21** 2434
- [7] Hao X, Liu X, Kuang C, Li Y 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 013104
- [8] Wang S Y, Zhang H J, Zhang D X 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 034207 (in Chinese) [王淑莹, 章海军, 张冬仙 2013 物理学报 **62** 034207]
- [9] Li J, Liu W, Li T, Rozen I, Zhao J, Bahari B, Kante B, Wang J 2016 *Nano Lett.* **16** 6604
- [10] Lai H S S, Wang F, Li Y, Jia B, Liu L, Li W J 2016 *Plos One* **11** e0165194
- [11] Wang F F, Liu L Q, Yu H, Wen Y D, Yu P, Liu Z, Wang Y C, Li W J 2016 *Nat. Commun.* **7** 13748
- [12] Krivitsky L A, Jia J W, Wang Z, Luk'Yanchuk B 2013 *Sci. Rep.* **3** 3501
- [13] Yang H, Moullan N, Auwerx J, Gijs M A 2014 *Small* **10** 1712
- [14] Wu L, Zhu H, Yan B, Wang Z, Zhou S 2015 *J. Mater. Chem. C* **3** 10907

- [15] Yan B, Yue L, Wang Z 2016 *Opt. Commun.* **370** 140
 [16] Lee S, Li L, Wang Z 2014 *J. Opt.* **16** 015704
 [17] Zhou R, Wu M X, Shen F, Hong M H 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 140702 (in Chinese) [周锐, 吴梦雪, 沈飞, 洪明辉 2017 物理学报 **66** 140702]
 [18] Darafsheh A, Limberopoulos N I, Derov J S, Walker Jr D E, Astratov V N 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 061117
 [19] Darafsheh A 2017 *Opt. Lett.* **42** 735
 [20] Allen K W, Farahi N, Li Y, Limberopoulos N I, Walker D E, Urbas A M, Liberman V, Astratov V N 2015 *Ann. Phys.* **527** 513
 [21] Hao X, Kuang C, Liu X, Li Y 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 203102
 [22] Lin Y H, Tsai D P 2012 *Opt. Express* **20** 16205
 [23] Ye R, Ye Y H, Zhou Z T, Xu H H 2013 *Langmuir* **29** 1796
 [24] Shi S, Zhang Z Y, He M Y, Li X P, Yang J, Du J L 2010 *Opt. Express* **18** 10685
 [25] Duan Y B, Barbastathis G, Zhang B L 2013 *Opt. Lett.* **38** 2988

Effect of silver film roughness on imaging property of BaTiO₃ microsphere*

Wang Jian-Guo Yang Song-Lin Ye Yong-Hong[†]

(Department of Physics, Nanjing Normal University, Nanjing 210023, China)

(Received 26 April 2018; revised manuscript received 5 July 2018)

Abstract

Due to the Abbe diffraction limit, the resolution of a traditional optical microscopy is limited to about half of the illumination wavelength. Recent studies show that super-resolution imaging through dielectric microsphere has emerged as a simple imaging technique to overcome the diffraction limit under the illumination of white light. However, for imaging through microsphere, sometimes it is needed to enhance the reflection of a sample by depositing a metallic thin film on the top of the sample. Metallic thin films with different surface roughness have different optical properties. However, the effect caused by the surface roughness of a metallic film on microsphere imaging is rarely studied. In this paper, we study the effects of silver films with different surface roughness deposited on the surfaces of samples on the imaging properties of BaTiO₃ (BTG) microspheres. Silver thin films are deposited respectively at evaporation rates of 1.5–3 Å/s and 5–10 Å/s, and the surface roughness values (root mean square (RMS) values) of the obtained silver films are about 3.23 nm and 6.80 nm, respectively. Using a BTG microsphere to observe a sample with a silver film deposited on its surface, we find that the surface roughness of the silver film will affect the imaging resolution and the range of focal image position (RFIP) of the BTG microsphere. When we use a 15-μm-diameter BTG microsphere to observe a 250-nm-diameter microsphere array and 580-nm-diameter microsphere array, the RFIP of the BTG microsphere increases with the RMS of the silver film increasing from 3.23 to 6.80 nm. Moreover, a 200-nm-diameter microsphere array can also be clearly discerned. The simulation results obtained by the commercial software COMSOL show that when the surface of a microsphere array sample is deposited with a rough silver film, the electric field intensity is enhanced not only in the gaps between adjacent microspheres, but also on the silver particles due to the excitation of localized surface plasmons. We propose that the scattering effect and the local electric field intensity enhancement caused by the rough silver film allow more high-frequency information of the sample to be coupled into the BTG microsphere, and thus improving the resolution and RFIP of the microsphere. As the imaging law of microsphere imaging still needs to be explored, our research work will be helpful in further revealing the mechanism in microsphere imaging.

Keywords: microsphere, surface roughness, microscopic imaging

PACS: 42.79.Bh, 68.35.Ct, 42.30.Va

DOI: 10.7498/aps.67.20180823

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61475073).

† Corresponding author. E-mail: yeyonghong@njnu.edu.cn