物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

阴极荧光在表面等离激元研究领域的应用

姜美玲 郑立恒 池骋 朱星 方哲宇

Research progress of plasmonic cathodoluminesecence characterization

Jiang Mei-Ling Zheng Li-Heng Chi Cheng Zhu Xing Fang Zhe-Yu

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 144201 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.144201
在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.144201
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I14

您可能感兴趣的其他文章
Articles you may be interested in

面阵探测下的污染云团红外光谱仿真
Simulation of pollutant-gas-cloud infrared spectra under plane-array detecting
物理学报.2017, 66(11): 114203 http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.114203

基于叠层衍射成像的二元光学元件检测研究
Detection of the binary optical element based on ptychography
物理学报.2017, 66(9): 094201 http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.094201

基于gyrator变换和矢量分解的非对称图像加密方法
Asymmetric image encryption method based on gyrator transform and vector operation
物理学报.2016, 65(21): 214203 http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.214203

并行化叠层成像算法研究
Ptychographical algorithm of the parallel scheme
物理学报.2016, 65(15): 154203 http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.154203

半波片角度失配对通道调制型偏振成像效果的影响及补偿
Effect of half wave plate angle mismatch on channel modulating imaging result and its compensation
物理学报.2016, 65(13): 134202 http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.134202

专题: 电磁波衍射极限

阴极荧光在表面等离激元研究领域的应用*

姜美玲# 郑立恒# 池骋 朱星 方哲宇†

(北京大学物理学院, 人工微结构和介观物理国家重点实验室, 北京 100871)

(2017 年 4 月 11 日收到; 2017 年 5 月 2 日收到修改稿)

表面等离激元以其独特的光学性质广泛应用于纳米尺度的局域电磁场增强、超高分辨成像及微弱光电探测. 阴极荧光是电子与物质相互作用而产生的光学响应, 利用电子束激发金属纳米结构能够实现局域等离激元共振, 并在亚波长尺度实现对共振模式的调控, 具有超高空间分辨的成像特点. 阴极荧光探测通常结合扫描电子显微镜或透射电子显微镜而实现, 目前已被应用于表面等离激元的探测及共振模式的分析. 本文从阴极荧光物理机理出发, 综述了单一金属纳米结构和金属耦合结构的等离激元共振模式阴极荧光研究进展, 并总结了阴极荧光与角分辨、时间分辨以及电子能量损失谱等关键技术相结合的应用, 进一步分析了其面临的关键问题, 最后展望了阴极荧光等离激元研究方向.

关键词: 阴极荧光, 表面等离激元, 亚波长, 金属纳米结构

PACS: 42.30.–d, 33.50.Dq, 41.75.Fr **DOI:** 10.7498/aps.66.144201

1 引 言

类似于光和物质的相互作用, 当电子入射到物质表面时, 其较高的能量可以将物质基态电子激发到高能级. 被激发的电子进一步弛豫, 并以辐射的形式释放出的荧光称为阴极荧光 (cathodoluminescence, CL). CL 探测技术作为一种超高空间分辨的表征手段, 在等离激元成像及模式分析方面有着重要的应用, 并可在亚波长尺度实现对共振模式的调控. CL 探测技术通常和扫描电子显微镜 (scanning electron microscope, SEM) 以及透射电子显微镜 (transmission electron microscope, TEM) 配合使用, 被广泛应用于半导体和金属材料特性的研究.

19 世纪中期, 人们发现当阴极射线入射到放电管的玻璃表面, 放电管能够发出荧光, 自此在工业界掀起一阵寻找荧光材料的热潮. 至 20 世纪, 荧光已被广泛用于成像, 阴极射线管的发明使电视屏幕呈现出彩色的画面. 在材料特性分析方面 [1], CL 探测技术提供了一种有效的表征物质微观结构的方法, 同时实现了对材料的低损伤探测. 在矿物研究中, 主要用于分析物质的成分、检测内部的结构 [2−4]; 对于半导体材料, 探测表面位错分布、物质能带结构及其发光特性 [5,6]; 对于生物样品, 可结合荧光标记的分子来追踪细胞的动态过程 [7,8].

近年来, CL 探测技术开始应用于微纳光子学研究领域. 当电子入射到金属材料表面时, 能够在金属和介质界面处激发自由电子气的集体振荡, 即表面等离激元 (surface plasmons, SPs) [9]. 通过等离激元共振辐射出的荧光, 进而实现对等离激元模式的分析及光谱探测. 电子激发金属等离激元

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2017YFA0205700, 2015CB932403, 2017YFA0206000)、国家自然科学基金 (批准号: 61422501, 11674012, 11374023, 61176120, 61378059, 61521004)、北京市自然科学基金 (批准号: L140007) 和教育部全国优秀博士学位论文专项基金 (批准号: 201420) 资助的课题.

共同第一作者.

† 通信作者. E-mail: zhyfang@pku.edu.cn

© 2017 中国物理学会 Chinese Physical Society

的过程, 可以用时域有限差分方法 (finite difference time domain, FDTD) 进行模拟. 其中, 运动的电子被等效为线电流密度, 在频域上, 可以由一系列在空间上离散、时间上具有相位延迟的电偶极子来代替. 在离散的空间和时间上求解麦克斯韦方程组, 获得电子激发下系统的 CL 光学响应. 等离激元 CL 的初期研究主要集中在如纳米线 [1]、纳米盘 [11]、环形共振腔 [12] 等单一金属纳米结构的共振模式分析, 以及电子入射方向的局域辐射光子态密度调控 [13]. 随着研究的深入, 研究内容逐渐扩展到耦合结构, 包括等离激元多聚体 [14]、针尖耦合 [15] 等. 由于电子激发等离激元通常会产生多种模式, 各种模式的共振强度与电子的激发位置有关, 因此阴极荧光能反映出金属纳米结构不同于光学激发的性质. 利用电子激发金属纳米结构的不同部位, 并将得到的各 CL 图像进一步合成, 便可以获得结构的三维空间信息 [16]. 此外, CL 探测技术还能够直接观测到手性结构的不同旋光模式分布等 [17,18].

2 阴极荧光概述

2.1 金属纳米结构产生阴极荧光的物理机理

利用电子激发等离激元是探究物质内部结构的重要手段之一. 如图 1 (a) 所示, 当一束电子垂直入射到样品表面 [19], 除了样品对入射电子的吸收之外, 入射电子还会发生散射 [20], 例如二次散射电子、俄歇电子、背散射电子、X-射线以及分布在紫外、可见光和红外波段的 CL 信号. 电子束照射到样品表面, 电子与样品的相互作用能够激发金属纳米结构表面自由电子的集体振荡, 产生 SPs [11,21,22]. SPs 具有两种形式: 在金属-介质的界面上激发, 并沿着表面传播, 称为传播型表面等离激元 (surface plasmon polariton, SPP); 当金属纳米颗粒的直径 $d \ll \lambda$ (激发源的波长) 时, 自由电子气被局限在纳米颗粒周围, 称为局域表面等离激元 (localized surface plasmon, LSP). 如图 1 (b) 所示, 在激发等离激元的过程中产生 CL 的方式有三种 [23]: 1) 激发的 LSP 在衰变过程中辐射出 CL; 2) 样品表面的电子激发过程 (如电子-空穴对) 不稳定, 电子能量超过费米能级, 使得电子跃迁到激发态, 又弛豫回基态产生 CL; 3) 电子由基态跃迁到激发态, 弛豫到较低能级的激发态产生 CL.

表征等离激元纳米颗粒的传统方法是利用消光谱测量在光学激发下粒子的吸收或散射谱中的峰值, 其峰值代表等离激元的共振频率 [24], 然而由于光子波长较长, 光学激发只能激发低频等离激元模式, 高频模式则由于动量不匹配而难以激发. 而利用能量较高的电子来激发等离激元共振可以突破这一局限, 获得包括面内四极子, 面外偶极子在内的高阶模式. CL 发光强度能够反映出沿电子束传播方向的局域光子态密度并直观成像 [25]. 光学激发需要通过相位匹配来实现激发 SPP; 对于电子激发, 只要在入射电子束的发射角足够小的情况下, 便可以根据其电子能量和动量的改变来研究 SPP 的色散曲线.

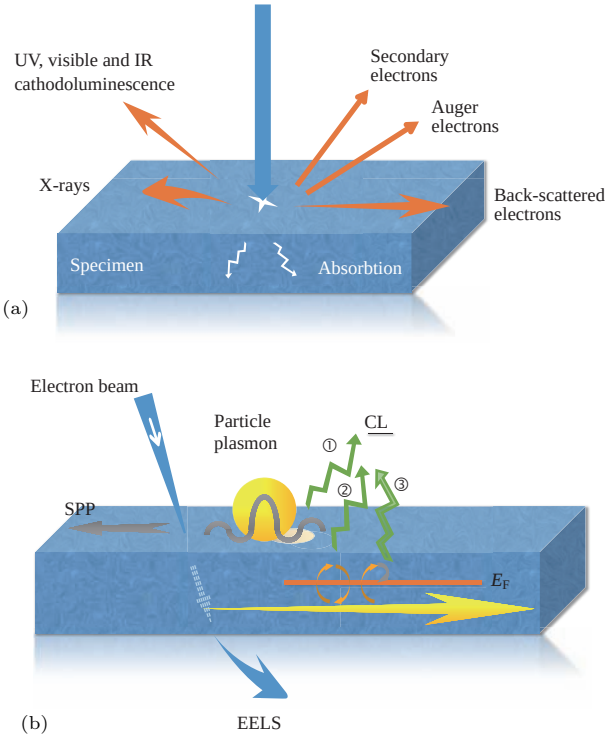


图 1 (a) 电子束照射样品表面产生散射电子及辐射阴极荧光的示意图; (b) 电子束照射激发表面等离激元并产生阴极荧光的示意图

Fig. 1. (a) Schematic of different scattered electrons and radiating CL under the illumination of electron beam; (b) schematic of launching SPs and generating CL stimulated by electron beam.

2.2 阴极荧光探测技术

在 SEM 中, 电子枪发射的电子束通过透镜聚焦为纳米尺度的束斑, 轰击金属样品表面, 激发等离激元共振从而产生 CL 信号 [19]. 辐射出的 CL 信号经过样品台和极靴之间的抛物面镜反射变成平

行光束(图2), 通过一系列透镜的聚焦和反射作用进入分光仪[26]. 为了获得最大收集效率, 样品必须放在抛物面镜的焦点处. 探测器采集到的CL信号经处理转化成电信号, 从而进行成像和光谱探测. 其收集模式主要分为单色模式(monochromatic mode)和全色模式(panchromatic mode)两种[25]. 通过分光仪可实现工作模式的切换. 单色模式只收集特定波长处的发光信息, 在不同波长下采集到的单色谱出现差异则说明样品具有波长依赖性; 全色模式能收集一定波长范围的发光信号, CL图像中的每个像素点强度代表探测器收集到的光子总量. CL探测技术可以有两种不同数据处理方式: 阴极荧光谱(CL spectrum)和阴极荧光成像(CL image). 阴极荧光谱是以波长或能量为横坐标、发光强度为纵坐标的光谱图; 阴极荧光成像是利用扫描线圈对样品表面进行线扫(line scan)或区域扫描(area scan), 根据荧光信号强度不同, 转化成电信号进而成像.

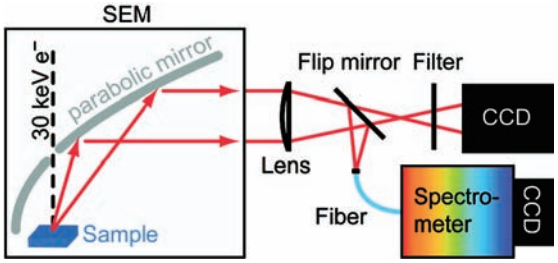


图2 扫描电子显微镜中实现阴极荧光探测的实验装置示意图[26]

Fig. 2. Schematic view of the experimental CL detecting setup equipped on SEM.

3 阴极荧光在单一金属纳米结构中的应用

等离激元纳米光学器件通过SPP独特的色散关系以及能量局域效应突破了光学衍射极限[27−30], 同时因其继承了传统光学器件的宽频性, 为未来集成光学回路的构筑提供了可行的解决方案[31,32]. 金属纳米结构表面等离激元的激发及其共振模式分析是近年来的研究热点. CL探测技术的超高分辨成像, 使得等离激元纳米尺度的共振模式分析成为可能. 早期的CL等离激元研究主要围绕单一金属纳米结构开展, 如纳米光栅、纳米波导、纳米天线及纳米微腔等.

图3(a)展示的是利用电子束激发的金属纳米光栅SPP传播特性研究[33]. 通过电子束激发金膜产生等离激元并在界面传播, 利用金属光栅结构获得SPP的辐射荧光. 记录每个图像点的荧光强度, 可实现对SPP的表征. 令x, y坐标轴表示探测平面, z轴为光谱强度, 采集该三维空间的光谱信息, 即可获得CL特定波长的空间光强分布及线性发射强度分布等信息.

CL探测技术还可用于研究单一金纳米线中等离激元的本征模式[10]. 图3(b)展示了在电子束激发下的金纳米线等离激元在三个不同探测波长的共振模式分布图. 对于592 nm的探测波长, 可观察到四个轮廓分明的光强极大值, 而对于640 nm以及730 nm的探测波长, CL图像仅出现了三个光强极大值, 说明在电子束的激发下, 金纳米线可被激发出多种共振模式.

金属纳米天线也是等离激元CL研究的一大热点. 对于传统的光学激发手段, 入射光的方向与偏振对等离激元共振模式有着很大的影响, 由于结构对称性的限制, 正入射只能部分激发纳米天线的等离激元共振模式, 而其他模式则需要通过改变入射角度进行激发. 然而, 利用电子束激发金属纳米结构, 则可以同时激发所有等离激元共振模式[13]. 例如, SPP可以在纳米天线的上下表面传播并耦合, 产生长程和短程两种不同的共振模式, 传统光散射实验只能观察到短程SPP中的奇模, 但利用CL探测技术还可以观察到偶模(图3(c)). 图3(d)给出了纳米天线结构的CL图像及SPP共振对应的纳米线宽度, 计算可得不同结构树宽度的SPP及短程SPP的驻波解. 比较CL与短程SPP可以看出, 探测得到的CL信号不止包含短程SPP, 还有其他共振模式的存在, 因此引入长程SPP, 计算得到其驻波解, 通过与短程SPP等比例叠加, 获得了与CL强度曲线的定量符合.

金属光学微腔, 产生的SPP在较小的模式体积中对光有着较强的局域效应, 同时具有可调谐的色散性质[34], 因此成为了集成光学回路中的一个重要组成部分. 它可作为LED和激光的发射光源, 应用于量子光学与通信[35−37], 在纳米光学器件中有着广阔的发展前景. 图4(a)给出了金纳米共振腔的扫描电镜图像以及不同波长下的CL图像[12], 共振腔由中心平面与环形光栅组成, 利用CL探测技术可以对金共振腔成像, 并用有限元方法(finite element method, FEM)对腔内等离激元共振模式进行模拟和分析. 图4(b)给出了金属-绝缘体-金属

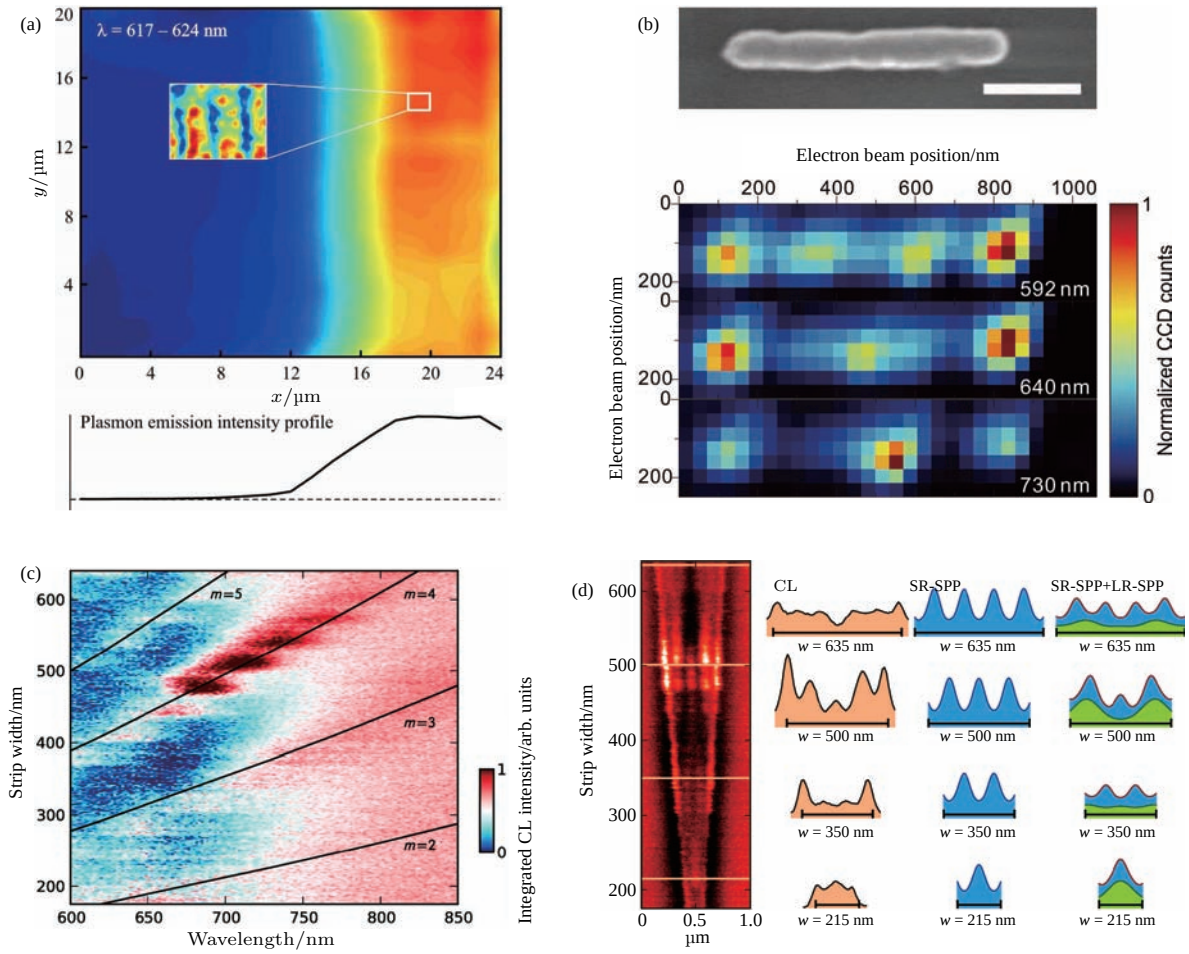


图 3 (a) 金纳米光栅的等离激元 CL 成像[33]; (b) 金纳米线扫描电镜图像以及在 592, 640, 730 nm 探测波长处的金纳米线 CL 图像[10]; (c) CL 信号与天线结构宽度及探测波长之间的关系, 四条线代表四个共振模式[13]; (d) 结构的 CL 图像及短程与长程 SPP 模式叠加的驻波强度[13]

Fig. 3. (a) CL image of Au grating structure[33]; (b) SEM image of Au nanowire and the CL images of the Au nanowire at wavelengths of 592, 640, and 730 nm [10]; (c) the relationship among the CL signal, the strip width and the emission wavelength, four lines represent four resonant modes[13]; (d) CL images of the structure, the calculated intensity of SPP standing waves for short-range and long-range SPP modes [13].

(metal-insulation-metal, MIM) 纳米圆盘共振腔结构示意图[11], 圆盘直径为 2 μm. 通过描述 CL 强度与电子束激发位置及探测波长的关系展现出共振腔中多个共振模式 (如图 4 所示). 利用一种电介质圆盘共振腔的模型 (有效折射率源于平面 MIM 等离激元的色散关系) 分析共振腔的模式, 同时用边界元方法 (boundary element method, BEM) 解麦克斯韦方程组, 模拟出的电磁场用方位角和径向模式进行分析, 其结果与实验符合. 当减小圆盘直径至 105 nm 时, 共振腔内只存在一种模式, 共振腔中强烈的场局域效应以及较小的模式体积使其适用于贝塞尔增强的自发辐射的研究.

在对三角形银纳米颗粒的 LSP 模式的研究中[25], 用 CL 对结构进行全色成像 (图 5 (a)), 同时利用 FDTD 对单个三角形颗粒进行了模拟. 当电子束激发三角形颗粒尖端附近处, 得到的 CL 谱线与模拟得到的曲线符合. 为了比较光激发与电子束激发的不同, 文献作者进行了两种测量: 1) 使用平面波激发获取结构的消光谱, 在波长 300—800 nm 范围内的两个共振峰分别代表三角形颗粒尖端与边缘特有的偶极 (677 nm) 和四极 (400 nm) 的面内模式[38–40], 尖端直径与基底折射率的增大都会导致偶极特征峰的红移, 但对四极没有影响, 所以对于高折射率基底, 在可见光波段只能观察到面内的四极模式; 2) 电子束分别照射在三角形颗粒尖端与边缘处, 利用 FDTD 模拟得到的光辐射曲线如图 5 (b) 所示, 600 nm 左右两条曲线都有一个特征峰, 对应面内的偶极模式; 380 nm 左右的谱峰则对

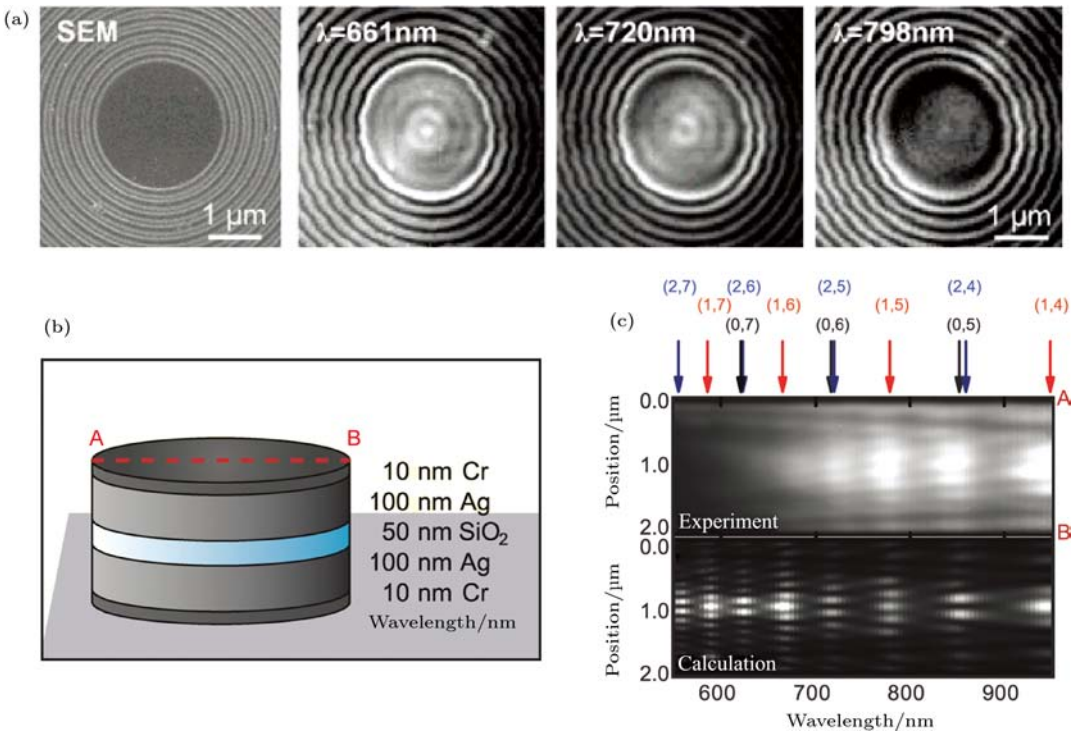


图 4 (a) 纳米共振腔的扫描电镜图像和不同探测波长下的 CL 图像 [12]; (b) MIM 结构示意图 [11]; (c) 阴极荧光强度与电子束位置及探测波长的关系, 以及利用边界元法计算得到的 CL 强度, 箭头所示为模式 (m, n) 对应的波长 [11]

Fig. 4. (a) SEM image of nano-resonator and CL images at different wavelengths indicated [12]; (b) schematic of the metal-insulation-metal structure [11]; (c) the relationship among the CL intensity, electron beam positions as well as free-space wavelength, and the CL intensity map calculated using BEM, the arrows denote the wavelengths of modes (m, n) [11].

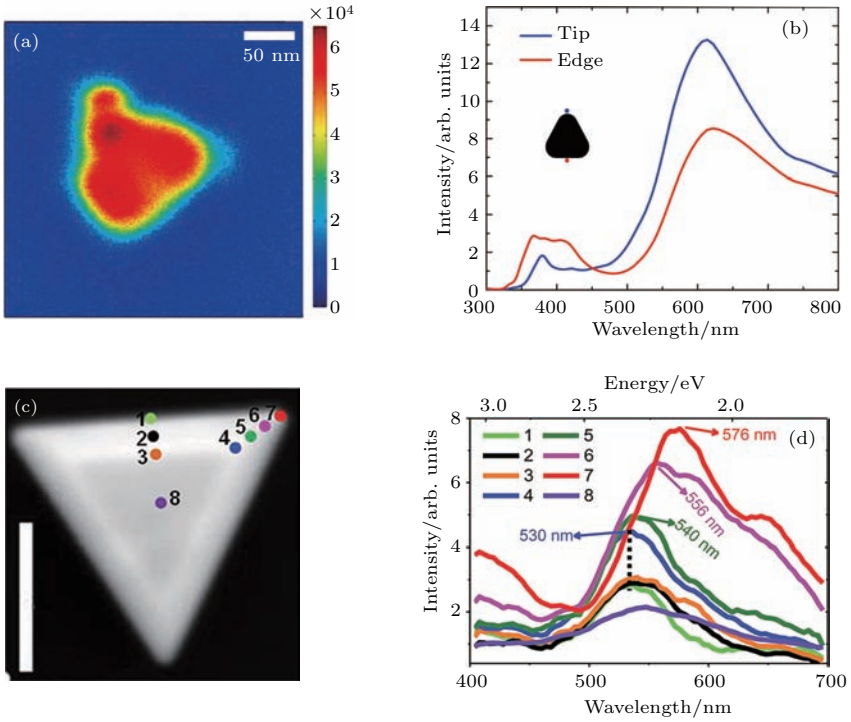


图 5 (a) 三角纳米颗粒的全色 CL 图像 [25]; (b) 电子束在三角颗粒尖端与边缘处激发得到的模拟辐射谱 [25]; (c) 金三棱台的扫描电镜图像 [41]; (d) 电子束照射在不同位置上得到的 CL 谱 [41]

Fig. 5. (a) Panchromatic CL image of the triangular nanoparticle [25]; (b) simulated radiation spectra of the structure with electron beam position locates near the tip and edge [25]; (c) SEM image of the truncated tetrahedral Au nanoparticle [41]; (d) CL spectra obtained from different electron beam positions [41].

应面外的偶极模式; 当电子束靠近边缘时, 400 nm 处还会产生一个面内的四极模式对应的特征峰. 因此, 在可见光波段, 对于高折射率基底上的三角形纳米颗粒, 电子束主要激发面外的偶极模式和面内的四极模式, 这一结果进一步加深了对于LSP模式激发与成像的认识. 对于金三角棱台结构[41], 电子束分别照射在结构的侧边、侧面、尖端与平面上(图5 (c), 点1—8)产生对应的等离激元共振模式并得到一系列的CL光谱(图5 (d)). 根据不同波长下的单色CL图像, 随着电子束激发位置的下移, 边缘模式逐渐消失, 取而代之的是尖端模式, 由于底部尖端的尖锐程度大于顶部尖端, 因此产生了较强的局域场增强效应. 利用FDTD模拟了尖端模式的发光谱, 发现了在三角棱台中LSP的高阶模式, 为探测和分析近场等离激元模式以及研究如等离激元增强的太阳能电池方面的新技术提供了帮助.

同时, 研究表明衬底造成的对称性破缺也会影响到金属纳米结构中的LSPR[42−44]. 对于星状金纳米结构[45], 尖端与核心处LSP 的模式以及基底对整个结构的LSPR有一定的影响. 星状金纳米结构主要由中心区域的核部分和四个处于同一平面的尖端构成, 如图6 (a)所示, CL光谱强度对电子束照射位置有着很强的依赖关系, 光谱有两个主峰, 电子束越靠近尖端后部接近核的区域, 波长

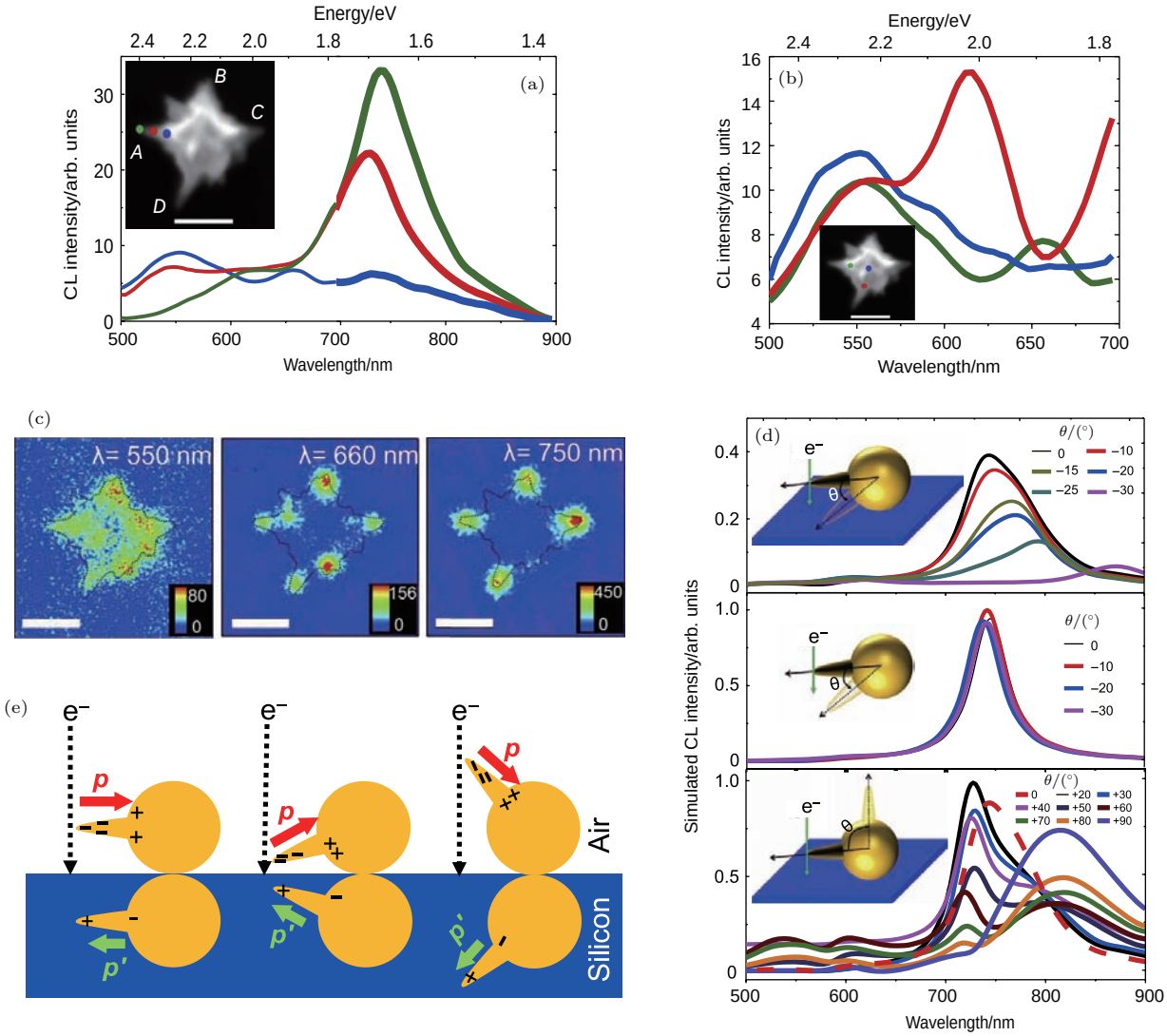


图6 [45] (a) 电子束照射在尖端不同位置的CL谱; (b) 电子束照射在核心区域不同位置的CL光谱, 插图为扫描电镜图像; (c) 不同探测波长下的CL图像; (d) 结构旋转以及衬底对CL光谱的影响; (e) 旋转不同角度时结构与其镜像的电荷分布

Fig. 6 [45]. (a) CL spectra with different electron beam positions upon the tip; (b) CL spectra with different electron beam positions on the core area, inset is the SEM image; (c) CL image collected at different wavelengths; (d) the influence of the structure's rotation and substrate to the CL spectra; (e) structure and image charge distribution with different rotation angles.

为 550 nm 处的共振峰越强, 而波长为 750 nm 的共振峰越弱. 当电子束照射在核心区域的三个位置, 核的中心区域仅存在高能量峰, 而两个靠近尖端后部的位置分别各产生了一个低能量峰 (图 6 (b)). 从单色 CL 图像中可以看出, 电子束照射在中心区域时, 550 nm 处 CL 主要分布在核的区域内, 随着波长增加以及电子束位置的改变, CL 从尖端与核心的交界处逐渐转移到尖端前部且强度增大了数倍 (图 6 (c)). 利用 FDTD 模拟基底对结构 CL 的影响, 首先计算有无硅衬底时 CL 的变化: 电子束激发位置保持不变, 有无硅衬底对峰位并无影响, 只对 CL 强度有影响, 有衬底时强度减弱 1/3. 改变尖端相对基底的角度: 逆时针旋转尖端, 有衬底时 CL 峰值降低并发生红移, 源于共振时光散射到衬底上使得局域在结构表面的光发生耗散, 导致共振峰变宽且强度降低, 无衬底时没有显著变化. 顺时针旋转时共振峰发生分裂, 旋转 50° 以内由于尖端与衬底的耦合逐渐减弱, 峰位发生蓝移; 50° 以上电子束与核区域更为接近, 且尖端逐渐远离基底, 这时 CL 由核区域的球体偶极 LSP 模式主导, 在 830 nm 处产生一个由偶极 LSPR 造成的峰 (图 6 (d)). 研究表明, 高阶 LSP 模式的激发与否与衬底有着紧密的关系, 电子束照射在核区域时的共振峰推测是由四极 LSPR 引起的. 进一步研究结构与衬底的关系, 利用像电荷模型分析结构与衬底间不同间距时的相互作用, 此时等价于结构与衬底内自身的像发生相互作用. 尖端相对于衬底无旋转时, 像结构内感应生成一个方向相反强度较弱的偶极矩, 减小了系统的净偶极矩, 导致有衬底时 CL 强度小于无衬底时的强度. 逆时针旋转时, 结构与像之间电荷相互接近产生强烈的相互作用, 导致峰位发生红移, 顺时针旋转时正好相反, 电荷被局域在远离衬底的位置使得峰位蓝移 (图 6 (e)). 研究 LSP 与衬底之间的关系对诸如表面增强光谱学、传感、高灵敏光学分析、光子器件设计以及非线性光学有着重要意义, 其中 CL 高分辨率成像的特性对研究 LSP 在光学器件中的行为有着较大的帮助.

4 阴极荧光在金属耦合结构中的应用

利用 CL 研究等离激元结构耦合共振性质, 比如法诺共振的机理 [46], 是目前研究的一个重要方向. 利用聚焦后的电子束激发金属纳米结构上选定的局部区域, 使得等离激元辐射发光. 对这些光束进行探测、收集与成像, 可以得到等离激元结构的激发光谱, 因此提供了利用 CL 来探测等离激元耦合共振与物理机制的途径.

对于金属多聚体结构, 光学激发可以产生法诺共振, 而电子束激发却不会出现法诺共振线型, 通过比较该结构的散射谱和 CL 图谱能够反映出二者的差别. 如图 7 所示, 九聚体纳米结构在电子束激发后, 利用偏振片选择不同的波长, 其 CL 图像随之发生变化 [47]. 在较短的选择波长 660 nm 下, 图像中九聚体边缘纳米圆盘的光强较大; 而在较长的选择波长 770 nm 下, 中心处的光强远大于周围纳米结构. 进一步分别测量中心和周围圆纳米圆盘的 CL 谱, 发现中心纳米圆盘的谱峰值相比于周围圆盘出现了红移. 这是由于等离激元亮模式和暗模式近场耦合形式的不同, 从而导致结构中心和边缘处在不同的波长下显现出模式改变. 在电子激发条件下, 由于没有偏振, 这种纳米团簇九聚体结构并没有显现出光学激发下法诺共振的模式, 而是出现了两种分立的非本征模式. 整个结构的共振模式可以用一个耦合共振模型进行解释: 光激发只能产生亮模式; 而电子束激发可以描述为单一纳米颗粒模式的叠加, 因此同时获得了亮模式和暗模式. 根据弹簧振子模型, 电子作用于中心圆盘为同相激发, 而电子作用于边缘圆盘则是不同相激发. 利用这种

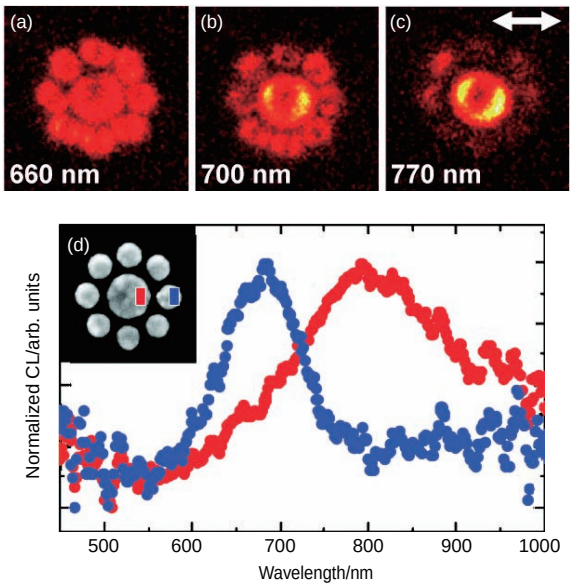


图 7 九聚物在 (a) 660 nm, (b) 700 nm, (c) 770 nm 波段下采集的 CL 图像; (d) 激发九聚物中心和边缘获得的 CL 谱图 [47]

Fig. 7. CL images of a nonamer at (a) 660 nm, (b) 700 nm and (c) 770 nm; (d) CL spectra with the excitation at the center and outer of the nonamer.

方法可以分别研究金属多聚体结构的光学和阴极荧光响应[48], 进而实现对这两种响应的预测和调控, 为相关光电器件的设计提供理论上的指导.

CL探测技术还可用于金纳米花团簇结构的针尖耦合效应[15]. 利用传统暗场显微探测技术, 光激发的是纳米颗粒的整体; 而聚焦的电子束能够作为局域探针来实现对颗粒不同位置的等离激元共振模式的激发. 如图8所示, 选取金纳米结构上的*A*—*E*这五个点来实现不同定点位置处尖端等离激元的耦合. 通过测量这五个点的CL谱, 可以发现不同尖端顶点处对应的荧光强度和峰值位置都存在差异. 通过选择共振波长, 发现共振波长在接近于吸收峰值的时候, CL光强较大. 其中在530 nm左右的单色CL图像接近于球核的共振模式. 通过CL探测技术和FDTD模拟的结合, 增进了对同一球核上近邻尖端之间耦合模式的理解: 它们之间细微的角度区别导致了金纳米结构上强烈的针尖耦合共振. 这些研究对理解三维纳米结构中电子激发等离激元的机理有重要意义; 在诸如表面增强拉曼散射的显微技术、生物传感, 和设计纳米颗粒嵌入式太阳能电池等应用上有着广泛的应用前景.

此外, CL还可用于纳米线和纳米天线耦合模式的探究[49]. 如图9 (b) 所示, 无论是对称或是非对称的耦合模式, 在不同的探测波长下其共振的模式有着显著区别. 这与单一金属纳米线的共振模式不同, 耦合结构能观测到等离激元杂化模式. 并且通过两种结构之间的耦合也可以实现对纳米线中等离激元传播的调控. 比较对称和非对称这两种耦合模式, 可以发现对于非对称模式, 结构总耦合效率较低, 只保留其杂化模式的特征. 通过调节纳米天线的臂长可以实现对杂化模式耦合效率的调制, 进而影响纳米线中等离激元的传播. 利用CL探测技术可以得到纳米线在不同探测波长范围内沿长轴方向上的强度分布, 从而观察等离激元驻波强度的变化.

这种纳米天线的结构可以帮助研究耦合结构中的等离激元模式杂化: 既可以增强共振的远场激发, 也可以调节其近场强度和谱宽[50]. 该近场耦合揭示了等离激元杂化对纳米线发光局域电子态密度的影响. 当该耦合结构与有源介质相结合时, 能实现对纳米线器件发射性质的调控.

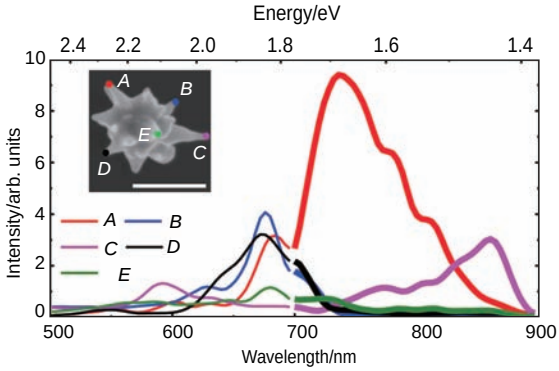


图8 不同激发位置获得的CL图谱, 插图是金纳米花的扫描电镜图像[15]

Fig. 8. CL spectra collected from different excitation spot, the inset shows SEM image of Au nanoflower[15].

随着探测和表征技术的不断深入, 对等离激元结构耦合性质的研究已不再满足于现象的探究与解释, 而更多地聚焦于其深层物理机理上, 从而实现对耦合性质预测和调控的需求. 应用CL探测技术探究不同纳米结构之间的耦合性质已成为等离激元相关研究中重要的分支. 将其与传统的光学表

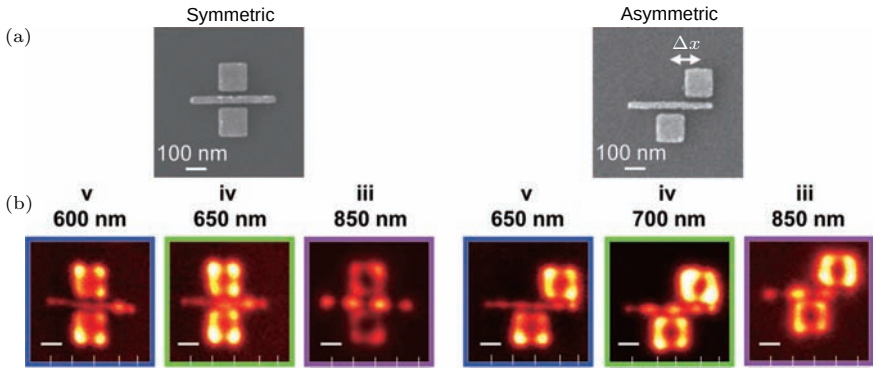


图9 对称和非对称的纳米线与纳米天线的耦合结构示意图[49] (a) 两种结构的扫描电镜图像; (b) 等离激元驻波的阴极荧光图像

Fig. 9. Symmetric and asymmetric nanowire-nanoantenna coupling structures[49]: (a) SEM images of two coupling structures; (b) CL images of standing wave plasmon mode.

征技术如拉曼光谱、X射线衍射等技术相结合, 能从多角度来研究等离激元结构耦合性质, 从而拓宽并加深对其物理机理的认识.

5 其他技术与材料的结合

随着科学技术的不断发展, CL技术的应用正在向新的领域拓展, 不论是与角分辨[51]、时间分辨[52]等技术的结合, 还是与电子能量损失谱(electron energy loss spectroscopy, EELS)的相互补充, 以及新材料的应用, 都使得CL探测技术具备更高的应用价值, 能够为科学的进步带来更多的便利.

角分辨CL成像技术, 主要是通过收集不同角度发射出的CL信号强度并分解到空间的不同位置, 经过计算机处理后形成角度-光谱图像. 在研究引向天线的定向发射中, 五个圆柱形纳米颗粒等间距且平行地排列在硅衬底上, 利用电子束激发不同的颗粒, 得到的角分辨CL谱图出现了差异, 表明天线的发射方向取决于激发的不同颗粒, 这种特性源于等离激元共振的近场与远场相互作用[26]. 而在脊状天线的研究中, 角分辨技术能够有力地探测出亚波长天线的发射特性, 脊状天线受激产生的的SPs被限制在脊状处, 天线的发射图样受天线长度的影响, 例如, 当天线的长度小于200 nm时, 其发射图样类似于单点偶极子源产生的发射图样; 当天线长度大于200 nm时, 则类似于在天线两端各分布有一个偶极子源[53]. 利用角分辨CL技术可以研究单一金纳米圆柱盘形状的等离激元发射源, 由于远场共振电磁场模式的干涉, 从而能够实现定向发射, 实验结果表明光谱响应和角度响应依赖于电子束的激发位置[54](图10). 作为对比, 文献作者分别测量了直径为50, 100和180 nm的金纳米盘的CL谱, 随着直径的增大, LSPR峰值发生蓝移, 而且在直径180 nm的金纳米盘实验图谱中出现了第二个局域等离激元共振位置. 图10 表示在160 nm波长条件下分别激发直径为180 nm纳米盘的中心位置及其边缘位置正交的四个方位角在 0°, 90°, 180°, 270° 处的CL谱. 根据发光强度可以判断, 在偏离中心位置处呈现出反对称性, 这是由于存在电偶极子、磁偶极子和电四极子的相干叠加. 金纳米盘的定向发射特性可以通过纳米盘尺寸来调控, 继而准确地激发不同位置, 从而得到不同的发射方向. 除了普通的纳米天线结构, 还有纳米洞结构[55]、碎片天线[56]等金属结构同样具备这种因电子束激发位置改变而导致CL谱不同的特性.

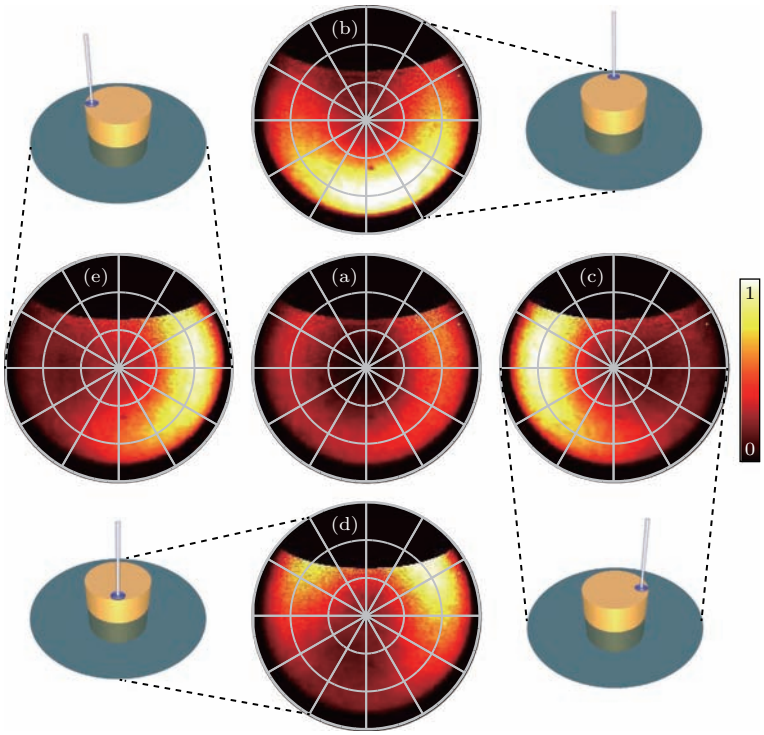


图10 不同方位角拍摄的角分辨阴极荧光图像[54] (a) 中心位置; (b) 0°; (c) 90°; (d) 180°; (e) 270°

Fig. 10. Angle-resolved CL spectra collected from different azimuthal angles[54]: (a)At the center; (b) 0°; (c) 90°; (d) 180°; (e) 270°.

最近研究发现, 角分辨技术还可以测定CL偏振信息[57], 表现为斯托克斯参数因发射角而改变, 通过测量金属纳米靶心结构和螺旋结构的CL谱, 发现结构本身的手性可以通过出射荧光的偏振态在其椭偏率和螺旋度上的变化来体现. 而且, 这种偏振测定方法还可以区分偏振光与非偏振光, 有助于制作出具备多功能的纳米结构器件.

时间分辨CL技术能够记录不同时间的光谱变化, 呈现出瞬时的状态, 弥补积分光谱的缺陷. 例如, 在研究表面镀金或铝层对GaAs/AlAs/GaAs半导体结构载流子影响的实验中, 时间分辨技术提供了有效的检测平台[58]. 在半导体结构表面镀上金属后, 经过电子束照射, 会在半导体结构中产生过量的电子-空穴对, 并作为激子与表面金属膜的SPs发生耦合, 在这个过程中, 时间分辨技术能够直接测量出瞬时载流子的辐射寿命随温度的变化. 实验结果表明, 随着温度的增加, CL谱表现出红移, 这与GaAs能带随温度的依赖性是一致的. 与不镀金属层的半导体结构进行对比, 发现镀金后载流子的寿命显著下降.

EELS最早于1944年由Hiller与Baker在TEM相关实验中提出, 其原理是低能电子束入射到样品表面发生非弹性散射, 与晶体表面振动模产生相互作用, 被反射回来的电子损失能量[59], 从而直接反映出样品的结构信息. CL谱和EELS都具备高分辨率的特征, 是研究等离激元的有效检测手段. 两者的区别在于: CL谱对样品要求度不高, 但是只能测量发光信息, 并表征等离激元亮模式; 而EELS需要在TEM的扫描透射环境中对100 nm左右厚度的样品进行采谱[25], 并测量等离激元暗模式. CL谱与EELS的结合能够反映出电子与样品相互作用过程中的吸收、湮灭和散射信息, 并从紫外波段到红外波段都能获得纳米尺度的空间分辨率.

在研究石墨烯单层上的单一金棱柱的等离激元共振模式中[60], 运用EELS和CL成像两种手段对相同的结构进行测量, 得到的谱图如图11所示, EELS和CL成像中黑色线条勾勒的是根据高角度环形暗场像给出的金棱柱截面, 图中直接显示出EELS能够同时表征偶极子模式(橙色箭头)和高阶模式(绿色箭头), 而CL谱只能表征偶极子模式(橙色箭头). 运用模态分解将宏观的消光和散射现象与实验图谱相结合, 在EELS中, 低能偶极子模式的电荷密度峰出现在顶点处, 而高阶模式的电荷密度峰出现在顶点以及边缘处.

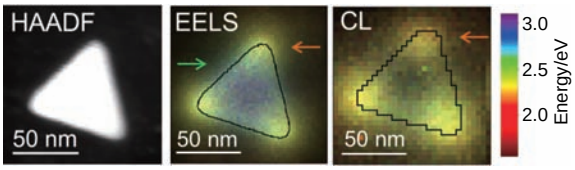


图11 金棱柱的高角度环形暗场像、电子能量损失谱和阴极荧光成像示意图[60]

Fig. 11. Schematic view of high angle annular dark field (HAADF) imaging, EELS and CL imaging of gold nanoprism[54].

研究发现, 电子束激发金纳米十面体的不同位置可以得到不同的共振模式[61], CL探测技术可以反映剖面五个顶点的共振模式, EELS能反映五重对称轴上的等离激元模式分布. 两种采谱方式的结合不仅能全面观测等离激元, 还能实现成键和反键本征模的振幅调控. 对于典型的门形共振结构[62], 可以用脉冲驱动的谐振子耦合模型来描述电子束激发条件, 谐振子的振幅由结构之间的近场耦合来决定. 通过对电子束激发位置的精确控制, 可进一步实现对金属纳米结构中近远场耦合的高精度探测和调控. 在三角形银纳米颗粒的研究中[63], 将这两种光谱叠加在同一坐标上, 结果发现因为自由电子模型中的损耗影响, 使得在低阶模式下, CL的共振能量峰位相比EELS产生红移, 而在高阶模式下则产生蓝移.

铝作为地球上含量第三的元素, 其等离激元共振主要集中在紫外波段. 在CL成像实验中[64], 将30 keV的聚焦电子束入射到铝纳米棒天线上激发等离激元, 光栅扫描法收集到的信号强度正比于结构的辐射局域态密度, 观测横向和纵向两种模式, 发现横向局域态密度集中在纳米棒长轴的边缘, 纵向局域态密度集中在纳米棒短轴的两端. 纳米棒的长度会影响其辐射模式: 纳米棒越长, 纵向偶极子模式占主导(图12), 且由于更高阶纵向模式的出现, 共振处的能量发生红移. 采用能量分辨CL得到的实验结果与FDTD的分析一致, 这种纳米天线的辐射模式主要包含偶极子和四极子模式, 铝纳米天线在紫外到可见光区展现出可调控的等离激元共振特性, 为拓宽新材料的应用提供了借鉴思路.

同时, 利用CL探测技术可研究金属镓纳米颗粒在尺寸可调谐性和频率依赖性方面的空间局域态密度分布[65], 发现在高频波段金属镓的面内偶

极子共振起主导作用, 而在长波响应区由垂直偶极子主导. 除此之外, 金属镓纳米球之间的相互作用CL研究, 还反映出中心镓纳米球与周边镓纳米球之间的耦合具有共振波长的依赖性.

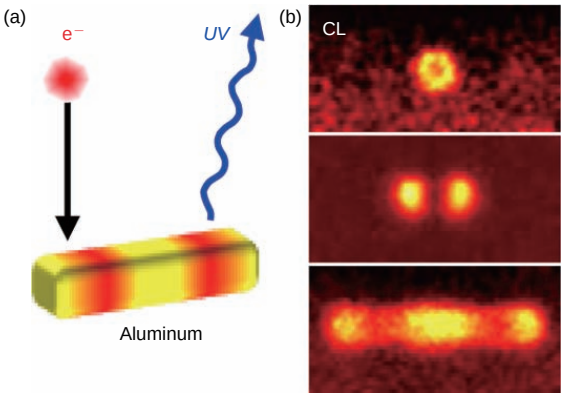


图12 (a) 铝纳米棒天线经电子束照射后在紫外波段产生CL示意图; (b) 不同纵横比的铝纳米棒激发等离激元模式的阴极荧光成像[64]

Fig. 12. (a) Schematic of Al nanorod antenna producing CL induced by electron beam in ultraviolet region; (b) CL image of plasmon modes excited in Al nanorod with different aspect ratio[64].

CL技术在其他金属及半导体材料的研究方面同样有着重要的意义, 比如能够探测钙钛矿材料的表面及内部缺陷、研究半导体中掺杂量子点后的效应、测试载流子的扩散长度、对金属矿物实现无损检测等.

6 结论与展望

本文主要介绍了CL探测技术在表面等离激元研究领域的应用. 因CL利用电子束激发, 可在亚波长尺度上实现超高空间分辨和能量分辨. 本文首先概述了单一金属纳米结构的等离激元CL成像及模式共振分析, 进一步总结了金属多聚体结构之间的耦合模式CL探测.

CL探测技术在等离激元方面的应用日益发展, 但仍然面临问题, 比如无法测量金属纳米结构的等离激元暗模式. 为了增强CL的发光强度, 一方面可以利用荧光分子[66], 如Eu^{3+}离子; 另一方面可以对探测系统进行优化, 提高荧光收集效率. 结合角分辨、时间分辨等关键技术, 能够更全面实时地研究纳米尺度等离激元特性. CL探测技术作为对等离激元实时、高分辨的成像与分析手段, 能有效地研究纳米结构中等离激元的光学性质, 将有助于等离激元在光电信息领域内实现广泛的应用.

感谢北京大学物理学院韩天洋博士、单杭永博士以及祖帅博士的讨论.

参考文献

[1] Christen J, Grundmann M, Bimberg D 1991 *J. Vac. Sci. Technol. B* **9** 2358
[2] Schieber J, Krinsley D, Riciputi L 2000 *Nature* **406** 981
[3] Pratesi G, Lo Giudice A, Vishnevsky S, Manfredotti C, Cipriani C 2003 *Am. Mineral* **88** 1778
[4] Pennycook S J 2008 *Scanning* **30** 287
[5] Yacobi B, Holt D 1986 *J. Appl. Phys.* **59** R1
[6] Shubina T, Ivanov S, Jmerik V, Solnyshkov D, Vekshin V, Kop'ev P, Vasson A, Leymarie J, Kavokin A, Amano H 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 117407
[7] Niioka H, Furukawa T, Ichimiya M, Ashida M, Araki T, Hashimoto M 2011 *Appl. Phys. Express* **4** 112402
[8] Barnett W, Wise M, Jones E 1975 *J. Microsc.* **105** 299
[9] Vesseur E J R, Aizpurua J, Coenen T, Reyes-Coronado A, Batson P E, Polman A 2012 *MRS Bull.* **37** 752
[10] Vesseur E J R, de Waele R, Kuttge M, Polman A 2007 *Nano Lett.* **7** 2843
[11] Kuttge M, García de Abajo F J, Polman A 2009 *Nano Lett.* **10** 1537
[12] Hofmann C E, Vesseur E J R, Sweatlock L A, Lezec H J, García de Abajo F J, Polman A, Atwater H A 2007 *Nano Lett.* **7** 3612
[13] Barnard E S, Coenen T, Vesseur E J R, Polman A, Brongersma M L 2011 *Nano Lett.* **11** 4265
[14] Bischak C G, Hetherington C L, Wang Z, Precht J T, Kaz D M, Schlom D G, Ginsberg N S 2015 *Nano Lett.* **15** 3383
[15] Maity A, Maiti A, Das P, Senapati D, Kumar Chini T 2014 *ACS Photon.* **1** 1290
[16] Atre A C, Brenny B J, Coenen T, García-Etxarri A, Polman A, Dionne J A 2015 *Nature Nanotech.* **10** 429
[17] Fang Y, Verre R, Shao L, Nordlander P, Käll M 2016 *Nano Lett.* **16** 5183
[18] Zu S, Bao Y, Fang Z 2016 *Nanoscale* **8** 3900
[19] van Wijngaarden J 2005 *Research Project for the Master Degree in Experimental Physics at Utrecht University*
[20] Zhang W, Fang Z, Zhu X 2017 *Chem. Rev.* **117** 5095
[21] Li Y, Li Z, Chi C, Shan H, Zheng L, Fang Z 2017 *Adv. Sci.* 10.1002/advs.201600430
[22] Fang Z, Zhu X 2013 *Adv. Mater.* **25** 3840
[23] de Abajo F G 2010 *Rev. Mod. Phys.* **82** 209
[24] Li Z, Xiao Y, Gong Y, Wang Z, Kang Y, Zu S, Ajayan P M, Nordlander P, Fang Z 2015 *ACS Nano* **9** 10158
[25] Chaturvedi P, Hsu K H, Kumar A, Fung K H, Mabon J C, Fang N X 2009 *ACS Nano* **3** 2965
[26] Coenen T, Vesseur E J R, Polman A, Koenderink A F 2011 *Nano Lett.* **11** 3779
[27] Maier S A, Kik P G, Atwater H A, Meltzer S, Harel E, Koel B E, Requicha A A 2003 *Nature Mater.* **2** 229
[28] Oulton R F, Sorger V J, Zentgraf T, Ma R M, Gladden C, Dai L, Bartal G, Zhang X 2009 *Nature* **461** 629

[29] Bozhevolnyi S I, Volkov V S, Devaux E, Laluet J Y, Ebbesen T W 2006 *Nature* **440** 508
[30] Li Z, Li Y, Han T, Wang X, Yu Y, Tay B K, Liu Z, Fang Z 2017 *ACS Nano* **11** 1165
[31] Lal S, Link S, Halas N J 2007 *Nature Photon.* **1** 641
[32] Sorger V J, Oulton R F, Yao J, Bartal G, Zhang X 2009 *Nano Lett.* **9** 3489
[33] Bashevoy M, Jonsson F, MacDonald K, Chen Y, Zheludev N 2007 *Opt. Express* **15** 11313
[34] Barnes W L, Dereux A, Ebbesen T W 2003 *Nature* **424** 824
[35] Aoki T, Dayan B, Wilcut E, Bowen W P, Parkins A S, Kippenberg T, Vahala K, Kimble H 2006 *Nature* **443** 671
[36] Reithmaier J, Sęk G, Löffler A, Hofmann C, Kuhn S, Reitzenstein S, Keldysh L, Kulakovskii V, Reinecke T, Forchel A 2004 *Nature* **432** 197
[37] Vahala K J 2003 *Nature* **424** 839
[38] Nelayah J, Kociak M, Stéphan O, de Abajo F J G, Tencé M, Henrard L, Taverna D, Pastoriza-Santos I, Liz-Marzán L M, Colliex C 2007 *Nature Phys.* **3** 348
[39] Shuford K L, Ratner M A, Schatz G C 2005 *J. Chem. Phys.* **123** 114713
[40] Sherry L J, Jin R, Mirkin C A, Schatz G C, van Duyne R P 2006 *Nano Lett.* **6** 2060
[41] Das P, Chini T K, Pond J 2012 *J. Phys. Chem. C* **116** 15610
[42] Knight M W, Wu Y, Lassiter J B, Nordlander P, Halas N J 2009 *Nano Lett.* **9** 2188
[43] Zhang S, Bao K, Halas N J, Xu H, Nordlander P 2011 *Nano Lett.* **11** 1657
[44] Wu Y, Nordlander P 2009 *J. Phys. Chem. C* **114** 7302
[45] Das P, Kedia A, Kumar P S, Large N, Chini T K 2013 *Nanotechnology* **24** 405704
[46] Lovera A, Gallinet B, Nordlander P, Martin O J 2013 *ACS Nano* **7** 4527
[47] Lassiter J B, Sobhani H, Knight M W, Mielczarek W S, Nordlander P, Halas N J 2012 *Nano Lett.* **12** 1058
[48] Frimmer M, Coenen T, Koenderink A F 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 077404
[49] Day J K, Large N, Nordlander P, Halas N J 2015 *Nano Lett.* **15** 1324
[50] Segal E, Weissman A, Gachet D, Salomon A 2016 *Nanoscale* **8** 15296
[51] Coenen T, Vesseur E J R, Polman A 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 203904
[52] Zhang X, Rich D H, Kobayashi J T, Kobayashi N P, Dapkus P D 1998 *Appl. Phys. Lett.* **73** 1430
[53] Coenen T, Vesseur E J R, Polman A 2012 *ACS Nano* **6** 1742
[54] Coenen T, Arango F B, Koenderink A F, Polman A 2014 *Nat. Commun.* **5** 3250
[55] Coenen T, Polman A 2014 *ACS Nano* **8** 7350
[56] Mohtashami A, Coenen T, Antoncecchi A, Polman A, Koenderink A F 2014 *ACS Photon.* **1** 1134
[57] Osorio C I, Coenen T, Brenny B J, Polman A, Koenderink A F 2015 *ACS Photon.* **3** 147
[58] Estrin Y, Rich D H, Kretinin A V, Shtrikman H 2013 *Nano Lett.* **13** 1602
[59] Leithäuser G E 1904 *Ann. Phys.* **320** 283
[60] Losquin A, Zagonel L F, Myroshnychenko V, Rodríguez-González B, Tencé M, Scarabelli L, Förstner J, Liz-Marzán L M, García de Abajo F J, Stéphan O 2015 *Nano Lett.* **15** 1229
[61] Myroshnychenko V, Nelayah J, Adamo G, Geuquet N, Rodríguez-Fernández J, Pastoriza-Santos I, MacDonald K F, Henrard L, Liz-Mrzán L M, Zheludev N I 2012 *Nano Lett.* **12** 4172
[62] Coenen T, Schoen D T, Mann S A, Rodriguez S R, Brenny B J, Polman A, Brongersma M L 2015 *Nano Lett.* **15** 7666
[63] Kawasaki N, Meuret S, Weil R, Lourenço-Martins H, Stéphan O, Kociak M 2016 *ACS Photon.* **3** 1654
[64] Knight M W, Liu L, Wang Y, Brown L, Mukherjee S, King N S, Everitt H O, Nordlander P, Halas N J 2012 *Nano Lett.* **12** 6000
[65] Knight M W, Coenen T, Yang Y, Brenny B J, Losurdo M, Brown A S, Everitt H O, Polman A 2015 *ACS Nano* **9** 2049
[66] Lee S M, Choi K C, Kim D H, Jeon D Y 2011 *Opt. Express* **19** 13209

SPECIAL ISSUE—Diffraction limit of electromagnetic waves

Research progress of plasmonic cathodoluminesecence characterization*

Jiang Mei-Ling# Zheng Li-Heng# Chi Cheng Zhu Xing Fang Zhe-Yu†

(*School of Physics, State Key Laboratory for Artificial Microstructure and Mesoscopic Physics, Peking University, Beijing 100871, China*)

(Received 11 April 2017; revised manuscript received 2 May 2017)

Abstract

Surface plasmons as the collective electrons oscillation at the interface of metal and dielectric materials, have induced tremendous applications for the nanoscale light focusing, waveguiding, coupling, and photodetection. As the development of the modern technology, cathodoluminescence (CL) has been successfully applied to describe the plasmon resonance within the nanoscale. Usually, the CL detection system is combined with a high resolution scanning electron microscope (SEM). The fabricated plasmonic nanostructure is directly excited by the electron beam, and detected by an ultra-sensitive spectrometer and photodetector. Under the high energy electron stimulation, all of the plasmon resonances of the metallic nanostructure can be excited. Because of the high spatial resolution of the SEM, the detected CL can be used to analyze the details of plasmon resonance modes.

In this review, we first briefly introduced the physical mechanism for the CL generation, and then discussed the CL emission of single plasmonic nanostructures such as different nanowires, nanoantennas, nanodisks and nanocavities, where the CL only describes the individual plasmon resonance modes. Second, the plasmon coupling behavior for the ensemble measurement was compared and analyzed for the CL detection. Finally, the CL detection with other advanced technologies were concluded. We believe with the development of the nanophotonics community, CL detection as a unique technique with ultra-high energy and spatial resolution has potential applications for the future plasmonic structure design and characterization.

Keywords: cathodoluminescence, surface plasmon, subwavelength, metallic nanostructures

PACS: 42.30.–d, 33.50.Dq, 41.75.Fr **DOI:** 10.7498/aps.66.144201

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant Nos. 2017YFA0205700, 2015CB932403, 2017YFA0206000), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61422501, 11674012, 11374023, 61176120, 61378059, 61521004), the Natural Science Foundation of Beijing, China(Grant No. L140007), and the Foundation for the Author of National Excellent Doctoral Dissertation of PR China (FANEDD) (Grant No. 201420).

# These authors contribute equally.

† Corresponding author. E-mail: zhyfang@pku.edu.cn

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

飞秒激光加工蓝宝石超衍射纳米结构

高斯　王子涵　滑建冠　李乾坤　李爱武　于颜豪

Sub-diffraction-limit fabrication of sapphire by femtosecond laser direct writing

Gao Si　Wang Zi-Han　Hua Jian-Guan　Li Qian-Kun　Li Ai-Wu　Yu Yan-Hao

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 147901 (2017)　DOI: 10.7498/aps.66.147901
在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.147901
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I14

您可能感兴趣的其他文章
Articles you may be interested in

飞秒激光脉冲能量累积优化对黑硅表面形貌的影响
Femtosecond laser pulse energy accumulation optimization effect on surface morphology of black silicon
物理学报.2017, 66(6): 067902　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.067902

激光烧蚀掺杂金属聚合物羽流屏蔽特性数值研究
Numerical investigation on shielding properties of the laser ablation plume of polymer doped metal
物理学报.2016, 65(19): 197901　http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.197901

激光烧蚀聚甲醛的热-化学耦合模型及其验证
Thermal-chemical coupling model of laser induced ablation on polyoxymethylene
物理学报.2014, 63(10): 107901　http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.107901

贴膜条件下飞秒激光诱导硅基表面锥状微结构
Femtosecond laser induced silicon surface cone microstructures by covering transparent films
物理学报.2012, 61(23): 237901　http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.237901

纳秒紫外重复脉冲激光烧蚀单晶硅的热力学过程研究
Investigation of thermodynamic progress of silicon ablated by nanosecond uv repetitive pulse laser
物理学报.2012, 61(19): 197901　http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.197901

专题: 电磁波衍射极限

飞秒激光加工蓝宝石超衍射纳米结构*

高斯 王子涵 滑建冠 李乾坤 李爱武† 于颜豪‡

(吉林大学电子科学与工程学院, 长春 130012)

(2017 年 3 月 30 日收到; 2017 年 5 月 19 日收到修改稿)

蓝宝石具有超强硬度及耐腐蚀、耐高温、在紫外-红外波段具有良好的透光性等优点, 在军工业以及医疗器械方面具有广泛的应用前景. 然而这些优点又对蓝宝石的机械加工或化学腐蚀加工带来困难. 飞秒激光脉冲具有热损伤小、加工分辨率高、材料选择广等特点, 被广泛应用于固体材料改性和高精度三维微纳器件加工. 本文提出了利用飞秒激光多光子吸收特性在蓝宝石表面实现超越光学衍射极限的精细加工. 利用聚焦后的波长为343 nm的飞秒激光, 配合高精密三维压电位移台, 实现激光焦点和蓝宝石晶体的相对三维移动, 在蓝宝石晶体衬底上进行精确扫描, 得到了线宽约61 nm的纳米线, 纳米线间的最小间距达到142 nm左右. 利用等离子体模型解释了加工得到的纳米条纹的产生原因, 研究了激光功率、扫描速度对加工分辨率的影响. 最终本工作实现了超越光学衍射极限的加工精度, 为实现利用飞秒激光对高硬度材料的微纳结构制备提供了参考.

关键词: 飞秒激光加工, 光学衍射极限, 蓝宝石, 微纳结构

PACS: 79.20.Eb, 68.37.Hk, 81.16.–c, 68.35.–p **DOI:** 10.7498/aps.66.147901

1 引 言

随着电子信息时代的发展, 器件集成化、小型化的需求日益迫切. 近年来, 以制备小型化器件的高精密加工技术成为研究的热点内容. 但是由于光学衍射极限的制约, 依赖光刻等传统方法制备的器件已存在尺寸瓶颈. 目前制备小型化器件的方法有很多种, 如紫外光刻法、电子束刻蚀法、直写法[1]等. 常规的紫外光刻法使用掩膜板套刻会降低加工精度[2], 加工分辨率有限; 电子束刻蚀法[3]虽然不使用掩膜板, 提升了加工精度, 但设备复杂、价格昂贵、生产效率低等缺点限制了它的大规模应用. 而飞秒激光[4−8]由于其热损伤小、加工分辨率高、可设计加工真三维结构等[9,10]优势, 被广泛应用于加工高精度元器件. 目前飞秒激光直写微纳器件[11−14]已经取得了一系列优秀的研究成果, 如2001年Kawata小组[15]利用800 nm波长的飞秒激光制得了10 μm长、7 μm高的“纳米牛”, 首次从实验上突破了光学衍射极限, 获得了120 nm的加工分辨率; 2007年, Duan研究组[16]利用SCR500进行激光加工获得了约15 nm的特征尺寸. 上述研究都是基于聚合物材料, 而在对飞秒激光与硬质材料相互作用的研究中, 余本海等[17]利用能量较低的多脉冲飞秒激光在$LiNbO_3$晶体表面制备了约200 nm周期性分布的波纹状结构; 云志强等[18]对6H-SiC材料进行了突破衍射极限的微纳加工研究, 获得了125 nm线宽的微纳结构; Shimotsuma等[19]在石英中制备了八分之一波长的纳米光栅结构, 线宽达到20 nm左右; Cheng等[20]在多孔玻璃内部实现了约40 nm线宽的亚波长结构; Miyaji和Miyazaki[21]利用波长为266 nm的紫外飞秒激光在GaN上制备了周期为50 nm的纳米光栅结构. 在众多种类的硬质材料中, 蓝宝石[22]作为一种具有广泛应用价值的材料, 可作为光学窗口[23]、氮化镓发光二极管衬底[24]、耐磨损耐高温器件等. 但由

* 国家自然科学基金 (批准号: 61590930, 91323301, 61435005, 21473076) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: liaw@jlu.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: yanhao_yu@jlu.edu.cn

© 2017 中国物理学会 Chinese Physical Society

于蓝宝石材料硬度大、耐腐蚀性好, 不利于传统机械加工和化学加工. 近年来, 人们开始研究利用飞秒激光对蓝宝石进行加工. 目前利用飞秒激光可以在蓝宝石材料内部制备线波导[25]、在蓝宝石表面制备增透微结构(最小特征尺寸500 nm)[26] 等. 然而到目前为止, 利用飞秒激光加工蓝宝石材料仍存在加工精度不高、机理不够清晰等问题.

本文结合短波长紫外飞秒激光和周期性深亚波长产生技术, 在蓝宝石表面得到了线宽约61 nm的超衍射极限的纳米线, 线宽远小于1 μm的理论衍射极限; 系统地研究了激光功率密度、扫描速度等参数对加工的影响; 并探索了具有最小线宽的微纳结构间的最小间距; 利用等离子体模型解释了加工得到的纳米条纹的产生原因; 最后加工了特定图案, 为飞秒激光在蓝宝石晶体材料上进行微纳结构精密加工的广泛应用奠定了基础.

2 实验装置与方法

实验装置如图1所示, 飞秒激光由Pharos紫外激光加工系统提供, 为高斯光束, 中心波长343 nm, 重复频率90 kHz, 脉冲宽度230 fs, 最大输出单脉冲能量100 μJ. 飞秒激光通过反射式物镜(Thorlabs, $NA=0.4$, 40×)聚焦到蓝宝石样品表面, 反射式物镜含有多个反射表面, 能够在不引入色差的情况下对光束进行聚焦, 由于具有近轴衍射限制的性能, 可以忽略高级像差. 激光垂直入射样品表面, 在物镜前利用中性密度衰减片调节激光能量, 实验中量取的均是物镜前的激光功率. c向切割蓝宝石的厚度为430 μm(合肥科晶材料技术有限公司), 实验前用棉球蘸取丙酮擦拭并超声清洗20 min. 样品被固定在压电平台(PI P-622ZCD)上, 表面平行于x-y平面, 平台可在xyz三个方向进行移动, 移动精度为1 nm. 通过计算机控制样品台进行逐点依次运动来实现样品和激光焦点的相对三维扫描. 设计样品移动的点间距为200 nm. 激光作用之后的蓝宝石表面会留有碎屑, 可超声清洗30 min予以去除. 之后对样品进行喷金, 进行扫描电子显微(SEM)表征, 使用的是场发射扫描电子显微镜(JSM-7500F; JEOL, JEOL Ltd., 东京, 日本).

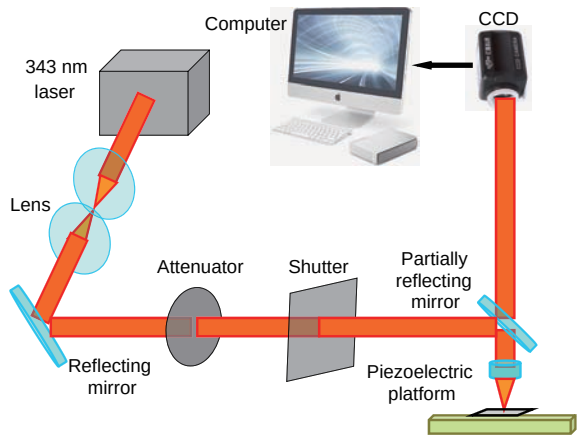


图1 实验中采用的加工系统示意图

Fig. 1. Sketch diagram of the machining system in the experiment.

3 实验结果与讨论

飞秒激光微纳加工精度受到很多因素的影响, 其中最主要的是所使用的飞秒激光的相关参数以及样品种类. 飞秒激光的相关参数包括中心波长、脉冲宽度、重复频率、能量密度等, 而样品的材料种类决定了表面加工阈值[27]. 激光作用后得到的结构的线宽与加工功率、扫描速度、扫描次数、加工界面等因素有关. 我们在蓝宝石晶体材料上进行了超越光学衍射极限的微纳结构的加工, 系统地研究了改变激光加工功率、扫描速度对线宽的影响.

3.1 飞秒激光烧蚀蓝宝石突破光学衍射极限

由瑞利判据可知, 当一个圆斑像的中心刚好落在另一圆斑像的一级暗纹上时, 可认为两个像刚刚被分辨[28]. 由于受到瑞利衍射的限制, 一个理想光点经过光学系统成像, 得不到理想的像点, 只能得到一个夫琅禾费衍射点. 由公式$D=\dfrac{1.22\lambda}{NA}$可以看出, 这个衍射点的大小$D$与光波波长$\lambda$成正比, 与所用物镜的数值孔径$NA$成反比. 相应地, 可以定义由于光学衍射造成的成像分辨率极限[29]. 因此, 如果想要得到超越衍射极限的加工精度, 就要使用更短波长的光源, 并且使用大数值孔径的物镜. 常规光学系统的衍射极限一般为$\lambda/2$.

我们知道, 透明材料通过双光子或者多光子吸收过程来吸收激光能量. 双光子吸收过程是一个非线性过程, 正比于激光强度的平方, 所以当飞秒激光作用于透明材料时, 吸收过程只发生在焦点处略高于破坏阈值得很小体积内. 飞秒激光是高斯光束, 对于高斯光束, 其复振幅表达式为

$$A(r,z) = A_0\frac{\omega_0}{\omega(z)}\exp\left[-\frac{r^2}{\omega^2(z)}\right] \times \exp\left[-\mathrm{i}kz-\mathrm{i}k\frac{r^2}{2R(z)}+\mathrm{i}\varphi(z)\right], \quad (1)$$

其中 $\omega_0=\left(\lambda z_0/\pi\right)^{1/2}$ 为束腰半径, $\omega(z)=\omega_0\left[1+\left(z/z_0\right)^2\right]^{1/2}$ 是光束随传播距离的变化, r 为光束边缘到中心的距离, z 为传播距离, $\varphi(z)$ 是与传输距离相关的相位因子. 激光的能量密度与脉冲能量的关系为

$$\phi_0=\frac{2E_\mathrm{p}}{\pi\omega_0^2}, \quad (2)$$

其中 ϕ_0 代表激光的能量密度, ω_0 为束腰半径, E_p 代表激光的脉冲能量. 采用激光对材料进行烧蚀时, 激光的烧蚀区域和束腰以及激光的能量密度遵循

$$D^2=2\omega_0^2\ln\left(\frac{\phi_0}{\phi_\mathrm{th}}\right), \quad (3)$$

(3) 式中 ϕ_th 代表材料的烧蚀阈值, 而 D 为烧蚀区域的直径.

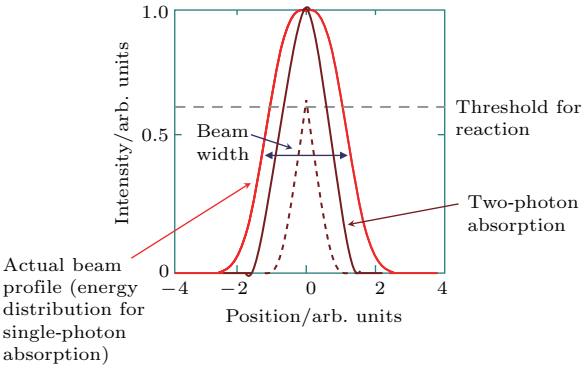


图 2 利用飞秒激光实现超越光学衍射极限的加工精度

Fig. 2. Using femtosecond laser to achieve the resolution beyond the diffraction limit.

由于聚焦后的飞秒激光的光斑服从高斯分布, 我们可以调控激光能量到很窄的一个范围内, 使聚焦点中心区域激光的能量略高于蓝宝石的表面破坏阈值, 如图 2 所示. 由于加工中使用的激光波长固定, 加工过程中激光光斑的大小尺寸也就被确定下来, 但是通过调整功率的方式, 总可以找到一个较低的极限功率, 使得激光焦点中心区域略高于蓝宝石的表面破坏阈值, 就可以在蓝宝石表面既达到结构烧蚀的效果, 又降低了线宽. 利用这种方法, 我们使用 0.96 mW 的功率在蓝宝石晶体材料表面制备了直线微纳结构, 线宽达到约 61 nm, 远小于光斑尺寸 1 μm (由于实验中使用的飞秒激光波长为 343 nm, 反射式物镜 $NA=0.4$, 因此代入公式计算得光斑尺寸 $D=(1.22\times343)\ \mathrm{nm}/0.4=1046\ \mathrm{nm}\approx1\ \mu\mathrm{m}$), 实现了超越光学衍射极限的加工分辨率 (扫描方向与激光偏振方向垂直, 如图 3 所示).

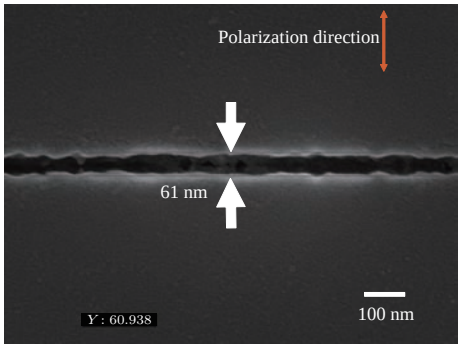


图 3 线宽为 61 nm 的纳米结构扫描电镜照片 ($P=0.96$ mW, $v=0.1$ mm/s)

Fig. 3. SEM image of 61 nm nano structure ($P=0.96$ mW, $v=0.1$ mm/s).

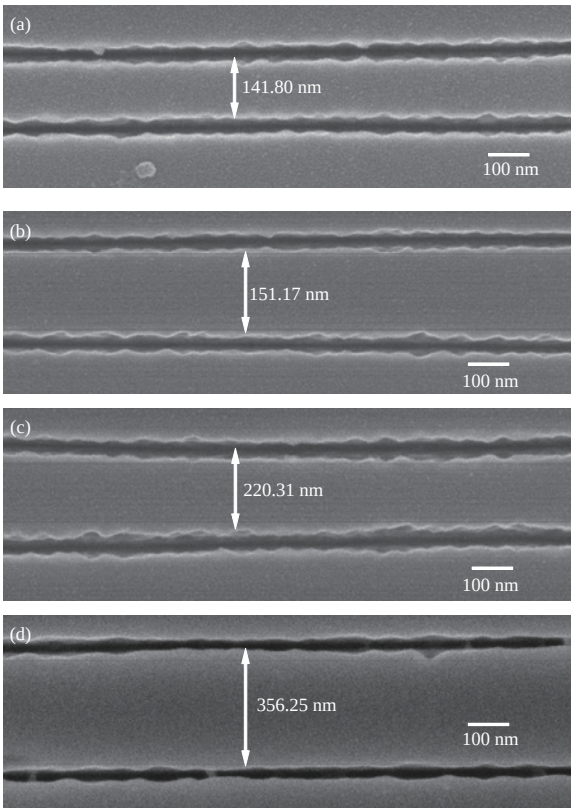


图 4 最小线宽纳米结构间距的对比照片 ($P=1.03$ mW, $v=0.1$ mm/s)

Fig. 4. SEM images of the space between nano structures ($P=1.03$ mW, $v=0.1$ mm/s).

与此同时, 我们探索了在保证最小线宽的前提下, 两条直线微纳结构间的最小间距. 目前单条结构线宽在60—70 nm范围的情况下, 两条微纳结构间距最小可达到142 nm左右, 如图4所示. 由于激光加工过程中会产生溅射物, 微纳结构间的间距不能过小, 否则两条结构间会产生互相影响, 以至于影响单条结构线宽的数值.

3.2 加工参数对蓝宝石表面微纳结构线宽的影响

激光加工功率、扫描速度、扫描次数等加工参数都会对加工的结构线宽产生影响. 在实验中我们发现, 在功率略高于加工阈值的情况下, 所得到的直线微纳结构内部没有熔融物质产生; 而当激光功率加大到一定程度时, 激光烧蚀出的微纳结构内部出现纳米量级的条纹, 如图5所示.

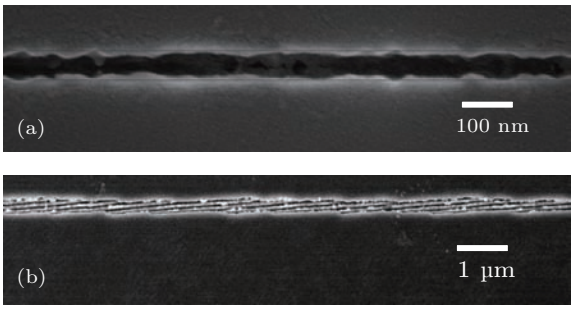


图5 微纳结构内部是否产生纳米条纹的对比 (v = 0.1 mm/s) (a) P = 0.96 mW; (b) P = 1.05 mW

Fig. 5. A comparison of two nano structures with stripes or not (v = 0.1 mm/s): (a) P = 0.96 mW; (b) P = 1.05 mW.

由激光诱导出的周期性的表面结构是一种比较普遍的现象, 其中经典的条纹状结构通常被认为是入射光和表面散射波相互作用的结果. 这种条纹有如下特征: 激光接近垂直入射时, 条纹周期远小于激光波长; 大部分情况下条纹结构方向垂直于激光偏振方向 (少数平行于激光偏振方向); 条纹脊部与凹槽间有陡峭边缘, 如图6所示. 通常, 这些波纹的周期Λ在一个很大的范围内; 依据波纹的周期Λ与激光波长λ的比值, 可以将波纹结构分为近亚波长条纹 ($0.4 < \Lambda/\lambda < 1$) 和深亚波长条纹 ($\Lambda/\lambda < 0.4$) [30]. 对于亚波长条纹的形成机制, 主要有以下三种理论解释 [31]:

1) 飞秒激光与表面散射波干涉作用理论 [32,33], 即近亚波长条纹的形成是由于入射光与表面散射波互相干涉、能量在空间上形成周期性分布;

2) 飞秒激光与表面等离子体激元干涉作用理论 [30,34], 即近亚波长条纹的形成是由入射的飞秒激光与激发出的表面等离激元相互干涉, 导致能量在空间上周期性分布造成的;

3) 自组织理论 [35,36], 即飞秒激光诱导表面周期性结构是由两个过程竞争产生, 一个是由于材料解离引起的表面粗糙过程, 另一个是扩散作用引起的表面平滑过程, 这两个过程竞争中形成了周期性条纹.

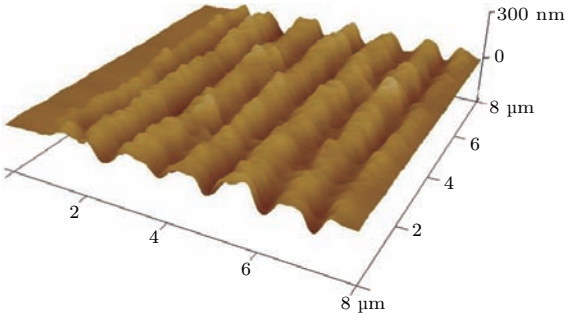


图6 飞秒激光诱导产生的纳米条纹的原子力照片 (P = 5.41 mW, v = 0.1 mm/s)

Fig. 6. AFM image of nano stripes induced by femtosecond laser (P = 5.41 mW, v = 0.1 mm/s).

深亚波长条纹的特点与经典的条纹有很大不同, 被认为不能归为由散射模型 [37] 所描述的经典条纹一类. 但是深亚波长条纹产生的确切原因尚不清楚. 目前比较有说服力的模型是等离子体模型 [19,38], 它可以解释偏振对结构方向的调控. 高能的飞秒激光通过多光子效应诱导电子电离, 并在激光电场的调节下周期性振荡, 形成结构烧蚀. 由于电子的吸收和电离均为多光子过程, 所以诱导出的纳米结构的周期和宽度均可以突破衍射极限, 结构的周期甚至可以达到十分之一波长 [39].

我们在实验中发现, 在同一激光加工参数下, 当微纳结构中的纳米条纹的方向与激光扫描方向平行时, 结构的线宽会比二者方向不一致时明显地减小. 由于激光的偏振方向决定了诱导出的纳米条纹的方向, 因此激光的偏振方向也会影响结构线宽的大小. 我们已经制备出线宽约61 nm的纳米线, 此线宽约达到所使用激光波长 (343 nm) 的1/6, 突破了衍射极限. 结合已有的理论模型和我们的实验结果, 我们认为等离子体模型能更好地解释我们的实验结果.

为了系统地研究加工参数对微纳结构线宽的影响, 我们选取了激光加工功率和扫描速度两个参数进行研究. 通过分别改变激光功率和扫描速度, 制备了不同参数下的微纳结构, 利用扫描电镜进行了表征, 将得到的线宽数值绘制成曲线进行了对比, 如图7和图8所示.

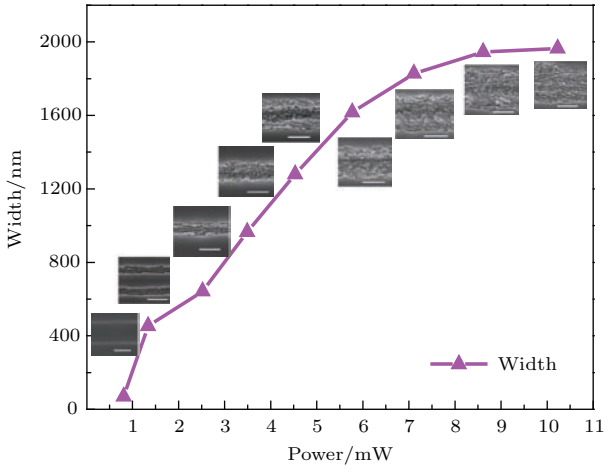


图7 线宽随激光功率变化曲线图 (v = 0.1 mm/s) 功率从下到上: 0.81, 1.34, 2.52, 3.49, 4.53, 5.77, 7.11, 8.61, 10.23 mW; 比例尺为1 μm

Fig. 7. Relationship between width and laser power (v = 0.1 mm/s). Power (from bottom to top): 0.81, 1.34, 2.52, 3.49, 4.53, 5.77, 7.11, 8.61, 10.23 mW; scale bar: 1 μm.

由图7中可以看出, 随着激光加工功率的增加, 烧蚀区域增大, 线宽数值也随之增大, 可以由几十纳米增至几微米, 伴随着明显的纳米条纹; 由图8中可以看出, 随着加工速度的增加, 直线微纳结构的线宽呈现减小的趋势. 因此, 通过优化激光加工功率和扫描速度, 可以找到比较恰当的参数来实现复杂微小结构的加工.

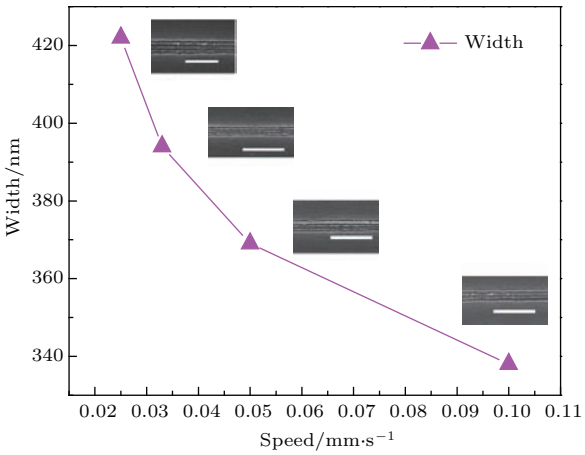


图8 线宽随扫描速度变化曲线图 (P = 1.33 mW) 速度由上到下: 0.025, 0.033, 0.05, 0.1 mm/s; 比例尺为1 μm

Fig. 8. Relationship between width and scanning speed (P = 1.33 mW). Speed (from top to bottom): 0.025, 0.033, 0.05, 0.1 mm/s; scale bar: 1 μm.

3.3 利用飞秒激光在蓝宝石表面加工复杂微小结构

通过上述利用飞秒激光在蓝宝石晶体材料表面实现超越衍射极限精度的加工, 以及针对加工功率、扫描速度对加工的微纳结构线宽的影响研究, 确定了相关实验参数对所加工的结构的线宽和形貌的影响. 基于以上研究结果, 设计并加工了其他复杂微小结构, 如图9所示. 这些图案是在已有研究成果的基础上, 编写了加工程序, 由飞秒激光扫描固定在压电平台上的蓝宝石样品得到, 为利用飞秒激光在蓝宝石表面进行更为复杂精密的图案加工提供了参考.

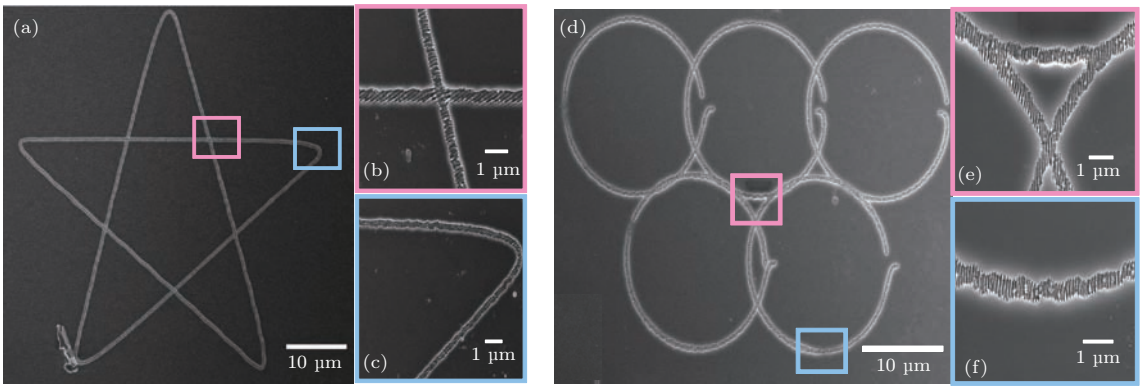


图9 利用飞秒激光制备的微纳图案的扫描电镜照片 (a), (d) 图案整体; (b), (c), (e), (f) 局部细节放大图 (P = 1.29 mW, (a) v = 0.1 mm/s, (d) v = 0.02 mm/s)

Fig. 9. SEM images of micro-nano structures fabricated with femtosecond laser pulses: (a), (d) Designed patterns; (b), (c), (e), (f) partial enlarged details (P = 1.29 mW, (a) v = 0.1 mm/s, (d) v = 0.02 mm/s).

4 结 论

本文中利用波长为343 nm、重频为90 kHz的飞秒激光在蓝宝石晶体表面加工得到了线宽为约61 nm的直线纳米结构, 此结构线宽远小于约1 μm的光斑尺寸, 实现了在蓝宝石表面超越光学衍射极限的加工精度; 并且探索了在保证最小线宽前提下微纳结构间的最小间距, 约为142 nm左右; 同时研究了飞秒激光加工过程中加工参数对蓝宝石表面微纳结构线宽的影响, 分别控制激光功率、扫描速度两个参数, 制备了不同参数下的结构. 将所得线宽数值进行对比, 发现随着激光功率增加, 结构线宽增加; 随着扫描速度的增加, 微纳结构线宽减小. 最后在蓝宝石材料表面设计并加工了特定微小图案结构, 为以后在蓝宝石材料表面进行更复杂、更高质量的图案加工提供了参考.

参考文献

[1] Wu D 2010 *Ph. D. Dissertation* (Changchun: Jilin University) (in Chinese) [吴东 2010 博士学位论文 (长春: 吉林大学)]

[2] Shrawan S, Sreenivasan S V 2016 *Microelectron. Eng.* **164** 139

[3] Ravi B, Hartley K, John G 2016 *J. Vac. Sci. Technol. B* **34** 06K606

[4] Fang R R, Anatoliy V, Guo C L 2017 *Light: Sci. Appl.* **6** e16256

[5] Zhang Y L, Guo L, Wei S, He Y Y, Xia H, Chen Q D, Sun H B, Xiao F S 2010 *Nano Today* **5** 15

[6] Wang L, Zhu S J, Wang H Y, Qu S N, Zhang Y L, Zhang J H, Chen Q D, Xu H L, Han W, Yang B 2014 *ACS Nano* **8** 2541

[7] Sun Y L, Dong W F, Niu L G, Jiang T, Liu D X, Zhang L, Wang Y S, Chen Q D, Kim D P, Sun H B 2014 *Light: Sci. Appl.* **3** e129

[8] Gao B R, Wang H Y, Hao Y W, Fu L M, Fang H H, Jiang Y, Wang L, Chen Q D, Xia H, Pan L Y 2010 *J. Phys. Chem. B* **114** 128

[9] Zhang Y L, Chen Q D, Xia H, Sun H B 2010 *Nano Today* **5** 435

[10] Zhang Y L, Xia H, Kim E, Sun H B 2012 *Soft Matter* **8** 11217

[11] Xia H, Wang J, Tian Y, Chen Q D, Du X B, Zhang Y L, He Y, Sun H B 2010 *Adv. Mater.* **22** 3204

[12] Guo L, Jiang H B, Shao R Q, Zhang Y L, Xie S Y, Wang J N, Li X B, Jiang F, Chen Q D, Zhang T 2012 *Carbon* **50** 1667

[13] Wu D, Chen Q D, Niu L G, Wang J N, Wang J, Wang R, Xia H, Sun H B 2009 *Lab On A Chip* **9** 2391

[14] Wu D, Wang J N, Wu S Z, Chen Q D, Zhao S, Zhang H, Sun H B, Jiang L 2011 *Adv. Funct. Mater.* **21** 2927

[15] Kawata S, Sun H B, Tanaka T 2001 *Nature* **412** 697

[16] Tan D F, Li Y, Qi F J, Yang H, Gong Q H, Dong X Z, Duan X M 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 071106

[17] Yu B H, Dai N L, Wang Y, Li Y H, Ji L L, Zheng Q G, Lu P X 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 5821 (in Chinese) [余本海, 戴能利, 王英, 李玉华, 季玲玲, 郑启光, 陆培祥 2007 物理学报 **56** 5821]

[18] Yun Z Q, Wei R X, Li W, Luo W W, Wu Q, Xu X G, Zhang X Z 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 068101 (in Chinese) [云志强, 魏汝省, 李威, 罗维维, 吴强, 徐现刚, 张心正 2013 物理学报 **62** 068101]

[19] Shimotsuma Y, Kazansky P G, Qiu J R, Hirao K 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 247405

[20] Liao Y, Ni J L, Qiao L L, Huang M, Bellouard Y, Sugioka K, Cheng Y 2015 *Optica* **2** 329

[21] Miyaji G, Miyazaki K 2016 *Opt. Express* **24** 4648

[22] Sui C H, Cai P G, Xu X J, Chen N B, Wei G Y, Zhou H 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 2792 (in Chinese) [隋成华, 蔡萍根, 许晓军, 陈乃波, 魏高尧, 周红 2009 物理学报 **58** 2792]

[23] Kuang W J, Wu X Q, Wang X, Han E H 2015 *Corrosion* **71** 687

[24] Wang H B, Daigo Y, Seino T, Ishibashi S, Sugiyama M 2016 *Jpn. J. Appl. Phys.* **55** 105501

[25] Chen L 2009 *M. S. Dissertation* (Changchun: Jilin University) (in Chinese) [陈磊 2009 硕士学位论文 (长春: 吉林大学)]

[26] Li Q K, Cao J J, Yu Y H, Wang L, Sun Y L, Chen Q D, Sun H B 2017 *Opt. Lett.* **42** 543

[27] Qi L T, Hu J P, Yu X W 2012 *J. Heilongjiang Instit. Sci. Technol.* **22** 297 (in Chinese) [齐立涛, 胡金平, 于信伟 2012 黑龙江科技学院学报 **22** 297]

[28] Zhao K H, Zhong X H 1984 *Optics* (Vol. 1)(Beijing: Peking University Press) p228 (in Chinese) [赵凯华, 钟锡华 1984 光学 (上册)(北京: 北京大学出版社) 第228页]

[29] Gan F X, Wang Y 2011 *Acta Opt. Sin.* **31** 0900104 (in Chinese) [干福熹, 王阳 2011 光学学报 **31** 0900104]

[30] Huang M, Zhao F L, Cheng Y, Xu N S, Xu Z Z 2009 *ACS Nano* **3** 4062

[31] Yang M 2014 *Ph. D. Dissertation* (Tianjin: Nankai University) (in Chinese) [杨明 2014 博士学位论文 (天津: 南开大学)]

[32] Emmony D C, Howson R P, Willis L J 1973 *Appl. Phys. Lett.* **23** 598

[33] Young J F, Sipe J E, Vandriel H M 1984 *Phys. Rev. B* **30** 2001

[34] Bonse J, Rosenfeld A, Kriiger J 2011 *Appl. Surf. Sci.* **257** 5420

[35] Varlamova O, Reif J, Varlamov S 2010 *E-MRS Symposium R on Laser Processing and Diagnostics for Micro and Nano Applications* Strasbourg, France, Jun 7–11, 2010 p5465

[36] Reif J, Varlamova O, Varlamov S Bestehorn M 2011 *Appl. Phys. A: Mater. Sci. Pro.* **104** 969

[37] Young J F, Sipe J E, Vandriel H M 1983 *Opt. Lett.* **8** 431

[38] Hnatovsky C, Taylor R S, Simova E, Rajeev P P, Rayner D M, Bhardwaj V R, Corkum P B 2006 *Appl. Phys. A: Mater. Sci. Pro.* **84** 47

[39] Wang L 2015 *Ph. D. Dissertation* (Changchun: Jilin University) (in Chinese) [王磊 2015 博士学位论文 (长春: 吉林大学)]

SPECIAL ISSUE—Diffraction limit of electromagnetic waves

Sub-diffraction-limit fabrication of sapphire by femtosecond laser direct writing*

Gao Si Wang Zi-Han Hua Jian-Guan Li Qian-Kun Li Ai-Wu† Yu Yan-Hao‡

(*College of Electronic Science and Engineering, Jilin University, Changchun 130012, China*)

(Received 30 March 2017; revised manuscript received 19 May 2017)

Abstract

Sapphire has shown broad application prospects in military and medical fields, due to its high hardness, excellent corrosion resistance and high transmission in the infrared band. However, these characteristics have also brought about lots of difficulties in machining or chemical etching the material. Femtosecond laser processing with excellent characteristics including small heat-affected zones and high processing resolution ratio, has become an emerging field. Therefore, it has important application prospects and has found increasingly wide applications in the fields of material modification and high-quality fabrication of three-dimensional micro-nano structures and devices. In this paper, we propose a method in which femtosecond laser processing based on multi-photon absorption is used to process sapphire beyond the optical diffraction limit. In this work, femtosecond laser with a central wavelength of 343 nm is focused on the sapphire and the surface of sapphire is scanned with the high-precision piezoelectric positioning stages. Nano structures each with a width of about 61 nm are obtained, and the minimum space between the nano structures could be as short as about 142 nm. Further, the influences on the processing resolution from laser power and scanning speed are investigated and the generation mechanism for the nano-ripple structure is discussed. Finally, femtosecond laser processing on the sapphire with a resolution beyond the optical diffraction limit is achieved. This work provides a reference for processing the hard and brittle materials by femtosecond laser.

Keywords: femtosecond laser processing, optical diffraction limit, sapphire, micro-nano structures

PACS: 79.20.Eb, 68.37.Hk, 81.16.–c, 68.35.–p **DOI:** 10.7498/aps.66.147901

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61590930, 91323301, 61435005, 21473076).

† Corresponding author. E-mail: liaw@jlu.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: yanhao_yu@jlu.edu.cn

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

基于近场光学的微球超分辨显微效应

周锐　吴梦雪　沈飞　洪明辉

Super-resolution microscopic effect of microsphere based on the near-field optics

Zhou Rui　Wu Meng-Xue　Shen Fei　Hong Ming-Hui

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 140702 (2017)　DOI: 10.7498/aps.66.140702
在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.140702
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I14

您可能感兴趣的其他文章
Articles you may be interested in

相位敏感型光时域反射传感系统光学背景噪声的产生机理及其抑制方法
The mechanism and suppression methods of optical background noise in phase-sensitive optical time domain reflectometry
物理学报.2017, 66(7): 070707　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.070707

光学微操纵过程的轴平面显微成像技术
Observation of particle manipulation with axial plane optical microscopy
物理学报.2017, 66(1): 010702　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.010702

荧光激光雷达技术探测水面油污染系统仿真研究
Simulation of fluorescence lidar for detecting oil slick
物理学报.2016, 65(7): 070704　http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.070704

同步辐射中双压电片反射镜的研究现状
Present research status of piezoelectric bimorph mirrors in synchrotron radiation sources
物理学报.2016, 65(1): 010702　http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.010702

基于激光诱导叶绿素荧光寿命成像技术的植物荧光特性研究
Study of plant fluorescence properties based on laser-induced chlorophyll fluorescence lifetime imaging technology
物理学报.2015, 64(19): 190702　http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.190702

专题: 电磁波衍射极限

编者按 自1873年阿贝提出衍射极限以来, 该问题就一直是学术界的研究热点和难点. 近年来, 随着近场光学、表面等离子体亚波长光学、非线性光学等学科的发展, 人们开始在亚波长尺度重新认识衍射极限. 本专题针对如何突破衍射极限, 以及突破衍射极限之后的新问题, 邀请本领域专家学者阐述最新进展和研究趋势, 以期进一步促进相关理论、技术及应用的发展.

(客座编辑: 中国科学院光电技术研究所 罗先刚)

基于近场光学的微球超分辨显微效应*

周锐[1)#†] 吴梦雪[2)#] 沈飞[1)] 洪明辉[2)‡]

1) (厦门大学航空航天学院, 厦门 361005)

2) (新加坡国立大学电机工程系, 新加坡 117576)

(2017年3月29日收到; 2017年5月16日收到修改稿)

在光学成像领域, 由于受到衍射极限的限制, 常规成像分辨率在200 nm左右. 科学的不断进步对更高分辨率有着迫切需求, 如何突破这个极限来获得更高质量的高分辨率图像是热门研究领域. 2011年提出了微球超显微技术: 在原有的光学系统中, 将直径几微米至几十微米的透明微球直接置于样品表面, 就能够成倍提高传统光学显微镜的成像能力. 微球超显微技术以其简单直接的特点, 受到广泛关注. 本文介绍了光学显微镜的研究背景以及国内外团队在微球超分辨显微技术方面的研究进展, 包括通过在微球表面进行环刻同心环、中心遮挡和表面涂覆的方法来调节微球所产生的光子纳米喷射方面所开展的一系列研究, 并进行了理论模拟和实验验证, 进一步提升了微球的超分辨显微效应. 最后, 展望了今后微球超分辨显微技术的应用与发展方向.

关键词: 光学显微镜, 微球超分辨, 光子纳米喷射

PACS: 07.60.Pb, 07.60.–j, 42.79.Bh **DOI:** 10.7498/aps.66.140702

1 引 言

光学显微镜是利用光学原理, 把人眼所不能分辨的微小物体放大成像, 以供人们提取微细结构信息的光学仪器. 光学显微镜的发明是人类历史上取得的一项重大成就, 它使得人们能够看到放大成百上千、甚至几万、几十万倍的肉眼所不能看见的精细结构. 1590年, 荷兰的两位眼镜工匠Hans Janssen和他的儿子Zacharias Janssenfamil发明了世界上第一台光学显微镜. 后来, 经过伽利略, 罗伯特·胡可和列文·胡可等的进一步研究改进, 在动、植物机体微观结构的研究方面取得了杰出成就, 对科学技术尤其是生命科学的发展产生了重

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2013CBA01703)、国家自然科学基金 (批准号: 61605162)、福建省自然科学基金 (批准号: 2017J05106)、中国科学院光电技术研究所微细加工光学技术国家重点实验室开放课题 (KFS4) 和福建省高端装备制造协同创新中心资助的课题.

共同第一作者.

† 通信作者. E-mail: rzhou2@xmu.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: elehmh@nus.edu.sg

© 2017 中国物理学会 Chinese Physical Society

大的影响. 1873年, 德国科学家阿贝(E.Abbe)[1]首次提出了光学衍射极限的概念, 认为显微镜所能看到的物体的最小尺寸为光波长的一半左右(在可见光波段, 这一极限大约为200 nm). 然而对于生命科学而言, 这个尺度远远不够. 值得注意的是, 阿贝的光学衍射极限的概念是基于光波自身的波动属性而得到的, 而当代许多先进的光学显微镜往往是通过光与物质的相互作用来实现, 这为突破光学衍射极限提供了可能. 受到阿贝的启发, 德国科学家Helmholtz[2]提出了著名的分辨率公式$d=\dfrac{\lambda}{2n\sin\theta}=\dfrac{\lambda}{2NA}$, 并在1877年由Stephenson[3]进行实验验证, 这进一步为突破光学衍射极限提供了理论基础. 1942年, Francia首次假定了倏逝波的存在并于1949年进行了实验验证[4]. 倏逝波是一种沿介质界面传播的、振幅在垂直于界面的方向上的电磁波, 作为一种近场驻波, 在传播过程中, 携带物体的高频率亚波长空间信息, 其强度随着与物体表面距离的增加而呈指数衰减. 相对于一般传播波, 倏逝波的平行分量较大, 能够表现出更加精细的细节信息[5−7].

1970年, Nassenstein[8]采用了一个巧妙的方案, 利用倏逝波照射物体, 并用全息技术获得了放大的图像, 所放大图像的分辨率由倏逝波的波长决定. 基于这一方案, 1972 年, 近场扫描光学显微镜(near-field scanning optical microscopy, NSOM)由此诞生[9]. 通过物体表面覆盖的具有微小针孔(孔径小于入射光波长)的薄膜, 成功进行了首次超越经典光学分辨率极限的亚波长成像. 虽然NSOM俘获的图像的分辨率优于其他大多数显微镜, 但探针扫描检测的方法使得整个系统复杂且成像缓慢, 不能进行实时的生物检测, 并受到孔径尺寸的限制[10].

对于常规透镜, 图像的清晰度总是受到光波长的限制. 2000年, Pendry[11]通过一系列理论分析和证明, 提出了“完美透镜”的概念, 通过具有负折射率(折射率小于零)的人造介质[12−16], 能够恢复传播波的相位和倏逝波的振幅, 放大倏逝波[17]. 使用这种透镜, 传播波和倏逝波都可以贡献于提升图像的分辨率, 使得物体的信息在成像点完美重建, 打破了传统光学显微镜的限制, 实现了超分辨聚焦的目的. 完美透镜的概念导致了对超材料和等离子体激元研究的激增. 遵循Pendry的基本思想, 过去十几年中, 世界各地的许多研究团队和研究人员研发了多个版本的等离子体超材料超透镜[18−21], 这些超透镜虽然突破了阿贝的传统光学限制, 但分辨率仍限制在70—100 nm, 无法达到生物领域所需的更高分辨率的水平[22,23].

超分辨显微技术是近年来发展的最成功的显微技术. 不同于近场成像的NSOM和超材料透镜, 超分辨显微技术基于远场成像. 它主要有两种实现途径: 一种是基于特殊强度分布照明光场的超分辨成像方法(如stimulated emission depletion microscopy, STED), 另一种是基于单分子成像和定位的方法(如photo activated localization microscopy, PALM). 1999年, 德国科学家Hell和Wichmann[24]基于爱因斯坦受激辐射理论首次实现了受激发射损耗显微技术(STED)[25]. 通过一束激发光将荧光分子激发, 使基态粒子跃迁到激发态, 随后, 用另一束环形STED光照射, 使正处于激发态的粒子重新回到基态, 失去发射荧光的能力. 剩余的可发射荧光区被限制在一个小圆环范围内, 相当于获得了一个小于衍射极限的荧光发光点, 进而获得突破传统衍射极限的超分辨率图像.

为了克服一个艾里斑内只允许一个分子发射荧光的限制, 2006年, Betzig等[26]利用光激活绿色荧光蛋白(PA-GFP)的可控荧光开关特性, 结合单分子定位算法, 实现了生物样本的超分辨成像. 他们首先利用低能量的405 nm激光来稀疏活化PA-GFP, 再使用561 nm激光对活化后的PA-GFP进行单分子荧光成像, 直至活化后的PA-GFP分子被光漂白. 重复激活-激发-定位-漂白过程, 可以在艾里斑内精确地找到大量PA-GFP分子的中心位置, 从而重建出一幅由PA-GFP分子中心位置组成的超分辨图像. 这种技术被称为光激活定位显微镜(PALM). 2014 年, 因在超分辨荧光技术领域取得的重大成绩, Eric Betzig, Stefan W. Hell William E. Moerner获得了诺贝尔化学奖, 体现了光学成像在科学发展中的地位. 但是, STED和PALM等技术仍存在许多不足. 例如, PALM只能用来观察外源表达的蛋白质, 而对于分辨细胞内源蛋白质的定位则无能为力. 同时, 需要注意的是, 这些技术是基于荧光材料, 而不是超高分辨率的透镜, 对于无法使用荧光标记的物体也束手无策. 而且, 荧光的使用可能导致生物原始性质的改变, 并影响其动态过程[27−30]. 因此, 开发不需要进行标记的高分辨率透镜非常关键.

以上对光学成像的探索虽然取得了一定的进展, 或多或少的打破了传统光学衍射极限的限制, 但上述这些技术所实现的分辨率在不同条件下仍被限制在70—100 nm之间. 2011年, 本课题组洪明辉教授及其博士研究生与李林教授合作, 发现了一种新颖的微球超分辨显微技术[31]. 他们将光学透明微球(如二氧化硅微球, 直径为2—9 μm)放置在所需成像物体的表面, 结合传统光学显微镜, 打破了传统光学衍射的极限. 在透射模式下, 依靠直径4.74 μm的微球, 成功分辨了具有50 nm直径和间隔孔的鱼网镀金阳极氧化铝(anodic aluminum oxide, AAO)膜样品, 在反射模式下清晰地分辨了用于DVD磁盘的GeSbTe(广泛用于光存储和电存储研究的相变材料)薄膜上所带有的90 nm尺度边角呈复杂星形的结构. 在后续实验中, 不论反射或透射成像模式, 都可以观察到50 nm的微小样品. 这种新的无需标记且方法简单的微球超分辨显微技术, 相对于之前的光学显微技术有了更进一步的突破, 吸引了许多研究人员致力于微球超分辨显微技术的研究[32−44].

2 微球光学显微镜

微球超分辨显微效应与微球本身的物化性质(不同尺寸、材料以及折射率)[45−47]、实验环境(不同入射光、微球浸没或半浸没)以及样品本身等因素有关[48−52]. 为了进一步了解Wang等[31]发现的微球超显微分辨技术, Hao等[53]在Wang等人的微球实验基础上进行改进, 发现当把微球半浸没于液体中时, 微球内部虚像的对比度能被极大地增强, 但将微球完全浸没于液体时, 并没有获得预期的增强效果. 图1为Hao等所进行的实验模拟图, 其实验装置包括反射模式下的光学显微镜NIKON Eclipse 80i、样品(蓝光光盘的芯片, 槽脊宽200 nm, 槽宽100 nm, 如图2(a))、二氧化硅微球(直径3 μm, 折射率1.47)以及乙醇溶液层.

从图2中可以观察到, 液体半浸没后微球显微镜的能力被明显增强. 考虑到乙醇层的挥发性, Hao等用视频记录下了成像的动态过程. 当乙醇蒸发至微球一部分暴露时, 暗条纹出现在微球体内, 并且逐渐变得清晰, 图像边界更加尖锐, 如图2(d). 当乙醇完全蒸发消失之后, 图像再次变得模糊. 他们对其中的机理做了详细的说明. Hao等发现的微球浸没后得到的图像更清晰, 对比度增强, 分辨率更高, 但所带来的缺点是放大倍数的降低. 无浸没时3 μm二氧化硅微球对蓝光光盘的成像倍数为2.7倍, 浸没于乙醇中时, 放大倍数随浸没深度的变化相应地发生改变.

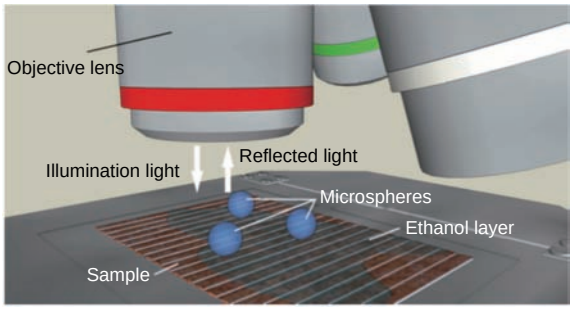


图1 半浸没微球成像系统的实验装置[53]

Fig. 1. Semi-immersion experimental configuration of microsphere-based nanoscope[53].

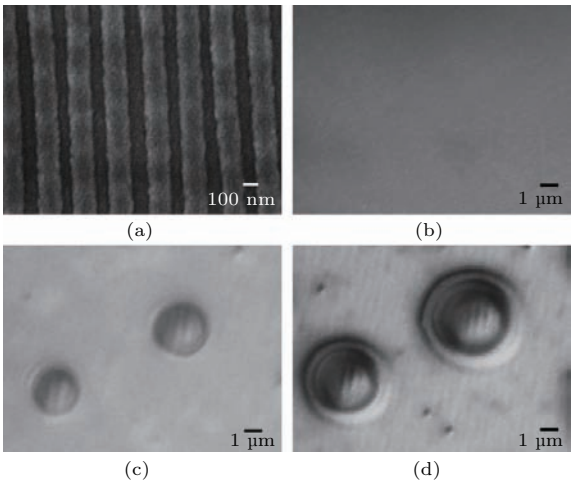


图2 通过不同方式产生的蓝光盘表面图像 (a) 扫描电子显微镜; (b) 具有100× 物镜的光学显微镜; (c) 3 μm微球; (d) 半浸没在乙醇中的3 μm微球[53]

Fig. 2. Images of the surface of the blue-ray disk generated by different technical methods: (a) Scanning electron microscope; (b) optical microscope with 100 objective lens; (c) 3 μm microsphere; (d) 3 μm microsphere semi-immersed in the ethanol droplet[53].

不同于Wang等[31]使用的2—9 μm的二氧化硅微球, Lee等[54]通过与传统光学显微镜相结合研究了更大尺寸的聚苯乙烯微球(直径为30, 50, 100 μm)对图像分辨率的影响.

在实验过程中所用的样品为脊宽180 nm、槽宽120 nm的蓝光光盘(图3(a))和在石英上具有150 nm直径点和600 nm间隔的金纳米图案(图3(b)). 微球通过水滴散布在样品表面, 干燥后在反射模式下观察.

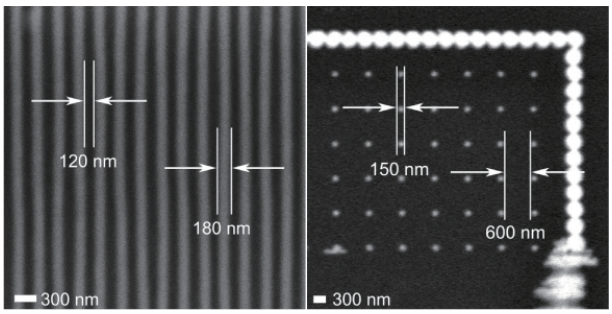


图3 (a) 蓝光盘; (b) 石英上的金纳米板的SEM图像[54]

Fig. 3. Scanning electron microscope (SEM) images of (a) blue-ray disc and (b) gold nano-patterns on quartz[54].

根据衍射极限的限制, 本次实验所用光学显微镜的分辨极限在300 nm左右. 在样品表面放置微球之后, 能清楚地观察到突破传统衍射极限的图案, 如图4 所示. 对于不同直径大小的微球, 光学显微镜通过调整不同的聚焦位置来获得最佳的图像. 对比图4 (d), (e), (f)可以看到, 对于30和50 μm的微球, 在较大面积成像时, 由于相邻微球之间的重叠干涉而影响超分辨效果. 100 μm的微球则可以有效避免这种情况, 因为微球体的观察窗大于光学显微镜的观察窗, 不会受到相邻微球的边界干涉影响. Lee等[54]研究发现大尺寸微球(直径大于30 μm)也能够在非浸没的空气环境中实现超分辨成像, 特别是相对于Wang等[31]研究所用的2—9 μm小微球而言, 消除了相邻干涉的影响并实现了更大范围的超分辨成像.

此外, 他们还发现放大倍数与图像聚焦位置相关. 图5为不同尺寸微球在蓝光光盘上的成像放大倍数和图像聚焦位置的折线关系. 在折线图范围之外, 超分辨成像能力消失. 当焦点位置远离样品时, 放大率上升, 但随之而来的是分辨率和对比度的下降. 同样, 放大倍数也取决于微球的尺寸, 当$\alpha = 3.0$时, 30, 50, 100 μm的微球放大倍数分别为6.5, 7.5和8.0倍. 由于倏逝波不具有衍射极限, 因此成像分辨率很大程度上取决于对标准传统光学显微镜所能放大的倍数和转换处理图像的方式. 对于具有300 nm的衍射极限的该特定光学显微镜, 在理想情况下约7倍的微球放大将允许光学显微镜观察到的样品细节达到43 nm (以300 nm/7来估算).

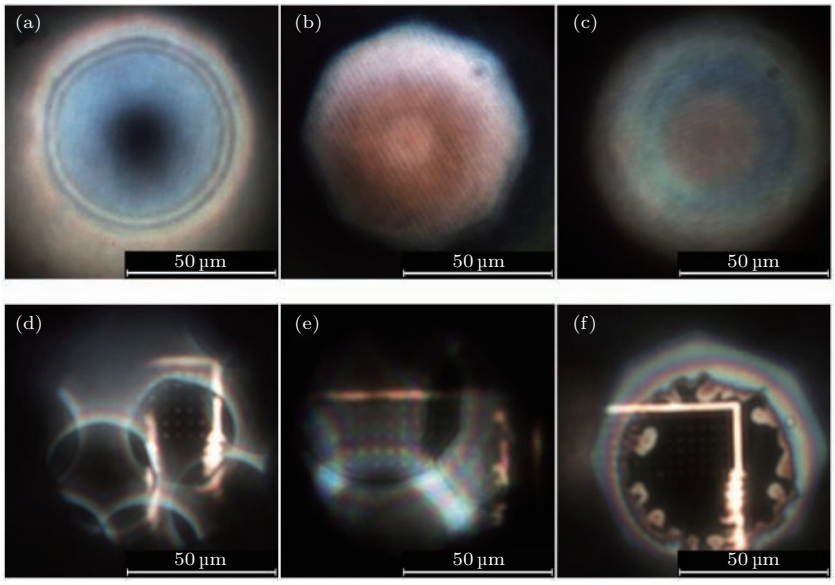


图4 不同直径微球下蓝光盘(a)—(c)和石英金纳米板(d)—(f)的放大图像 (a) 直径30 μm, 焦距99 μm; (b) 直径50 μm, 焦距120 μm; (c) 直径100 μm, 焦距300 μm; (d) 直径30 μm, 焦距60 μm; (e) 直径50 μm, 焦距140 μm; (f) 直径100 μm, 焦距200 μm[54]

Fig. 4. Magnified optical images with 30, 50, and 100 μm diameter PS microspheres in air: The blue-ray disc is resolved with (a) 30 μm, (b) 50 μm and (c) 100 μm PS microspheres when the optical microscope is focused 99, 120 and 300 μm below the target surface, respectively; the gold nano-patterned quartz is observed with the (d) 30 μm, (e) 50 μm and (f) 100 μm PS microspheres 60, 140 and 200 μm below the target surface, respectively[54].

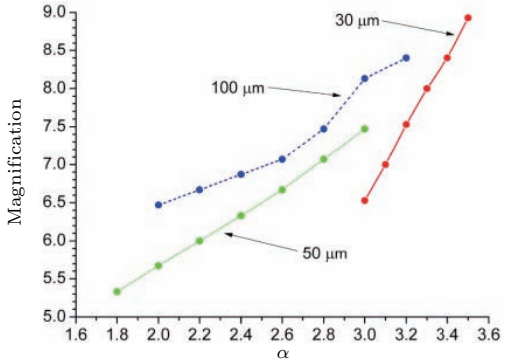


图5 蓝光盘中微球放大因子折线图 其中α定义为目标基板下方的焦点图像位置除以微球的直径, 折线上圆点为超分辨图像采样位置[54]

Fig. 5. Magnification factor analysis of PS microspheres in the blue-ray disc. α is defined as the α focal image position below the target substrate divided by the diameter of the PS microsphere. The circle spots are sampling positions for super-resolution imaging[54].

在一般的微球显微效应研究中, 通常采用同一波长的光源照射, 而改变其他可能影响超显微效应的参数. Lee和Li[55]从理论上研究了光子纳米喷射效应, 进一步推测出光源波长对成像的影响. 他们使用的小球直径为60 μm, 折射率为2.2, 并浸没在水中, 用波长分别为400, 500, 600和700 nm的平面波照射, 在四种情况下光强最大处分别得到了0.69λ, 0.63λ, 0.59λ以及0.62λ的半高全宽(full with at half maximum, FWHM)和5635, 5212, 4867, 5059 nm的光强最大处与微球表面的距离(distance for the maximum intensity, DMI). 由此可见, 当入射光的波长改变时, 微球仍然具有光子纳米喷射效应, 同时产生了不同的光强分布, 对进一步研究微球超分辨显微效应具有指导意义.

3 微球光学显微镜成像效果的拓展

微透镜具有优异的调节入射光的能力, 能够产生约一半入射波长的超过光学衍射极限的小焦斑. 其中, 研究最多的微透镜是微球和微柱. 2000年, Lu等[56]通过二氧化硅粒子增强了激光照射. 后来, Chen等[57]研究了在平面波照射下微柱体阴影侧的电场增强, 提出了"光子纳米喷射"的概念. 光子纳米喷射具有优异的光学性能, 如非交联性、较强的局部电场以及尖锐的焦点, 能够应用于纳米颗粒检测、光学纳米光刻和超分辨率成像等领域[58−62]. 其中, 如何获得更加尖锐的焦点是其关键问题, 它体现了微球的聚焦能力. 在光学超分辨成像中, 样品与光子纳米喷射相互作用, 产生散射波, 通过微球传播并最终成像, 将微球的超分辨能力推向新的极限[63].

为了调整光子纳米喷射的传播距离和波宽, 先前的科研团队采用了很多方法. 如: 通过组合不同折射率的材料来调节光子纳米喷射的传播距离和聚焦, 提出了双层介质微球或不同折射率的微球[64,65]; 设计为半球形的单材料结构[66]. 虽然在一定程度上提高了传播距离, 但是降低了光子纳米喷射的强度. 至今为止, 通过构造表面微结构来调整光子纳米喷射的方法尚未提出. 表面微结构具有改变光路传播方向的能力, 因此本课题组提出了一种通过在传统微球表面构造微结构, 从而调谐微球所产生的光子纳米喷射的FWHM[67]和工作距离的新方法[68].

如图6所示, 微球材料为二氧化硅, 微球表面照射处经过表面修饰, 构造出同心环微结构(同心环宽为0.25 μm). 由于微球尺寸小(大约10 μm), 在实验中设计了薄的金膜以承载小微球, 金膜由常规的UV光刻和金电镀制成. 具体步骤为: 利用激光直写系统(海德堡仪器公司的UPG), 在旋涂

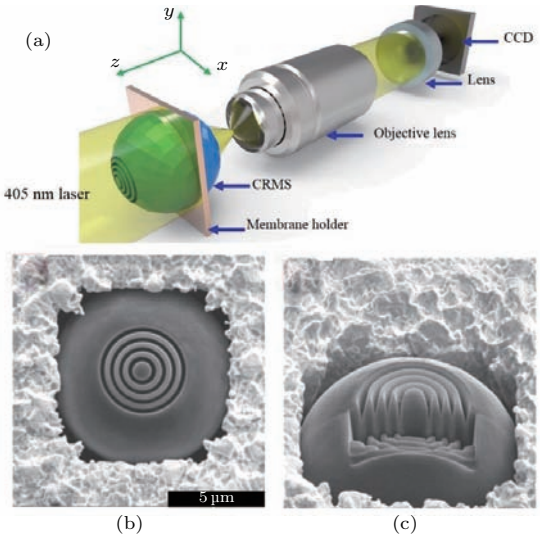


图6 (a) 光学显微镜观察光子纳米喷射示意图, 位于物镜和CCD之间的透镜表示光学显微镜中的聚焦透镜; (b) 4环构造微球的俯视图; (c) 4环构造微球的侧视图[68]

Fig. 6. (a) Schematic of observing photon nano jet (PNJ) by an optical microscope, the lens located between the objective lens and CCD represents for the focusing lenses in the optical microscope, (b) top and (c) side views of a 4 ring microsphere[68].

有530 nm的AZ1518光致抗蚀剂层的100 nm厚铬基底进行光刻; 然后, 清洁500 μm厚的硅晶片, 并用薄层的Cr/Au (100 nm/50 nm)作为黏合和电镀基底; 再通过旋涂沉积5 μm厚的AZ9260抗蚀剂, 然后通过UV光在掩模和键合Aligner (Karl Suss, MA8/BA6)中曝光; 抗蚀剂显影后, 剩余的抗蚀剂模具用于金电镀以形成金层, 用丙酮和金蚀刻剂除去AZ 9260抗蚀剂和Au镀层; 最后, 通过Cr蚀刻将整个金膜从衬底中释放出来. 将整个结构浸入稀释的水中, 把微球分散在金膜上, 取出后, 在环境气体中干燥, 在FEI DA 300聚焦离子束(FIB)系统下, 使用30 kV和50 nA的液态金属镓离子源在微球表面构造同心环结构. 实验过程中, 控制金膜上的小微球以50 nm的步长沿Z轴移动. 通过时域有限差分法 (finite-difference time-domain, FDTD)模拟, 研究同心环环数和深度等因素对微球光子纳米喷射的影响.

首先, 我们研究了在数值模拟中, 保持深度一定(1.2 μm), 通过变化环数(0—6环)来研究其对光子纳米喷射的影响, 模拟结果如图7所示.

入射光照射在微球顶部, 通过同心环, 最后聚焦在阴影侧. 与没有经过表面修饰的微球相比, 4环微球使得光束更加汇聚, 如图7(b)—(d). 图7(e)为环数为0—6时的光子纳米喷射的最高强度点沿y轴的分布, 可以明显地观察到FWHM的缩小. 入射光波长(λ)为405 nm, FWHM从274.2 nm (无环, 0.686λ)降低至182.8 nm (6环, 0.457λ), 降低了33.3%. 环数从变化到3时, FWHM快速下降, 当环数为4时, FWHM为194.3 nm (0.486λ), 相对无环降低了29.1%. 虽然FWHM下降明显, 但是从图中我们可以看到, 光强和工作距离也随之减少. 因此, 为了平衡工作距离以及FWHM, 我们选择4环微球进行更进一步的模拟和实验. 环深度为微球表面到环底部的距离, 将环数固定为4后, 我们继续研究环深度对FWHM和工作距离的影响.

图8为环数4的不同环深(0—1.6 μm)产生的光子纳米喷射的FDTD模拟. 其中, 没有环时, 微球产生的FWHM为274.2 nm (0.686λ). 相比之下, 当环深度为1.2 μm时, FWHM可以被调制到194.3 nm (0.486λ), 减少了29.1%. 图8(f)为不同环深下光子纳米喷射的工作距离和FWHM折线关系图, 可以观察到, 环深度较浅时(0.2—0.6 μm)时, 对应的工作距离较长, FWHM较大(约260 nm), 环深在1—2 μm时, 工作距离较短, FWHM较小(约200 nm). 可以得出结论, 最小FWHM可以在0.8 μm的深度处实现. 当深度浅于0.8 μm时, FWHM和工作距离的变化不明显. 当深度大于0.8 μm时, 工作距离没有显着变化, 但是FWHM略有增加. 在浅深度(1.0 μm)进行的调制足以实现尖锐的光子纳米喷射. 从结果可以总结, 蚀刻深度在0.8—1.4 μm之间可以产生清晰的聚焦, 并且平均工作距离约为0.8 μm. 因此, 我们选择1.2 μm的环深度以在实验上评价聚焦能力.

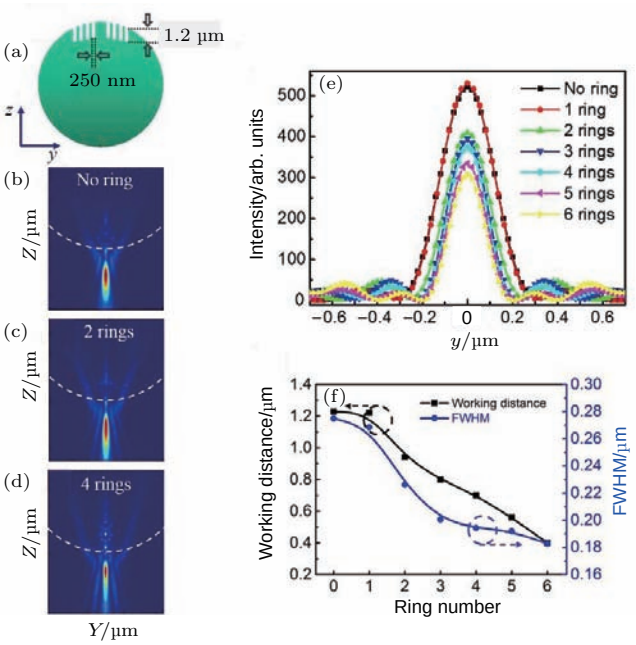


图7 0—6环构造微球下产生的光子纳米喷射 (a) 表面构造微球的横截面视图; (b)—(d) 在YZ平面中具有, 2和4个环的微球的光强分布; (e) 在光子纳米喷射的最高强度点处沿y轴的光强度分布; (f) FWHM和工作距离与环数的关系[68]

Fig. 7. PNJ generated by CRMS with 0 to 6 etched rings on the illumination side of CRMS: (a) Cross-section view of the CRMS; (b)–(d) light intensity distribution of CRMS with 0, 2 and 4 rings in the YZ plane; (e) light intensity distribution along y axis at the highest intensity points of the PNJ; (f) dependence of FWHM and working distance of the PNJ on ring number[68].

为了验证具有表面微结构的微球成像的功能, 我们通过光学显微镜直接观察光子纳米喷射, 以便于比较具有和不具有表面修饰微球所产生的效果. 图9(a)—(c)分别为环深1.2 μm的4环, 单环微球和普通无构造微球. 图9(d)—(f)为沿Z轴步长50 nm下所采集的10个光强分布的原始图像, 可以看出, 工作距离随环数减少, 这与模拟结果一致.

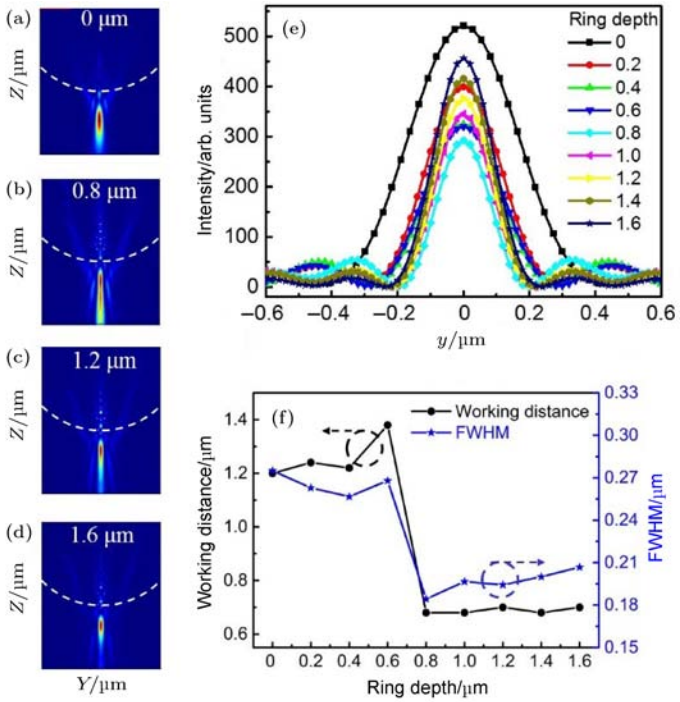


图 8 环深由变化至 1.6 μm 下微球产生的光子纳米喷射的 FDTD 模拟 [68]

Fig. 8. FDTD simulation of PNJs generated by microspheres with ring depth changed from 0 to 1.6 μm [68].

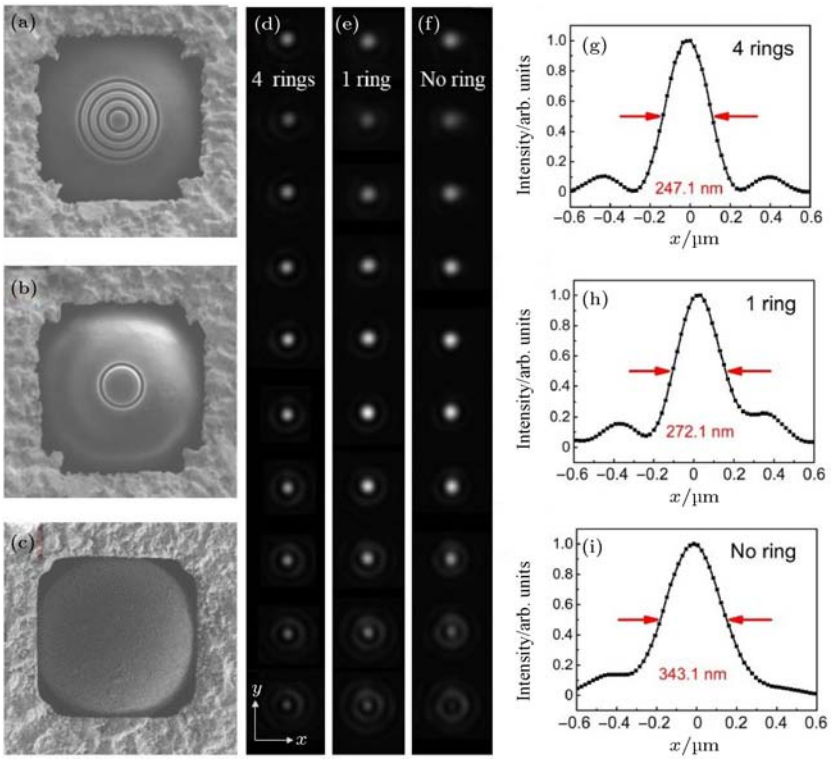


图 9 在 405 nm 激光照射下 (a) 4 环, (b) 单环和 (c) 普通微球产生的光子纳米喷射的实验结果; (d) 4 环, (e) 1 环和 (f) 普通微球在 Z 轴上以 50 nm 间隔拍摄的 10 个图像; (g), (h), (i) 为沿水平方向 3 种微球的强度分布 [68]

Fig. 9. Experimental results of the PNJ generated under 405 nm laser illumination by (a) 4 rings, (b) single ring microsphere and (c) microsphere only; 10 raw images of light intensity distribution along Z axis for (d) 4 ring microsphere; (e) 1 ring microsphere and (f) microsphere only are listed; the images are taken with a separation of 50 nm in Z axis, 10 images are chosen for each configuration to show the change at the focal plane; the intensity distributions along horizontal direction are plotted in (g), (h) and (i), respectively [68].

具有4环的表面构造微球产生的光子纳米喷射的FWHM比单环以及普通微球更加尖锐. 对于4环构型, 观察到247.1 nm的FWHM, 与仅由微球体(343.1 nm)获得的结果相比, 实现了FWHM的显着降低(28.0%).

在以上的研究工作中, 我们提出了表面构造来调节微球光子纳米喷射的新方法, 通过具有表面修饰同心环的二氧化硅微球, 研究了所产生的光子纳米喷射的FWHM和环数以及环深的关系. 在4环1.2 μm得到了良好的实验结果, 并与模拟仿真结果一致. 但是, 由于环调节光束的传播方向所带来的散射效应, 导致工作距离与光强也相应减少.

此外, 本课题组还提出了一种新的通过微球表面中心覆盖来调节入射光, 实现尖锐光子纳米喷射的方法[69]. 我们在微球照射侧表面的中心设计一层掩膜, 作为过滤器, 有选择性地将原始的入射光束引入到微球之中, 实现光子纳米喷射的FWHM和工作距离的改变. 为了在微球表面沉积铂层作为掩膜, 在FEI DA 300聚焦离子束系统下, 使用30 kV和50 nA的液态金属镓离子源, 在微球顶部制造约1 μm厚的具有不同直径的铂层, 在FIB制造期间, 掩膜图案的中心与微球的光轴对准. 为了表征中心覆盖微球所产生的光子纳米喷射, 我们构建了实验装置, 应用低功率He-Ne 633 nm线偏振激光器(MellesGriot, 25-LHP-925-230)作为入射光源. 应用半波片来形成光束的线性偏振, 并且使用衰减器来将激光强度调谐到期望的亮度. 为了操作三维工程微球, 制成薄金膜(该金膜制作过程与上文相同), 起到微球透镜支架的作用. 金膜的厚度约为5 μm, 金膜孔与微球的直径相匹配. 在表征实验期间, 单一微球被置于照射光束下. 为了记录光子纳米喷射的x-y平面反射模式, 使用了高倍数物镜(Olympus, LMPlan Apo 150×, NA 0.9)和高分辨率互补金属氧化物半导体(CMOS)相机(尼康数码单反相机FX格式CMOS传感器, 4908 × 3264像素). 在表征之前, 进行CMOS相机的像素尺寸的校准. 测试样品使用前经过扫描电子显微镜(SEM)检查. 通过校准SEM和光学图像中的长度, 可以获得CMOS相机的每个像素的大小. 光子纳米喷射的横截面在焦平面附近被俘获. 对于每个覆盖率, 制造三个微球体. 基于多次实验结果总结了最终的结果(本部分中其他实验的表征系统与此实验相同). 最终实现在633 nm波长的平面波照射下, 得到了245 nm (0.387λ)的焦点.

图10为通过线性偏振光照射后中心覆盖掩膜的微球聚焦示意图. 其中, 微球直径为10 μm, 折射率1.5. 入射光是波长为633 nm的沿z轴指示方向照射的平面波. 厚约1 μm的铂沉积在微球表面, 作为中心覆盖的掩膜. 当覆盖的掩膜引入微球照射侧中心后, 在入射光轴附近的光线被反射, 因此, 只允许与光轴相距较远的光线通过. 根据光传输和反射的斯涅耳定律, 更远离光轴传播的入射光束将聚焦在微球体的表面附近. 这些光束经微球聚焦后, 与光轴形成不同的角度. 焦斑的强度被计算为最小角度到最大角度的积分. 注意到经微球聚焦之后, 离光轴较近的光束与光轴形成的角度小, 和具有低数值孔径(numerical aperture, NA)的聚焦透镜相似, 在低NA下, 焦斑的工作距离较长, 尺寸较大. 而对于远离光轴的光束而言, 聚焦现象类似于高NA的聚焦, 入射光束经过微球形成相对更加尖锐的焦点, 工作距离短. 我们在微球上设计了中心覆盖的掩膜来调整光子纳米喷射, 为了进一步的研究, 提出了覆盖率的概念(俯视图下: 覆盖率 = 掩膜半径/微球半径), 研究不同覆盖率下调整入射光束所得到的效果. 当覆盖率改变时, 进入微球的入射光量也相应改变, 在大覆盖率下, 只有薄环形光束被微球聚焦. 为了评估在X轴线性偏振聚焦束下中心覆盖微球的性能, 我们使用了3D FDTD进行模拟, 并在YZ平面收集结果. 在微球边界外沿着光轴的最高强度点处讨论光子纳米喷射的FWHM和工作距离. 线性偏振的模拟结果如图11所示.

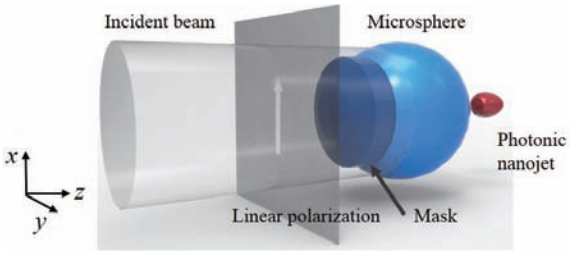


图10 用于线性偏振光束的超聚焦中心包覆微球的设计[69]

Fig. 10. Design of the center-covered microsphere for super-focusing of linear polarized beam[69].

无任何覆盖层时, 在633 nm入射光照射下产生的FWHM为424.11 nm (0.67λ). 覆盖率增加时, FWHM降低并且逐渐获得低于衍射极限(0.5λ)的FWHM. 在较大覆盖率下(0.6—0.8)时, 只有薄环形光束能够通过微球体并聚焦, 得到的FWHM

约为259.57—208.33 nm, 观察到了尖锐的焦点和较大的旁瓣. 在覆盖率为0.8时得到了0.33λ的尖锐焦点. 微球覆盖率增加时, 工作距离减少, 如图11 (b), 使得光子纳米喷射更加接近微球阴影侧表面. 同时, 由于铂覆盖层的存在, 减少了微球中光束的通过量, 导致光子纳米喷射的强度降低. 我们对此进行了进一步的验证.

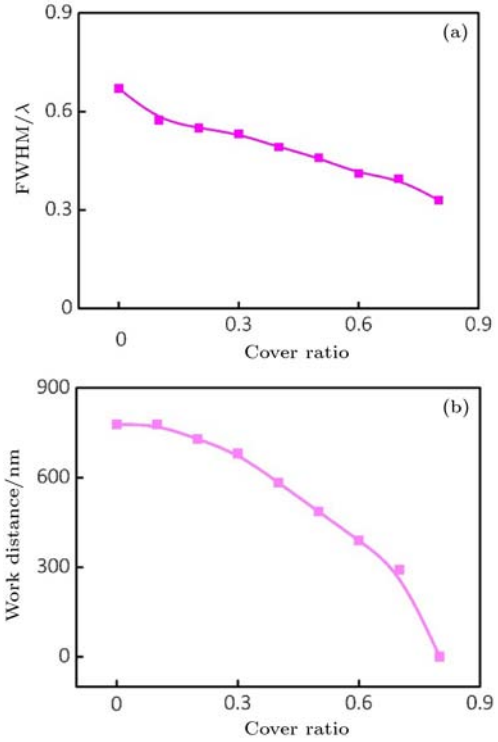


图11 (a) 不同覆盖率下$FWHM/\lambda$的模拟结果; (b) 不同覆盖率下工作距离 (WD) 的模拟结果 [69]

Fig. 11. (a) Simulated FWHM/λ value for different cover ratios; (b) simulated working distance (WD) for different cover ratios [69].

图12 (a) 为各个覆盖率下实验结果与模拟结果的对比图, 表面覆盖率从0增加到0.78, 步长约为0.13. 覆盖率为时, 测得410 nm (0.647λ) 的FWHM, 与模拟结果相似. 随着覆盖率的上升, 光子纳米喷射所产生的焦斑尺寸减小, 呈下降趋势. 当覆盖率超过0.603时, 实现了中心覆盖微球的超聚焦效应. 从图12 (b) 中可以观察到, 覆盖率为0时, 没有旁瓣产生, 而当覆盖率增加到0.78时, 旁瓣增大, 强度分布类似于贝塞尔光束 (Bessel beam) [70−72].

虽然在微球表面构造同心环和中心沉积铂覆盖的方法都实现了较好的FWHM的降低以及工作距离和强度的改变. 然而, 这些结构制造复杂, 并且无法进行动态自动调整. 于是, 我们提出了一种通过改变温度来实现动态调整FWHM的方法, 并且无需改变微球参数. 我们将微球进行简单处理, 用二氧化钒涂覆在微球照射侧半球之上. 二氧化钒是一种相变材料, 相变温度为68 °C. 在68 °C以下时, 二氧化钒为半导体, 温度升高至68 °C以上, 发生相变, 变为金相材料, 随相变带来的是折射率的改变 [73−75]. 对比其他相变材料, 二氧化钒相变温度低, 相变能够轻易实现, 且相变可逆, 反应快速, 无明显滞后现象. 同时, 由于较低的相变温度以及所使用的玻璃微球的热膨胀系数较低, 可以忽略微球热胀冷缩所带来的影响, 因此, 二氧化钒被认为是一种合适的微球表面涂覆材料. 理论上, 我们认为表面涂覆材料折射率随温度的改变从而能够导致光子纳米喷射的FWHM, 工作距离和强度发生变化, 并进一步进行了仿真模拟和实验验证, 研究涂覆层厚度和微球参数之间的关系对结果的影响.

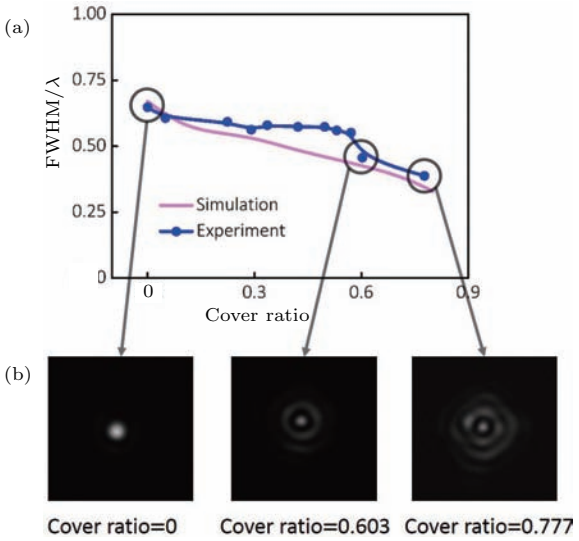


图12 中心覆盖微球在不同覆盖率下光束尺寸的模拟和实验结果 (a) 光子纳米喷射器的束宽度与覆盖率的关系; (b) 由CMOS照相机俘获的光子纳米喷射器沿光轴的横截面的归一化强度分布 [69]

Fig. 12. Simulation and experimental results of the beam size for center-covered engineered microspheres at different cover ratios: (a) Dependence of the beam width of the photonic nanojet on cover ratio; (b) normalized intensity distribution of the cross-section of the photonic nanojet along the optical axis captured by the CMOS camera [69].

仿真原理如图13所示, 二氧化钒只涂覆在微球入射侧, 因为高温下二氧化钒具有金属性质, 不在阴影侧涂覆是为了防止发生微球内反射. 所用入射光波长为800 nm. 光束主要通过二氧化钒涂层从顶表面进入微球体, 一部分通过涂层边缘衍射而

穿过微球体侧面进入微球体. 二氧化钒通过两种途径来调节光子纳米喷射, 一方面首先是折射率的改变, 另一方面则是二氧化钒变为金属相后, 增加了涂层对光的吸收, 从而改变了微球内部的光强度.

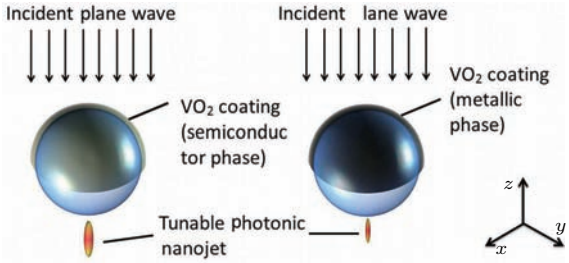


图 13 光照射方向涂覆二氧化钒的微球示意图 [76]

Fig. 13. Schematic of VO_2-coated microsphere with direction of illumination indicated [76].

如图 14 所示为不同涂覆厚度下光子纳米喷射分别在 20 °C(相变前) 和 90 °C (相变后) 的 FWHM, 工作距离和强度的关系折线图. 可以观察到当涂覆厚度达到 140 nm 时, FWHM 从温度 20 °C 升高至 90 °C 后变化明显. 但当涂覆厚度过厚时 (超过 150 nm), 工作距离为负, 即在微球体内部聚焦, 且整个涂层几乎不透明, 导致入射光强度大大降低. 因此经过综合考虑, 确定 75 nm 厚度的涂覆层较为合适.

同时, 在确定涂覆厚度为 75 nm 的情况下, 本课题组研究了最适合用于调节光子纳米喷射的 FWHM 的微球的直径和折射率, 模拟结果如图 15 所示. 从图 15 (a) 可以观察到, 光强度和微球直径成正比, 这是因为随着直径增大, 微球所暴露出来的面积更大, 能够吸收更多的光束通过而形成聚焦. 在直径为 5 μm 时, FWHM 随涂覆层温度变化下降明显, 综合考虑后, 认为 4 μm 或 5 μm 为比较合适的微球尺寸. 微球的折射率是影响光子纳米喷射的关键的参数, 我们在确定涂覆二氧化钒厚度 75 nm、微球直径 5 μm 的前提下, 进行了进一步模拟, 研究微球折射率变化所带来的光子纳米喷射的 FWHM 以及工作距离和强度随涂覆层相变而带来的改变. 折射率增加时, FWHM 变得更窄, 工作距离变短, 强度上升. 当折射率过大 (大于 1.55 时), 光子纳米喷射在微球体内发生, 如图 15 (b) 中间图小方框所示, 工作距离为负值. 类似地, 我们认为折射率 1.5 时所带来的 FWHM 和工作距离的改变较为合适.

为了进一步降低二氧化钒相变后光子纳米喷射的 FWHM 和工作距离, 进行了射线分析, 分析结果与 FDTD 模拟结果一致. 我们通过在直径为 5 μm、折射率为 1.5 的微球上涂覆 75 nm 厚的二氧化钒涂覆层, 应用二氧化钒材料随温度变化的相变特性, 实现了自动调节光子纳米喷射的功能, 对进一步实现超分辨率成像具有重要意义 [76].

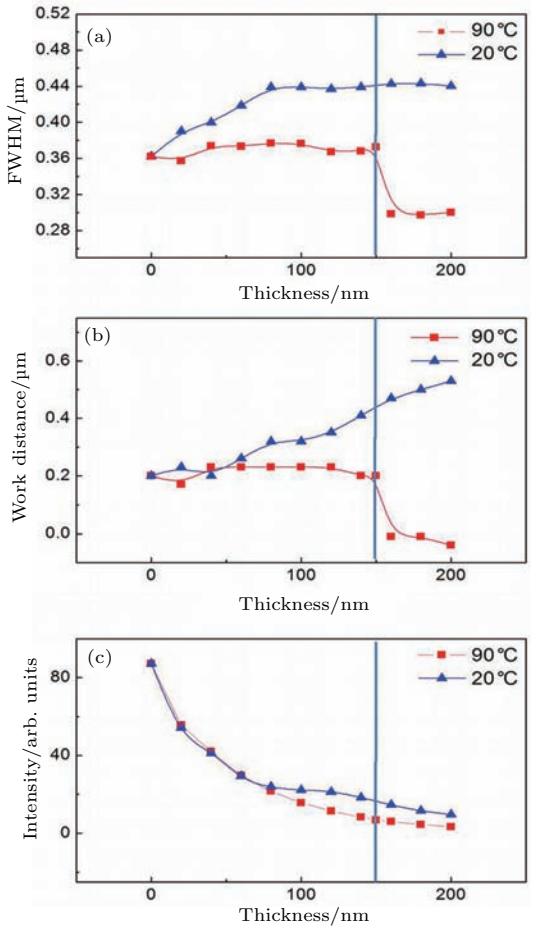


图 14 涂覆厚度在 0—200 nm 下光子纳米喷射对应的 (a) FWHM, (b) WD, (c) 强度; 垂线右侧点为聚焦在微球内部的点 [76]

Fig. 14. (a) FWHM, (b) WD and (c) intensity of the PNJ versus thickness of VO_2 coating (nm). Points to the right of the vertical line are points where the focus spot occurs inside the micro-sphere. Thickness of the coating layer varies from 0 to 200 nm [76].

4 成像机理

微球的成像机理在全世界引起了热议. 有观点提出微球超分辨显微技术是通过将倏逝波转化为传播波来提高分辨率以打破光学衍射极限 [50,77], 其机理与亥姆霍兹方程 [78] 有关. 在均相介质中:

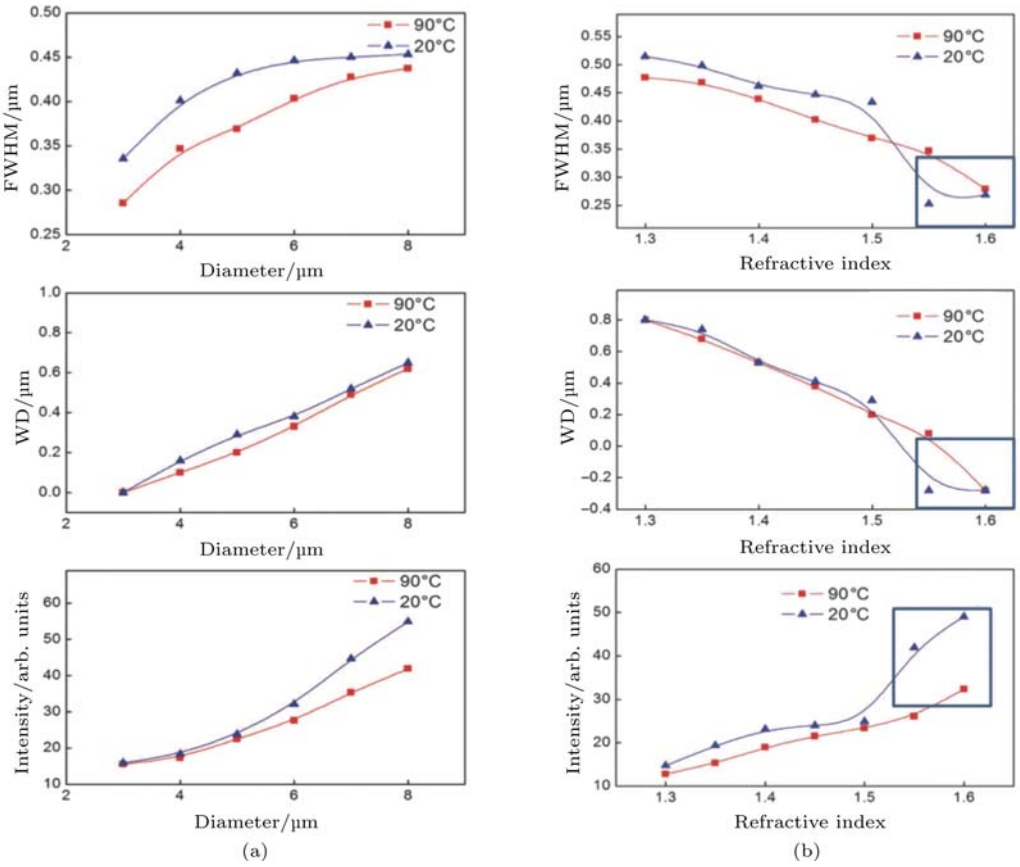


图 15 (a) 光子纳米喷射的 FWHM, 工作距离和强度与微球直径的关系, 直径为 3—8 μm; (b) 光子纳米喷射的 FWHM, 工作距离和强度与微球折射率的关系, 折射率为 1.3—1.6, 蓝框内光子纳米喷射发生在微球内部 [76]

Fig. 15. (a) FWHM, WD and Intensity of the PNJ versus diameter of the microsphere, diameter varies from 3.0 to 8.0 μm; (b) FWHM, WD and Intensity of the PNJ versus refractive index of the microsphere, the refractive index of the microsphere varies from 1.3 to 1.6, the boxed-up area indicates the points where the PNJ occurs within the microsphere [76].

$$k_0^2 = k_x^2 + k_y^2 + k_z^2, \tag{1}$$

其中 $k_0 = (2\pi n)/\lambda$; n 为折射率; k_x, k_y, k_z 为波矢分量. 倏逝波可以被获得, 当

$$k_x^2 + k_y^2 > k_0^2, \tag{2}$$

随着 z 方向上波的倏减, k_z 可忽略不计. 当波矢分量在 x 和 y 平面上增加, 或者 λ 的值减少时, 分辨率提高, 结果导致倏逝波也同时倏减. 微球超分辨显微技术可以通过将倏逝波转化为传播波来突破这些限制. 在微球光学纳米显微镜中, 电磁 (EM) 场 ($E(x,y)$) 由微球以外的成像平面来调节. 它被转化为

$$E'(x,y) = E(x,y)G(x,y), \tag{3}$$

其中变换函数 $G(x,y)$ 和 $E'(x,y)$ 可以通过几何光学和微球的成像平面计算, $G(x,y)$ 表示微球外成像平面从物体平面到某一特定平面的转换. 超分辨效应可以通过分析空间波矢坐标来解释. 通过傅里叶变换, $G(x,y)$ 可以表示为波矢空间坐标

$$G(k_x,k_y) = \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} G(x,y) \times \exp[-\mathrm{i}(k_x x + k_y y)\mathrm{d}x\mathrm{d}y]. \tag{4}$$

傅里叶振幅 $A(k_x,k_y)$ 由 $E(x,y)$ 的傅里叶逆来确定, 为

$$A(k_x,k_y) = \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} E(x,y) \times \exp[-\mathrm{i}(k_x x + k_y y)\mathrm{d}x\mathrm{d}y], \tag{5}$$

其中 k_x 和 k_y 为 x 和 y 方向的波矢分量, $E'(x,y)$, $E(x,y)$ 和 $G(x,y)$ 分别由 (3), (4), (5) 式得出. 由 $E'(k_x,k_y)$ 可以得到

$$E'(k_x,k_y) = \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} A(k'_x,k'_y) \times G(k_x - k'_x, k_y - k'_y)\mathrm{d}k'_x\mathrm{d}k'_y. \tag{6}$$

空间波矢量传递函数 $G(k_x,k_y)$ 和 $A(k_x,k_y)$ 的卷积导致空间波矢量的拓展. 因此, 物体平面中

的倏逝波通过卷积变换到传播波, 波矢的拓展显著地受到具有非常宽范围坐标 (k_x, k_y) 的 $G(k_x, k_y)$ 影响.

垂直于平坦且平滑的金属边界平面入射的平面电磁场是均匀反射平面波的折射. 在微球光纳米显微镜中, 物平面在某些点处弯曲, 其中物体具有凹和凸表面. 在凸表面, 反射电磁波束是发散的, 因此减小了在这些点附近的电磁场强度. 而在凹表面, 反射电磁波汇聚, 因此增加了这些点附近的电磁场强度. 在物平面附近的反射电磁场具有对应于物体曲率属性的可变电磁场强度.

对于穿过物平面的透射电磁场发生类似的效应, 其中凸和凹表面影响物平面附近的电磁场分布. 凹面导致透射电磁波束的汇聚, 而凸面导致光束发散. 这种效应导致物体的电磁成像, 包括它们的精细结构, 可以远小于波长. 因此, 超分辨率成像通过由微球收集的这种电磁波实现, 其吸收倏逝波并将其转换成传播波.

另外, 从几何光学角度分析微球透镜的光学成像特性及其与常规显微物镜配合实现高分辨显微的成像原理 [79], 如图 16 所示.

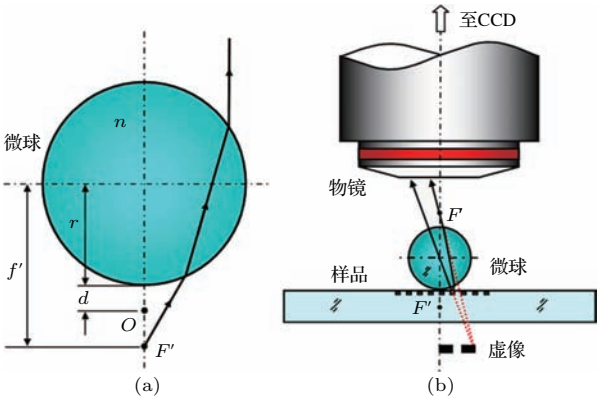


图 16 基于微球的高分辨成像原理图 (a) 微球及其成像特性图解; (b) 微球与常规显微物镜配合的高分辨率 (高倍率) 显微成像示意图 [79]

Fig. 16. High-resolution imaging of microspheres based on microspheres: (a) Microspheres and their imaging characteristics; (b) high-resolution (high magnification) micrographs of microspheres with conventional microscopic spectroscopy [79].

图 16 (a) 中, 设微球透镜的焦距为 f', 折射率 n, 半径为 r, 则有

$$f' = \frac{nr}{2(n-1)}. \tag{7}$$

根据物距 l, 像距 l' 和焦距 f' 的关系式

$$1/l' - 1/l = 1/f', \tag{8}$$

可以推导出微球的成像放大倍率 M,

$$M = \frac{l'}{l} = \frac{f'}{l + f'}. \tag{9}$$

当微球处于样品表面时, 如图 16 (b), $d = 0$, 物距 l 为

$$l = -(r + d) = -r. \tag{10}$$

将 (7) 式与 (10) 式代入 (9) 式, 可得

$$M = \frac{n}{2 - n}. \tag{11}$$

由 (11) 式可知, 当样品位于微球下端面时, 微球对样品的放大倍率 M 与微球直径 (或半径 r) 无关.

假设已知二氧化硅微球的折射率约为 $n = 1.46$, 计算得到 $M = 2.7$. 若采用二氧化硅微球, 可预先将样品的微纳米结构放大约 2.7 倍 (一次放大); 然后, 经过后续的常规显微物镜接收, 再将微球视场内的样品结构进一步放大 (二次放大), 从而获得比采用相同显微物镜时更高的放大倍率和更高的分辨率, 为实现微纳米样品的超分辨成像提供了新途径.

此外, 2016 年, Yang 等 [80] 提出微球超分辨成像是由光子纳米喷射的腰部 (即最小 FWHM 处) 决定的概念, 用一种定量的方式描述光子纳米喷射对于超分辨率成像的作用, 如图 17 所示. 首先, 使用有限元法 (FEM) 对被不同尺寸微球汇聚的光进行系统的数值研究, 使纳米喷射形成于微球的后表面, 并且将微球的理论放大系数与光子纳米喷射的光聚焦能力相关联.

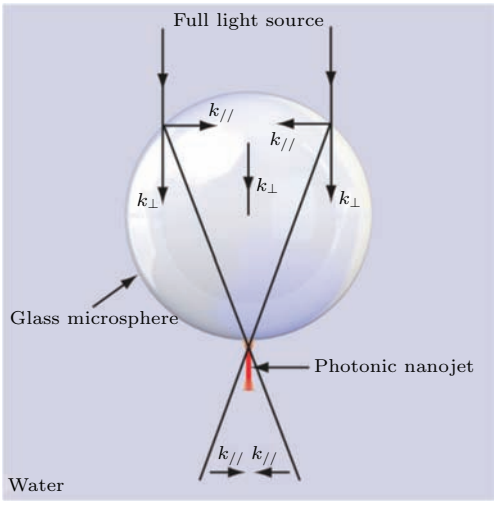


图 17 纳米喷射的生成概念 [80]

Fig. 17. Concept of the nanojet generation [80].

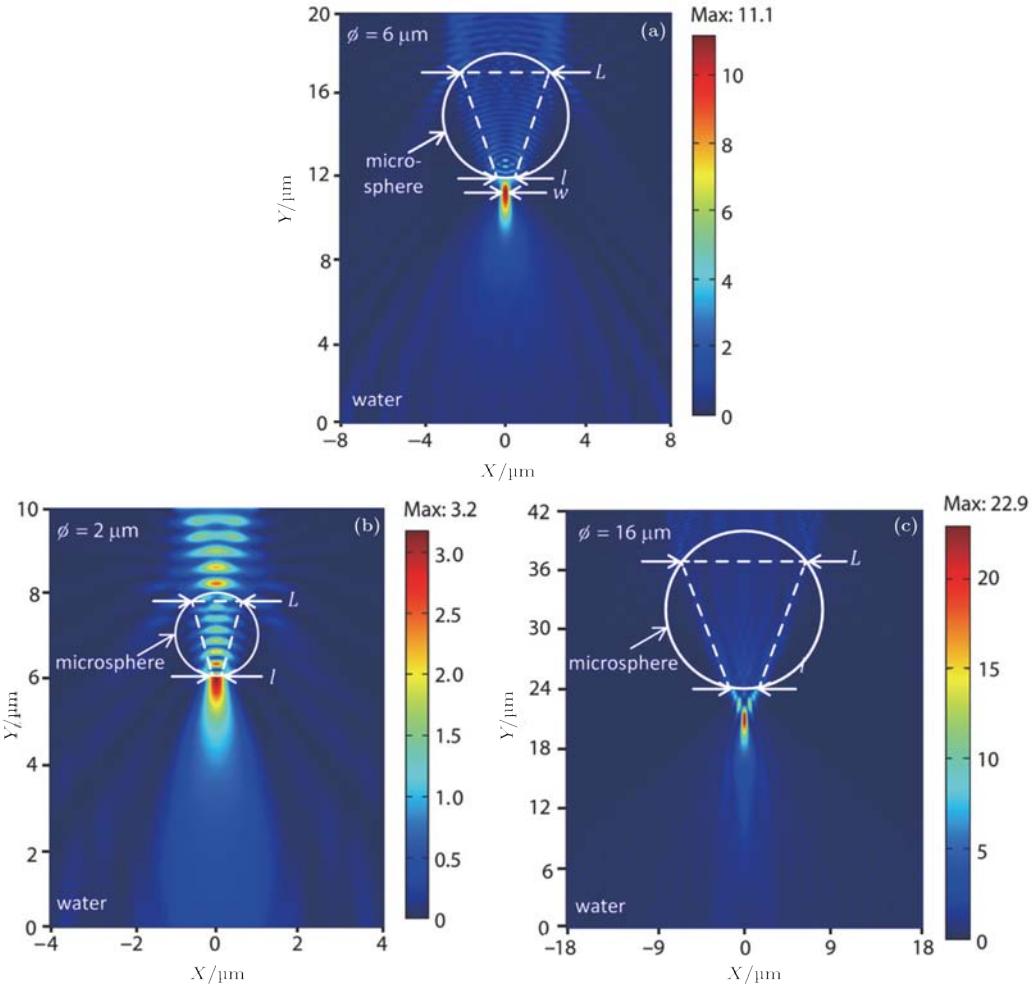


图 18 (a), (b), (c) 分别为光通过水中 2, 6 和 16 μm 钛酸钡微球的有限元模拟 [80]

Fig. 18. (a), (b) and (c) FEM simulation of the light propagation through a 6, 2, 16 μm barium titanate microsphere in water, respectively [80].

当入射光源照射微球时, 位于微球左侧和微球右侧的平行波矢分量相互干涉而消除, 而垂直波矢分量由于左右侧的叠加作用, 使得光子纳米喷射沿波传播方向进一步延伸. 他们运用波长600 nm的光源, 在水介质 (折射率 1.33) 中进行通过直径为2—20 μm的钛酸钡玻璃微球 (折射率 1.92) 的光波传播有限元研究.

如图18所示, 当微球直径为6 μm时, 光子纳米喷射汇聚在微球下表面; 当微球直径增加到16 μm时, 纳米喷射聚焦在微球下表面外; 微球直径减少到2 μm时, 纳米喷射聚焦在微球内部. 为了定量研究光是如何由微球聚焦从而产生光子纳米喷射这个问题, 他们将从微球上表面处进入的折射光的线性区域记为L, 下表面处出射光束的宽度记作 l, 光子纳米喷射的腰部记作 w.

图19示意了微球的成像机理, 当被微球聚焦的光照射样品时, 不产生纳米喷射, 而是遵循反射光的光学反射对称路径. 当微球与光栅之间的距离 h

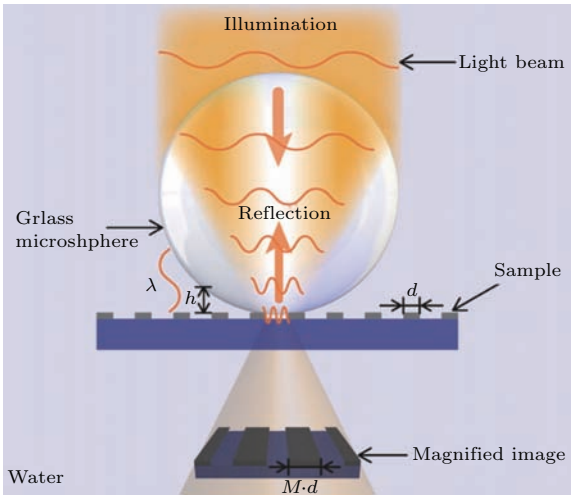


图 19 微球的成像机理 [80]

Fig. 19. Imaging mechanism of a dielectric microsphere [80].

足够小时, 包含物体高频空间信息的倏逝波被转换为微球内的传播波. 同时, 在远场中产生放大因子为 M 的虚像. 由于涉及的相同的光学路径, 数值研究中, 微球的成像能力与聚焦光子纳米喷射的形成直接相关.

如图 20 所示, 分别描述了由比率 L/l 表示的微球光聚焦能力和由 w/λ 表示的光子纳米喷射的腰部分别与微球直径的函数. 较大的 L/l 表示微球更好的光聚焦并且对应于纳米喷射的较小腰部. 根据模拟分析, 直径为 6 μm 的微球显示出最佳的光聚焦能力和最小的光子纳米喷射的腰部.

同时, 进行了进一步的实验验证, 如图 21 所示, 将实验获得的放大因子 M 与从模拟获得的理论光聚焦能力 L/l 进行比较时, 获得与 Pearson 相关系数 (反映两个变量线性相关程度的统计量, 绝对值越大, 相关性越强) 为 0.91 的正相关, 表明微球具有更好的光聚焦能力, 可以获得更高的放大系数.

最后, 使用点扩散函数获得了与系统的真实分辨率相关的实际图像标准偏差 σ 与微球尺寸的函数关系和 σ 与 w/λ 之间的相关性, 如图 22 所示. 并由实线拟合, 得到了代表 Pearson 相关系数为 0.88 的线性拟合曲线. 从逻辑上进一步说明了光子纳米喷射的半高全宽越小, 与真实图像分辨率相关的图像标准差越小, 即分辨率越高. 他们通过理论模拟和实验验证, 从光子纳米喷射的聚焦角度阐述了微球超分辨成像的机理.

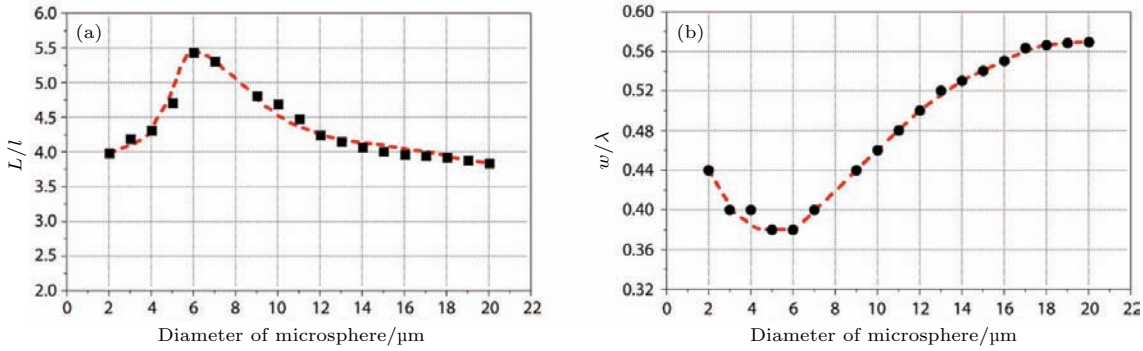


图 20 (a) 微球直径和比率 L/l 表示的聚焦能力的有限元模拟结果; (b) 微球直径和光子纳米喷射腰部与波长比率的有限元模拟结果; 图中黑点为模拟所得, 红线为指示线 [80]

Fig. 20. (a) FEM simulation results of the light focusing capability of a microsphere, expressed by the ratio L/l, as a function of the microsphere diameter; (b) FEM simulation results of the normalized waist of the photonic nanojet w/λ, as a function of the microsphere diameter. The dots are obtained from the simulation, while the red dotted line is a guide to the eye [80].

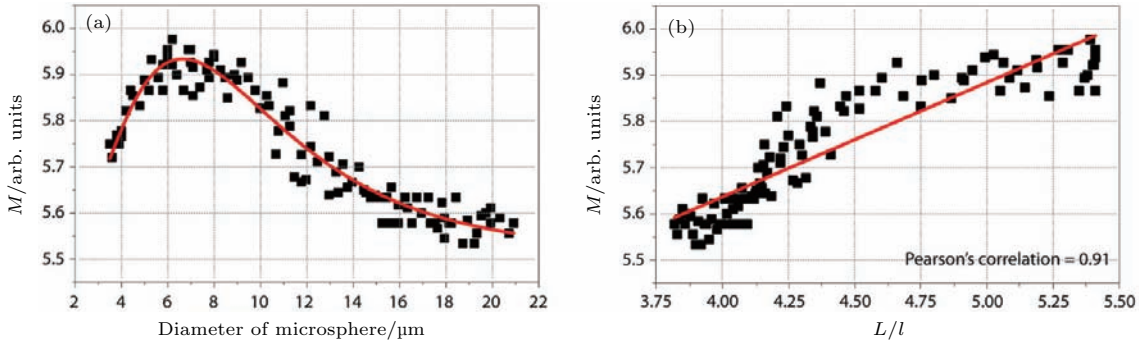


图 21 (a) 实验所得放大因子与微球直径关系图; (b) 实验放大因子与模拟所得的表示光聚焦能力的比率 L/l 关系图; 实线代表 Pearson 相关系数为 0.91 的线性拟合曲线 [80]

Fig. 21. (a) The dots represent the experimental magnification factor as a function of the microsphere diameter, while the solid line is a guide to the eye; (b) the experimental magnification factor M as a function of the light focusing capability L/l obtained from the simulations. The solid line represents a linear fitting curve with a Pearson's correlation coefficient of 0.91 [80].

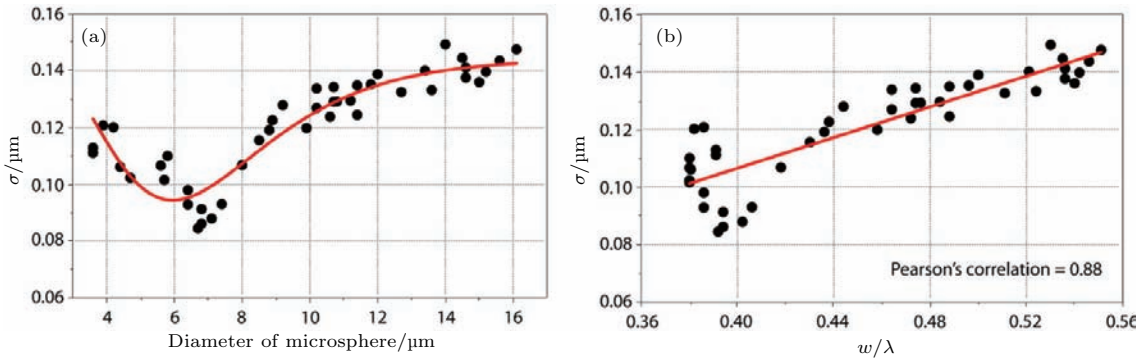


图 22 (a) 系统真实分辨率相关拟合获得的实际图像标准偏差与微球尺寸关系; (b) 图像标准差与光子纳米喷射腰部和波长比率的关系; 实线代表 Pearson 相关系数为 0.88 的线性拟合曲线 [80]

Fig. 22. (a) Actual image standard deviation σ obtained from the fit, related to the true resolution of the system, as a function of microsphere size, the dots are obtained from the fits with the analytical model, while the solid curve is a guide to the eye; (b) the correlation between σ and the normalized waist of the photonic nanojet w/λ; the solid line represents a linear fitting curve with a Pearson's correlation coefficient of 0.88 [80].

5 总结与未来发展趋势

微球超分辨成像虽然简单方便, 但同时也存在着一些固有的缺陷. 通常, 微球被放置在样品表面而无法被控制, 导致单个微球无法对大面积样品进行成像. 一种解决这个问题的直接简单的方法就是增加样品表面微球的数目. 然而, 在高密度的微球下, 微球倾向于聚集并且轴向重叠, 反而不利于光学性能的发挥. 即使光线照射表面微球能够产生周期性的纳米图案, 纳米结构的最小距离仍然受到微球直径的限制 [81]. 先前其他的尝试包括使用光学镊子来平移微球 [82,83], 或者使用放置在 XYZ 平台上的玻璃微量移液管 [33]. 然而, 光学俘获所需装置的复杂性和玻璃的脆弱性以及潜在的微吸管破裂使得这些方法难以实施. 因此, 如何控制微球的位置 [84] 是未来微球超显微技术发展的关键问题之一.

进行微球成像时, 一般将微球直接浸入液体中. Darafsheh 等 [85] 提出了一种盖玻片形式的固体浸没微球超透镜的设计. 他们将高折射率微球嵌入在透明弹性的固化膜中, 嵌入在固化膜中的优点是可以提前制备, 且成像能在倒置显微镜中进行, 同时消除了一般情况下微球浸入液体后液体蒸发导致对成像的影响 [86]. 该固化膜制备如下: 先将碳酸钡微球置放在盖玻片基底上, 然后将折射率为 1.41 的液态聚二甲基硅氧烷和比例为 1 : 10 的硬化复合物旋涂在微球上, 根据旋涂的速度和时间可以调整膜的厚度, 最后在 65 °C 下烘烤 1 h 即可获得. 他们用这种方法制备了厚度约 300 μm 的薄膜, 实现了人胶质母细胞瘤 U87 细胞成像. 这种类盖玻片的设计的厚度足够小, 能使样品直接插入常规显微镜和样品之间的间隙中. 球形透镜现在可以重复使用, 并且整个透镜可以根据用户的需要容易地进行定位和操作, 由于分离微球和环境的封装, 使得新的透镜对于环境变化的敏感度降低, 这种新颖的设计方法具有很大的商业价值.

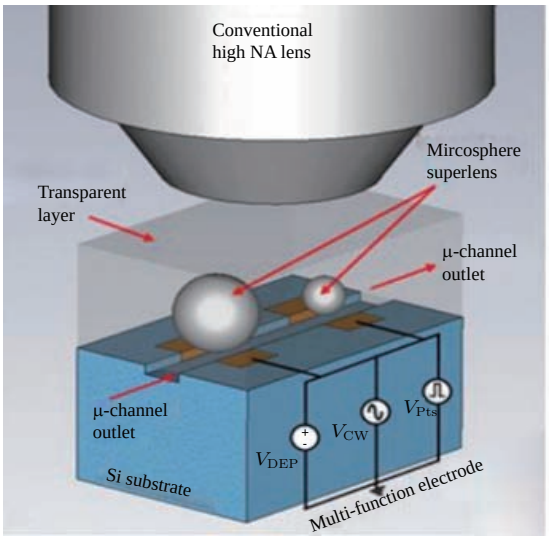


图 23 片上微流体纳米显微镜通过整合纳米显微镜与微流体的新设计, 为实时高分辨率直接成像和分析生物样品, 包括病毒提供一个独特的平台 [87]

Fig. 23. Proposed new on-chip microfludic nanoscope formed by integrating nanoscope with microfludics, providing a unique platform for real-time high resolution direct imaging and analysis of bio-samples, including viruses [87].

微球超显微技术简单、易于实现、无标记且分辨率高. 微球超透镜尺寸下, 能非常自然地与其他微系统集成, 形成具有新功能的设备. 例如, Wang [87] 将微球连接在内窥镜的最末端, 获得了$\lambda/5$的分辨率; Yan等 [63] 将二氧化硅微球, 聚苯乙烯微球与激光扫描共聚焦显微镜结合, 在波长为408 nm的照射光下获得了25 nm的分辨率.

如图23所示, 微球超透镜被封装、对准和定位在微流体通道的顶部, 诸如细胞/病毒等对象可以流过通道, 其高分辨率图像可以实时投影到外部. 用电等距流可以驱动生物物质沿着通道移动, 并使用介电电泳力来停止和俘获特定位置处的细胞/病毒. 并且, 当它们与药物作用时, 科研人员可以通过这种方式研究细胞和病毒的实时反映. 除了超透镜成像之外, 超透镜产品还可在纳米激光、纳米光刻、纳米太阳能聚光器以及纳米化学等多个领域中找到应用.

参考文献

[1] Abbe E 1873 *Acchiv. Mikroskop. Anat.* **9** 413
[2] von Helmholtz H 1874 *Ann. Phys. Chem.* 557
[3] Stephenson J W 1877 *Monthly. Microsc. J.* **17** 82
[4] Francia G T D 1952 *Suppl. Nuovo. Cim.* **9** 426
[5] Hao X, Kuang C, Gu Z, Wang Y, Li S, Ku Y, Ge J, Liu X 2013 *Light: Sci. Appl.* **2** e108
[6] Courjon D, Bainier C 1994 *Rep. Prog. Phys.* **57** 989
[7] Greffet J J, Carminati R 1997 *Pro. Surf. Sci.* **56** 133
[8] Nassenstein H 1970 *Opt. Commun.* **2** 231
[9] Ash E A, Nicholls G 1972 *Nature* **237** 510
[10] Betzig E, Lewis A, Harootunian A, Isaacson M, Kratschmer E 1986 *Biophys. J.* **49** 269
[11] Pendry J B 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 3966
[12] Shalaev V M, Cai W, Chettiar U K, Yuan H K, Sarychev A K, Drachev V P, Kildishev A V 2005 *Opt. Lett.* **30** 3356
[13] Li X, Yang L, Hu C, Luo X, Hong M 2011 *Opt. Express* **19** 5283
[14] Aydin K, Bulu I, Ozbay E 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 77
[15] Tyc T, Zhang X 2011 *Nature* **480** 42
[16] Shalaev V M 2007 *Nat. Photon* **1** 41
[17] Liu Z, Fang N, Yen T J, Xiang Z 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 5184
[18] Zhang X, Liu Z 2008 *Nature Mater.* **7** 435
[19] Liu Z, Lee H, Xiong Y, Sun C, Zhang X 2007 *Science* **315** 1686
[20] Jacob Z, Alekseyev L, Narimanov E 2006 *Opt. Express* **14** 8247
[21] Fang N, Lee H, Sun C, Zhang X 2005 *Science* **308** 534
[22] Upputuri P K, Wen Z B, Wu Z, Pramanik M 2014 *J. Biomed. Opt.* **19** 116003
[23] Hell S W 2007 *Science* **316** 1153
[24] Hell S W, Wichmann J 1994 *Opt. Lett.* **19** 780
[25] Klar T A, Hell S W 1999 *Opt. Lett.* **24** 954
[26] Betzig E, Patterson G H, Sougrat R, Lindwasser O W, Olenych S, Bonifacino J S, Davidson M W, Lippincottschwartz J, Hess H F 2006 *Science* **313** 1642
[27] Bastiaens P I H, Squire A 1999 *Trends. Cell. Biol.* **9** 48
[28] Kenworthy A K 2001 *Methods* **24** 289
[29] Hein B, Willig K I, Hell S W 2008 *Proc. Nat. Acad. Sci.* **105** 14271
[30] Min W, Lu S, Chong S, Roy R, Holtom G R, Xie X S 2009 *Nature* **461** 1105
[31] Wang Z, Guo W, Li L, Luk'Yanchuk B, Khan A, Liu Z, Chen Z, Hong M 2011 *Nat. Commun.* **2** 218
[32] Darafsheh A, Limberopoulos N I, Derov J S, Walker Jr D E, Astratov V N 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 061117
[33] Krivitsky L A, Jia J W, Wang Z, Luk'Yanchuk B 2013 *Sci. Rep.* **3** 3501
[34] Li L, Guo W, Yan Y, Lee S, Wang T 2013 *Light: Sci. Appl.* **2** 72
[35] Yang H, Moullan N, Auwerx J, Gijs M A 2014 *Small* **10** 1712
[36] Guo H, Han Y, Weng X, Zhao Y, Sui G, Wang Y, Zhuang S 2013 *Opt. Express* **21** 2434
[37] Lee S, Li L, Wang Z 2014 *J. Opt.* **16** 015704
[38] 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
[39] Wang Y, Guo S, Wang D, Lin Q, Rong L, Zhao J 2016 *Opt. Commun.* **366** 81
[40] Lin Q, Wang D, Wang Y, Rong L, Zhao J, Guo S, Wang M 2016 *Opt. Quantum Electron.* **48** 557
[41] Yan B, Yue L, Wang Z 2016 *Opt. Commun.* **370** 140
[42] Wang S, Zhang D, Zhang H, Han X, Xu R 2015 *Microsc. Res. Tech.* **78** 1128
[43] Wu L, Zhu H, Yan B, Wang Z, Zhou S 2015 *J. Mater. Chem. C* **3** 10907
[44] Hao X, Kuang C, Li Y, Liu X, Ku Y, Jiang Y 2012 *Opt. Commun.* **285** 4130
[45] Lai H S S, Wang F, Li Y, Jia B, Liu L, Li W J 2016 *PLoS One.* **11** e0165194
[46] Guo M, Ye Y H, Hou J, Du B 2016 *Appl. Phys. B* **122** 65
[47] Guo M, Ye Y H, Hou J, Du B 2015 *Photon. Res.* **3** 339
[48] Darafsheh A, Walsh G F, Dal Negro L, Astratov V N 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 14128
[49] Wang T, Kuang C, Hao X, Liu X 2011 *J. Opt.* **13** 035702
[50] Lee S, Li L, Wang Z, Guo W, Yan Y, Wang T 2013 *Appl. Opt.* **52** 7265
[51] Yang H, Gijs M A M 2015 *Microelectron. Eng.* **143** 86
[52] Yao L, Ye Y H, Feng Ma H, Cao L, Hou J 2015 *Opt. Commun.* **335** 23
[53] Hao X, Kuang C, Liu X, Zhang H, Li Y 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 203102
[54] Lee S, Li L, Benaryeh Y, Wang Z, Guo W 2013 *J. Opt.* **15** 125710
[55] Lee S, Li L 2015 *Opt. Commun.* **334** 253
[56] Lu Y F, Zhang L, Song W D, Zheng Y W, Luk'Yanchuk B S 2000 *JETP Lett.* **72** 457

[57] Chen Z, Taflove A, Backman V 2004 *Opt. Express* **12** 1214
[58] Yang H, Cornaglia M, Gijs M A M 2015 *Nano Lett.* **15** 46
[59] Wu M H, Whitesides G M 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 2273
[60] Li X, Chen Z, Taflove A, Backman V 2005 *Opt. Express* **13** 526
[61] Ferrand P, Wenger J, Devilez A, Pianta M, Stout B, Bonod N, Popov E, Rigneault H 2008 *Opt. Express* **16** 6930
[62] Zhang Z, Geng C, Hao Z, Wei T, Yan Q 2016 *Adv. Colloid Interface Sci.* **228** 105
[63] Yan Y, Li L, Feng C, Guo W, Lee S, Hong M 2014 *ACS Nano* **8** 1809
[64] Gu G, Zhou R, Chen Z, Xu H, Cai G, Cai Z, Hong M 2015 *Opt. Lett.* **40** 625
[65] Kong S C, Taflove A, Backman V 2010 *Opt. Express* **17** 3722
[66] Zhu H, Chen Z, Chong T C, Hong M 2015 *Opt. Express* **23** 6626
[67] Houston W V 1927 *Phys. Rev.* **29** 478
[68] Wu M, Huang B, Chen R, Yang Y, Wu J, Ji R, Chen X, Hong M 2015 *Opt. Express* **23** 20096
[69] Wu M, Chen R, Soh J, Shen Y, Jiao L, Wu J, Chen X, Ji R, Hong M 2016 *Sci. Rep.* **6** 31637
[70] Durnin J, Miceli Jr J, Eberly J H 1987 *Phys. Rev. Lett.* **58** 1499
[71] McGloin D, Dholakia K 2005 *Contem. Phys.* **46** 15
[72] Li X, Pu M, Zhao Z, Ma X, Jin J, Wang Y, Gao P, Luo X 2016 *Sci. Rep.* **6** 20524
[73] Bennett, Harold E 1988 *Laser Induced Damage in Optical Materials, 1986 : Proceedings of a Symposium*, NIST (formerly NBS) Boulder, Colorado, November 3–5, 1986 p707
[74] Niklasson G A, Li S Y, Granqvist C G 2014 *Parallel Session of the 18th International School on Condensed Matter Physics* Varna, Bulgaria, September 4–6, 2014 p012001
[75] Lu S, Hou L, Gan F 1993 *J. Mater. Sci.* **28** 2169
[76] Soh J H, Wu M, Gu G, Chen L, Hong M 2016 *Appl. Opt.* **55** 3751
[77] Hao X, Liu X, Kuang C, Li Y 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 013104
[78] Ben-Aryeh Y 2006 *Appl. Phys. B* **84** 121
[79] 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]
[80] Yang H, Trouillon R, Huszka G, Gijs M A 2016 *Nano Lett.* **16** 4862
[81] Pereira A, Grojo D, Chaker M, Delaporte P, Guay D, Sentis M 2008 *Small* **4** 572
[82] Mcleod E, Arnold C B 2008 *Nature Nanotech.* **3** 413
[83] Mcleod E, Arnold C B 2009 *Opt. Express* **17** 3640
[84] Li P Y, Tsao Y, Liu Y J, Lou Z X, Lee W L, Chu S W, Chang C W 2016 *Opt. Express* **24** 16479
[85] Darafsheh A, Guardiola C, Palovcak A, Finlay J C, Cárabe A 2015 *Opt. Lett.* **40** 5
[86] Liu C, Jin L D, Ye A P 2016 *Acta Phys. Sin.* **53** 19 (in Chinese) [刘畅, 金璐頔, 叶安培 2016 激光与光电子学进展 **53** 19]
[87] Wang Z 2015 *Nanoscience* **3** 193

SPECIAL ISSUE—Diffraction limit of electromagnetic waves

Super-resolution microscopic effect of microsphere based on the near-field optics*

Zhou Rui[1)#†] Wu Meng-Xue[2)#] Shen Fei[1)] Hong Ming-Hui[2)‡]

1) (*School of Aerospace Engineering, Xiamen University, Xiamen 361005, China*)

2) (*Department of Electronics and Computer Engineering, National University of Singapore, Singapore 117576, Singapore*)

(Received 29 March 2017; revised manuscript received 16 May 2017)

Abstract

In the field of optical imaging, the conventional imaging resolution is about 200 nm due to the diffraction limit. The higher resolution is urgently needed for further developing scientific research. Therefore, how to break through this limitation to acquire high quality and high resolution image has become a hot research topic. The microspheres with the size of tens of micrometers exhibit the ability to improve the imaging resolution of the conventional optical microscope by locating them directly on the sample surface. Due to its simplicity, the microsphere optical nanoscope technology is widely studied. This paper introduces the research background of the optical microscope and the research progress of microsphere optical nanoscope technology. At the same time, approaches to adjusting the photonic nanojet generated by the microspheres by fabricating concentric ringing, central mask, and surface coating of microspheres are reviewed. The possible reasons for this improved resolution are discussed. The applications and development of the microsphere ultra-microscopic technology in the future are discussed.

Keywords: optical microscope, microsphere super-resolution, photonic nanojet

PACS: 07.60.Pb, 07.60.–j, 42.79.Bh **DOI:** 10.7498/aps.66.140702

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2013CBA01703), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61605162), the Natural Science Foundation of Fujian Province of China (Grant No. 2017J05106), the State Key Laboratory of Optical Technology for Microfabrication of Institute of Optics and Electronics the Chinese Academy of Sciences (KFS4), and the Collaborative Innovation Center of High-End Equipment Manufacturing in Fujian, China.

# These authors contribute equally.

† Corresponding author. E-mail: rzhou2@xmu.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: elehmh@nus.edu.sg

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

表面等离激元量子信息应用研究进展

李明 陈阳 郭光灿 任希锋

Recent progress of the application of surface plasmon polariton in quantum information processing

Li Ming Chen Yang Guo Guang-Can Ren Xi-Feng

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 144202 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.144202
在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.144202
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I14

您可能感兴趣的其他文章
Articles you may be interested in

一维自旋1键交替XXZ链中的量子纠缠和临界指数
Quantum entanglement and critical exponents in one-dimensional spin-1 bond-alternating XXZchains
物理学报.2017, 66(12): 120301 http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.120301

基于量子图态的量子秘密共享
Quantum secret sharing with quantum graph states
物理学报.2016, 65(16): 160301 http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.160301

纠缠比特在不同噪声环境和信道下演化规律的实验研究
Evolutions of two-qubit entangled system in different noisy environments and channels
物理学报.2016, 65(3): 030303 http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.030303

量子BB84协议在联合旋转噪音信道上的安全性分析
Security analysis of BB84 protocol in the collective-rotation noise channel
物理学报.2016, 65(3): 030302 http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.030302

光学体系宏观-微观纠缠及其在量子密钥分配中的 □τ
Macro-micro entanglement in optical system and its application in quantum key distribution
物理学报.2015, 64(14): 140303 http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.140303

专题: 电磁波衍射极限

表面等离激元量子信息应用研究进展*

李明 陈阳 郭光灿 任希锋†

(中国科学技术大学, 中国科学院量子信息重点实验室, 合肥 230026)

(中国科学技术大学, 量子信息与量子科技前沿协同创新中心, 合肥 230026)

(2017 年 3 月 24 日收到; 2017 年 4 月 26 日收到修改稿)

近年来表面等离激元得到了越来越多的关注和研究, 得益于其能把电磁场束缚在金属-介质界面附近的亚波长尺度范围内. 本文回顾了近年来表面等离激元在量子信息领域中的理论和实验研究, 包括表面等离激元的基本量子性质、表面等离激元量子回路、在量子尺度下与物质的相互作用及其潜在应用. 量子表面等离激元开辟了对表面等离激元基本物理性质研究的新方向, 可以应用于高度集成化的量子集成光学回路, 同时也可以用来增强光与量子发光体的相互作用.

关键词: 表面等离激元、量子信息、量子光学回路、量子发光体

PACS: 42.50.Ex, 03.67.–a, 73.20.Mf, 42.79.–e **DOI:** 10.7498/aps.66.144202

1 量子表面等离激元简介

表面等离激元 (SPP) 是由电磁波和金属内电子的集体振荡共同支持的电磁场, 它存在于正介电常数介质 (如硅、二氧化硅、聚甲基丙烯酸甲酯 (PMMA) 及传统的光学材料) 和负介电常数介质 (如金属、超导体和石墨烯等) 的界面 [1], 一般可以通过光学耦合或电子束轰击的方法激发. SPP 的场模在两种介质中都以很快的速度衰减, 从而提供了一种把光场压缩在突破传统光学衍射极限的纳米尺度的方法 [2,3]. 1997 年, Takahara 等 [4] 在一个具有负介电常数的纳米线上发现光场模式的体积并不受传统正介电常数材料中衍射极限的限制, 由此SPP 对于光场的束缚性质得到重视. 在随后的研究中, 人们发现在正介电常数和负介电常数介质的界面都存在这种受到束缚的光场模式, 包括传输模式和局域模式. 目前, 对于SPP 的研究已经覆盖了从微波到光学波段得很大频率范围.

这种超强的光场模的空间压缩可以用来减小集成光学器件的尺寸、提高光学系统的空间分辨率并且增强光与物质的相互作用. 基于SPP 结构的突破衍射极限的光刻技术 [5]、超紧凑的集成化光学器件和回路 [6]、纳米尺度的光学荧光增强 [7,8]、拉曼增强 [9−11]、纳米激光器、放大器 [12,13]、光学天线 [14]、生物探测和传感技术 [15] 等都已经被开发出来并得到应用.

20 世纪, 量子光学理论的快速发展也激励着对SPP 在量子层面的研究. 同传统光学场的量子性质类似, SPP 的基本量子性质的理论已经有了较完备的发展. 20 世纪 50 年代, 文献 [16—18] 提出了一种模型, 对金属中的等离激元波进行量子化, 发展出量子化的表面等离激元波的描述方法, 此描述同时包含了电磁波和集体电子振荡的行为. 这种量子化的SPP 被看作是一种“准粒子”, 和光子一样具有玻色子的性质. 以此为基础, 此后对SPP 的量子化分为传输的SPP 和局域的SPP 两类 [19,20]. 然而受

* 国家自然科学基金 (批准号: 11374289, 61590932)、国家重点研发计划 (批准号: 2016YFA0301700)、中央高校基本科研业务费和集成光电子学国家重点联合实验室开放基金 (批准号: IOSKL2015KF12) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: renxf@ustc.edu.cn

© 2017 中国物理学会 Chinese Physical Society

限于实验测量技术、微纳加工技术和电磁波计算模拟等的不足, 对量子表面等离激元的实验研究直到近二十年才得到发展.

本文介绍SPP在量子信息领域中的主要研究方向. 首先介绍SPP的基本量子性质研究, 这些研究是SPP在量子领域得到应用的基础; 然后介绍量子表面等离激元的两个主要研究方向, 一个是SPP在量子集成回路中的应用, 一个是SPP与量子发光体之间的相互作用; 最后探讨量子表面等离激元发展所面临的挑战以及未来潜在应用的展望.

2 表面等离激元的基本量子性质研究

对SPP基本量子性质的实验研究始于2002年, Altewishcher等[21]验证了量子偏振纠缠的双光子态在转化为SPP然后再转化为光子的过程中, 纠缠度能够得到很好的保持. 研究者通过自发参量下转换过程制备了双光子偏振纠缠态, 将光子对中的一个或两个照射到金属薄膜的小孔阵列上(图1(a)), 然后收集透射光子, 最后检测双光子的纠缠性质. 由于金属薄膜上的小孔远小于光子波长, 反常透射的光子经历了转化为SPP后再转化为光子的过程[22]. 量子测量结果表明, 在光子-SPP-光子的转化过程中, 光子对之间的纠缠性质得到了保持. 随后在2005年, Fasel等[23]证明了双光子之间的时间-能量纠缠在长程SPP 波导中也能够得到保持. 2006年, Ren等[24]利用光子的空间模式, 在金属孔阵结构中实现了轨道角动量纠缠光子态的透射, 这为SPP 在高维量子信息处理过程的应用提供了依据. 同期, Guo等[25]通过马赫-曾德尔干涉观测了在光子-SPP- 光子的转化过程中双光子的德布罗意波长. 此后, Huck等[26]也证明了量子表面激元能够应用于连续变量量子态的传输和操作. 这些实验都证明了可以制作SPP之间的纠缠应用于量子信息处理过程, 比如基于SPP的远程控制[27].

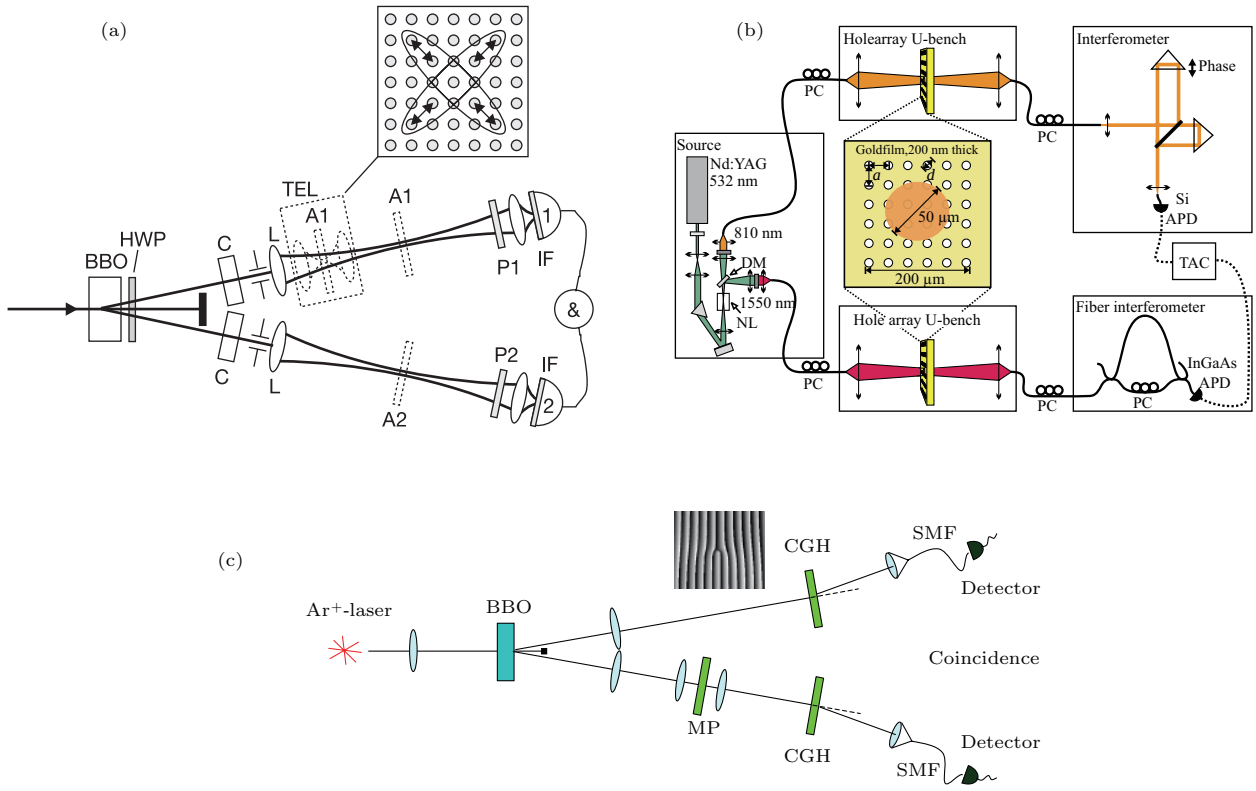


图1 SPP对量子纠缠性质的保持 (a) 双光子偏振纠缠态通过金属孔阵结构[21]; (b) 能量-时间纠缠态通过金属孔阵结构和长程SPP波导[23]; (c) 轨道角动量纠缠态通过金属孔阵结构[24]

Fig. 1. Preservation of quantum entanglement: (a) Transmission of polarization entangled state through metallic hole array[21]; (b) transmission of energy-time entangled state through metallic hole array and long range SPP waveguide[23]; (c) transmission of OAM entangled state through metallic hole array[24].

3 表面等离激元的量子统计性质

在量子力学中, 粒子的一个最基本特性就是能够同时表现出波动性和粒子性, 也就是波粒二象性[28]. 波动性意味着粒子可以携带相位信息, 体现出波的干涉性质. 粒子性主要体现在粒子的统计性质上面. 为了验证SPP的量子性质, 波粒二相性这个最基本的量子力学问题需要得到证明. 2007年, Lukin研究组[29]通过单个量子点与金属纳米线的耦合首次证明了单个SPP的粒子性. 2009年, Kolesov等[30]将单个氮空位(NV)色心与金属银纳米线耦合, NV色心会自发辐射单个光子到纳米线中的SPP模式中, 从而激发单个的SPP. 实验者对从纳米线中SPP模式辐射出来的光子进行了二阶关联测量和干涉测量. 在这个实验中, 单个NV色心一次只能辐射一份能量, 这样就保证了激发的SPP是单个的. 图2(a)中二阶关联测量的结果证明了被激发的SPP是单个的, 其粒子性得到证明, 而单个光子的自我干涉证明了其波动性[30]. 随后在2014年, Piazza等[31]也观测到了SPP的波粒二相性. 同光子一样, SPP也可以被制备成各种量子态, 这些量子态可以由粒子数的量子统计性质来表征. 在2012年, Maier研究组[32]利用参量下转换的光学量子态在金属脊形波导中激发了SPP的粒子数态、Fock态, 然后对在SPP波导两端辐射出的光子进行量子统计性质测量. 对于少数光子的Fock态的实验结果证明了SPP能够保持Fock态的量子性质(图2(b)). 在这项研究中, 他们着重分析了SPP在传输中的损耗效应. 实验结果表明, SPP传输所引起的损耗可以看作是一种线性非关联的马尔可夫环境, 它并不影响量子态的关联性质. 所以, SPP的传输损耗可以用经典的方法来处理.

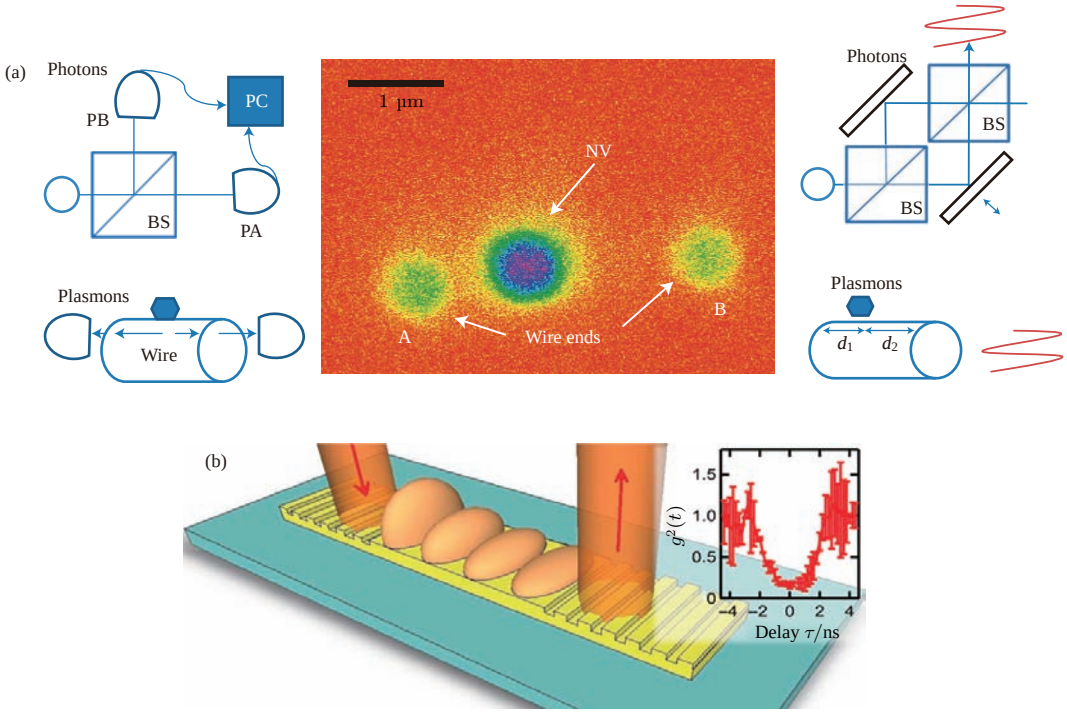


图2 SPP的量子统计性质 (a)单个NV色心与金属纳米线耦合激发单个表面等离激元, 测量其波粒二相性[30]; (b)金属脊形波导中表面等离激元Fock态的二阶关联测量[32]

Fig. 2. Quantum statistical property of SPP: (a) Single NV center coupled to silver nanowire[30]; (b) Fock state in SPP waveguide[32].

上述工作都是研究光子与SPP的转化过程, 最终利用对光子的测量来验证SPP的量子性. 更为严谨的证明方法应该是在一个全SPP的回路中制备SPP的量子态并直接探测. 量子态的直接制备可以通过SPP波导与量子发光体的耦合或者在SPP中加入量子操作来实现, 而SPP的直接探测可以通过电学的方法实现[33]. 但这些初步的实验仍然证明了量子态、量子操作等量子信息过程都可以通过对SPP的编码来实现. 这为量子表面等离激元进一步的应用奠定了基础.

4 量子表面等离激元集成回路

因为SPP可以把光场束缚在纳米尺度, 这就意味着对SPP进行操控的集成化光学器件可以缩小到纳米尺度而不受传统光学的衍射极限限制. 在经典光学的研究中, 基于SPP构建的器件、回路已经得到广泛的研究. 比如, 邹长铃、任希锋等提出的基于介质波导和金属膜的SPP偏振分束器[34]、检偏器[35]、光学吸收器[36]. 徐红星研究组[37]提出的利用金属纳米线搭建的光信号处理逻辑门等. 同样, 如果SPP 光学器件能够保持量子态的相干性, 这些集成的SPP器件和回路也能应用于搭建集成的量子表面等离激元光学网络[38]、回路[39]. 这样就可以大大缩小量子表面等离激元集成回路的尺寸. 对于这样一个回路, 它应该包括SPP的产生、量子操作和SPP的测量.

在量子集成回路中, 量子化的SPP的激发可以通过间接和直接的方法. 间接的方法是把外界产生的单光子源, 比如自发参量下转换、晶体中的量子发光体等, 利用波导耦合、光栅耦合、棱镜耦合等方法耦合到SPP波导中[32,40−42]. 一种高效的方法就是利用介质波导和SPP波导之间的绝热耦合, 高效地激发SPP波导中的模式[43,44]. 理论上, 这种效率可以达到90%以上. 对于直接的方法, 近年来研究的主流是把单个量子发光体, 包括量子点、NV色心等放在金属波导的附近[29,30]. 因为量子发光体与SPP波导会有很高的耦合强度, 大部分能量会自发辐射到金属波导中, 形成量子化的表面等离激元态. 把量子发光体放到小的金属结构附近, 在满足频率匹配的情况下, 发光体就会自发辐射到金属结构的局域模式中, 激发局域的量子表面等离激元. 如果把发光体黏在基于原子力显微镜系统的近场光学探针上, 就可以精确地控制所要激发的SPP的位置. 这种机制我们会在后文详细讨论. 另外一种潜在的方法就是在SPP模式覆盖区域填充非线性介质材料[45], 利用SPP的自发参量下转换直接产生SPP量子态. 因为SPP模式的超小模式面积, 可以期待这种方法能得到比介质波导中更高的效率. 目前, 已经在金属薄膜上实现了SPP的倍频, 并且能在动量空间上区分介质中的非线性过程和金属中的非线性过程[46]. 我们可以期待自发参量下转换在表面等离激元回路中的实现.

SPP量子态的操控可以参考集成介质光学波导中光子量子态的操控[47], 利用微纳加工的金属波导、电介质加载波导或者金属纳米线的回路来实现. 以路径编码为例, 对于SPP 量子态的操作可以通过SPP搭建的定向耦合器和相位延迟的组合来实现, 这种基于线性操作的方法是概率性的, 需要通过后选择来选择需要的量子态. 为了提高效率, 一种可能的方法是利用非线性, 包括SPP与SPP之间的非线性相互作用和SPP与物质之间的相互作用. 但是, 由于材料的非线性系数太低, SPP与SPP之间的非线性相互作用很弱, 所以很难用这种原理来实现想要的量子操作. 而SPP与物质的相互作用则可能解决这一问题, 因为SPP的模式面积很小, 它与量子发光体的相互作用很强, 特别是纳米颗粒附近的局域SPP, 这样就有很强的非线性, 以实现需求的量子操作. 目前基于这种机制的SPP量子操作的研究刚刚开展, 因此在这一节, 我们主要介绍基于线性操作方案来实现SPP量子回路.

在上述量子表面等离激元的实验研究中, 人们只研究了单个SPP量子性质. 而对SPP量子操作要依赖于多个表面等离激元之间的量子干涉, 也就是光子之间的Hong-Ou-Mandel (HOM)干涉, 这也是实现量子表面等离激元回路的基础. 2012年, Fujii等[48]验证SPP并不会改变光子的不可区分性. 随着微纳加工技术的发展, 在集成SPP波导中实现SPP之间的量子干涉成为可能. 2013年, Zwiller研究组[49]在集成芯片上加工出基于金条SPP波导的分束器, 将自发参量下转换产生的双光子对耦合入金条波导激发两个相干的SPP, 通过二阶关联测量首次观测到了两个SPP 之间的量子干涉, 最终实验得到了43%的干涉可见度(图3(a)). 然而这个干涉可见度并没有达到量子干涉的下界, 因为两个相干激光脉冲的干涉可见度最高也能够达到50%. 为了在集成SPP回路中真正实现SPP的量子干涉, 文献[50—52]分别利用电介质加载的杂化SPP波导在同期实现了高于经典极限50% 的双SPP量子干涉, 其中任希锋研究组[51]得到了迄今为止最高的95.7%的干涉可见度. 这些实验充分证明了SPP 和光子一样具有玻色子的性质, 可以用于集成化的量子信息处理过程, 比如以干涉为基础搭建量子C-NOT门等逻辑器件. 同时, 任希锋组的工作也指出了损耗对于集成SPP 器件以及对量子干涉的影响. SPP模式作为一个损耗的热库确

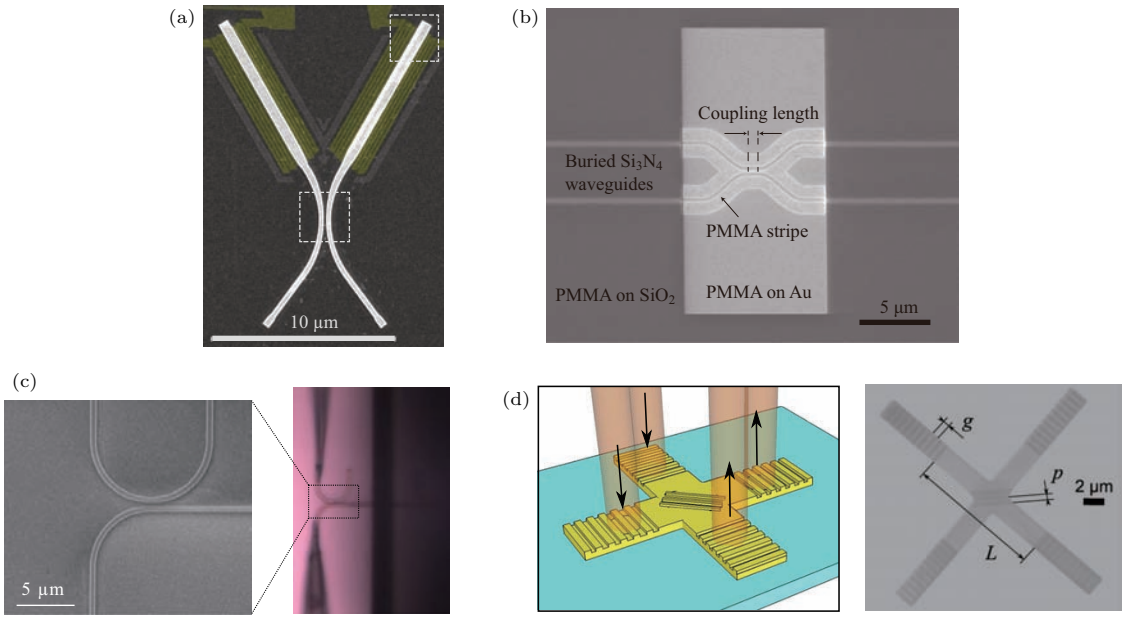


图 3 SPP 间的量子干涉 (a) 金属条形波导中两个 SPP 的量子干涉, 测量方法为集成的超导探测器 [49]; (b)—(d) 电介质加载波导中 SPP 间的量子干涉, 这种结构克服了损耗的影响, 可以得到更高的干涉可见度 [50,51]

Fig. 3. Quantum interference of SPP: (a) HOM interference of SPP in gold stripe waveguide [49]; (b)–(d) HOM interference of SPP in dielectric loaded SPP waveguide, such structures can reduce losses and achieve higher visibility [50,51].

实会影响集成器件的性质, 从而降低量子干涉的干涉可见度. 最近, 在实验上也观测到了 SPP 之间的凝聚和反凝聚现象 [53]. 所以在实际的应用中, 要考虑使用损耗低的材料, 或者使用介质杂化的波导.

2016 年, 南京大学李涛、祝世宁课题组基于 SPP 之间的基本量子干涉, 实现了基于 SPP 的量子控制非门的操作 [54]. 如图 4 (a) 所示, 整个器件的工作区域只有 14 μm × 14 μm. 基于量子控制非门, 整个量子集成回路的操作都可以实现. 此外, 量子态的转移, 纠缠的产生都可利用这种原理得以实现. 在文献 [21, 23, 24] 中, 纠缠的验证仅仅是基于百纳米量级的金属薄膜, 远小于光的波长, 这并不能证明量子纠缠在很长传输距离的集成回路中能够得到保持. 2015 年, 任希锋研究组也在实验上证明了基于 SPP 的量子偏振纠缠态可以在亚波长尺度的波导中传输 [55]. 他们利用光纤锥把偏振纠缠的光子导入到半径为 160 nm 的金属银纳米线波导中. 在传输了 10 μm 以上的距离后, 光子之间的偏振纠缠依然得到保持. 这种光纤集成的 SPP 结构可以作为量子探针, 同时实现超分辨和超灵敏的表面等离激元量子探测和传感 [56,57].

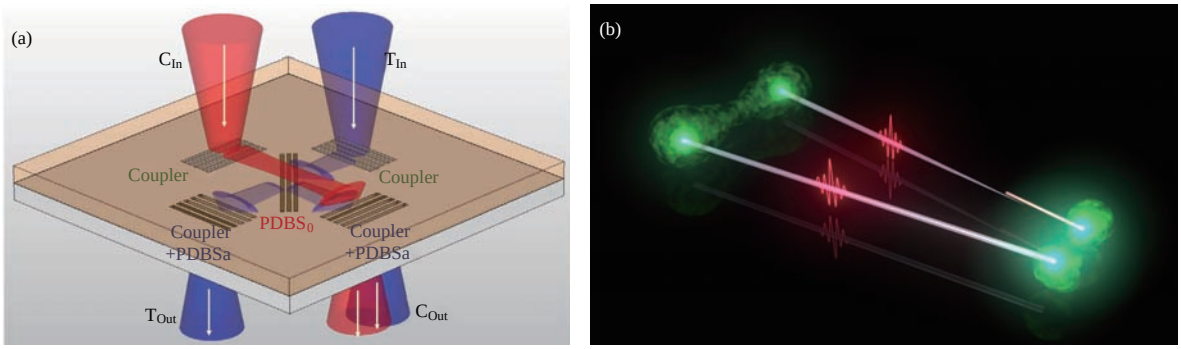


图 4 简单 SPP 量子回路 (a) 基于 SPP 的量子 C-NOT 门 [54], 这个结构中整个逻辑门的尺寸为 14 μm × 14 μm; (b) 量子偏振纠缠态在纳米尺度波导中的传输 [55], 金属纳米线的半径约为 160 nm

Fig. 4. Simple SPP quantum circuits: (a) Quantum C-NOT gate based on SPP [54], the total size is 14 μm × 14 μm; (b) transmission of photonic quantum polarization entangled state in a silver nanowire waveguide [55].

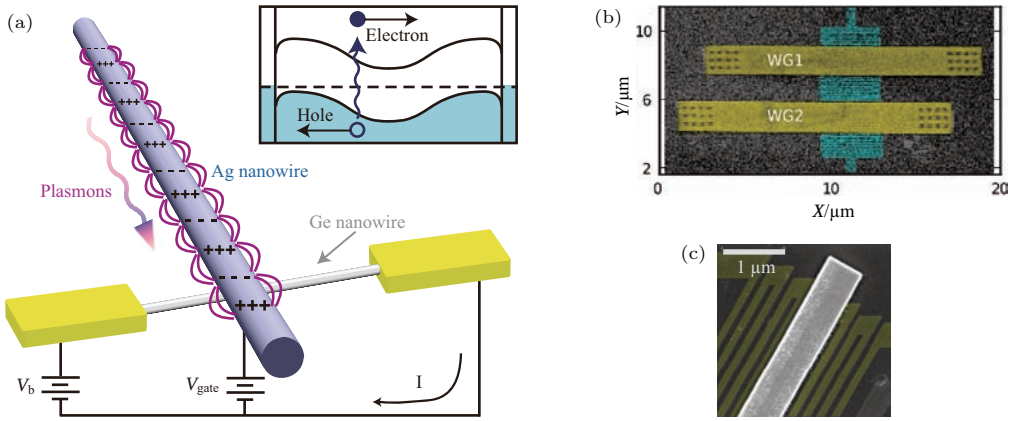


图 5 SPP 的直接探测方法 (a) 直接电学探测 [33]; (b), (c) 超导探测器掩埋波导附近探测 [49,58]

Fig. 5. Direct detection of SPP: (a) Electric detection method [33]; (b), (c) integrated super-conducting detectors [49,58].

在 SPP 的探测方面, 可以直接利用电学方法. 实验证明, 当把金属纳米线波导放在一个锗的场效应管上面, SPP 的电场激发了锗纳米线中的电子空穴对, 然后形成电流被探测 [30](图 5 (a)). 为了进一步提高单个 SPP 的探测效率以及提高探测器的性质, 可以利用超导探测器 (图 5 (b) 和图 5 (c) 铺设在 SPP 波导附近进行探测 [49,58]. 这样, 整个量子回路都可以以 SPP 的形式得到实现, 而不需要转化为光子或者使用远场的辅助方法.

上述实验结果表明, SPP 量子态的初态制备、量子操作、探测都可以在一个集成的 SPP 回路中得到实现, 而不需要远场的辅助手段.

5 表面等离激元与量子发光体的相互作用

光与量子发光体的相互作用一直是研究的热点, 一方面是为了调制量子发光体的辐射性质, 制作具有良好性质的单光子源, 或者制备表面等离激元回路中的光源; 第二则是通过光与量子发光体的相互作用引入非线性, 实现对单光子信号的量子操作. 然而一个显然而又致命的问题就是, 光学模式与量子发光体的空间尺寸差别很大, 导致相互作用强度非常弱. 想要得到足够强的耦合作用, 可以利用光学微腔来提高光模的模式密度 [59], 从而增强与量子发光体的相互作用. 随之而来的问题就是, 量子发光体与光学微腔的频率匹配比较困难, 而且高 Q 值的腔很难把光能量辐射出来. 一个可行的替代方案就是引入 SPP, 无论是传输模式和局域模式 SPP 都能把光膜束缚在一个远低于光学衍射极限的尺度. 由于光与量子偶极子的耦合强度 $g \propto \sqrt{1/V}$, 因此 SPP 可以大大增强光与量子发光体的相互作用 [60]. 关于 SPP 与量子发光体系综相互作用的工作已经有了很细致的研究. 在本文中, 我们主要讨论单个量子发光体与 SPP 的相干相互作用.

在弱耦合的机制下, SPP 模式与量子发光体的耦合体现在对量子发光体辐射性质的调制上, 比如改变发光体的自发辐射速率 [61]. 此时, SPP 模式的影响可以用 Purcell 系数 [62] 来描述. 当把量子发光体放到金属表面或者金属纳米结构附近时, SPP 模式会激发量子发光体, 同时发光体也会直接自发辐射单光子进入 SPP 模式 [63]. 由于 SPP 模式的电场分布被局域起来, 因此它可以增加对量子发光体的激发效率, 同时也加快量子发光体的辐射速率. 2007 年, 哈佛大学的 Lukin 研究组 [29] 首次实现了单个量子点与金属银纳米线上的表面等离激元模式之间的耦合 (图 6 (a)). 之后, 也在实验上观测到了 NV 色心与金属银纳米线上的传输 SPP 模式的耦合 [30]. 其中, Lukin 研究组在实验上观测到了金属银纳米线中传输 SPP 模式对单个量子点荧光有 2.5 倍的增强. 基于传输的 SPP 模式, Chang 等在理论上提出了利用表面等离激元模式来实现对量子发光体荧光的高效率收集 [64], 以及单光子级别的晶体管 [65]. 而局域 SPP 模式与量子发光体耦合时, 可以用腔量子电动力学的方法来处理 [19,66]. 虽然损耗的作用导致 SPP 纳米腔的 Q 值很低, 但是超小的模式面积依然提供了很强的耦合强度. 由于

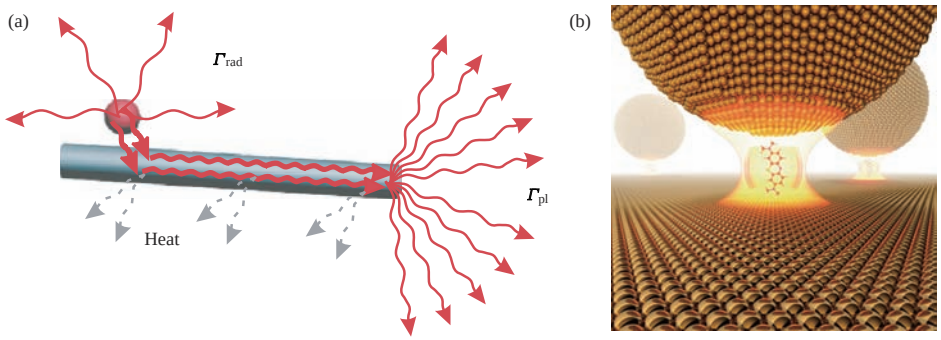


图 6 SPP 与单个量子发光体的相互作用 (a) 金属银纳米线与单个量子点耦合, 量子点荧光自发辐射到传输 SPP 模式中 [29]; (b) 局域 SPP 模式与单个分子在室温下发生强耦合, 实验中观测到光谱的辟裂 [79]

Fig. 6. Interaction between SPP and single quantum emitter: (a) Coupling between silver nanowire and single quantum dot [29]; (b) strong coupling between single molecule and localized SPP mode [79].

更强的耦合强度, 大部分能量辐射到 SPP 模式中, 最终可以利用局域 SPP 模式向自由空间的辐射来探测量子发光体的荧光. 在这里局域 SPP 模式充当了天线的作用, 可以诱导发光体自发辐射到需要的通道中去, 比如用来控制量子发光体荧光的发射方向、偏振、模式 [67−69] 等. 此外, 这种 SPP 模式增强耦合的机制还能导致电磁诱导透明、非反转激光等现象 [70−72]. 在国内, 徐红星研究组在量子点与金属银纳米线的耦合研究方面也做出了许多杰出的工作 [73]. 比如利用量子点作为辅助手段研究银纳米线的传输模式 [74], 测量量子点在银纳米线附近的辐射及非辐射速率等 [75].

值得注意的是, 由于金属支持的 SPP 模式存在损耗, 量子发光体荧光增强的机制受到了非辐射跃迁的限制 [76]. 当发光体靠近金属时, 非辐射跃迁的作用变强, 以至产生荧光猝灭的现象. 所以在利用 SPP 模式进行荧光增强时, 要优化量子发光体与金属结构的距离.

如果进一步缩小局域 SPP 模式的体积, 增大耦合强度, 使得耦合速率大于 SPP 模式的损耗衰减速率和发光体的损耗速率时, 就进入了强耦合的机制. 在这个机制下, 量子发光体辐射能量到 SPP 模式, 而且 SPP 模式还能再激发量子发光体. 所以 SPP 模式不能仅仅被看作是对量子发光体的扰动, 要当作一个整体看待, 最终会观测到光-物质能级的 Rabi 辟裂. 前几年, 科学家们已经在实验上观测到局域 SPP 模式与分子、量子点系综在强耦合机制下的相互作用 [77,78]. 然而直到 2016 年, 才在实验上观测到了单个量子发光体与局域 SPP 模式的强耦合作用, Chikkaraddy 等在室温下观测到了局域 SPP 模式与单分子的强耦合相互作用 (图 6 (b)). 他们制作了金属颗粒-金属膜的间隙结构, 在间隙中存在很强的局域 SPP 模式, 把单分子放置在这个模式中, 由于强耦合, 最终他们观测到了单分子光谱的 Rabi 辟裂 (图 6 (b)) [79]. 在这种机制下, 可以用 SPP 模式与多个发光体耦合, 实现它们之间的纠缠 [80,81]. 也可以利用强耦合产生的非线性来搭建单光子级别的开关、逻辑门等.

6 损耗在量子表面等离激元中的效应

需要特别指出的是, 虽然 SPP 在量子领域有着很多优异的性质, 但其固有损耗一直是一个致命的问题. 一方面, 损耗会影响整个器件或者回路的整体效率; 另一方面, 损耗直接关系到 SPP 与 SPP 相互作用、SPP 与量子发光体相互作用中的物理机制. 在多个 SPP 之间进行量子干涉时, 损耗不仅仅会降低计数率, 还会降低量子干涉的干涉可见度 [49−52]. 两个 SPP 模式耦合时, 由于整个金属热库的存在, 耦合系数是一个复数, 也就是说 SPP 模式会有寿命交换. 新的本征模式中, 有的模式损耗变大, 有的损耗变小. 经过一段传输后, 只有少数损耗小的模式被保留下来, 一部分量子相干性受到了破坏 [51]. 近期, 已经在实验上观测到了损耗导致双 SPP 量子干涉图样的改变. 解决这种问题的一个方法就是使用电介质加载的 SPP 波导, 利用介质进行传输, 金属进行束缚. 在进行 SPP 与量子发光体耦合时, SPP 模式损耗速率的大小直接决定了耦合机制的强弱, 从而决定其应用范围. 所以在利用 SPP 进行量子信息处理的过程中, 一定要谨慎对待损耗这个问题, 并努力削弱它的影响. 比如, 利用吸收小的材料, 如石墨烯等 [82], 来降低损耗的

影响. 也可以设计长程SPP 波导, 但这会大大减小SPP 模式的局域程度. 在经典光学中, 可以在SPP传输的过程中加入增益介质, 补偿传输中金属的吸收. 目前这种方案在传输量子信号时能否保持量子相干性尚无明确的结论, 还需要进一步的研究.

7 总结和展望

本文总结了量子表面等离激元的研究进展, 从SPP 的基本量子性质开始, 到搭建量子表面等离激元回路及其与单个量子发光体的相互作用. 这些研究都初步证明了SPP 在缩小量子器件尺寸、增强光与物质相互作用方面的优越性. 在实际应用方面, SPP 与SPP 之间, SPP 与物质之间的非线性相互作用研究亟待开展, 因为必要的量子操作需要这些相互作用来完成. SPP 与SPP 的相互作用可以实现SPP 编码的量子态的制备以及在不同频率之间的转移. 在SPP 与量子发光体的相互作用的研究中, 可以利用SPP 与发光体的耦合实现多种性质的量子单光子源, 也可以应用于制作亚波长尺度的光晶格与超冷原子相互作用[83]. 在强耦合机制下, 用局域SPP 能够实现多个发光体之间的量子纠缠. 在接下来的研究中, 解决损耗和缩小模式体积是一个非常重要的研究方向, 一方面可以寻找新的材料设计新的结构, 另一方面也可以利用介质与金属的复合结构来降低损耗的影响. 而最近强耦合的实现已经证明SPP 的优越性能够压制其损耗的影响, 对下一步研究起到至关重要的作用. 由量子光学与表面等离激元光学结合而产生的量子表面等离激元光学, 作为新兴研究方向, 不仅使SPP 基本物理性质的研究更深入, 同时也提供了量子信息研究中若干难题的解决方案. 我们相信, 随着实验和理论技术的发展, 量子表面等离激元能够在物理研究和实际应用中大放异彩.

参考文献

[1] Raether H 1988 *Surface Plasmons on Smooth Surfaces* (Berlin, Heidelberg: Springer)

[2] Barnes W L, Dereux A, Ebbesen T W 2003 *Nature* **424** 824

[3] Gramotnev D K, Bozhevolnyi 2010 *Nature Photon.* **4** 83

[4] Takahara J, Yamagisha S, Taki H, Morimoto A, Kobayashi T 1997 *Opt. Lett.* **22** 475

[5] Fang N, Lee H, Sun C, Zhang X 2005 *Science* **308** 534

[6] Takahara J 2009 *In Plasmonic Nanoguides and Circuits* (Ch. 2) (Pan Stanford Publishing)

[7] Wang L L 2012 *Ph. D. Dissertation* (Hefei: University of Science and Technology of China) (in Chinese) [王鲁橹 2012 博士学位论文 (合肥: 中国科学技术大学)]

[8] Sadeghi S M, West R G 2011 *Nejat A Nanotechnology* **22** 405202

[9] Nie S, Emory S R 1997 *Science* **275** 1102

[10] Fleischmannand M, Hendra P J, Mc Quillan A 1974 *J Chem. Phys. Lett.* **26** 163

[11] Jeanmaire D L, van Duyne R P 1977 *J. Electroanalyt. Chem. Interfac. Electrochem.* **84** 1

[12] Berini P, de Leon J 2012 *Nature Photon.* **6** 16

[13] Bergman D J, Stockman M I 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 027402

[14] Giannini V, Fernández- Dominguez A I, Heck S C, Maier S A 2011 *Chem. Rev.* **111** 3888

[15] Anker J N, Hall W P, Lyandres O, Shah N C, Zhao J, van Duyne R P 2008 *Nat. Mater.* **7** 442

[16] Pines D A 1953 *Phys. Rev.* **92** 626

[17] Hopfield J J 1958 *Phys. Rev.* **112** 1555

[18] Elson J M, Ritchie R H 1971 *Phys. Rev. B* **4** 4129

[19] Waks E, Sridharan D 2010 *Phys. Rev. A* **82** 043845

[20] Tame M S, Lee C, Lee J, Ballester D, Paternostro M, Zayats A V, Kim M S 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 190504

[21] Altewischer E, van Exter M P, Woerdman J P 2002 *Nature* **418** 304

[22] Ebbesen T W, Lezec H J, Ghaemi H F, Thio T, Wolff P A 1998 *Nature* **391** 667

[23] Fasel S, Robin F, Moreno E, Erni D, Gisin N, Zbinden H 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 110501

[24] Ren X F, Guo G P, Huang Y F, Li C F, Guo G C 2006 *Europhys. Lett.* **76** 753

[25] Guo G P, Ren X F, Huang Y F, Li C F, Ou Z Y, Guo G C 2007 *Phys. Lett. A* **361** 218

[26] Huck A, Smolka S, Lodahl P, Sørensen A S, Boltasseva A, Janousek J, Andersen U L 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 246802

[27] Ren X F, Guo G P, Huang Y F, Wang Z W, Zhang P, Guo G C 2008 *Europhys. Lett.* **84** 30005

[28] Tang J S, Li Y L, Xu X Y, Xiang G Y, Li C F, Guo G C 2012 *Nat. Photon.* **6** 600

[29] Akimov A V, Mukherjee A, Yu C L, Chang D E, Zibrov A S, Hemmer P R, Lukin M D 2007 *Nature* **450** 402

[30] Kolesov R, Grotz B, Balasubramanian G, Stöhr R J, Nicolet A A L, Hemmer P R, Jelezko F, Wrachtrup J 2009 *Nat. Phys.* **5** 470

[31] Piazza L U C A, Lummen T T A, Quinonez E, Murooka Y, Reed B W, Barwick B, Carbone F 2015 *Nat. Commun.* **6** 6407

[32] Di Martino G, Sonnefraud Y, Kéna-Cohen S, Tame M, Ozdemir S K, Kim M S, Maier S A 2012 *Nano Lett.* **12** 2504

[33] Falk A L, Koppens F H, Yu C L, Kang K, de Leon Snapp N, Akimov A V, Park H 2009 *Nat. Phys.* **5** 475

[34] Zou C L, Sun F W, Dong C H, Ren X F, Chen X D, Cui J M, Han Z F, Guo G C 2011 *Opt. Lett.* **36** 3630

[35] Dong C H, Zou C L, Ren X F, Guo G C, Sun F W 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 041104

[36] Xiong X, Zou C L, Ren X F, Guo G C 2014 *IEEE Photon. Tech. Lett.* **26** 1726

[37] Wei H, Wang Z, Tian X, Kall M, Xu H 2011 *Nat. Commun.* **2** 387

[38] Holtfrerich M W, Dowran M, Davidson R, Lawrie B J, Pooser R C, Marino A M 2016 *Optica* **3** 985

[39] De Leon N P, Lukin M D, Park H 2012 *IEEE J. Select. Topics in Quantum Electron.* **18** 1781

[40] Otto A 1968 *Zeitschrift für Physik* **216** 398

[41] Kano H, Mizuguchi S, Kawata S 1998 *JOSAB* **15** 1381

[42] Guo X, Ma Y G, Wang Y P, Tong L M 2013 *Laser Photon. Rev.* **7** 855

[43] Dong C H, Ren X F, Yang R, Duan J Y, Guan J G, Guo G C, Guo G P 2009 *Appl. Phys. Lett.* **95** 221109

[44] Guo X, Qiu M, Bao J, Wiley B J, Yang Q, Zhang X, Tong L 2009 *Nano Lett.* **9** 4515

[45] Kauranen M, Zayats A V 2012 *Nat. Photon.* **6** 737

[46] Grosse N B, Heckmann J, Woggon U 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 136802

[47] Politi A, Cryan M J, Rarity J G, Yu S, O'brien J L 2008 *Science* **320** 646

[48] Fujii G, Segawa T, Mori S, Namekata N, Fukuda D, Inoue S 2012 *Opt. Lett.* **37** 1535

[49] Heeres R W, Kouwenhoven L P, Zwiller V 2013 *Nat. Nanotech.* **8** 719

[50] Fakonas J S, Lee H, Kelaita Y A, Atwater H A 2014 *Nat. Photon.* **8** 317

[51] Cai Y J, Li M, Ren X F, Zou C L, Xiong X, Lei H L, Liu B H, Guo G P, Guo G C 2014 *Phys. Rev. Appl.* **2** 014004

[52] Di Martino G, Sonnefraud Y, Tame M S, Kéna-Cohen S, Dieleman F, Özdemir Ş K, Maier S A 2014 *Phys. Rev. Appl.* **1** 034004

[53] Vest B, Dheur M, Devaux E, Ebbesen T W, Baron A, Rousseau E, Hugonin J P, Greffet J, Messin G, Marquier F 2016 arXiv:161007479 [*quant-ph*]

[54] Wang S M, Cheng Q Q, Gong, Xu P, Sun C, Li L, Li T, Zhu S N 2016 *Nat. Commun.* **7** 11490

[55] Li M, Zou C L, Ren X F, Xiong X, Cai Y J, Guo G P, Tong L M, Guo G C 2015 *Nano Lett.* **15** 2380

[56] Fan W, Lawrie B J, Pooser R C 2015 *Phys. Rev. A* **92** 053812

[57] Lee C, Dieleman F, Lee J, Rockstuhl C, Maier S A, Tame M 2016 *ACS Photon.* **3** 992

[58] Heeres R W, Dorenbos S N, Koene B, Solomon G S, Kouwenhoven L P, Zwiller V 2009 *Nano Lett.* **10** 661

[59] Hood C J, Chapman M S, Lynn T W, Kimble H J 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 4157

[60] Chang D E, Sørensen A S, Hemmer P R, Lukin M D 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 053002

[61] Drexhage K H, Kuhn H, Schäfer F P 1968 *Phys. Chem.* **72** 329

[62] Purcell E M 1946 *Phys. Rev.* **69** 674

[63] Li M, Xiong X, Yu L, Zou C L, Chen Y, Liu D, Guo G C 2017 ar Xiv:170102935

[64] Chang D E, Sørensen A S, Hemmer P R, Lukin M D 2007 *Phys. Rev. B* **76** 035420

[65] Chang D E, Sørensen A S, Demler E A, Lukin M D 2007 *Nat. Phys.* **3** 807

[66] Trügler A, Hohenester U 2008 *Phys. Rev. B* **77** 115403

[67] Curto A G, Volpe G, Taminiau T H, Kreuzer M P, Quidant R, van Hulst N F 2010 *Science* **329** 930

[68] Kinkhabwala A, Yu Z, Fan S, Avlasevich Y, Müllen K, Moerner W E 2009 *Nature Photon.* **3** 654

[69] Koenderink A F 2010 *Opt. Lett.* **35** 4208

[70] Rice P R, Brecha R J 1995 *Opt. Commun.* **126** 230

[71] Ridolfo A, Di Stefano O, Fina N, Saija R, Savasta S 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 263601

[72] Yannopapas V, Paspalakis E, Vitanov N V 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 063602

[73] Li Q, Wei H, Xu H X 2014 *Nano Lett.* **14** 3358

[74] Zhang S, Wei H, Bao L, Hakanson U, Halas N J, Nordlander P, Xu H X 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 096801

[75] Li Q, Wei H, Xu H X 2015 *Nano Lett.* **15** 8181

[76] Anger P, Bharadwaj P, Novotny L 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 113002

[77] Passmore B S, Adams D C, Ribaudo T, Wasserman D, Lyon S, Davids P, Shaner E A 2011 *Nano Lett.* **11** 338

[78] Vasa P, Wang W, Pomraenke R, Lammers M, Maiuri M, Manzoni C, Lienau C 2013 *Nature Photon.* **7** 128

[79] Chikkaraddy R, de Nijs B, Benz F, Barrow S J, Scherman O A, Rosta E, Baumberg J J 2016 *Nature* **535** 127

[80] Martin-Cano D, González-Tudela A, Martín-Moreno L, Garcia-Vidal F J, Tejedor C, Moreno E 2011 *Phys. Rev. B* **84** 235306

[81] Lin Z R, Guo G P, Tu T, Li H O, Zou C L, Chen J X, Guo G C 2010 *Phys. Rev. B* **82** 241401

[82] Constant T J, Hornett S M, Chang D E, Hendry E 2016 *Nat. Phys.* **12** 124

[83] Gullans M, Tiecke T G, Chang D E, Feist J, Thompson J D, Cirac J I, Lukin M D 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 235309

SPECIAL ISSUE—Diffraction limit of electromagnetic waves

Recent progress of the application of surface plasmon polariton in quantum information processing*

Li Ming Chen Yang Guo Guang-Can Ren Xi-Feng†

(*Chinese Academy of Sciences Key Laboratory of Quantum Information, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China*)

(*Synergetic Innovation Center of Quantum Information and Quantum Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China*)

(Received 24 March 2017; revised manuscript received 26 April 2017)

Abstract

Surface plasmon polariton has attracted more and more attention and has been studied extensively in the recent decades, owing to its ability to confine the electro-magnetic field to a sub-wavelength scale near the metal-dielectric interface. On one hand, the tightly confined surface plasmonic modes can reduce the size of integrated optical device beyond the diffraction limit; on the other hand, it provides an approach to enhancing the interaction between light and matter. With the development of experimental and numerical simulation techniques, its investigation at a quantum level has become possible. In the recent experiments, scientists have realized quantum interference between single plasmons in a nanoscale waveguide circuit and achieved the strong coupling between photons and single molecules by using plasmonic structure, which demonstrates its superiority over the traditional optics. Here, we review the theoretical and experimental researches of surface plasmon polariton in the field of quantum information processing. First, we introduce the experiments on the basic quantum properties of surface plasmons, including the preservation of photonic entanglement, wave-particle duality and quantum statistical property. Second, we review the research work relating to the generation, manipulation and detection of surface plasmons in a quantum plasmonic integrated circuit. Then, we present the research of the interaction between surface plasmons and single quantum emitters and its potential applications. Finally, we make a discussion on how the intrinsic loss affects the quantum interference of single plasmons and the coupling between quantum emitters. The collision and combination of quantum optical and plasmonic fields open up possibilities for investigating the fundamental quantum physical properties of surface plasmons. It can be used to make ultra-compact quantum photonic integrated circuits and enhance the interaction strength between photons and quantum emitters.

Keywords: surface plasmon polariton, quantum information, photonic quantum circuit, quantum emitter

PACS: 42.50.Ex, 03.67.–a, 73.20.Mf, 42.79.–e **DOI:** 10.7498/aps.66.144202

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11374289, 61590932), the National Key Rresearch and Development Program, China (Grant No. 2016YFA0301700), the Fundamental Research Funds for the Central Universities, China and the Open Fund of the State Key Laboratory on Integrated Optoelectronics (Grant No. IOSKL2015KF12).

† Corresponding author. E-mail: renxf@ustc.edu.cn

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

光学超振荡与超振荡光学器件

陈刚　温中泉　武志翔

Optical super-oscillation and super-oscillatory optical devices

Chen Gang　Wen Zhong-Quan　Wu Zhi-Xiang

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 144205 (2017)　DOI: 10.7498/aps.66.144205
在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.144205
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I14

您可能感兴趣的其他文章
Articles you may be interested in

环形光束锥形衍射出射光场偏振特性及光场调控
Polarization characteristic and control of the conical diffracted output field under annular beam
物理学报.2017, 66(12): 124202　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.124202

偏振双向衰减对光学成像系统像质影响的矢量平面波谱理论分析
Analysis of the influence of diattenuation on optical imaging system by using the theory of vector plane wave spectrum
物理学报.2017, 66(8): 084202　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.084202

非均匀关联随机电磁光束的产生
Generation of non-uniformly correlated stochastic electromagnetic beams
物理学报.2017, 66(5): 054212　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.054212

基于 Pancharatnam-Berry 相位调控产生贝塞尔光束
Generation of Bessel beam by manipulating Pancharatnam-Berry phase
物理学报.2017, 66(4): 044203　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.044203

一种含时贝塞尔光束的理论性质研究
Theoretical investigation on a kind of time-dependent Bessel beam
物理学报.2016, 65(14): 144201　http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.144201

专题: 电磁波衍射极限

光学超振荡与超振荡光学器件*

陈刚† 温中泉 武志翔

(重庆大学光电工程学院, 光电技术及系统教育部重点实验室, 重庆 400044)

(2017 年 3 月 29 日收到; 2017 年 5 月 24 日收到修改稿)

传统光学器件的衍射极限极大地制约了远场超分辨光学系统的进一步发展. 如何从光学器件层面突破光学衍射极限瓶颈, 实现非标记远场超分辨光学成像, 是光学领域面临的巨大挑战. 光学超振荡在不依靠倏逝波的条件下, 可以在远场实现任意小的亚波长光场结构, 这为突破光学衍射极限提供了一条崭新的途径. 近年来, 光学超振荡现象和超振荡光学器件的相关研究得到了快速发展, 在理论和实验上成功地演示了超振荡光场的产生和多种超振荡光学器件, 并在实验上展示了超振荡光学器件在非标记远场超分辨光学显微、成像以及超高密度数据存储等应用领域的巨大优势和应用潜力. 本文对光学超振荡相关理论、超振荡光学器件设计理论和方法、超振荡光学器件发展现状、超振荡光场测试方法以及超振荡光学器件的应用等方面进行详细介绍和分析.

关键词: 超振荡, 超分辨, 衍射器件, 亚波长

PACS: 42.25.–p, 42.79.–e, 07.60.–j, 78.67.Pt **DOI:** 10.7498/aps.66.144205

1 引 言

由于光学器件衍射效应的限制, 传统光学系统空间分辨率无法突破理论分辨率极限 $0.5\lambda/NA$(其中 λ 为波长, NA 为光学系统数值孔径) [1], 严重地制约了超高分辨光学系统的研制和发展 [2]. 突破衍射极限制约, 实现超分辨光学聚焦与成像, 对超分辨光学显微 [3,4]、超高密度数据存储 [5]、纳米光刻 [6]、生命科学 [7,8] 等领域意义重大. 1982 年, Pohl 等 [9] 研制出第一台基于物体表面隐失波的扫描近场光学显微镜, 实现了可见光波段的超分辨光学显微. 然而, 近场成像仅限于样品表面, 无法满足远场超分辨成像应用的需求. 荧光单分子定位 [10]、光激活定位显微 [11]、随机光学重构显微 [12] 和受激发射损耗显微技术 [13] 等, 可以实现远场超分辨成像. 然而, 这些技术均依赖于荧光标记. 结构光照明显微技术 [14] 通过空间频率调制获取物体表面光场的高频分量, 实现超分辨光学图像重构, 可以将极限空间分辨提高一倍. 采用双曲超透镜的显微技术 [15], 分辨率可达到 34 nm [16]. 然而, 被检测样品需要尽可能地靠近超透镜内表面, 极大地限制了其应用. 在光刻中, 采用表面等离激元器件 [17] 可实现 80 nm 线宽的近场光刻. 基于双光子吸收的双光束光刻技术 [6], 横向分辨率和特征尺寸可分别达到 52 和 9 nm. 尽管这些技术都实现了光学超分辨, 然而, 在实际应用中都具有一定的局限性, 如: 工作距离远小于一倍波长、需要对样品进行标记、采用非线性材料等. 更为重要的是, 构成远场成像光学系统的光学器件自身就是衍射受限的. 因此, 如何从光学器件层面突破衍射极限瓶颈, 实现非标记远场超分辨成像, 是光学领域面临的重大挑战. 光学超振荡基于光的远场传播规律, 为突破衍射极限提供了崭新的思路. 近年来, 光学超振荡现象、超振荡光学器件和超振荡光学显微技术等相关研究得到了快速的发展. 特别是光学超振荡在非标记远

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2013CBA01700)、国家自然科学基金 (批准号: 61575031, 61177093) 和教育部 “新世纪优秀人才支持计划”(批准号: NCET-13-0629) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: gchen1@cqu.edu.cn

© 2017 中国物理学会 Chinese Physical Society

场超分辨光学显微(分辨率无理论极限)[18,19]和二维、三维超分辨率图像重建等[20]方面, 已经显示出巨大的优势和应用潜力. 同时, 光学超振荡理论、超振荡光学器件及其应用等方面的研究也面临巨大挑战. 本文分别对光学超振荡相关理论、超振荡光学器件设计理论和方法、超振荡光学器件的发展现状、超振荡光场测试方法以及超振荡光学器件的应用等方面进行详细介绍.

2 光学超振荡现象

光学超振荡[21]是指由空间频率较低的光场相干叠加, 在空间形成局域快速振荡光场的现象. 该局域振荡频率可以远大于光场最高空间频率, 并在局域空间形成最小特征尺寸小于光学衍射极限的光场分布[22].

$$F(x)=\sum_{n=1}^{N_{\max}} a_n \cos(2\pi n\nu_0 x). \tag{1}$$

以(1)式为例, 函数$F(x)$由$N_{\max}$个谐波线性叠加而成. 这些谐波可以被看作是一系列具有不同传播方向(k_x,k_z)的相干平面波, 而函数$F(x)$即为这些平面波相干叠加所形成的衍射光场. 第n个平面波在x轴方向的空间频率为$k_x=2\pi n\nu_0$、复振幅为a_n, 最高次谐波对应的空间频率为$2\pi N_{\max}\nu_0$. 如图1所示[21], 通过合理设计这些平面波的复振幅a_n, 可以使该衍射光场$F(x)$在空间局部的振荡(实线)远快于最高频率谐波$\cos(2\pi N_{\max}\nu_0 x)$(虚线). 由于超振荡光场是由传播波相干叠加而成, 因此, 超振荡光场的形成并不局限于近场区域, 而且理论上可以在远场实现任意小的光场结构[23].

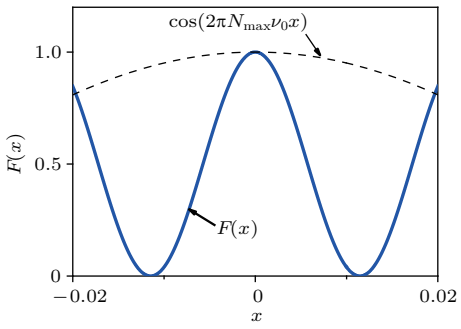


图1 超振荡示意图[21] 超振荡函数$F(x)$(实线)与其所含的最高频率分量(虚线)

Fig. 1. Schematic of super-oscillation[21]: a super-oscillation function (solid line) and its highest frequency component (dashed line).

1952年, Toraldo di Francia[23]提出, 超向天线的概念可以应用于光学系统, 实现超越衍射极限的光学分辨率. 1969年, Frieden[24]指出, 一个有限孔径的光学系统, 理论上可以通过镀膜的方式在有限区域实现任意完美成像. 1985年, Buckelew和Saleh[25]证明可以在衍射受限系统的输出中, 构建具有任意分辨率的一维图像. 21世纪初, 实现不依赖于倏逝波的超分辨思想在光学领域再度复苏[26], 光学超振荡为实现这种远场超分辨提供了一种可能的途径. 超振荡[27,28]这一概念最早出现在量子力学的弱测量概念中: 在空间局部测量获得的光波波数值, 可能并不存在于空间整体测量结果的范围内. 2006年, Berry和Popescu[29]首次将量子超振荡和光学超分辨联系起来, 并从理论上证明在不依赖于倏逝波的情况下, 光场中小于波长的超振荡精细结构可以在远场传播, 而且其传播距离远大于通常的近场传播距离. 2017年, Makris等[30], 通过严格求解麦克斯韦方程, 得到了基于矢量贝塞尔光束超振荡叠加解的具体形式, 再次证明了超振荡光场中的亚波长结构可以被传播到远场区域. 根据Ferreira和Kempf[31]的研究结果, 产生超振荡光场所需的能量将随着超振荡数目的增加呈指数增长; 而随带宽的倒数呈多项式增长. 2007年, 南安普顿大学Zheludev研究团队[21,32]采用660 nm单色光照射准周期纳米金属孔阵列屏, 在距离金属孔阵列屏约19λ处的衍射光场中观测到尺寸为0.44λ的亮斑, 首次在实验上演示了光学超振荡现象. 理论研究表明, 相位控制对于超振荡函数的构建至关重要[33]. 类似地, 下面将看到在超振荡光场形成的过程中, 光场相位分布起着十分重要的作用[34]. 空间光场分布$E(\boldsymbol{r})$可以由实振幅分布$A(\boldsymbol{r})$和相位分布$\varphi(\boldsymbol{r})$描述, 即$E(\boldsymbol{r})=A(\boldsymbol{r})\exp[\mathrm{i}\varphi(\boldsymbol{r})]$. 由电磁场亥姆霍兹波动方程可知, 光场振幅$A(\boldsymbol{r})$和相位$\varphi(\boldsymbol{r})$应满足

$$\begin{cases}\nabla^2\varphi(\boldsymbol{r})+\nabla(\ln A^2(\boldsymbol{r}))\cdot\nabla\varphi(\boldsymbol{r})=0,\\ \nabla^2 A(\boldsymbol{r})+[k^2-|\nabla\varphi(\boldsymbol{r})|^2]A(\boldsymbol{r})=0,\end{cases} \tag{2}$$

其中相位梯度$\nabla\varphi(\boldsymbol{r})$为光场的局域波矢量, 即光场的局域空间频率. 由(2)式的第2式可知, 当局域空间频率大于波矢量绝对值$k=2\pi n_0/\lambda$(即传播波的空间截止频率, n_0为传播介质的折射率, λ为真空中的波长)时, 光场振幅$A(\boldsymbol{r})$会在该局部空间产生衰减. 特别是当$|\nabla\varphi(\boldsymbol{r})|\gg k$时, 将导致局域空间光场急剧衰减至零, 进而形成超分辨光场结构.

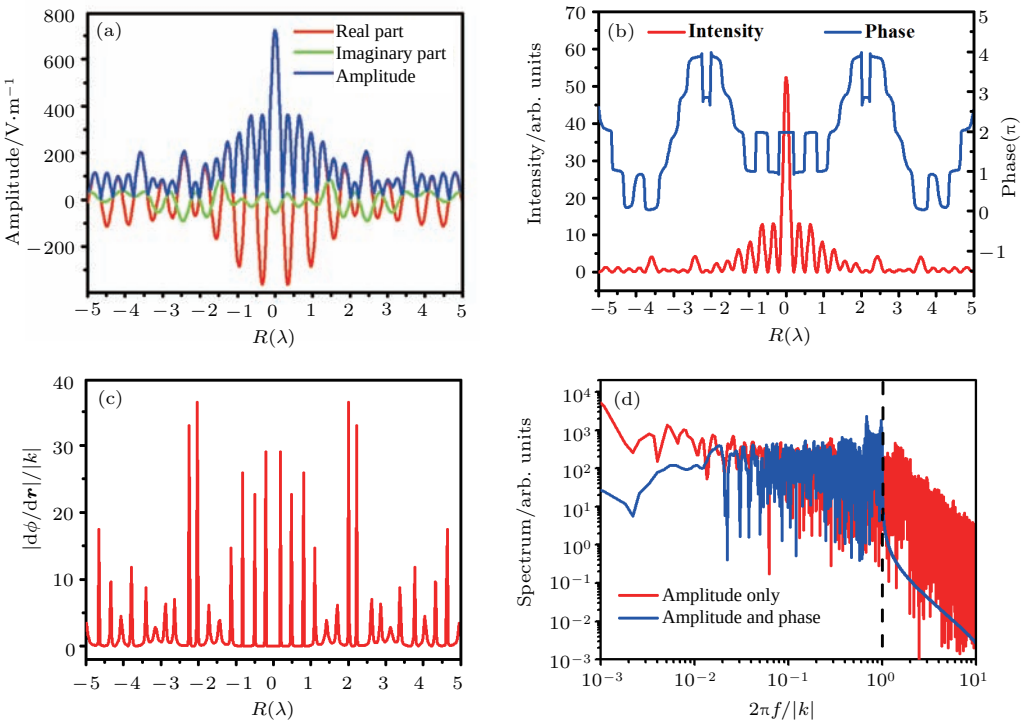


图 2 超振荡聚焦光场示例 [34] (a) 超振荡聚焦光场振幅 (蓝)、光场实部 (红)、光场虚部 (绿) 空间分布; (b) 超振荡聚焦光场强度 (红)、相位 (蓝) 空间分布; (c) 超振荡聚焦光场的局域空间频率分布; (d) 超振荡聚焦光场振幅的空间频谱 (红)、超振荡聚焦光场 (蓝) 的空间频谱

Fig. 2. An example of super-oscillation focusing field [34]: (a) The amplitude (blue), real part (red) and imaginary part (green) of the optical super-oscillation focusing field; (b) the optical intensity (red) and phase (blue) distribution of the optical super-oscillation focusing field; (c) the local spatial frequency distribution of the optical super-oscillation focusing field; (d) the spatial frequency spectrum of the field amplitude (red) and full optical field (blue) of the optical super-oscillation focusing field.

图 2 给出了一维超振荡聚焦光场示例, 其对应的聚焦光斑半高全宽为 0.34λ (小于衍射极限 $0.5\lambda/NA$). 图 2 (a) 为光场振幅 (蓝)、光场实部 (红) 和光场虚部 (绿) 的空间分布; 图 2 (b) 给出了光场强度 (红) 和相位 (蓝) 的空间分布. 可以看出, 相位分布在光强度极小位置均出现了不同程度的反相跳变, 尤其是在邻近主瓣的两个光强极小位置; 如图 2 (c) 所示, 这种相位跳变导致该处局域空间频率 $|\mathrm{d}\varphi(\boldsymbol{r})/\mathrm{d}\boldsymbol{r}|$ 远远大于光传播空间截止频率 k, 致使该处振幅迅速衰减, 形成半高全宽小于衍射极限的聚焦光场; 图 2 (d) 同时给出了光场振幅 $A(\boldsymbol{r})$ 的空间频谱 (红) 和光场 $E(\boldsymbol{r}) = A(\boldsymbol{r})\exp[\mathrm{i}\varphi(\boldsymbol{r})]$ 的空间频谱 (蓝). 可以看出, 光场振幅的空间频谱已经远远超出了传播波所对应的空间截止频率 (黑色虚线). 然而, 相位的引入使得光场的空间频谱仅存在于小于空间截止频率的范围以内. 事实上, 从图 2 (a) 可以看出, 正是由于相位的反相跳变, 使得光场实部和虚部的空间振荡频率均远低于振幅的空间振荡频率. 因此, 相位反相跳变在导致超分辨光场结构形成的同时, 确保了整体光场空间频率小于传播波的空间截止频率, 即在传播波中实现超分辨光场结构. 通常, 将光场局域空间频率 $|\nabla\varphi(\boldsymbol{r})|$ 远大于光学系统空间截止频率 $k_{\max}$ 作为超振荡光场的特征 [35,36]. 2014 年, 新加坡国立大学仇成伟等 [37] 提出了与瑞利判据 $(0.6\lambda/NA)$ 相对应的超振荡判据 $(0.38\lambda/NA)$.

除了空间超振荡光场, 近年来超振荡思想也被引入到时域光场, 以实现时域脉冲压缩 [38]、时域超分辨光拍 [39], 研究表明具有相同时间频率的超振荡时域光场和传统时域光场在损耗介质中的传播规律存在着较大的差异 [40].

3 超振荡光场构建与超振荡光学器件设计方法

图 3 给出了超振荡聚焦光场分布主要参数 [22]: 焦斑强度、焦斑宽度、边带强度、视场、旁瓣强度. 与传统的定义方式一致, 焦斑强度是指中心亮斑的

峰值强度 I_0, 焦斑宽度通常用中心亮斑的半高全宽 (FWHM) 表示. 与传统聚焦光场不同的是, 这里引入了边带强度这一参数, 用于描述超振荡光场中可能出现的巨大旁瓣, 边带强度 I_{SB} 通常远大于中心亮斑强度 I_0. 视场是指边带所处位置以内的区域 $[-D, D]$. 旁瓣强度是指在视场范围 $[-D, D]$ 内最大旁瓣对应的强度 I_{SL}.

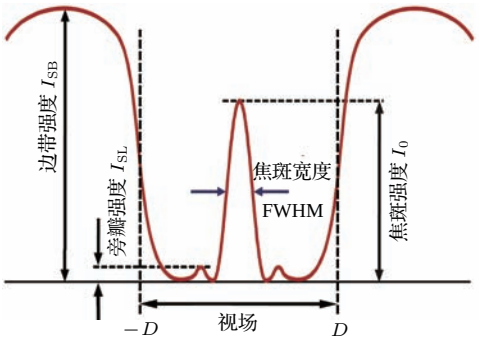


图 3 超振荡聚焦光场的主要参数 (为方便描述, 并使全文术语一致, 我们对原图进行了一定的改动) [22]: 焦斑强度、焦斑宽度、边带强度、视场、旁瓣强度

Fig. 3. The major parameters for a super-oscillatory focusing field (the original figure is modified for consistent description in the whole paper) [22]: hotspot intensity, hotspot width, sideband intensity, field of view, and sidelobe intensity.

在超分辨器件设计方法研究方面, 最早基于标量衍射理论, 对超分辨光瞳滤波器进行了研究 [41,42]. 罗切斯特大学 Sales 和 Morris [43] 以及清华大学 Liu 等 [44] 先后对超分辨光瞳滤波器的斯特列尔比 (Strehl Ratio)、主瓣尺寸和旁瓣之间的相互制约关系进行了深入的理论研究, 并给出了相应的光瞳滤波器设计方法, 但其没有明显包含超振荡聚焦光场特有的边带强度和视场两个参数. 2008 年, Jabbour 和 Kuebler 发展了一种基于粒子群优化算法的二值相位衍射器件设计方法, 结合非旁轴衍射积分 [45], 实现了超分辨轴向聚焦点扩散函数的优化设计 [46]. 2009 年, Zheludev 研究团队 [47] 提出了基于有限带宽函数的超振荡光场构建方法. 根据光学器件的空间截止频率, 在给定的局域空间 (视场区域 $[-D, D]$) 内, 利用正交椭圆球面函数集的带宽有限特性和局域展开特性, 可以构建任意尺寸的超分辨光场结构, 并采用逆衍射方法求解光学器件的透射函数. 然而, 由于正交椭圆球面波函数的局域展开特性, 所构建的超振荡光场在视场区域外存在巨大的旁瓣. 值得关注的是, 与传统的正透镜截然相反, 利用该方法设计的聚焦透镜相位分布具有负透镜特征. 由此可以看出超振荡透镜与传统透镜之间可能存在较大的区别, 其设计方法不能够完全基于对传统成像或聚焦光学器件的认知. 2009 年, 浙江大学刘旭研究团队 [48] 提出了基于纳米光纤阵列多光束干涉的超振荡光场产生方法, 并进行了理论仿真验证. 2010 年, 多伦多大学 Wong 等 [49] 提出了基于超方向性天线阵列电磁场调控的超振荡聚焦场设计方法. 2011 年, 英国圣安德鲁斯大学 Mazilu 研究团队 [50,51], 提出了一种基于光学本征模的超振荡光场构建方法. 采用一系列光场分布尝试函数, 在给定区域内构建强度算子和光斑尺寸算子. 光斑尺寸算子最小本征值对应的本征模, 决定了在该区域内能够实现的光斑最小尺寸. 2012 年, Zheludev 研究团队 [18] 提出了一种结合矢量光场衍射计算方法和粒子群优化算法 [52] 的超振荡光场构建与超振荡光学器件透射函数设计方法. 根据超振荡光场分布目标函数, 通过多次迭代, 寻求超振荡光场和器件透射函数的最佳解. 对于尺寸较大、结构参数复杂的器件, 采用基因算法 [53] 和结合基因算法的粒子群算法 [54], 更有利于提高对全局最优参数的搜索能力. 2013 年, 以色列理工学院和普林斯顿大学 Greenfield 等 [55] 提出了基于贝塞尔光束相干叠加的非衍射超振荡光束构建方法. 通过不同阶次贝塞尔函数的线性叠加, 可以获得任意小的光场结构. 而且, 由于贝塞尔光束的非衍射特性, 所构建的超振荡光场结构可以在远距离传播过程中保持不变. 但其不足之处是, 在所构建的超振荡光场结构附近存在巨大的边带. 2014 年, 仇成伟等 [37] 提出了基于衍射光场相干叠加的超振荡聚焦光场构建方法, 对一组振幅、相位待定的同心环结构, 将每个同心环结构的远场衍射光场进行线性相干叠加, 并根据所构建的超振荡光场零点位置, 通过求解非线性方程组, 获取超振荡聚焦透镜的振幅、相位分布. 然而, 该方法无法避免超振荡聚焦光场中边带的产生. 2014 年, 我们通过数值理论仿真研究发现, 在焦斑半高宽约为 0.31λ 的超振荡聚焦情况下, 仍然可以避免边带的产生, 进而实现较大的视场 [34]. 2015 年, 加拿大多伦多大学 Wong 和 Eleftheriades [56] 针对超振荡聚焦光场的边带问题, 基于选择性超振荡的概念和超向天线设计方法, 进一步从理论上验证了无边带的超衍射聚焦. 同年, 德国马普所 Chremmos 和 Fikioris [57] 将超振荡概念从传播波推广到倏逝波, 利用平面介质界面处倏逝波的叠加, 实现超振荡类型的近场光场, 其振荡

最小间隔小于最高衰减系数的倒数. 2015 年, 美国代顿大学 Zhan 团队 [58] 利用径向偏振光聚焦光场的纵向偏振特性, 将轴向光场振动等效于电偶极子振荡, 通过计算电偶极子电场辐射传播, 求解所需光瞳平面的光场分布, 进而在 4Pi 聚焦系统中实现超振荡光针. 2016 年, 以色列特拉维夫大学 Eliezer 和 Bahabad [59] 借鉴 Berry 和 Popescu 所给出的超振荡复函数 [29], 提出了一种基于艾里函数线性叠加的超振荡函数构建方法, 并在空间频域实现了二维超振荡光场的空间频谱构建.

目前报道的大多数超振荡光场构建方法, 只能在二维空间平面内实现光学超振荡. 特别是当聚焦光场为单色光时, 由于单一长度的波矢量无法支撑三维波矢空间, 因此难以在三维空间的任意方向上实现光学超振荡. 针对此问题, 2017 年多伦多大学 Wong 和 Eleftheriades [60] 提出了宽带超振荡的概念, 利用具有一定时频带宽的宽带光源, 在三维波矢空间形成一个实心球形状的波矢分布. 对于给定的时间点, 利用具有不同径向空间频率的球贝塞尔函数, 构建具有球对称性的三维空间超振荡聚焦光场. 然而, 由于其时频宽带特性, 这种三维空间光场分布会随时间演化, 其三维超振荡光场分布只在布洛赫周期内较短的时间段内出现.

在以上超振荡光场和超振荡器件设计方法中, 采用解析求解方法具有物理图像清晰的优点. 然而, 现有解析求解方法难以应用于复杂超振荡矢量光场的构建, 而且不易实现光场和器件的最优化设计. 因此, 目前最常用方法仍是基于矢量光场衍射计算和粒子群算法、基因算法等的最优化设计方法, 其最大优点是可以通过合理地设计适应度函数, 进行多参数优化, 实现复杂超振荡矢量光场的构建 [34,61]. 同时, 由上述分析可知, 超振荡聚焦、成像器件的透射函数振幅相位特性以及其聚焦成像机理, 可能完全有别于传统光学聚焦、成像器件. 对于超振荡光场构建与超振荡光学器件设计, 目前尚无系统的理论. 特别是对于如何实现深亚波长聚焦、不随时间变化的三维超振荡聚焦、并有效地抑制边带、提高器件效率等, 尚需对光学超振荡理论和超振荡光学器件设计的理论和方法开展深入研究.

4 矢量光场衍射计算方法

超振荡光场中的超分辨结构是相干光场精确干涉的结果. 因此, 如何准确地计算衍射光场分布是超振荡光场构建和超振荡光学器件设计的关键. 在光的传播过程中, 具有不同偏振特性的光场, 其衍射规律也具有较大差别. 特别是当考虑光场偏振 (线偏振、圆偏振、径向偏振、角向偏振)、轨道角动量等时, 其对应的衍射计算公式以及聚焦光场的偏振特性和强度分布等都存在巨大的差异. 常用的光场衍射计算方法包括矢量角谱衍射方法 [62,63]、瑞利-索末菲矢量衍射积分 [64] 和德拜-沃耳夫矢量衍射积分等 [65]. 尽管采用这些计算方法所得到的衍射场分布存在一定差异, 然而在大多数情况下均在可以接受的范围内 [66]. (3) 式, (4) 式和 (5) 式分别给出了在入射光强分布满足圆对称的条件下, 线偏振光、圆偏振光、径向偏振光和角向偏振光 [53,67–70] 在空间柱坐标系 (r, ϕ, z) 和空间频率极坐标系 (ρ, Φ) 中对应的矢量角谱衍射计算公式:

$$\begin{cases} E_{\hat{p}}(r,z_{\rm f}) = \displaystyle\int_0^{\infty} A_0(\rho)\exp[{\rm j}2\pi q(\rho)z_{\rm f}]{\rm J}_0(2\pi\rho r)2\pi\rho{\rm d}\rho, \\ E_z(r,\phi,z_{\rm f}) = -{\rm j}\cos\phi E'_z(r,z_{\rm f}), \\ E'_z(r,z_{\rm f}) = \displaystyle\int_0^{\infty} \frac{\rho}{q(\rho)} A_0(\rho)\exp[{\rm j}2\pi q(\rho)z_{\rm f}]{\rm J}_1(2\pi\rho r)2\pi\rho{\rm d}\rho, \\ A_0(\rho) = \displaystyle\int_0^{\infty} t(r)g(r){\rm J}_0(2\pi\rho r)2\pi r\,{\rm d}r, \end{cases} \tag{3}$$

$$\begin{cases} E_r(r,z_{\rm f}) = \displaystyle\int_0^{\infty} A_1(\rho)\exp[{\rm j}2\pi q(\rho)z_{\rm f}]{\rm J}_1(2\pi\rho r)2\pi\rho{\rm d}\rho, \\ E_z(r,z_{\rm f}) = \displaystyle\int_0^{\infty} A_1(\rho)\exp[{\rm j}2\pi q(\rho)z_{\rm f}]{\rm J}_0(2\pi\rho r)2\pi\rho{\rm d}\rho, \\ E_\phi(r,z_{\rm f}) = 0, \\ A_1(\rho) = \displaystyle\int_0^{\infty} g(r)t(r){\rm J}_1(2\pi\rho r)2\pi r\,{\rm d}r, \end{cases} \tag{4}$$

$$\begin{cases} E_{\phi}(r, z_{\mathrm{f}}) = \displaystyle\int_0^{\infty} A_1(\rho)\exp[\mathrm{j}2\pi q(\rho) z_{\mathrm{f}}]\mathrm{J}_1(2\pi\rho r)2\pi\rho\,\mathrm{d}\rho, \\ A_1(\rho) = \displaystyle\int_0^{\infty} g(r)t(r)\mathrm{J}_1(2\pi\rho r)2\pi r\,\mathrm{d}r, \end{cases} \tag{5}$$

其中 $E_{\hat{p}}$, E_{ϕ}, E_r 和 E_z 分别为线 (圆) 偏振电场、角向偏振电场、径向偏振电场和轴向 (纵向) 偏振电场; $g(r)$ 和 $t(r)$ 分别为入射电场的空间分布和器件透射函数; z_{f} 为光场衍射传播距离; J_0 和 J_1 分别为零阶和一阶 Bessel 函数; $q(\rho) = (1/\lambda^2 - \rho^2)^{1/2}$ 为波矢量的轴向分量. 相对于有限时域差分法 [71] 和有限元法等 [72], (3) 式、(4) 式和 (5) 式所给出的衍射积分均可以通过快速汉克尔变换完成 [73−75], 从而实现矢量光场衍射的快速计算, 有利于大面积、结构复杂、参数众多的超振荡光场和超振荡光学器件设计. 当然, 这些方法与严格求解麦克斯韦方程相比, 仍有一定的差异 [76]. 而且, 这些衍射积分公式中并未包含器件亚波长结构散射、亚波长结构间光学耦合等因素, 因此, 可能造成理论设计和器件实际性能之间产生较大的差异. 特别是在深亚波长分辨率器件的设计中, 必须充分考虑这些因素的影响. 对于结构简单、参数较少的超振荡器件, 也可以采用模拟仿真软件, 严格求解麦克斯韦方程, 结合先验知识, 通过不断调整参数的方式, 在一定程度上实现超振荡器件的优化设计.

5 光场调控方法

研究发现, 在亚波长尺度提高对光场振幅、相位、偏振的调控范围和调控自由度, 可以极大地改善超振荡聚焦/成像器件的光能利用效率和空间分辨率, 并有效地抑制旁瓣 [34]. 特别是在产生具有特殊电场/磁场分布的超振荡光场时, 对光场的精确调控显得尤为重要. 超表面结构 [77] 可以实现对光场振幅、相位、偏振以及角动量等参数的调控, 其单元尺寸通常小于波长, 为实现亚波长尺度下光场的高效调控提供了重要的途径.

在可见光到红外光波段, 超表面结构已有大量报道. 2003 年, 斯坦福大学 Crozier 等 [78] 发现金属条阵列结构在光学波段具有类似于天线的作用. 2011 年, 哈佛大学 Capasso 研究团队 [79] 提出了一种 “V” 形光学天线, 对波长为 8 μm 的红外光波, 其相位调控范围达到了 2π, 但振幅透射率小于 10%. 2013 年, 美国哥伦比亚大学 Li 和 Yu [80] 提出通过电调谐石墨烯的光电导率改变石墨烯-金属等离激元天线谐振, 实现红外光波的振幅相位调控. 理论仿真表明: 对波长为 7.05 μm 的光场, 其相位调控范围达到了 240°, 振幅调控范围为 0—0.9, 但其无法对相位和振幅进行独立调控. 2013 年, 南丹麦大学 Bozhevolnyi 等 [81] 提出了一种金属条形天线结合金属反射层的高反射率光场相位调控结构, 对波长为 800 nm 的光场, 其相位调控范围达到 2π, 光强反射率约为 40%. 2014 年, 以色列特拉维夫大学 Yifat 等 [82] 提出了一种基于偶极子-片状天线结构的反射天线阵列, 对波长为 1550 nm 的光场, 相位调控范围达到了 300°, 振幅调控范围为 0.79—0.95. 2015 年, 加州理工学院 Arbabi 等 [83] 针对 1550 nm 波长, 采用亚波长介质圆柱阵列, 通过改变圆柱直径和周期, 实现了对透射光场的相位调控, 其相位调控范围达到了 2π. 2016 年, Capasso 研究团队 [84] 提出了一种长方形介质柱结构, 利用几何相位, 通过结构旋转实现了 2π 的相位调控范围. 在偏振调控方面, 采用透射型同心圆金属光栅 [85], 可以将圆偏振光束转化成为径向偏振光束. 2014 年, 美国滨州州立大学 Mayer 研究团队 [86] 提出了一种宽带 (640—1290 nm)、宽视场的反射型超表面结构波片, 基于强耦合的纳米棒谐振器阵列, 实现了四分之一和半波片功能, 转换效率达到了 92% 以上. 同年, 南京大学和美国西北大学共同提出了一种无色散的 “L” 形双折射偏振调控超表面结构 [87]. 2016 年, 美国代顿大学 Wang 和 Zhan [88] 对波长为 1064 nm 的圆偏振入射光, 提出了一种具有高反射率的 “T” 形双折射结构. 通过旋转该结构可以控制出射光偏振方向, 并通过改变结构参数可实现二值相位 (0, π) 调控. 在轨道角动量调控方面, 采用叉型全息光栅 [89,90] 可以实现任意轨道角动量的控制. 然而, 由于采用全息产生方式, 其出射光束与入射光束不同轴, 在应用上比较受限. 2016 年, 罗先刚研究团队分别提出了一种悬链线超表面结构 [91] 和一种结合几何相位和等离子相位延迟的相位调控方法 [92], 可以实现对光场轨道角动量的任意调控. 2016 年, Capasso 研究团队 [93] 报道了一种结合叉型全息光栅结构和结合环形光栅结构集成化涡旋光束波片, 实现了轨道角动量产生功能和径向偏振光束产生功能的集成化.

通常, 反射型超表面结构具有较高的效率, 而透射型超表面结构则效率较低. 然而, 反射结构在很多实际应用中受到较大的限制. 虽然采用多层结构可以在一定程度上提高透射型超表面结构的效率, 但是这将极大地增加其制作难度和成本. 而且, 现有超表面结构的功能比较单一, 这些都极大地限制了超振荡光学器件的发展. 如何有效地提高透射型超表面结构效率、实现光场的多参量(振幅、相位、偏振等)同时调控, 并提高各参量的调控范围, 亟待开展深入研究.

6 超振荡聚焦与超振荡光学器件

近年来, 光学超振荡光场产生和超振荡光学器件的研究得到了快速发展. 已报道的超振荡光学器件以单波长超振荡光学聚焦器件为主. 早期的器件主要是基于简单二值振幅调控实现相干光场的远场超分辨聚焦, 其焦斑尺寸可小于1/3倍波长, 然而旁瓣巨大; 采用连续振幅调控方式, 可以在一定程度上抑制旁瓣, 提高器件的效率, 并在实现光学超振荡的同时, 将旁瓣比(最大旁瓣强度与主瓣强度之比值)压缩到12%以下; 采用相位调控, 通过相干相消和相干相长, 对主瓣半宽进行压缩, 有利于进一步大幅提高器件聚焦效率、抑制旁瓣. 理论上, 在相位调控中, 采用的相位值越多, 越有利于提高器件的性能. 然而, 在光学波段, 由于加工条件受限, 实现较大面积的多值相位调控, 具有较大的困难. 采用二值相位(0, π), 不但能够提高器件性能[34,94,95], 而且便于加工制作. 以下我们对近年来报道的超振荡聚焦器件及其性能进行详细的介绍.

6.1 超振荡线聚焦光场及器件

2009年, Zheludev研究团队[47]基于正交椭圆球面函数和标量衍射理论, 设计了一种超振荡光学聚焦透镜, 数值计算表明这种透镜具有超分辨成像功能, 理论上可实现任意小的空间分辨率. 与传统的聚焦透镜不同, 这种透镜的振幅透射率在中心位置附近呈现振荡衰减, 而其相位分布类似于凹透镜, 并在透射率为零位置出现相位(约为π)跳变. 在透镜焦平面上, 所设计的视场$[-D, D]$之外伴随有巨大的边带. 该透镜加工难度极大, 尚未见实验报道. 2011年, Wong和Eleftheriades[96]通过控制多根天线所发射电磁场的振幅和相位, 在毫米波段实验演示了远场亚波长聚焦, 焦距达到5λ, 焦斑半高全宽为0.45λ(0.74倍衍射极限). 2014年, 重庆大

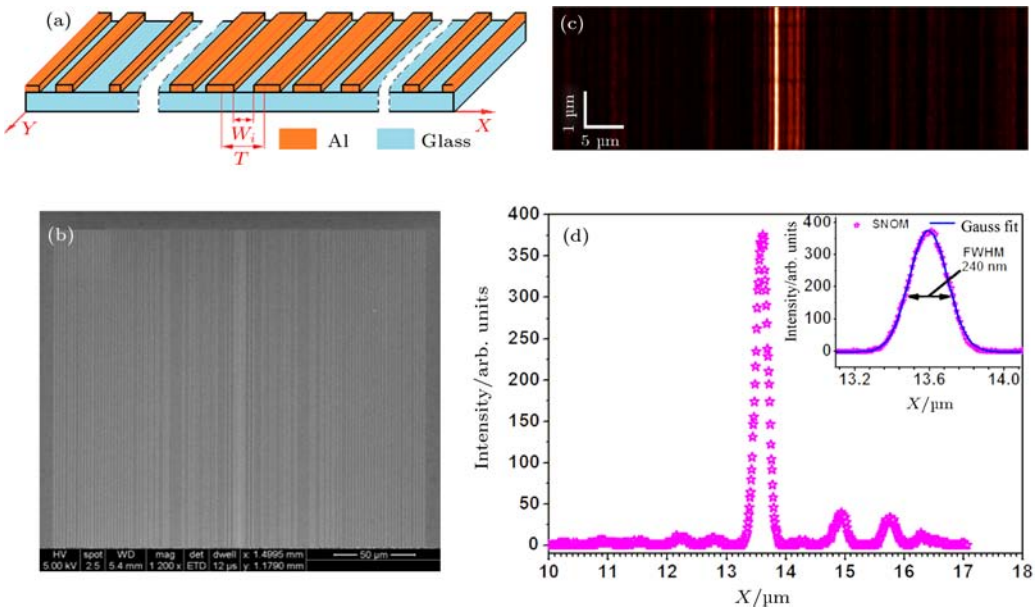


图4 基于亚波长金属狭缝阵列的准连续振幅调控超振荡线聚焦器件[100] (a) 器件结构示意图, 其中金属材料为铝, 基底为蓝宝石玻璃, T为狭缝周期, W_i为第i个狭缝的宽度; (b) 聚焦器件的扫描电镜照片; (c) 采用纳米探针获得的二维聚焦光场强度分布; (d) 聚焦光场强度分布曲线

Fig. 4. The quasi-continuous amplitude modulation super-oscillatory focusing device based on sub-wavelength metal slit array[100]: (a) The device structure, where the metal is aluminum, the substrate is sapphire glass, T is the period, and W_i is the width of the i-th slit; (b) the SEM picture of the device; (c) the 2-D intensity distribution of the focusing optical field obtained with a nano-tip; (d) the intensity curve of the focusing optical field.

学研究团队[97]报道了基于准连续振幅调控和二值相位调控的双层金属缝超振荡聚焦透镜的理论设计. 利用金属光波导直径与等效折射率之间的关系, 通过调整每层金属光波导的直径, 分别对双层金属缝的等效折射率实部和虚部进行调控, 进而实现对出射光振幅和相位的控制. 理论仿真表明, 该透镜焦距为20λ, 焦斑半高全宽为0.32λ (0.64倍衍射极限). 同年, 美国犹他大学Wan 等[98]基于标量衍射理论和非线性优化方法, 针对400 nm波长设计了一种基于二值相位调控的超衍射透镜, 焦距100λ, 半径143.5λ, 焦斑半高宽为196 nm (0.80倍衍射极限). 美国大学Maklizi等[99]提出了一种基于金属双狭缝和金属光栅阵列的线聚焦透镜. 金属狭缝用于激发表面等离激元, 光栅阵列用于对表面等离激元进行散射和散射光的相位调控, 进而实现可见和紫外横磁波(TM)线偏振光的超振荡聚焦. 通过调整金属双狭缝的间隔等参数, 可以对光栅间的相位差进行优化, 以实现对焦斑尺寸的压缩. 理论仿真表明, 其焦斑半高全宽约为$\lambda/4$. 2016年, 重庆大学研究团队, 对横电波(TE)线偏振光, 采用单层亚波长金属狭缝, 通过改变狭缝宽度, 实现了对光场振幅(0—1)的连续调控, 并报道了一种基于振幅连续调控的远场超振荡线聚焦透镜, 图4给出了该透镜的结构及超振荡聚焦实验结果. 实验表明, 该透镜焦距为40.1λ, 焦线半高全宽为0.379λ(0.75倍衍射极限), 而旁瓣比仅为10.6%. 在突破超振荡判据(0.38λ/NA)的条件下, 较好地解决了旁瓣的抑制问题[100]. 同年, 该研究团队报道了一种基于二值振幅和二值相位调控的远场超振荡线聚焦透镜. 通过金属膜和介质厚度, 分别控制出射光的振幅(0, 1)和相位(0, π). 透镜焦距达到148λ, 焦线半高全宽为0.406λ(0.76倍衍射极限), 旁瓣比为22%[101]. 2016年, Zheludev 研究团队[102]利用二值振幅型金属狭缝阵列线聚焦超振荡透镜, 在实验上演示了单光子量子超振荡行为.

6.2 超振荡点聚焦光场及器件

2006年, 麻省理工学院Stanley等[103]基于平面波角谱理论, 采用非聚焦波前相干叠加, 实现了0.37λ的亚波长分辨率聚焦. 2010年, 中国科学院光电技术研究所等单位[104]提出了一种基于表面等离激元散射波的远场超分辨聚焦透镜, 该透镜由亚波长环形狭缝和环形光栅构成. 径向偏振入射光通过狭缝激发表面等离激元, 环形光栅对表面等离激元散射产生的光波与透过环形狭缝的光波, 在远场干涉形成光斑. 理论仿真表明, 当焦距为0.57λ时, 焦斑半高全宽可达到0.40λ. 该方法被进一步推广到双波长超分辨聚焦透镜设计中[105], 并在实验上获得了半高全宽为0.41λ 的焦斑. 2011年, 美国马里兰大学Liu等[106]在单模光纤端面直接制作同心环结构的表面等离激元透镜, 利用表面等离激元只能被TM波激发的特性, 产生径向偏振出射光场. 并利用TM模式在不同宽度狭缝中传播的色散特性, 结合平面透镜相位空间分布, 实现了对出射径向偏振光场的超分辨聚焦, 其焦斑半高全宽达到了0.55λ (0.62倍衍射极限). 2012 年, Zheludev研究团队[18]报道了一种二值振幅型的金属铝同心环结构超振荡透镜, 工作波长为λ = 640 nm. 实验表明: 该透镜焦距为10.3 μm, 焦斑半高全宽为0.29λ(0.52倍衍射极限), 但旁瓣较大、且紧靠中心焦斑. 2013年, 该研究团队采用“十”字金属孔阵列实现类似于传统聚焦透镜的相位分布, 对波长为800 nm的入射光实现了超振荡聚焦. 实验表明: 透镜焦距为14.7λ, 焦斑半高全宽达到了0.28λ[107]. 2014年, 新加坡国立大学等单位[37]共同报道了一种基于二值振幅和二值相位调控的同心环结构超振荡聚焦透镜的理论设计, 焦斑半高全宽达到了0.34λ. 然而, 在其焦斑中心15λ距离外存在巨大的边带旁瓣. 2015年, 西安交通大学刘涛等[108]报道了基于二值同心环结构的超振荡透镜理论设计, 并实验报道了一种基于二值振幅的线偏振光超振荡透镜, 其工作波长为532.4 nm, 焦距为60.7λ, 焦斑半高全宽理论值为0.36λ, 实验测得的焦斑半高全宽约为0.45λ(0.86倍衍射极限). 同年, 罗先刚研究团队[109]通过条形金属缝旋转所形成的几何相位, 实现了对圆偏振光相位的连续调控, 首次在实验上报道了一种超宽带(405—784 nm)超振荡聚焦透镜, 透镜数值孔径为0.24, 焦斑尺寸小于0.7倍衍射极限. 然而, 该透镜存在较大的色差. 2016年, 重庆大学研究团队[67]报道了一种基于二值振幅(0, 1)和二值相位(0, π)调控同心环结构点聚焦透镜. 图5给出了该透镜的工作原理、基本结构、理论设计结果和实验测试结果. 该透镜对圆偏振光实现了超振荡聚焦, 焦距为399.5λ, 焦斑半高全宽为0.454波长(0.71倍衍射极限), 旁瓣比达到26%. 在实现超振荡聚焦的同时, 较好地抑制了旁瓣. 同年, 该研究团队报道了一种基于二值相位调控(0, π)的宽

带亚波长聚焦透镜理论设计, 其设计结果如图6所示, 在630—680 nm波长范围内实现了超衍射亚波长聚焦, 焦斑半高全宽小于288 nm(约0.86倍衍射极限)[110]. 然而, 与之前报道的基于相位连续调控的超宽带超振荡聚焦透镜类似, 这种基于二值相位的宽带聚焦透镜也存在严重的色差. 针对平面透镜的色差问题, 罗先刚研究团队[111]提出利用结构色散和材料色散补偿消除色差的方法, 要求空间相位变化与波长的乘积在整个器件范围内为常数, 从而实现宽带消色差平面光学器件. 然而, 这种对相位分布的特殊要求, 目前尚难以应用于超振荡透镜设计. 2017年, 西北工业大学Li等[112]报道了一种基于二值振幅调控的多焦点超振荡透镜理论设计, 对于线偏振光或圆偏振光, 在轴向实现了多点聚焦, 其焦斑尺寸约为$\lambda/3$. 除了上述基于表面等离激元的超振荡透镜和基于波带片结构的超振荡透镜以外, 2016年, 新加坡国立大学洪明辉研究团队[113]报道了一种微球超振荡聚焦透镜. 在微球透镜入射端中心设置挡光模板阻挡近轴光束, 实现超振荡光学聚焦, 并可以通过改变挡模板尺寸来改变工作距离和焦斑尺寸. 实验表明, 对633 nm波长的线偏振光, 聚焦光斑半高全宽达到了0.387λ. 该透镜的不足之处是工作距离较短, 当焦斑尺寸小于衍射极限时, 其工作距离小于λ. 特别是当工作距离远小于波长时, 其聚焦光场部分包含倏逝光场.

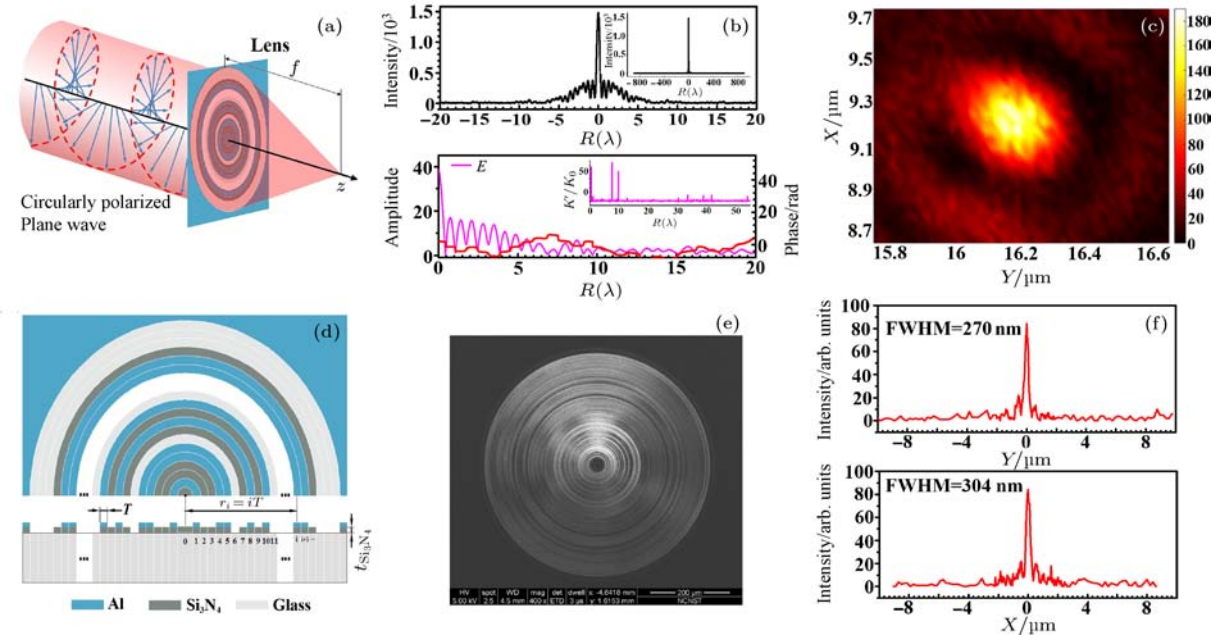


图5 圆偏振光超振荡聚焦器件[67] (a) 圆偏振光超振荡聚焦原理示意图; (b) 同心圆环形聚焦器件结构示意图(图中只给出了圆环结构的一半视图和截面图), 其中金属环(蓝)为金属铝、深灰色为Si_3N_4、浅灰色为蓝宝石玻璃基底; (c) 超振荡光场理论设计结果: 光场强度分布(上), 光场的相位(红色)和振幅(紫色)分布(下), 插图为局域空间频率分布; (d) 圆偏振光超振荡聚焦器件的扫描电镜照片; (e) 采用纳米探针获得的二维聚焦光场强度分布; (f) 焦平面上光强度沿Y轴(上)和X轴(下)的分布

Fig. 5. Super-oscillatory focusing device for circularly polarized wave[67]: (a) The focusing of circularly polarized plane wave; (b) the structure of the lens, where metal ring (blue) is aluminum, the dialectical ring (deep gray) is Si_3N_4, and the substrate (light gray) is sapphire glass; (c) the theoretical design result of the super-oscillation focal spot: optical intensity distribution (top), the phase (red line) and amplitude (purple line) distribution (bottom), and the inset is the local spatial frequency; (d) the SEM picture of the device; (e) the 2-D focusing optical field intensity obtained with the nano-tip; (f) the optical intensity distribution along the Y-axis and X-axis on the focal plane.

相较于线偏振光和圆偏振光, 对柱对称偏振(径向偏振、角向偏振)光束进行聚焦, 有望获得更小的聚焦光斑[114,115]. 2013年, 哈尔滨工业大学谭久彬研究团队[68]基于粒子群算法和矢量角谱衍射计算方法, 报道了一种基于二值振幅同心环结构径向偏振光聚焦器件的理论设计, 在空气中焦斑半高全宽达到0.389λ(0.728倍衍射极限). 2015年, 罗先刚研究团队[116]报道了一种基于等离激元的聚焦透镜, 对角向和径向偏振光实现了超振荡聚焦. 通过在透镜中心设置金属膜挡光圆盘, 提高聚焦光场

中的轴向偏振分量、降低径向偏振分量, 进而减小焦斑的半高全宽. 当遮挡率为0.7时, 焦斑半高全宽降为0.47λ. 2016年, 重庆大学研究团队[69]报道了一种基于二值相位(0, π)调控的角向偏振超振荡聚焦透镜, 在焦平面产生超振荡空心光环, 器件的理论设计结果和实验测试结果如图7所示. 实验表明: 该透镜焦距为600λ, 所产生的空心光环内径半高全宽为0.61λ(0.78倍衍射极限). 2016年, 俄罗斯科学院图像处理系统研究所Staffeev等[117]采用偏振转换器结合菲涅耳波带片, 对角向偏振光和径向偏振光实现了亚波长聚焦, 焦斑在两个正交方向的半高全宽分别为0.28λ和0.458λ.

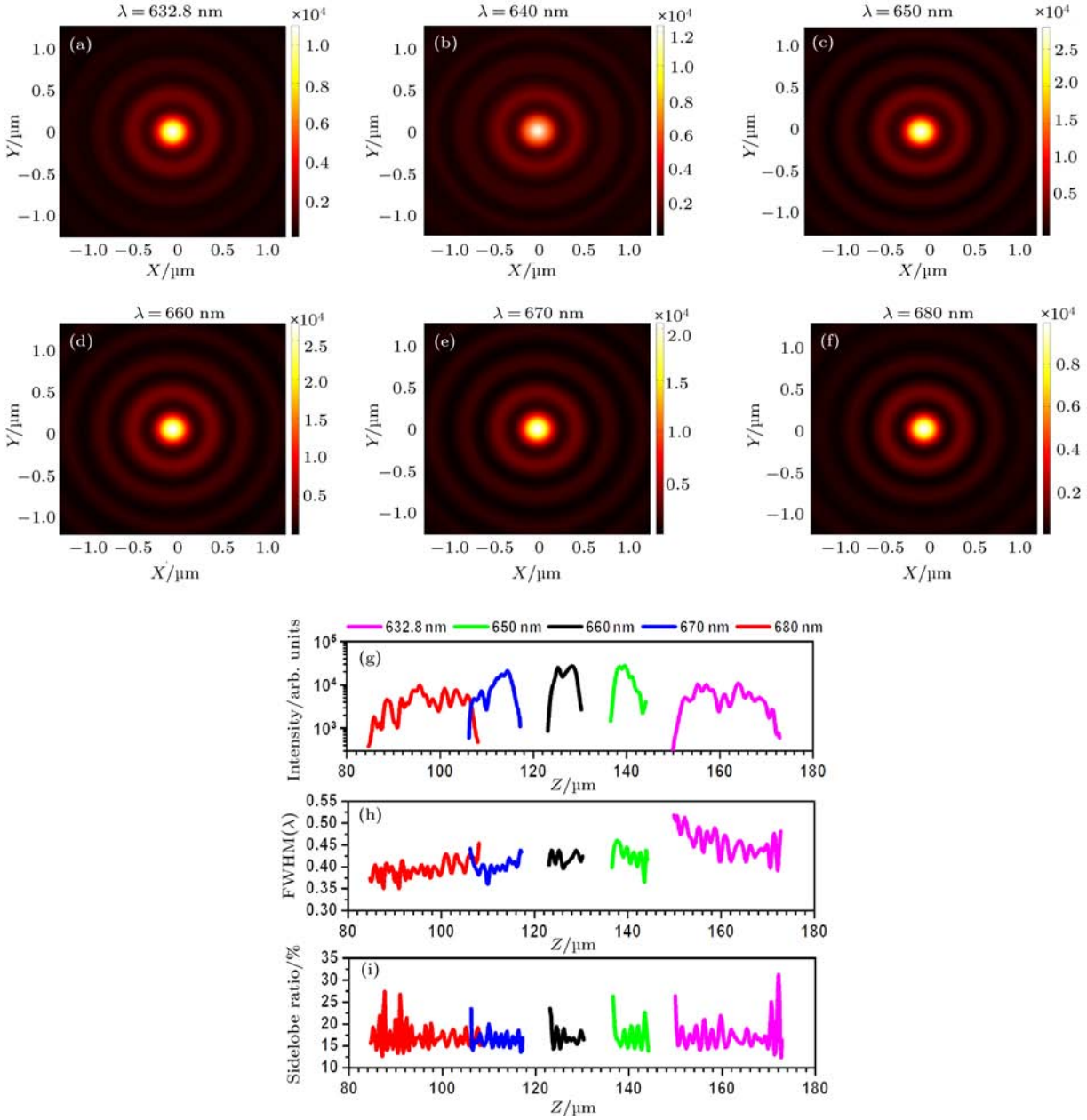


图6 宽带超振荡聚焦器件理论设计结果[110] (a)—(f)分别为在632.8, 640, 650, 660, 670, 680 nm波长照明下, 在相应焦平面上的二维光强度分布; (g)—(i)分别为各波长聚焦焦斑峰值强度、半高全宽和旁瓣比(最大旁瓣强度与与主瓣强度之比)的轴向分布

Fig. 6. The theoretical design result of the broad-band super-oscillatory focusing device[110]: (a)–(f) The 2-D optical intensity distribution on the focal plane under illumination of different wavelengths of 632.8, 640, 650, 660, 670, 680 nm; (g)–(i) the optical intensity and transverse FWHM and sidelobe ratio (the ratio of maximum sidelobe intensity to peak intensity) along the optical axis.

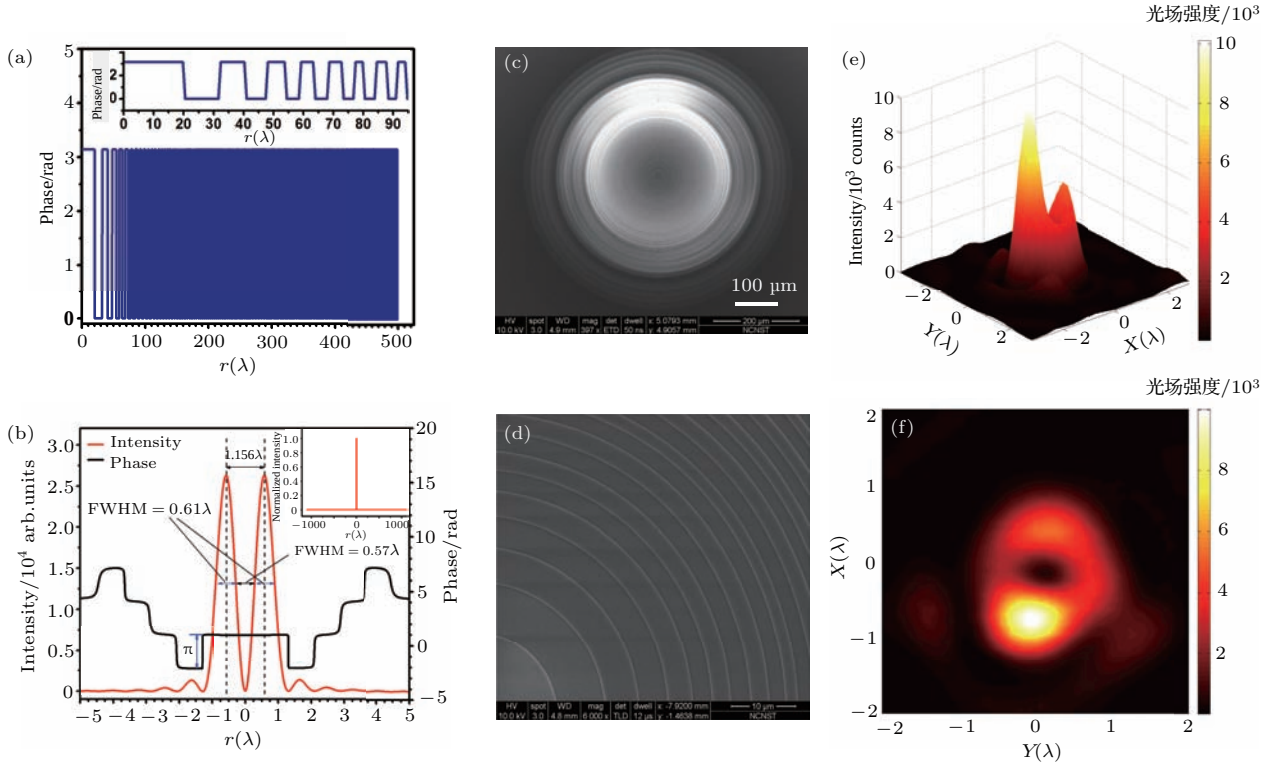


图 7 角向偏振光聚焦器件及超振荡空心光场产生[69] (a) 角向偏振光聚焦器件的相位沿径向分布理论设计结果; (b) 角向偏振光超振荡聚焦光场的强度 (红) 与相位 (黑) 沿径向分布理论设计结果; (c), (d) 角向偏振光聚焦器件的电子显微镜照片; (e), (f) 采用纳米探针获得的角向偏振二维聚焦光场强度分布

Fig. 7. The focusing device for azimuthally polarized wave and the generation of super-oscillatory hollow optical field[69]: (a) The phase distribution of the focusing device for azimuthally polarized wave along the radial direction; (b) the optical intensity (red) and phase (black) distribution of the azimuthally polarized super-oscillation hollow spot; (c), (d) the SEM picture of the focusing device; (e), (f) The 2-D focusing optical field intensity obtained with a nano-tip.

2015年, 以色列理工学院 David 等[118] 报道了一种基于金属-氧化物-硅平面结构的聚焦器件, 采用波长为671 nm的圆偏振光, 通过狭缝激发波长为184 nm的短波长波导模式, 并利用阿基米德曲线光栅, 在器件表面近场区域形成超分辨聚焦光场, 实现了半高全宽约67 nm的焦斑; 并通过激发两种短波长 (200和282 nm) 波导模式, 利用两者的相干叠加, 在器件表面近场区域形成了半高全宽约35 nm的光场结构 (非焦斑). 尽管聚焦光场中出现了类似于光学超振荡现象中的相位反相跳变现象, 然而其聚焦光场的二维傅里叶空间频谱分布范围已经远超出了波导模式所对应传播波的空间截止频率. 因此, 该超分辨光场主要还是光波导表面的倏逝光场, 而非严格意义上的超振荡聚焦光场.

6.3 特殊超振荡光场及器件

2008年, 新加坡数据存储研究所 Wang 等[119] 提出了一种超振荡纵向偏振光场的产生方法. 采用高数值孔径透镜增强聚焦光场中的纵向偏振分量, 并对由5个同心圆环构成的二值相位偏振滤波器进行优化设计, 在聚焦光场中进一步滤除径向偏振分量, 并实现强度沿轴向均匀分布的纵向偏振聚焦光场. 理论仿真表明, 该聚焦光斑横向半高全宽为0.43λ, 轴向长度为4λ. 2013年, 新加坡国立大学等单位[120] 基于矢量索末菲-瑞利衍射积分公式和粒子群算法, 对波长为632.8 nm的径向偏振入射光, 理论设计了一种二值振幅同心环结构的超振荡透镜, 以产生纵向偏振聚焦光场, 焦斑半高宽为0.39λ, 并较好地抑制了旁瓣, 其旁瓣比约为25%. 2013年, Zheludev 研究团队[121] 在二值振幅型同心环超振荡点聚焦器件中心位置增加金属膜挡光圆盘, 从而在聚焦区域形成阴影区, 降低了焦平面旁瓣强度, 并利用泊松亮斑效应实现长焦深聚焦. 实验表明, 对波长为640 nm的线偏振光, 该器件在光轴上4—10 μm范围内均能实现聚焦, 焦斑半高全宽小于0.42λ, 焦深达到10λ. 与前述的纵向偏振聚

焦光场不同, 该聚焦光场主要为焦平面内的线偏振分量. 2014年, 新加坡南洋理工大学与英国南安普顿大学[122], 共同报道了一种长焦深超分辨聚焦透镜, 采用二值粒子群算法和瑞利-索末菲矢量衍射积分公式, 利用超高斯函数描述光针的纵向分布, 并将其作为聚焦光场目标函数对器件进行最优化设计. 实验表明, 对波长为405 nm的圆偏振光, 该器件焦距为7 μm, 焦深为15λ, 焦斑半高全宽小于0.45λ. 罗先刚团队[123]报道了一种基于表面等离激元散射的长焦深超分辨聚焦透镜, 该透镜由一个环形金属狭缝和多个同心环金属光栅构成, 由垂直入射的径向偏振光通过金属狭缝激发表面等离激元, 由于同心环金属光栅的散射和相位调制作用, 散射光在远场相干叠加形成聚焦光斑. 通过改变光栅刻槽深度可以实现对焦斑尺寸、焦深和焦距的控制, 焦深可达2.7λ, 对应的焦斑半高全宽约为0.44λ. 文献[124]报道了一种超长超振荡光针的产生方法及其数值仿真结果. 采用顶角为90°的锥反射镜, 对径向偏振光进行聚焦. 利用45°的内锥面反射, 将径向偏振完全转化成为轴向偏振光束, 同时最大限度地利用了波矢量在焦平面内的分量, 在锥反射镜光轴上产生了半高全宽为0.36λ、长度为50000λ的超振荡轴向偏振光针. 2015年, 新加坡国立大学和中国科学院光电技术研究所[125]共同报道了一种基于二值相位调控的长焦深聚焦透镜, 对波长为633 nm、轨道角动量为1的角向偏振光进行聚焦. 为了产生超长焦深, 该透镜采用了中心金属膜挡光圆盘. 实验表明: 该透镜焦距为240λ, 焦深约为12λ, 焦斑半高全宽为0.42λ— 0.49λ. 采用带轨道角动量的角向偏振光聚焦的最大优点在于可以避免介质界面对光传播的影响. 2016年, 西安交通大学刘涛等[126]针对线偏振光和圆偏振光, 对基于二值振幅调控的同心金属环平面器件进行优化设计, 以产生具有横向偏振的超衍射聚焦光针. 仿真结果表明: 光针长度为12.4λ, 其横向半高全宽约为0.31λ—0.67λ. 同年, 重庆大学研究团队[70]报道了一种基于二值相位同心环的超振荡聚焦透镜, 图8给出了该器件的理论设计结果与实验测试结果. 对 632.8 nm 的径向偏振光实现了超振荡聚焦,

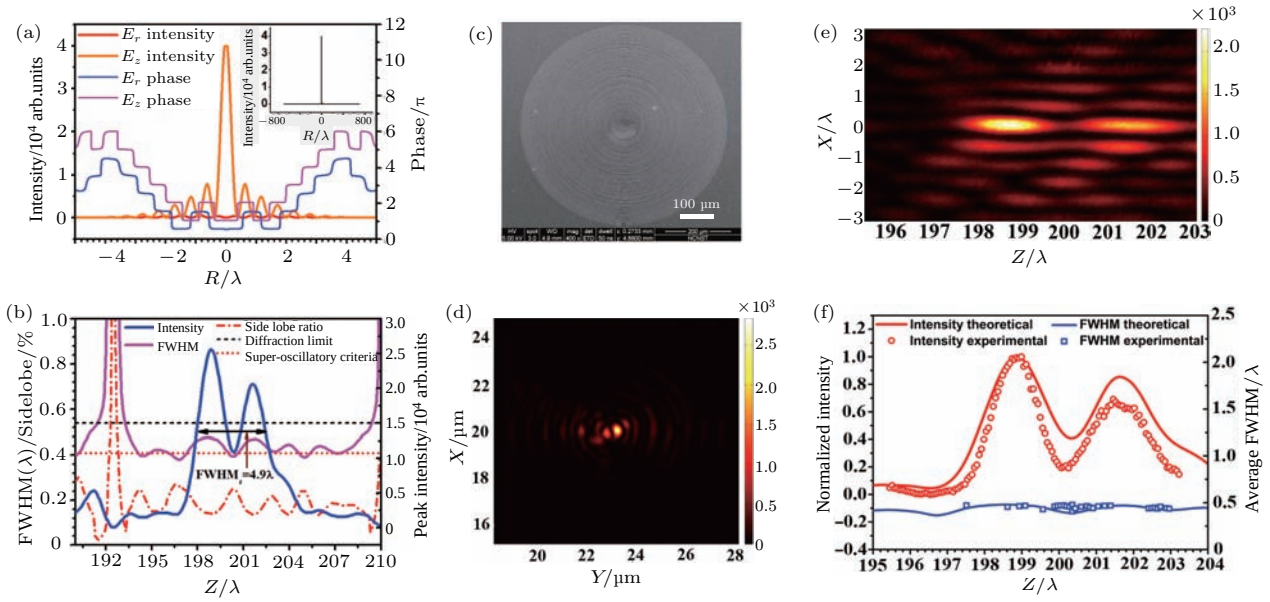


图8 径向偏振光聚焦器件及纵向聚焦光场的产生[70] (a) 焦平面光场的径向分量的强度(红)、相位(蓝)和纵向分量的强度(黄)、相位(紫)沿径向分布的理论设计结果; (b) 聚焦光场的峰值强度(蓝)、横向半高全宽(紫)和旁瓣比(红)沿轴向分布的理论设计结果, 其中黑色虚线和黄色虚线分别表示衍射极限($0.5\lambda/NA$)和超振荡判据($0.38\lambda/NA$); (c) 径向偏振光聚焦器件的扫描镜照片; (d), (e) 采用纳米探针获得的聚焦光场焦平面和传播平面的二维光场强度分布; (f) 聚焦光场峰值强度(红)、焦斑横向半高全宽(蓝)的理论仿真结果(实线)与实验结果(空心)的比较

Fig. 8. The focusing device for radially polarized wave and the generation of longitudinally polarized focusing optical field[70]: (a) The theoretically designed optical intensity and phase distribution of the radially polarized component and longditudinally polarized component on the focal plane; (b) the theoretically designed peak optical intensity, transverse FWHM and sidelobe ratio along the optical axis; (c) the SEM picture of the device; (d), (e) the 2-D focusing optical field intensity on the focal plane and the propagation plane obtained with the nano-tip; (f) the comparison of peak optical intensity (red) and transverse FWHM (blue) between the theoretical (solid line) and experimental (open markers) results.

焦距为200λ. 在实验上获得了纵向偏振超振荡聚焦光场, 焦斑横向半高全宽为0.456λ, 焦深达到5λ. 2017年, 哈尔滨工业大学谭久彬研究团队[127]对轨道角动量为1的角向偏振光束采用二值相位板和高数值孔径物镜实现超分辨聚焦, 理论仿真表明: 实现了轴向长度为6λ 的横向偏振光针, 其横向半高全宽为0.40λ—0.48λ. 同年, 重庆大学研究团队设计了一种角向偏振超振荡空心光针产生器件(Planar Bianry-phase Lens for Super-oscillatory Optical Hollow Needles，Scientific Reports, 已录用). 针对角向偏振光, 基于粒子群算法和矢量角谱衍射公式, 在设计中要求沿光轴300λ—310λ范围内的聚焦空心环半高宽小于0.4λ. 通过该器件实验产生的空心光针长度大于10λ, 空心光针内径半高全宽为0.34λ—0.52λ (0.62—0.94倍衍射极限). 仿真表明该空心光针在空气-水界面具有优异的穿透性, 而且在水中其长度几乎增加了一倍. 在超长超振荡光针的设计中, 通过空间频谱压缩, 可以实现长度达80λ以上的超振荡空心光针. 类似地, 该空心光针在水中的长度可以达到160λ 以上. 这种超长超振荡空心光针有利于提高受激辐射淬灭显微技术(STED)横向分辨率和探测深度[128].

在非衍射超振荡光束的研究方面, 2011年, 以色列理工学院Makris和Psaltis[129]从理论上研究了具有亚波长结构的非衍射光束的传播特性. 2013年, 以色列理工学院Greenfield等[55]利用空间光调制器在实验上演示了具有亚波长结构的非衍射超振荡光场, 其非衍射传播距离达到了250瑞利长度. 2017年, 重庆大学研究团队[130]实验报道了一种非衍射的超衍射光束产生方法. 采用相位型空间光调制器, 实现了一种焦距为1 m、数值孔径为0.005的超振荡聚焦反射镜. 实验结果如图9所示, 对波长为632.8 nm的线偏振光进行聚焦, 所形成的焦斑横向半高全宽小于62 μm(小于衍射极限$0.5\lambda/NA$)、轴向长度大于43.3 mm, 焦斑的长宽比接近700. 与点聚焦光束相比, 该光束具有较窄的径向空间频率分布. 然而, 其光场相位空间分布具有明显的超振荡特征: 在主瓣零点位置出现π相位跳变, 且在该位置光场局域空间频率大于该器件数值孔径所对应的空间截止频率. 通过增大数值孔径有望进一步缩小该非衍射光束的横向尺寸. 同年, Eliezer和Bahabad[59]采用Lee[131]的方法将基于艾里函数构建的二维超振荡函数频谱转化为纯相位空间分布, 通过相位型空间光调制器实现二维超振荡光场频谱, 并通过二维傅里叶变换透镜实现二维超振荡光场. 由于采用艾里光束构建, 在传播中存在障碍物时, 该超振荡光场可以通过来自于邻近光场的能流实现自我恢复.

从已有报道的超振荡光场和超振荡聚焦器件可以看出, 其主要是实现了二维平面内的空间超分辨, 而空间分辨率多在λ/3左右. 尽管大多数报道并没有提及效率问题, 然而效率较低是目前超振荡器件面临的一个不可回避的问题. 如何进一步实现三维深亚波长聚焦、提高器件的效率, 将是今后超振荡器件的研究重点和难点. 对于超振荡光学器件的制备, 在可见光及近红外光波段, 由于超振荡器件基本结构的特征尺寸较小, 通常采用电子束曝光、聚焦离子束刻蚀等技术进行器件的制作. 为降低加工精度要求, 可在器件设计时将基本结构特征尺寸提高到微米量级, 以便采用激光图形发生器进行加工. 然而, 这种以增大特征尺寸降低加工难度的方式, 会在很大程度上降低器件的性能, 特别是器件的聚焦效率.

7 超振荡光场表征技术

超振荡光场的测试方法主要包括接触式测试和非接触式测试两种. 常用的接触式测试方法主要有纳米探针扫描法和刀口法, 而非接触式测试方法主要采用光学显微法. 以下我们将对常用的超振荡光场测试方法进行介绍与分析.

7.1 基于纳米探针扫描的超振荡光场表征技术

采用纳米光纤探针对超振荡光场进行逐点扫描, 可获得超振荡光场强度的空间分布, 其空间分辨率主要取决于探针尺寸, 目前报道的最小分辨率可达30 nm[51]. 2007年, Zheludev研究团队[32]利用近场光学扫描显微镜探针, 对纳米孔阵列的衍射光场(波长为660 nm)进行扫描, 首次从实验上观测到了半高全宽为235 nm的超振荡光斑. 2011年, 该研究团队[51]采用直径为30 nm的纳米探针, 获得了半高全宽为222 nm (0.45倍衍射极限)的光强分布. 然而, 带孔纳米探针具有较强的偏振选择性. 相对于与探针端面垂直的电场偏振分量, 探针对与其端面平行的电场分量具有更高的耦合效率[132].

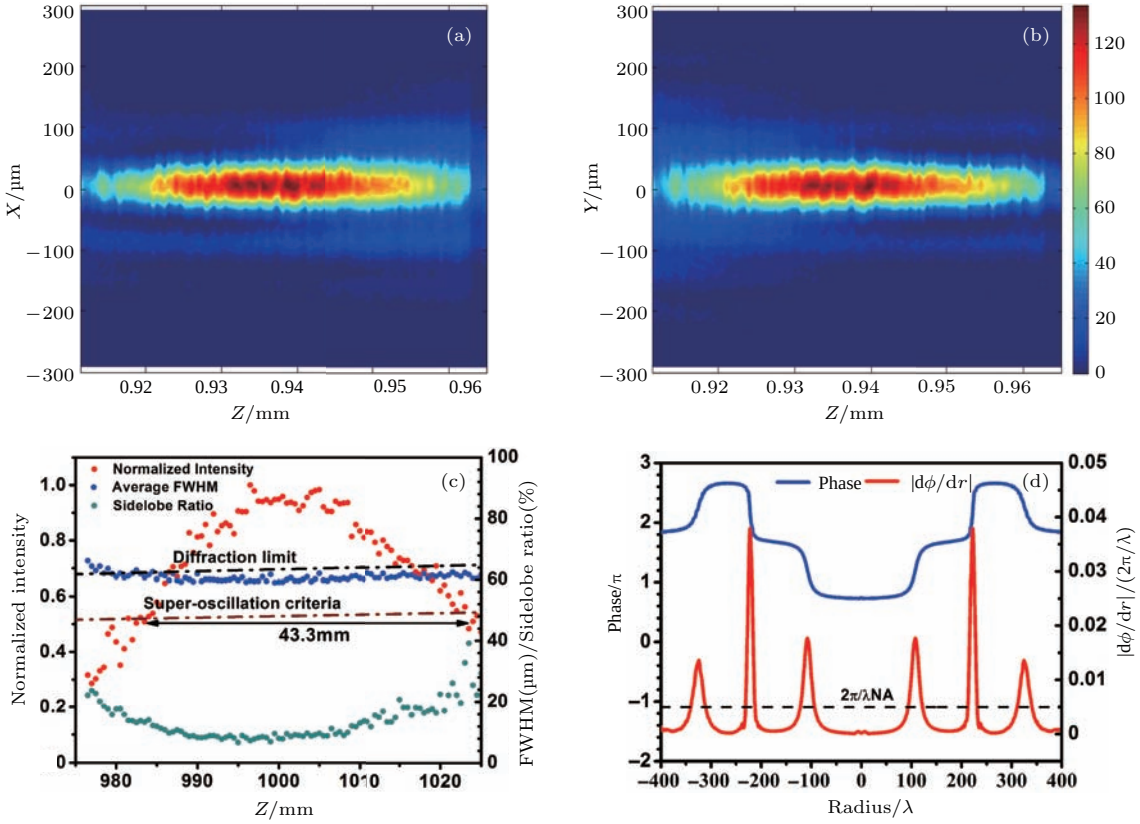


图 9 非衍射 -超衍射光束的产生 [130] (a) XZ 传播平面内的光场强度分布实验结果; (b) YZ 传播平面内的光场强度分布实验结果; (c) 聚焦光场的峰值强度 (红)、横向半高全宽 (蓝) 和旁瓣比 (绿) 的轴向分布, 其中黑色虚线和褐色虚线分别表示衍射极限 ($0.5\lambda/NA$) 和超振荡判据 ($0.38\lambda/NA$); (d) 在焦距 1000 mm 处光场的相位分布 (蓝) 和局域空间频率分布 (红), 其中黑色虚线代表数值孔径 $NA = 0.005$ 所对应的最高空间频率

Fig. 9. The generation of non-diffracting sub-diffraction beam [130]: (a) The optical intensity distribution on the XZ propagation plane; (b) the optical intensity distribution on the YZ propagation plane; (c) the peak optical intensity (red), transverse FWHM (blue) and sidelobe ratio (green) along the optical axis, where the black dashed line and the brawn dashed line represent the diffraction limit and the super-oscillation criteria respectively; (d) the phase distribution (blue) and the local spatial frequency (red) distribution along the radial coordinate on the focal plane at $Z = 1000$ mm, where the black dashed line denotes the highest spatial frequency corresponding to a numerical aperture of 0.005.

因此, 在纵向偏振光场测试中, 可采用弯曲探针进行扫描 [70], 这是纳米探针扫描法的优势之一. 2016 年, 重庆大学研究团队采用弯曲纳米探针实现了线偏振 [100,101]、圆偏振 [67]、角向偏振 [69]、纵向偏振 [70] 超衍射光场的测量. 尽管采用弯曲探针可以在一定程度上提高纵向光场的检测灵敏度, 然而其代价是削弱了对水平偏振分量的检测灵敏度. 采用无孔径探针可以实现电场三个分量的测量 [133], 但其散射光场耦合难度较大. 此外, 通过在纳米探针顶部固定荧光单分子, 利用荧光单分子偶极矩可以实现偏振选择性检测 [134]. 总体而言, 基于纳米探针扫描的超振荡光场表征技术的缺点是速度较慢, 并且该方法对空间扫描分辨率、重复定位精度、探测器灵敏度都有很高的要求.

7.2 基于刀口法的超振荡光场表征技术

刀口法是一种常用的光场分布测试方法. 采用边缘平整的刀口, 对被检测光场进行局部阻挡, 检测未被阻挡的光场能量, 最后根据扫描结果, 采用相应的重构算法求解被检测光场的强度分布. 在超分辨光场分布的测量中, 为了减小由于刀口边缘衍射效应引起的误差, 通常将刀口直接制作在光电探测器表面, 这样不但可以实现对传播光场的测量, 而且还可以实现对非传播光场 (如纵向偏振光场) 的测量 [135]. 2010 年, 日本京都大学 Kitamura 等 [136] 将刀口直接制作在探测器探测面上方, 对波长为 980 nm 的纵向偏振焦斑进行测量, 并根据多

个方向的扫描结果, 采用Radon逆变换[137]进行二维光强分布重建. 在刀口粗糙度为30 nm的条件下, 获得了半高全宽为0.4λ的焦斑光强分布. 为了避免使用复杂的Radon逆变换, 2013年, 中山大学Xie小组[138]采用双刀口法进行超分辨光斑的测量, 将直角硅片作为刀口安装在探测器上方, 刀口粗糙度小于10 nm. 通过二维扫描和光场重构, 在油中获得了波长为532 nm的纵向偏振焦斑光强分布, 焦斑半高全宽为0.27λ. 该方法的分辨率主要取决于刀口的厚度和粗糙度引起的边缘散射以及空间扫描分辨率等因素. 与基于纳米探针扫描的检测方法类似, 刀口法扫描速度较慢, 而且对空间扫描分辨率、重复定位精度和刀口粗糙度有较高要求.

7.3 基于宽视场大数值孔径显微镜的超振荡光场表征技术

探针法和刀口法均需要将检测单元直接与被检测光场接触, 因此容易对被检测场造成影响, 这是接触式测量难以克服的缺点. 超振荡光场是由传播波相干叠加而成, 其超振荡光场结构信息可以被传播到远场[41], 因此可通过宽视场、大数值孔径显微镜对超振荡亚波长光场结构进行放大和测量[139]. 其最大的优点是探测装置无需与被检测光场直接接触, 因此测量本身不会对被检测的超振荡光场产生影响. 2012年, Zheludev研究团队[18]采用该方法在油中对波长为640 nm、半高全宽为185 nm (0.77倍衍射极限)的超振荡聚焦光场进行了测量. 2014年, 该研究团队采用此方法[122]获得了波长为405 nm圆偏振光的长焦深超衍射光场强度分布, 焦斑半高全宽约为182 nm. 2015年, 新加坡国立大学和中国科学院光电所研究团队[125]采用该方法获取了波长为633 nm的长焦深超衍射光场强度分布, 最小焦斑半高全宽为265 nm. 2017年, 重庆大学研究团队采用该方法对波长为632.8 nm的角向偏振超振荡空心光针进行了实验测试, 获得的空心光针内径最小值为215 nm (0.62倍衍射极限). 采用此方法对超振荡光场进行测量, 其能分辨的最小超振荡场尺寸受限于显微镜数值孔径、放大倍数和所使用探测器的空间分辨率. 在数值孔径为1的极端理想条件下, 显微镜放大倍数和探测器像素尺寸将决定所能测量的最小焦斑尺寸, 而不受衍射极限制约. 然而, 由于传统显微成像系统的偏振滤波特性[132,139], 尤其在采用大数值孔径、高放大倍数显微镜的情况下, 难以对纵向偏振光场进行成像, 因此无法实现对纵向光场的测量.

目前的文献报道中实验结果与理论设计结果上的差异, 一方面是源于加工误差和实验光路误差, 另一方面则是由光场测试方法本身所导致. 由于超振荡光场中的超分辨精细结构是精确相干所形成, 接触式测量必然会对被检测光场产生一定影响. 特别是在深亚波长超振荡光场的测量中, 接触式测量对超振荡光场分布的影响将无法忽略. 而且, 目前常用的接触式和非接触式测量方法, 普遍存在偏振选择性, 难以满足复杂矢量光场的测试要求.

8 光学超振荡器件的应用

与传统的成像透镜不同, 超振荡透镜是利用相干光场的精确相干叠加形成超分辨焦斑. 然而, 理论研究和实验研究均表明[140], 类似于传统透镜, 特别是在旁瓣较小的情况下, 超振荡聚焦透镜可以直接作为成像透镜使用, 而且其点扩散函数半高全宽小于衍射极限. 现有超振荡透镜自身的一些特性(如旁瓣大、效率较低等)曾一度被认为是其在成像应用中的最大障碍. 然而, 近年来的研究表明[56,60], 在一维和二维超振荡光学现象中, 超振荡区域和高幅值边带区域可以被分得足够开, 以满足超分辨光学应用的需求; 同时, 对于效率较低的问题, 可以通过高灵敏度探测方法得到较好的解决. 已报道的单光子超振荡实验表明[102]: 光学超振荡可以被应用于弱光、甚至是单光子计数条件下的远场超分辨成像. 因此, 超振荡光场和超振荡光学器件可能在非标记远场超分辨成像、超高密度数据存储等应用中具有极大的潜力和良好的前景.

8.1 非标记远场超分辨光学显微

由于微纳结构对于超振荡聚焦光场分布具有较大的影响, 同时, 超振荡光场可以被传统显微镜放大成像, 因此, 可以将超振荡聚焦光场作为显微照明光源, 通过检测超振荡聚焦光场的变化, 实现非标记的远场超分辨光学显微. 更为重要的是, 这种超分辨显微技术并不受超振荡焦斑旁瓣的影响, 而且聚焦效率也不影响其作为照明光源使用. 2013年, Zheludev研究团队[18]在可见光640 nm单波长实验演示了基于超振荡聚焦光场的超分辨显

微技术, 尽管该超振荡焦斑主瓣强度小于紧邻的旁瓣强度, 但仍然在实验上实现了优于$\lambda/6$的横向空间分辨率, 而且理论上这种技术不存在分辨率极限. 2016年, 新加坡国立大学洪明辉研究团队[141]在可见光405 nm单波长利用超振荡亚波长光针作为照明光源(光针横向尺寸约为0.41λ, 轴向长度12λ, 旁瓣小于主瓣的20%), 在实验上实现了0.16λ的横向空间分辨率. 尽管采用超振荡光针有利于二维成像, 但会极大地降低成像的轴向分辨率, 目前尚无法实现三维超分辨成像. 2016年, 日本东北大学Matsunaga等[142]将超振荡光学聚焦应用于共焦激光扫描显微系统中, 将系统点扩散函数半高全宽降低了近一半, 有效地提升了系统的空间分辨率.

8.2 非标记远场超分辨光学成像

2012年, 多伦多大学Piché等[143]基于本征模相干叠加, 采用$4f$光学系统和空间光调制器, 实现了远场超分辨成像, 将分辨率在瑞利极限的基础上提高了45%. 2013年, 多伦多大学Amineh和Eleftheriades[20]基于超向天线思想, 采用车比雪夫多项式, 设计了一种超振荡滤波器, 利用该滤波器可以实现二维和三维图像超分辨重建. 2015年, 罗先刚研究团队[144]采用二值相位板对光学望远系统点扩散函数半高全宽进行压缩, 实现了具有超振荡特性的点扩散函数. 并将其应用于非相干望远镜系统, 实现了实时超分辨成像, 成像分辨率为0.55倍瑞利极限. 尽管其成像视场较小, 然而在实际应用中, 可以通过图像拼接的方式, 实现较大视场的非标记远场超分辨成像. 值得一提的是, 该技术把超振荡概念拓展到了非相干成像系统, 实现了非相干的非标记远场超分辨成像.

8.3 超高密度数据存储

2014年, 南洋理工大学和南安普顿大学[145]共同提出了一种基于超振荡透镜的热辅助磁性写入技术. 为了降低旁瓣, 同时为了提高透镜对固体浸没薄膜厚度的冗余度, 该超振荡聚焦透镜采用了超振荡光针设计. 该透镜等效数值孔径达到了4.17, 对波长为473 nm圆偏振光聚焦, 透镜焦距为8 μm, 焦斑横向尺寸小于50 nm, 焦深为5λ. 由于焦深较大, 其难以实现三维的高密度数据存储.

如前所述, 目前报道的超振荡光场、尤其是单色超振荡光场仅能在二维平面内实现光学超分辨[60]. 如何实现三维的超振荡光场、构建三维超振荡点扩散函数, 是实现三维超分辨光学显微、成像以及光存储的关键.

9 结 论

光学超振荡为从器件层面突破衍射极限瓶颈、研制新型的远场超分辨成像系统提供了一种崭新的途径. 尽管光学超振荡现象和超振荡光学器件等相关研究得到了快速的发展, 然而, 在光学超振荡相关理论、超振荡光学器件设计与制作、超振荡光场测试技术以及相关应用等方面, 尚面临很多亟待解决的重大科学技术问题.

在超振荡光场的构建方法和超振荡器件的设计方法等方面, 目前仍然依赖优化算法, 而且缺乏系统的设计理论, 特别是如何解决设计中超振荡光场结构尺寸、旁瓣、视场以及效率等方面之间的矛盾以及如何实现三维超振荡光场等, 还有待深入研究; 在超振荡光学器件的实现方面, 有赖于对光场振幅、相位、偏振、轨道角动量等参数的精确调控, 重点需要解决在亚波长尺度下高效的光场多参量(振幅、相位、偏振等)同时调控; 在超振荡光学器件的制备方面, 急需突破跨尺度、大面积、多层亚波长结构阵列的高精度加工工艺等; 在超振荡光场测试表征方面, 如何实现深亚波长矢量光场电场分量、相位、轨道角动量的精确测量, 以及如何完善对测试结果诠释等, 都亟待开展深入研究.

尽管面临诸多挑战, 超振荡光学器件在远场超分辨显微、成像和超高密度数据存储等方面, 已初步显示出良好的应用前景. 随着光学超振荡、超振荡光学器件及系统的相关理论和技术研究的不断深入, 有望在光学器件层面突破衍射极限制约, 推动超分辨显微、超分辨成像、光学纳米操控、纳米光学加工、超高密度数据存储、激光聚焦等技术进一步发展.

参考文献

[1] Abbe E 1873 *Archiv für Mikroskopische Anatomie* **9** 413
[2] Gan F X, Wang Y 2011 *Opt.* **31** 0900104 (in Chinese) [干福熹, 王阳 2011 光学学报 **31** 0900104]
[3] Yoshiki K, Ryosuke K, Hashimoto M Hashimoto N, Araki T 2007 *Opt. Lett.* **32** 1680

[4] Terakado G, Watanabe K, Kano H 2009 *Appl. Opt.* **48** 1115

[5] Bergmans J W M 1996 *Digital Baseband Transmission and Recording* (Berlin: Springer Science & Business Media) pp74–86

[6] Gan Z S, Cao Y Y, Evans R A, Gu M 2013 *Nat. Commun.* **4** 2061

[7] Lubeck E, Cai L 2012 *Nat. Methods* **9** 743

[8] Nägerl U V, Sibarita J B 2016 *Neurophotonics* **3** 041801

[9] Pohl D W, Denk W, Lanz M 1984 *Appl. Phys. Lett.* **44** 651

[10] Pertsinidis A, Zhang Y X, Chu S 2010 *Nature* **466** 647

[11] Betzig E, Patterson G H, Sougrat R, Lindwasser O W, Olenych S, Bonifacino J S, Davidson M W, Lippincott-Schwartz J, Hess H F 2006 *Science* **313** 1642

[12] Rust M J, Bates M, Zhuang X W 2006 *Nat. Methods* **3** 793

[13] Wildanger D, Medda R, Kastrup L, Hell S W 2009 *J. Microsc.* **236** 35

[14] Gustafsson M G L, Shao L, Carlton P M, Wang C J R, Golubovskaya I N, Cande W Z, Agard D A, Sedat J W 2008 *Biophys. J.* **94** 4957

[15] Rho J, Ye Z L, Xiong Y, Yin X B, Liu Z W, Choi H, Bartal G, Zhang X 2010 *Nat. Commun.* **1** 143

[16] Iwanaga M 2014 *Appl. Phys. Lett.* **105** 053112

[17] Sriturayanich W, Pan L, Wang Y, Sun C, Bogy D B, Zhang X 2008 *Nat. Nanotechnol.* **3** 733

[18] Rogers E T F, Lindberg J, Roy T, Savo S, Chad J E, Dennisand M R, Zheludev N I 2012 *Nat. Mater.* **11** 432

[19] Wong A M H, Eleftheriades G V 2013 *Sci. Rep.* **3** 1715

[20] Amineh R K, Eleftheriades G V 2013 *Opt. Express* **21** 8142

[21] Huang F M, Chen Y F, Javier Garcia de Abajo F, Zheludev N I 2007 *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* **9** S285

[22] Rogers E T F, Zheludev N I 2013 *J. Opt.* **15** 094008

[23] Torraldo di Francia G 1952 *Nuovo Cimento Suppl.* **9** 426

[24] Frieden B R 1969 *Opt. Acta* **16** 795

[25] Bucklew J A, Saleh B E A 1985 *J. Opt. Soc. Am. A* **2** 1233

[26] Zheludev N I 2008 *Nat. Mater.* **7** 420

[27] Aharonov Y, Albert D Z, Vaidman L 1988 *Phys. Rev. Lett.* **60** 1351

[28] Aharonov Y, Anandan J, Popescu S, Vaidman L 1990 *Phys. Rev. Lett.* **64** 2965

[29] Berry M V, Popescu S 2006 *J. Phys. A* **39** 6965

[30] Makris K G, Papazoglou D G, Tzortzakis S 2017 *J. Opt.* **19** 014003

[31] Ferreira P J S G, Kempf A 2006 *IEEE Trans. Signal Process.* **54** 3732

[32] Huang F M, Zheludev N I, Chen Y F, Javier Garcia de Abajo F 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 091119

[33] Chojnacki L, Kempf A 2016 *J. Phys. A: Math. Theor.* **49** 505203

[34] Wen Z Q, He Y H, Li Y Y, Chen L, Chen G 2014 *Opt. Express* **22** 22163

[35] Dennis M R, Hamilton A C, Courtial J 2008 *Opt. Lett.* **33** 2976

[36] Berry M V, Dennis M R 2008 *J. Phys. A: Math. Theor.* **42** 022003

[37] Huang K, Ye H P, Teng J H, Yeo S P, Luk'yanchuk B, Qiu C W 2014 *Laser Photon. Rev.* **8** 152

[38] Wong A M H, Eleftheriades G V 2011 *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* **59** 2173

[39] Eliezer Y, Hareli L, Lobachinsky L, Froim S, Bahabad A 2016 *CLEO: QELS_Fundamental Science* San Jose, California, United States, June 5–10, 2016 FF1A.1

[40] Eliezer Y, Bahabad A 2014 *Opt. Express* **22** 31212

[41] Cox I J, Sheppard C J R, Wilson T 1982 *J. Opt. Soc. Am.* **72** 1287

[42] Wei N, Gong M L, Cui, R Z 2003 *Jpn. J. Appl. Phys.* **42** 104

[43] Sales T R M, Morris G M 1997 *Opt. Lett.* **22** 582

[44] Liu H T, Yan Y B, Jin G F 2005 *J. Opt. Soc. Am. A* **22** 828

[45] Richards B, Wolf E 1959 *Proc. R. Soc. London Ser. A* **253** 358

[46] Jabbour T G, Kuebler S M 2008 *Opt. Lett.* **33** 1533

[47] Huang F M, Zheludev N I 2009 *Nano Lett.* **9** 1249

[48] Wang X, Fu J, Liu X, Tong L M 2009 *J. Opt. Soc. Am. A* **26** 1827

[49] Wong A M H, Eleftheriades G V 2010 *IEEE Antennas Wirel. Propag. Lett.* **9** 315

[50] Mazilu M, Baumgartl J, Kosmeier S, Dholakia K 2011 *Opt. Express* **19** 933

[51] Baumgartl J, Kosmeier S, Mazilu M, Rogers E T F, Zheludev N I, Dholakia K 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 181109

[52] Jin N B, Rahmat-Samii Y 2007 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **55** 556

[53] Chen Z H, Zhang Y, Xiao M 2015 *J. Opt. Soc. Am. B* **32** 1731

[54] Lin J, Zhao H Y, Ma Y, Tan J B, Jin P 2016 *Opt. Express* **24** 10748

[55] Greenfield E, Schley R, Hurwitz I, Nemirovsky J, Makris K G, Segev M 2013 *Opt. Express* **21** 13425

[56] Wong A M H, Eleftheriades G V 2015 *Sci. Rep.* **5** 8449

[57] Chremmos I, Fikioris G 2015 *Opt. Commun.* **356** 482

[58] Yu Y Z, Zhan Q W 2015 *Opt. Express* **23** 7527

[59] Eliezer Y, Bahabad A 2016 *ACS Photon.* **3** 1053

[60] Wong A M H, Eleftheriades G V 2017 *Phys. Rev. B* **95** 075148

[61] Diao J S, Yuan W Z, Yu Y T, Zhu Y C, Wu Y 2016 *Opt. Express* **24** 1924

[62] Deng D M, Guo Q 2007 *Opt. Lett.* **32** 2711

[63] Carter W H 1972 *J. Opt. Soc. Am.* **62** 1195

[64] Lia J, Zhu S, Lu B 2009 *Opt. Commun.* **282** 4475

[65] Richards B, Wolf E 1959 *Proc. R. Soc. Lond. A: Math. Phys. Sci.* **253** 358

[66] Liu T, Liu Q, Yang S M, Jiang Z D, Wang T, Zhang G F 2017 *Appl. Opt.* **56** 3725

[67] Chen G, Li Y Y, Yu A P, Wen Z Q, Dai L R, Chen L, Zhang Z H, Jiang S L, Zhang K, Wang X Y, Lin F 2016 *Sci. Rep.* **6** 29068

[68] Liu T, Tan J B, Liu J, Wang H T 2013 *Opt. Express* **21** 090

[69] Chen G, Wu Z X, Yu A P, Zhang Z H, Wen Z Q, Zhang K, Dai L R, Jiang S L, Li Y Y, Chen L, Wang C T, Luo X G 2016 *Sci. Rep.* **6** 37776

[70] Yu A P, Chen G, Zhang Z H, Wen Z Q, Dai L R, Zhang K, Jiang S L, Wu Z X, Li Y Y, Wang C T, Luo X G 2016 *Sci. Rep.* **6** 38859

[71] Taflove A, Hagness S 2005 *Computational Electrodynamics: The Finite Difference Time-Domain Method (3rd Revised edition)*. (Boston: Artech House Publishers) pp2–3

[72] Ma X K 2016 *The Electromagnetic Field Finite Element Combined with Analytical Method* (Vol. 1) (Beijing: Science Press) pp11–15 (in Chinese) [马西奎 2016 电磁场有限元与解析结合解法 (第 1 版)(北京: 科学出版社) 第 11—15 页]

[73] Magni V, Cerullo G, Silvestri S D 1992 *Opt. Soc. Am. A* **9** 2031

[74] Knockaert L 2000 *IEEE Trans. Signal Process.* **48** 1695

[75] Zhang D W, Yuan X C, Ngo N Q, Shum P 2002 *Opt. Express* **10** 521

[76] Liu T, Wang T, Yang S M, Sun L, Jiang Z D 2015 *Opt. Express* **23** 32139

[77] Zhang L, Mei S T, Huang K, Qiu C W 2016 *Adv. Opt. Mater.* **4** 818

[78] Crozier K B, Sundaramurthy A, Kino G S, Quate C F 2003 *Appl. Phys.* **94** 4632

[79] Yu N F, Genevet P, Kats M A, Aieta F, Tetienne J P, Capasso F, Gaburro Z 2011 *Science* **334** 333

[80] Li Z Y, Yu N F 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 131108

[81] Pors A, Nielsen M G, Eriksen R L, Sergey I, Bozhevolnyi S I 2013 *Nano Lett.* **13** 829

[82] Yifat Y, Eitan M, Iluz Z, Boag A, Hanein Y, Scheuer J 2014 *Int. Soc. Opt. Photon.* **8994** 899416

[83] Arbabi A, Horie Y, Ball A J, Bagheri M, Faraon A 2015 *Nat. Commun.* **6** 7069

[84] Khorasaninejad M, Chen W T, Devlin R C, Oh J, Zhu A Y, Capasso F 2016 *Science* **352** 1190

[85] Bomzon Z, Kleiner V, Hasman E 2001 *Appl. Phys. Lett.* **79** 1587

[86] Jiang Z H, Lin L, Ma D, Yun S, Werner D H, Liu Z, Mayer T S 2014 *Sci. Rep.* **4** 7511

[87] Jiang S C, Xiong X, Hu Y S, Hu Y H, Ma G B, Peng R W, Sun C, Wang M 2014 *Phys. Rev. X* **4** 021026

[88] Wang S Y, Zhan Q W 2016 *Sci. Rep.* **6** 29626

[89] Heckenberg N R, McDuff R, Smith C P, White A G 1992 *Opt. Lett.* **17** 221

[90] Chen S M, Cai Y, Li G X, Zhang S, Cheah K W 2016 *Laser Photon. Rev.* **10** 322

[91] Li X, Pu M B, Zhao Z Y, Ma X L, Jin J J, Wang Y Q, Gao P, Luo X G 2016 *Sci. Rep.* **6** 20524

[92] Guo Y H, Pu M B, Zhao Z Y, Wang Y L, Jin J J, Gao P, Li X, Ma X L, Luo X G 2016 *ACS Photon.* **3** 2022

[93] Lin J, Genevet P, Kats M A, Antoniou N, Capasso F 2013 *Nano Lett.* **13** 4269

[94] Liu H, Yan Y, Yi D, Jin G 2003 *Appl. Opt.* **42** 1463

[95] Jabbour T G, Kuebler S M 2006 *Opt. Express* **14** 1033

[96] Wong A M H, Eleftheriades G V 2011 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **59** 4766

[97] He Y H, Wen Z Q, Chen L, Li Y Y, Ning Y Z, Chen G 2014 *IEEE Photon. Technol. Lett.* **26** 1801

[98] Wan X W, Shen B, Menon R 2014 *J. Opt. Soc. Am. A* **31** B27

[99] Maklizi M E I, Hendawy M, Swillam M A 2014 *J. Opt.* **16** 105007

[100] Chen G, Li Y Y, Wang X Y, Wen Z Q, Lin F, Dai L R, Chen L, He Y H, Liu S 2016 *IEEE Photonics Technol. Lett.* **28** 335

[101] Chen G, Zhang K, Yu A P, Wang X Y, Zhang Z H, Li Y Y, Wen Z Q, Chen L, Dai L R, Jiang S L, Lin F 2016 *Opt. Express* **24** 11002

[102] Yuan G H, Vezzoli S, Altuzarra C, Rogers E T F, Couteau C, Soci C, Zheludev N I 2016 *Light: Sci. Appl.* **5** e16127

[103] Stanley S H, Berthold K P H, Dennis M F, Michael S M 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 261107

[104] Zhang M G, Du J L, Shi H F, Yin S Y, Xia L P, Jia B H, Gu M, Du C L 2010 *Opt. Express* **18** 14664

[105] Venugopalan P, Zhang Q M, Li X P, Kuipers L, Gu M 2014 *Opt. Lett.* **39** 5744

[106] Liu Y X, Xu H, Stief F, Zhitenev N, Yu M 2011 *Opt. Express* **19** 20233

[107] Roy T, Rogers E T F, Zheludev N I 2013 *Opt. Express* **21** 7577

[108] Liu T, Shen T, Yang S M, Jiang Z D 2015 *J. Opt.* **17** 035610

[109] Tang D L, Wang C T, Zhao Z Y, Wang Y Q, Pu M B, Li X, Gao P, Luo X G 2015 *Laser Photon Rev.* **9** 713

[110] Yu A P, Cao L Y, Wu Z X, Wen Z Q, Chen G 2016 *National Conference on Opto-Mechanical-Electrical Technologies and Systems & Optoelectronic Technology* Committee of China Optical Society/ Chinese Institute of Instrumentation Branch of Optical-Mechanical-Member Conference Guilin, China, Oct. 14–17, 2016, gdjs2016-2016-1149 (in Chinese) [余安平, 曹璐瑶, 武志翔, 温中泉, 陈刚 2016 全国光机电技术及系统学术会议暨中国光学学会光电技术专委会/中国仪器仪表学会光机电分会会员代表大会中国桂林, 2016 年 10 月 14 日—17 日, gdjs2016-2016-1149]

[111] Li Y, Li X, Pu M B, Zhao Z Y, Ma X L, Wang Y Q, Luo X G 2016 *Sci. Rep.* **6** 19885

[112] Li M Y, Li W L, Li H Y, Zhu Y C, Yu Y T 2017 *Sci. Rep.* **7** 1335

[113] Wu M X, Chen R, Soh J H, Shen Y, Jiao L S, Wu J F, Chen X D, Ji R, Hong M H 2016 *Sci. Rep.* **6** 31637

[114] Dorn R, Quabis S, Leuchs G 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 233901

[115] Kozawa Y, Sato S 2007 *J. Opt. Soc. Am. A* **24** 1793

[116] Luo J, Zhao Z Y, Pu M B, Yao N, Tang D L, Gao P, Jin J J, Li X, Wang C T, Yu H L, Luo X G 2015 *Opt. Commun.* **356** 445

[117] Stafeev S S, Nalimov A G, Kotlyar M V, Gibson D, Song S, O'Faolain L, Kotlyar V V 2016 *Opt. Express* **24** 29800

[118] David A, Gjonaj B, Blau Y, Dolev S, Bartal G 2015 *Optica* **2** 1045
[119] Wang H F, Shi L P, Yanchuk B L, Sheppard C, Chong C T 2008 *Nat. Photon.* **2** 501
[120] Ye H P, Qiu C W, Huang K, Teng J H, Luk'yanchuk B, Yeo S P 2013 *Laser Phys. Lett.* **10** 065004
[121] Rogers E T F, Savo S, Lindberg J, Roy T, Dennis M R, Zheludev N I 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 031108
[122] Yuan G H, Rogers E T F, Roy T, Adamo G, Shen Z X, Zheludev N I 2014 *Sci. Rep.* **4** 6333
[123] Peng R B, Li X, Zhao Z Y, Wang C T, Hong M H, Luo X G 2014 *Plasmonics* **9** 55
[124] Chávez-Cerda S, Pu J X 2015 *J. Opt. Soc. Am. A* **32** 1209
[125] Qin F, Huang K, Wu J F, Jiao J, Luo X G, Qiu C W, Hong M H 2015 *Sci. Rep.* **5** 09977
[126] Liu T, Wang T, Yang S M, Jiang Z D 2016 *Opt. Commun.* **372** 118
[127] Guan J, Lin J, Chen C, Ma Y, Tan J B, Jin P 2017 *Opt. Commun.* doi: http://dx.doi.org/10.1016/j.optcom.2017.04.003
[128] Yu W T, Ji Z H, Dong D S, Yang X S, Xiao Y F, Gong Q H, Xi P, Shi K B 2016 *Laser Photon Rev.* **10** 147
[129] Makris K G, Psaltis D 2011 *Opt. Lett.* **36** 4335
[130] Wu J, Wu Z X, He Y H, Yu A P, Zhang Z H, Wen Z X, Chen G 2017 *Opt. Express* **25** 6274
[131] Lee W H 1979 *Appl. Opt.* **18** 3661
[132] Grosjean T, Courjon D 2003 *Phys. Rev. E* **67** 046611
[133] Adam P M, Royer P, Laddada R, Bigeon J L 1998 *Appl. Opt.* **37** 1814
[134] Novotny L, Beversluis M R, Youngworth K S, Brown T G 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 5251
[135] Dorn R, Quabis S, Leuchs G 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 233901
[136] Kitamura K, Sakai K, Noda S 2010 *Opt. Express* **18** 4518
[137] Born M, Wolf E 1999 *Principles of Optics* (Vol. 7) (New York: Cambridge University Press) pp221–223
[138] Yang L X, Xie X S, Wang S C, Zhou J Y 2013 *Opt. Lett.* **38** 1331
[139] Liu T, Yang S M, Jiang Z D 2016 *Opt. Express* **24** 16297
[140] Roy T, Rogers E T F, Yuan G H, Zheludev N I 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 231109
[141] Qin F, Huang K, Wu J F, Teng J H, Qiu C W, Hong M H 2016 *Adv. Mater.* **29** 1602721
[142] Matsunaga D, Kozawa Y, Sato S 2016 *CLEO: QELS_Fundamental Science* San Jose, California, United States, June 5–10, 2016 STh4G.8
[143] Piché K, Leach J, Johnson A S, Salvail J Z, Kolobov M I, Boyd R W 2012 *Opt. Express* **20** 26424
[144] Wang C T, Tang D L, Wang Y Q, Zhao Z Y, Wang J, Pu M B, Zhang Y D, Yan W, Gao P, Luo X G 2015 *Sci. Rep.* **5** 18485
[145] Yuan G H, Rogers E T F, Roy T, Shen Z X, Zheludev N I 2014 *Opt. Express* **22** 6428

SPECIAL ISSUE—Diffraction limit of electromagnetic waves

Optical super-oscillation and super-oscillatory optical devices*

Chen Gang† Wen Zhong-Quan Wu Zhi-Xiang

(*Key Laboratory of Optoelectronic Technology and Systems, Ministry of Education, College of Optoelectronic Engineering, Chongqing University, Chongqing 400044, China*)

(Received 29 March 2017; revised manuscript received 24 May 2017)

Abstract

The diffraction limit of traditional optical device greatly restricts the further development of optical super-resolution systems. It is a great challenge to overcome the diffraction limit at a device level, and achieve label-free far-field super-resolution imaging. Optical super-oscillation provides a new way to realize super-resolution since it allows the generation of arbitrary small structures in optical fields in the absence of evanescent waves. The researches of optical super-oscillation and super-oscillatory optical devices have grown rapidly in recent decades. Optical super-oscillation and super-oscillatory optical devices have been demonstrated theoretically and experimentally to show great potential applications in label-free far-field optical microscopy, far-field imaging and high-density data storage. In this paper, we gives a broad review of recent development in optical super-oscillation and super-oscillatory optical devices, including basic concepts, design tools and methods, testing techniques for super-oscillatory optical field, and their applications.

Keywords: super-oscillation, super-resolution, diffractive devices, sub-wavelength

PACS: 42.25.–p, 42.79.–e, 07.60.–j, 78.67.Pt **DOI:** 10.7498/aps.66.144205

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2013CBA01700), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61575031, 61177093), and the Program for New Century Excellent Talent in University, China (Grant No. NCET-13-0629).

† Corresponding author. E-mail: gchen1@cqu.edu.cn

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

平面超透镜的远场超衍射极限聚焦和成像研究进展

秦飞 洪明辉 曹耀宇 李向平

Advances in the far-field sub-diffraction limit focusing and super-resolution imaging by planar metalenses

Qin Fei Hong Ming-Hui Cao Yao-Yu Li Xiang-Ping

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 144206 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.144206
在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.144206
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I14

您可能感兴趣的其他文章
Articles you may be interested in

基于光纤光栅的冲击激励声发射响应机理与定位方法研究
Acoustic emission localization technique based on fiber Bragg grating sensing network and signal feature reconstruction
物理学报.2017, 66(7): 074210 http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.074210

基于光克尔效应的径向光束匀滑新方案
A novel radial beam smoothing scheme based on optical Kerr effect
物理学报.2016, 65(9): 094207 http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.094207

基于六角格子光子晶体波导的高效全光二极管设计
High efficiency all-optical diode based on hexagonal lattice photonic crystal waveguide
物理学报.2016, 65(6): 064207 http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.064207

外腔镜非线性运动对激光回馈应力测量系统精度的影响及修正
Correction of error induced by nonlinear movement of feedback mirror in laser feedback stress measurment system
物理学报.2015, 64(8): 084208 http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.084208

用于直接驱动的快速变焦新方案
A novel fast zooming scheme for direct-driven laser fusion
物理学报.2015, 64(5): 054209 http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.054209

专题: 电磁波衍射极限

平面超透镜的远场超衍射极限聚焦和成像研究进展*

秦飞[1)2)] 洪明辉[2)†] 曹耀宇[1)] 李向平[1)‡]

1) (暨南大学光子技术研究院, 广州 510632)

2) (新加坡国立大学电子与计算工程系, 新加坡 117583)

(2017 年 5 月 9 日收到; 2017 年 5 月 31 日收到修改稿)

突破瑞利衍射极限, 实现纯光学的远场超衍射极限聚焦和成像在科学和工程的各个领域都有重要意义. 现有光学超分辨技术都存在一些固有的限制因素, 如工作距离短、适用领域窄、不利于集成等问题. 平面超透镜由于理论上的创新、设计灵活、效率高、方便集成等优势, 成为实现超衍射极限的有效途径. 本文综述了平面超透镜的物理原理及其在超衍射极限聚焦和成像方面近年来的研究进展, 并讨论了该领域面临的问题和未来的研究重点和方向.

关键词: 平面超透镜, 衍射光学, 微纳结构, 超分辨

PACS: 42.79.–e, 42.25.Fx, 78.67.Pt, 42.30.–d **DOI:** 10.7498/aps.66.144206

1 引 言

光学成像技术具有无损、直观、高分辨、应用方便等特点, 是众多成像技术中最重要也是应用范围最广的方式, 对物理学、材料学、生物学、医学、电子学等众多领域的研究和工业生产都具有重要意义. 成像的分辨率是显微成像系统最核心的性能指标. 受限于光的波动性的本质, 由阿贝定律 ($D = 0.5\lambda/NA$) 及瑞利判据 ($R = 0.61\lambda/NA$) 可知, 对应可见光波长区域, 光学显微镜具有横向最高 200 nm 左右的分辨率限制, 其中 D 和 R 为光学显微系统的成像分辨率, λ 为照明光的波长, NA 为透镜的数值孔径[1,2]. 突破衍射极限而获得超分辨的聚焦和成像始终是科学研究的热点和难点之一, 并将对广泛的研究领域产生深远的影响.

光源照明物体得到光场分布的过程本质上可以看作是对物体的空间结构进行频率分析的过程, 光源与物体相互作用的结果可以用一系列代表物体空间结构的频率信息来表示, 不同的空间频率信息以不同波矢的平面波携带向空间传播. 其中大于照明光最大空间频率的平面波矢分量在传播方向上随离开样品的距离成指数衰减, 被称为消逝场 (evanescent wave). 消逝波是非辐射的平面波, 虽然包含被照明物体的结构细节信息, 但却只在近场区域明显存在. 近场扫描光学显微技术 (near-field scanning optical microscopy, NSOM) 是目前科学研究领域常用的获取近场光学信号从而得到超衍射极限光学表征的技术手段. 但是 NSOM 过程需要用刚性的探针在被探测样品表面几十纳米的距离上逐点扫描, 成像速度受限制并容易对样品造成损伤.

2000 年, 英国帝国理工学院的 Pendry[3] 提出一种基于负折射材料的完美透镜的概念, 理论上可以实现超越衍射极限的成像效果. 传统光学透镜

* 国家自然科学基金 (批准号: 61522504) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: elehmh@nus.edu.sg

‡ 通信作者. E-mail: xiangpingli@jnu.edu.cn

© 2017 中国物理学会 Chinese Physical Society

无法突破衍射极限的原因在于无法操控消逝场, 而负折射率透镜可以利用消逝波频谱的耦合传输实现超衍射成像. 进一步研究表明, 利用具有负介电常数的Ag膜, 通过激发表面等离子体, 实现消逝波放大, 从而补偿消逝波传输造成的衰减, 同样可以实现对纳米物体的超衍射极限成像[4−6]. 美国加州大学伯克利分校的Zhang研究小组[6]在2005年利用超透镜(superlens)微纳结构, 在365 nm波长照明下实现了89 nm分辨力的超衍射极限成像. 其后, 该小组根据美国普林斯顿大学Jacob研究小组[7−9]提出的hyperlens的成像原理, 在365 nm照明波长下, 利用显微镜在远场成功分辨出周期150 nm、线宽35 nm的图形, 在实验上验证了超分辨放大成像特性. 但以上技术都存在一个固有的技术特点, 就是成像透镜仍然要置于待成像样品的近场区域, 从而保证对消逝波的有效收集和放大作用, 极大地限制了其实际应用.

2014年, 诺贝尔化学奖分别授予美国霍华德•休斯医学研究所教授Eric Betzig、德国马克斯普朗克生物物理化学研究所教授Stefan W. Hell和美国斯坦福大学教授William E. Moerner等3位科学家, 以表彰他们在超高分辨率荧光显微成像技术领域的杰出贡献[10−17]. 利用荧光分子的选择性激活, 可以实现对生物样品的远场超高分辨率的成像, 其成像分辨率目前已经可以达到 < 10 nm 的能力[11]. 但是由于该类技术主要基于荧光分子的非线性响应, 需要用特殊染料分子对成像样品进行标定, 限制了其使用范围主要集中在生物学和医学领域.

开发一种纯光学的远场超分辨成像技术是目前研究的热点方向之一[18−22], 其中最具物理意义的方法就是通过调制聚焦光斑的有效点扩散函数(point spread function, PSF)来压缩焦斑的尺寸[21,23−25], 其关键是要研究一种对传输光场实现超衍射极限调制的透镜. 基于衍射光学理论的平面超透镜是近年来纳米光子学领域的最新研究方向和前沿热点[26−30]. 由于理论上的创新、设计灵活、效率高、方便集成等优势, 成为实现远场纯光学的超衍射极限聚焦和成像的有效途径[31−38].

虽然目前可以实现光学超分辨的方法有很多种, 但是各种方法都存在一定的特点和适用性, 在实际应用时应根据需求合理选择适当的技术. 近场扫描技术可以对微纳结构表面的光场分布实现非常高的空间分辨率, 但是在成像的过程中探针需要在样品表面进行准接触式的机械扫描, 会对待成像样品带来不可避免的机械损伤, 同时探针的引入也不可避免地会对样品表面的光场分布造成一定的影响. 基于染料分子非线性效应的荧光成像技术可以实现远场的超衍射极限成像, 但由于需要用特定的染料分子对成像样品进行标定, 使得其适用领域主要集中在生物领域, 同时染料分子对样品的污染以及染料分子自身在成像过程中的光致损伤现象也是需要慎重考虑的问题. 平面超透镜技术为实现远场纯光学超分辨成像提供了一种新的途径, 其成像过程无需消逝场的参与, 也不需要对成像样品进行任何的预处理, 极大地拓展了超分辨成像技术的应用领域.

本文总结回顾了近年来国内外平面超透镜领域的研究现状, 并结合本研究组在该方向的研究成果, 对平面超透镜在可见光区域的衍射极限调制方面的进展进行了总结, 并展望了平面超透镜的未来发展趋势.

2 平面超透镜突破衍射极限的研究进展

2.1 光学超振荡的提出和判断标准

当前光学技术的发展表现出向集成化和轻量化的趋势, 其典型代表是由微型二维光学元件代替传统的三维体材料器件实现对光信号的有效调制. 衍射光学元件的研究日益成为当前光学研究的前沿课题[39−42]. 作为衍射光学元件的典型代表, 菲涅耳波带片具有二维平面构型、尺寸紧凑、重量轻、设计自由度大等诸多优点, 但与传统光学透镜类似, 菲涅耳波带片的远场聚焦和成像无法突破衍射极限的限制.

受美国南卡罗莱纳大学的Aharonov等[43]在量子力学方面工作的启发, 2006年英国布里斯托大学的Berry和Popescu[44]在数学上进行了深入的阐述, 进而提出超振荡的概念, 并将超振荡与光学聚焦相联系, 从理论上证明特殊设计的光栅结构可在远场实现超衍射极限的聚焦[45]. 频谱在某一频率分量截止的函数可称为带限函数, 超振荡现象的本质在于带限函数在局部区域的振荡速度可以远

大于其最高傅里叶分量. 如图1 (a) 所示, 当相干光经特殊设计的纳米孔或光栅阵列衍射时, 其在焦平面处的电场分布取决于各个衍射单元所发出的光矢量的叠加, 可以简单表示为[46]

$$E(x)=\sum_n a_n\cos(k_n^{//}x+\varphi_n). \tag{1}$$

超振荡理论证明, 通过选取各相干分量空间频率 $k_n^{//}$、强度权重 a_n 以及相对相位 φ_n 的合理组合, 完全可以在焦平面处局部空间内获得远高于系统最高空间频率分量的带限函数振荡, 如图1 (b) 所示, 从而实现超衍射极限的聚焦能力[46].

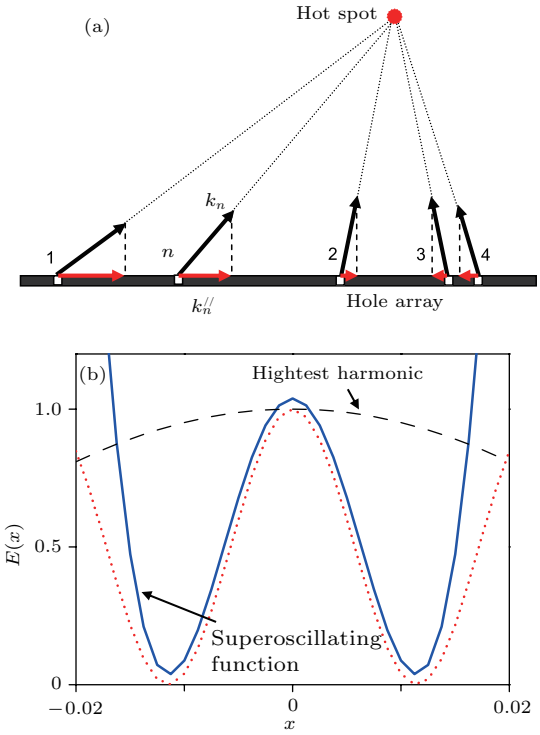


图1 (a) 相干光经纳米孔或光栅阵列衍射形成超衍射极限焦斑示意图; (b) 超振荡函数与衍射系统中最高空间频率分量的对比[46]

Fig. 1. (a) Schematic diagram illustrating the formation of a super-resolution hot-spot by light diffracted from the hole or grating array; (b) the comparison between the super-oscillation function with the highest fourier harmonic component[46].

2014年, 新加坡国立大学的Huang等在Michael Berry理论的基础之上提出了判断一个光学聚焦系统的聚焦焦斑是否为超振荡的三个条件: 1) 首先光学系统要为轴对称分布, 从而产生圆形的聚焦焦斑; 2) 在聚焦面上的一定区域之内, 聚焦焦斑的振荡频率要大于该目标平面上的最大傅里叶频谱分量; 3) 焦斑要位于 $r\leqslant r_{\rm s}$ 的范围之内, 其中 r 为聚焦焦斑半径, $r_{\rm s}$ 是指当只有最大空间频率分量作用时焦平面上的第一个电场强度为0的位置[34,42]. 根据这三个条件, 他们进一步细化并提出了超振荡判据 $(0.38\lambda/NA)$, 即一个光学聚焦系统的真实衍射极限, 对聚焦光斑给出定量的理论界限, 如图2所示. 光学聚焦焦斑尺寸图被瑞利衍射极限和超振荡极限分成三部分, 其中位于瑞利衍射极限之下的两个区域都可以实现超衍射极限的光调制, 但只有在小于超振荡判据 $(0.38\lambda/NA)$ 的蓝色区域才会发生真正的超振荡现象. 该判据比传统的Rayleigh衍射极限 $(0.61\lambda/NA)$ 更精确, 更适合实际应用.

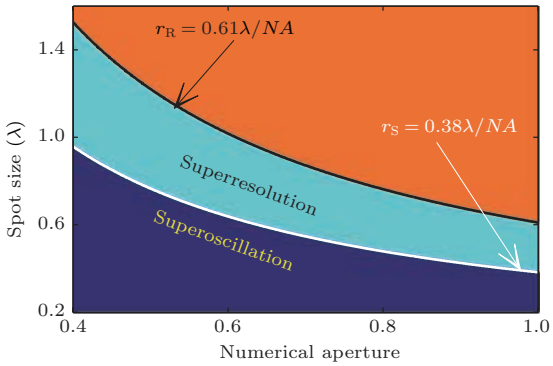


图2 超振荡判据 瑞利判据和超振荡判据把光学聚焦光斑尺寸图分成了亚分辨、超分辨和超振荡三个区域[34]

Fig. 2. The definition of the super-oscillation criterion. The Rayleigh (black) and superoscillation (white) criterions, divide the focusing spot into three parts: sub-resolved (orange), super-resolution (cyan) and super-oscillation (dark blue)[34].

2.2 利用准周期排列的纳米孔阵实现超振荡聚焦

在超振荡理论提出以后, 众多研究者尝试从实验中实现对传输场的超振荡调制, 进而做到在远场得到超衍射极限聚焦和成像[47−49]. 准周期阵列结构是最初用于实现超衍射极限聚焦的尝试. 2007年, 英国南安普顿大学的Huang等[47]利用金属衍射屏上准周期排列的纳米孔阵, 在实验中观测到了远场的亚波长聚焦现象. 类似于周期结构中的Talbot效应, 当用波长660 nm的相干光去照明Penrose-like构型准周期排列的纳米孔结构时, 实验中可以看到, 在衍射屏后5 μm的距离上得到了超衍射极限的聚焦焦斑, 其半高全宽只有235 nm, 图3 (d) 所示. 当观察面沿 Z 方向移动时, 可以发现在衍射区不同位置上都可以观察到超衍射极限的

聚焦现象. 他们把该超衍射极限聚焦过程归因于准周期排列的纳米孔阵对激发光的超振荡调制效应. 由于该过程发生在远场区域, 无须消逝场的参与, 可以使用传统的光学显微收集和成像系统来观测得到. 同时, 如图3(g)所示, 在点光源激发状态下, 当点光源沿着$+Y$方向逐步移动600 nm, 在超振荡透镜后方$Z = 11.5$ μm处的焦斑相应地朝着$-Y$方向移动600 nm, 相当于普通透镜1 : 1的物像移动关系, 在不同轴向的其他位置同样能实现类似的超衍射聚焦和不同比例的物像移动关系. 这有力地说明了该器件不仅可以用于远场的亚波长聚焦, 同时也可以作为成像器件[48].

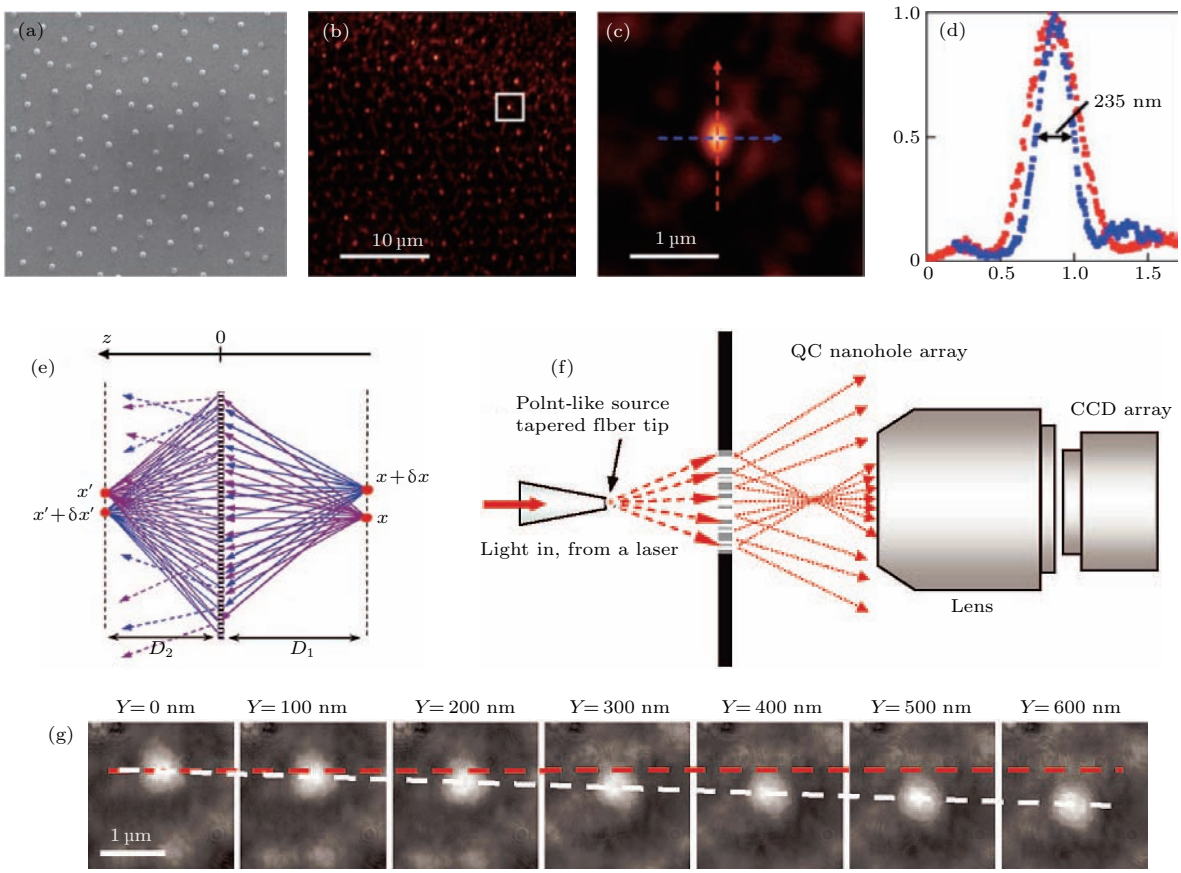


图3 Penrose-like构型排列的准周期纳米孔阵列结构实现远场的超衍射极限聚焦 (a) 准晶纳米孔阵列的SEM图; (b) 结构孔阵平面5 μm外的场分布图; (c) 场分布的局部放大图; (d) 焦斑强度在与入射光偏振方向平行(蓝色)和垂直(红色)方向上的强度分布图; (e) 准周期纳米孔阵列成像原理图; (f) 成像系统示意图; (g) 焦斑位置与光源沿Y方向移动的对应关系[47,48]

Fig. 3. Sub-diffraction limit focusing effect in far-field by a quasi-crystalline nanohole array: (a) SEM image of the quasi-crystalline array of holes; (b) field map at a height $h = 5$ μm above the array; (c) zoom-in view of the hotspot indicated in (b); (d) line profiles of the hotspot along the parallel (blue dots) and perpendicular (red dots) directions to the polarization of the incident light; (e) imaging process of the quasi-crystalline nanohole array; (f) schematic diagram of imaging system by the quasi-crystalline nanohole array; (g) the motion of the hot-spot corresponding to the light source moving along the Y direction[47,48].

由于准周期结构的复杂性, 其超衍射极限的聚焦能力难以根据需要进行可控调节, 这严重制约了其实用性. 2009年, 该团队进一步提出可以利用多个长椭球波函数(prolate spheroidal wave functions)构造出局部视场区域内任意大小的超衍射焦斑. 他们采用26个长椭球函数, 在20λ的工作距离上构造了焦斑尺寸0.21λ的超衍射焦斑光场分布. 他们证明这种方法在实现任意小的超衍射焦斑的同时, 可以保证焦斑和高强度旁瓣之间存在一定的视场区域[49]. 但是, 该种掩模结构同样非常复杂, 要想精确地制作这种复振幅型结构, 对当前微纳加工技术是极大的挑战.

2.3 二元振幅型超振荡透镜

早在1952年, Toraldo Di Francia[23]提出并证明利用一系列精密设计的光瞳滤波器调控传播场

的干涉效应, 完全可以在远场得到亚波长的光场局域和超衍射极限的聚焦现象, 并逐渐发展成当前熟知的光瞳滤波技术. 光瞳滤波技术是指在聚焦系统中引入光瞳滤波器, 通过改变光学系统光瞳平面内光场的振幅或相位, 实现在空间域对聚焦光场的三维分布进行有效调制, 在频率域对频率通带范围内传递函数的高低频进行调制. 改变光瞳函数的具体分布, 即可以达到改变光学系统的聚焦光场和成像特性的目的, 这是光瞳滤波原理的基本出发点. 常用的光瞳滤波器包括中心遮挡环形滤波器、极窄环带滤波器以及研究和使用最广泛的圆对称环带形光瞳滤波器(又称为Toraldo 滤波器). 利用这些光瞳滤波技术可以实现多种调制效果, 实现对激光光束整形, 如压缩聚焦光斑、形成平顶光束、产生轴向无衍射光束、产生横向环形光束或轴向中空光束等, 在光物理、显微成像、光学微操纵以及光学微加工等领域有重要的应用[23,50–56]. 由于光瞳有限物理孔径的客观限制, 任何光瞳滤波器本质上都等价于一个低通滤波器. 虽然光瞳滤波器可以有效地改善成像特性, 但在焦平面上并不会出现大于系统最高空间频率的光场振荡, 所以并不能实现严格意义上的超分辨聚焦和成像.

2012年, 南安普顿大学的Rogers等[35]利用超振荡原理, 通过算法优化的方式设计并制备出了二元振幅型同心环带平面衍射透镜, 即超振荡透镜(superoscillatory lens). 该透镜虽然在结构上与传统的光瞳滤波器相似, 但调制特性显著不同. 通过精密调制各环带衍射光场之间超振荡现象所带来的相消干涉效应, 在焦平面上一定区域内, 可以实现带限函数的振荡速度远大于系统最高傅里叶频谱分量的现象, 从而实现真正意义的超衍射极限聚焦. 同时, 传统的光瞳滤波器只改变光瞳平面内光场的振幅或相位, 其聚焦和成像功能一般还是依靠光学系统中的体材料折射透镜来实现, 而在利用超振荡透镜实现超衍射极限聚焦和成像的过程中完全不需要其他折射透镜的参与. 在该工作中, 他们利用640 nm 波长的线偏振相干光源激发, 在油浸介质中10 μm远处得到了185 nm (0.29λ)的超衍射极限聚焦焦斑, 如图4(c) 所示. 通过把超振荡透

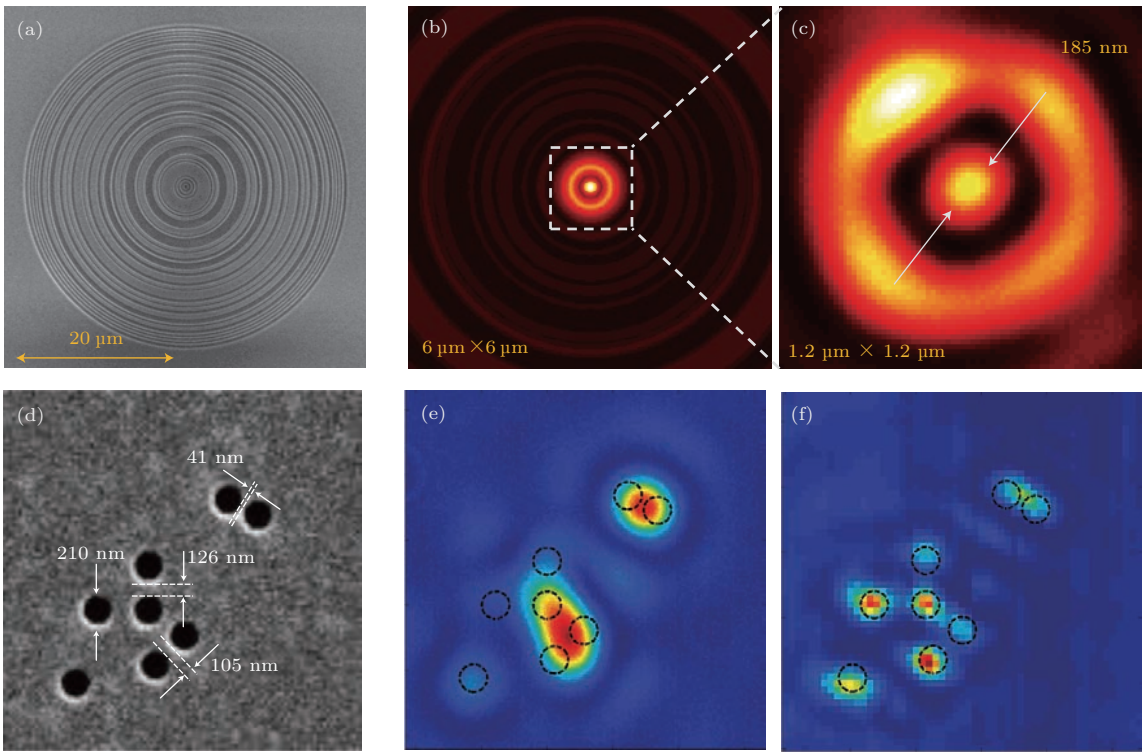


图4 超振荡透镜的聚焦和成像 (a) 超振荡透镜的SEM 图; (b) 焦平面处的场分布; (c) 实验测得的超振荡焦斑; (d) 待成像的纳米孔阵结构的SEM 图; (e) 纳米孔阵的普通显微镜成像效果; (f) 利用超振荡显微技术的成像结果[35]

Fig. 4. Sub-wavelength imaging with a super-oscillatory lens: (a) SEM image of the SOL; (b) field distribution at the focal plane; (c) experimental recorded focal spot in immersion oil; (d) SEM image of a nanohole sample; (e) the unresolved image by a conventional microscope; (f) the SOL image with more details for the nanoholes sample[35].

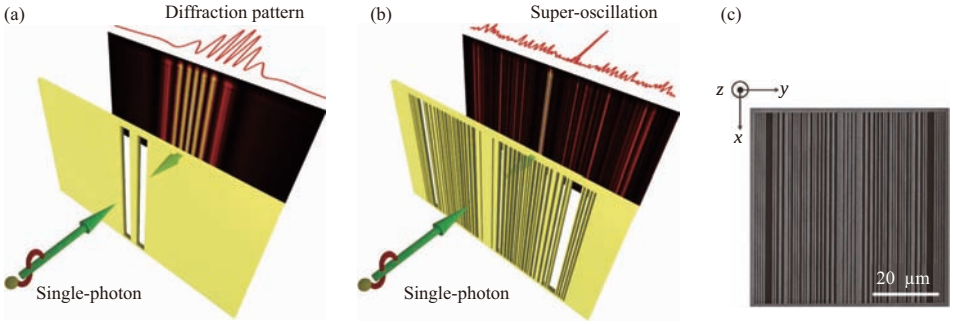


图 5 量子超振荡效应 (a) 单光子激发下的双缝干涉现象; (b) 利用一维超振荡透镜实现单光子激发下的量子超振荡现象; (c) 一维超振荡透镜的 SEM 图 [61]

Fig. 5. Quantum super-oscillation effect: (a) Single photon regime of the double slit interference experiment; (b) single photon regime of the Quantum super-oscillation effect; (c) SEM image of the one dimensional super-oscillatory lens [61].

镜与共焦成像系统相结合, 利用其远场超衍射极限的聚焦能力, 实现了 105 nm 的远场成像分辨率, 如图 4 (f) 所示. 此后该研究组又分别验证了其他波长和偏振态下的超分辨聚焦特性 [32,37,57–60]. 2016 年, Yuan 等 [61] 进一步发现, 超振荡现象在单光子激发条件下同样存在, 成功地验证了量子超振荡效应. 一般认为, 超振荡现象是一种多光子相互干涉现象, 而该工作发现, 超振荡透镜在单光子激发条件下, 光子可以和自身发生量子干涉效应, 从而在衍射屏上形成超振荡的聚焦效果, 如图 5 (b) 所示.

基于超振荡透镜的显微成像方法是一种纯光学的远场超分辨成像技术, 不需要消逝场的参与, 也不需要利用染料分子的非线性荧光效应. 在显微、望远、光刻等领域都具有广泛的应用前景. 超振荡透镜的聚焦和成像能力理论上没有物理极限, 通过合理的优化和设计, 可以得到任意小的聚焦光斑. 超振荡现象的本质是利用干涉效应对焦平面上的光场能量进行重新分布, 其原理决定了在中心亚波长焦斑的周围一定会存在很强的旁瓣光场分布. 当主瓣强度逐渐减小的过程中, 其旁瓣会不可避免地快速增强, 对后期的成像应用过程带来一定的影响. 虽然可以通过在主焦斑和旁瓣之间叠加零强度点的方式来扩大视场区域, 但是主焦斑的强度会进一步减小, 能量利用效率很低.

2.4 二元振幅型超临界透镜

为解决上述超振荡透镜存在的实际问题, 新加坡国立大学的研究者提出一种新型的平面衍射透镜——超临界透镜 (supercritical lens, SCL) [31,34,36]. 他们通过开发新的理论和算法, 在平面衍射透镜的设计优化过程中, 将焦斑尺寸控制在瑞利衍射极限 ($0.61\lambda/NA$) 和超振荡极限 ($0.38\lambda/NA$) 之间, 可以得到超衍射极限的聚焦光斑, 如图 6 所示 [31]. 与超振荡透镜相比, 超临界透镜在保证超衍射极限焦斑的同时, 能有效抑制旁瓣的强度, 同时能获得超长的工作距离和焦深, 为平面超衍射极限透镜的应用带来了极大的便利. 2015 年, 他们利用振幅型平面超临界透镜在 240λ 工作距离上实现了亚波长光针的超衍射极限聚焦效果, 在 633 nm 的蜗旋相位叠加的角向偏振光激发下, 在空气中得到了横向尺寸约 265 nm(0.42λ) 的超衍射极限焦斑, 光针长度约 7 μm, 如图 7 所示 [36].

2016 年, 他们进一步把平面超临界透镜应用于超分辨成像领域, 设计制备了工作在 405 nm 的振幅型平面超临界透镜, 并搭建基于共焦成像原理的超分辨显微成像系统, 在空气中获得纯光学的 65 nm 分辨率的远场超分辨成像效果, 如图 8 所示 [31]. 工作距离达到 135λ, 基本与传统显微镜相近. 由于超临界透镜低旁瓣的优势, 使得成像结果受背景光的影响很小, 具有很高的信噪比. 包括超振荡透镜显微成像技术在内的大多纯光学超分辨成像系统, 其成像视场都相对较小, 对大尺寸样品实现超高分辨率的成像效果一直是各种光学超分辨技术所面临的障碍之一. 超临界透镜为跨越这个障碍提供了一种途径, 他们成功地验证了对于大尺寸样品的超分辨成像效果, 如图 8 (d)—图 8 (e) 所示. 对于复杂非周期的大尺寸样品 (15 μm × 15 μm), 同样可以得到高对比度的超分辨成像效果. 他们把这一优势归因于超临界透镜光针聚焦性能所带来的超大的焦深特性, 使得成

像过程对样品的水平倾斜具有很大的容忍度.

此外, 大焦深特性还为超临界透镜显微成像技术带来一个独特的能力, 即可以通过一次扫描实现对三维立体结构的水平投影成像, 如图9所示. 他们利用一个左右高差为800 nm 的楔形的鱼网状结构作为样品, 通过一次扫描即得到了整个结构全部孔阵的清晰位置, 而传统的透射式显微镜和激光扫描共聚焦显微镜受限于较小的焦深尺寸, 只能对一定 Z 高度上的部分孔阵位置进行标定.

与其他平面超透镜显著不同的一点是超临界透镜的设计中完全不存在亚波长的特征尺寸, 整个透镜中的最小特征尺寸为1.2 μm, 用微米量级特征尺寸的透镜实现了纳米量级的成像效果, 打破了成像领域一直以来的“纳米尺寸的成像所使用的透镜一定具有纳米尺度特征尺寸”的传统认知. 同时, 微米级别的特征尺寸使得该透镜可以采用成熟的激光曝光直写工艺高效、低成本地加工, 为把平面超衍射极限透镜推向实际应用提供了切实的可行性.

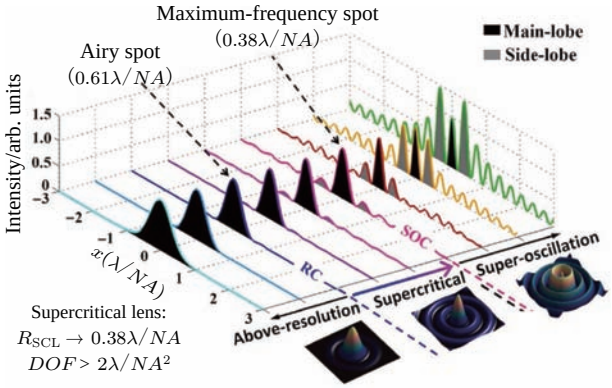


图6 平面透镜焦斑强度分布的可能图样及超临界透镜的概念[31]

Fig. 6. Possible intensity patterns of focal spots by planar lens, as well as the definition of supercritical lens (SCL)[31].

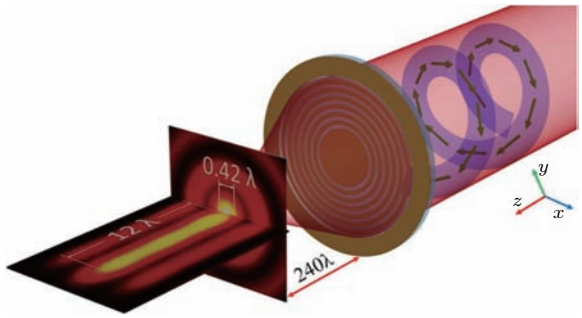


图7 超临界透镜对蜗旋相位调制的角向偏振光的超衍射极限聚焦示意图[36]

Fig. 7. Sketch of shaping sub-wavelength needle with supercritical lens induced by azimuthally polarized beam with vortical phase[36].

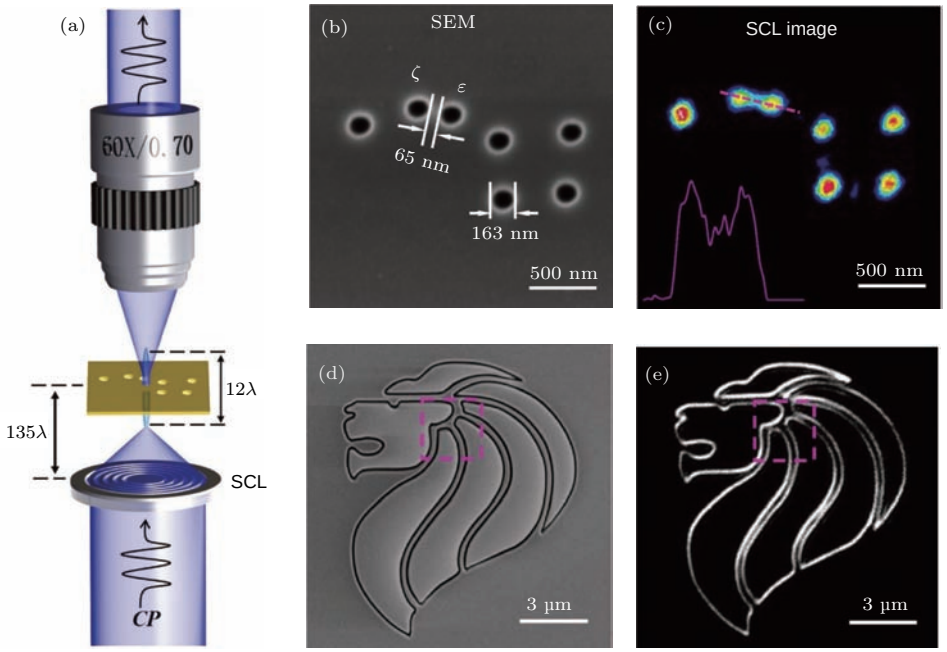


图8 (a) 基于超临界透镜的显微成像系统示意图; (b) 纳米尺度北斗七星图样的SEM 图; (c) 利用SCL 显微成像系统可以清晰分辨65 nm 的间距; (d) 大尺寸非周期样品的SEM 图; (e) 大尺寸样品的SCL 超分辨成像效果[31]

Fig. 8. (a) Schematic diagram of SCL microscopy; (b) SEM image of nanoscale Big Dipper; (c) imaging result by SCL microscopy which shows that the 65 nm space can be clearly distinguished; (d) SEM image of a fabricated large-scale non-periodic pattern; (e) imaging results of the large scale non-periodic sample by SCL microscopy[31].

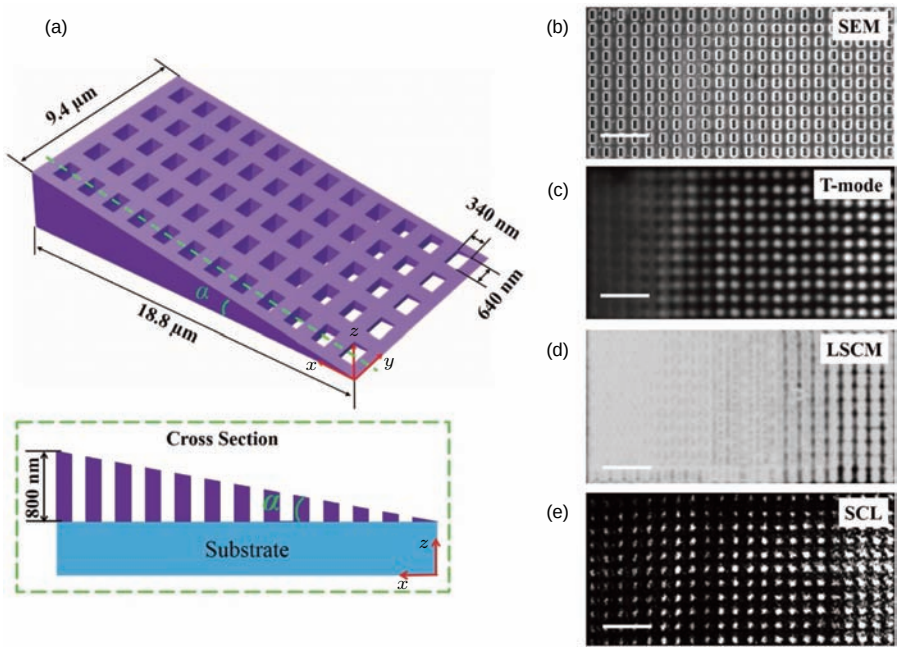


图 9 三维物体水平投影的成像 (a) 由矩形孔阵所构成的三维网状楔形样品示意图; (b) 楔形样品的顶视 SEM 图; (c)—(e) 分别利用普通透视显微镜、激光扫描共聚焦显微镜和超临界透镜成像技术得到的楔形样品成像结果 [31]

Fig. 9. Mapping the horizontal details of a 3D object: (a) Sketch of a 3D fishnet wedge composed of an etched array of rectangular holes; (b) top-view SEM image of the fishnet wedge; (c)–(e) the imaging results of this wedge by transmission mode microscopy (T-mode), laser scanning confocal microscopy (LSCM), and SCL microscopy [31].

2.5 二元位相型超振荡透镜

与振幅型的设计相比, 位相型的平面超透镜可以得到明显更高的能量利用效率. 2008 年, 新加坡科技局数据存储研究所的 Wang 等 [51] 在理论上提出可以通过在普通聚焦系统中添加二元位相板的方式, 实现对径向偏振光的超衍射极限聚焦. 2014 年, 新加坡国立大学的 Huang 等 [34] 证明, 利用二元位相构型平面透镜同样可以对线偏振和圆偏振光实现远场的超振荡调制. 但在传统光学材料上精确制备该种二元位相型平面透镜有较大的工艺难度. 2016 年, 南安普顿大学的 Wang 等 [62] 提出可以利用相变材料在晶态和无定形态时较大的折射率差值来制备二元位相型光子学器件, 他们成功地利用飞秒激光加工工艺在 $Ge_2Sb_2Te_5$ 材料制备了工作在 730 nm 的平面超振荡透镜, 实验中获得了 0.49 μm 的超衍射极限焦斑, 小于同等数值孔径下的光学衍射极限 0.6 μm, 如图 10 所示. 同时他们利用相变材料的可重构特性, 在实现平面超透镜结构的擦除和重写入方面做出了开创性的工作.

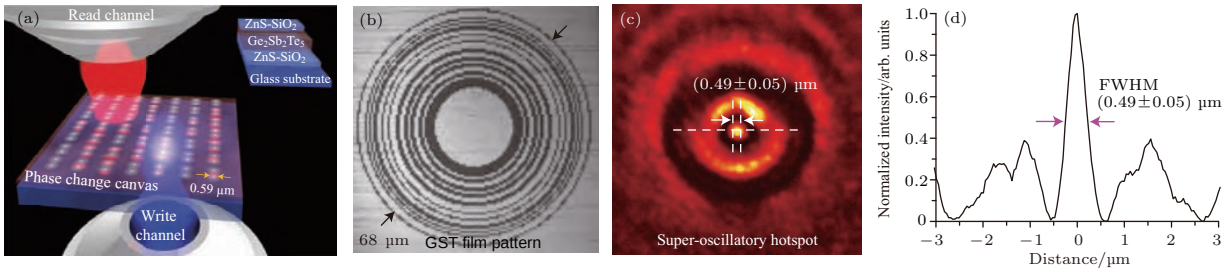


图 10 (a) 用飞秒激光在相变材料上加工光子器件示意图; (b) 实验制备得到的二元位相型超振荡透镜; (c) 超振荡透镜在 730 nm 波长激发下的聚焦光斑图样; (d) 焦斑横截面的强度分布 [62]

Fig. 10. (a) Schematic diagram of the fabrication process for binary phase photonic devices in a phase-change film; (b) binary phase super-oscillatory lens; (c) focal spot of the binary super-oscillatory lens at $\lambda = 730$ nm; (d) cross-section line profile of the focal spot [62].

2.6 基于超振荡透镜的超分辨光学望远镜系统

由光的波动性本质及成像原理决定, 衍射极限的障碍不仅对显微成像系统适用, 对光学望远系统来说同样如此. 自光学望远镜发明以来, 望远镜的分辨率一直受限于瑞利判据 1.22 λ/Φ, 其中 Φ 和 λ 为望远镜系统的主镜尺寸和相应的工作波长. 一直以来, 人们只能通过不断增加主镜尺寸的方式来提升望远镜的分辨能力, 但该种方法的复杂性给科学技术带来越来越高的挑战. 超振荡技术为解决该问题提供了一种可能. 2015 年, 中国科学院光电技术研究所王长涛等 [30] 提出了一种基于超振荡透镜的超分辨望远镜系统, 如图 11 所示. 目标物体放置在平行光管 L_1 的前焦面位置并经窄带非相干光照明. 在出瞳平面处放置超振荡调制器件, 对空间频谱中的高低频分量进行精密调制, 再经透镜聚焦后, 可以在电荷耦合器 (CCD) 平面上得到超振荡的焦斑和成像效果, 从而实现实时的、非相干状态下的超分辨望远成像. 在该工作中, 他们分别设计了焦斑半径分别等于 0.6, 0.5 和 0.3 倍瑞利极限的三组超振荡焦斑. 通过优化设计参数, 对焦斑强度、旁瓣大小以及视场区域进行控制, 实验中实现了 0.55 倍瑞利判据的分辨能力. 在一定离轴角度下, 该系统同样具有良好的成像能力. 该工作对拓展超振荡技术的应用做出了积极的贡献.

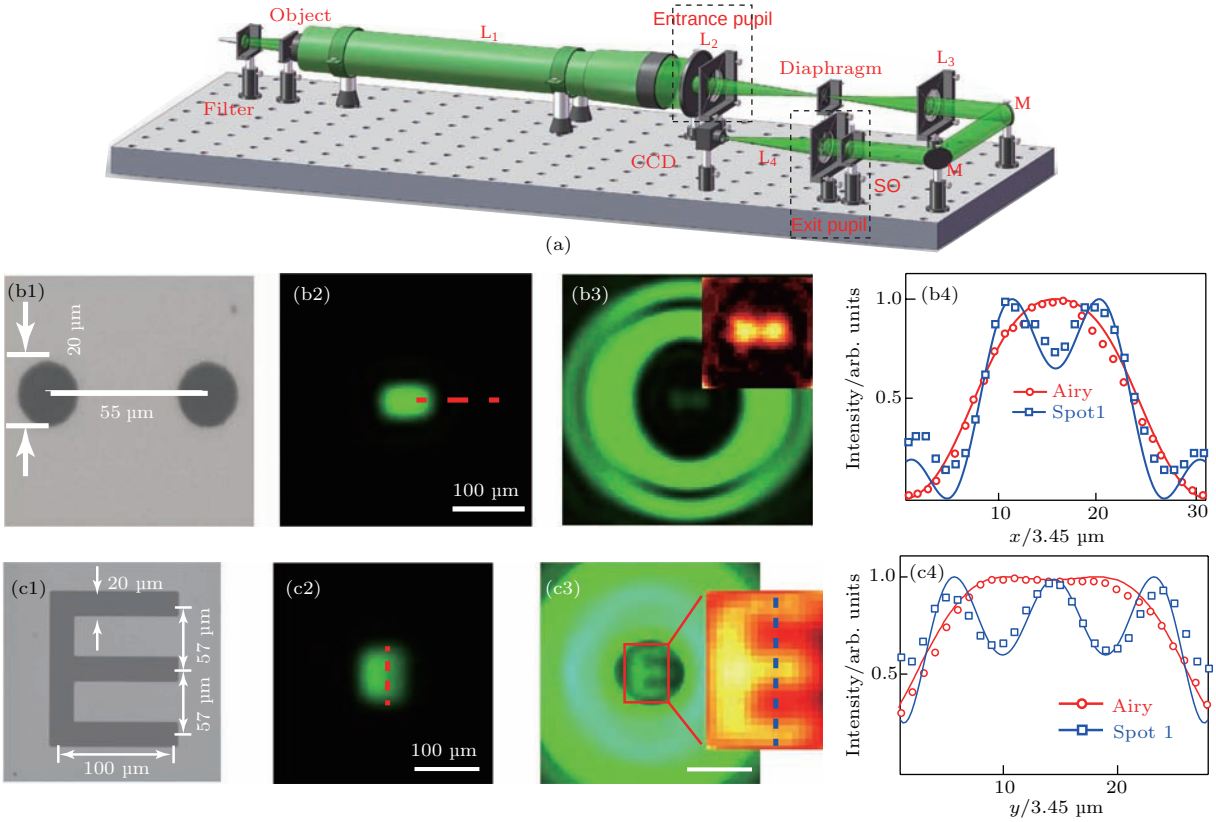


图 11 (a) 基于超振荡透镜的超分辨光学望远镜系统; (b), (c) 间距为 55 μm 的双孔样品和字母 E 形的复杂结构待成像样品的 SEM 图 (b1), (c1), 衍射受限光学系统的成像图 (b2), (c2), 经超分辨望远系统成像结果图 (b3), (c3), 以及成像结果的强度分布比较 (b4), (c4) [30]

Fig. 11. (a) Schematic diagram of the super-resolution telescope system based on the super-oscillatory lens; (b), (c) experimental demonstration of the resolving capability of telescope system: SEM of the imaging sample (b1), (c1); the diffraction-limited imaging results (b2), (c2); the super-resolved imaging results by the super-resolution telescope (b3), (c3); the line profiles of the intensity distribution of the imaging results [30].

2.7 振幅和相位同时调制的 rGO 透镜

区别于超振荡透镜和超临界透镜的二元振幅或二元位相构型, 澳大利亚斯威本科技大学的 Zheng 等 [63] 提出了一种基于氧化石墨烯的振幅相位共同调制的平面透镜. 在该工作中, 他们利用飞秒激光直写技术所产生的光还原过程, 把氧化石墨烯 (graphene oxide, GO) 转化成还原氧化

石墨烯(reduced grephene oxide). 通过控制加工激光的相关参数, 可以实现对石墨烯还原层的厚度、折射率以及透过率的精确控制. 利用这个特性, 该课题组设计并制备了一种可以对光场强度和相位同时调控的平面超透镜, 如图12所示, 在实验中实现了远场的3D 亚波长聚焦($\lambda^3/5$). 此外, 该氧化石墨烯平面透镜可以实现宽波段的高效聚焦特性, 在400—1500 nm的宽谱波段, 可以实现>32%的能量利用效率, 对于实际应用有较大的助益.

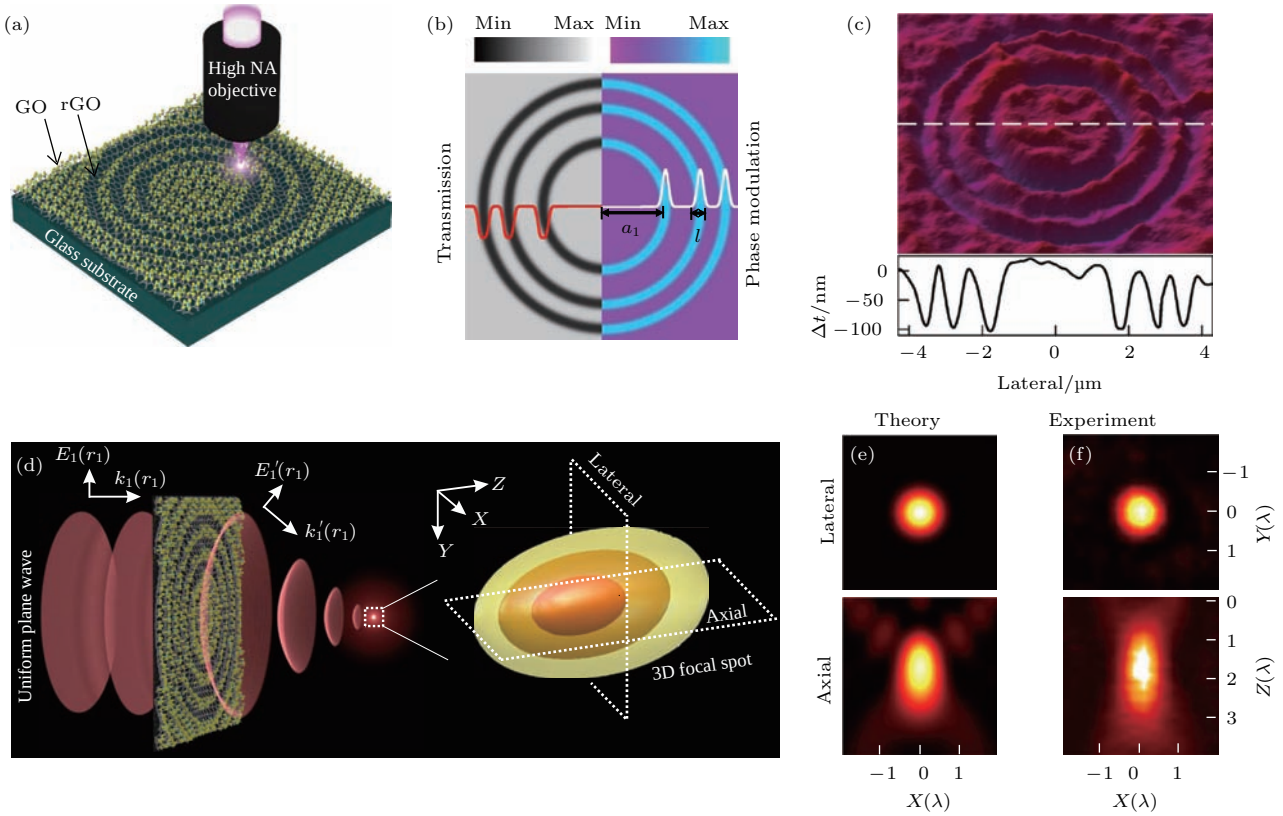


图12 氧化石墨烯平面透镜及其三维亚波长聚焦特性 (a) GO 透镜设计和加工方法示意图; (b) GO 透镜的相位强度共同调制特性示意图; (c) GO 透镜的表面形貌; (d) GO 透镜对入射光调制过程示意图; (e), (f) 焦斑在横向和轴向强度分布的理论和实验结果[63]

Fig. 12. Reduced GO lens and its 3D subwavelength focusing effect: (a) Conceptual shown of the design and fabrication process of GO lens; (b) schematic shown of the amplitude and phase modulation effect; (c) topographic profile of the GO lens; (d) light modulation process by the GO lens; (e), (f) theoretical and experimental intensity distribution of the subwavelength focal spot[63].

3 未来发展方向展望

由于具有平面可集成的特点和超衍射极限聚焦的优异性能, 平面超透镜成为当前衍射光学和纳米光子学领域的研究热点. 该领域的研究者们已经做出了卓越的贡献并揭示了该领域的巨大发展潜力. 从把该科学概念推向实际应用的角度来看, 平面超透镜在一些方面还存在局限并需要进一步的研究推进.

3.1 消色差的平面超透镜

色差是光学元件设计和应用时必须要考虑的一个因素. 传统的体材料透镜, 色差来源于透镜制备材料的色散造成的影响, 可以采用正负色散材料结合, 或者通过把折射光学元件和衍射光学元件结合构建折衍混合系统的方式来消除色差, 使得其体积庞大, 难以应用于光学集成. 对于突破衍射极限聚焦的平面超透镜来说, 其设计和优化的过程一般都是基于单工作波长系统. 最近, 新加坡南洋理工大学的Yuan等[64]提出了一种消色差的多工作波长的超振荡透镜. 他们利用平面透镜超长焦深的特点和衍射光学元件多极衍射焦斑的固有特性, 通过设计优化, 使得不同波长的焦斑在空间重叠, 从而在红外光和可见光区分别得到了消色差的超衍射极限聚焦能力, 如图13所示. 这为消色差的平面超透镜提出了一个可行的方法, 并值得深入研究和探索.

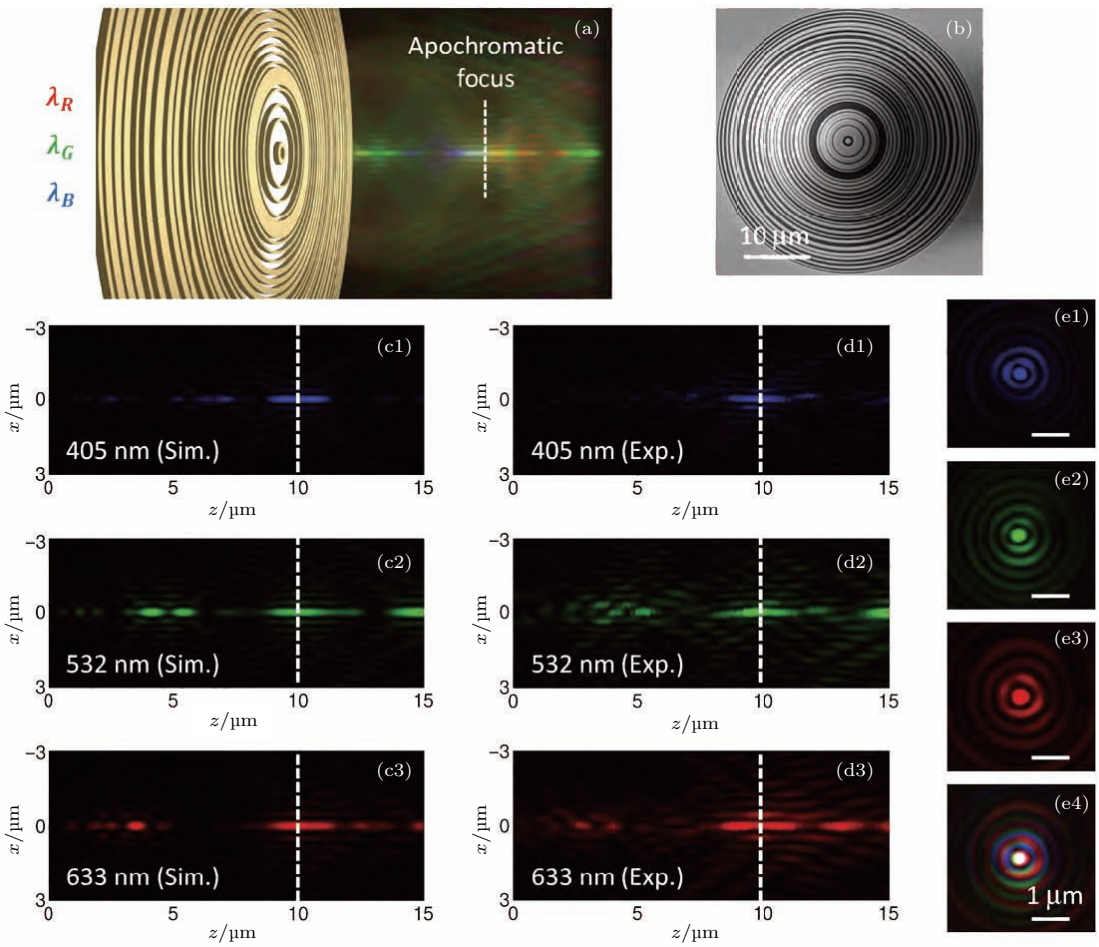


图 13 消色差的超振荡透镜 (a) 消色差的超振荡透镜聚焦示意图; (b) 消色差超振荡透镜的 SEM 图; (c), (d) 模拟和实验测得的超振荡透镜对蓝绿红三色光衍射聚焦图样; (e) 蓝绿红三色光以及白光在焦平面上的强度分布实验图样 [64]

Fig. 13. Apochromatic amplitude mask SOL: (a) Schematic diagram of the focusing effect by apochromatic SOL; (b) SEM image of the fabricated apochromatic SOL; (c), (d) simulated and experimental diffraction patterns in x-z plane; (e) experimental recorded intensity pattern at the focal plane for blue, green, red and white light [64].

3.2 提高平面超透镜的能量利用效率

尽管利用诸如超振荡透镜、超临界透镜等平面超透镜可以突破衍射极限的聚焦和成像, 但其本质上还是一种二元衍射光学元件. 由于多极衍射效应、反射和吸收损耗的影响, 其能量利用效率难以达到很高的程度, 目前已报道的最高效率只有 30% 左右. 开发一种相位型的高效平面超透镜对于实际应用具有重要的意义. 基于超颖表面的相位调制平面超透镜是近年来纳米光子学领域的研究热点之一. 超颖表面 (metasurfaces) 是一种厚度小于波长尺度的单层人工结构, 通过对亚波长结构单元的设计, 可以在二维平面上同时对电磁波的相位、极化方式以及传播特性进行调制, 为光学设计提供了极大的灵活性. 哈佛大学的 Capasso 小组 [65,66], 普渡大学的 Shaleav 小组 [28,67], 伯明翰大学的 Zhang 小组 [26,68], 新加坡国立大学 Qiu 研究组 [69−71], 台湾大学 Tsai 小组 [72,73] 以及国内中国科学院光电技术研究所罗先刚团队 [74,75] 等在超表面位相调控机制及其应用方面做了大量的研究工作. 2016 年, 哈佛大学 Capasso 小组报道了一种利用二氧化钛微纳结构构建的超颖表面透镜, 如图 14 所示. 通过控制二氧化钛纳米砖阵列对入射光的相位调制, 在可见光区域实现了接近于衍射极限的远场成像, 其能量利用效率最高可达 90% 左右 [27,76,77]. 与传统的二元构型相比, 基于连续位相调制的超颖表面结构的平面超透镜将可以实现超高的能量利用效率, 是未来平面超透镜的重要研究方向.

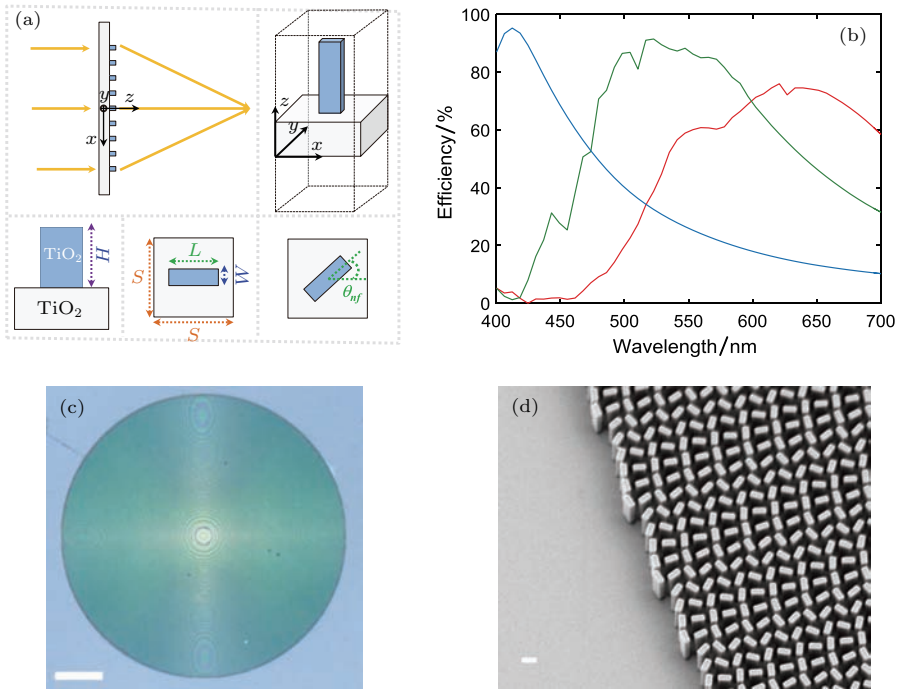


图 14 (a) TiO_2 纳米砖构型的超颖表面透镜示意图; (b) TiO_2 纳米砖型超颖表面的偏振转化效率与波长的依赖关系; (c) 加工制得的超透镜光学图像; (d) 超透镜局部的电镜图像 [27]

Fig. 14. (a) Schematic of the TiO_2 nanofin metalens; (b) simulated conversion efficiency as a function of wavelength; (c) optical image of the metalens (d) SEM micrograph of the fabricated metalens [27].

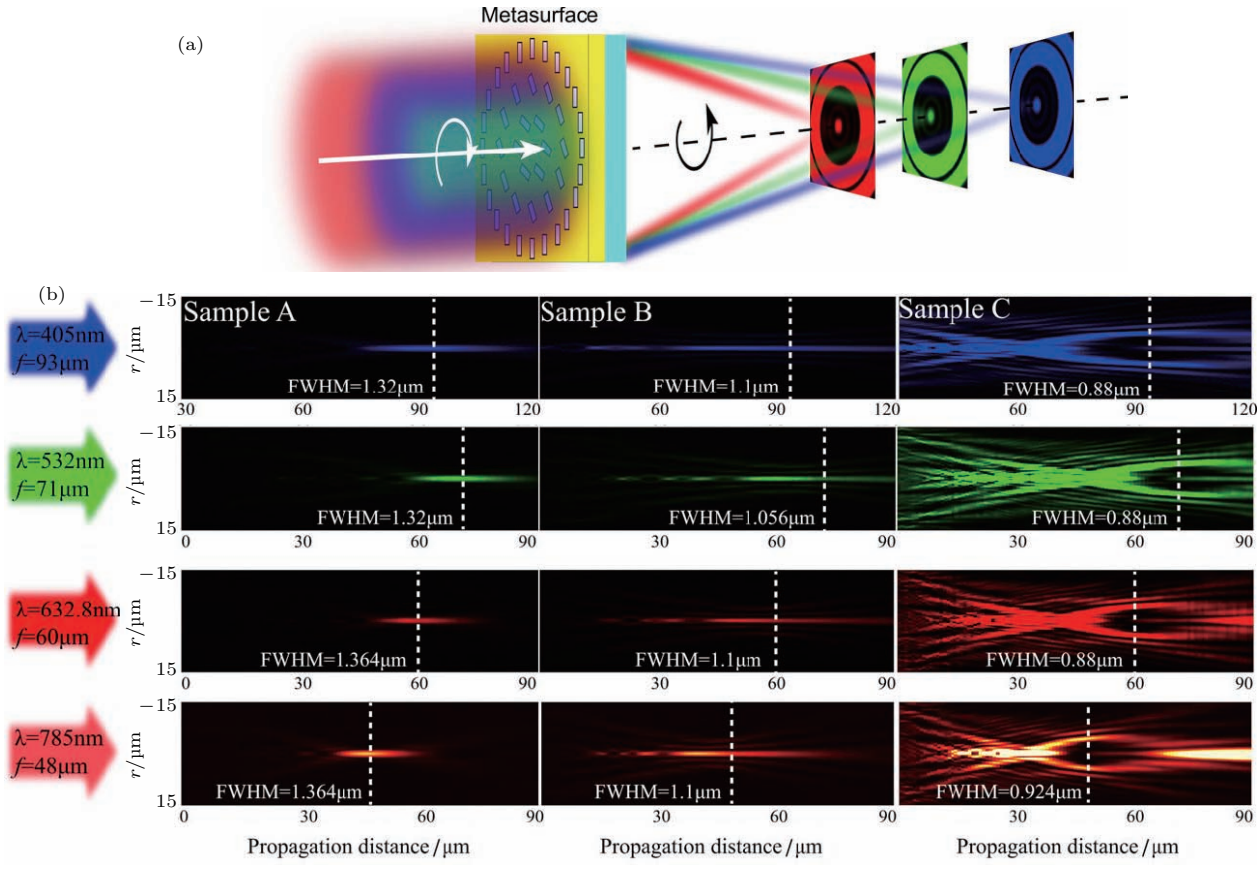


图 15 (a) 金属等离子体超颖表面超振荡透镜实现宽波段的超衍射极限聚焦示意图; (b) 实验记录得到的三种不同设计的平面透镜在不同波长入射光激发下的聚焦效果 [74]

Fig. 15. (a) Schematic of ultra-broadband sub-diffraction focusing with super-oscillatory plasmonic metasurface; (b) experimental recorded focusing effect for sample A, B, C at different wavelength, respectively [74].

3.3 宽谱响应的平面超透镜

工作带宽是一个光学器件的重要特性, 宽谱响应的平面超透镜能大幅提高实际应用的便利程度. 通过把金属等离子体超表面构型和超振荡技术相结合, 中国科学院光电技术研究所 Tang 等[74] 报道了一种宽谱的超振荡透镜的设计. 他们利用亚波长矩形孔阵列作为结构基本单元, 通过调整旋向角实现对散射光相位的调制, 发现在不同波长的左旋圆偏振光激发下, 矩形孔结构在 400—900 nm 的宽波段范围内, 不同旋向角的矩形孔之间只有透射振幅在远离共振波长时明显降低, 但相位差基本保持不变, 即亚波长矩形孔结构在不同波长下展现出了相位的无色散特性. 因此, 他们利用此亚波长矩形结构设计了三组不同的平面透镜, 并通过实验验证了宽谱的超衍射极限聚焦效果, 其最小聚焦尺寸可以达到 0.678 倍的衍射极限, 如图 15 所示. 该工作对远场白光的超分辨成像以及彩色全息显示有借鉴意义, 值得进一步研究推进.

3.4 平面透镜离轴像差的消除

目前已报道的大多数平面超透镜的聚焦和成像的研究仍然集中在光学傍轴区域. 对大角度离轴照明条件下, 不可避免地会出现严重的彗差和像散问题, 严重减小透镜的视场区域, 并限制平面超透镜大数值孔径条件下的成像性能. 对超越衍射极限的超振荡和超临界等平面透镜, 离轴像差问题尤为重要. 矫正离轴像差是实现平面透镜大角度扫描和大视场成像的关键. 传统三维体材料透镜可以通过表面精密修型的方式来缓减离轴像差的影响, 但该方法无法应用于平面透镜中. 麻省理工学院的 Faraon 等[78,79] 通过构建双层位相调控的方案在衍射受限的平面透镜中验证了像差矫正的的可行性, 进一步研究超衍射极限条件下的平面超透镜的像差矫正技术是使其进入实际应用的必要步骤.

4 总 结

平面超透镜为突破光学超衍射极限提供了一种行之有效的方法, 受到该领域科研工作者的广泛关注和大量研究. 其实现超分辨的聚焦和成像完全是通过对传输光场衍射干涉效应的精密调控来实现的, 是一种纯粹的光学效应, 不依赖于材料响应, 在显微成像、望远系统、失效检测、精密加工、高密度存储等各个领域有广泛的应用前景. 本综述简要总结了平面超透镜近年来的主要研究进展, 对当前平面超透镜存在的重大技术问题进行了讨论, 并对未来的研究和发展方向进行了相应的探讨. 在基础研究和应用需求的推动下, 平面超透镜的研究必将成长为纳米光子学研究领域中的主要热点和重要方向.

参考文献

[1] Airy G B 1835 *Trans. Cambridge Phil. Soc.* **5** 283
[2] Rayleigh L 1874 *Philos. Mag. Ser.* **47** 81
[3] Pendry J B 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 3966
[4] Liu Z W, Wei Q H, Zhang X 2005 *Nano Lett.* **5** 957
[5] Zhang X, Liu Z 2008 *Nat. Mater.* **7** 435
[6] Fang N, Lee H, Sun C, Zhang X 2005 *Science* **308** 534
[7] Lu D, Liu Z 2012 *Nat. Commun.* **3** 1205
[8] Jacob Z, Alekseyev L V, Narimanov E 2006 *Opt. Express* **14** 8247
[9] Liu Z, Lee H, Xiong Y, Sun C, Zhang X 2007 *Science* **315** 1686
[10] Hell S W, Wichmann J 1994 *Opt. Lett.* **19** 780
[11] Rittweger E, Han K Y, Irvine S E, Eggeling C, Hell S W 2009 *Nat. Photon.* **3** 144
[12] Willig K I, Rizzoli S O, Westphal V, Jahn R, Hell S W 2006 *Nature* **440** 935
[13] Willig K I, Harke B, Medda R, Hell S W 2007 *Nat. Methods* **4** 915
[14] Shroff H, Galbraith C G, Galbraith J A, Betzig E 2008 *Nat. Methods* **5** 417
[15] Planchon T A, Gao L, Milkie D E, Davidson M W, Galbraith J A, Galbraith C G, Betzig E 2011 *Nat. Methods* **8** 417
[16] Bates M, Huang B, Dempsey G T, Zhuang X 2007 *Science* **317** 1749
[17] Rust M J, Bates M, Zhuang X 2006 *Nat. Methods* **3** 793
[18] Yan Y, Li L, Feng C, Guo W, Lee S, Hong M 2014 *ACS Nano* **8** 1809
[19] Wang Z, Guo W, Li L, Luk'yanchuk B, Khan A, Liu Z, Chen Z, Hong M 2011 *Nat. Commun.* **2** 218
[20] Putten E G, Akbulut D, Bertolotti J, Vos W L, Lagendijk A, Mosk A P 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 193905
[21] Xie X, Chen Y, Yang K, Zhou J 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 263901
[22] Hao X, Kuang C, Gu Z, Wang Y, Li S, Ku Y, Li Y, Ge J, Liu X 2013 *Light Sci. Appl.* **2** e108
[23] Francia G T 1952 *Nuovo Cimento. Suppl.* **9** 426
[24] Li X, Venugopalan P, Ren H, Hong M, Gu M 2014 *Opt. Lett.* **39** 5961
[25] Li X, Cao Y, Gu M 2011 *Opt. Lett.* **36** 2510
[26] Chen X, Huang L, Muhlenbernd H, Li G, Bai B, Tan Q, Jin G, Qiu C W, Zhang S, Zentgraf T 2012 *Nature Commun.* **3** 1198

[27] Khorasaninejad M, Chen W T, Devlin R C, Oh J, Zhu A Y, Capasso F 2016 *Science* **352** 1190
[28] Ni X, Ishii S, Kildishev A V, Shalaev V M 2013 *Light Sci. Appl.* **2** e72
[29] Lin D, Fan P, Hasman E, Brongersma M L 2014 *Science* **345** 298
[30] Wang C, Tang D, Wang Y, Zhao Z, Wang J, Pu M, Zhang Y, Yan W, Gao P, Luo X 2015 *Sci. Rep.* **5** 18485
[31] Qin F, Huang K, Wu J, Teng J, Qiu C W, Hong M 2017 *Adv. Mater.* **29** 1602721
[32] Rogers E T F, Savo S, Lindberg J, Roy T, Dennis M R, Zheludev N I 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 031108
[33] Wang J, Qin F, Zhang D H, Li D, Wang Y, Shen X, Yu T, Teng J 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 061103
[34] Huang K, Ye H, Teng J, Yeo S P, Luk'yanchuk B, Qiu C 2014 *Laser Photon. Rev.* **8** 152
[35] Rogers E T, Lindberg J, Roy T, Savo S, Chad J E, Dennis M R, Zheludev N I 2012 *Nat. Mater.* **11** 432
[36] Qin F, Huang K, Wu J, Jiao J, Luo X, Qiu C, Hong M 2015 *Sci. Rep.* **5** 9977
[37] Yuan G, Rogers E T, Roy T, Adamo G, Shen Z, Zheludev N I 2014 *Sci. Rep.* **4** 6333
[38] Qin F, Hong M 2017 *Sci. China: Phys. Mech.* **60** 044231
[39] Chao W, Harteneck B D, Liddle J A, Anderson E H, Attwood D T 2005 *Nature* **435** 1210
[40] Zheng R, Jiang L, Feldman M 2006 *J. Vac. Sci. Technol. B* **24** 2844
[41] Chen G, Zhang K, Yu A, Wang X, Zhang Z, Li Y, Wen Z, Li C, Dai L, Jiang S, Lin F 2016 *Opt. Express* **24** 11002
[42] Ye H, Qiu C W, Huang K, Teng J, Luk'yanchuk B, Yeo S P 2013 *Laser Phys. Lett.* **10** 065004
[43] Aharonov Y, Albert D Z, Vaidman L 1988 *Phys. Rev. Lett.* **60** 1351
[44] Berry M V, Popescu S 2006 *J. Phys. A* **39** 6965
[45] Berry M V 2013 *J. Phys. A* **46** 205203
[46] Huang F M, Chen Y, Garcia de Abajo F J, Zheludev N I 2007 *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* **9** S285
[47] Huang F M, Zheludev N, Chen Y, Garcia de Abajo F J 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 091119
[48] Huang F M, Kao T S, Fedotov V A, Chen Y, Zheludev N I 2008 *Nano Lett.* **8** 2469
[49] Huang F M, Zheludev N I 2009 *Nano Lett.* **9** 1249
[50] Martınez-Corral M, Andres P, Zapata-Rodrıguez C J, Kowalczyk M 1999 *Opt. Commun.* **165** 267
[51] Wang H, Shi L, Lukyanchuk B, Sheppard C, Chong C T 2008 *Nat. Photon.* **2** 501
[52] Liu T, Shen T, Yang S, Jiang Z 2015 *J. Opt.* **17** 035610
[53] Davis B J, Karl W C, Swan A K, Unlu M S, Goldberg B B 2004 *Opt. Express* **12** 4150
[54] Liu T, Tan J, Liu J 2010 *Opt. Express* **18** 2822
[55] Tian B, Pu J 2011 *Opt. Lett.* **36** 2014
[56] Liu T, Tan J, Liu J, Lin J 2013 *J. Mod. Opt.* **60** 378
[57] Rogers E T F, Zheludev N I 2013 *J. Opt.* **15** 094008
[58] Roy T, Rogers E T F, Zheludev N I 2013 *Opt. Express* **21** 7577
[59] Roy T, Rogers E T F, Yuan G, Zheludev N I 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 231109
[60] Yuan G, Rogers E T, Roy T, Shen Z, Zheludev N I 2014 *Opt. Express* **22** 6428
[61] Yuan G, Vezzoli S, Altuzarra C, Rogers E T, Couteau C, Soci C, Zheludev N I 2016 *Light Sci. Appl.* **5** e16127
[62] Wang Q, Rogers E T F, Gholipour B, Wang C M, Yuan G, Teng J, Zheludev N I 2015 *Nat. Photon.* **10** 60
[63] Zheng X, Jia B, Lin H, Qiu L, Li D, Gu M 2015 *Nat. Commun.* **6** 8433
[64] Yuan G, Rogers E T, Zheludev N I 2017 *Light Sci. Appl.* (in press) doi:101038/lsa.201736
[65] Aieta F, Genevet P, Yu N, Kats M A, Gaburro Z, Capasso F 2012 *Nano Lett.* **12** 1702
[66] Yu N, Genevet P, Kats M A, Aieta F, Tetienne J P, Capasso F, Gaburro Z 2011 *Science* **334** 333
[67] Ni X, Kildishev A V, Shalaev V M 2013 *Nat. Commun.* **4** 2807
[68] Zheng G, Mühlenbernd H, Kenney M, Li G, Zentgraf T, Zhang S 2015 *Nat. Nanotech.* **10** 308
[69] Zhang L, Mei S, Huang K, Qiu C W 2016 *Adv. Opt. Mater.* **4** 818
[70] Huang K, Dong Z, Mei S, Zhang L, Liu Y, Liu H, Zhu H, Teng J, Luk'yanchuk B, Yang J K W, Qiu C W 2016 *Laser Photon. Rev.* **10** 500
[71] Qin F, Ding L, Zhang L, Monticone F, Chum C C, Deng J, Mei S, Li Y, Teng J, Hong M, Zhang S, Alù A, Qiu C W 2016 *Sci. Adv.* **2** e1501168
[72] Chu C H, Tseng M L, Chen J, Wu P C, Chen Y H, Wang H C, Chen T Y, Hsieh W T, Wu H J, Sun G, Tsai D P 2016 *Laser Photon. Rev.* **10** 986
[73] Wu P C, Tsai W Y, Chen W T, Huang Y W, Chen T Y, Chen J W, Liao C Y, Chu C H, Sun G, Tsai D P 2017 *Nano Lett.* **17** 445
[74] Tang D, Wang C, Zhao Z, Wang Y, Pu M, Li X, Gao P, Luo X 2015 *Laser Photon. Rev.* **9** 713
[75] Luo X 2015 *Sci. China: Phys. Mech.* **58** 594201
[76] Khorasaninejad M, Zhu A Y, Roques-Carmes C, Chen W T, Oh J, Mishra I, Devlin R C, Capasso F 2016 *Nano Lett.* **16** 7229
[77] Khorasaninejad M, Chen W T, Zhu A Y, Oh J, Devlin R C, Rousso D, Capasso F 2016 *Nano Lett.* **16** 4595
[78] Arbabi A, Horie Y, Ball A J, Bagheri M, Faraon A 2015 *Nat. Commun.* **6** 7069
[79] Arbabi A, Arbabi E, Kamali S M, Horie Y, Han S, Faraon A 2016 *Nat. Commun.* **7** 13682

SPECIAL ISSUE—Diffraction limit of electromagnetic waves

Advances in the far-field sub-diffraction limit focusing and super-resolution imaging by planar metalenses*

Qin Fei[1)2)] Hong Ming-Hui[2)†] Cao Yao-Yu[1)] Li Xiang-Ping[1)‡]

1) (*Institute of Photonics Technology, Jinan University, Guangzhou 510632, China*)

2) (*Department of Electrical and Computer Engineering, National University of Singapore, Singapore 117583, Singapore*)

(Received 9 May 2017; revised manuscript received 31 May 2017)

Abstract

Due to the fundamental laws of wave optics, the spatial resolution of traditional optical microscopy is limited by the Rayleigh criterion. Enormous efforts have been made in the past decades to break through the diffraction limit barrier and in depth understand the dynamic processes and static properties. A growing array of super-resolution techniques by distinct approaches have been invented, which can be assigned to two categories: near-field and far-field super-resolution techniques. The near-field techniques, including near-field scanning optical microscopy, superlens, hyperlens, etc., could break through the diffraction limit and realize super-resolution imaging by collecting and modulating the evanescent wave. However, near-field technique suffers a limitation of very short working distances because of the confined propagation distance of evanescent wave, and certainly produces a mechanical damage to the specimen. The super-resolution fluorescence microscopy methods, such as STED, STORM, PALM, etc., could successfully surpass the diffractive limit in far field by selectively activating or deactivating fluorophores rooted in the nonlinear response to excitation light. But those techniques heavily rely on the properties of the fluorophores, and the labelling process makes them only suitable for narrow class samples. Developing a novel approach which could break through the diffraction limit in far field without any near-field operation or labelling processes is of significance for not only scientific research but also industrial production. Recently, the planar metalenses emerge as a promising approach, owing to the theoretical innovation, flexible design, and merits of high efficiency, integratable and so forth. In this review, the most recent progress of planar metalenses is briefly summarized in the aspects of sub-diffractive limit focusing and super-resolution imaging. In addition, the challenge to transforming this academic concept into practical applications, and the future development in the field of planar metalenses are also discussed briefly.

Keywords: planar metalens, diffractive optics, micro/nano structures, super-resolution

PACS: 42.79.–e, 42.25.Fx, 78.67.Pt, 42.30.–d **DOI:** 10.7498/aps.66.144206

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61522504).

† Corresponding author. E-mail: elehmh@nus.edu.sg

‡ Corresponding author. E-mail: xiangpingli@jnu.edu.cn

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

基于电磁超表面的透镜成像技术研究进展

范庆斌　徐挺

Research progress of imaging technologies based on electromagnetic metasurfaces

Fan Qing-Bin　Xu Ting

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 144208 (2017)　DOI: 10.7498/aps.66.144208
在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.144208
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I14

您可能感兴趣的其他文章
Articles you may be interested in

基于光纤光栅的冲击激励声发射响应机理与定位方法研究
Acoustic emission localization technique based on fiber Bragg grating sensing network and signal feature reconstruction
物理学报.2017, 66(7): 074210　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.074210

基于光克尔效应的径向光束匀滑新方案
A novel radial beam smoothing scheme based on optical Kerr effect
物理学报.2016, 65(9): 094207　http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.094207

基于六角格子光子晶体波导的高效全光二极管设计
High efficiency all-optical diode based on hexagonal lattice photonic crystal waveguide
物理学报.2016, 65(6): 064207　http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.064207

外腔镜非线性运动对激光回馈应力测量系统精度的影响及修正
Correction of error induced by nonlinear movement of feedback mirror in laser feedback stress measurment system
物理学报.2015, 64(8): 084208　http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.084208

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

专题: 电磁波衍射极限

基于电磁超表面的透镜成像技术研究进展*

范庆斌 徐挺†

(南京大学, 固体微结构物理国家重点实验室, 南京 210093)

(2017 年 3 月 31 日收到; 2017 年 5 月 9 日收到修改稿)

电磁超表面属于超材料的一种, 是由许多亚波长纳米结构单元组成的二维功能性平面结构. 根据惠更斯原理, 超表面阵列可以任意调控光波的相位、振幅和偏振. 与传统器件相比, 基于这种超材料设计的光学功能器件最大的优势是其具有极薄的厚度. 本文首先介绍了广义斯涅耳定律以及纳米单元结构调控相位的基本原理, 重点归纳了电磁超表面在透镜成像技术方面的研究进展, 包括等离子体超表面、全介质超表面以及金属/介质混合式超表面在成像方面的应用, 最后指出了超表面在成像方面尚未解决的前沿问题以及与实际应用接轨的重要问题, 希望能为以后的深入研究提供一定的参考和借鉴.

关键词: 超表面, 成像, 惠更斯原理, 波前调控

PACS: 42.79.Bh, 42.79.–e, 42.30.–d, 42.25.Fx **DOI:** 10.7498/aps.66.144208

1 引 言

透镜的起源可以追溯到古希腊时代, 在宗教仪式中用来汇聚太阳光点火或者在古文明时期作为一种装饰品. 在中国古代也有关于透镜的记载, 如“凡取火者, 宜敲石取火, 或水晶镜子于日得太阳火为妙”. 另外, 早在2000多年前的古罗马帝国, 人们已经知道如何烧制玻璃并且知道了充满水的玻璃球具有放大功能. 透镜是运用光的折射规律制作成的, 根据功能需要可以设计成具有不同凹凸面形的镜片. 人眼的晶状体也是一种性能优越的透镜, 可以依靠肌肉的收缩来调节焦距, 所以对于不同距离的物体都能清晰地在视网膜中成像.

如今, 透镜已经成为成像系统的关键器件, 是显微镜、数码相机、肠胃镜以及望远镜等现代科技产品的关键组成部分, 广泛应用于科研、生活、医疗、军事等领域. 传统的光学成像系统主要是通过多种类型的透镜组装而成, 因而需要一个较为复杂的制造流程. 随着现代光学系统的集成化发展, 缩小光学器件的尺寸越来越具有挑战性. 而且, 摄影、可穿戴设备以及医疗器件的迅速发展要求光学系统具备高性能、低损耗、易集成的特点. 因此, 研究基于新型材料的光学成像器件迫在眉睫.

电磁超材料 (metamaterial) 是一种人工复合结构, 它通过在材料亚波长尺度上电磁结构的有序设计, 可以突破某些表观自然规律的限制, 获得超出自然界固有电磁性质的超常材料功能. 早在1967年, Veselago [1] 就提出了负折射超材料的可行性以及物理意义, 他发现在这样一种负折射媒质当中可以产生一系列奇异的物理现象, 例如逆多普勒频移、逆切伦科夫辐射以及反常折射等. 2000年, Pendry [2] 理论证明了基于负折射超材料的平板透镜可以恢复物体的倏逝波信息, 实现完美成像. 目前, 已经有很多关于负折射超材料平板透镜能突破衍射极限实现超分辨成像的实验和理论报道 [3–5]. 然而, 这些基于负折射的超材料平板透镜成像效率仍然很低, 难以实用化. 近几年出现的光学超表面 (metasurface) 属于光学超材料的一种, 是由许多亚波长结构单元按照特定功能需要排列

* 国家自然科学基金 (批准号: 61575092) 和国家重点研发计划 (批准号: 2016YFA0202100) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xuting@nju.edu.cn

© 2017 中国物理学会 Chinese Physical Society

而形成的一种超薄二维平面结构. 从原理上讲, 它可以根据人们的需求任意改变光波的相位、振幅和偏振, 从而实现对光场的波前调控. 2011 年, 哈佛大学 Capasso 等[6] 提出了广义斯涅耳定律, 并基于该定律设计了具有波前调控能力的平面光学材料, 即超表面. 所设计的材料采用一组不同结构参数的 V 形金纳米天线按照特定的规律排列在介质表面, 其中每个纳米天线都可以看作一个相位控制器, 该材料在波长 8 μm 处实现了光的异常反射/折射效应. 缩小 V 形金纳米天线单元的结构尺寸这个思想很快在近红外波段 (1—2 μm) 也得到验证[7]. 在国内, 复旦大学周磊等[8] 设计了反射式相位梯度超表面 (phase-gradient metasurfaces), 其结构单元由方形金纳米块/介质层/金反射层组成, 该超表面阵列可以实现高效的异常反射. 当入射角度增大到某个特定的临界角时, 入射的传输波将被转化为表面波. 随着研究热潮的掀起, 众多研究团队开展了基于超表面的平面光学器件研究, 其在许多领域, 包括全息成像[9,10]、涡旋光束[11,12]、偏振转化和控制[13,14] 以及透镜成像等[15−18] 方面展现出巨大的应用前景.

本综述主要介绍了广义斯涅耳定律 (generalized Snell's law) 以及纳米单元结构调控相位的两种机理, 即光波在金属纳米结构中激发的局域表面等离子体共振引起的相位改变和光波在弱谐振介质柱波导中传播所引起的相位改变. 重点归纳了电磁超表面在透镜成像方面的研究进展, 包括等离子体超表面、全介质超表面以及金属/介质混合式超表面在成像方面的应用. 最后指出了超表面在成像方面尚未解决的前沿问题以及与实际应用接轨的重要问题, 为以后的深入研究指明了重点研究方向并提供了一定的参考和借鉴.

2 广义斯涅耳定律

传统的光学器件主要依赖于斯涅耳定律, 即光的折射定律. 通过光波在不同厚度的介质内传播的过程中逐渐积累相位来改变光波的波前, 实现光场的整形与调控. 广义斯涅耳定律与传统斯涅耳定律不同, 是在遵循费马原理的基础上, 采用相位不连续的方式调控光波的波前[6], 可以实现光波的反常反射与反常折射, 甚至光场的任意调控.

电磁超表面是基于广义斯涅耳定律发展起来的一种功能性的二维平面结构. 如图 1 (a) 所示, 光波经过两种介质的交界面处, 假设图中的两条路径无限接近于实际的光路. 根据费马原理光波由 A 点经过两条不同的路径到达 B 点是等光程的, 因此有

$$\begin{aligned} &k_0 n_{\mathrm{i}} \sin\theta_{\mathrm{i}}\,\mathrm{d}x + (\Phi + \mathrm{d}\Phi) \\ &= k_0 n_{\mathrm{t}} \sin\theta_{\mathrm{t}}\,\mathrm{d}x + \Phi, \end{aligned} \tag{1}$$

其中, θ_{i} 是入射角度; θ_{t} 是折射角度; Φ 和 $\Phi+\mathrm{d}\Phi$ 分别是两条光路与界面交点的不连续相位; $\mathrm{d}x$ 是界面两个交点的距离; n_{i} 和 n_{t} 是两种介质的折射率; $k_0=2\pi/\lambda_0$, λ_0 为真空波长. 则由方程 (1) 可以推得折射定律 (广义斯涅耳定律) 表达式为

$$\sin\theta_{\mathrm{t}} n_{\mathrm{t}} - \sin\left(\theta_{\mathrm{i}}\right) n_{\mathrm{i}} = \frac{\lambda_0}{2\pi}\frac{\mathrm{d}\Phi}{\mathrm{d}x}. \tag{2}$$

由 (2) 式可以看出, 如果介质交界面处引进一个具有梯度的相位突变 ($\mathrm{d}\Phi/\mathrm{d}x$), 出射光束可以实现任意方向的偏折. 同理, 可推得反射定律 (广义斯涅耳定律) 表达式为

$$\sin\theta_{\mathrm{r}} - \sin\theta_{\mathrm{i}} = \frac{\lambda_0}{2\pi n_{\mathrm{i}}}\frac{\mathrm{d}\Phi}{\mathrm{d}x}, \tag{3}$$

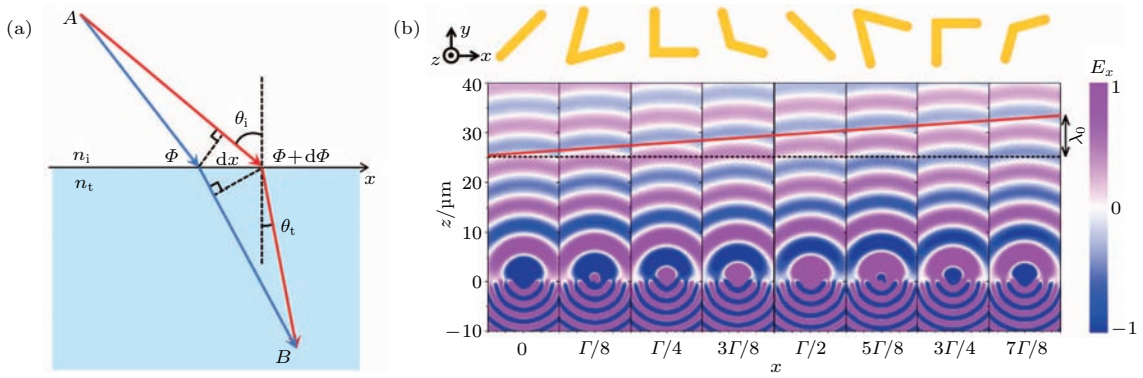


图 1 广义斯涅耳折射定律示意图[6]

Fig. 1. Schematic of the generalized Snell's law of refraction[6].

其中, $\theta_{\rm r}$ 为反射角度. 由 (3) 式可以得知, 当光波的入射角度达到某一个特定值时, 反射光束将会消失. 该特定输入角度的表达式为

$$\theta'_{\rm c} = \arcsin\left(1 - \frac{\lambda_0}{2\pi n_{\rm i}}\left|\frac{{\rm d}\Phi}{{\rm d}x}\right|\right). \tag{4}$$

由 (2) 式和 (3) 式可以看出, 当 ${\rm d}\Phi/{\rm d}x = 0$ 时, 广义斯涅耳定律与传统的斯涅耳定律相同; 当 ${\rm d}\Phi/{\rm d}x \neq 0$ 时, 传统的斯涅耳定律被修改, 将导致反常的反射/折射. 广义斯涅耳定律实际上是对传统斯涅耳定律的补充和升华, 具有更广泛的普适性. 当 $n_{\rm t} < n_{\rm i}$ 时, 可以推得全内反射临界角为

$$\theta_{\rm c} = \arcsin\left(\pm\frac{n_{\rm t}}{n_{\rm i}} - \frac{\lambda_0}{2\pi n_{\rm i}}\frac{{\rm d}\Phi}{{\rm d}x}\right). \tag{5}$$

根据上述的广义斯涅耳定律, 超表面改变波前的工作原理如图 1 (b) 所示, 不同结构的 V 形金属纳米天线对入射光波的响应为不同的振幅和相位, 所选的一组 V 形金属纳米天线离散的覆盖光波 0—2π 的相位范围. 根据惠更斯原理, 超表面上的每一个点都是一个次级球面波的子波源并且辐射相位各不相同, 因此激发出不同半径的球面波, 它们的等相位面产生一个倾斜的角度, 从而实现了反常折射.

这里需要说明的是, 文献 [6] 中阐述的相位不连续超表面包含 2 个界面, 一个是光波从由基底与纳米单元结构层 A 组成的界面入射, 即基底/A 界面; 另一个是光波从由纳米单元结构层与自由空间组成的界面出射, 即 A/自由空间界面. 在这两个界面之间存在一个由纳米单元结构与自由空间混合的结构层. 广义斯涅耳定律是将超表面微结构中发生的复杂光学现象归结为一个相位不连续的数学因子. 从微观角度分析, 对于单个的纳米结构单元, 入射光波与纳米结构单元相互作用产生了局域表面等离子体共振, 也就是实现了从光子到表面等离激元的转化. 之后表面等离激元经过结构散射效应又重新转化为自由空间的光子, 形成了传播波. 这一“光子-表面等离激元-光子”的转化过程伴随着纳米共振结构对电磁场相位和振幅的调制. 文献 [6] 正是将这样一个光学过程引起的相位变化采用一个相位 Φ 来表示, 并且由于金属结构层的厚度 h 远小于工作波长 λ ($h = \lambda/160$), 这样的做法是合理的、有效的. 所以, 从金属纳米结构阵列整体所体现的宏观效果上看, 可以较为准确地实现所需要的相位分布和振幅变化, 即它的实验结果与设计理论是相符合的.

3 光波振幅和相位的调控机理

根据超表面所用的材料不同, 超表面的结构单元调控振幅和相位的机理分为两种. 一种机理是纳米单元结构为金属的局域表面等离子体共振 (localized surface-plasmon resonance, LSPR), 如图 2 (a) 所示. 早期的超表面主要采用的是贵金属材料 [6,7,19−22], 通过在基底上排布不同形状、大小和方向的纳米结构单元来构成阵列. 当入射光波的频率与贵金属纳米结构表面的传导电子的集体振荡频率相匹配时, 光在金属纳米结构表面会发生谐振散射, 即产生局域表面等离子体共振. LSPR 现象可以粗略地用一个谐振子模型来描述 [23], 所能提供的相位范围为 0—π. 金属纳米天线的磁谐振可以忽略不计, 仅仅表现为电谐振, 这与采用金属开口环实现强的磁偶极子谐振截然不同 [24,25]. 另一种机理是纳米单元结构为高折射率介质的电偶极子和磁偶极子谐振的重叠 [26,27], 如图 2 (b)—图 2 (d) 所示. 当光传输通过介质柱时, 可以将它看成一条传播波导, 其工作原理类似于弱耦合低品质因子谐振器, 介质内部的磁能流密度分布如图 2 (e) 所示. 通常, 对于某个特定的目标波长, 需要设计一个合理的周期和纳米单元结构与之对应, 使得光波在结构单元中的散射只是局部效应, 散射单元之间的耦合作用才可以忽略.

无论是贵金属材料还是高折射率介质材料, 在设计与偏振相关的超表面阵列时, 通常可以分为三种类型: 一种是传播相位, 它允许设计独立、任意的相位分布来控制两个不同的正交线偏振光, 主要是通过改变纳米结构单元的几何形状和尺寸来获得突变相位, 如图 2 (f) 所示; 第二种是 Pancharatnam-Berry (PB) 相位或者几何相位 [28−31], 这种设计方式可以给予两种圆偏振光相同但相反的相位分布, 它是通过纳米结构单元的旋转角度与相位的关系来调控波前, 如图 2 (g) 所示; 第三种是 PB 相位与传播相位相结合 [32,33], 这种设计方式代表了更为一般的情况, 它可以用来控制椭圆偏振光, 其阵列分布如图 2 (h) 所示.

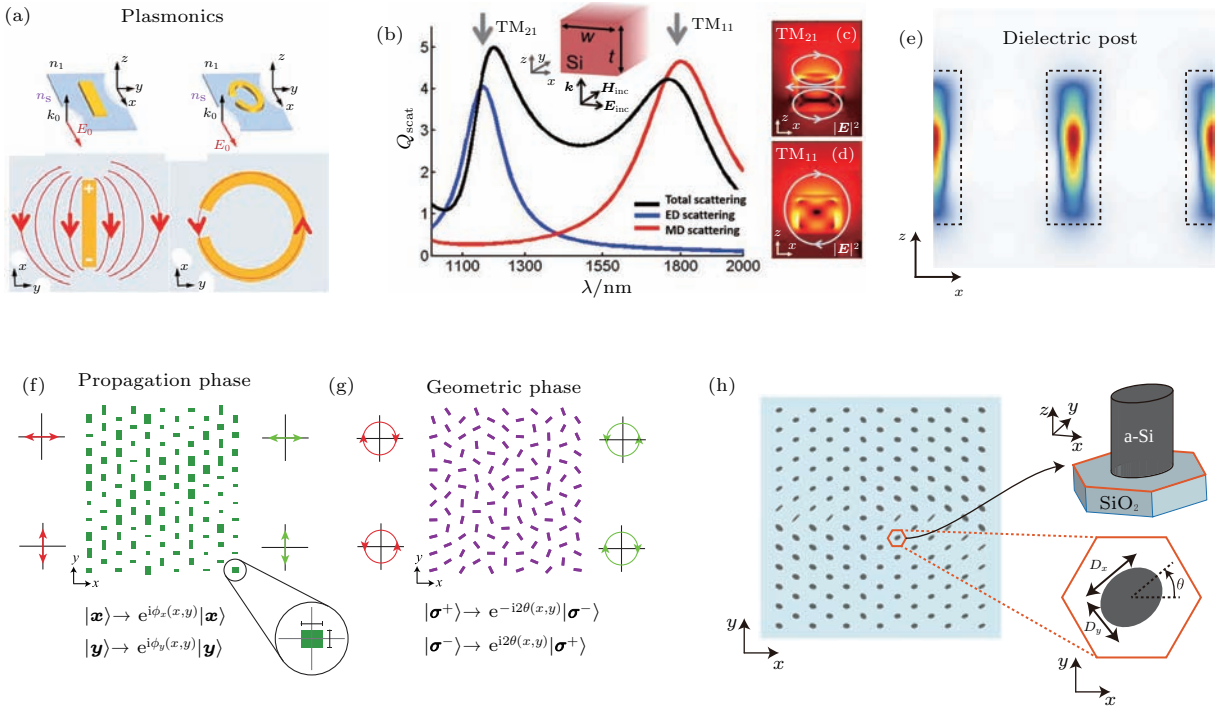


图 2 (a) 金属等离子体共振中的电场分布示意图 [25]; (b) 单个矩形硅柱作为介质谐振器的电磁场散射属性 [26], 相应的 (c) 电偶极子模式分布图 [26] 和 (d) 磁偶极子模式分布图 [26]; (e) 光传输通过介质柱时的磁能流密度分布图 [33]; (f) 传输相位 [32]; (g) PB 几何相位 [32]; (h) 传输相位与几何相位的结合示意图 [33]

Fig. 2. (a) Schematic of the electric field in plasmonic resonators[25]; (b) scattering properties of an isolated silicon rectangular dielectric resonator[26], corresponding (c) electric dipole (ED) mode[26] and (d) magnetic dipole (MD) mode[26]; (e) magnetic energy density when light propagates through an array of posts[33]; (f) propagation phase[32]; (g) geometric phase[32]; (h) schematic of the combination of the propagation and geometric phases[33].

对于一个亚波长纳米单元结构, 可以用线偏振入射波的传输系数定义的琼斯矩阵来描述:

$$\boldsymbol{J}_0 = \begin{bmatrix} t_x & 0 \\ 0 & t_y \mathrm{e}^{\mathrm{i}\varphi} \end{bmatrix}, \tag{6}$$

其中, t_x, t_y 分别为两个正交线偏振光的传输系数; φ 为两个正交线偏振光之间的相位差.

由琼斯矩阵可以推得纳米单元结构在圆偏振光入射情况下的传输矩阵:

$$\begin{aligned} \boldsymbol{T} &= \boldsymbol{R}(-\theta)\,\boldsymbol{J}_0\boldsymbol{R}(\theta) \\ &= \begin{bmatrix} \cos\theta & -\sin\theta \\ \sin\theta & \cos\theta \end{bmatrix} \begin{bmatrix} t_x & 0 \\ 0 & t_y \mathrm{e}^{\mathrm{i}\varphi} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos\theta & \sin\theta \\ -\sin\theta & \cos\theta \end{bmatrix} \\ &= \frac{1}{2}\left(t_x + t_y \mathrm{e}^{\mathrm{i}\varphi}\right) \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \\ &\quad + \frac{1}{2}\left(t_x - t_y \mathrm{e}^{\mathrm{i}\varphi}\right) \begin{bmatrix} \cos(2\theta) & \sin(2\theta) \\ \sin(2\theta) & -\cos(2\theta) \end{bmatrix}, \end{aligned} \tag{7}$$

其中, $\boldsymbol{R}(\theta)$ 为旋转矩阵. 对于一个输入的圆偏振光 $|E_{\mathrm{in}}\rangle$, 经过纳米单元结构后, 输出电场可以表示为

$$\begin{aligned} |E_{\mathrm{out}}\rangle &= \boldsymbol{T}|E_{\mathrm{in}}\rangle \\ &= \frac{1}{2}\left(t_x + t_y \mathrm{e}^{\mathrm{i}\varphi}\right)|E_{\mathrm{in}}\rangle + \frac{1}{2}\left(t_x - t_y \mathrm{e}^{\mathrm{i}\varphi}\right) \\ &\quad \times [\langle E_{\mathrm{in}}|R\rangle \mathrm{e}^{-\mathrm{i}2\theta}|L\rangle + \langle E_{\mathrm{in}}|L\rangle \mathrm{e}^{\mathrm{i}2\theta}|R\rangle]. \end{aligned} \tag{8}$$

由 (8) 式可以看出, 如果满足 $t_x = t_y = 1$ 和 $\varphi = \pi$, 入射的圆偏光将被转化为交叉偏振光. 例如当入射光为左旋圆偏振光 $|L\rangle$ 时, 则输出电场为 $|E_{\mathrm{out}}\rangle = \mathrm{e}^{\mathrm{i}2\theta}|R\rangle$. 因此, 可以得到纳米单元结构旋转前后入射光波的相位差与旋转角度的关系为 $\varphi' = 2\theta$. 并且, 两个线偏振光产生了 π 的相位延时, 即从左旋圆偏振光转化为右旋圆偏振光.

4 电磁超表面成像应用

基于电磁超表面的聚焦成像器件已经被广泛提出, 从太赫兹波段到可见光波段 [34–37], 从简单的光场聚焦到复杂的消像差成像 [38–41]、从偏振敏感到偏振无关 [42,43], 从等离子体超表面 [15,19,44–58] 到全介质超表面 [59–71], 以及最近出现的金属/介质混合式超表面 [72,73]. 在短短的几年内, 超表面在

透镜成像领域的研究已经取得了许多重要进展, 为远场亚波长聚焦、高分辨成像以及光子集成等相关领域提供了新的理论指导.

4.1 等离子体超表面透镜成像

等离子体超表面是指由金属纳米结构单元组成, 通过激发金属纳米结构的局域表面等离子体谐振来控制幅度和相位的超表面阵列. 如图3所示, 等离子体超表面分为三种类型: 一种是金属纳米结构单元直接排列在透明介质基底上的透射式超表面[6,7,15]; 第二种是基于巴比涅反转原理的金属孔式超表面[45−47]; 第三种是金属/介质/金属多层结构的反射式超表面[48−56].

2012年, Capasso等[15]首次利用等离子体超表面设计了一款通信波段的成像透镜. 如图4(a)所示, 该超表面透镜由V形金属纳米天线按照特定的相位分布离散地排列在基底介质上构成, 离散的纳米天线阵列所具有的相位分布事实上是对理想相位分布的一种近似. 在无球差成像透镜的设计中, 通常采用双曲面型的相位场分布来构建一个完美的球面波前, 对于波长为λ的正入射光束, 其相位场分布$\varphi_{\rm normal}(x,y)$为

$$\varphi_{\rm normal}(x,y) = \frac{2\pi}{\lambda}\left(f-\sqrt{x^2+y^2+f^2}\right), \tag{9}$$

其中, f为透镜的焦距, (x,y)为纳米单元结构的位置坐标. 另外, 还可以构建另一种锥形的相位场分布, 实现深聚焦(depth of focus, DOF)功能, 所设计的器件被称作锥透镜或者轴对称棱镜. 其相位场分布$\varphi_{\rm DOF}(x,y)$为

$$\varphi_{\rm DOF}(x,y) = \frac{2\pi}{\lambda}\sqrt{(x^2+y^2)}\sin\beta, \tag{10}$$

其中, $\beta=\tan^{-1}(r/{\rm DOF})$, r为超表面透镜的半径大小. 如图4(b)所示, 可以直观地看出(9)和(10)表达式所代表的平板透镜和平板锥透镜的相位分布. 图4(c)为计算的两种器件的电场分布图, 结果表明通过合理的设计这种极薄的二维平面阵列结构可以有效地实现聚焦成像功能.

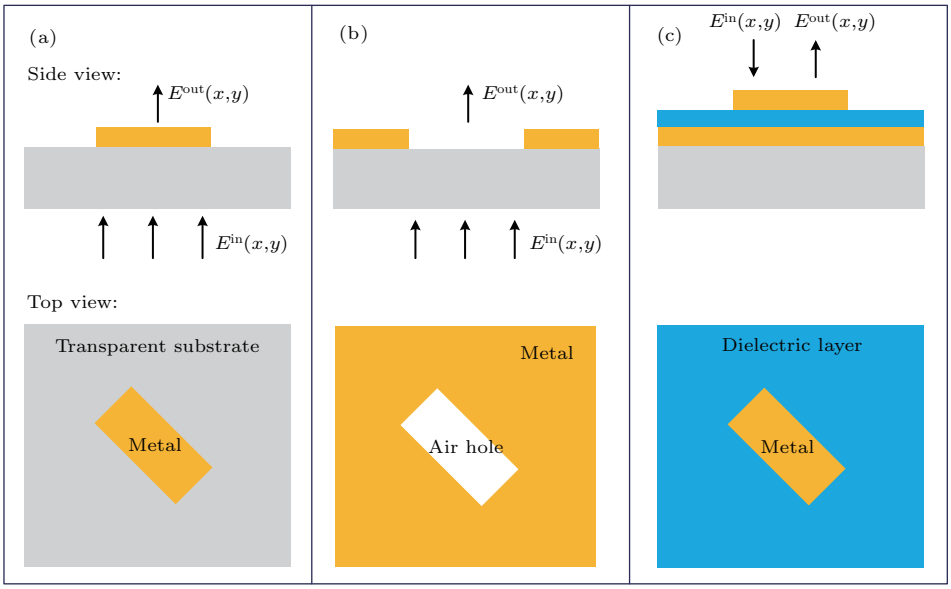


图3 (a)透射式等离子体超表面结构示意图; (b)巴比涅反转超表面结构示意图; (c)反射式等离子体超表面结构示意图

Fig. 3. (a) Structure diagram of the transmissive plasmonic metasurface; (b) Babinet-inverted plasmonic metasurface; (c) structure diagram of the reflective plasmonic metasurface.

2013年, 普渡大学Ni等[47]提出了基于巴比涅反转原理的等离子体超表面, 设计了一款直径为4 μm的透镜. 在该器件中, 所设计的孔状单元结构与凸起的V形金属纳米天线正好呈互补关系. 根据巴比涅原理, 这两个互补的纳米结构在衍射场中某点单独产生的复振幅之和等于光在自由传播时该点的复振幅. 基于该原理, 同样可以得到透镜需要的相位分布. 所设计的透镜的聚焦效率约为10%, 主要是由于电磁波与金属自由电子的相互作用会产生很强的损耗. 所以, 基于金属孔或金属纳米天线构造的超表面阵列所设计的器件效率不高, 特别是在可见光频段效率更低. 在金属纳米天线厚度

远小于波长的情况下, 仅通过改变纳米天线的几何尺寸得到的一组结构所提供的最大相位覆盖范围为0—π, 因此必须结合PB相位使其覆盖0—2π 的相位范围. 随着基于金属/介质/金属多层结构的反射式超表面的提出, 纯PB相位法可以用于设计与圆偏振手性相关的超表面器件. 反射式透镜也是一种常用的光学器件, 反射式超表面透镜通常由金属/介质/金属多层结构构成, 最底下一层金属充当全反射镜的作用, 最顶层为金属纳米单元结构, 中间采用介质层隔开. 南丹麦大学Pors等[44]基于反射式超表面在近红外波段设计了一款聚焦镜, 实验验证了该器件的聚焦效率在14%—27%之间. 北京大学于晓梅等[43]基于高旋转对称性纳米单元结构设计了一款偏振无关的聚焦镜, 提高了入射光波的能量利用率. 另外, 在诸多报道[29,48,56]中发现基于金属/介质/金属多层结构的反射式超表面对比透射式等离子体超表面具有更高的效率.

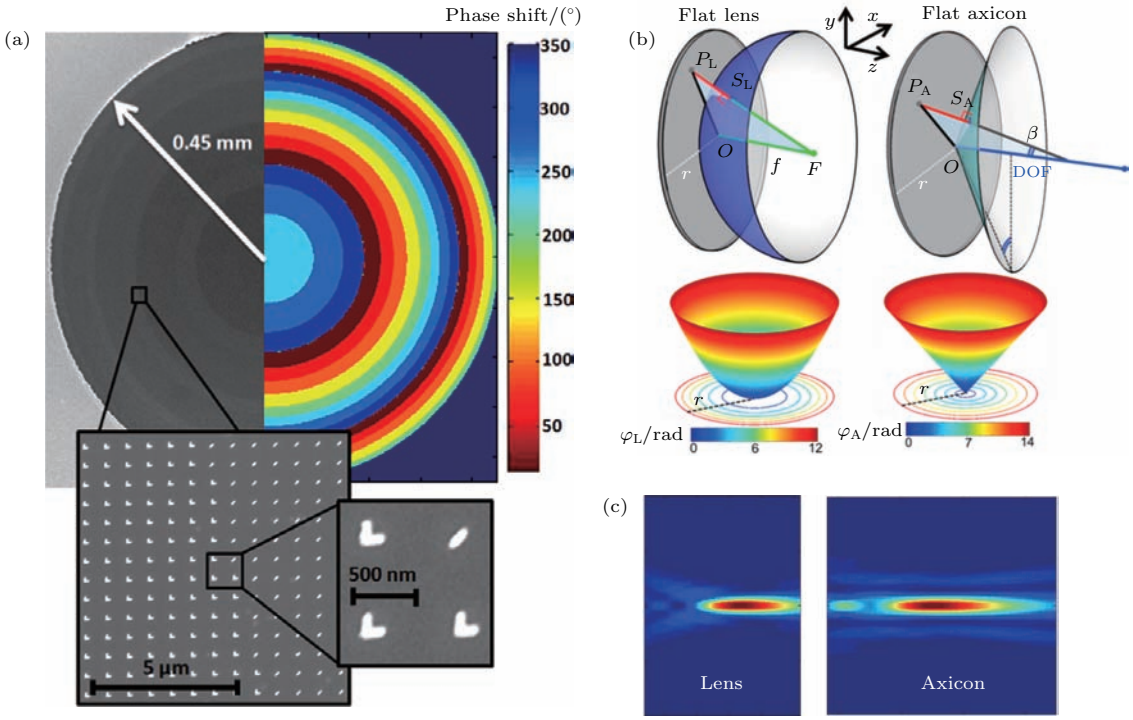


图4 (a) 制备的超透镜样品的扫描电子显微镜图; (b) 相位分布图; (c) x-z 平面的电场强度分布图[15]

Fig. 4. (a) SEM image of the fabricated lens; (b) phase profiles; (c) electric intensity distribution of the reflected beam in the x-z plane at $y = 0$[15].

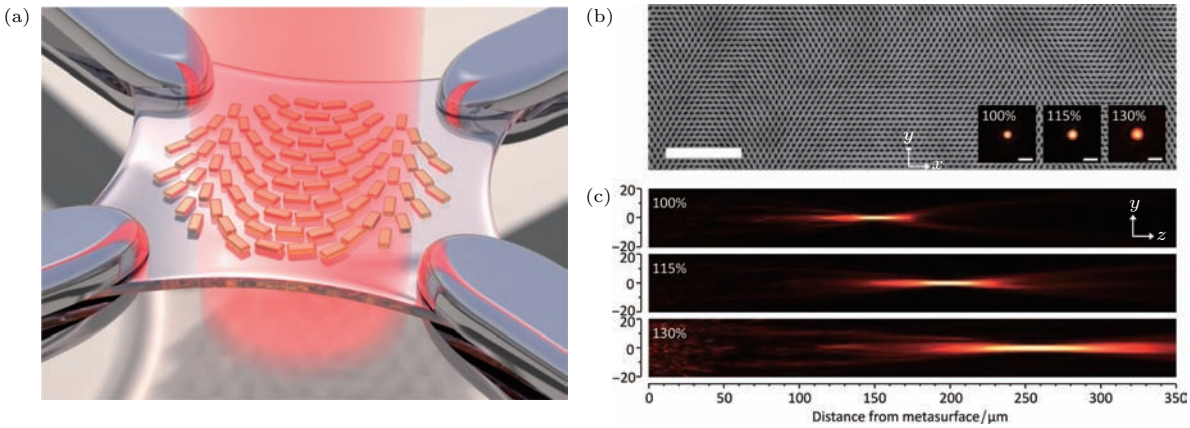


图5 (a) 可拉伸超表面示意图; (b) 可拉伸超透镜的扫描电子显微镜图; (c) 测量的光场分布[57]

Fig. 5. (a) Tunable metasurface on a stretchable substrate; (b) SEM image of the fabricated stretchable lens; (c) the measured beam profiles[57].

另一方面, 可调谐、可重构超表面成像透镜已经初步得到了验证[57,58], Ee 和 Agarwal[57] 采用聚二甲硅氧烷 (polydimethylsiloxane, PDMS) 作为基底, 由于 PDMS 是一种透明的弹性材料, 在拉伸的过程中改变了超表面阵列的周期大小, 使得超表面所具有的相位重新分布, 从而改变了光波的波前. 图 5 (a) 为可拉伸超表面透镜示意图, 图 5 (b) 为制备的超表面透镜的扫描电子显微图. 该透镜在可见光波段实现了焦距从 150 到 250 μm 的连续可调, 其调节性能如图 5 (c) 所示.

4.2 全介质超表面透镜成像

基于全介质纳米单元结构设计的超表面可以克服等离子体超表面在效率上的限制. 通常介质超表面由与光波波长可比拟长度的高折射率介质柱构成, 可选的材料主要有: 硅 (Si)、二氧化钛 (TiO_2)、磷化镓 (GaP)、氮化硅 (SiN) 等. 2014 年, 斯坦福大学 Brongersma 等[68] 提出了全介质超表面的概念, 为设计高效率成像透镜提供了有效的解决方案. 所设计的器件基于 PB 相位原理并采用足够深度的硅纳米光栅构成, 其结构如图 6 (a) 所示. 当入射光波的波长在 500 nm 附近时, 透镜的聚焦效率达到 70%. 2015 年, 加州理工学院 Faraon 等[69] 采用圆形硅柱设计了一款高数值孔径透镜, 该透镜在通信波段 1550 nm 处实现了 82% 的聚焦效率. 其显微结构如图 6 (b)—图 6 (e) 所示, 圆形硅柱具有高度旋转对称性, 使得所设计的透镜是偏振无关的. 硅柱的高度接近 1 μm, 深宽比较大, 加工难度也较大. 尽管介质超表面的提出解决了等离子超表面的损耗问题, 但所设计的成像透镜在可见光波段的效率仍然有限, 特别是在 500 nm 以下的波段.

2016 年, Capasso 等[18] 利用 PB 相位在可见光波段实现了高性能超表面透镜. 如图 6 (f) 和图 6 (g) 所示, 设计的透镜由二氧化钛介质棒和玻璃基底组成. 二氧化钛在可见光波段是一种低损耗介质材料, 设计的纳米结构表面较为光滑, 且具有较高的折射率, 解决了可见光频段材料的选择问题. 由于该类型透镜是基于 PB 相位调制原理, 因而其主要的缺陷就是必须采用圆偏振光, 需要使用一些附加器件对光源进行处理, 并且高偏振转化率所对应的工作带宽较窄, 一般只有几十纳米. 另外, 由于超表面透镜的单元结构一般在亚波长尺寸, 每个纳米结构单元都可以提供对应位置所需要的相位, 对整个超表面相位场的控制较为精细, 可以实现高数值孔径的成像透镜. 数值孔径越高, 意味着在视场边缘的分辨率越高, 有利于缩短光学系统的尺寸, 适合一些近景的大视场拍摄. 目前, 据报道[18] 超表面透镜的数值孔径可以达到 0.8 左右.

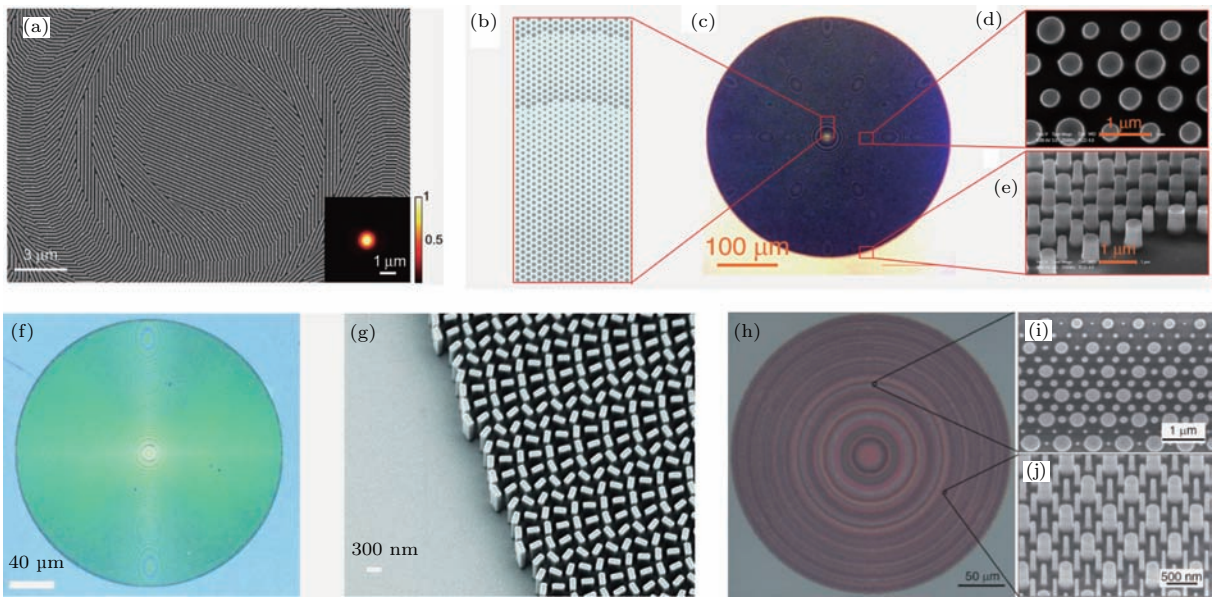


图 6 透镜显微图 (a) 全介质的梯度超表面透镜[68]; (b)—(e) 高数值孔径透镜[69]; (f), (g) 可见光超透镜[18]; (h)—(j) 多波长透镜[70]

Fig. 6. The microscopic image of (a) the dielectric gradient metasurface optical lens[68]; (b)–(e) high numerical aperture (NA) lens[69], (f), (g) metalens at visible wavelengths[18]; (h)–(j) multiwavelength lens[70].

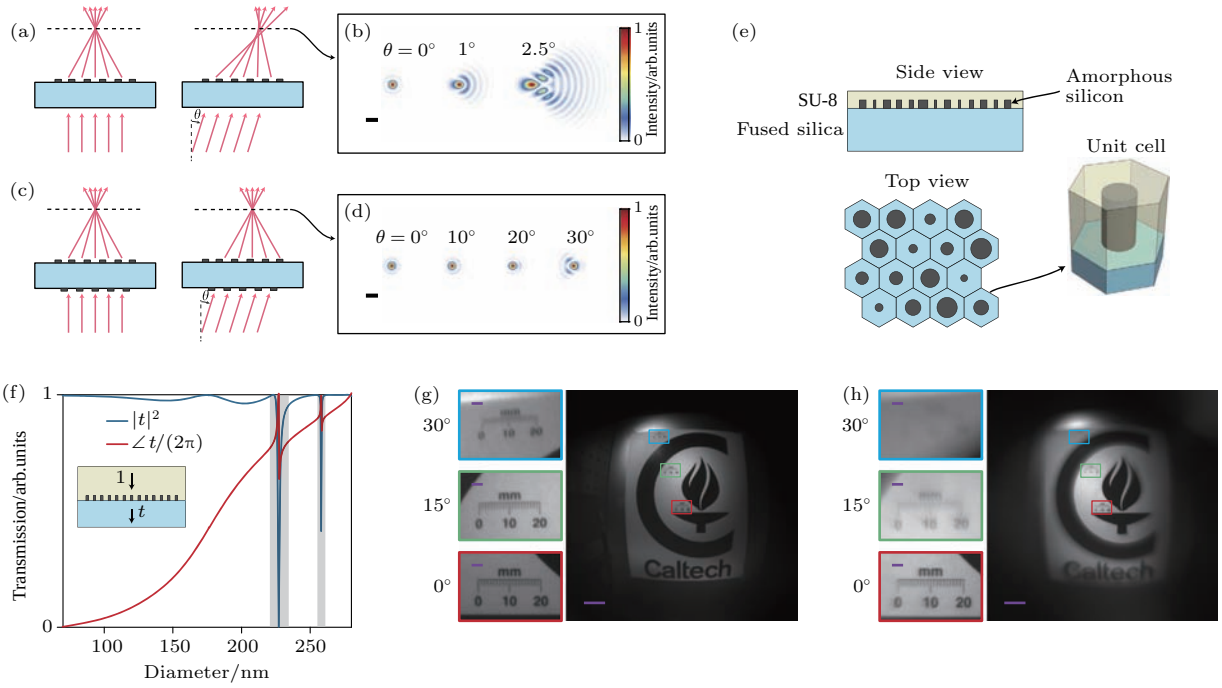


图 7 广角的超表面双透镜 [71] (a), (b) 不同入射角度的超表面单透镜的聚焦效果图; (c), (d) 超表面消除单色像差后的聚焦效果图; (e) 设计双透镜的介质超表面结构示意图; (f) 仿真的归一化透射强度和传输系数相位; (g), (h) 超表面双透镜和用于对比的超表面单透镜成像效果图

Fig. 7. Wide-angle metasurface doublet lenses [71]: (a)–(b) Focusing by metasurface singlet lenses for different incident angles, scale bar, 2 mm; (c), (d) focusing by metasurface doublet lenses corrected for monochromatic aberrations; (e) a schematic illustration of the dielectric metasurface used to implement the metasurface doublet lens; (f) simulated intensity transmission and the phase of transmission coefficient of the metasurface; (g), (h) image taken with the metasurface doublet lens (g) and with the spherical-aberration-free metasurface singlet lens (h), scale bar, 100 μm.

像差是影响透镜成像质量的重要因素. 最近, 关于超表面成像的研究工作主要集中在如何消除透镜的像差 [40,70,71], 而消像差的重点则主要关注消除色差、球差以及彗差方面. 与其他大部分衍射光学元件类似 [74,75], 超表面产生的色散与传统折射透镜的色散方向正好相反. 传统的折射透镜可以通过两种相反色散属性的材料级联来消除色散, 如火石与冕牌玻璃. 衍射器件的色差确不能通过这种方式消除, 因为衍射器件色散的起因与材料属性无关, 最直接的消色差方式就是设计折衍透镜. 超表面通常被设计在单一的工作波长, 即存在色差, 限制了光学器件的工作带宽. 在消除色差方面, 可以通过设计多波长超表面阵列实现多个离散波长的消色差 [70,72], 增加透镜的可利用带宽. 图 6 (h)—图 6 (j) 展示了这种多波长超表面的显微图, 可以看出在该类型的超表面阵列中纳米结构单元分布呈交织型, 从而实现了在一块超表面阵列上复合多个波长的相位.

在单色像差方面, 球差和彗差分别影响轴上和轴外物体的成像质量. 彗差的矫正可以扩宽成像的视场范围, 在摄影和军事领域具有重要作用. 通常, 一块超表面阵列可以消除一种像差, 例如在仅消球差的单透镜中存在着严重的彗差, 其仿真结果如图 7 (a) 和图 7 (b) 所示. 最近, 加州理工学院 Faraon 等 [71] 采用传统组合式透镜的思想在近红外波段消除彗差, 实现了宽场成像. 该透镜结构如图 7 (e) 所示, 采用硅作为纳米单元结构, 整个超表面阵列覆盖了一层 SU-8 胶, 用于保护阵列在加工过程中不会受损. 纳米结构单元的仿真结果如图 7 (f) 所示, 该结构单元可以在改变直径的情况下保持较高的透射率, 其相位覆盖范围为 0—2π. 该透镜由两块超表面组合而成, 其中一面的作用是无球差聚焦, 另一面的作用是消除彗差. 仿真结果如图 7 (c) 和图 7 (d) 所示, 当光波的入射角度为 30° 时, 仍然具有很好的聚焦效果. 从图 7 (g) 与图 7 (h) 的对比可以看出, 该消彗差双透镜在视场的边缘处仍然有较高的分辨率. 但是在这种透镜的设计过程中, 两块超表面的光轴轴心必须精确对准, 因而直

接导致了工艺过程较为复杂, 成品率较低, 制造成本大幅提高. 由此可见, 全介质的超表面成像透镜虽然有了一系列的研究进展, 但要得到好的成像质量仍然困难, 加之结构也比较复杂, 其在成像系统中的应用还需要深入研究.

4.3 金属/介质混合式超表面透镜成像

金属/介质混合式超表面是指以金属为基底, 顶层采用介质柱作为纳米单元结构调控相位的超表面阵列, 其相位调控机理与全介质超表面相同. 金属基底的作用相当于反射镜, 入射光波经过介质单元结构后, 从金属基底完全反射再次经过介质单元结构. 因此, 对比透射式的超表面, 入射光波可以获得更大的相移, 提供了更为丰富的纳米单元结构作为选择, 适合用于设计复杂的消像差透镜.

通常情况下, 对于一个确定的波长, 纳米结构单元提供其所需要的相位值, 但是由于结构色散的存在, 不能同时满足其他波长所需要的相位. 最近, 基于金属/介质混合结构的反射式超透镜用于实现连续带宽的消彗差功能得到了验证[72], 设计的结构如图 8 (a)—(c) 所示. 与传统的衍射器件相比, 该超表面透镜具有反常的色散属性, 即焦距随着波长的增加而增加. 经过合理地设计相位场分布, 反常的色散属性正好与衍射存在的正常色散属性相抵消, 从而实现了色散的消除. 对于波长为 λ 的正入射光, 所需要的相位分布 $\varphi_{\rm normal}(x,y,\lambda)$ 表达式为

$$\varphi_{\rm normal}(x,y,\lambda) = C(\lambda) - \frac{2\pi}{\lambda}\left(\sqrt{x^2+y^2+f^2}-f\right), \tag{11}$$

其中, $C(\lambda)$ 为参考相位, 表示相位分布与波长的依赖关系, 用于修改透镜的焦距, 实现消色差. 为了抑制高阶衍射, 纳米结构单元的周期必须小于带宽中的最小波长. 实验测量的焦距与入射光波波长的关系如图 8 (d) 所示, 在波长为 490—550 nm 波段实现了连续带宽的消色差, 该透镜的聚焦效率仅在 12%—20% 之间. 实际上, 该类型的透镜减少了单个波长的有效作用面积, 聚焦效率与工作带宽是一个需要相互权衡的关系, 工作带宽的增大意味着效率的降低.

由于反射式聚焦镜在一个较大带宽范围内对于所有尺寸的纳米单元结构都具有较高的反射幅度, 在使用纯 PB 相位设计时, 只需满足两个正交的线偏振光经过纳米单元结构后具有 π 的相位差. 因此, 这种结构对比透射式超表面具有更高的偏振转化率和更大的可利用带宽[73]. 在原理上, 对于一束

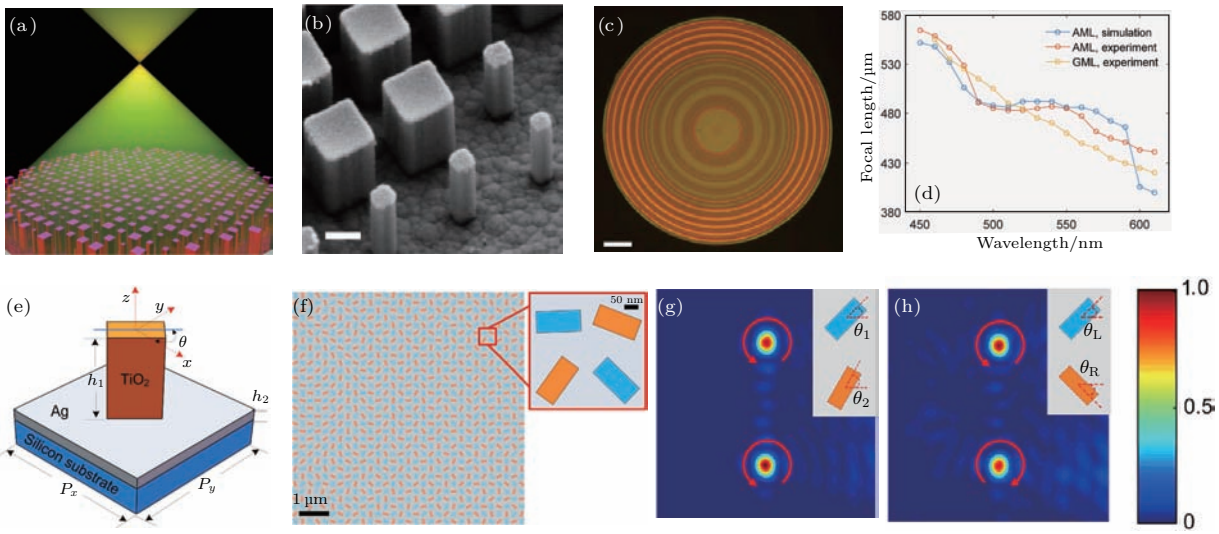


图 8 反射式聚焦镜 (a) 消色差超透镜示意图[72]; (b) 制备的超透镜的扫描电子显微镜图[72]; (c) 超透镜显微图[72]; (d) 仿真计算 (蓝) 和实验测量 (橘黄) 的消色差超透镜的焦距随波长变化的影响, 作为对比的几何相位超透镜 (黄)[72]; (e) 单元结构示意图[73]; (f) 复合式平板透镜示意图[73]; (g) 相同手性的双焦点透镜[73]; (h) 相反手性的双焦点透镜[73]

Fig. 8. Reflective focusing mirror: (a) Schematic of an achromatic Metalens (AML)[72]; (b) SEM image of the fabricated AML[72]; (c) optical image of the AML[72]; (d) simulation (blue) and experiment (orange): calculated focal length of the AML as a function of wavelength, geometric-phase-based metalens (yellow), experiment: measured focal length of a fabricated GML[72]; (e) schematic of the unit-cell structure[73]; (f) schematic of the composited flat lens[73]; (g) two focal points with the same chirality formed by meta-molecule achiral lens[73]; (h) two focal points with the opposite chirality formed by meta-molecule chiral lens[73].

以任意方向入射的光波, 通过控制超表面透镜相位场的分布, 可以在 x-y 平面的任意点实现聚焦. 超表面所需要的相位场分布 $\varphi(x,y)$ 可以表示为

$$\varphi(x,y)=\frac{2\pi}{\lambda}\left(f-\sqrt{(x-x_0)^2+(y-y_0)^2+f^2}\right)-\frac{2\pi}{\lambda}[(x-x_0)\cdot\sin\alpha], \tag{12}$$

其中, (x_0,y_0) 为在 x-y 平面内聚焦焦点的位置坐标; $-\frac{2\pi}{\lambda}[(x-x_0)\cdot\sin\alpha]$ 为相位补偿项, 用来补偿由于到达超表面的光线长度不一致引起的相位差. 另外, 如图 8 (e)—图 8 (h) 所示, 可以在一块超表面阵列上设计多种功能, 如具有相反手性的多焦点聚焦、深聚焦、多波长聚焦等. 这是因为超表面阵列的每个纳米单元结构都相当于一个像素点, 能独立控制一个相位, 从而可以在超表面阵列的不同区域或者采用交织型相位分布设计多功能器件.

5 存在的问题

尽管全介质超表面的提出在一定程度上提高了聚焦效率, 但依然存在一些问题, 主要有以下几点.

1) 超表面通常被设计在单一的工作波长, 消除色差是增加器件带宽的可行办法. 然而, 目前报道的消色差方法[70−72], 基本都伴随着聚焦效率的大幅度降低, 必须在效率和带宽两者中做出权衡. 所以成像透镜的带宽或者色差问题的解决方案尚需进一步研究.

2) 在消除单色像差增加透镜视场范围和分辨率方面, 目前的解决方案是采用两块超表面级联的方式[71], 中间用一层 1 mm 厚度的石英玻璃连接. 两块功能性超表面透镜的光轴需要精确对准, 这种方案在工艺上有一定的难度. 因此, 如何改进方案消除单色像差还需进一步深入研究.

3) 在可重构超表面成像器件方面虽然有了初步进展[57,58], 但其工作在太赫兹波段. 因此, 如何在高频波段实现优异的可重构成像器件还需进一步深入研究.

6 总 结

本文从超表面成像透镜的结构分类以及光场调控机理两方面, 总结回顾了近些年来超表面成像所取得的研究成果和遇到的问题, 分析了广义斯涅耳定律和纳米结构单元控制相位的机理. 在等离子体超表面方面, 介绍了三种结构类型的成像透镜以及它们的成像性能, 指出了等离子体超表面的损耗问题. 在全介质超表面方面, 着重介绍了以硅和二氧化钛为介质材料的高效超表面, 并介绍了目前在超表面成像透镜研究中采用的几种消像差方法. 在介质/金属混合式超表面方面, 主要介绍了其在消色差方面的应用以及一些扩展的功能. 在此基础之上, 总结了目前超表面成像透镜存在的问题, 为后期的深入研究提供一定的参考和借鉴.

参考文献

[1] Veselago V G 1968 *Sov. Phys. Usp.* **10** 509
[2] Pendry J B 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 3966
[3] Vodo P, Lu W T, Sridhar S 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 201108
[4] Parazzoli C G, Grcegor R B, Niclsen J A, Thompson M A, Li K, Vetter A M, Vier D C 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 3232
[5] Xu T, Agrawal A, Abashin M, Chau K J, Lezec H J 2013 *Nature* **497** 470
[6] Yu N, Genevet P, Kats M A, Aieta F, Tetienne J P, Capasso F, Gaburro Z 2011 *Science* **334** 6054
[7] Ni X, Emani N K, Kildishev A V, Boltasseva A, Shalaev V M 2012 *Science* **335** 6067
[8] Sun S, Yang K Y, Wang C M, Juan T K, Chen W T, Liao C Y, He Q, Xiao S, Kung W T, Guo G Y, Zhou L, Tsai D P 2012 *Nano Lett.* **12** 6223
[9] Ni X, Kildishev A V, Shalaev V M 2013 *Nat. Commun.* **4** 2807
[10] Wen D D, Yue F Y, Li G X, Zheng G X, Chan K L, Chen S M, Chen M, Li K F, Wong P W H, Cheah K W, Yue Bun Pun E, Zhang S, Chen X Z 2015 *Nat. Commun.* **6** 8241
[11] Pu M B, Li X, Ma X L, Wang Y Q, Zhao Z Y, Wang C T, Hu C G, Gao P, Huang C, Ren H R, Li X P, Qin F, Yang J, Gu M, Hong M H, Luo X G 2015 *Sci. Adv.* **1** e1500396
[12] Guo Y H, Pu M B, Zhao Z Y, Wang Y Q, Jin J J, Gao P, Li X, Ma X L, Luo X G 2016 *ACS Photon.* **3** 2022
[13] Zhang X Q, Tian Z, Yue W S, Gu J Q, Zhang S, Han J G, Zhang W L 2013 *Adv. Mater.* **25** 4567
[14] Xu T, Wang C T, Du C L, Luo X G 2008 *Opt. Express* **16** 4753
[15] Aieta F, Genevet P, Kats M A, Yu N, Blanchard R, Gaburro Z, Capasso F 2012 *Nano Lett.* **12** 1702
[16] Bosiljevac M, Casaletti M, Caminita F, Sipus Z, Maci S 2012 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **60** 4065
[17] Wan X, Jiang W X, Ma H F, Cui T J 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 151601
[18] Khorasaninejad M, Chen W T, Devlin R C, Oh J, Zhu A Y, Capasso F 2016 *Science* **352** 6290

[19] Chen X Z, Huang L L, Mühlenbernd H, Li G X, Bai B F, Tan Q F, Jin G F, Qiu C W, Zhang S, Zentgraf T 2012 *Nat. Commun.* **3** 1198

[20] Farmahini-Farahani M, Mosallaei H 2013 *Opt. Lett.* **38** 462

[21] Roxworthy B J, Bhuiya A M, Yu X, Chow E K, Toussaint Jr K C 2014 *Nat. Commun.* **5** 4427

[22] Pfeiffer C, Grbic A 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 197401

[23] Kats M A, Yu N, Genevet P, Gaburro Z, Capasso F 2011 *Opt. Express* **19** 21748

[24] Hardy W N, Whitehead L A 1981 *Rev. Sci. Instrum.* **52** 213

[25] Genevet P, Capasso F, Aieta F, Khorasaninejad M, Devlin R 2017 *Optica* **4** 139

[26] Decker M, Staude I, Falkner M, Dominguez J, Neshev D N, Brener I, Pertsch T, Kivshar Y S 2015 *Adv. Opt. Mater.* **3** 813

[27] Aieta F, Kats M A, Genevet P, Capasso F 2015 *Science* **347** 6228

[28] Chen W, Zhu A, Khorasaninejad M, Shi Z, Sanjeev V, Capasso F 2017 *Nano Lett.* **17** 3188

[29] Zheng G, Mühlenbernd H, Kenney M, Li G, Zentgraf T, Zhang S 2015 *Nat. Nanotechnol.* **10** 308

[30] Zhao W Y, Jiang H, Liu B Y, Song J, Jiang Y 2016 *Appl. Phys. Lett.* **108** 181102

[31] Liu C B, Bai Y, Zhao Q, Yang Y, Chen H S, Zhou J, Qiao L J 2016 *Sci. Rep.* **6** 34819

[32] Mueller J P B, Rubin N A, Devlin R C, Groever B, Capasso F 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 113901

[33] Arbabi A, Horie Y, Bagheri M, Faraon A 2015 *Nat. Nanotechnol.* **10** 937

[34] Byrnes S J, Lenef A, Aieta F, Capasso F 2015 *Opt. Express* **24** 5110

[35] Yang Q, Gu J, Wang D, Zhang X, Tian Z, Ouyang C, Singh R, Han J, Zhang W 2014 *Opt. Express* **22** 25931

[36] Zhang S, Kim M H, Aieta F, Yu N, Capasso F 2016 *Opt. Express* **24** 18024

[37] Mohammadreza K, Francesco A, Pritpal K, Kats M A, Genevet P, Rousso D, Capasso F 2015 *Nano Lett.* **15** 5358

[38] Aieta F, Genevet P, Kats M, Capasso F 2013 *Opt. Express* **21** 31530

[39] West P R, Stewart J L, Kildishev A V, Shalaev V M, Shkunov V V, Strohkendl Y A, Dodds R K, Byren R 2014 *Opt. Express* **22** 26212

[40] Cheng J, Jafarzanjani S, Mosallaei H 2016 *Sci. Rep.* **6** 38440

[41] Li X, Xiao S Y, Cai B G, He Q, Cui T J, Zhou L 2012 *Opt. Lett.* **37** 4940

[42] Li T, Wang S S, Zhang X L, Deng Z L, Hang Z H, Sun H B, Wang G P 2015 *Appl. Phys. Lett.* **107** 251107

[43] Ma W, Jia D L, Yu X M, Feng Y, Zhao Y J 2016 *Appl. Phys. Lett.* **108** 071111

[44] Pors A, Nielsen M G, Eriksen R L, Bozhevolnyi S I 2013 *Nano Lett.* **13** 829

[45] Mehmood M Q, Mei S, Hussain S, Huang K, Siew S, Zhang T, Ling X, Liu H, Teng J, Danner A, Zhang S, Qiu C W 2015 *Adv. Mater.* **28** 2533

[46] Zhao Z Y, Pu M B, Gao H, Jin J J, Li X, Ma X, Wang Y, Gao P, Luo X G 2015 *Sci. Rep.* **5** 15781

[47] Ni X, Ishii S, Kildishev A V, Shalaev V M 2013 *Light: Sci. Appl.* **2** e72

[48] Sun S L, He Q, Xiao S Y, Xu Q, Li X, Zhou L 2012 *Nat. Mater.* **11** 426

[49] Yang Y, Wang W, Moitra P, Kravchenko I I, Briggs D P, Valentine J 2014 *Nano Lett.* **14** 1394

[50] Ni X, Wong Z J, Mrejen M, Wang Y, Zhang X 2015 *Science* **349** 6254

[51] Wang J F, Qu S B, Ma H, Xu Z, Zhang A X, Zhou H, Chen H Y, Li Y F 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 201104

[52] Liu Y M, Zhang X 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 141101

[53] Estakhri N M, Alù A 2016 *Phys. Rev. X* **6** 041008

[54] Zhao Y, Alù A 2011 *Phys. Rev. B* **84** 205428

[55] Pors A, Bozhevolnyi S I 2013 *Opt. Express* **21** 27438

[56] Li Z, Palacios E, Butun S, Aydin K 2015 *Nano Lett.* **15** 1615

[57] Ee H S, Agarwal R 2016 *Nano Lett.* **16** 2818

[58] Chen K, Feng Y, Monticone F, Zhao J, Zhu B, Jiang T, Zhang L, Kim Y, Ding X, Zhang S, Alù A, Qiu C W 2017 *Adv. Mater.* **160** 6422

[59] Fan Q B, Wang D P, Huo P C, Zhang Z J, Liang Y Z, Xu T 2017 *Opt. Express* **25** 9285

[60] Sautter J, Staude I, Decker M, Rusak E, Neshev D N, Brener I, Kivshar Y S 2015 *ACS Nano* **9** 4308

[61] Zhan A, Colburn S, Trivedi R, Fryeet T K, Dodson C M, Majumdar A 2016 *ACS Photon.* **3** 209

[62] Devlin R C, Khorasaninejad M, Chen W T, Oh J, Capasso F 2016 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **113** 10473

[63] Chen W T, Yang K Y, Wang C M, Huang Y W, Sun G, Chiang I D, Liao C Y, Hsu W L, Lin H T, Sun S, Zhou L, Liu A Q, Tsai D P 2014 *Nano Lett.* **14** 225

[64] Yu Y F, Zhu A Y, Fu Y H 2015 *Laser Photon. Rev.* **9** 412

[65] Luo X G 2015 *Sci. China: Phys. Mech. Astron.* **58** 594201

[66] Kamali S M, Arbabi A, Arbabi E, Horie Y, Faraon A 2016 *Nat. Commun.* **7** 11618

[67] Khorasaninejad M, Chen W T, Zhu A Y, Oh J, Devlin R C, Rousso D, Capasso F 2016 *Nano Lett.* **16** 7229

[68] Lin D, Fan P, Hasman E, Brongersma M L 2014 *Science* **345** 6194

[69] Arbabi A, Horie Y, Ball A J, Bagheri M, Faraon A 2015 *Nat. Commun.* **6** 7069

[70] Arbabi E, Arbabi A, Kamali S M, Yu H, Faraon A 2016 *Optica* **3** 628

[71] Arbabi A, Arbabi E, Kamali S M, Horie Y, Han S, Faraon A 2016 *Nat. Commun.* **7** 13682

[72] Khorasaninejad M, Shi Z, Zhu A, Chen W T, Sanjeev V, Capasso F 2017 *Nano Lett.* **17** 1819

[73] Fan Q B, Huo P C, Wang D P, Liang Y Z, Yan F, Xu T 2017 *Sci. Rep.* **7** 45044

[74] Bokor N, Davidson N 2001 *Appl. Opt.* **40** 5906

[75] Buralli D A, Morris G M 1989 *Appl. Opt.* **28** 3950

SPECIAL ISSUE—Diffraction limit of electromagnetic waves

Research progress of imaging technologies based on electromagnetic metasurfaces*

Fan Qing-Bin Xu Ting†

(*National Laboratory of Solid State Microstructures, Nanjing University, Nanjing 210093, China*)

(Received 31 March 2017; revised manuscript received 9 May 2017)

Abstract

Electromagnetic metamaterials are artificial structures engineered on a subwavelength scale to have optical properties that are not observed in their constituent materials and may not be found in nature either, such as negative refractive index. They have enabled unprecedented flexibility in manipulating light waves and producing various novel optical functionalities. Since the beginning of this century, with the development of nanofabrication and characterization technologies, there has been aroused a tremendous growing interest in the study of electromagnetic metamaterials and their potential applications in different fields including super-resolution imaging, optical biosensing, electromagnetic cloaking, photonic circuits and data storage. Electromagnetic metasurfaces are two-dimensional metamaterials composed of subwavelength planar building blocks. Although metasurfaces sacrifice some functionalities compared with their bulk counterparts, they provide us with distinct possibility to fully control light wave with ultrathin planar structures. Based on Huygens principle, the metasurfaces are able to arbitrarily manipulate the phases, amplitudes or polarizations of optical waves. For example, metasurfaces made of gold nanoantenna-arrays are able to create phase discontinuities for light propagating through the interfaces and drastically change the flows of reflected and refracted light at infrared frequencies. Comparing traditional dielectric optic elements, the thickness values of metasurface-based optical devices are much smaller. In addition to the control of free-space incident light, metasurfaces can also be used to precisely control and manipulate surface electromagnetic waves. In this review, we introduce the generalized Snell's law and the fundamental principles to modulate phase by using metasurfaces. Research progress of a variety of imaging technologies based on metasurfaces is then presented, including plasmonic metasurface, all-dielectric metasurface and metal/insulator hybrid metasurface. Finally, we summarize several frontier problems associated with metasurface, which maybe provide some references for the future researches and applications.

Keywords: metasurface, imaging, Huygens principle, wavefront manipulation

PACS: 42.79.Bh, 42.79.–e, 42.30.–d, 42.25.Fx **DOI:** 10.7498/aps.66.144208

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61575092) and the Key Research and Development Program from Ministry of Science and Technology of China (Grant No. 2016YFA0202100).

† Corresponding author. E-mail: xuting@nju.edu.cn

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

表面等离激元结构光照明显微成像技术研究进展

张崇磊 辛自强 闵长俊 袁小聪

Research progress of plasmonic structure illumination microscopy

Zhang Chong-Lei Xin Zi-Qiang Min Chang-Jun Yuan Xiao-Cong

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 148701 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.148701
在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.148701
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I14

您可能感兴趣的其他文章
Articles you may be interested in

基于累积量标准差的超分辨光学涨落成像解卷积优化
Deconvolution optimization in super-resolution optical fluctuation imaging based on cumulant standard deviation
物理学报.2016, 65(19): 198701 http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.198701

$La_{0.5}Ca_{0.5}MnO_3$ 内禀与界面电脉冲诱导电阻转变效应的比较
Comparison bwtween intrinsic and interfacial electrical pulse induced resistance effects in $La_{0.5}Ca_{0.5}MnO_3$ ceramics
物理学报.2013, 62(20): 207302 http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.207302

基于法布里-珀罗调谐滤波器的傅里叶域锁模扫频激光光源
Fiber Fabry-Perot tunable filter based Fourier domain mode locking swept laser source
物理学报.2013, 62(6): 068703 http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.068703

ZnO压敏陶瓷的介电谱
Dielectric spectra of ZnO varistor ceramics
物理学报.2012, 61(18): 187302 http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.187302

瞬态光电流对有机薄膜光伏器件中肖特基接触的研究
Investigation on Schottky contacts in organic thin film photovoltaic devices by transient photocurrent
物理学报.2012, 61(7): 077301 http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.077301

专题: 电磁波衍射极限

表面等离激元结构光照明显微成像技术研究进展*

张崇磊 辛自强 闵长俊[1)†] 袁小聪[‡]

(深圳大学, 纳米光子学研究中心, 深圳 518060)

(2017 年 3 月 29 日收到; 2017 年 4 月 27 日收到修改稿)

结构光照明显微成像技术 (SIM) 因其高分辨、宽场、快速成像的优势, 在生物医学成像领域发挥了不可估量的作用. 结构光照明显微成像技术与动态可控的亚波长表面等离激元条纹相结合, 可以在不借助非线性效应的情况下, 将传统SIM的分辨率从2倍于衍射极限频率提升到3—4倍, 此外还有抑制背景噪声、提升信噪比的能力, 在近表面的生物医学成像应用中有重要价值. 本文介绍了表面等离激元结构光照明显微成像技术的原理, 并总结了近几年国内外的相关研究进展.

关键词: 结构光照明, 超分辨成像, 表面等离激元

PACS: 87.64.M–, 65.40.gp, 73.30.+y **DOI:** 10.7498/aps.66.148701

1 引 言

光学显微成像技术的应用与发展极大地推动了人们对生命现象的研究与认知. 然而, 由于光学衍射极限的存在, 传统光学显微成像技术的空间分辨率最高只能达到200—300 nm [1−3], 无法满足观测生物细胞微结构等重大应用需求, 也对能够突破衍射极限的超分辨光学显微成像技术提出了新的挑战. 为此, 近些年大批新颖的超分辨光学显微成像技术被陆续提出并快速发展, 获得了科学界的广泛关注. 2014年诺贝尔化学奖就颁给了“超分辨荧光显微成像技术”, 以表彰该领域科学家的突出贡献.

提高光学成像分辨率的关键问题是如何获取样品的光学高频信息, 但是光学高频信息主要局域在光学近场范围, 即样品表面一到几个波长范围内, 无法传播到远场自由空间被探测到. 为了解决这个问题, 人们发展出许多近场光学成像技术来提取光学高频信息. 例如: 扫描近场光学显微镜 (scanning near-field optical microscope, SNOM), 该技术通过亚波长探针将只在物体表面传播的倏逝波 (evanescent wave) 即高频信息转换成可以在远场探测的传播场, 由此大幅提高了成像分辨率, 分辨率可达20—50 nm [4−6]; 另外超透镜 (superlens) 是基于纳米金属薄膜结构的一种新颖成像技术 [7], 可以通过特殊结构设计将倏逝波传递并放大到远场, 使人们可以观测到物体表面的精细信息, 从而突破了衍射极限 [8−12].

因为近场光学显微成像技术只能获取样品表面局部的近场信息, 所以只适合于物体表面信息的探测. 相比于近场光学成像方法, 远场光学成像方法则更加灵活, 能在提高 x-y 平面横向空间分辨率的同时, 也具有 z 方向的纵向分辨率, 从而得到样品的三维光学信息. 近些年, 不少远场超分辨光学成像方法得到了很大发展 [13−23]. 为了克服光学衍射极限, 这些远场成像方法从另一个角度出发考虑: 光学衍射极限理论是建立在线性光学的基础上, 线性的超分辨技术不可能真正突破它, 但可以利用非线性效应来打破光学衍射极限. 例

* 国家自然科学基金 (批准号: 61427819, 61422506, 61605118)、国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2015CB352004) 和国家重点研发计划 (批准号: 2016YFC0102401) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: cjmin@szu.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: xcyuan@szu.edu.cn

© 2017 中国物理学会 Chinese Physical Society

如, 受激发射损耗 (STED) [13] 显微镜利用荧光分子的非线性效应, 用一束光作为激发光激发荧光, 再用另一束长波长同轴的中空环形光束损耗掉部分第一束光激发的荧光, 只剩下中间极小的荧光点, 从而得到更锐利的点扩散函数. 此技术成像分辨率可达 30—80 nm 范围, 并可实现三维光学成像, 但也因为其逐点扫描的成像方式, 往往需要消耗大量的时间成本. 此外, 还有随机光学重建技术 (STORM) [14] 和光激活定位显微技术 (PALM) [15] 都是单分子定位显微技术, 通过荧光分子的非线性效应 (例如光活化、光开关等) 控制小部分荧光分子进入激发态, 然后成像在远场电荷耦合器 (CCD) 中, 最后通过高斯拟合得到这些发光分子的精确位置. 这种方法可以让相互影响的衍射光斑在不同时刻分别记录, 从而消除衍射影响. 在每张原始图片上虽然只有少数荧光斑点, 但上千张图片集合起来就组成了所有荧光分子的强度分布图, 犹如点彩 (pointillism) 图画一样. 其成像分辨率可达 30 nm 级别, 但是这种方法局限在小范围成像, 且需要大量图片集合, 成像和处理过程复杂, 时间分辨率低. 同时 STED 和 PALM/STORM 通常所需要的辐射强度在 10^3—10^8 W/cm^2, 在这种情况下, 荧光蛋白/分子很容易被漂白, 产生大量的自由基, 损伤活细胞样品.

结构光照明显微成像技术 (structure illumination microscopy, SIM) 是一种远场超分辨光学显微成像技术, 其原理是在宽场荧光显微镜的基础上, 利用特殊调制的结构光场来照明样品, 并运用特定算法从调制图像数据中提取焦平面的信息, 从而突破衍射极限的限制, 重建出超分辨切层的图像信息. 这种超分辨成像技术不需要逐点扫描样品, 可大范围成像, 具有快速、超分辨、宽场显微成像的显著优点. 2000 年, 美国霍华休斯医学研究院的 Gustafsson 等 [16] 首次在实验上证实了 SIM 的可行性, 使用 SIM 成像方法对 Hela 细胞的肌动蛋白细胞骨架进行了宽场超分辨成像研究, 实现了 170 nm 左右的成像分辨率. 2005 年 Gustafsson 等 [17] 进一步利用非线性效应的饱和荧光成像技术对荧光颗粒实现了 50 nm 左右分辨率的超分辨成像. 随后 Gustafsson 等 [18,19] 又研究了对生物样品的三维成像技术, 实现了 SIM 宽场超分辨成像技术在生物医学中的应用, 成像分辨率在 100 nm 左右. 2008 年, Schermelleh 等 [20] 将 SIM 技术应用到哺乳动物亚细胞核结构的成像中, 对多重染色下的染色质、核纤层和核孔进行了高分辨率的精确成像, 开启了细胞核物质运输交换研究的大门 (图 1 (a)).

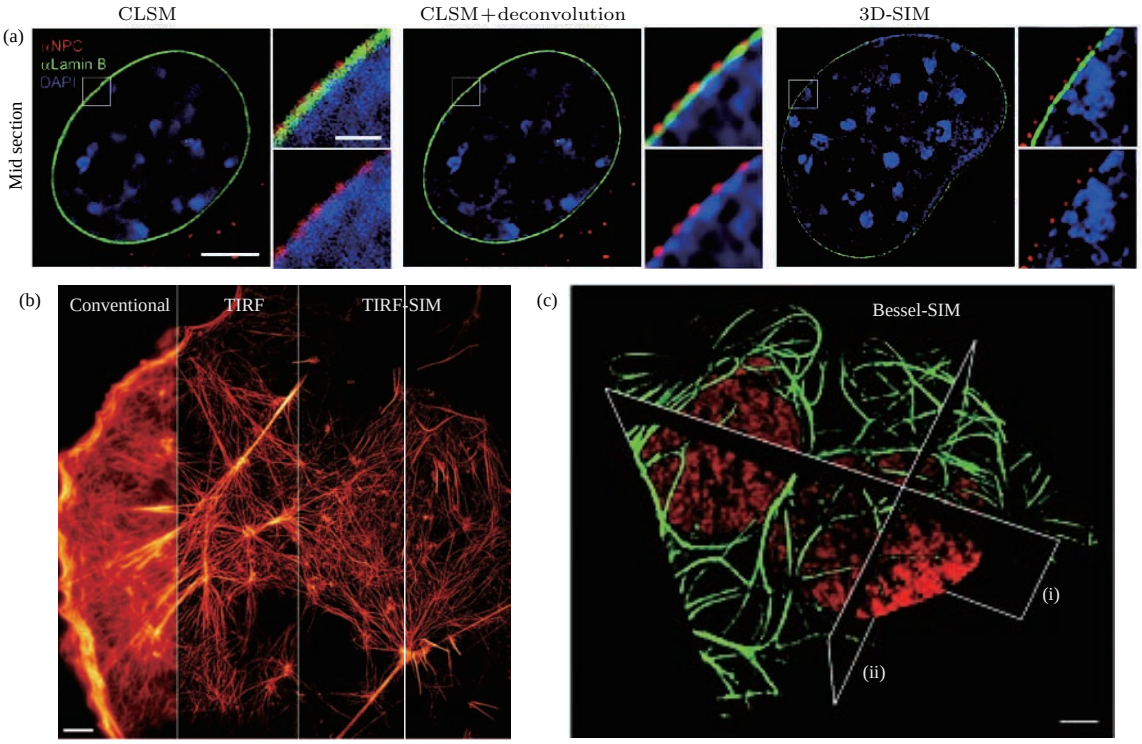


图 1 不同 SIM 显微成像技术效果图 [20,24,25]

Fig. 1. The imaging effect of different SIM microscopy technologies [20,24,25].

2007年起, Chung等[21], Folka等[22]和Gliko等[23]先后使用全内反射显微镜实现了表面倏逝场的SIM成像, 由于表面倏逝场的穿透深度在100 nm左右, 这些超分辨成像研究对于了解生物样品膜表面特性具有重要的意义. 2011年, Betzig课题组[24]报道了基于贝塞尔光束的结构光照明显微成像, 实现了细胞内囊泡、线粒体、有丝分裂的染色体等多种组分的动态3D成像(图1(b)). 2015年, Betzig课题组[25]报道了利用一种新型反复光激活荧光蛋白Skylan-NS和结构光激活的非线性SIM技术, 获得了细胞运动和改变形状过程中骨架蛋白的解体和自身再组装过程, 以及在细胞膜表面的caveolae的微小内吞体动态过程的影像(图1(c)).

表面等离激元结构光照明显微成像(plasmonic structure illumination microscopy, PSIM)将SIM超分辨显微成像技术与可动态调控的表面等离激元(surface plasmons, SPs)干涉条纹相结合, 可以在不借助非线性效应的情况下, 将传统SIM的分辨率从2倍于衍射极限频率提升到3—4倍. SPs干涉条纹是由两个相向传播的SPs波干涉产生的稳定驻波场, 条纹周期大小依赖于SPs波长. 由于SPs波长可远小于自由空间光波长, 所以SPs干涉条纹的周期也远小于衍射极限, 从而可作为一种突破衍射极限的结构光场应用于SIM成像系统. 所以PSIM作为一种新型的超分辨宽场显微成像技术, 结合了SIM显微技术和SPs特性的优势, 进一步提高了成像分辨率[26−32]. 2010年, 美国加州大学圣地亚哥分校刘照伟教授等[26]首次明确提出类PSIM的概念, 通过设计不同SPs激发结构, 采用调整激发角的方式得到PSIM成像, 其所在课题组随后又开展了基于不同结构的PSIM成像验证实验[27−29]. 同年, 袁小聪教授课题组[30]利用全光紧聚焦激发金属膜SPs, 并动态调控入射光学旋涡的拓扑荷实现多步相移, 达到了接近理论值的PSIM成像分辨率, 其课题组后期又在振幅调控、分数阶拓扑荷等方面进行了改进[31,32]. 目前PSIM成像技术作为一种仍在发展中的超分辨成像技术, 在成像分辨率、削弱背景噪声等方面有明显优势, 但其成像范围局限于金属表面, 只能实现二维平面成像结果. 目前已有利用PSIM成像技术实现超分辨增强拉曼光谱信号的研究报道[33], 相信随着PSIM成像技术的不断研究发展, 此技术的性能参数会得到进一步提升, 并在生物医学领域实现更多重要应用.

2 基本理论

在介绍PSIM技术原理之前, 有必要先了解SPs的基本特性、激发方式以及传统SIM的成像原理, 以便对PSIM技术进行更深层次的研究.

2.1 表面等离激元的色散关系

表面等离激元是局域于金属表面的一种电磁振荡波, 有的文献中也称为表面等离子体[34]. 20世纪初, Wood[35]检测了具有连续光谱的偏振光经过光栅后的变化情况, 发现偏振光的频谱在某一区域内出现损失的现象, 称为“Wood异常”, 这是对于SPs现象的最早记载. 1941年, Fano[36]发现“Wood异常”现象是由于一种表面波引起的, 并提出了体积等离激元的概念, 初步解释了SPs产生的原理. 1957年, Ritchie[37]发现当电子穿过金属膜之后存在能量消失峰的现象, 他定义这种消失峰为“能量降低的”等离激元模式, 并对这种模式与薄膜边界之间的关系进行了分析, 首次提出了“金属等离激元”的概念, 用于描述金属内部电子密度的纵向波动情况. 在1958年, Stem和Farrel[38]研究了此种模式产生的条件并首次提出了“表面等离激元共振(surface plasmon resonance, SPR)”的概念. 随后在1960年, Powell和Swan[39]通过实验证实了Ritchie的理论. 1998年, Ebbesen等[40]在《Nature》报道了SPs在亚波长金属孔阵列结构中的异常透射增强现象之后, SPs因其具有亚波长尺度光信号传递与增强特性再次引起了广大研究人员的兴趣, 有关SPs的新现象、新机理和新应用的研究不断发展. 2003年, Barnes等[34]在《Nature》上发表了题为“表面等离激元亚波长光学(surface plasmon subwavelength optics)”的综述文章, 标志着SPs光学的兴起并逐渐形成一门独立的学科. 近年来随着纳米尺寸加工技术的进步, 基于SPs的各种新奇应用不断涌现, 如突破衍射极限的成像[26]、亚波长波导[41]、等离激元刻蚀[42]、负折射率材料等[43].

$$\boldsymbol{k}_{\rm sp}=\boldsymbol{k}_0\sqrt{\frac{\varepsilon_1\varepsilon_2}{\varepsilon_1+\varepsilon_2}}=\frac{\omega}{c}\sqrt{\frac{\varepsilon_1\varepsilon_2}{\varepsilon_1+\varepsilon_2}}. \tag{1}$$

(1)式为从麦克斯韦方程组推导出的金属/介质分界面的表面等离激元色散公式[44]. 图2所示为光在自由空间(A)、高折射率介质(B), 以及表面等离激元(C)的色散关系曲线. 由于金属介电常数的

实部为负值, 根据 (1) 式SPs的波矢要大于自由空间入射光波矢. 从图2中可以看出SPs的色散曲线始终位于自由空间光波矢 $\boldsymbol{k}_0$ 的右边, 并随着频率增加 $\boldsymbol{k}_{\rm sp}$ 与 $\boldsymbol{k}_0$ 距离越来越远, 即SPs 的波矢越来越大, 波长越来越小, 因此入射光波无法直接在金属膜表面耦合激发SPs. 为了有效激发 SPs, 必须对激发光的波矢进行补偿, 满足激发所需的波矢匹配条件, 才能激发SPs. 下面简要介绍SPs 激发的几种常用方法.

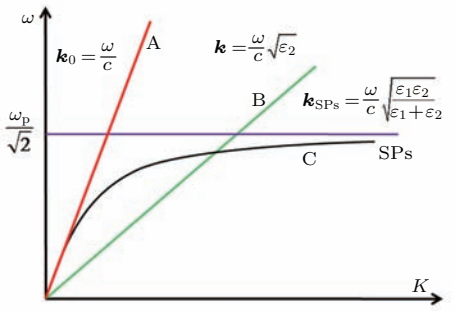


图2 光在自由空间、电介质以及表面等离激元的色散关系曲线

Fig. 2. The dispersion relation curves of light in free space, dielectric and SPs.

2.2 表面等离激元的激发方法

2.2.1 棱镜耦合法

这种方法是现在应用最多的一种表面等离激元激发方法. 1968年, Otto [45] 首次基于棱镜的全内反射实现了表面等离激元的光学激发, 如图3 (a) 所示. 接着Kretschmann和Raether [46] 也报道了一种更加实用的棱镜结构激发表面等离激元, 如图3 (b) 所示. 入射光以不小于全反射角的角度入射, 利用高折射率棱镜 (折射率 $n_{\rm p}>1$) 进行波矢补偿. 通过调节入射角度 $\theta_{\rm sp}$, 改变入射光波矢 $\boldsymbol{k}_0$ 在 x 轴上的分量 $k_x=\boldsymbol{k}_0 n_{\rm p}\sin\theta$, 使 k_x 与SPs波矢 $\boldsymbol{k}_{\rm sp}$ 相等即可激发SPs, 即满足如下波矢匹配方程:

$$\frac{\omega}{c}\sqrt{\varepsilon_1}\sin\theta_{\rm sp}=\frac{\omega}{c}\left(\frac{\varepsilon_2\varepsilon_3}{\varepsilon_2+\varepsilon_3}\right)^{\frac{1}{2}}. \tag{2}$$

所以当沿金属与空气界面方向的光波矢分量在特定入射角度和波长条件下满足波矢匹配方程 (2) 时, 即可有效地激发SPs.

值得提出的是在金属薄膜的上下两个表面均可激发SPs. 对于较厚的金属膜, 光子隧道效应很弱, 这种情况Otto [45] 的结构比较适合. 在该结构中, 全反射棱镜和金属膜有很小的空气间隙 (近场区域), 依旧可在金属和空气间隙的界面上激发SPs. 当金属膜厚度减少到上下表面电磁模的相互作用 (SPR的相互耦合) 不能忽略时, SPs的色散关系会发生很大改变, 此时表面等离激元共振频率将产生分裂, 分别对应对称模式 (低频模式)、非对称模式 (高频模式). 对于较大的SPs波矢, 分裂后的频率可用 (3) 式描述:

$$\omega_{\pm}\approx\omega_{\rm sp}(1\pm{\rm e}^{-\boldsymbol{k}_{\rm sp}d}), \tag{3}$$

其中 d 是金属膜的厚度. 同时, 经过研究表明, 因为对称模式的波矢虚部随厚度的减少而减少, 其传播距离也随之增加, 所以它也被称为长程表面等离激元 (long range surface plasmons, LRSPs) [47].

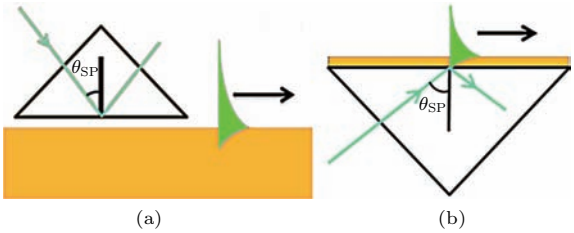


图3 利用棱镜耦合法激发SPs

Fig. 3. Using prism coupling method to excite SPs.

2.2.2 近场散射激发方法

波矢匹配条件限制了远场光波对近场SPs的耦合, 而近场光波可以不受任何限制地耦合到SPs. 采用尺寸远小于波长的探针在近场范围内扫描金属表面, 由于探针对光的散射作用, 在探针附近存在近场倏逝波, 其波矢范围包含了SPs的波矢量, 这样其中一部分倏逝波就能够实现波矢匹配从而激发SPs. 同理, 利用金属表面的亚波长尺寸散射体 (如凸起、凹槽等缺陷) 也能激发SPs. 图4 (a) 为近场探针激发SPs的结构示意图 [48], 图4 (b) 为亚波长尺寸散射体激发SPs的结构示意图 [49]. 近场散射激发方法的优点是结构简单、激发容易, 缺点是只有很小一部分散射光能满足SPs波矢匹配条件, 所以激发SPs的效率比较低.

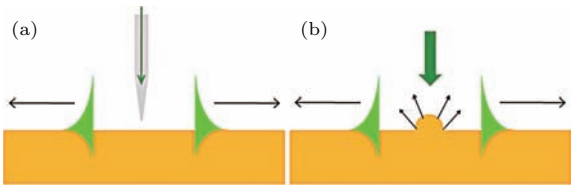


图4 近场激发SPs示意图 [48,49]

Fig. 4. Schematic of exciting SPs by scattering wave [48,49].

2.2.3 光栅激发方法

最早关于SPs的报道就是采用光栅耦合激发的方法实现. 光栅耦合是利用光栅对入射光波矢引入一个额外的波矢增量来实现SPs的波矢匹配. 常用的光栅有一维光栅, 二维光栅以及孔阵列结构和颗粒阵列结构[50]. 图5显示的是一维光栅结构激发SPs的示意图, 其波矢匹配方程为(4)式, 其中θ为入射角, $G=2\pi/\Lambda$是光栅常数, Λ是光栅周期长度, $m(=1,2,3,\cdots)$是光栅的级次. 由于光栅的材料、几何结构参数等都可以自由选定, 可供研究的内容很丰富. 这种方法激发SPs的效率较高, 缺点是光栅结构制备成本较高, 缺乏动态调控性.

$$\boldsymbol{k}_{\mathrm{SPPs}}=\boldsymbol{k}_0\sin\theta\pm mG. \tag{4}$$

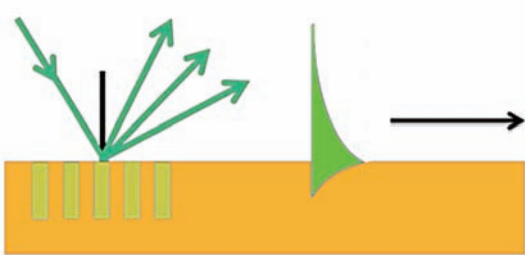


图5 光栅耦合激发SPs示意图

Fig. 5. Schematic of exciting the SPs by grating coupling.

2.2.4 紧聚焦激发方法

近年来, 使用高数值孔径物镜紧聚焦激发SPs的方法备受关注[51], 其原理与棱镜耦合法中Kretschmann[46]的结构相似, 如图6所示. 将高数值孔径的显微物镜通过油浸层靠近一个镀有金属薄膜的介质衬底, 入射光波通过该物镜聚焦到介质衬底/金属界面. 由于高数值孔径物镜能够提供足够大的入射角范围, 涵盖了SPs激发所需要的共振角, 从而能在SPs共振角位置满足波矢匹配条件, 激发SPs. 此方法的优点是激发容易, 只要物镜提供的入射角范围包含SPs共振角就自然能激发SPs, 缺点是只有SPs共振角附近很小一部分入射光可以激发, 绝大部分其他角度的入射光都被金属膜反射了, 所以激发SPs的效率比较低. 这种激发方法能够与传统光学显微系统相结合, 因此被广泛应用于生物显微成像、传感等领域.

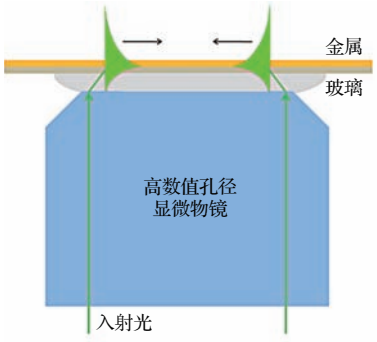


图6 利用高数值孔径物镜紧聚焦激发SPs

Fig. 6. SPs excieted by highly focused laser beam.

2.3 结构光照明显微术基本理论

结构光照明显微成像技术属于一种宽场成像技术, 在提高成像速度方面比点扫描成像具有明显优势. 初期的结构光照明显微术主要用来提高光学显微镜的层析能力, 并且由于只需对传统显微镜稍加改造就可以实现结构光照明, 因此它更为经济, 目前已经有商业公司提供结构光照明模块, 如Olympus的OptiGrid[52]和Zeiss的Apotome[53]. 结构光照明显微术最早是通过在照明光路中加入一个正弦光栅来实现[15], 利用压电陶瓷控制器整体移动光栅来实现结构光的相移, 但是这种机械移动装置降低了系统的稳定性; 后期利用可动态控制的空间光调制器[30–32]、数字微镜器件(digital micromirror device)[54]来代替光栅, 实现结构光照明. 结构光照明不仅可以获得层析成像能力, 更重要的是利用结构光频率和样品频率分量形成的莫尔条纹可以提高横向分辨率. 通过空间调制后的结构光照明样品, 将物场空间高频率信息编码, 再通过计算提取高频率信息, 可将横向分辨率提高到2倍于衍射极限频率. 需要说明的是横向成像分辨率取值与结构光波矢正相关, 因此提高结构光的波矢就提高了系统接收高频信息的能力, 也就提升了成像的空间分辨率.

2.3.1 结构光照明横向分辨率原理

横向的结构光照明为正弦分布:

$$I(x)=I_0[1+\cos(\boldsymbol{k}_0x+\varphi)]. \tag{5}$$

(5)式经过傅里叶变换, 可以在频谱面上看到三个脉冲(δ)频率分量:

$$\begin{aligned}I(k)=I_0[&\delta(k)+1/2\delta(k+k_0)\exp(\mathrm{i}\varphi)\\&+1/2\delta(k-k_0)\exp(-\mathrm{i}\varphi)].\end{aligned} \tag{6}$$

在频域内, 定义源图像的频域为$B(k)$, 其反映的是荧光分子等样品的浓度分布信息. 必须指出的是, 无论是结构光照明图案的频率$I(k)$, 还是源图像的空间频率$B(k)$, 都受到系统的衍射极限频

率限制$OTF(k)$. 故系统在频域的输出为$O(k)$, 其表示为

$$\begin{aligned} O(k) &= [I(k) * B(k)] \cdot OTF(k) \\ &= I_0[B(k) + 1/2B(k + k_0)\exp(\mathrm{i}\varphi) \\ &\quad + 1/2B(k - k_0)\exp(-\mathrm{i}\varphi)] \cdot OTF(k). \end{aligned} \tag{7}$$

SIM系统所获得的图像空间频谱实为宽场频谱和衍射极限频率外高频信息所叠加产生的混合频谱. 为了复原超分辨频谱的真实分布, 首先需要将各频谱分量$B(k)$, $B(k + \boldsymbol{k}_0)$和$B(k - \boldsymbol{k}_0)$准确分离; 再将已分离的高频信息搬回原有的位置; 最后, 结合去卷积运算[55], 获得最优化的超分辨图像显示效果. 基于以上分析可知, 由于(6)式中共包含三个未知频谱分量$B(k)$, $B(k + \boldsymbol{k}_0)$和$B(k - \boldsymbol{k}_0)$, 至少需要构建三个独立方程式以获得未知数的精确解. 显然, 在结构光调控过程中, 相位是最合适的调制参数. 选择三个不同初相位$\{0, \varphi_1, \varphi_2\}$的结构光激发样品, 得到三项频域内的输出$\{O(k), O_1(k), O_2(k)\}$, 从而求得

$$\begin{bmatrix} B(k) \\ B(k + \boldsymbol{k}_0) \\ B(k - \boldsymbol{k}_0) \end{bmatrix} = A^{-1} \begin{bmatrix} O(k) \\ O_1(k) \\ O_2(k) \end{bmatrix}, \tag{8}$$

其中A为转换系数

$$A = I_0 \begin{bmatrix} 1 & 1/2 & 1/2 \\ 1 & 1/2\exp(\mathrm{i}\varphi_1) & 1/2\exp(-\mathrm{i}\varphi_1) \\ 1 & 1/2\exp(\mathrm{i}\varphi_2) & 1/2\exp(-\mathrm{i}\varphi_2) \end{bmatrix}. \tag{9}$$

经过算法重构, 结构光系统最大的空间频率可以达到系统衍射极限频率的2倍, 故可以将特定方向的空间分辨率提高一倍. 同时改变相移方向, 将所有方向获得的高频分量整合, 可以将整个二维平面的分辨率都提高一倍. 结构光照明在$\boldsymbol{k}$矢量空间的表示如图7所示.

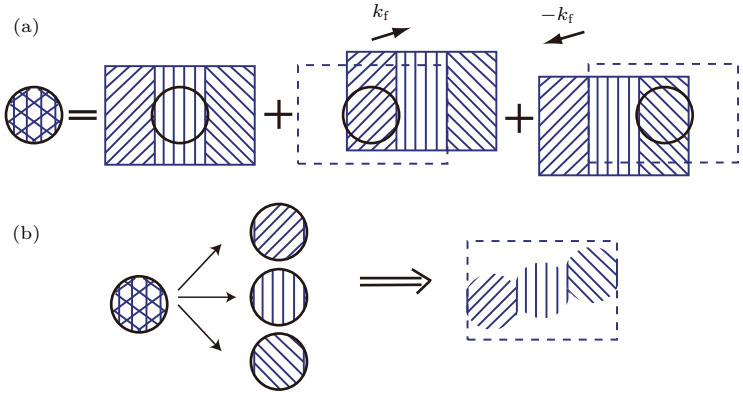


图7 结构光照明在$\boldsymbol{k}$矢量空间的表示[56] (矩形代表样品$\boldsymbol{k}$矢量空间的表示, 为了简单说明分成三个方向, 纵向条纹为样品的直接成像宽场信息, 斜条纹代表样品的高频信息) (a) 小圆圈表示系统点扩散函数的傅里叶变换, 由于正弦照明, 记录强度是三个不同方向分量的总和的傅里叶变换, 包含有纵向条纹物品信息与其他两个斜条纹信息; (b) 如果在图像中记录的三个信息分量被适当分开, 它们可以用来提升分辨率

Fig. 7. Effect of the structured illumination in $\boldsymbol{k}$-vector space[56] (the rectangle represents the sample $\boldsymbol{k}$-vectors, the sample separation in three areasis simply illustrative): (a) The small circles are the Fourier transform of the point spread function, because of the sinusoidal illumination, the Fourier transform of the recorded intensity is the sum of three different components, include with the wide-field information (vertical stripes), information from two more areas of the sample (diagonal stripes), is mixed in the recorded image; (b) if the three information components recorded in the image are properly separated, they can be used to increase the resolution.

2.3.2 表面等离激元结构光显微成像基本原理

对于传统SIM成像技术, 其分辨率R可以写成[26]:

$$R = \frac{\lambda_{\mathrm{emission}}}{2NA\left(1 + \dfrac{\lambda_{\mathrm{emission}}}{\lambda_{\mathrm{excitation}}}\right)}. \tag{10}$$

对于荧光光谱来说, $\lambda_{\mathrm{eimission}} \approx \lambda_{\mathrm{exciatation}}$, 因此SIM成像分辨率接近$\lambda_{\mathrm{eimission}}/(4NA)$, 即传统衍射极限频率的2倍. 而PSIM技术将SIM与可调控的SPs干涉驻波条纹相结合, 对于PSIM成像, $\lambda_{\mathrm{exciatation}} = \lambda_{\mathrm{sp}}$, 根据图2可知SPs波矢总大于激发光波矢, 使得SPs驻波比激发光波长更短、频率

更高, 因此将高频的SPs条纹作为结构光可以显著提升成像系统分辨高频信息的能力. SPs条纹可以通过相向传播的SPs波干涉形成驻波来产生, 并可以通过调节SPs波的初始相位实现驻波的相移. 图8给出了PSIM成像波矢空间的示意图.

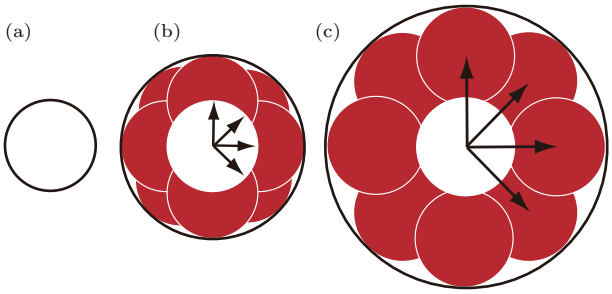


图8 PSIM波矢空间示意图[56] (黑色圆圈是波矢空间中的点扩散函数, 圆越大表明分辨率越高) (a) 初始点扩散函数; (b) 通过四个方向 (箭头表示) SIM成像重建的点扩散函数, 共有十二幅图像获取 (每个方向的三幅图像), 得到更高的分辨率; (c) 通过PSIM技术重建的点扩散函数, 条纹由相向传播的SPs波干涉生成, 这些条纹超越光学分辨, 对于一个连续点扩散函数, PSIM可实现衍射极限频率三倍以上的成像分辨率

Fig. 8. The $\boldsymbol{k}$-vector space representations of PSIM[56] (the black circles are the point spread functions in $\boldsymbol{k}$ space, the larger the circle the better the resolution): (a) Original point spread function of the lens; (b) reconstructed point spread function via optical SIM for four directions (the arrows), twelve images are acquired (three for each direction) to reproduce a high resolution one; (c) reconstructed point spread function via PSIM, the illumination fringes are created from counter propagating SPs, these fringes beyond optically resolved, for a continuous point spread function, PSIM achieves triple better imaging resolution as the diffraction limit.

3 表面等离激元结构光照明显微术的研究进展

国际上对PSIM技术的研究, 根据SPs条纹的产生与调控方法可分为两类: 一类是基于微纳米金属结构的PSIM, 还有一类是基于全光激发与调控的PSIM. 结构型的PSIM技术具有高效耦合、局域场增强的优势, 但同时透过结构的光对于成像会造成影响, 并且因为结构固定, 限制了结构光场的任意可调. 全光型的PSIM技术具有高动态性、光场任意可调的优点, 但其耦合效率较低. 得益于纳米加工技术的发展, 基于纳米尺度结构的PSIM相比较全光的PSIM可以实现更高的条纹空间频率, 理论上可以得到更高分辨率的PSIM成像, 但也存在加工难度高等问题.

3.1 基于结构调制的PSIM介绍

2010年, 美国加州大学圣地亚哥分校刘照伟教授在国际上首次提出PSIM的概念[26], 并通过模拟分析了两种结构的PSIM成像分辨率. 两种结构分别基于不同厚度的两种金属/介质膜, 以银膜作为金属膜, 水作为周围介质. 其中一种结构如图9所示, 银膜厚度为100 nm (灰色区域), 采用Kretschmann[46]结构激发方法, 563 nm激发光以不同入射角激发产生SPs干涉图样并发生横向位移. 当入射激发角度分别为0°, 4.6°和8°时, 三种SPs干涉驻波场沿横向呈现120°的相位差. 该方法可用于暗场荧光成像, 文中分析可实现3倍的成像分辨率提高.

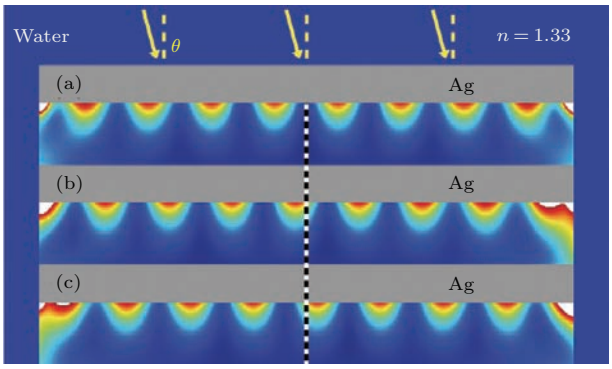


图9[26] (a)—(c) SPs驻波干涉条纹的时间平均电能量密度分布, 分别以0°, 4.6°和8°作为激发角, 三种干涉SPs驻波模式沿横向方向呈现120°的相位差

Fig. 9.[26] (a)–(c) The time-averaged electrical energy density distribution of the SP interference pattern with incident angle equal to 0°, 4.6°, and 8.0°, respectively. The three interference patterns show 120° mutual phase difference along the lateral direction.

第2种结构采用17 nm厚度的银膜和光栅激发方法, 通过优化的周期性Cr金属纳米孔结构去激发SPs[26], 如图10所示. 纳米孔结构可以产生类似光学Bloch波的SPs-Bloch模式, 当m阶SPs-Bloch波相向传输形成驻波条纹, 条纹周期决定于纳米孔的周期, 其在矢量空间满足$k_{\mathrm{f}} = 2(kS \pm mk_{\mathrm{g}})$, 这里$k_{\mathrm{g}}$为纳米孔周期的倒数. 因此可以通过缩小纳米孔的周期长度来形成更为精细的SPs干涉驻波条纹, 文中分析可实现4倍的成像分辨率提高.

2012年, 袁小聪教授课题组[57,58]利用四方向金属光栅结构实现了PSIM, 具体结构如图11 (a)所示, 其中光栅围绕的中心区域面积是

12 μm × 12 μm. 采用633 nm波长的线偏振的光学旋涡(optical vortex, OV)作为激发光弱聚焦于金属光栅结构上, 在中心区域内激发产生SPs驻波场, 再通过调控入射光的相位(即OV光束的拓扑荷), 实现SPs驻波条纹相移, 致使荧光成像. 这种实验装置简单、重复性高, 但由于成像视场范围受限于SPs的传播距离, 中心成像区域面积较小, 不利于大尺寸样品的放置、对准测量. 通过调整激发光的偏振方向, 可以实现双方向的PSIM成像, 最终实现的成像分辨率达到172 nm, 接近激发波长的1/4.

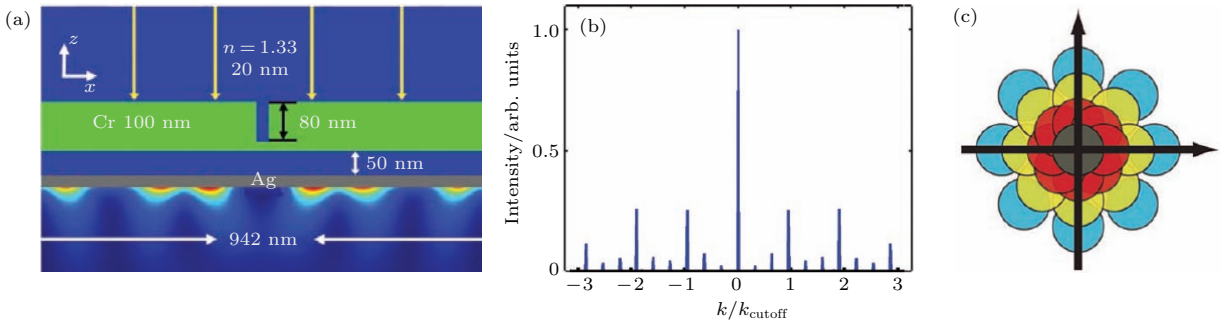


图10 [26] (a) 结构示意图与SP干涉图案(取电场能量密度分布的时间平均值); (b) 干涉图案的傅里叶变换; (c) 对应的波矢空间表示; 不同的颜色代表不同阶照明图案的波矢信息

Fig. 10. [26] (a) Structure and SP interference pattern (time-averaged electric energy density distribution); (b) Fourier transform of interference pattern; (c) corresponding k space representations; different colors represent the information obtained from different orders of the illumination patterns.

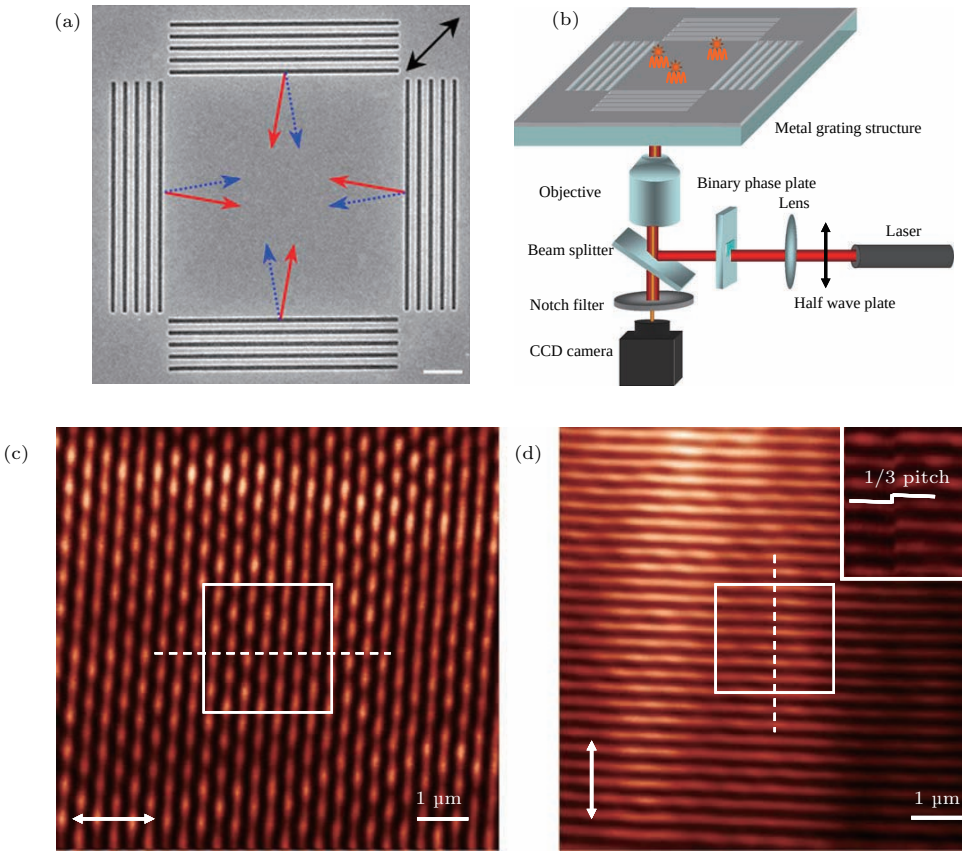


图11 [58] (a) 四方向金属光栅扫描电镜图像, 可用于产生SPs莫尔条纹; (b) SPs驻波荧光显微镜原理图; (c), (d) 利用近场光学显微镜得到狭缝阵列结构中心区域的SPs驻波场的强度分布, 其入射光偏振方向分别为x (c)和y (d)方向, (d) 的插图是采用二进制相位板插入光路光学显微镜中实现的SP驻波相移的条纹图像

Fig. 11. [58] (a) SEM image of four metallic gratings to generate plasmonic Moiré fringes; (b) a schematic diagram of the SP-SWF microscope; (c), (d) NSOM images of SP standing wave filed intensity distributions in the central area of slit array structures with polarization of illumination light along x (c) and y (d) direction, respectively. Insertion in (d) is the NSOM image of phase-shifted SP standing wave fringe by using binary phase plate inserted into optical path.

2014年, 刘照伟课题组在《Nano Letters》期刊上发表的文章展示了其PSIM技术的最近实验研究成果[27]. 如图12和图13所示, 他们在金属膜上刻蚀了正交的细缝, 形成了正方形狭缝阵列. 每次入射光照明, 正方形对边将会激发产生相向传播的SPs, 叠加后形成SPs驻波的结构光用于荧光成像. 他们又通过精确控制照明光的入射角度实现了驻波条纹的移动. 而SIM二维超分辨成像的实现, 则是由调节照明光的偏振实现, 正交的偏振方向分别开关了正方形两组对边狭缝SPs的产生. 这一技术使得成像分辨率提升了2.6倍, 达到123 nm.

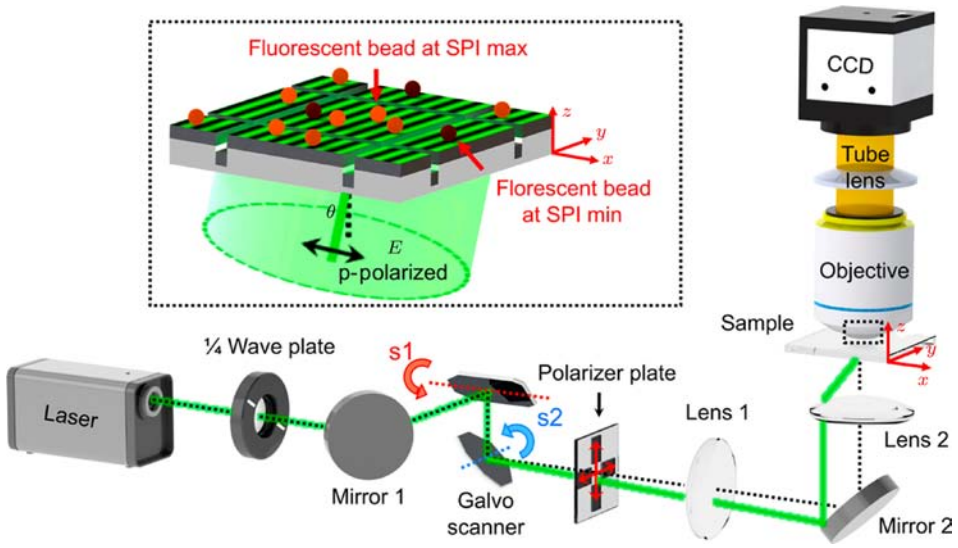


图12[27] PSIM系统原理图 在x-z与y-z平面的入射角度通过分别控制扫描电镜S2和S1的旋转实现, 扫描电镜S2放在透镜1的焦平面上, 样品放置在透镜2的焦平面上, 插图为样品区域的放大图

Fig. 12.[27] Schematics of the PSIM system. The illumination angle tuning in x-z and y-z planes are controlled by the rotation of the s2 and s1 mirror of the Galvo scanner, respectively, with the s2 mirror placed at the focal plane of lens 1 and the sample placed at the focal plane of lens 2. Inset: a magnified view of the sample region.

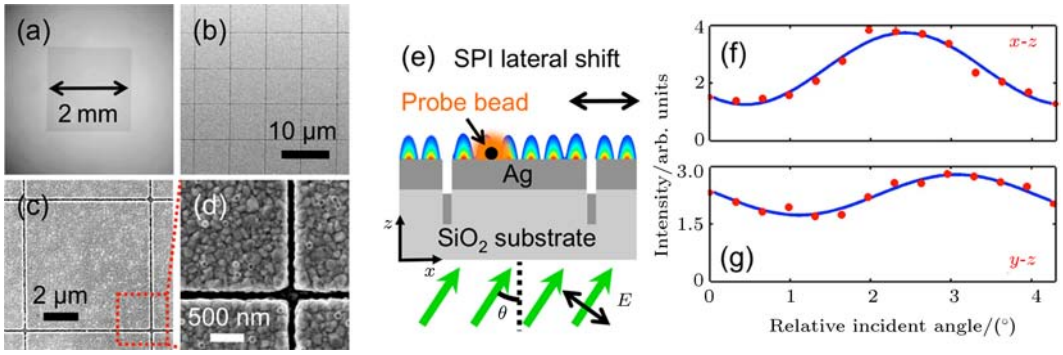


图13[27] 样品制备与表征 (a) PSIM基板的光学图像, PSIM基板面积为2 mm × 2 mm; (b)—(d) PSIM基板扫描电子显微镜图像, 狭缝阵列的图像(b), (b)结构单元的扫描电子图像(c), 狭缝的进一步放大图像(d); (e) SPs干涉结构示意图, 随着入射角θ的变化, SPI干涉结构发生变化(由水平横向黑色箭头指示的方向); (f), (g) 荧光强度与分别在x-z平面(f)和y-z平面(g)相对入射角的关系

Fig. 13.[27] Sample fabrication and characterization: (a) Optical image of a large PSIM substrate, the total PSIM substrate area is 2 mm × 2 mm; (b)–(d) scanning electron microscope (SEM) images of a PSIM substrate, showing an array of the patterned slits (b), one unit cell (c) and a further magnified view of the slits (d); (e) schematic illustration of the SPI tuning scheme, as the incident angle θ changes, the SPI pattern shifts laterally (direction indicated by the horizontal black arrow); (f), (g) fluorescence intensity vs the relative incident angle in x-z (f) and y-z (g) plane, respectively.

此外, 基于纳米光学天线结构, 刘照伟课题组又开发出一种局域表面等离激元结构光照明显微成像技术(LPSIM)[29]. 不同于前面基于周期性狭缝结构的PSIM技术, 利用纳米天线激发的局域表面等离激元, 其空间频率可以任意获取, 理论上并没有分辨率的极限. 图14为光学天线的结构示意图[28], 纳米天线的直径在60 nm, 天线间距为150 nm, 制作成六角形排布. 图中红线表示照明激发光的p-偏振方向, 通过改变激发光的入射角, 即能实现SPs条纹的相移. 结果显示, LPSIM技术将图像分辨力提高3倍, 点扩散函数半高宽从153 nm降到52 nm.

2016年鱼卫星课题组[59,60]理论研究了梯度介电常数人工结构在SIM 成像中的应用. 此人工结构由金属与介质交替叠加组成, 其多步相移通过调制入射角度得到, 如图15所示. 采用532 nm激发光入射, 可以得到SPs干涉驻波条纹周期达到84 nm, 理想情况下可以实现亚45 nm的PSIM成像分辨率. 这意味着相比较常规的荧光成像, 可以实现5倍的成像分辨率提升. 此类设计与之前刘照伟课题组[25]报道的结构类似, 但创新性地采用了金属与介质交替叠加的结构, 进一步增加了等效折射率, 降低了驻波条纹周期, 提升了空间频率.

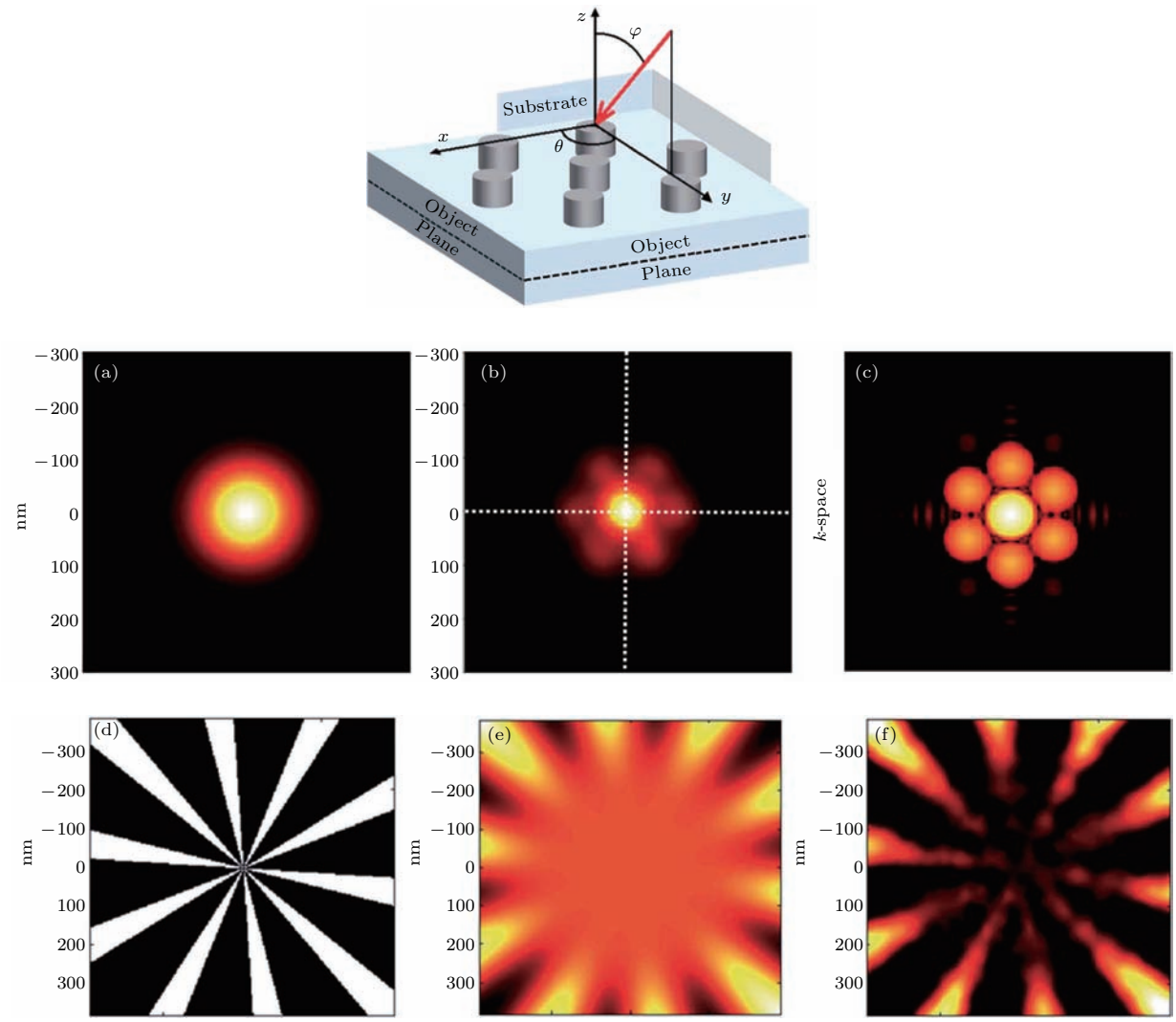


图14[29] LPSIM原理示意图(红色箭头代表p偏振激光, 以不同角度激发等离子基板, 在天线后产生短程的近场激发模式)分辨率表征 PSFs (a) 衍射受限系统和(b) LPSIM技术; (c) 经过LPSIM重构之后的光学传递函数; (d) 实心条纹物体; (e) 衍射受限图像; (f) LPSIM图像

Fig. 14.[29] The Schematics of the LPSIM. The red arrow represents p-polarized laser light, directed towards the plasmonic substrate at varying angles to create near-field excitation patterns a short distance behind the antennas. Resolution characterization: PSFs of (a) a diffraction-limited system, and (b) the LPSIM technique; (c) expanded OTF after LPSIM-reconstruction; (d) a solid striped object; (e) diffraction-limited image; (f) LPSIM image.

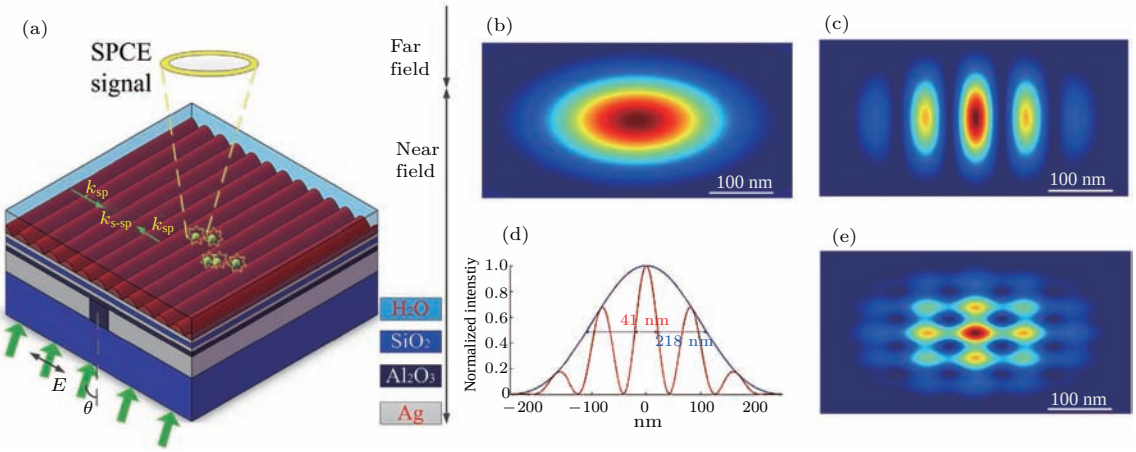


图 15 [59] 在 SIM 使用的 GPMS 的示意图和它的成像性能仿真结果 (a) 由 GPMS 产生 SPS 的光学示意图, 两列相向传输的表面等离激元形成驻波干涉条纹, 用来激发在水膜中的量子点 (或荧光珠); 点扩散函数 (b) 的二 (a) 衍射受限系统, (c) x 方向的重建图像, (d) 传统的荧光显微镜图像 (蓝色曲线) 和利用 GPMS 实现的超分辨率图像 (红色线) 之间的半高宽比较; (e) x 和 y 方向的重建图像

Fig. 15. [59] The schematic diagram of the GPMS used in SIM and the simulation results of its imaging performance: (a) Optical configuration of SPs generated by GPMS, the standing interference pattern, which is generated by two adjacent counter propagating SPs, is used to excite the quantum dots (or fluorescent beads) in the water film; point spread function (b) a diffraction-limited system, (c) x-direction reconstructed image, (d) FWHM comparison between conventional epi-fluorescence microscope image (blue curve) and the super-resolution image using the GPMS (red line); (e) both x and y direction reconstructed image.

3.2 基于全光调制的PSIM技术

全光调控型PSIM技术利用入射光束整形产生特殊相位、偏振分布的新颖光束作为激发光源, 选择性地在均匀金属/介质界面激发可重构的SPs驻波条纹, 并进一步通过变化入射光束的相位、振幅、偏振来动态调控所激发的SPs条纹. 此方法无须制备复杂的微纳米金属结构, 简单经济, 而且易与传统的光学显微系统相整合. 此技术类似于已经报道的TIRF-SIM成像 [25] 手段, 只是样品的底层介质不同, 相比较而言PSIM由于SPs波长短而具有更高的成像分辨率.

2009年, 麻省理工大学的Chung等 [61] 发表了一项研究工作: 将SPs应用于宽场荧光超分辨成像中, 称为驻波-表面等离激元荧光成像技术 (SW-SPRF). 图16为光学系统示意图, 使用激光波长为532 nm, 在准直系统中置入偏振片, 以此选择激发光为p偏振或者s偏振. 实验中金膜蒸镀在盖玻片上, 然后在金膜上又镀了一层5 nm厚的二氧化硅. 激发所使用的紧聚焦物镜是45倍, 数值孔径为1.45, 此时两束激发光入射角度为44.7°, 每束光都会激发SPs, 两束相向的SPs干涉产生驻波结构光照明体系, 文中分析了此时对应的对比度为0.8. SIM技术中重要的环节之一就是控制结构光产生稳定相移, 从而覆盖整个成像区域, 如图所示, Chung等在一束激发光中加入了反馈调节装置, 稳定快速地完成了SPs条纹的相移过程. 图16 (a1)为原始荧光像, (b1)为(a1)去卷积后得到的效果图, (c1)和(d1)分别为三步相移的算法合成图像以及合成后算法优化处理后的图像, (d2)表征了最后得到的荧光点扩散函数 (PSF) 的截面数据, 可以看出最终的成像分辨率达到124 nm. 另外, 此方法提高了信噪比, 降低了荧光猝灭的可能性, 可满足生物医学成像中的迫切需求.

2010年, 袁小聪课题组 [30] 提出了基于表面等离激元旋涡的PSIM显微成像技术. 如图17 (a)所示, 他们用高数值孔径物镜将OV聚焦在银膜上, 在银膜上表面激发产生SPs旋涡驻波条纹, 致使荧光成像. 再利用OV光束的拓扑荷变化, 实现了SPs驻波场的相移, 如图17 (b)所示, 拓扑荷从1—4变化, 所对应的相移为0, $2\pi/5$, $4\pi/5$和$6\pi/5$. 这种装置较Chung等实验装置更加简单, 重复性高. 从图17 (c)荧光点扩散函数的截面数据可以知道, 实验最终实现的图像分辨率为150 nm, 与152 nm的理论分辨率符合得很好.

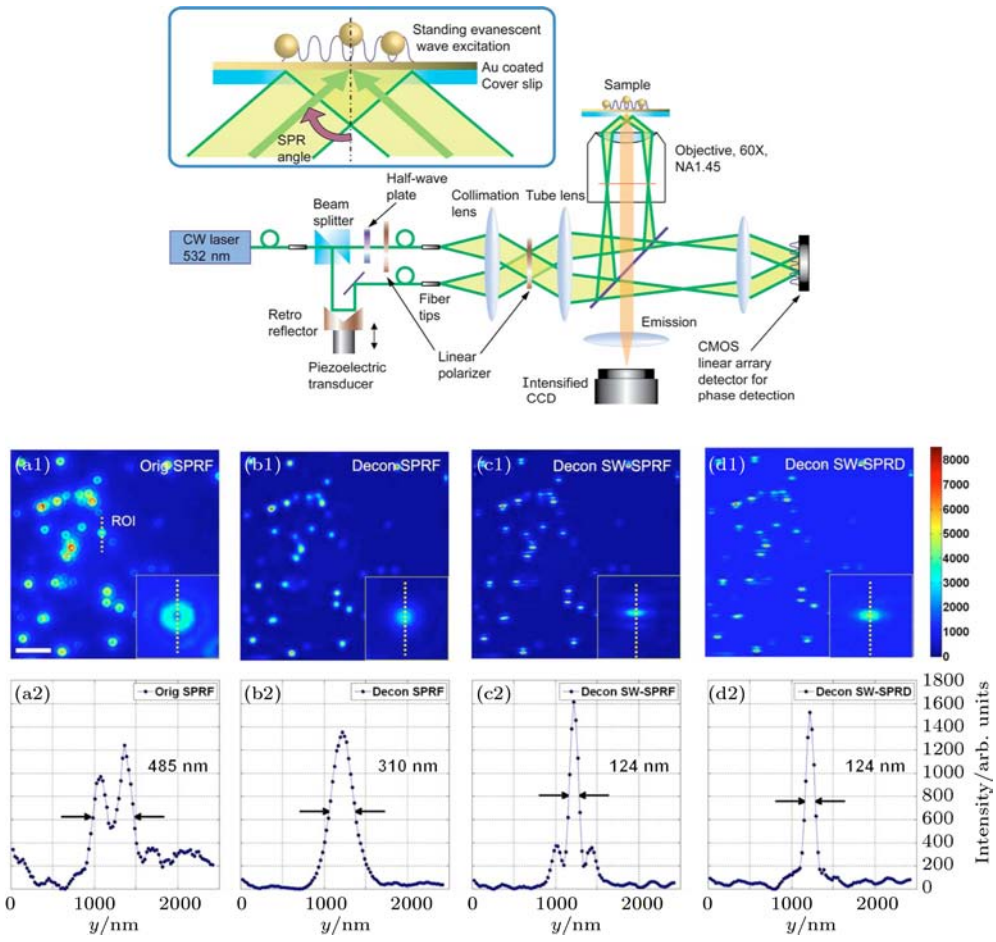


图 16 [61] SW-SPRF 实验系统结构图 SW-SPRF 显微在垂直方向的分辨率: (a1) 初始荧光图像, (b1) 去卷积的 SPRF 图像, (c1) 基于三幅去卷积后的 SPRF 图像实现 SW-TIRF 算法得到 SW-SPRF 图像, (d1) 线性去卷积降低 SW-SPRF 图像的旁瓣; (a2)—(d2) 比较了不同方法得到的选定区域 PSF 函数分布. 比例尺, 2 μm; 插图直径 1.3 μm

Fig. 16. [61] Experimental setup of SW-SPRF microscopy. Extended-resolution imaging with SW-SPRF microscopy in vertical direction: (a1) Original SPRF image, (b1) deconvolved SPRF image, (c1) SW-SPRF image after applying the SW-TIRF algorithm on three deconvolved SPRF images, (d1) SW-SPRF image with linear deconvolution to reduce side lobes; (a2)–(d2) comparison of PSF profiles of various imaging methods at a selected region of interest (ROI). Scale bar, 2 μm; inset size 1.3 μm across.

2015 年, 袁小聪课题组 [31] 进一步改进了 PSIM 系统, 利用携有分数拓扑荷的 OV 光束激发特定相移的 SPs 驻波场, 同时对激发光束进行强度调制, 激发出利于算法处理的一维驻波条纹. 如图 18 (a) 所示, 强度调制器为一蝴蝶形的光阑, 如此一来, OV 光分为对称的两束光, 同时携带了相移的拓扑信息. 如图 18 (c) 所示, 拓扑荷分别为 1, 1.66, 2.34 的 OV 光束进入激发系统后产生的驻波相移分别是 $-2\pi/3$, 0, $2\pi/3$. 实验处理后得到的点扩散函数截面半高宽 (FWHM) 为 95 nm, 国际上首次将全光调制型 PSIM 成像分辨率提高到 100 nm 以下. 此项技术实现了近似平行的均匀 SPs 驻波条纹, 解决了之前旋涡光束激发产生 SPs 条纹为圆形且不均匀的问题, 为后期图像处理带来了较大的方便.

由于全光调制型 PSIM 大都高数值孔径物镜聚焦的 SPs 激发方法, 其中只有 SPs 共振角附近很小一部分入射光可以用来激发, 绝大部分其他角度入射光都被金属膜反射了, 所以激发 SPs 的效率比较低. 2016 年, 袁小聪课题组 [31] 将新颖的完美涡旋光束 (POV) 引入 PSIM 系统, 利用完美涡旋光束的环形边带非常窄的特点, 将窄带环形光束精确对应到 SPs 共振角度, 从而让更多的入射光能量被用于激发 SPs 驻波场. 该项 PSIM 技术的优势在于 SPs 激发效率比普通 OV 光束高很多, 目前已实现了 6.2 倍的成像激发效率提升. 此外, 由于完美涡旋光束是窄带环形光束, 中心没有激发光透过金属膜, 能较好地抑制背景噪声, 提高成像的信噪比.

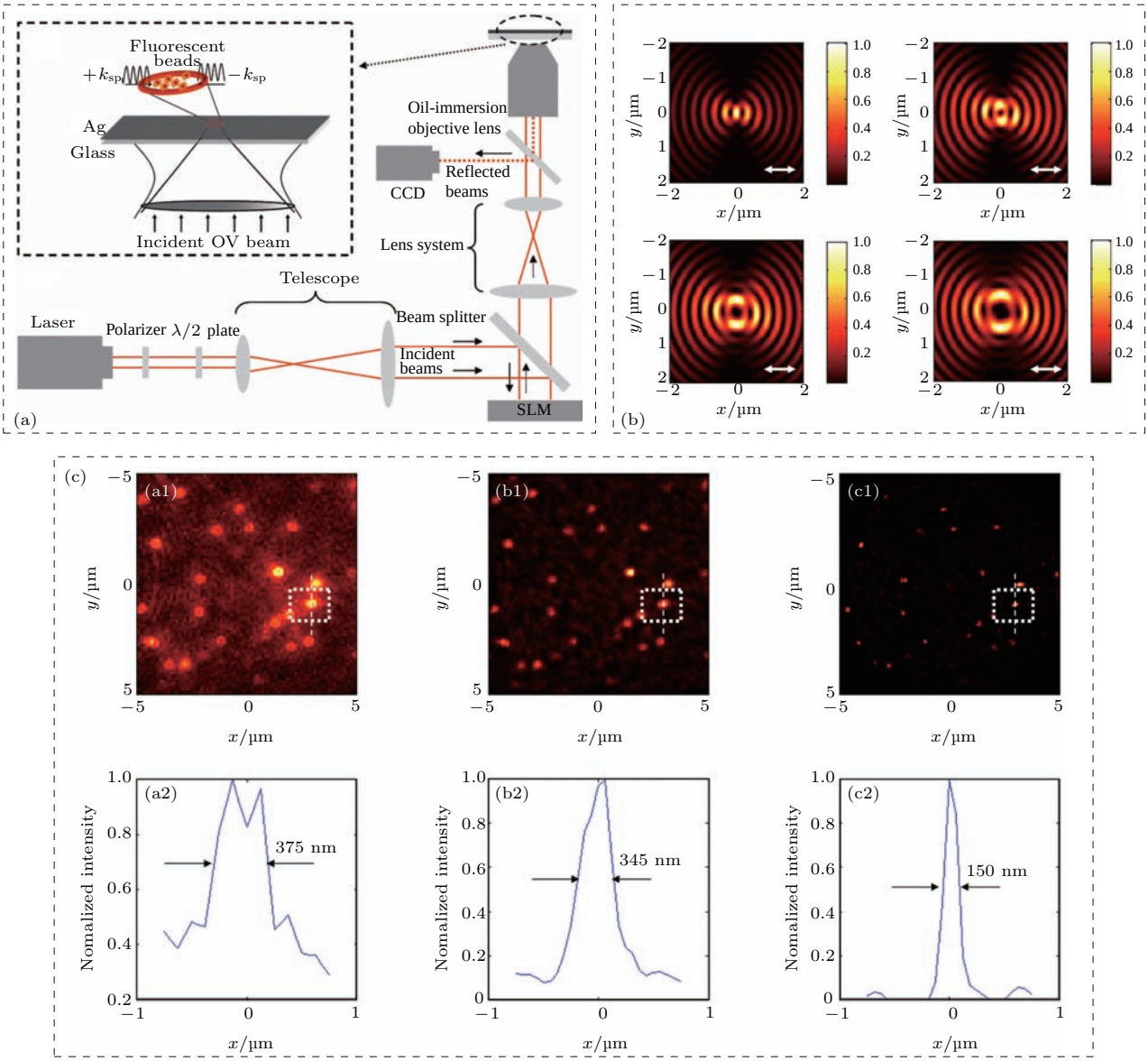


图 17 [30] (a) 光学旋涡聚焦银薄膜所产生的表面等离激元激元的实验系统示意图; (b) 具有不同拓扑荷 $l = 1, 2, 3, 4$ 的线偏振光学旋涡光束 x 方向激发的表面等离激元驻波分布; (c) (a1) 原始图像, (b1) 利用 SPCE 点扩散函数去卷积的 SPRF 图像, (c1) 应用 sw-tirf 算法和线性 Richardson-Lucy 去卷积后 sw-sprf 图像; (a2)—(c2) 为 (a1)—(c1) 选定区域的点扩散函数包络

Fig. 17. [30] (a) Aschematic diagram of experimental setup of SPPs generated by OV which focuses on the Ag thin film; (b) excitation SPs standing wave profile generated by a linearly polarized OV beam in x direction which carries the topological charge of $l = 1, l = 2, (cl) = 3$, and $dl = 4$. (c) (a1) original SPRF image, (b1) deconvolved SPRF image with SPCE PSF kernel, (c1) SW-SPRF image after applying SW-TIRF algorithm and linear Richardson-Lucy linear deconvolution; (a2)–(c2) comparison of PSF profiles at a selected ROI in (a1)–(c1).

该技术通过调节POV光束的分数阶拓扑荷, 实现SPs条纹相移的过程, 如图19所示, 拓扑荷分别为1.33, 2, 2.66的POV光束实现0, $2\pi/3$, $4\pi/3$的相移过程, 得到的成像分辨率为132 nm.

4 总结及展望

由于传统显微成像技术存在的衍射极限极大地制约了其应用范围, 如今有越来越多的新型成像技术被提出以突破这一限制. 其中结构光照明显微成像技术因其超分辨、宽场、快速成像的优势, 在生物医学上的应用价值不可忽视. 近些年来SIM技术结合表面等离激元的研究进展, 发展出了PSIM技术. 该技术将成像分辨率提高了衍射极限频率的3到4倍, 且其成像区域受限于金属表面, 背景噪声弱, 有较好的成像对比度. 本文介绍的不同PSIM成像技术的综合参数对比见表1. 此外, PSIM技术还可以与其他显微技术相结合产生更多应用, 例如:

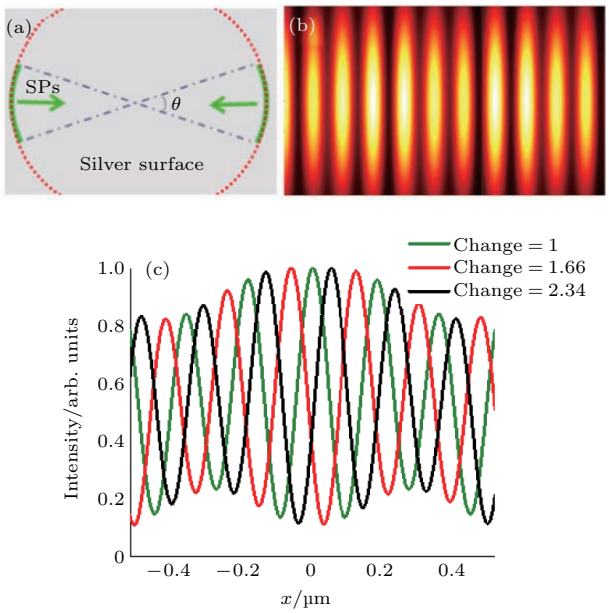


图 18 [31] (a) 利用振幅滤波器实现激发光变成为一对较小的半弧如绿色半弧所示; (b) 在银膜中心相向传播 SPS 波形成一个标准的 SP 驻波模式; (c) 利用分数阶拓扑荷的光学旋涡实现精确的相移 $\{-2\pi/3, 0, 2\pi/3\}$

Fig. 18. [31] (a) The excitation position was cut to a smaller pair of arcs showed as green solid arcs by amplitude filter; (b) a standard SP-standing-wave pattern with uniform periodicity could be generated by two counter-propagate SPs waves toward the silver film center; (c) precise phase shifts of $\{-2\pi/3, 0, 2\pi/3\}$ achieved by OVs with fractional topological charges.

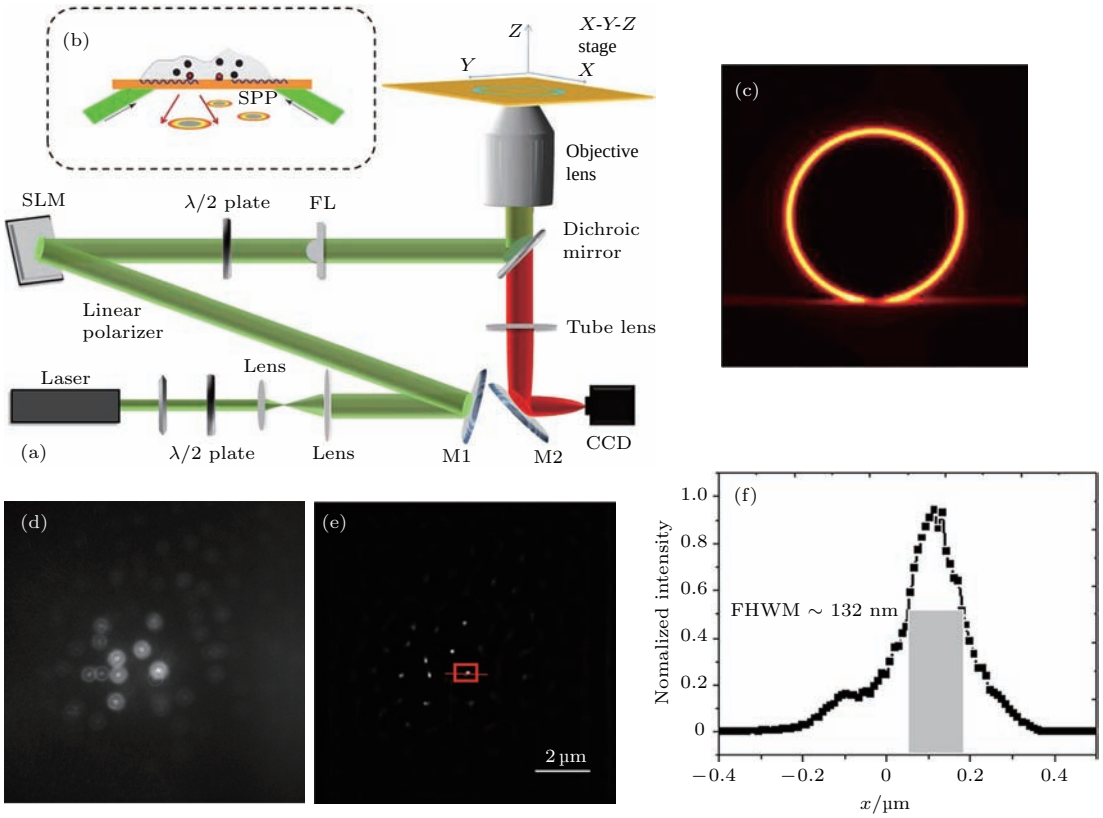


图 19 [32] (a), (b) PSIM 系统的示意图; (c) 具有分数阶拓扑荷的完美光学旋涡; (d) 原始的荧光图像; (e) 经过三步相移算法重构得到的超分辨荧光图像; (f) 对应于 (e) 红色线表示的强度分布, 表明具有 132 nm 的成像分辨率

Fig. 19. [32] (a), (b) Experimental setup for PSIM system; (c) perfect optics vortex with fractional topological charges; (d) origianl fluorescence images; (e) super-resolved fluorescence image by applied reconstructed algorithm to three inter media images; (f) the corresponding fluorescence intensity cross-section in (e) shows the optical resolution (132 nm).

表 1 不同 PSIM 成像技术的综合参数对比

Table 1. Comparison of different PSIM imaging techniques.

激发方法	成像分辨率	像场大小	信噪比	成像维度	参考文献
棱镜耦合	较高 (74 nm, 214 nm)	较大 (50 μm)	最高	1 维	[26]
光栅激发	较高 (70—110 nm)	最大 (2 mm × 2 mm)	低	2 维 (2 方向)	[27, 58—61]
近场散射	最高 (52 nm)	大 (15—30 μm)	低	2 维 (多方向)	[28, 29]
紧聚焦激发	较高 (95—142 nm)	较小 (5—15 μm)	高	2 维 (多方向)	[30—32], [62]

由于 SPs 具有局域电磁场增强的特性, 有报道将 PSIM 技术与 Raman 成像技术相结合实现表面增强拉曼的宽场成像 [33,62]; 在理论上 PSIM 可以实现多种波长多色成像, 可以使用感兴趣的不同荧光分子来成像; 同时 PSIM 技术可以通过增加激发功率, 增强荧光分子的非线性效应, 进一步提高成像分辨率, 实现基于 SPs 的饱和吸收 SIM 成像.

需要指出的是, 虽然 PSIM 技术拥有诸多优势, 但其局限性也十分明显: 由于 SPs 是一种表面倏逝, 所以其成像区域限定为距离金属表面 200 nm 左右范围内, 只能实现近金属表面样品的二维平面成像; 结构型 PSIM 成像可以实现更高的成像分辨率, 但受限于结构固定, 不易动态调控, 且信噪比、成像维度也受到影响; 全光型 PSIM 成像均采用高数值孔径聚焦, 成像区域受到 SPs 干涉区域大小的限制. 并且现在已有的 PSIM 成像报道, 主要是通过荧光小球进行分辨率的标定, 尚缺乏对于实际生物样品的检测. 同时现有 PSIM 成像研究都是基于一些基本的假设: 如荧光强度与 SPs 条纹的相对线性相关; 形成的 SPs 条纹周期不会因为表面荧光分子的分布产生变化; 不考虑金属表面对于荧光淬灭的影响等. 所以现有的 PSIM 成像技术还远不够完善, 仍有待于进一步深入研究和发展. 相信随着该技术的不断研发和改进, 这些难题终将被解决, 最终形成可实用化的新型超分辨光学显微成像仪器, 为生物医学成像领域做出突出贡献.

参考文献

[1] Born M, Wolf E 2009 *Principles of Optics* (Amsterdam: Elsevier)

[2] White J G, Amos W B 1987 *Nature* **328** 183

[3] Sheppard C J R, Wilson T 1981 *J. Microsc.* **124** 107

[4] Bek A, Vogelgesang R, Kern K 2006 *Rev. Sci. Instrum.* **77** 043703

[5] Betzig E, Trautman J K 1991 *Science* **251** 1468

[6] Reddick R C, Warmack R J, Ferrell T L 1989 *Phys. Rev. B* **39** 767

[7] Fang N, Lee H, Sun C, Zhang X 2005 *Science* **308** 534

[8] Durant S, Liu Z, Steele J M, Zhang X 2006 *JOSA B* **23** 2383

[9] Liu Z, Durant S, Lee H, Pikus Y, Fang N, Xiong Y, Sun C, Zhang X 2007 *Nano Lett.* **7** 403

[10] Xiong Y, Liu Z, Sun C, Zhang X 2007 *Nano Lett.* **7** 3360

[11] Lee H, Liu Z, Xiong Y, Sun C, Zhang X 2007 *Opt. Express* **15** 15886

[12] Liu Z, Lee H, Xiong Y, Sun C, Zhang X 2007 *Science* **315** 1686

[13] Klar T A, Hell S W 1999 *Opt. Lett.* **24** 954

[14] Rust M J, Bates M, Zhuang X 2006 *Nature Methods* **3** 793

[15] Betzig E, Patterson G H, Sougrat R, Lindwasser O W, Olenych S, Bonifacino J S, Davidson M W, Hess H F 2006 *Science* **313** 1642

[16] Gustafsson M G L 2000 *J. Microsc.* **198** 82

[17] Gustafsson M G L 2005 *PNAS* **102** 13081

[18] Kner P, Chhun B B, Griffis E R, Winoto L, Gustafsson M G 2009 *Nature Methods* **6** 339

[19] Shao L, Kner P, Rego E H, Gustafsson M G 2011 *Nature Methods* **8** 1044

[20] Schermelleh L, Carlton P M, Haase S, Shao L, Winoto L, Kner P, Burke B, Cardoso M C, Agand D A, Gustafsson M G, Leonhardt H, Sedat J W 2008 *Science* **320** 1332

[21] Chung E, Kim D, Cui Y, Kim Y H, So P T 2007 *Biophys. J.* **93** 1747

[22] Fiolka R, Beck M, Stemmer A 2008 *Opt. Lett.* **33** 1629

[23] Gliko O, Brownell W E, Saggau P 2009 *Opt. Lett.* **34** 836

[24] Planchon T A, Gao L, Milkie D E, Davidson M W, Galbraith J A, Galbraith C G, Betzig E 2011 *Nature Methods* **8** 417

[25] Li D, Shao L, Chen B C, Zhang X, Zhang M, Moses B, Milkie D E, Beach J R, Hammer J A, Pasham M, Kirchhausen T, Baird M A, Davidson M W, Xu P, Betzig E *Science* **349** aab3500

[26] Wei F, Liu Z 2010 *Nano Lett.* **10** 2531

[27] Wei F, Lu D, Shen H, Wan W, Ponsetto J L, Huang E, Liu Z 2014 *Nano Lett.* **14** 4634

[28] Fernández-Domínguez A I, Liu Z, Pendry J B 2015 *ACS Photon.* **2** 341

[29] Ponsetto J L, Wei F, Liu Z 2014 *Nanoscale* **6** 5807
[30] Tan P S, Yuan X C, Yuan G H, Wang Q 2010 *Appl. Phys. Lett.* **97** 241109
[31] Wei S, Lei T, Du L, Zhang C, Chen H, Yang Y, Zhu S W, Yuan X C 2015 *Opt. Express* **23** 30143
[32] Zhang C, Min C, Du L, Yuan X C 2016 *Appl. Phys. Lett.* **108** 201601
[33] Ertsgaard C T, McKoskey R M, Rich I S, Lindquist N C 2014 *ACS Nano* **8** 10941
[34] Barnes W L, Dereux A, Ebbesen T W 2003 *Nature* **424** 824
[35] Wood R W 1902 *Proc. Phys. Soc. London* **18** 269
[36] Fano U 1941 *JOSA* **31** 213
[37] Ritchie R H 1957 *Phys. Rev.* **106** 874
[38] Ferrell R A 1958 *Phys. Rev.* **111** 1214
[39] Powell C J, Swan J B 1960 *Phys. Rev.* **118** 640
[40] Ebbesen T W, Lezec H J, Ghaemi H F, Thio T, Wolff P A 1998 *Nature* **91** 667
[41] Bozhevolnyi S I, Volkov V S, Devaux E, Laluet J Y, Ebbesen T W 2006 *Nature* **440** 508
[42] Liu Z W, Wei Q H, Zhang X 2005 *Nano Lett.* **5** 957
[43] Yao J, Liu Z, Liu Y, Wang Y, Sun C, Bartal G, Stacy A M, Zhang X 2008 *Science* **321** 930
[44] Raether H 1988 *Surface Plasmons* (Berlin: Springer)
[45] Otto A 1968 *Zeitschriftfür Physik* **216** 398
[46] Kretschmann E, Raether H 1968 *Znaturforsch* **23** 2135
[47] Sarid D 1981 *Phys. Rev. Lett.* **47** 1927
[48] Hecht B, Bielefeldt H, Novotny L, Inouye Y, Pohl D W 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 1889
[49] Hornauer D, Kapitza H, Raether H 1974 *J. Physics D: Appl. Phys.* **7** L100
[50] Nash D J, Cotter N P K, Wood E L, Bradberry G W, Sambles J R 1995 *J. Modern Opt.* **42** 243
[51] Kano H, Mizuguchi S, Kawata S 1998 *JOSA B* **15** 1381
[52] http://wwwbiomartcn/infosupply/6945559.html [2017-03-01]
[53] https://wwwzeisscom/microscopy/int/products/imaging-systems/apotome-2-for-biology.html [2017-03-01]
[54] Dan D, Lei M, Yao B, Wang W, Winterhalder M, Zumbusch A, Qi Y, Xia L, Yan S, Yang Y, Gao P, Zhao W 2013 *Sci. Reports* **3** 1116
[55] Chakrova N, Rieger B 2016 *JOSA A* **33** B12
[56] Gjonaj B 2012 *Digital Plasmonics: from Concept to Microscopy* (Amsterdam: University of Amsterdam)
[57] Wang Q, Bu J, Tan P S, Yuan G H, Teng J H, Wang H, Yuan X C 2012 *Plasmonics* **7** 427
[58] Yuan G, Wang Q, Yuan X 2012 *Opt. Lett.* **37** 2715
[59] Cao S, Wang T, Xu W, Liu H, Zhang H, Hu B, Yu W 2016 *Sci. Reports* **6** 23460
[60] Cao S, Wang T, Sun Q, Hu B, Yu W 2017 *Opt. Express* **25** 3863
[61] Zhang J, See C W, Somekh M G, Pitter M C, Liu S G 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 5451
[62] Chen H, Du L, Wu X, Zhu S, Yang Y, Fang H, Yuan X 2016 *Appl. Phys. Lett.* **109** 261904

SPECIAL ISSUE—Diffraction limit of electromagnetic waves

Research progress of plasmonic structure illumination microscopy*

Zhang Chong-Lei Xin Zi-Qiang Min Chang-Jun† Yuan Xiao-Cong‡

(*Nanophotonics Research Center, Shenzhen University, Shenzhen 518060, China*)

(Received 29 March 2017; revised manuscript received 27 April 2017)

Abstract

Structure illumination microscopy (SIM) is a novel imaging technique with advantages of high spatial resolution, wide imaging field and fast imaging speed. By illuminating the sample with patterned light and analyzing the information about Moiré fringes outside the normal range of observation, SIM can achieve about 2-fold higher in resolution than the diffraction limit, thus it has played an important role in the field of biomedical imaging. In recent years, to further improve the resolution of SIM, people have proposed a new technique called plasmonic SIM (PSIM), in which the dynamically tunable sub-wavelength surface plasmon fringes are used as the structured illuminating light and thus the resolution reaches to 3–4 times higher than the diffraction limit. The PSIM technique can also suppress the background noise and improve the signal-to-noise ratio, showing great potential applications in near-surface biomedical imaging. In this review paper, we introduce the principle and research progress of PSIM. In Section 1, we first review the development of optical microscope, including several important near-field and far-field microscopy techniques, and then introduce the history and recent development of SIM and PSIM techniques. In Section 2, we present the basic theory of PSIM, including the dispersion relation and excitation methods of surface plasmon, the principle and imaging process of SIM, and the principle of increasing resolution by PSIM. In Section 3, we review the recent research progress of two types of PSIMs in detail. The first type is the nanostructure-assisted PSIM, in which the periodic metallic nanostructures such as grating or antenna array are used to excite the surface plasmon fringes, and then the shift of fringes is modulated by changing the angle of incident light. The resolution of such a type of PSIM is mainly dependent on the period of nanostructure, thus can be improved to a few tens of nanometers with deep-subwavelength structure period. The other type is the all-optically controlled PSIM, in which the structured light with designed distribution of phase or polarization (e.g. optical vortex) is used as the incident light to excite the surface plasmon fringes on a flat metal film, and then the fringes are dynamically controlled by modulating the phase or polarization of incident light. Without the help of nanostructure, such a type of PSIM usually has a resolution of about 100 nm, but benefits from the structureless excitation of plasmonic fringes in an all-optical configuration, thereby showing more dynamic regulation and reducing the need to fabricate nanometer-sized complex structures. In the final Section, we summarize the features of PSIM and discuss the outlook for this technique. Further studies are needed to improve the performance of PSIM and to expand the scope of practical applications in biomedical imaging.

Keywords: structure illumination microscopy, super-resolution imaging, surface plasmon

PACS: 87.64.M–, 65.40.gp, 73.30.+y **DOI:** 10.7498/aps.66.148701

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61427819, 61422506, 61605118), the National Basic Research Program of China (Grant No. 2015CB352004), and the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2016YFC0102401).

† Corresponding author. E-mail: cjmin@szu.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: xcyuan@szu.edu.cn

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

基于点扫描的超分辨显微成像进展

赵光远　郑程　方月　匡翠方　刘旭

Progress of point-wise scanning superresolution methods

Zhao Guang-Yuan　Zheng Cheng　Fang Yue　Kuang Cui-Fang　Liu Xu

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 148702 (2017)　DOI: 10.7498/aps.66.148702
在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.148702
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I14

您可能感兴趣的其他文章
Articles you may be interested in

基于累积量标准差的超分辨光学涨落成像解卷积优化
Deconvolution optimization in super-resolution optical fluctuation imaging based on cumulant standard deviation
物理学报.2016, 65(19): 198701　http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.198701

基于法布里-珀罗调谐滤波器的傅里叶域锁模扫频激光光源
Fiber Fabry-Perot tunable filter based Fourier domain mode locking swept laser source
物理学报.2013, 62(6): 068703　http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.068703

交联聚乙烯电缆绝缘材料中电树枝的导电特性研究
Study on conducting characteristics of electrical trees in cross-linked polyethylene cable insulation
物理学报.2012, 61(8): 087701　http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.087701

专题: 电磁波衍射极限

基于点扫描的超分辨显微成像进展*

赵光远 郑程 方月 匡翠方† 刘旭

(浙江大学光电科学与工程学院, 现代光学仪器国家重点实验室, 杭州 310027)

(2017 年 3 月 30 日收到; 2017 年 5 月 2 日收到修改稿)

光学显微镜一直推动着现代科学技术的发展. 随着科学的进步, 对显微成像分辨率的要求在生物、材料等领域日渐凸显, 而常规宽场显微成像一直面临着成像分辨率衍射受限的问题. 1968 年出现的共聚焦显微镜作为点扫描显微镜的开端第一次实现了远场下成像分辨率的突破, 它具有层切性好、信噪比高等优点. 在 1994 年出现的受激辐射荧光损耗显微镜将显微成像能力突破到 2.8 nm 左右, 并成为目前效果最佳、应用较广泛的超分辨显微技术. 荧光差分显微和饱和荧光吸收竞争等点扫描技术具有无荧光染剂限制、饱和光强低、光路简单等优势, 并且能取得 1/6 波长的分辨能力, 进而在超分辨显微领域仍有着发挥空间. Airyscan 技术作为以上方法的补充可以弥补点扫描系统中由于探测小孔半径减小而带来的信号丢失, 从而提高成像信噪比和分辨率, 但阵列探测器成本较高. 上述点扫描显微镜通过改变照明或者探测的方式实现了分辨率突破. 本文详细讨论了点扫描超分辨方法的原理、成像效果及面临的瓶颈, 并分析了点扫描超分辨显微镜在应用和技术上的趋势.

关键词: 超分辨, 共聚焦, 受激辐射荧光损耗显微术, 点扫描

PACS: 87.64.mk, 87.64.M–, 87.64.kv, 87.63.lm **DOI:** 10.7498/aps.66.148702

1 引 言

远场光学显微镜一直被认为是推动科学发展的最重要技术之一. 自从 16 世纪发明光学显微镜以来, 因其使裸眼不可见物体或结构得到展现, 在诸如生物、医药以及材料科学中被广泛应用. 这种技术能够描绘微结构的边界、测量表面形态以及定位活体生物中特殊分子的分布. 如果没有光学显微镜, 科学家对于“微观世界”的探索将会受到很大限制.

作为成像质量的重要评判标准, 分辨率是显微镜至关重要的参量. 直到显微镜被发明 300 年后, 光波传输的衍射本质以及它对分辨率的影响才得到深入研究. Airy 在 1835 年将光通过圆形孔径汇聚而成的图案描述为 Airy 光斑. 之后 Abbe 成为公式化描述衍射极限的先驱. 虽然在其 1873 年里程碑式的那篇文章中甚至没有包含任何一个简明的公式, 但 Abbe 至关重要地点明: 常规显微镜的分辨率是由其工作波长和成像物镜的数值孔径 (numerical aperture, NA) 决定 [1]. 受到 Abbe 的启发, 在 1877 年, Helmholtz 和随后的 Stephenson [2] 分别独自从理论上得到衍射极限 (横向) 的公式:

$$d = \frac{\lambda}{2n\sin\theta} = \frac{\lambda}{2NA}, \tag{1}$$

式中 λ 是工作波长, n 是光传播介质的折射率, θ 是物镜可收集光线角的一半. 在轴向方面分辨率将更加弱, d_{a}(轴向分辨能力) 可改写成 [3]:

$$d_{\mathrm{a}} = \frac{2\lambda}{NA^2}. \tag{2}$$

在 Abbe 定理提出后, 又产生了大量的关于

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2015CB352003)、国家重点研发计划 (批准号: 2016YFF0101400)、国家自然科学基金 (批准号: 61335003, 61377013, 61378051, 61427818)、浙江省自然科学基金 (批准号: LR16F050001) 和中央高校基本科研业务费资助的课题.

† 通信作者. E-mail: cfkuang@zju.edu.cn

© 2017 中国物理学会 Chinese Physical Society

如何通过系统的点扩散函数(point spread function, PSF)来定量描述系统分辨能力的工作, 其中1874年Rayleigh (瑞利)判据[4]以及1927年Huston提出的半高全宽(full-width half-magnitude, FWHM)[5]方法逐渐成为研究者的首选准则.

Abbe的工作的深远影响在于他不仅发现并从数学角度定义了衍射极限, 同时也给出了提高分辨率的准则. 从(1)式中可以看出, 通过减少工作波长或者提高系统的数值孔径, 显微镜的分辨率可以提高到一定的程度. 基于这个原理, Kohler在1904年搭建了第一台紫外光显微镜, 在这之后X射线被引入到显微成像系统中[6]. 但超低波长的光具有很大的损伤性, 很难被应用到生物成像中. 与此同时, 虽然浸油物镜能使系统的NA得到很大提升, 但这样的提高依旧是有限的, 而且高折射率对于成像质量会带来色差等负面影响. 因此, 这些困难激励着科学家们去探索着真正意义上的超分辨显微技术, 去绕过或者突破Abbe衍射极限.

Abbe定理在显微成像领域有着毋庸置疑的贡献, 但另一方面, Abbe定理的广泛影响力也限制着后续科学家的创造能力. 在这之后的一个世纪内, Abbe定理所提到的衍射极限被认为等同于分辨率极限. 事实上, 在常规显微中Abbe定理的作用更大程度上体现在光束收集方面. 对于一个成像系统, 理想的点扩散函数应该为一个冲击函数, 那么对应得到的成像结果就能保持被成像样品的原始分辨率, 如图1 (a)所示. 但实际上的成像系统都是衍射受限系统, 其点扩散函数一般被扩张至一定宽度, 因此对应的成像结果的分辨率下降, 图像变得模糊, 如图1 (b)所示. 若系统点扩散函数突破衍射极限, 对应成像结果就会在原先衍射受限结果的基础上更加靠近理想成像的结果, 分辨率有所提升, 如图1 (c)所示.

在既定探测性质不可改变的条件下, 我们通过改变进入探测系统前光传播和载波的方式来调节分辨率, 从而缩小系统的有效PSF, 达到超分辨显微. 在1968年以共聚焦显微技术为开端[7], 这些突破性进展中有在2014年获得诺贝尔奖的Hell提出的受激辐射荧光损耗显微术(stimulated emission depletion microscopy, STED)[8], Betzig等[9]和Hess等[10]提出的光敏定位显微术(photonactivated localization microscopy, PALM)、文献[11—13]提出的随机光学重建显微术(stochastic optical reconstruction microscopy, STORM)、以及结构光照明(structured illumination microscopy, SIM)显微术[14,15], 和blind-SIM显微方法[16]. 上述方法无不利用这两种性质: 1) 不同于宽场显微镜平面波照明, Abbe定理在光照明时仍有作用; 2) 荧光颗粒和部分具有光开关(photoswitchable)性质的荧光颗粒使得光与样品之间可以存在频率移动或者其他非线性作用[17].

点扫描超分辨系统以共聚焦系统为开端, 发展了许多改进型的点扫描显微技术, 其中包含STED、多点照明共聚焦以及蔡司公司的Airyscan等. 因为点扫描系统的三维成像能力、高聚焦光强、高信噪比等能力, 在生物、材料方面有着很重要的应用. 本文重点介绍点扫描超分辨系统的方法和最新进展.

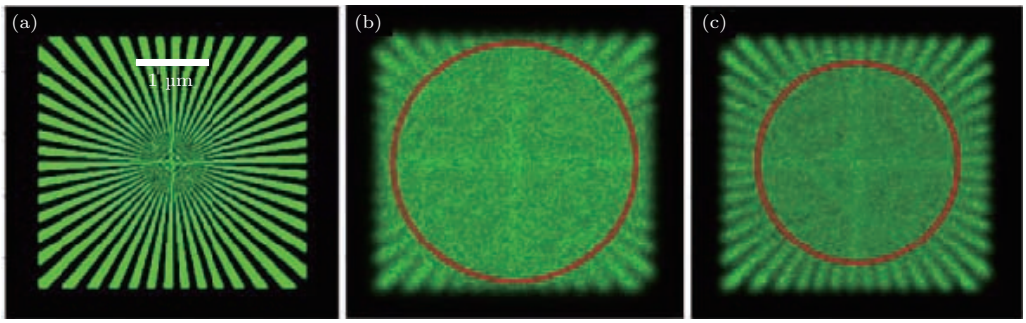


图1 成像结果 (a) 对应于理想冲击点扩散函数得到的成像结果; (b) 对应于衍射受限系统的成像结果; (c) 对应于系统点扩散函数突破衍射极限的成像结果

Fig. 1. Optical imaging results: (a) The imaging results corresponding to the ideal impulse PSF; (b) the imaging results analogous to the diffraction limited system PSF; (c) the imaging results of the system that point spread function surpass the diffraction limit.

2 共聚焦原理

共聚焦显微镜 (confocal) 如图 2 所示, 不同于宽场显微的平面光波照明样品, Confocal 将聚焦高斯光斑照明在样品上, 并且在探测光路中引入物理小孔进行滤波. 共聚焦的定义也在于探测和照明的面为共轭关系且都为聚焦模式. 共聚焦系统的成像过程可以表示为 [18,19]

$$h_{\rm sys} = (O \times h_{\rm ill}) \otimes (h_{\rm det} \otimes P), \tag{3}$$

这里 $h_{\rm ill}$, $h_{\rm det}$ 分别是照明和探测 PSF; P 是小孔的孔径函数; $h_{\rm sys}$ 则是最终的系统 PSF. 通过扫描振镜改变照明角度或者平台平移可以实现照明光对样品的扫描. 因为点照明的特殊性, 小孔在探测的同时具有强大的滤波和层切作用 [20], 在被扫描范围以外的发出信号, 即离焦信号能被有效抑制, 因此共聚焦显微镜可以得到高于宽场显微镜的信噪比的成像结果. 共聚焦显微系统与 Heimstad 发明的荧光显微系统结合起来 [21], 具有强大的三维成像 [22] 和描绘荧光染色结构功能, 目前已成为高分辨率显微镜的主流.

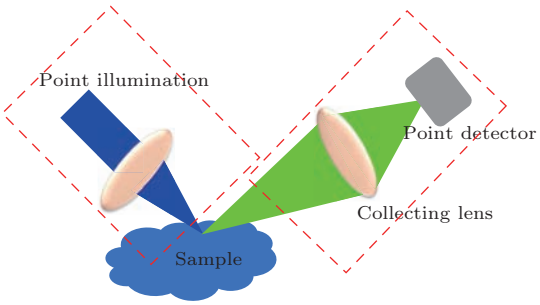


图 2 共聚焦荧光显微系统原理示意图 左边为照明光路将聚焦光斑汇聚在样品上, 右边为收集光路利用点探测器收集激发荧光

Fig. 2. The sketch of confocal imaging process. As can be seen in the figure, the light illuminated onto the sample from the left side with a focused beam spot. After illumination, the emitted fluorescence from the sample is collected as seen on the right side.

如果共聚焦系统小孔的孔径无限小, 它的孔径函数可以表示为冲击函数, 相应地 (3) 式可以简化为

$$h_{\rm im} = (O \times h_{\rm ill}) \otimes h_{\rm det}, \tag{4}$$

此时共聚焦系统的 PSF 可在轴向和横向上都提高至宽场的 1.4 倍 [23]. 但实际应用中, 小孔的孔径越小代表能被探测到的信号越弱, 信噪比会变差, 影响分辨率的提高. 实验证明在 0.6—0.8 AU 时可以达到信噪比和分辨率平衡的最佳效果 [24].

由共聚焦系统的公式, 我们可以发现对于点扫描系统的进一步突破也在于继续改变照明或者探测成像系统, 从此衍生出了 STED [8]、荧光辐射差分显微术 (fluorescence emission difference microscopy, FED) [25] 和 Airyscan 等超分辨显微系统.

3 STED 超分辨系统

STED 超分辨系统的理论在 1994 年由 Stefan Hell 提出. 简而言之, 相比于共聚焦显微技术, STED 产生了一个更小的聚焦光斑, 也就是改变激发 PSF 来达到超分辨.

STED 的原理如图 3 (a), 荧光光子被激发到 S_1 能级, 扫描显微镜的激发 PSF 被叠加上一个 $\lambda_{\rm STED} > \lambda_{\rm exc}$ 的 STED 空心光斑, 产生受激辐射使得在激发态 S_1 上的光子被 STED 光损耗到基态 S_0. S_1 能级上的激发光子概率将受到 STED 光光强调制 [26]:

$$S_{1\rm eff} = k_{\rm exc}/(3.245 \times k_{\rm exc} + k_{\rm STED} + k_0), \tag{5}$$

式中 $k_{\rm exc} = \sigma_{01} I_{\rm exc} \lambda/(hc_1)$ 对应激发光激发速率; $k_{\rm STED} = \sigma_{\rm STED} I_{\rm STED} \lambda/(hc_1)$, k_0 对应 STED 光损耗速率以及荧光速率; σ_{01}, $\sigma_{\rm STED}$ 分别是激发吸收截面、STED 光吸收截面; h 对应普朗克常量; c_1 对应光在介质中的传播速率; $I_{\rm exc}$ 和 $I_{\rm STED}$ 分别为激发光和 STED 光光强.

如图 3 (b), 因为被叠加上的是空心 STED 光斑, 在强 STED 光损耗下, 激发光可有效激发的区域被限制在空心 STED 光的中心区域. 当 STED 光斑增强, 荧光可激发出光的区域便越来越小, 利用缩小的光斑扫描样品便能得到亚衍射极限级分辨率. 图 3 (c) 为 STED 系统的装置图. STED 系统分辨率随着光强的变化可表示为 [27]

$$d \approx \lambda_{\rm exc}/[2NA(1 + P/P_{\rm s})^{1/2}], \tag{6}$$

其中 P 为照明光强, $P_{\rm s}$ 为 STED 的等效饱和光强 [28]. 目前, 最常见的获取空心光斑的方法是基于高倍数值孔径下的相位调制 [29]. 因为 STED 对于光束的高要求, 发展出了基于径向矢量光调制的 STED 光斑 [29,30]. 矢量光调制的 STED 光斑空

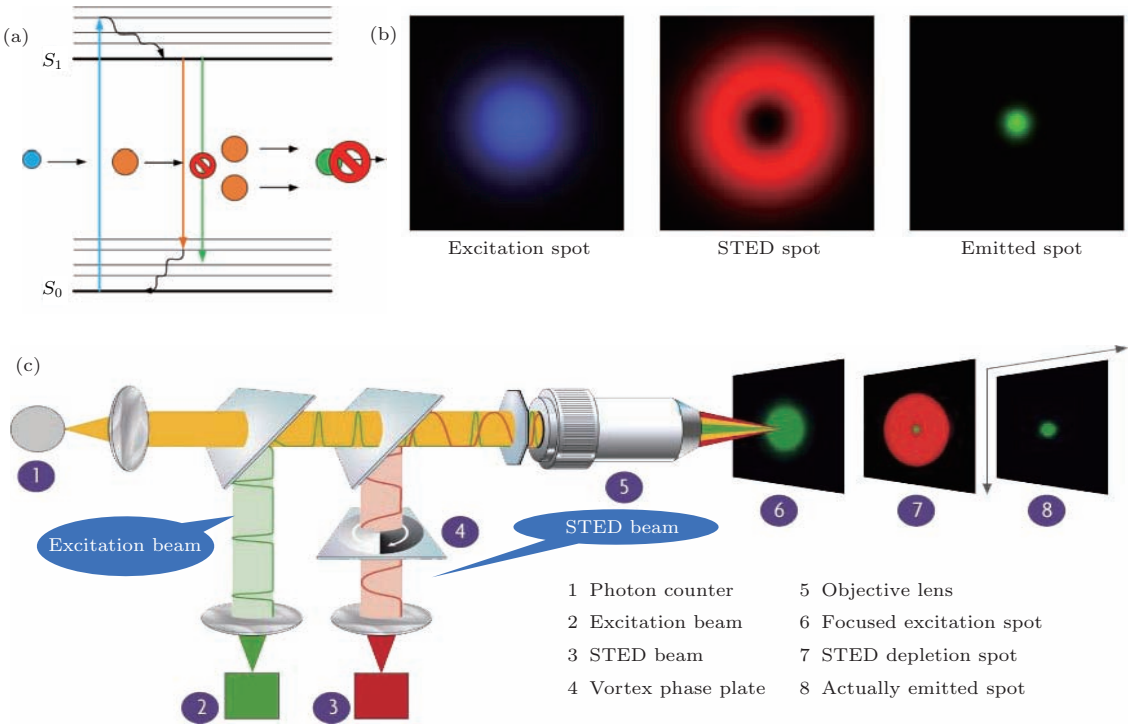


图 3 STED 超分辨显微镜过程 (a) STED 双能级系统; (b) STED 系统的激发聚焦光斑、STED 聚焦光斑、最终有效激发光; (c) STED 系统简图: 1, 光子计数器; 2, 激发光; 3, STED 光; 4, 涡旋位相板; 5, 聚焦物镜; 6, 激发光斑; 7, STED 光斑叠加在激发光斑上; 8, 自发辐射的荧光光斑

Fig. 3. The imaging process of STED super-resolution system: (a) The double energy level system of STED; (b) the excitation spot, STED depletion spot, the spontaneous emitted spot; (c) the sketch of STED system.

心区域更小, 但是荧光分子本身具有的荧光极性会带来测量误差. 对于 STED 光斑操纵的研究也同时促进了光刻[31]、光镊[32]以及焦点调制[33]的研究.

图 4 为 STED 超分辨显微镜效果图, 其中提到的 time-gated STED (g-STED) 技术利用了荧光光子激发的不同寿命原理[34]. 外圈激发的荧光光子寿命比内圈的短, 换言之, 外圈的荧光发光时间比内圈的短, 在收集荧光时利用时间相关单光子计数 (time correlated single photon counting, TCSPC) 寿命探测系统, 将外圈短寿命的荧光光子舍弃, 从而缩小探测 PSF 获得更高分辨率的超分辨成像结果. 从图 4 (d) 的对比可以发现, 同样光强下 g-STED 可以达到 38 nm 分辨率, 相较于 STED 的 80 nm 有大幅提升. 其他的类 STED 点扫描超分辨方法有基态损耗成像 (ground-state depletion imaging, GSD)[35], 可逆饱和光线性荧光跃迁 (reversible saturable optical linear fluorescence transitions, RESOLFT) 等[36]. STED 显微方法不仅可用于生物样品观测, 也可以观测量子通信中常见的 NV 色心等. NV 色心的分子稳定性可以使它承受 3.7 GW/cm^2 量级的照明光强, 从而达到 2.4 nm 的图像分辨率[37].

STED 显微方法存在的不足是深层成像时两束光路难以保持对准并且空心光斑畸变较严重, 导致成像深度较低[38]. 一种可行的方法是引入贝塞尔光束生成 STED 光斑从而增加其穿透深度[39], 实验中 GB-STED 在 155 μm 深度下可达 112 nm 的分辨率[40]. 另外, STED 系统搭建较之于共聚焦系统难度较大, 利用自适应光学等改善搭建效果和像差自动校正是 STED 亟需解决的问题[41].

近年来, 在 STED 成像系统提高方面, Hell 研究组做了大量前瞻性的工作. 基于超连续光源的 STED, 通过声光可调滤光器 (AOTF) 选模可以实现四色 STED[43], 近期发表的文章中已经实现用同波长 STED 光实现四色成像[44]. 利用 easy-STED 模块可以实现双色 STED 光共路照明, 目前已经开发出相应产品[45]. 基于并行扫描的 STED 可以大幅度提高成像速度[46,47], 而消色差以及图像后处理方法在并行扫描中的应用可以进一步提高其成像质量[48,49].

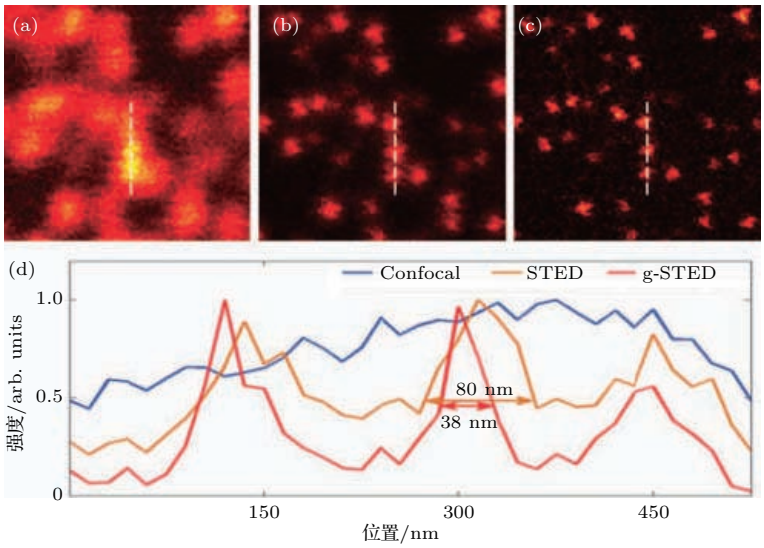


图 4 几种方法的成像图 (a) 共聚焦显微镜; (b) STED 显微镜; (c) g-STED; (d) 图 (a)—(c) 中虚线部分每种方法对应的强度图; 可以验证 g-STED 相比 STED 可达到更高分辨率 [42]

Fig. 4. The imaging results of several systems: (a) Imaging results of confocal; (b) imaging results of STED; (c) imaging results of g-STED [42]; (d) intensity of the dashed line part in fig.(a)–fig.(c), which verify the higher resolution of g-STED than STED.

因为depletion光激发或者受激辐射光无法被完全滤除的缘由, 提高STED成像技术的信噪比是一个研究得较多的方向. 其中相减方法也被广泛应用, 在量子点STED研究中, 文献[50]提出了将得到的STED成像结果再减去单独STED光照射产生的图像从而提高信噪比. 在近期发表的四色STED中将逐行扫描的STED成像结果减去STED照射结果来提高信噪比[44]. 不同的是, Gao等[51]提出了double-depletion STED方法中将同一脉冲周期内的STED 效果只和STED光背景噪声相减. 就STED相减去噪角度来看, 这三种方法在减小被相减扫描图像漂白、漂移方面为递进关系, double-depletion有着最佳的效果但是在控制脉冲时延上最为复杂[51].

减小荧光照明光强和荧光漂白影响是STED近两年的重要进展. 通过适当减小STED波长来增大STED光吸收截面, 是有效减少STED光强度需求的方向之一, 但STED光和激发光波长接近产生的自发辐射会带来图像信噪比下降等风险[52]. Liu等[53]利用“镧系掺杂上转换纳米颗粒”的荧光上转换效应进行STED成像, 从而减小STED光所需要的光强, 为材料特性的研究提供了思路. Yang等[54]利用反射光增强STED光光强来达到STED光强度需求减少. Hell 组先后提出了Protected-STED[55]和MINFIELD-STED[56]方法, 根据STED激发的空心特点以及样品的稀疏特性来保护荧光样品的过度漂白. 通过对纳米抗体标记的核孔复合物进行成像, MINFIELD-STED证明了可以实现一般STED因为信号不足无法达到的小于25 nm分辨率的成像效果.

STED技术是目前点扫描超分辨显微领域较为成熟的技术, 并且有着几十纳米量级的分辨率, 在商业领域以Abberior Instruments的Rescue-STED, 3D-STED、双色-STED产品为代表, 已经得到广泛应用.

4 饱和竞争超分辨显微方法

作为一种刚出现的点扫描超分辨显微方法, 饱和竞争超分辨显微方法(saturated competition microscopy, SAC)是一种同色光竞争方法[57]. 不同于STED技术中受激辐射和自发辐射在S_1能级荧光辐射中的后竞争, SAC在荧光吸收的S_0能级中额外引入一束饱和空心光斑作为竞争光去竞争实心光斑的吸收过程. 这类似于GSD 的基态损耗方法[35], 但SAC利用的是同色激光在基态的饱和吸收竞争. SAC 系统中将共聚焦显微镜分成两路, 一路进行实心频率调制($k_{\rm exc}$), 一路进行相位调制成空心光斑($k'_{\rm exc}$). 当两种光斑共同激发到样品面上, 便形成了饱和吸收的过程(图5 (a)). 低光强的

实心光斑荧光激发区域被高光强的空心光斑减小, 利用锁相放大器解调被频率调制的实心激发光可获得超分辨图像. 类似于STED, 实心光斑的激发概率可以表示为

$$S_{1\mathrm{eff}} = k_{\mathrm{exc}}/[3.245(k'_{\mathrm{exc}} + k_{\mathrm{exc}}) + k_0]. \quad (7)$$

相比于STED, SAC有饱和光强需求低、对样品损伤小的优势 (图5 (b)). 从 (5) 和 (7) 式的比较中可以发现, 这是因为同波长的SAC相比STED有着更大的吸收截面以及竞争分别发生在饱和吸收和辐射两种不同能级. 文献 [57] 将SAC与SIM以及Confocal (一种宽场情况下利用结构光照明的超分辨方法) 对比, 验证了其超分辨显微效果 (图5 (d)—(g)). SAC 取得了远高于Confocal的成像效果, 即使和SIM 成像结果比, SAC的分辨能力也更加优秀 (可见白色框标重点区域).

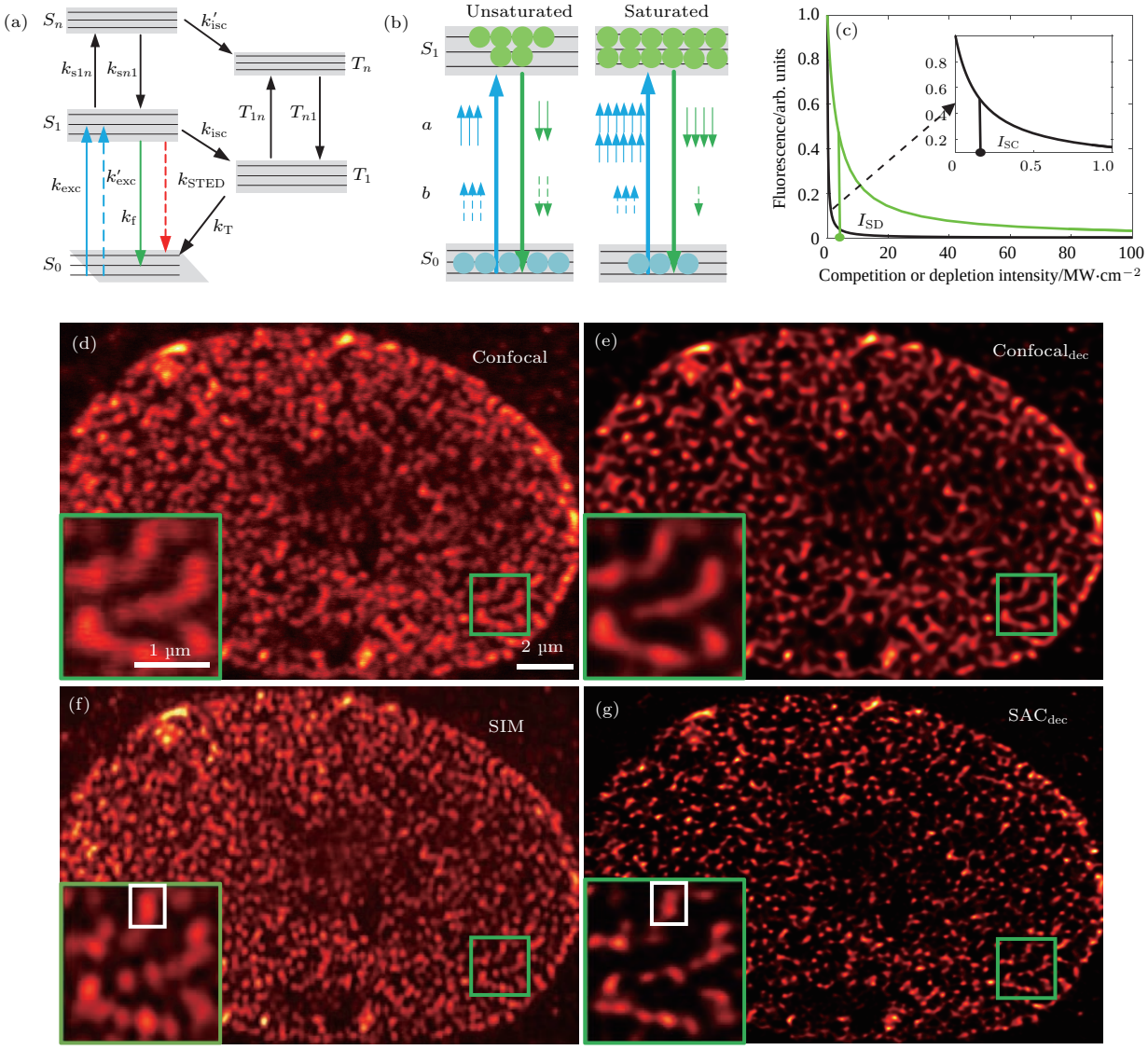


图5 SAC机理和成像结果 (a) SAC 超分辨显微方法中用来照明激发强度的五能级系统; (b) SAC 在低光强和饱和光强激发下的荧光激发比率, '*a*' 表示高光强的竞争光束, '*b*' 表示低光强的主激发光束; (c) SAC 的实心光斑荧光激发损失比率随着空心竞争光束光强增加时的变化曲线, 可以看到空心光强增加时 SAC 的荧光激发损失比例相对 STED 更加大; (d)—(g) 不同成像方法对于细胞核孔进行成像的结果, (e), (g) 分别代表对于 Confocal 和 SAC 进行 5 次 Richardson Lucy 反卷积后的结果 [57]

Fig. 5. The imaging principle and results of SAC: (a) Five-level molecular electronic state model used to calculate the relationship between the excitation emission intensities; (b) illustration of the saturation of S_1 state and the process of competition during the excitation, '*a*' denotes the high-intensity competition beam (solid lines) while '*b*' denotes the low-intensity primary excitation beam (dashed lines); (c) the remaining fluorescence in S_1 state analogous to the competition or depletion intensity from SAC or STED; (d)–(g) comparison between SIM and SAC verifies SAC's enhanced resolution, (e) and (g) represent the results that deconvolved from the raw confocal and SAC results after 5 Richardson Lucy iterations, respectively [57].

经验证SAC成像方法可以达到1/6波长的成像效果, 同时具有比STED 装置简单、低光强、无荧光染剂限制、低成本等优势. 但该方法也有着一些待解决的不足: 两路竞争的激发光来源于同一激光器, 空心光激发和实心光激发的荧光需要先到达探测器再通过锁相放大器将信号分离, 这会面临探测器饱和以及锁相对噪声抑制比不足带来的信噪比等问题, 导致分辨率难以进一步提高.

5 基于分时差分的自发辐射荧光显微方法(FED)

差分成像可提供更高的分辨率和信噪比, 因此被广泛应用[58−60]. 在较早的研究中, Heintzmann等[61]做过基于不同小孔大小下的成像, 得到的图像相减从而实现超分辨成像, 但图像的信噪比很低,

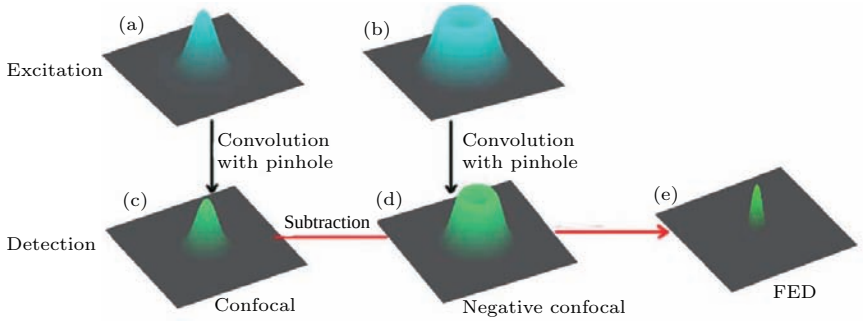


图6 FED示意图 (a), (b) 分别代表实心斑和空心斑激发PSF; (c), (d) 代表两种激发PSF分别经过探测之后的PSF; (e) 为最后得到的FED 的PSF[25]

Fig. 6. Working process of FED: (a), (b) Represent the solid and doughnut excitation spot respectively; (c), (d) are the detected PSF after the detecting process; (e) is the final system PSF of FED after undergoing the subtraction process[25].

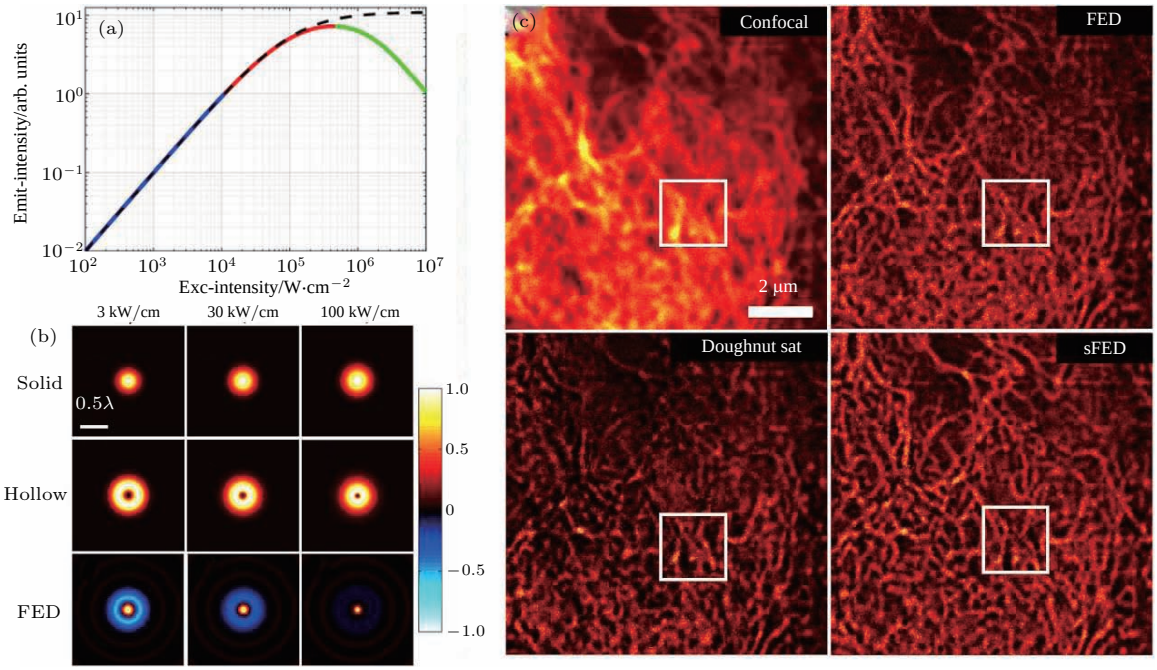


图7 饱和FED超分辨图 (a) 仿真所得的荧光分子激发强度随着照明光强的变化; (b) 不同照明光强下实心光斑、空心光斑以及饱和FED的仿真效果图, 可见随着饱和程度的增强不仅负值畸变减小, 分辨率也有所提高; (c) Confocal, FED, 空心斑饱和的FED 以及空心实心都饱和的sFED对微管成像结果图, 可见sFED 在空心和实心激发光斑都饱和时, 分辨率和信息留存方面都表现更好[70]

Fig. 7. Imaging results of saturated FED (sFED): (a) The simulated results of saturated excitation curve of FED corresponding to the increase of illumination intensity; (b) simulated PSFs of solid illumination spot, hollow illumination spot, and sFED result corresponding to different illumination intensities; (c) imaging results of microtubules corresponding to Confocal, FED, doughnut beam sFED, both doughnut and solid saturated FED, as can be seen in the figures, when the doughnut and solid excitation spot are both saturated, sFED achieves the best imaging performance[70].

边缘还有着大量信号残余. 近几年, 文献[25, 62, 63]提出了以FED为代表的将空心光斑和实心光斑分时扫描得到图像相减提高分辨率的方法. 其核心原理可以表示为

$$\mathrm{PSF_{FED}} = \mathrm{PSF_{solid}} - \gamma \times \mathrm{PSF_{doughnut}}, \quad (8)$$

其中$\mathrm{PSF_{FED}}$, $\mathrm{PSF_{solid}}$, $\mathrm{PSF_{doughnut}}$分别对应着FED、实心光斑、空心光斑的PSF; γ为相减系数. 因为FED相减中会出现负值带来的畸变, 在相减系数取值以及光斑调制上需做大量的工作[64−66].

经过矢量光调制的FED方法可以减少畸变和提高分辨率[67−69]. 用于照明的共聚焦实心光斑和空心光斑分别用偏振转换器产生的径向偏振光和切向偏振光调制而得, 调制所得的实心光斑和空心光斑的外轮廓可以更加接近, 减少负值畸变. 同时因为切向偏振光调制出来的光斑比传统涡旋光斑的空心区域要小, 可以得到更高的分辨率. 矢量光调制FED在488 nm波长照明下可达到110 nm的分辨率[67].

与SAC和STED的机理类似, FED采用激发实心光斑和空心光斑同时饱和, 得到的饱和FED(sFED)的光斑分辨能力将会更高[70]. 利用荧光饱和效应, 我们获得外轮廓拓展的实心斑和中心缩小的空心斑成像结果. 因为非线性效应的存在, 两种匹配的饱和图像一定程度上消除了负值畸变, 并且相比普通FED提高了成像分辨率和信噪比. 如图7所示, 利用sFED在633 nm波长光照明下可得到100 nm左右的分辨率.

FED超分辨方法具有无荧光染料限制、后处理方便的优势, 在相减系数研究方面目前最先进的是强度权重相减(intensity weight subtraction, IWS)方法[71]. FED今后的发展方向可以是利用脉冲激光器来减少漂白, 也可以是三维的sFED动态生物细胞观测[72].

6 基于阵列探测器的超分辨方法

在引言中提到, 普通共聚焦系统的分辨率和信噪比受限于pinhole大小. Pinhole越大收集荧光强度会越强, 但另一方面图像的分辨能力会较弱, 小pinhole则反之. 因此pinhole大小多取在平衡点0.6 AU附近[24]. 尽管如此, 0.6 AU的pinhole大小依然意味着光子信号的大量损失. 1988年, Sheppard[73]提出了类似于SIM的方法, 有将共聚焦显微镜分辨能力提高2倍的可能. 虽然理想带宽最终能达到2倍, 但是Sheppard等[74]也发现在不考虑斯托克斯红移的情况下, 半高全宽的值最高可达到普通显微镜的1.53倍, 超过该倍率带宽的信号将迅速衰减(图8(c)). 在Sheppard所提出的方法中, 装置依旧为共聚焦显微镜的聚焦照明, 但是点探测器部分被替换成了阵列探测器((图8(a))[75]. 通过对于每个探测器所获得的图像运用相应算法进行像素重组, 可以得到的成像结果分辨率提高. 此类方法被统称为Airyscan[75], 而ISM[76]和OPRA[77]都可以作为这种方法的别名或变种. Airyscan方法在2010年由Müller和Enderlein等[76]利用EMCCD作为阵列探测器得以实现. 在2012年, York等[78]用多点激发实现了生物细胞的快速成像. de Luca等[79]在2013年证明不同探测器的像素重组不仅可在后处理中完成, 也可以通过光学形式的Rescan形式完成. Sheppard等[74]发现在不考虑斯托克斯红移的情况下, 对于一个物体的点进行成像, 其焦点的峰值强度是普通显微镜的1.84倍, 这种相比于共聚焦的优势也被称为Superconcentration现象. 需要注意的是Airyscan虽然总的信号强度增大了, 但是每个光电倍增管(photomultiplier tube, PMT)通道的探测都伴随泊松噪声的产生, 因此整体的噪声是增加的. 在蔡司的Airyscan显微镜产品的图像后处理中有相减步骤, 减去均匀化的噪声值, 从而提高图像信噪比. 图8(b)比较了Airyscan (OPRA)和共聚焦、宽场显微等的PSF, 可见Airyscan在半高全宽上的提升[77]. 图8(c)和图8(d)为归一化和未归一化不同pinhole大小的Confocal与Airyscan (ISM)的光学传递函数(optical transmission function, OTF)分布的对比, 可见利用Airyscan成像方法不仅在整体信号强度上有所提高(图8(d)), 并且在高频区域的分量比例也更高(图8(c))[80]. 不同于传统的Airyscan处理方法, Kuang等[81]引入Vikmom方法去后处理Airyscan点探测器所得到的信号图像, Vikmom将阵列探测器得到的信号用虚拟结构光照明的方法进行调制, 然后引入傅里叶域层叠术(Fourier ptychography microscopy)方法到图象恢复中. 如图8(d)所示, Vikmom在提高分辨率的基础上, 可以增强层切效应, 修正光路畸变等.

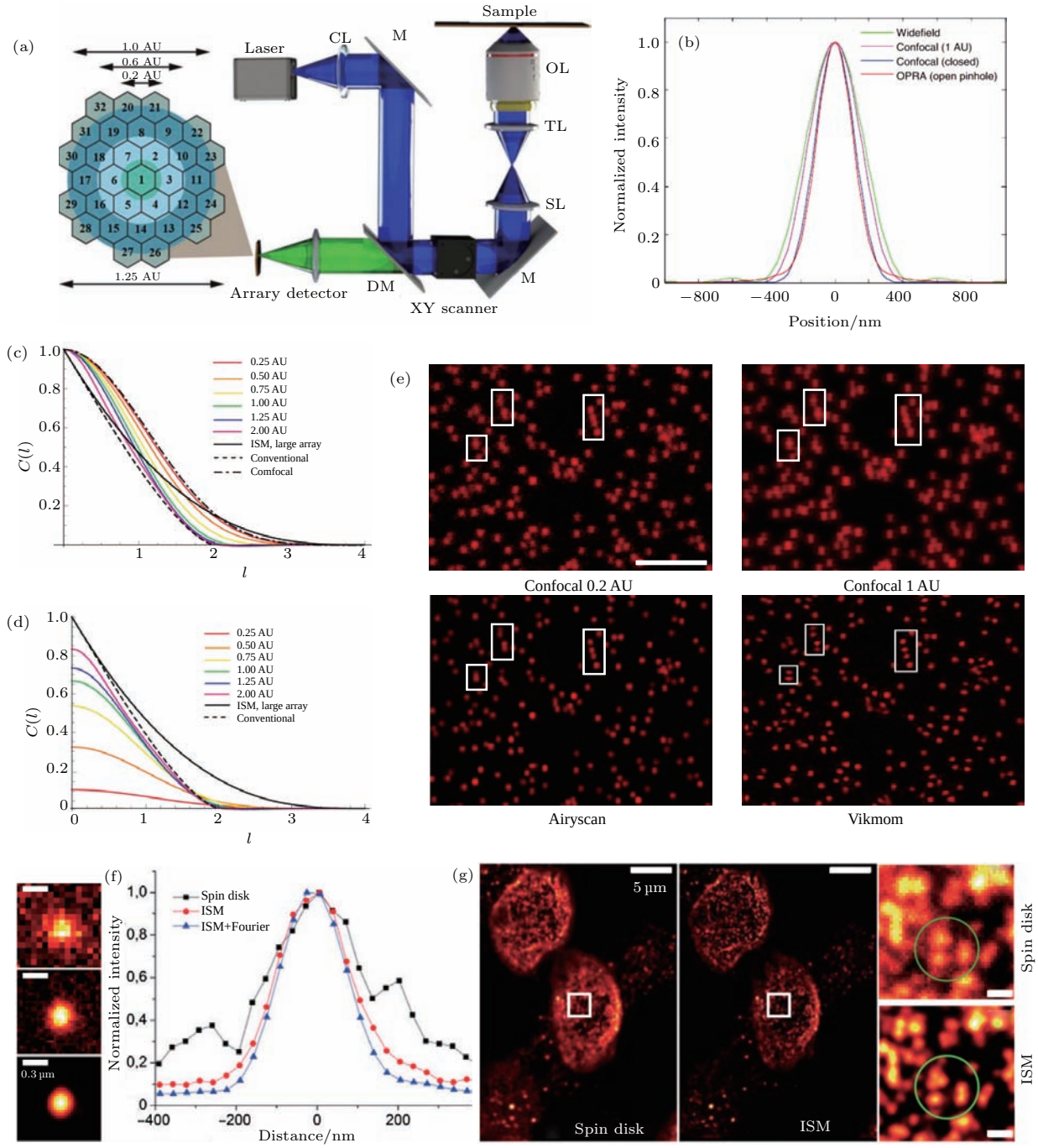


图 8 Airyscan 显微方法和效果图 (a) Airyscan 系统简图[82]; CL, 收集透镜; M, 反射镜; L, 透镜; SL, 扫描镜; TL, 场镜; OL, 物镜; DM, 二色镜; (b) 宽场、1 AU pinhole 大小的 Confocal、理想无 pinhole Confocal, Airyscan 方法对应的 PSFs; (c) 归一化不同小孔大小对应的 Confocal OTFs[80]; (d) 未归一化的不同小孔大小对应的 Confocal OTFs; (e) 0.2 AU 小孔的 Confocal, 1 AU 的 confocal, 0.2 AU 的 Airyscan, Vikmom 对应的成像结果; (f) spinning-disk Airyscan 对应的成像结果, 左边从上往下分别是 spinning-disk 共聚焦、Airyscan、经过 Fourier reweighting 后的 Airyscan 结果, 右边为 plot 对左边结果的 plot; (g) spinning-disk Confocal 和 spinning-disk Airyscan 对于生物细胞的成像结果[83]

Fig. 8. The principle and imaging results of Airyscan: (a) Imaging system of Airyscan[82], CL, collecting lens; M, reflecting mirror; L, lens; SL, scanning lens; TL, field lens; OL, objective lens; DM, dichroic mirror; (b) the normalized PSFs of widefield, Confocal with 1 AU, Confocal with non-pinhole, and Airyscan microscopies; (c) the normalized OTF for confocal microscopes with different pinhole sizes and ISM with a large array[80]; (d) the unnormalized OTF for a confocal microscope with different pinhole sizes in Airy units, the OTF for ISM with a large array is also shown; (e) imaging results of Confocal with 0.2 AU pinhole, Confocal with 1 AU pinhole, Airyscan, and Vikmom with 0.2 AU pinhole; (f) imaging results of a single particle using spinning-disk Airyscan, on the left, upper, spinning-disk confocal result, middle, the Airyscan result, lower, the Airyscan result after the Fourier reweighting, on the right is the plot of three methods; (g) the imaging results of biological samples upon spinning-disk confocal method and Airyscan method[83].

在Airyscan探索中, 在扫描过程中引入spinning-disk可以大幅提高成像速度. 图8(f)和图8(g)展示了采用Airyscan方法的spinning-disk系统取得了分辨率的提高, 但从图中也可以发现Airyscan对于分辨率提高的局限性. 相比于普通spinning-disk扫描的结果, 无论是从半高全宽还是从最小分辨距离来看, Airyscan都达不到两倍提高. 就仿真效果来看, Airyscan相比于0.6 AU的共聚焦分辨率提升1.2倍左右[74].

7 其他的点扫描超分辨显微系统

以上的点扫描超分辨显微方法多应用于荧光成像, 但是在如非荧光成像等的材料科学领域, 分辨率的提升依然重要. 不仅是荧光颗粒存在饱和吸收过程, 部分材料也存在光强吸收饱和效应. Wang等[84]在2013年将饱和吸收引入到pump-probe系统中观察石墨烯, 得到了石墨烯的超分辨成像效果. 另外, Rogers等[85]证明在不存在饱和吸收的材料观测中, 用加工super-oscillation透镜调制照明光可以使共聚焦系统取得更小的聚焦光斑, 从而达到$\lambda/6$超分辨显微效果[86].

近年来, 散射介质对于超分辨成像的增益效果更加瞩目. 在传统的认知中, 光经过深层组织或者强散射颗粒应尽量降低散射程度. 有诸多研究尝试用干涉等方法建立传输矩阵对透过散射介质的光束进行再整形. 然而2011年Putten等[87]做了相反的工作, 他们利用光经过强散射系统, 得到了半高全宽在100 nm的汇聚光斑, 称作高折射率散射分辨率增强(high-index resolution enhancement by scattering, HIRES)方法. HIRES的前提在于光波前相位的精确标定. 当然HIRES也没有打破衍射极限, 文中解释分辨率的提高在于光经过散射介质后OTF的最大锥角增大. 2013年Park等[88]将这种现象解释为散射介质的多重散射增强了对倏逝波的探测, 如图9. 散射介质和倏逝波的研究为深层组织的超分辨方法提供了可能.

另外, 近场光学基于等离子激元的超分辨显微技术为超分辨显微提供了另外一些可能, 利用表面等离子体激元以及局域等离子体激元耦合产生大k矢照明光从而超分辨成像是其中的主要方法[89,90], 这些对于远场点扫描显微成像有着一些借鉴意义. 通过片上波导增大超分辨显微的视场目前已经被应用到STORM技术上, 对于点扫描也有借鉴意义[91].

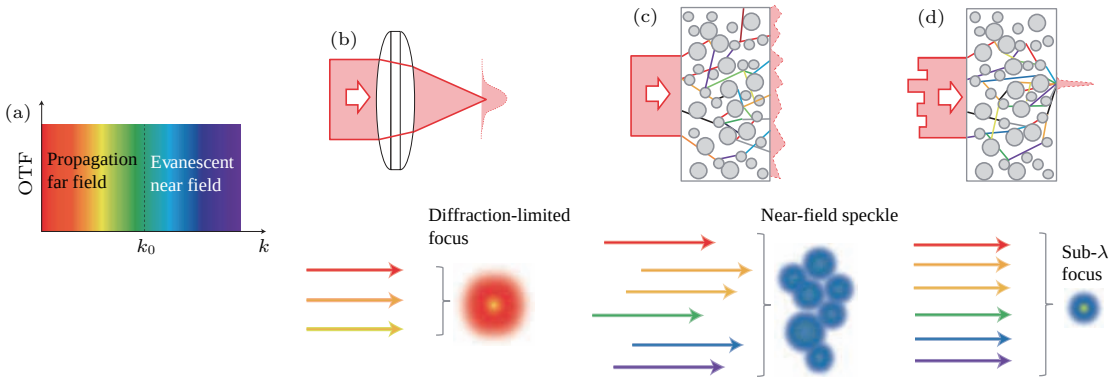


图9 基于散射控制亚波长成像原理[88] (a) 常规光学系统仅能控制或者观测到在截止频率内的远场光波, 图中超过k_0的部分是自由空间中的倏逝波矢量并且不可以被常规光学系统探测; (b) 常规透镜只能在截止频率内的频率分量; (c) 当平面波入射到一个随机介质中, 多重散射的发生将入射波调制成既包含传导波又包含倏逝波分量; (d) 当撞击打散的波前被控制汇聚到一个目标位置, 产生波矢量被相位匹配从而在目标位置重建出一个亚波长焦点

Fig. 9. Principle of subwavelength manipulation using scattering control[88]: (a) Conventional optics can only control or observe propagating far-field wave vectors that fall within the cutoff spatial frequency, For $|k|\cdot|k_0|$, where k_0 is the wave vector in free space, the wave vectors are evanescent and are consequently inaccessible in the far field using conventional optics; (b) a conventional lens can therefore only control the far field within the cutoff frequency, when the phase of each wave vector within the cutoff frequency is matched at a target point, a diffraction-limited focus with a width of $\lambda/2$ can be obtained; (c) when a plane wave is incident on random media, the wave is multiply scattered and converted into a manifold of different wave vectors that contain both propagating and evanescent terms, the scrambled random phase of each wave vector results in a speckle containing subwavelength spatial modes; (d) when the impinging wavefront is controlled at a target position, the resulting wave vectors can be phase-matched to construct a subwavelength focus at a target position.

8 总 结

本文介绍了点扫描超分辨显微镜的发展方法类别和最新进展. 点扫描超分辨显微镜以Confocal为开端, 经过几十年的发展, 出现了STED, FED, Airyscan, SAC和散射超分辨成像等方法. 相比于SIM为代表的宽场结构光超分辨显微成像, STED, SAC等成像方法具有成像分辨率的优势. 对比STORM等利用随机定位的超分辨显微成像, 点扫描显微成像具有成像速度快, 三维成像效果佳和层析能力好的优点. 随着现代科学技术的发展, 可以预见点扫描超分辨显微术将发挥重大的作用.

STED 作为其中的代表取得了最大的分辨率提升效果, 可达生物细胞20 nm, NV色心2.4 nm的分辨能力. 但目前, 点扫描或者是现有的超分辨显微方法从技术角度已经出现了一个新的瓶颈, 进一步地增强超分辨显微的效果将十分困难. 除STED之外, 其他超分辨显微的成像分辨多在2—3倍以内. 但是STED 等点扫描显微镜因为光散射面临着不同程度的穿透深度限制问题, 如何解决这些问题将是点扫描超分辨显微镜研究的重点. 另外散射介质调控的亚衍射光斑汇聚值得探究.

Airyscan 作为一种改变探测的成像改进, 可以与其他方法结合, 但是高性能阵列探测器价格昂贵是一大难题, 目前这方面已做出7探测器的相对于宽场成像提高30%分辨率的拉曼超分辨显微镜[92]. 但Airyscan的广泛应用依然面临着探测器昂贵、系统复杂的问题. SAC成像系统作为新出现的成像方法, 取得了$\lambda/6$的分辨率突破. 相比STED, SAC有着潜在的优点, 其图像分辨能力和信噪比提高的潜力有待进一步挖掘.

参考文献

[1] Abbe E 1873 *Archiv für Mikroskopische Anatomie* **9** 413
[2] Stephenson J W 1877 *Monthly Microsc. J.* **17** 82
[3] Silfies J S, Schwartz S A, Davidson M W 2013 http://www. microscopyu. com/articles/ superresolution/ diffractionbarrier.html [2017-3-1]
[4] Rayleigh L 1874 *Philos. Mag. Ser.* **47** 81
[5] Houston W V 1927 *Phys. Rev.* **29** 478
[6] Kirz J, Jacobsen C, Howells M 1995 *Q. Rev. Biophys.* **28** 33
[7] Petráň M, Hadravský M, Egger M D, Galambos R 1968 *J. Opt. Soc. Am. A* **58** 661
[8] Hell S W, Wichmann J 1994 *Opt. Lett.* **19** 780
[9] Betzig E, Patterson G H, Sougrat R, Lindwasser O W, Olenych S, Bonifacino J S, Davidson M W, Lippincott-Schwartz J, Hess H F 2006 *Science* **313** 1642
[10] Lindwasser O W, Olenych S, Bonifacino J S, Davidson M W, Lippincott-Schwartz J, Hess H F 2006 *Science* **313** 1642
[11] Rust M J, Bates M, Zhuang X 2006 *Nat. Methods* **3** 793
[12] Douglass K M, Sieben C, Archetti A, Lambert A, Manley S 2016 *Nat. Photon.* **10** 705
[13] Shechtman Y, Weiss L E A, Backer S, Lee M Y, Moerner W E 2016 *Nat. Photon.* **10** 590
[14] Gustafsson M G 2000 *J. Microsc.* **198** 82
[15] Heintzmann R, Cremer C G 1999 *Proceedings of SPIE-The International Society for Optical Engineering* **3568** 1399
[16] Mudry E, Belkebir K, Girard J, Savatier J, Moal E L, Nicoletti C, Allain M, Sentenac A 2012 *Nat. Photon.* **6** 312
[17] Heintzmann R, Gustafsson M G L 2009 *Nat. Photon.* **3** 362
[18] Webb R H 1996 *Rep. Prog. Phys.* **59** 427
[19] Sheppard C J, Wilson T 1981 *J. Microsc.* **124** 107
[20] Wilson T 2011 *J. Microsc.* **154** 143
[21] Ellinger P 2008 *Biol. Rev.* **15** 323
[22] Brakenhoff G J, Ht V D V, Spronsen E A, Nanninga N 1989 *J. Microsc.* **153** 151
[23] Brakenhoff G J, Blom P, Barends P 1979 *J. Microsc.* **117** 219
[24] Borlinghaus R T, Kappel C 2016 *Nat. Methods* **13**
[25] Kuang C, Li S, Liu W, Hao X, Gu Z, Wang Y, Ge J, Li H, Liu X 2013 *Sci. Rep.* **3** 1441
[26] Willig K I, Harke B, Medda R, Hell S W 2007 *Nat. Methods* **4** 915
[27] Westphal V, Hell S W 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 143903
[28] Rittweger E, Han K Y, Irvine S E, Eggeling C, Hell S W 2009 *Nat. Photon.* **3** 144
[29] Xie H, Liu Y, Jin D, Santangelo P J, Xi P 2013 *J. Opt. Soc. Am. A* **30** 1640
[30] Hao X, Kuang C, Wang T, X Liu 2010 *J. Opt.* **12** 115707
[31] Hao X, Kuang C, Li Y, Liu X 2012 *J. Optics* **14** 045702
[32] Zhang C, Li H, Wang S, Zhao W, Feng X, Wang K, Wang G, Bai J 2016 *J. Laser Micro Nanoen.* **11** 290
[33] Zhu B, Shen S, Zheng Y, Gong W, Si K 2016 *Opt. Express* **24** 19138
[34] Hao X, Kuang C, Gu Z, Li S 2012 *Commun. Photon. Conference* **1** 3
[35] Hell S W, Kroug M 1995 *Appl. Phys. B* **60** 495
[36] Keller J 2006 *Ph. D. Dissertation* (Heidelberg: Heidelberg University)
[37] Wildanger D, Patton B R, Schill H, Marseglia L, Hadden J P, Knauer S, Schönle A, Rarity J G, O'Brien J L, Hell S W 2011 *Adv. Mater.* **24** OP309
[38] Gigan S 2017 *Nat. Photon.* **11** 14
[39] Zhang P, Goodwin P M, Werner J H 2014 *Opt. Express* **22** 12398

[40] Yu W, Ji Z, Dong D, Yang X, Xiao Y, Gong Q, Xi P, Shi K 2015 *Laser Photon. Rev.* **10** 147

[41] Patton B R, Burke D, Owald D T J, Bewersdorf Gould J, Booth M J 2016 *Opt. Express* **24** 8862

[42] Wang Y, Hao X, Liu X 2013 *Opt. Engineer.* **52** 093107

[43] Wildanger D, Rittweger E, Kastrup L, Hell S W 2008 *Opt. Express* **16** 9614

[44] Winter F R, Loidolt M, Westphal V, Butkevich A N, Gregor C, Sahl S J, Hell S W 2017 *Sci. Rep.* **7** 46492

[45] Reuss M, Engelhardt J, Hell S W 2010 *Opt. Express* **18** 1049

[46] Bingen P, Reuss M, Engelhardt J, Hell S W 2011 *Opt. Express* **19** 23716

[47] Yang B, Przybilla F, Mestre M, Trebbia J B, Lounis B 2014 *Opt. Express* **22** 5581

[48] Chmyrov A, Leutenegger M, Grotjohann T, Schönle A, Kellerfindeisen J, Kastrup L, Jakobs S, Donnert G, Sahl S J, Hell S W 2017 *Sci. Rep.* **7** 44619

[49] Bergermann F, Alber L, Sahl S J, Engelhardt J, Hell S W 2015 *Opt. Express* **23** 211

[50] Hanne J, Falk H J, Görlitz F, Hoyer P, Engelhardt J, Sahl S J, Hell S W 2015 *Nat. Commun.* **6** 7127

[51] Gao P, Prunsche B, Zhou L, Nienhaus K, Nienhaus G U 2017 *Nat. Photon.* **11** 163

[52] Bordenave M D, Balzarottt F, Stefani F D, Hell S W 2016 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **49** 365102

[53] Liu Y, Lu Y, Yang X, Zheng X, Wen S, Fan W, Vidal X, Zhao J, Liu D, Zhou Z 2017 *Nature* **543** 229

[54] Yang X, Xie H, Alonas E, Liu Y, Chen X, Santangelo P J, Ren Q, Xi P, Jin D 2016 *Light-Sci. Appl.* **5** e16134

[55] Danzl J G, Sidenstein S C, Gregor C, Urban N T, Ilgen P, Jakobs S, Hell S W 2016 *Nat. Photon.* **10** 122

[56] Göttfert F, Pleiner T, Heine J, Westphal V, Görlich D, Sahl S J, Hell S W 2017 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **114** 2125

[57] Zhao G, Kabir M M, Toussaint K C, Kuang C, Zheng C, Yu Z, Liu X 2017 *Optica* **4** 633

[58] Veselý P, Lücers H, Riehle M, Bereiterhahn J 1994 *Cell Motility & the Cytoskeleton* **29** 231

[59] Denk W, Strickler J H, Webb W W 1990 *Science* **248** 73

[60] Wilson T, Hamilton D K 1984 *J. Mod. Opt.* **31** 453

[61] Heintzmann R, Sarafis V, Munroe P, Nailon J, Hanley Q S, Jovin T M 2013 *Micron* **34** 293

[62] Dehez H, Piché M, De K Y 2013 *Opt. Express* **21** 15912

[63] Wang D, Liu S, Chen Y, Song J, Liu W, Xiong M, Wang G, Peng X, Qu J 2016 *Opt. Express* **25** 10276

[64] You S, Kuang C, Rong Z, Liu X 2014 *Opt. Express* **22** 26375

[65] Wang N, Kobayashi T 2014 *Opt. Express* **22** 28819

[66] Wang N, Kobayashi T 2015 *Opt. Express* **23** 13704

[67] Rong Z, Kuang C, Fang Y, Zhao G, Xu Y, Liu X 2015 *Opt. Commun.* **354** 71

[68] Segawa S, Kozawa Y, Sato S 2014 *Opt. Lett.* **39** 3118

[69] Segawa S, Kozawa Y, Sato S 2014 *Opt. Lett.* **39** 4529

[70] Zhao G, Kuang C, Ding Z, Liu X 2016 *Opt Express* **24** 23596

[71] Korobchevskaya K, Peres C, Li Z, Antipov A, Sheppard C J, Diaspro A, Bianchini P 2016 *Sci. Rep.* **6** 25816

[72] Zhao G, Rong Z, Zheng C, Liu X, Kuang C 2016 *J. Innov. Opt. Heal. Sci.* **9** 1793

[73] Sheppard C J 1988 *Optik* **80** 53

[74] Sheppard C J, Mehta S B, Heintzmann R 2013 *Opt. Lett.* **38** 2889

[75] Huff J 2015 *Nat. Methods* **12**

[76] Müller C B, Enderlein J 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 198101

[77] Roth S, Sheppard C J, Kai W, Heintzmann R 2013 *Opt. Nanoscopy* **2** 1

[78] York A G, Parekh S H, Nogare D D, Fischer R S, Temprine K, Mione M, Chitnis A B, Combs C A, Shroff H 2012 *Nat. Methods* **9** 749

[79] de Luca G M, Breedijk R M, Brandt R A, Zeelenberg C H, de Jong B E, Timmermans W, Azar L N, Hoebe R A, Stallinga S, Manders E M 2013 *Biomed. Opt. Express* **4** 2644

[80] Sheppard C J, Roth S, Heintzmann R, Castello M, Vicidomini G, Chen R, Chen X, Diaspro A 2016 *Opt. Express* **24** 27280

[81] Kuang C, Ma Y, Zhou R, Zheng G, Fang Y, Xu Y, Liu X, So P T 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 028102

[82] Ge B, Wang Y, Huang Y, Kuang C, Fang Y, Xiu P, Rong Z, Liu X 2016 *Opt. Lett.* **41** 2013

[83] Schulz O, Pieper C, Clever M, Pfaff J, Ruhlandt A, Kehlenbach R H, Wouters F S, Großhans J, Bunt G, Enderlein J 2013 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **110** 21000

[84] Wang P, Slipchenko M N, Mitchell J, Yang C, Potma E O, Xu X, Cheng J X 2013 *Nat. Photon.* **7** 449

[85] Jin N, Rahmat-Samii Y 2007 *IEEE Trans. Antenn. Propag.* **55** 556

[86] Rogers E T, Lindberg J, Roy T, Savo S, Chad J E, Dennis M R, Zheludev N I 2012 *Nat. Mater.* **11** 432

[87] van Putten E G, Akbulut D, Bertolotti J, Vos W L, Lagendijk A, Mosk A P 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 193905

[88] Park J H, Park C, Yu H S, Park J, Han S, Shin J, Ko S H, Nam K T, Cho Y H, Park Y K 2013 *Nat. Photon.* **7** 454

[89] Fang Z, Zhu X 2013 *Adv. Mater.* **25** 253840

[90] Zhang W, Fang Z, Zhu X 2016 *Chem. Rev.* **117** 5095

[91] Diekmann R, Helle Ø I, Øie C I, McCourt P, Huser T R, Schüttpelz M, Ahluwalia B S 2017 *Nat. Photon.* **11** 322

[92] Roider C, Ritsch-Marte M, Jesacher A 2016 *Opt. Lett.* **41** 3825

SPECIAL ISSUE—Diffraction limit of electromagnetic waves

Progress of point-wise scanning superresolution methods*

Zhao Guang-Yuan Zheng Cheng Fang Yue Kuang Cui-Fang† Liu Xu

(*State Key Laboratory of Modern Optical Instrumentation, College of Optical Science and Engineering, Zhejiang University, Hangzhou 310027, China*)

(Received 30 March 2017; revised manuscript received 2 May 2017)

Abstract

Optical microscope has been giving impetus to the development of modern technology. As the advancement of these techniques, high resolution microscopy becomes crucial in biological and material researches. However, the diffraction limit restricts the resolution of conventional microscopy. In 1968, confocal microscopy, the first pointwise scanning superresolution method, appeared. It improves the imaging resolution, enhances the contrast, and thus breaks through the diffraction limit. Since then many superresolution methods have come into being, among which the pointwise scanning superresolution method earns reputation for its high imaging resolution and contrast. The stimulated emission depletion microscopy becomes the most prominent method with an achievable resolution of about 2.4 nm and then widely used. Besides, the newly developed fluorescence emission difference microscopy (FED) and the saturated absorption competition microscopy (SAC) have their advantages of non-constraint on fluorescent dyes, low saturated beam power, simplified optical setups, while they achieve a resolution of lower than $\lambda/6$. Further explorations of FED will be keen on vivo biological observations by using it, while that of SAC can concentrate on enhancing the resolution on a nanoscale and reducing the signal-to-noise ratio. In addition, the Airy scan technique in which a detector array is used for image acquisition, can serve as a complementary tool to further enhance the imaging quality of pointwise scanning superresolution method. The detector-array enables both the narrowed size of pinhole and the increasing of the acquired signal intensity by 1.84 folds. The other methods, e.g. superoscillation lens and high-index resolution enhancement by scattering, have the potentialities to obtain superresolved image in material science or deep tissues. After being developed in the past three decades, the superresolution methods now encounter a new bottleneck. Further improvement of the current methods is aimed at imaging depth, and being used more practically and diversely. In this review, we detailedly describe the above pointwise scanning superresolution methods, and explain their principles and techniques. In addition, the deficiencies and potentialities of these methods are presented in this review. Finally, we compare the existing methods and envision the next generation of the pointwise scanning superresolution methods.

Keywords: superresolution, confocal, stimulated emission depletion microscopy, pointwise scanning

PACS: 87.64.mk, 87.64.M–, 87.64.kv, 87.63.lm **DOI:** 10.7498/aps.66.148702

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2015CB352003), the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2016YFF0101400), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61335003, 61377013, 61378051, 61427818), the Natural Science Foundation of Zhejiang Province, China (Grant No. LR16F050001), and the Fundamental Research Funds for the Central Universities, China.

† Corresponding author. E-mail: cfkuang@zju.edu.cn

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

衍射极限尺度下的亚波长电磁学

蒲明博　王长涛　王彦钦　罗先刚

Subwavelength electromagnetics below the diffraction limit

Pu Ming-Bo　Wang Chang-Tao　Wang Yan-Qin　Luo Xian-Gang

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 144101 (2017)　DOI: 10.7498/aps.66.144101
在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.144101
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I14

您可能感兴趣的其他文章
Articles you may be interested in

时空非均匀等离子体鞘套中太赫兹波的传播特性
Propagation characteristics of terahertz waves in temporally and spatially inhomogeneous plasma sheath
物理学报.2017, 66(8): 084102　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.084102

光子晶体传输特性的时域精细积分法分析
Analysis of photonic crystal transmission properties by the precise integration time domain
物理学报.2017, 66(8): 084101　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.084101

基于单层线-圆极化转换聚焦超表面的宽带高增益圆极化天线设计
Broadband circularly polarized high-gain antenna design based on linear-to-circular polarization conversion focusing metasurface
物理学报.2017, 66(6): 064102　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.064102

分层有耗手征介质中斜入射电磁波的传播矩阵
Propagation matrix of plane wave incident obliquely on stratified lossy chiral medium
物理学报.2017, 66(6): 064101　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.064101

若干电磁波完全极化参数组的完备变换关系
Conversion relationships between several parameter groups of completely polarized electromagnetic waves
物理学报.2017, 66(5): 054101　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.054101

专题: 电磁波衍射极限

衍射极限尺度下的亚波长电磁学*

蒲明博 王长涛 王彦钦 罗先刚†

(中国科学院光电技术研究所, 微细加工光学技术国家重点实验室, 成都 610209)

(2017年4月21日收到; 2017年5月19日收到修改稿)

作为波的本性之一, 衍射是现代物理学的重要研究内容. 衍射导致自由空间中波的能量不能被无限小地聚集, 从而为成像、光刻、光存储、光波导等技术设定了一个原理性的障碍——衍射极限. 对于电磁波和光波而言, 尽管通过提高介质的折射率可以压缩衍射效应, 但由于自然界中材料的折射率有限, 该方法存在很大限制. 近年来, 随着表面等离子体光学的兴起, 表面等离子体在超越传统衍射极限方面的能力和应用前景受到了学术界的关注. 本文从亚波长电磁学的角度出发, 介绍衍射极限研究的历史, 综述了突破衍射极限的理论方法. 首先, 利用金属介质表面等离子体激元的短波长特性, 可将等效波长压缩一个数量级以上, 在纳米尺度实现光波的聚焦或定向传输; 更进一步, 通过人为设计超构材料和超构表面, 利用结构化金属和介质中的局域谐振、耦合等特殊电磁响应, 可实现亚波长局域相位调制、超宽带色散调控、近完美吸收、光子自旋轨道耦合等, 从而突破传统理论的诸多局限, 为下一代电磁学和光学功能器件奠定重要基础.

关键词: 衍射极限, 表面等离子体, 超构材料, 超构表面

PACS: 41.20.Jb, 42.25.–p, 42.70.–a, 73.20.Mf **DOI:** 10.7498/aps.66.144101

1 引 言

波是扰动等物理信息在空间中传播的一种现象, 常见的波包括声波、光波、电磁波等. 在经典声学、光学、电磁学和量子力学中, 处理问题的范围一般在波长量级以上, 其根源在于自由空间中波的能量(或概率)不能局域到远小于波长的尺度中. 这一现象在量子力学中被称为“不确定性原理”(1928年由Heisenberg提出), 对应于光学系统中的“衍射极限”[1]. 1873年, 阿贝指出光学显微镜的成像分辨率存在衍射极限, 随后由瑞利通过波动理论进行解释, 并指出望远镜和显微镜具有类似的限制[2]. 一百多年来, 衍射极限限制了光学成像技术的发展, 导致成像、光刻等光学系统的分辨力难以小于半波长. 此外, 传统理论一般认为在远小于波长的尺度上(即“长波极限”), 波动性逐渐变弱甚至消失. 以电磁波为例, 在长波极限条件下, 电磁场可近似为静电场和静磁场, 此时电场和磁场之间的耦合可忽略[3]. 另外, 由不同介质交替排布构成的周期结构在这种条件下具有简单的等效介电常数表达式[4], 其电磁特性与结构的微观形式无关, 因而无需考虑衍射极限下的具体电磁行为[5].

随着微纳加工和表征技术的进步, 许多研究发现当物质的性质在波长尺度范围内发生剧烈变化时, 波动方程将变得十分复杂, 在特定条件下将出现新的解并导致许多与常识迥异的物理现象[6,7]. 仍以电磁波为例, 当麦克斯韦方程组中介质的介电常数和磁导率随空间迅速变化, 传统求解方程组的方法难以应用, 必需采用时域有限差分、有限元等数值方法. 得益于电子计算机及数值计算能力的提升, 近年来亚波长尺度的电磁学取得了快速发展, 人们相继实现了负折射率、隐身斗篷、平面透镜、超

* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2013CBA01700)和国家自然科学基金(批准号: 61622508, 61575201)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: lxg@ioe.ac.cn

© 2017 中国物理学会 Chinese Physical Society

宽带完美电磁吸收、虚拟赋形等许多传统技术难以甚至无法实现的功能[3,8−13]. 本文从研究历史、物理现象、机理、材料、器件设计和系统集成等几个方面介绍了亚波长科学技术与传统电磁学和光学的区别, 重点针对亚波长结构在超衍射光学、局域相位和偏振调控、宽带电磁吸收和辐射等方面的应用开展讨论.

2 亚波长电磁学的研究范畴

2.1 突破衍射极限

尽管通过电子束、离子束等物理手段或化学合成等方法可以方便地制备出特征尺寸远小于可见光波长的纳米结构, 但对纳米结构光学性质的研究直到20世纪末期才出现重要突破. 1998年, Ebbesen等[14]发现, 金属薄膜上亚波长孔阵列在某些特定波长位置表现出异常透射增强效应(extraordinary optical transmission, EOT): 小孔阵列的透射率远大于经典衍射理论的预测结果. 该现象引起了学术界的关注[15−17], 预示着在亚波长尺度传统光学衍射定律能被打破. Ebbesen等猜测表面等离子体(surface plasmon polariton, SPP)是EOT现象的关键, 通过将光子转化为SPP并再次辐射, 可极大地增强能量透射率. 另外, 在金属孔的入射面和出射面四周增加周期性沟槽(图1 (a)), 可在提高透射率的同时, 使出射光定向辐射[18]. 该定向辐射效应与入射光的波长密切相关, 如图1 (b)所示, 波长580 nm的出射光几乎沿着直线定向传输, 发散角仅为±3°; 对于波长800 nm的入射光, 出射方向将分裂为左右两个级次, 其角度可通过SPP的波矢量匹配条件定量计算. 基于金属狭缝沟槽结构的定向辐射技术增加了有效口径, 突破了传统天线的角分辨率极限, 为纳米尺度的光束控制提供了新原理和方法.

除了通过在狭缝外增加沟槽调控电磁辐射外, 改变亚波长狭缝的形状也可明显改变电磁波的衍射行为, 突破传统基尔霍夫衍射理论的限制. 图1 (c)为一种悬链线形状的金属纳米孔, 具有宽带光子自旋霍尔效应[19]: 圆偏振电磁波入射到悬链状狭缝后将改变传播方向, 且该方向取决于圆偏振的旋向. 图1 (d)所示为左旋圆偏振入射时, 出射光中右旋分量的电场分布. 通过两个悬链线结构的组合(图1 (e)), 还可产生Bessel光束, 在传播过程中消除衍射效应. 图1 (f)为右旋圆偏振入射时, 出射光中左旋分量的电场分布, 其中箭头表示左右两部分结构引起的对称性波束偏折效果. 显然, 在传播过程中交叠部分的光场具有类似Bessel光束的无衍射传输特性.[20]. 进一步研究表明, 通过在二维平面上对悬链线结构进行变形和组合, 可实现超宽带的连续型相位调控, 构建一系列新型平面光子器件[21−24].

作为一种金属-介质界面上的电子-光子集体振荡, SPP具有短波长特性, 其等效波长可达到实际波长的十分之一以下. SPP的传播常数β可写作:

$$\beta = k_0\sqrt{\frac{\varepsilon_{\rm m}\varepsilon_{\rm d}}{\varepsilon_{\rm m}+\varepsilon_{\rm d}}}, \tag{1}$$

其中$\varepsilon_{\rm m}$和$\varepsilon_{\rm d}$分别为金属和介质的介电常数, $k=\omega/c$为真空波数(ω为角频率, c为光速). 当$\varepsilon_{\rm m}=-\varepsilon_{\rm d}$时, SPP的传播常数取最大值, 同时等效波长被急剧压缩. 因此, SPP可将光学的研究范畴从远大于波长的“超波长”尺度压缩到远小于波长的“亚波长”尺度. 此外, 作为一种光子与电子的耦合体, SPP既具有光子的高速度, 也具有电子的强局域特性, 因而被公认为是一种可以替代电子的通信载体, 并以其为基础形成了一门新的学科——表面等离子体光学(plasmonics)[25,26].

SPP的短波长特性可通过其色散曲线分析. 如图2 (a)和图2 (b)所示, 金属薄膜的结构对SPP的色散有较大的影响, 通过介质-金属-介质或金属-介质-金属结构, 并改变薄膜的厚度, 能让普通金属-介质界面上的SPP模式互相耦合, 从而调节色散曲线. 以单层金属薄膜为例(图2 (a)), 薄膜的厚度越薄, 在同一频率处SPP的横向波矢越大, 对应的等效波长越短. 类似地, 在由金属-介质-金属构成的狭缝中, 等效波长也与狭缝宽度成正比, 对应的等效模式折射率(真空波长与等效波长之比)随着狭缝宽度变小而增大. 如图2 (c)— 图2 (e)所示, 通过渐变地改变结构的宽度, 可以高效地将光波耦合到远小于波长的纳米尺度.

2.2 在衍射极限尺度上操控波

除了“表面等离子体”外, 亚波长电磁学的主要研究范畴还包括“光子晶体”和“超构材料”, 它们为亚波长尺度上波的调节提供了有效手段. “光子晶体”的概念来源于麦克斯韦方程组与薛定谔方程的类比. 众所周知, 薛定谔建立量子波动方程的

重要一步即是将经典波动方程写作本征值问题, 并将德布罗意关系代入. 光子晶体的研究采用了与之类似的方法, 20 世纪末期, Yablonovitch 等[30] 将麦克斯韦方程组转化为本征值问题, 证明了通过人为构造类似于晶体的周期性光学结构, 可以得到“光子带隙”材料, 使得可以像操控电子一样控制光, 将“二极管”, “晶体管”等电子学概念移植到光子学中, 使光子计算等研究领域向前迈进了一大步. 光子带隙材料可以认为是一种频率选择器件, 通过电磁波在不同单元多次反射的相干叠加, 实现特定频率的选择性反射或透射. 如图 3 (a) 所示, 当电子导带的带边位于光子带隙中间, 电子自发辐射产生的光子不能传播, 从而受到抑制, 这种奇特的性质在半导体光电子器件中具有重要应用. 近年来, 出

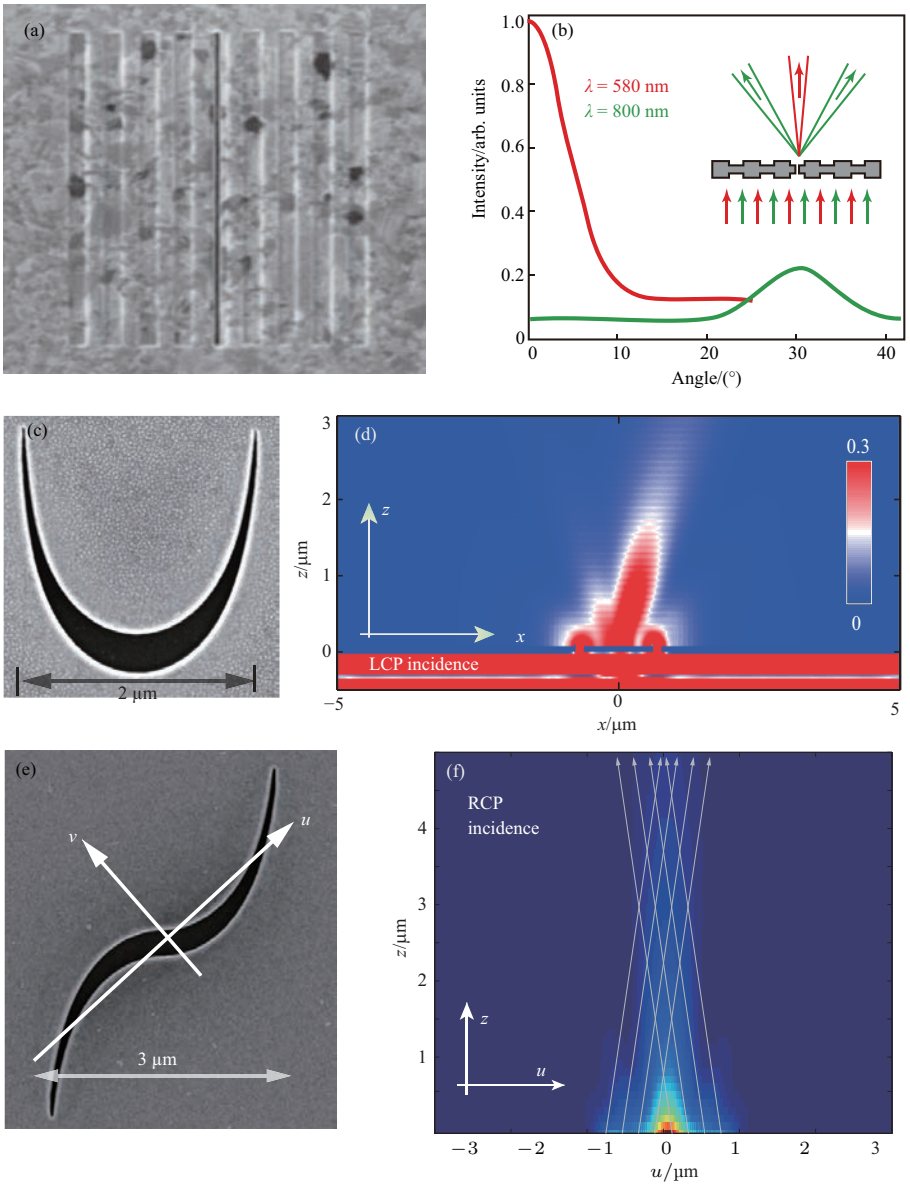


图 1 纳米狭缝结构中的异常衍射效应 (a) 金属狭缝-沟槽结构的扫描电镜图[18]; (b) 两个波长的角分辨透射强度曲线, 插图为结构及衍射效果示意图[18]; (c) 单个悬链线结构的电镜图[19]; (d) 左旋圆偏振入射, 右旋圆偏振出射光强分布[19]; (e) 变形悬链线结构的电镜图[19]; (f) 变形悬链结构对应的光场分布[19]

Fig. 1. Extraordinary diffraction effects in structured nanoslits: (a) Scanning electron microscopy (SEM) of the nanoslit surrounded by periodic grooves[18]; (b) angular transmission-intensity distribution at two selected wavelengths, inset is schematic diagram of the structure showing the corresponding dependence of the directionality on wavelength and the beam divergence in the far field[18]; (c) SEM image of a single catenary-shaped nanoslit[19]; (d) electric field distribution of the cross-polarized component for left-handed circular polarization (LCP) incidence[19]; (e) SEM image of a deformed catenary aperture[19]; (f) electric field distribution of the cross-polarized component for right-handed circular polarization (RCP) incidence[19].

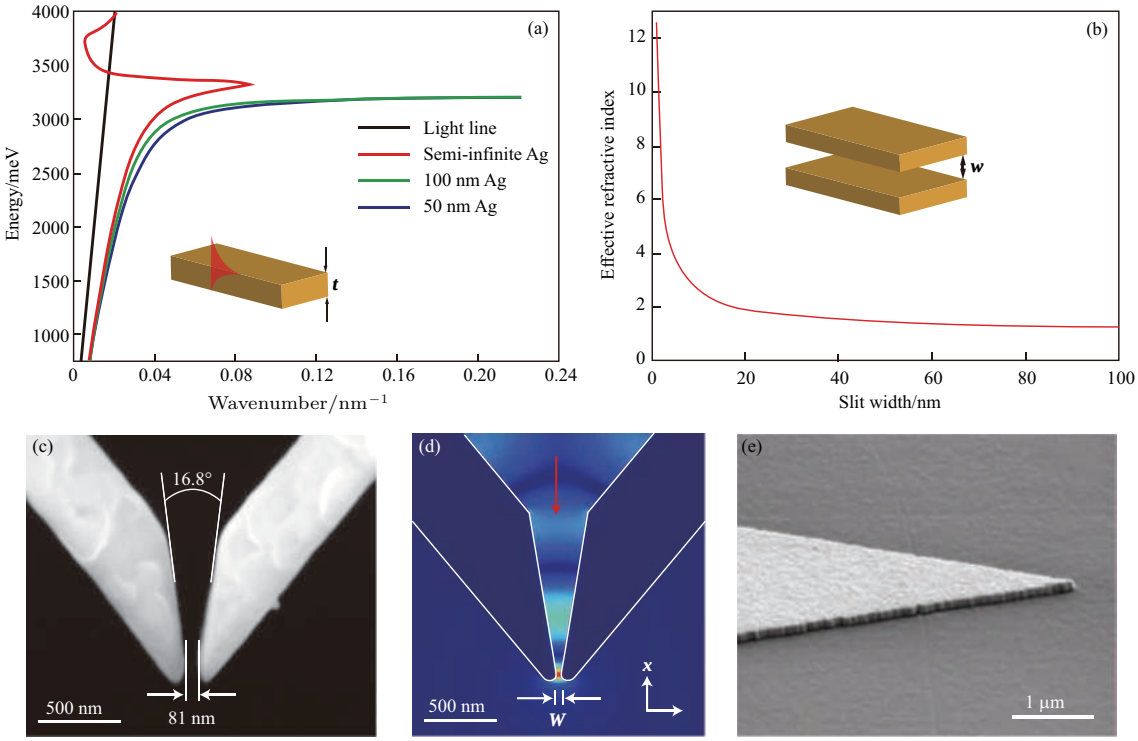


图 2 表面等离子体的短波长效应 (a) 金属薄膜上 SPP 的色散曲线[27]; (b) 金属狭缝中 SPP 的等效折射率与狭缝宽度的关系[28]; (c), (d) 锥形金属狭缝的扫描电镜图和电磁场分布模拟结果[29]; (e) 由金属薄膜构成的锥形结构电镜图[29]

Fig. 2. The short wavelength effect of SPP: (a) Dispersion diagram of the SPP on a thin metallic film[27]; (b) the dependence of the effective refractive index on the slit width for the SPP guided by a metal-insulator-metal waveguide[28]; (c) a SEM image of a typical V-groove cross-section[29]; (d) theoretical modeling of the plasmon coupling, propagation and enhancement in a fabricated tapered groove[29]; (e) a tapered section of a gold film on a sapphire substrate[29].

现了多种基于光子晶体的微纳光子器件, 比如光子晶体波导、光子晶体光纤、光子晶体滤波器、光子晶体激光器、非线性光子晶体、可调谐光子晶体等[31−35]. 同时也产生了很多基于光子晶体结构的新技术, 比如纯介质零折射率材料、光子晶体偏振分束器、无源辐射制冷、光子拓扑绝缘体[36−39]等. 图 3 (b) 和图 3 (c) 所示为一种基于光子晶体的光学拓扑绝缘体, 通过螺旋波导可在本来的带隙中引入手性边缘态, 从而让光局域在边缘传播[37]. 值得注意的是, 光子晶体的带隙特征与其晶格常数密切相关, 当晶格常数变化, 带隙可能消失, 从而表现出完全不同的电磁特性[40].

“超构材料”又称超材料, 是一种人为构造的新型结构材料, 具有超越自然材料的奇异物理 (电磁、声学等) 特性. 超材料的基本思想是通过在亚波长尺度调控结构单元 (称为“超级原子”或“超级分子”), 实现对材料等效参数的控制. 由于超材料介电常数和磁导率的各个分量可在 $[-\infty, \infty]$ 范围内任意调节, 表现出负折射率、零折射率、高折射率、各向异性、手性等多种特征, 材料中的电磁波具有许多与传统材料迥异的传播行为, 如负折射、沿变换光学设计的虚拟空间无衍射传输[41−43]等. 2010 年《Science》杂志将超材料评为过去十年人类最重大的十大科技突破之一. 在《Nature》杂志社 2010 年评选的 23 个光子学里程碑工作中 (其中近 30 年有 6 个), 光子晶体、表面等离子体和超构材料占据了其中 3 项[7].

随着理论和实验研究的快速发展, 近年来“表面等离子体光学”, “光子晶体”和“超构材料”之间产生了深度交叉融合. 特别地, 表面等离子体光学和超构材料的融合催生了一个新的研究方向——“超构表面”[44,45]. 结合表面等离子体的“表面”特性和超构材料中的“亚波长结构”, 超构表面可在二维平面或曲面上实现对电磁波的任意调控. 根据惠更斯原理, 超表面不仅保留了传统超材料的独特电磁特性, 更具有超薄、易加工、易共形等优势, 被视为超材料实用化的最有效途径[44]. 如图 4 (a) 所示, 基于超构材料的电磁隐身斗篷可使其中的电

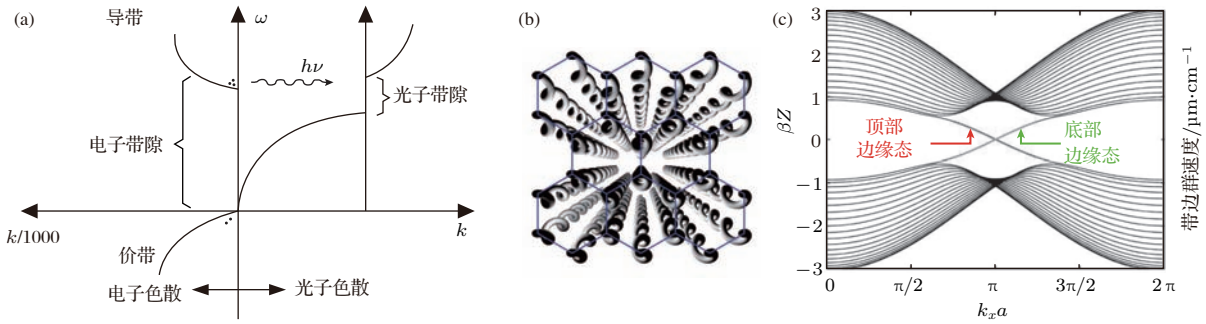


图 3 (a) 电子晶体与光子晶体的能带图 [30], 当电子导带的带边位于光子带隙中间, 自发辐射产生的光子不能传播, 从而抑制自发辐射; (b) 基于螺旋光子晶体的拓扑绝缘体; (c) 螺旋光子晶体的能带图

Fig. 3. (a) Energy band diagram of the electron crystal and photonic crystal [30], right-hand side, the electromagnetic dispersion, with a forbidden gap at the wave vector of the periodicity; left-hand side, the typical electron wave dispersion of a direct-gap semiconductor; the dots represent electrons and holes; (b) photonic topological insulator based on helical waveguide; (c) energy band of the helix waveguide.

磁波按照设计要求弯曲, 从而绕过被隐形物体 [8]. 基于超构表面的电磁调控材料如图 4 (b) 所示, 通过调节表面上的相位分布, 可任意控制电磁波的反射方向, 从而改变该表面的电磁外形, 实现电磁外形和几何外形的解耦 [13]. 外形解耦还可用于构造共形的多功能光学器件, 在任意曲面上实现所需的光学功能 [46].

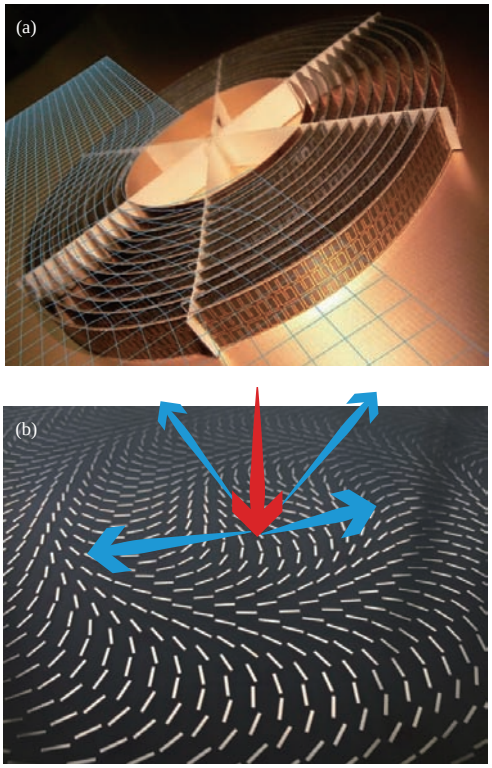


图 4 超构材料与超构表面 (a) 基于变换光学设计的微波隐身罩 [8]; (b) 基于自旋-轨道相互作用的超构表面 [13], 红色为入射波, 蓝色为反射波

Fig. 4. Metamaterials and metasurfaces: (a) Microwave invisibility cloak designed by transformation optics [8]; (b) metasurfaces based on spin-orbit interaction [13].

2.3 超构表面上的电磁波及其属性

从麦克斯韦方程组可知, 本构参数、初始条件和边界条件是求解电磁问题的数学基础. 超材料 (三维亚波长结构) 的核心思想是利用亚波长结构合成具有等效本构参数的人工复合材料, 实现对电磁波的任意调控. 对于超构表面结构 (以下简称超表面) 而言, 由于其厚度远小于波长, 可将其等效为一种人工设计的边界条件 [1,47]. 根据边界和体的映射关系, 边界条件与本构参数对电磁波具有类似的调制效果.

尽管超表面结构在近年来才得到学术界的关注, 其研究历史却可追溯到 20 世纪初. 1902 年, Wood 观测到金属光栅的异常反射光谱 [48], 后来被证明与 SPP 的激发有关 [49]. 同年, Levi-Civita 给出了超薄金属薄膜的等效边界关系 [50], 后来被广泛用于电磁界面问题的分析. 这两个发现分别促进了 SPP 和频率选择表面理论的发展. 近年来, 基于超表面结构的器件被广泛研究, 并成功地应用于光谱滤波、表面等离子体光学器件、振幅和相位调制器件、完美吸收材料等 [51−55]. 超构表面的奇特电磁特性可通过表面上的电磁波 (简称“超构表面波”) 进行阐述, 其属性是新型超表面器件的物理基础 [1,56], 以下予以简单介绍:

2.3.1 短波长属性

如 2.1 节所示, SPP 的等效波长可远小于真空波长, 对应的模式折射率 (传播常数与真空波数的比值) 远大于 1. 在 436 nm 波长, SPP 的等效波长可达到 X 射线量级 [57]. 短波长属性是突破衍射极限, 实现超分辨成像、存储和光刻的物理基础. 对于金属-介质复合膜层, 由于不同界面上 SPP 的耦

合, 混合SPP色散曲线可以大范围调节, 进一步缩短等效波长. 以金属-介质-金属或介质-金属-介质结构为例, 混合SPP的传播常数可通过以下公式计算[1,27]:

$$\tanh\left(\sqrt{\beta^2-\varepsilon_1 k_0^2}h/2\right)=-\frac{\varepsilon_1\sqrt{\beta^2-\varepsilon_2 k_0^2}}{\varepsilon_2\sqrt{\beta^2-\varepsilon_1 k_0^2}}, \quad (2)$$

其中ε_1和ε_2分别为金属或介质的介电常数, h为中间膜层的厚度. 计算表明, 当h小于20 nm, 混合SPP的等效波长可降低到真空波长的1/10以下.

除了SPP外, 我们注意到通过超材料也可以构造等效高折射率材料, 从而缩短波长[58], 但由于其复杂的结构, 目前只在微波、太赫兹等低频段验证, 尚难以应用于光波段.

2.3.2 相位可调属性

相位调控是光学和微波领域的重要研究内容之一, 是波前变换、相控阵雷达、偏振调控等应用的关键. 根据折反射定律, 传统相位调控元件一般是通过改变不同位置处材料的厚度, 利用传播引起的相位延迟调控波前. 由于超构表面波可以突破衍射极限, 使得相位、振幅等信息得以在亚波长尺度进行任意调控, 从而将传统的曲面设计和制备难题转化为平面亚波长结构的设计和制备. 根据引入相位的机理进行分类, 目前相位调控的方法主要有介质光栅、金属狭缝或孔、金属或介质谐振器、PB(Pancharatnam-Berry)几何相位[11,21,59−63]等. 以金属狭缝为例, 由(2)式可知, 通过梯度式地改变狭缝的宽度, 可使入射电磁波偏折到任意指定角度[9,64]. 同时, 通过调节表面阻抗, 还可以改变传统Fresnel公式, 调控折射和反射的强度[1]. 从理论层面讲, 具有梯度相位分布的超构表面器件可以改变传统折反射行为, 形成"广义折反射定律"[10,65]. 此外, 通过两个正交方向的相位延迟调控, 还可以实现任意偏振调控, 以及基于偏振调控的自旋轨道相互作用[13,66−70].

2.3.3 色散可控属性

频率色散指材料对不同频率的光波有不同的响应. 由于电磁波具有极宽的频谱, 运用超表面的色散来调制不同频率的波具有重要意义[71]. 色散特性可广泛应用于以超表面为基础的宽频带器件, 如宽带波片、完美电磁吸收器以及宽带相位调控器件[12,72,73]等. 依据麦克斯韦方程组及边界条件, 容易推导出完美电磁吸收器和宽带波片所需的色散关系[66,74]. 对这两种应用而言, 色散要求十分相似, 但由于理想色散曲线违反了Kramers-Kronig (K-K)关系及因果律, 因此理想色散关系只能在一定程度上逼近, 导致吸收和偏振转换器件存在厚度-带宽极限: 一定厚度条件下器件的带宽存在上限[75,76]. 研究表明, Lorentz模型是实现宽带吸收和偏振转换的有效途径[12,67,73]. 由于复杂的超表面可通过一系列串联和并联电路描述, 其等效色散曲线与Lorentz模型一致, 满足因果律和K-K关系. 这一色散理论可为宽带器件的设计提供理论指导. 譬如, 利用色散补偿的宽带波带片可实现宽带自旋-轨道耦合[13], 利用软表面的色散可在宽带范围内降低喇叭天线的旁瓣[77]. 除了普通的Lorentz色散之外, 通过引入外加激励构造负阻抗器件可进一步调控色散关系, 突破被动材料的厚度-带宽极限[78].

除频率色散之外, 在某一频率或波长处电磁波不同方向波矢量之间的关系也被称为色散关系. 在非磁性的单轴晶体中, 光波的色散方程一般可写作

$$\frac{\boldsymbol{k}_x^2+\boldsymbol{k}_y^2}{\varepsilon_{//}}+\frac{\boldsymbol{k}_z^2}{\varepsilon_\perp}=\boldsymbol{k}_0^2, \quad (3)$$

其中$\boldsymbol{k}_x$, $\boldsymbol{k}_y$, $\boldsymbol{k}_z$分别为x, y, z方向的波矢量值; $\varepsilon_{//}$和$\varepsilon_\perp$为电场平行及垂直于晶体主轴(z轴)时的介电常数. 在普通晶体中, $\varepsilon_{//}$和$\varepsilon_\perp$均为正值, 对应的频率等高线为椭圆. 在由如图5(a)和图5(b)所示的金属-介质多层膜构成的等效材料中, 由于金属介电常数为负, $\varepsilon_{//}$和$\varepsilon_\perp$可具有相反的符号, 对应的频率等高线为双曲线. 图5(c)和图5(d)为双曲

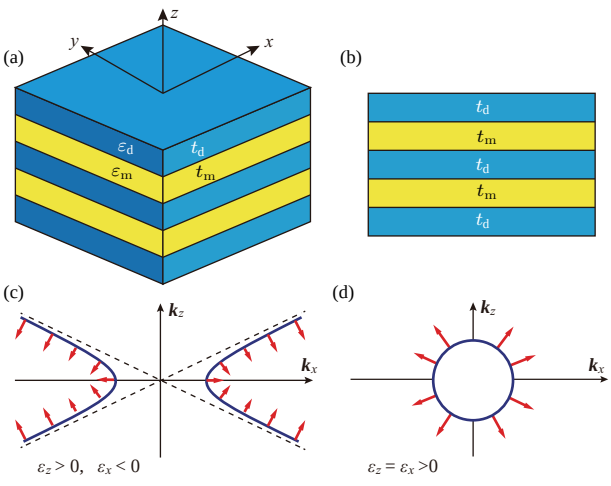


图5 双曲色散 (a), (b)基于金属介质多层膜构成的双曲色散材料; (c), (d)双曲色散和普通材料中的频率等高线和能流方向

Fig. 5. Hyperbolic dispersion: (a), (b) Hyperbolic metamaterial based on metal-dielectric multilayers; (c), (d) the equifrequency curves and energy flow directions in hyperbolic and normal materials.

色散和普通色散材料中的频率等高线(蓝色实线)和能流方向(红色箭头, 即群速度方向). 根据群速度的定义 $v_{\rm g}(\omega) = \nabla_k \omega(k)$ 可知, 对于双曲色散材料, 除了临近原点的小部分区域, 能流方向基本沿着渐近线的法线方向[79]. 因此, 双曲色散材料可使电磁波在其中定向传输, 为突破衍射极限提供了一种新的途径. 另外, 由于只有横向波矢 $\boldsymbol{k}_x$ 大于一定值的高频分量才能传播, 双曲色散材料可作为高频空间滤波器使用[80].

3 亚波长电磁学的典型应用

3.1 基于SPP的超衍射光刻

如前文所述, 以SPP为代表的表面波最引人注目之处在于其可以突破传统光学的衍射极限. 基于此, SPP 在包括显微成像、光学光刻、光波导、光存储等技术中取得了成功的应用[57,81–83]. 其中, 基于SPP的成像光刻技术在近年来发展迅速, 已经在365 nm波长实现22 nm特征尺寸的光刻效果[84,85], 结合后续工艺可实现8 nm以下特征尺寸图形的制备.

图6 (a) 为一种实现SPP超分辨光刻的典型器件, 通过综合两种典型的超衍射机理(腔共振, 通过金属-介质-金属三层膜系实现; Bessel光束, 利用环形光栅结合金属-介质多层膜的高阶波矢定向滤波特性实现[79]), 该器件可在长工作距模式下实现超分辨聚焦(62 nm线宽, 100 nm工作距, 365 nm波长)[80], 提供了一种突破"近场衍射极限"的"虚拟探针"[86]. 金属-介质-金属谐振腔可以进一步提高SPP激发效率, 抑制腔内电场纵向分量并减少其对成像性能的负面影响, 获得更高分辨力和对比度的成像光刻效果. 相比于反射共振结构, 共振腔透镜结构可将曝光深度拓展约2倍. 基于该方法, 在实验上获得了深度23 nm光刻胶图形, 并得到了约1/17波长线宽光刻分辨力实验结果, 如图6 (b) 所示[84]. 图6 (c) 为基于上述原理研制的SP光刻机, 目前已具备移动曝光、高精度套刻等功能.

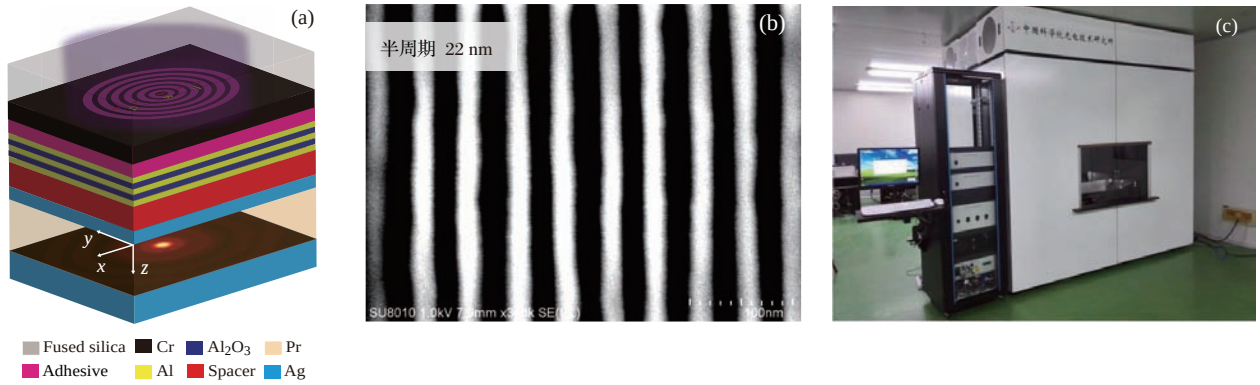


图6 基于SPP的超衍射传输和超分辨光刻技术 (a) 通过SPP产生超衍射虚拟探针的结构示意图[80]; (b) 22 nm线宽图形的电镜图[84]; (c) 表面等离子体光刻机照片

Fig. 6. Subdiffraction propagation and lithography based on SPP: (a) Schematic of the generation of virtual probe using SPP[80]; (b) SEM image of the fabricated sample with 22 nm half-pitch[84]; (c) image of the lithography system.

基于SPP的光刻技术从光学系统层面上突破分辨力衍射极限, 无需引入双光子、受激发射损耗、光吸收调制等特殊非线性光学效应, 在材料和工艺上保持了与传统光学光刻技术的兼容性, 有望成为一种低成本、大面积、高效的纳米光刻加工技术[25,87]. 当然, 当前SPP光刻技术仍然有一些问题需要进一步深入研究. 在原理方法方面, 需要研究探索SPP 超分辨成像光刻新方法; 在技术层面, 需要发展配套的SPP光刻控制技术; 在工艺和材料方面, 需进一步研究光刻分辨力增强技术, 提升光刻图形质量, 并完善后续图形传递工艺.

3.2 基于广义折反射定律的平面光学器件

在普通折射现象中, 两种材料界面上的相位不存在跃变, 因此可通过相位匹配条件推导传统折射定律(即Snell定律). 通过在材料界面上人为施加随位置变化的梯度相位, 可改写传统折射定律, 实现任意方向的折射[9,10,47]. 此外, 与各向异性材料界面上的广义折射定律不同[88], 引入梯度相位后

反射定律也不再适用. 由于这种相位梯度可通过超构表面实现, 此类广义折反射定律也被称为超构表面辅助的折反射定律 (metasurface-assisted law of refraction and reflection, MLRR) [1].

在MLRR中, 控制折反射方向的关键在于恰当地引入相位梯度. 目前主要有三种引入相位梯度的方法: 其一是梯度折射率材料, 通过在空间上改变介质光栅的占空比, 或利用几何尺寸渐变的超构材料都可引入类似的相位梯度 [59,60]. 由于普通介质材料或等效超构材料的折射率有限, 为了实现360° 的相位变化, 材料的厚度需要接近甚至远大于波长, 且不同单元存在遮挡、耦合等不利效应. 第二种方法利用了金属介质界面上SPP的短波长特性, 通过将宽度渐变的纳米狭缝垂直排列, 可在不同位置局域地引入任意相位差 [9,64,89,90]. 由于SPP的等效波长极短, 对应的模式折射率远大于普通材料, 因而可使器件的厚度远小于波长. 第三种引入梯度相位的方法利用了超构表面中的几何相位 [10,21,62,91]. 不同于在传播路径上的累积相位, 几何相位只取决于平面结构的几何形状和尺寸, 与材料的厚度无关. 因此, 这种器件仅需远小于波长的厚度即可产生任意相位梯度, 实现对折射和反射方向的精确调控.

相位梯度超构表面可用于构建平面透镜、轨道角动量 (OAM) 产生器、高阶Bessel光束产生器等一系列新型光学器件 [52,92,93]. 基于MLRR的平面透镜可以将电磁波聚焦到任意指定距离, 在显微、望远等领域具有广泛的应用前景. 图7 (a) 所示为一种基于超构表面的物镜, 每个单元由旋转的各向异性纳米介质柱构成, 通过光子的自旋-轨道相互作用实现局域相位调控. 该物镜的放大倍率最高可达170倍, 图7 (b) 和图7 (c) 分别为离散物体及其成像效果 [62], 图7 (d) 为基于平面纳米结构的望远成像系统, 图7 (e) 和图7 (f) 分别为红光和白光的成像星点图, 其像质已接近衍射极限 [65].

MLRR还可推广到更复杂的应用场合中. 比如, 相位型平面器件可作为波前校正元件, 用于传统光学系统中替代折射型透镜, 消除各种像差. 通过超构表面构建复杂的梯度相位分布, 也可将入射光折射到指定的位置, 实现分束、三维彩色显示等功能 [94−96]. 此外, 通过调控材料表面的反射行为, 可使入射能量不返回到原方向, 极大地减小目标的光学或雷达散射截面 [13,97].

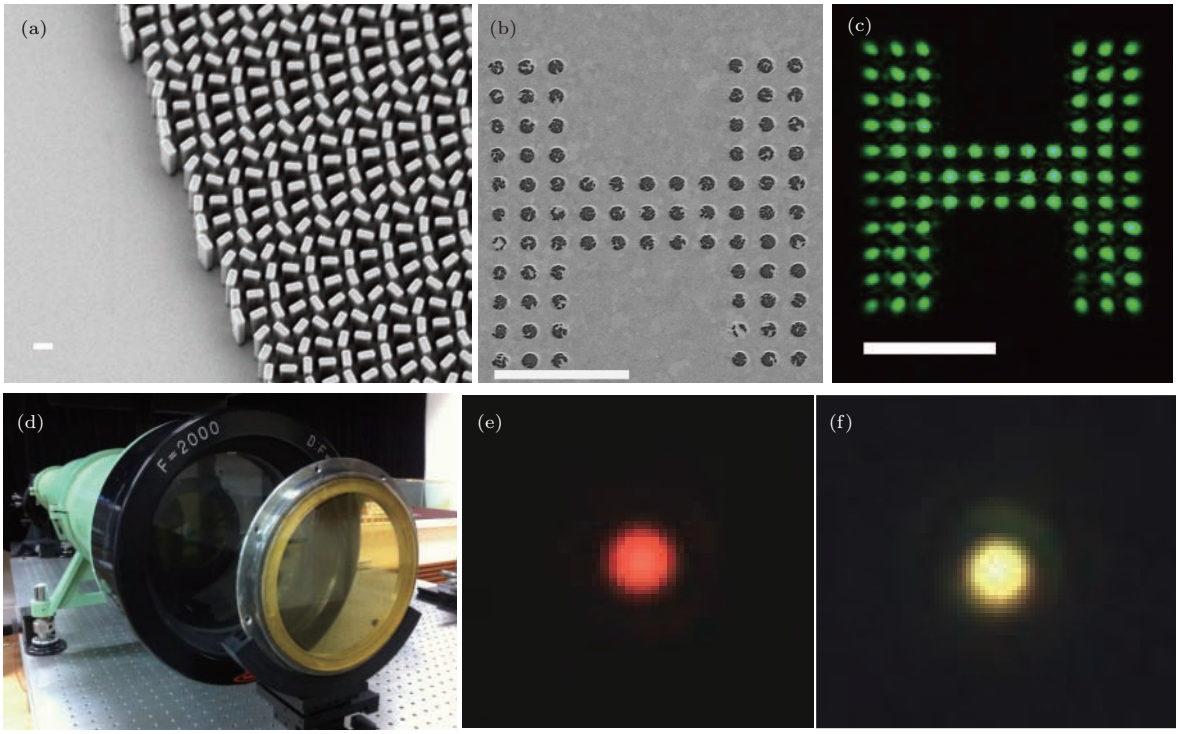


图7 基于超表面的显微物镜和望远镜主镜 (a) 超构表面显微物镜的电镜图, 标尺300 nm [62]; (b) 字符“H”的电镜图, 标尺10 μm [62]; (c) 成像效果, 标尺10 μm [62]; (d) 望远系统照片 [1]; (e), (f) 红光 (波长632.8 nm) 及白光星点图 [1]

Fig. 7. Microscope and telescope based on metasurface: (a) SEM image of the metasurface objective, scale bar 300 nm [62]; (b) SEM image of the object “H”, scale bar 10 μm [62]; (c) image of the object, scale bar 10 μm [62]; (d) photograph of the metasurface-based telescope [1]; (e), (f) focal spots for red light (left, $\lambda = 632.8$ nm) and white (right) light [1].

3.3 从色散工程到超宽带电磁调控

如前所述, 电磁模式的色散在几乎所有亚波长结构及器件中均具有重要意义. 一方面, 我们可从SPP的色散特性直接推导出其短波长属性[27]. 另一方面, 基于这些模式的频率色散, 可以构造多波长、超宽带或超窄带的电磁器件[98−100].

在设计宽带电磁器件时, 首先通过数理模型推导出完美电磁器件所需的频率色散, 然后通过亚波长结构对其进行模拟和逼近. 对于超表面吸波材料而言, 理想色散曲线可通过传输矩阵推导[12,66]. 课题组前期已证明通过超构表面模拟理想吸收层的色散特性, 可在不增加厚度的条件下极大地提高吸波材料的带宽, 在一个倍频程范围内吸收率大于97%, 如图8 (a)和图8 (b)所示[12]. 理论分析发现, 这种带宽拓展现象得益于金属层色散曲线从Drude模型向Lorentz模型的转换. 其中Lorentz谐振来自于结构化金属中束缚电子的共振, 与金属中电子在红外波段的带间跃迁具有类似之处. 值得注意的是, 在相干入射条件下, 采用Drude模型即可实现频率无关的超宽带吸收, 且最小厚度仅需0.3 nm[101,102].

与传统块体吸波材料不同, 在亚波长结构的吸波材料中, 自由空间中的入射电磁波会被亚波长结构转化为局域电磁模式, 通过临界匹配实现完美吸收[45]. 这些局域模式对吸波性能的提升有两方面的好处: 首先, 通过将电磁波由纵向传播转换为沿表面横向传播, 可降低对材料厚度的要求, 实现超薄电磁吸收体; 其次, 通过局域模式的谐振和电磁增强, 可使电磁波的吸收率大幅增加, 并为色散调控提供谐振单元, 从而进一步拓展吸收带宽.

与吸收材料设计类似, 通过各向异性超表面的色散, 可实现宽带偏振转换. 在一维色散调控的基础上[66], 通过二维方向的色散调控原理上可进一步拓展偏振器件的工作带宽[73]. 如图8 (c)和(d)所示, 在开口谐振环的两个正交方向采用Lorentz谐振子的叠加进行宽带色散调控, 可在5 : 1的带宽范围内实现消色差偏振转换.

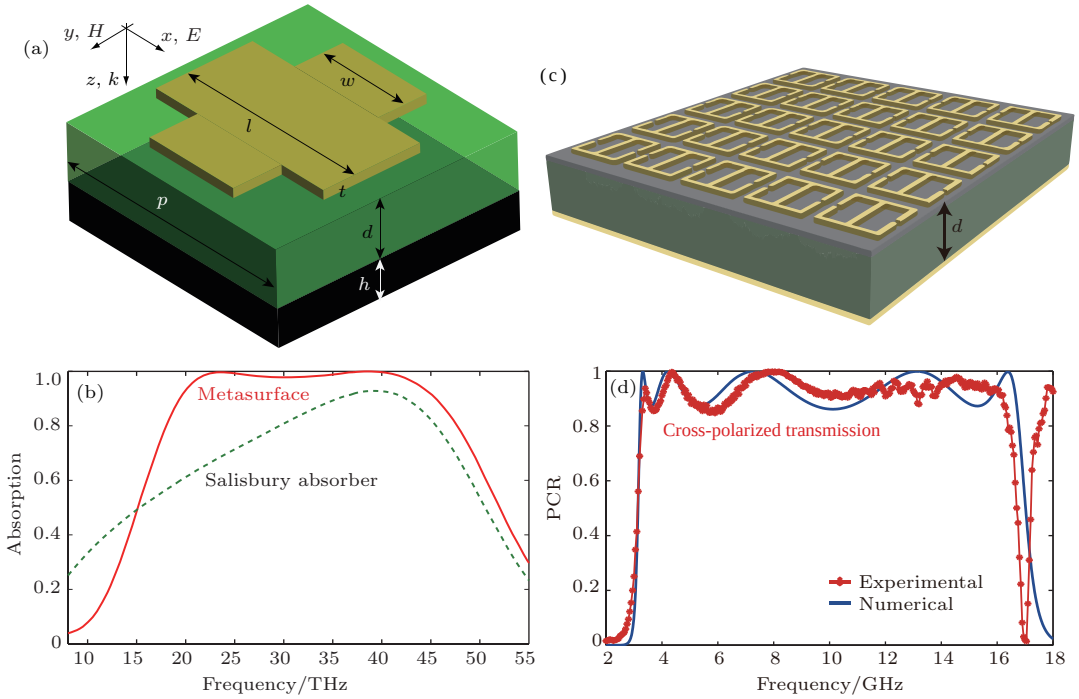


图8 基于色散调控的宽带亚波长电磁器件 (a) 基于十字形单元结构的宽带吸波器[12]; (b) 超表面吸波器和Salisbury吸波器吸收率的对比[12]; (c) 基于开口谐振环的宽带偏振反射镜[73]; (d) 交叉偏振转换率的模拟和测试结果[73]

Fig. 8. Broadband meta-devices based on dispersion engineering: (a) Schematic of the broadband absorber based on metasurface dispersion engineering[12]; (b) absorption at normal incidence as a function of frequency, the Salisbury absorption curve is shown as a reference[12]; (c) perspective view of the polarizing metamirror based on split ring resonators[73]; (d) simulated polarization conversion ratio (PCR) from LCP to LCP (blue solid line) and measured polarization conversion ratio from x- to y-polarization (red asterisk)[73].

在各种电磁器件的实际应用中, 需要针对应用环境对器件的材料和工艺进行优化. 特别地, 很多情况下 (如太阳能热光伏系统、高速飞行器) 吸波材料需要在高温环境下工作. 针对这种需求, 近年来出现了多种基于耐高温材料 (如 TiN, W, Mo, 镍铬合金等) 的设计和实验 [103,104]. 以 TiN 材料为例, 由于其熔点高达 2930 °C, 且在可见-近红外波段具有等离子共振特性, 被广泛用于红外吸波材料的研究. 如图 9 (a) 所示, 基于 TiN 的吸波材料可在 400—800 nm 波段实现 95% 以上的吸收率. 通过退火和激光加热对该材料的耐高温特性进行研究, 发现材料在 800 °C 退火后性能几乎不变. 作为对比, 基于贵金属的吸波材料在退火后结构发生了严重变形, 导致性能丧失, 如图 9 (b) 和图 9 (c) 所示.

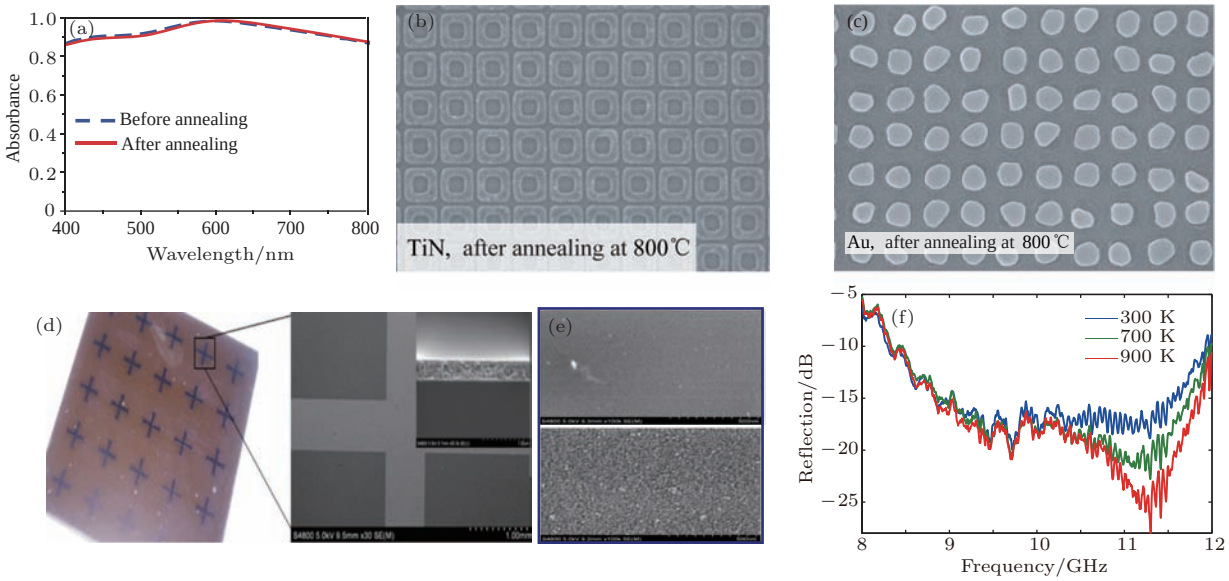


图 9 基于难熔材料的高温吸波器件 (a) TiN 吸波器在退火前后的吸收率测试结果 [103]; (b) TiN 吸波器经 800 °C 退火后的表面电镜图 [103]; (c) Au 吸波器经 800 °C 退火后的表面电镜图 [103]; (d) 镍铬合金吸波材料的照片和电镜图 [1]; (e) 镍铬合金表面加热前和加热后的电镜图 [1]; (f) 不同温度下反射率的实测结果 [1]

Fig. 9. Refractory-material-based absorbers: (a) The measured absorption of the TiN absorber after annealing at 800 °C for 8 h, as well as the reference measured absorption of TiN before annealing [103]; (b), (c) the SEM images of the TiN and Au absorbers after annealing [103]; (d) photography and SEM image of the NiCr absorber [1]; (e) SEM image of the NiCr surface before and after heating [1]; (f) measured absorbance of the NiCr absorber at various temperatures [1].

图 9 (d)—图 9 (f) 为本课题组前期在微波段研制的系列耐高温吸波材料. 采用镍铬合金和 SiC 陶瓷, 该吸波材料能承受 1200 °C 以上的高温环境 [1]. 另外, 采用色散调控原理, 该吸波材料的带宽相比于普通材料也提高了约两倍.

4 总结与展望

亚波长电磁学是研究物质与电磁波在亚波长尺度 (即小于衍射极限的空间) 相互作用的现象、规律、机理及应用的学科, 其主要研究内容可根据结构形式和电磁响应特征进行分类, 通常包括表面等离子体、超材料、超表面和光子晶体等几个研究领域. 当然, 当前很多电磁器件和系统中, 各种基本概念彼此渗透, 相互交叠. 例如在基于金属介质多层膜的双曲色散材料中, 表面等离子体、超材料、光子晶体理论均可从不同层面对其电磁特性进行分析 [80,105].

在亚波长电磁学的各个研究方向中, 亚波长结构材料是亚波长科学的物质载体, 是未来主要发展方向之一. 在基础材料方面, 除了传统的金属和介质之外, 近年来研究了很多用于亚波长电磁学的新材料, 包括半导体、液晶、相变材料、耐火材料、以石墨烯为代表的二维材料 [106−109] 等. 这些材料为电磁功能器件的拓展奠定了重要基础. 此外, 采用类似于“材料基因组计划”的思路, 基于麦克斯韦方程组建立亚波长结构基因数据库和软件平台, 可为提高亚波长结构性能、降低研发周期和成本提供支撑. 如图 10 所示, 材料基因工程的思路可以直接应用到亚波长结构的设计, 不同点只是计算和实验工具有所区别.

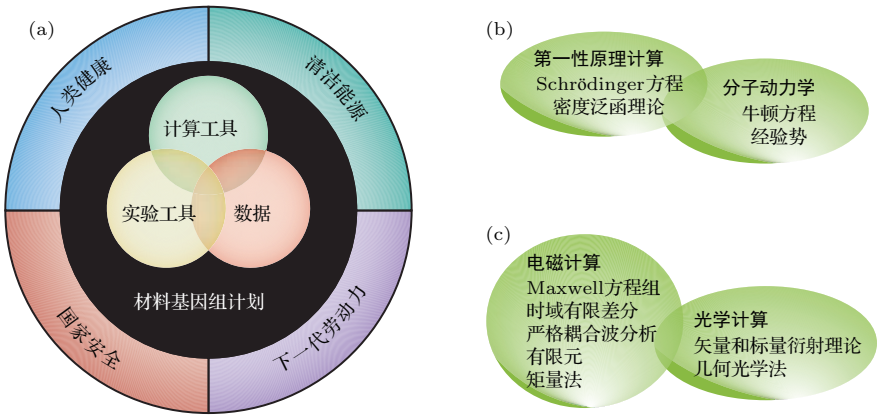


图 10 亚波长结构基因计划 (a) “材料基因组计划”示意图; (b) 传统材料的计算方法; (c) 亚波长结构材料计算方法

Fig. 10. Subwavelength structured materials initiative: (a) Schematic of the materials initiative proposed by American National Science and Technology Council; (b) computational methods used for traditional materials; (c) computational methods for subwavelength structured materials.

参考文献

[1] Luo X 2015 *Sci. China: Phys. Mech. Astron.* **58** 594201
[2] Lauterbach M A 2012 *Opt. Nanoscopy* **1** 1
[3] Pendry J B 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 3966
[4] Raguin D H, Morris G H 1993 *Appl. Opt.* **32** 1154
[5] Ribot C, Lalanne P, Lee M S L, Loiseaux B, Huignard J P 2007 *J. Opt. Soc. Am. A* **24** 3819
[6] Luo X 2016 *Front. Optoelectron.* **9** 138
[7] Luo X G 2017 *Sub-wavelength Electromagnetics* (Vol. 1) (Beijing: Science Press) pp4–5 (in Chinese) [罗先刚 2017 亚波长电磁学 (上册)(北京: 科学出版社) 第 4—5 页]
[8] Schurig D, Mock J J, Justice B J, Cummer S A, Pendry J B, Starr A F, Smith D R 2006 *Science* **314** 977
[9] Xu T, Wang C, Du C, Luo X 2008 *Opt. Express* **16** 4753
[10] Yu N, Genevet P, Kats M A, Aieta F, Tetienne J P, Capasso F, Gaburro Z 2011 *Science* **334** 333
[11] Li Y, Li X, Pu M, Zhao Z, Ma X, Wang Y, Luo X 2016 *Sci. Rep.* **6** 19885
[12] Feng Q, Pu M, Hu C, Luo X 2012 *Opt. Lett.* **37** 2133
[13] Pu M, Zhao Z, Wang Y, Li X, Ma X, Hu C, Wang C, Huang C, Luo X 2015 *Sci. Rep.* **5** 9822
[14] Ebbesen T W, Lezec H J, Ghaemi H F, Thio T, Wolff P A 1998 *Nature* **391** 667
[15] Martin Moreno L, Garcia Vidal F J, Lezec H J, Pellerin K M, Thio T, Pendry J B, Ebbesen T W 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 1114
[16] Genet C, Ebbesen T W 2007 *Nature* **445** 39
[17] Liu H, Lalanne P 2008 *Nature* **452** 728
[18] Lezec H J, Degiron A, Devaux E, Linke R A, Martin Moreno L, Garcia Vidal F J, Ebbesen T W 2002 *Science* **297** 820
[19] Luo X, Pu M, Li X, Ma X 2017 *Light Sci. Appl.* **6** e16276
[20] Dudley A, Lavery M P J, Padgett M J, Forbes A 2013 *Opt. Photon. News* **22** 24
[21] Pu M, Li X, Ma X, Wang Y, Zhao Z, Wang C, Hu C, Gao P, Huang C, Ren H, Li X, Qin F, Gu M, Hong M, Luo X 2015 *Sci. Adv.* **1** e1500396
[22] Li X, Pu M, Zhao Z, Ma X, Jin J, Wang Y, Gao P, Luo X 2016 *Sci. Rep.* **6** 20524
[23] Li X, Pu M, Wang Y, Ma X, Li Y, Gao H, Zhao Z, Gao P, Wang C, Luo X 2016 *Adv. Opt. Mater.* **4** 659
[24] Wang Y, Pu M, Zhang Z, Li X, Ma X, Zhao Z, Luo X 2015 *Sci. Rep.* **5** 17733
[25] Ozbay E 2006 *Science* **311** 189
[26] Atwater H A 2007 *Sci. Am.* **296** 56
[27] Luo X, Ishihara T 2004 *Opt. Express* **12** 3055
[28] Gao H, Shi H, Wang C, Du C, Luo X, Deng Q, Lü Y, Lin X, Yao H 2005 *Opt. Express* **13** 10795
[29] Gramotnev D K, Bozhevolnyi S I 2010 *Nat. Photon.* **4** 83
[30] Yablonovitch E 1993 *J. Opt. Soc. Am. B* **10** 283
[31] Russell P 2003 *Science* **299** 358
[32] Aguirre C I, Reguera E, Stein A 2010 *Adv. Funct. Mater.* **20** 2565
[33] Li Z Y, Meng Z M 2014 *J. Mater. Chem. C* **2** 783
[34] Choi J H, No Y S, Hwang M S, Kwon S Y, Jeong K Y, Kwon S H, Yang J K, Park H G 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 91120
[35] Chen W D, Dong X Y, Chen Y, Zhu Q G, Wang N 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 154207 (in Chinese) [陈卫东, 董昕宇, 陈颖, 朱奇光, 王宁 2014 物理学报 **63** 154207]
[36] Huang X, Lai Y, Hang Z H, Zheng H, Chan C T 2011 *Nat. Mater.* **10** 582
[37] Rechtsman M C, Zeuner J M, Plotnik Y, Lumer Y, Podolsky D, Dreisow F, Nolte S, Segev M, Szameit A 2013 *Nature* **496** 196
[38] Turner M D, Saba M, Zhang Q, Cumming B P, Schroder Turk G E, Gu M 2013 *Nat. Photon.* **7** 801
[39] Raman A P, Anoma M A, Zhu L, Rephaeli E, Fan S 2014 *Nature* **515** 540
[40] Rybin M V, Filonov D S, Samusev K B, Belov P A, Kivshar Y S, Limonov M F 2015 *Nat. Commun.* **6** 10102
[41] Smith D, Padilla W, Vier D, Nemat Nasser S, Schultz S 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 4184
[42] Pendry J B, Schurig D, Smith D R 2006 *Science* **312** 1780

[43] Pendry J B, Aubry A, Smith D R, Maier S A 2012 *Science* **337** 549

[44] Meinzer N, Barnes W L, Hooper I R 2014 *Nat. Photon.* **8** 889

[45] Pu M, Ma X, Li X, Guo Y, Luo X 2017 *J. Mater. Chem. C* **5** 4361

[46] Kamali S M, Arbabi A, Arbabi E, Horie Y, Faraon A 2016 *Nat. Commun.* **7** 11618

[47] Luo X, Pu M, Ma X, Li X 2015 *Int. J. Antennas Propag.* **2015** 204127

[48] Wood R W 1902 *Proc. R. Soc. Lond.* **18** 269

[49] Hutley M C, Maystre D 1976 *Opt. Commun.* **19** 431

[50] Senior T 1981 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **29** 826

[51] Li Y F, Qu S B, Xu Z 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 084103 (in Chinese) [李勇峰, 屈绍波, 徐卓 2014 物理学报 **63** 084103]

[52] Yu N, Capasso F 2014 *Nat. Mater.* **13** 139

[53] Minovich A E, Miroshnichenko A E, Bykov A Y, Murzina T V, Neshev D N, Kivshar Y S 2015 *Laser Photon. Rev.* **9** 195

[54] Sun H 2016 *Sci. China: Phys. Mech. Astron.* **59** 614202

[55] Xu T, Wu Y K, Luo X, Guo L J 2010 *Nat. Commun.* **1** 59

[56] Hong M 2016 *Sci. Bull.* **61** 112

[57] Luo X, Ishihara T 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 4780

[58] Choi M, Lee S H, Kim Y, Kang S B, Shin J, Kwak M H, Kang K Y, Lee Y H, Park N, Min B 2011 *Nature* **470** 369

[59] Lalanne P, Astilean S, Chavel P, Cambril E, Launois H 1998 *Opt. Lett.* **23** 1081

[60] Smith D, Mock J, Starr A, Schurig D 2005 *Phys. Rev. E* **71** 36609

[61] Pu M, Chen P, Wang C, Wang Y, Zhao Z, Hu C, Luo X 2013 *AIP Adv.* **3** 52136

[62] Khorasaninejad M, Chen W T, Devlin R C, Oh J, Zhu A Y, Capasso F 2016 *Science* **352** 1190

[63] Arbabi A, Arbabi E, Kamali S M, Horie Y, Han S, Faraon A 2016 *Nat. Commun.* **7** 13682

[64] Luo X G, Xu T, Du C L, Wang C T 2008 *China Patent* ZL200710177752.5 [2008-4-9] (in Chinese) [罗先刚, 徐挺, 杜春雷, 王长涛 2008 中国专利 ZL200710177752.5 [2008-4-9]]

[65] Zhao Z Y, Pu M B, Wang Y Q, Luo X G 2017 *Opto-Elec. Eng.* **44** 129 (in Chinese) [赵泽宇, 蒲明博, 王彦钦, 罗先刚 2017 光电工程 **44** 129]

[66] Pu M, Chen P, Wang Y, Zhao Z, Huang C, Wang C, Ma X, Luo X 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 131906

[67] Grady N K, Heyes J E, Chowdhury D R, Zeng Y, Reiten M T, Azad A K, Taylor A J, Dalvit D A R, Chen H T 2013 *Science* **340** 1304

[68] Zheng G, Mühlenbernd H, Kenney M, Li G, Zhang S 2015 *Nat. Nanotechnol.* **10** 308

[69] Zhang L, Zhou P, Chen H, Lu H, Xie J, Deng L 2015 *J. Opt.* **17** 105105

[70] Zhang Z, Luo J, Song M, Yu H 2015 *Appl. Phys. Lett.* **107** 241904

[71] Guo Y H, Pu M B, Ma X L, Li X, Luo X G 2017 *Opto-Elec. Eng.* **44** 3 (in Chinese) [郭迎辉, 蒲明博, 马晓亮, 李雄, 罗先刚 2017 光电工程 **44** 3]

[72] Ye D, Wang Z, Xu K, Li H, Huangfu J, Wang Z, Ran L 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 187402

[73] Guo Y, Wang Y, Pu M, Zhao Z, Wu X, Ma X, Wang C, Yan L, Luo X 2015 *Sci. Rep.* **5** 8434

[74] Pu M, Hu C, Wang M, Huang C, Zhao Z, Wang C, Feng Q, Luo X 2011 *Opt. Express* **19** 17413

[75] Rozanov K N 2000 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **48** 1230

[76] Gustafsson M, Sjoberg D 2011 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **59** 2196

[77] Lier E, Werner D H, Scarborough C P, Wu Q, Bossard J A 2011 *Nat. Mater.* **10** 216

[78] Chen P Y, Argyropoulos C, Alù A 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 233001

[79] Wang C, Gao P, Tao X, Zhao Z, Pu M, Chen P, Luo X 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 31911

[80] Liu L, Gao P, Liu K, Kong W, Zhao Z, Pu M, Wang C, Luo X 2017 *Mater. Horiz.* **4** 290

[81] Fang N, Lee H, Sun C, Zhang X 2005 *Science* **308** 534

[82] Maier S A, Kik P G, Atwater H A, Meltzer S, Harel E, Koel B E, Requicha A A G 2003 *Nat. Mater.* **2** 229

[83] Zijlstra P, Chon J W M, Gu M 2009 *Nature* **459** 410

[84] Gao P, Yao N, Wang C, Zhao Z, Luo Y, Wang Y, Gao G, Liu K, Zhao C, Luo X 2015 *Appl. Phys. Lett.* **106** 93110

[85] Wang C T, Zhao Z Y, Gao P, Luo Y F, Luo X G 2016 *Chin. Sci. Bull.* **61** 585 (in Chinese) [王长涛, 赵泽宇, 高平, 罗云飞, 罗先刚 2016 科学通报 **61** 585]

[86] Zhao Z, Luo Y, Zhang W, Wang C, Gao P, Wang Y, Pu M, Yao N, Zhao C, Luo X 2015 *Sci. Rep.* **5** 15320

[87] Garcia Vidal F J, Martin Moreno L, Ebbesen T W, Kuipers L 2010 *Rev. Mod. Phys.* **82** 729

[88] Grzegorczyk T M, Nikku M, Chen X, Wu B I, Kong J A 2005 *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* **53** 1443

[89] Verslegers L, Catrysse P B, Yu Z, White J S, Barnard E S, Brongersma M L, Fan S 2009 *Nano Lett.* **9** 235

[90] Goh X M, Lin L, Roberts A 2010 *Opt. Express* **18** 11683

[91] Tang D, Wang C, Zhao Z, Wang Y, Pu M, Li X, Gao P, Luo X 2015 *Laser Photon. Rev.* **9** 713

[92] Ma X, Pu M, Li X, Huang C, Wang Y, Pan W, Zhao B, Cui J, Wang C, Zhao Z, Luo X 2015 *Sci. Rep.* **5** 10365

[93] Zhao Z, Pu M, Gao H, Jin J, Li X, Ma X, Wang Y, Gao P, Luo X 2015 *Sci. Rep.* **5** 15781

[94] Li X, Ren H, Chen X, Liu J, Li Q, Li C, Xue G, Jia J, Cao L, Sahu A, Hu B, Wang Y, Jin G, Gu M 2015 *Nat. Commun.* **6** 6984

[95] Li X, Chen L, Li Y, Zhang X, Pu M, Zhao Z, Ma X, Wang Y, Hong M, Luo X 2016 *Sci. Adv.* **2** e1601102

[96] Jin J, Pu M, Wang Y, Li X, Ma X, Luo J, Zhao Z, Gao P, Luo X 2017 *Adv. Mater. Technol.* **2** 1600201

[97] Ni X, Wong Z J, Mrejen M, Wang Y, Zhang X 2015 *Science* **349** 1310

[98] Qu Y, Li Q, Gong H, Du K, Bai S, Zhao D, Ye H, Qiu M 2016 *Adv. Opt. Mater.* **4** 480

[99] Pu M, Hu C, Huang C, Wang C, Zhao Z, Wang Y, Luo X 2013 *Opt. Express* **21** 992

[100] Bossard J A, Lin L, Yun S, Liu L, Werner D H, Mayer T S 2014 *ACS Nano* **8** 1517

[101] Pu M, Feng Q, Wang M, Hu C, Huang C, Ma X, Zhao Z, Wang C, Luo X 2012 *Opt. Express* **20** 2246

[102] Li S, Duan Q, Li S, Yin Q, Lu W, Li L, Gu B, Hou B, Wen W 2015 *Appl. Phys. Lett.* **107** 181112

[103] Li W, Guler U, Kinsey N, Naik G V, Boltasseva A, Guan J, Shalaev V M, Kildishev A V 2014 *Adv. Mater.* **26** 7959

[104] Kohiyama A, Shimizu M, Yugami H 2016 *Appl. Phys. Express* **9** 112302

[105] Poddubny A, Iorsh I, Belov P, Kivshar Y 2013 *Nat. Photon.* **7** 948

[106] Hoffman A J, Alekseyev L, Howard S S, Franz K J, Wasserman D, Podolskiy V A, Narimanov E E, Sivco D L, Gmachl C 2007 *Nat. Mater.* **6** 946

[107] Naik G V, Shalaev V M, Boltasseva A 2013 *Adv. Mater.* **25** 3264

[108] Guler U, Boltasseva A, Shalaev V M 2014 *Science* **344** 263

[109] Wang D, Zhang L, Gu Y, Mehmood M Q, Gong Y, Srivastava A, Jian L, Venkatesan T, Qiu C W, Hong M 2015 *Sci. Rep.* **5** 15020

SPECIAL ISSUE—Diffraction limit of electromagnetic waves

Subwavelength electromagnetics below the diffraction limit*

Pu Ming-Bo Wang Chang-Tao Wang Yan-Qin Luo Xian-Gang†

(*State Key Laboratory of Optical Technologies on Nano-Fabrication and Micro-Engineering, Institute of Optics and Electronics, Chinese Academy of Sciences, Chengdu 610209, China*)

(Received 21 April 2017; revised manuscript received 19 May 2017)

Abstract

As a fundamental property of waves, diffraction plays an important role in many physical problems. However, diffraction makes waves in free space unable to be focused into an arbitrarily small space, setting a fundamental limit (the so-called diffraction limit) to applications such as imaging, lithography, optical recording and waveguiding, etc. Although the diffraction effect can be suppressed by increasing the refractive index of the surrounding medium in which the electromagnetic and optical waves propagate, such a technology is restricted by the fact that natural medium has a limited refractive index. In the past decades, surface plasmon polaritons (SPPs) have received special attention, owing to its ability to break through the diffraction limit by shrinking the effective wavelength in the form of collective excitation of free electrons. By combining the short wavelength property of SPPs and subwavelength structure in the two-dimensional space, many exotic optical effects, such as extraordinary light transmission and optical spin Hall effect have been discovered and utilized to realize functionalities that control the electromagnetic characteristics (amplitudes, phases, and polarizations etc.) on demand. Based on SPPs and artificial subwavelength structures, a new discipline called subwavelength electromagnetics emerged in recent years, thus opening a door for the next-generation integrated and miniaturized electromagnetic and optical devices and systems.

In this paper, we review the theories and methods used to break through the diffraction limit by briefly introducing the history from the viewpoint of electromagnetic optics. It is shown that by constructing plasmonic metamaterials and metasurfaces on a subwavelength scale, one can realize the localized phase modulation and broadband dispersion engineering, which could surpass many limits of traditional theory and lay the basis of high-performance electromagnetic and optical functional devices. For instance, by constructing gradient phase on the metasurfaces, the traditional laws of reflection and refraction can be rewritten, while the electromagnetic and geometric shapes could be decoupled, both of which are essential for realizing the planar and conformal lenses and other functional devices. At the end of this paper, we discuss the future development trends of subwavelength electromagnetics. Based on the fact that different concepts, such as plasmonics, metamaterials and photonic crystals, are closely related to each other on a subwavelength scale, we think, the future advancements and even revolutions in subwavelength electromagnetics may rise from the in-depth intersection of physical, chemical and even biological areas. Additionally, we envision that the material genome initiative can be borrowed to promote the information exchange between different engineering and scientific teams and to enable the fast designing and implementing of subwavelength structured materials.

Keywords: diffraction limit, surface plasmon, metamaterials, metasurfaces

PACS: 41.20.Jb, 42.25.–p, 42.70.–a, 73.20.Mf **DOI:** 10.7498/aps.66.144101

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2013CBA01700) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61622508, 61575201).

† Corresponding author. E-mail: lxg@ioe.ac.cn

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

激光超衍射加工机理与研究进展

张心正　夏峰　许京军

The mechanisms and research progress of laser fabrication technologies beyond diffraction limit

Zhang Xin-Zheng　Xia Feng　Xu Jing-Jun

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 144207 (2017)　DOI: 10.7498/aps.66.144207
在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.144207
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I14

您可能感兴趣的其他文章
Articles you may be interested in

环形光子晶体光纤中涡旋光的传输特性研究
Propagation properties of vortex beams in a ring photonic crystal fiber
物理学报.2017, 66(1): 014205　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.014205

新型全固态准晶体结构大模场光纤特性研究
Investigation of a novel all-solid large-mode-area photonic quasi-crystal fiber
物理学报.2014, 63(3): 034206　http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.034206

高效率掺 Tm^{3+} 双包层光纤及光纤激光器的研制
Development of high efficiency Tm^{3+}-doped fiber and Tm^{3+}-doped fiber laser
物理学报.2014, 63(1): 014209　http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.014209

大口径多层介质膜光栅衍射效率测量及其在制作工艺中的应用
Diffraction efficiency measurement of large aperture multilayer dielectric grating and its application in the fabrication process
物理学报.2012, 61(17): 174203　http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.174203

双包层掺 Bi 光纤的制备及其光谱特性研究
Preparation and spectral characteristics of Bi-doped double cladding fiber
物理学报.2012, 61(8): 084215　http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.084215

专题: 电磁波衍射极限

激光超衍射加工机理与研究进展*

张心正[1)] 夏峰[2)] 许京军[1)†]

1) (南开大学物理科学学院, 泰达应用物理研究院, 弱光非线性光子学教育部重点实验室, 天津 300457)

2) (青岛大学物理科学学院, 青岛 266071)

(2017 年 4 月 28 日收到; 2017 年 5 月 31 日收到修改稿)

随着纳米科技和微纳电子器件的发展, 制造业对微纳加工技术的要求越来越高. 激光加工技术是一种绿色先进制造技术, 具有巨大的发展潜力, 已广泛应用于不同的制造领域. 为实现低成本、高效率、大面积尤其是高精度的激光微纳加工制造, 研究和发展激光超衍射加工技术具有十分重要的科学意义和应用价值. 本文首先阐述了基于非线性效应的远场激光直写超衍射加工技术的原理与国内外发展状况, 包括激光烧蚀加工技术、激光诱导改性加工技术和多光子光聚合加工技术等; 然后介绍了几种基于倏逝波的近场激光超衍射加工技术, 包括扫描近场光刻技术、表面等离子激元光刻技术等新型超衍射激光近场光刻技术的机理与研究进展; 最后对激光超衍射加工中存在的问题及未来发展方向进行了讨论.

关键词: 超衍射极限, 激光微纳加工, 激光直写, 激光近场加工

PACS: 42.40.Lx, 42.81.Bm, 87.64.mt **DOI:** 10.7498/aps.66.144207

1 引 言

激光是20世纪以来人类继原子能、计算机、半导体之外的又一伟大发明. 由于其高单色性、低发散角、高能量密度和可调输出光谱等特性, 已被广泛应用在医学、制造业、武器系统、测量和通讯等领域. 激光加工是激光最早和最成熟的应用之一, 国家“十三五”科技创新规划中明确将开发先进激光制造应用技术和装备. 经过五十多年的发展, 激光加工技术作为一种绿色先进制造技术, 不仅包含了激光切割、焊接、表面处理、打孔、增材等宏观制造技术, 也涵盖了激光烧蚀、改性、聚合和微纳结构制备等微观制造技术. 而随着微电子和半导体工业的发展, 微电子器件、微纳光学元件、微机电系统、光子晶体和光通讯器件等微纳元件的制备对激光微纳加工的分辨率提出了越来越高的要求.

然而, 由于衍射极限的存在, 常规激光加工最小尺寸大约在半个波长左右. 为实现更高分辨率的加工, 传统方法可缩短激光波长或提高物镜数值孔径. 目前, 数值孔径大小已达到瓶颈. 短波长的激光光源, 如深紫外的248 nm和193 nm, 甚至极紫外的13.5 nm开始得到研究和利用. 但是, 这些短波长激光光源的产生需要复杂的光学系统、新型光学元件和材料以及解决其他的技术挑战, 使其成本急剧增长, 只适用于大规模集成电路的制造[1]. 因此, 为满足低成本、高效率、大面积尤其是高精度激光微纳加工制造的需求, 研究和发展激光超衍射加工技术具有十分重要的科学意义和应用价值. 目前, 激光超衍射加工技术发展迅速, 本文分别介绍传统的基于非线性效应的激光直写烧蚀、改性和聚合的远场超衍射加工技术和新型的基于倏逝波的扫描近场光刻技术、超分辨近场结构加工技术和表面等离子激元光刻技术的机理和研究进展, 并对其

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2013CB328702)、国家自然科学基金 (批准号: 11674182)、天津市自然科学基金 (批准号: 17JCYBJC16700)、111 计划 (批准号: B07013)、教育部长江学者和创新团队发展计划 (批准号: IRT_13R29) 和山西大学极端光学协同创新中心资助的课题.

† 通信作者. E-mail: jjxu@nankai.edu.cn

© 2017 中国物理学会 Chinese Physical Society

应用和发展进行了讨论.

2 基于非线性效应的远场激光直写超衍射加工技术

激光直写(laser direct writing, LDW)技术是利用激光束对物质直接曝光, 实现刻蚀、改性或聚合等目的的一种加工技术, 加工方式可以是连续扫描或者逐点扫描. 激光直写的发展已有30多年历史. 1983年, 瑞士RCA实验室Gale和Knop[2]首次在二维直角坐标系下利用激光直写技术在光刻胶上制作了精密透镜阵列. 1984年, 德国Roth等[3]使用激光直写方式来激发金属-有机物化学气相沉积, 制作出了GaAs平顶二极管. 1989年, 海森伯大学设计了一种二维激光直写系统, 扫描精度和加工分辨率都优于1 μm[4]. 1990年, 美国Goltsos和Liu[5]设计了在极坐标系下的激光直写系统并用其来制备二元光学元件. 同年, 日本大阪大学Haruna等[6]用激光直写技术在光刻胶上制作了闪耀型菲涅耳波带片. 商业激光直写设备在1987年就已经被推出, 目前全世界75%的掩模加工都是用激光直写系统完成的[7]. 但是, 随着纳米技术的发展, 人们对激光直写加工分辨率的要求提到了新的高度, 基于激光与材料的非线性效应的远场激光直写超衍射加工成为打破衍射极限、提高激光直写分辨率的新途径.

2.1 超衍射激光直写烧蚀加工

激光与被照射材料之间的作用是一个非常复杂的过程, 它们的相互作用会导致多样的效果, 如光化学反应、热效应、烧蚀效应、熔化、变相和氧化等. 如图1以可氧化金属薄膜为例, 由于激光光束呈高斯分布, 被照射点区域的温度分布也近似呈高斯分布, 中心区域的温度比边缘处温度高很多, 这样就可能造成不同区域处材料不一样的反应. 通过选择合适的激光功率来匹配材料的温度阈值, 能够有效地提高激光直写技术的分辨率[8].

国家纳米科学中心刘前研究组对激光与40 nm厚的钛金属薄膜相互作用过程的研究可有效说明这一问题. 激光照射到钛薄膜后引起高斯型温度场分布, 在加热过程中, 有两个温度阈值: 一个是烧蚀温度阈值, 另外一个是氧化温度阈值. 激光直写系统采用200 ns的脉冲激光, 当功率小于2 mW时, 钛薄膜没有任何反应, 因为温度未达到任何阈值; 当功率为2—10 mW时, 钛薄膜区域的温度比氧化温度阈值高, 比烧蚀温度阈值低, 形成了一个突起结构, 如图2(a)所示; 当功率大于10 mW时, 中心点的温度远大于烧蚀阈值, 导致其气化, 而边缘处由于温度达不到阈值而得以保留, 因此造成的烧蚀孔尺寸远小于光斑尺寸, 如图2(d)所示, 从而实现了激光超衍射加工. 因此, 基于激光与物质的非线性作用可实现超衍射激光直写烧蚀[9].

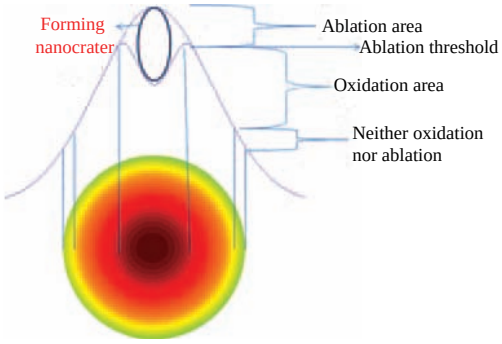


图1 金属薄膜样品在高斯型激光光斑作用下的温度场示意图[8]

Fig. 1. The schematic image of the temperature profile of a metal film under the illumination of a laser spot with a Gaussian profile[8].

日本科学家Kurihara等[10]利用这种技术实现了大面积(直径为12 cm)、高速度(6 m/s)纳米结构阵列的制备, 加工分辨率优于100 nm. 中国科学院上海光学精密机械研究所孙明营研究组[11]研究了皮秒激光烧蚀切割K9玻璃过程中玻璃后表面的烧蚀损伤现象, 分析了激光能量密度、扫描次数和扫描速度等因素对后表面损伤的影响. 南开大学张心正研究组[12]利用红外飞秒激光实现了对6H-SiC材料的烧蚀, 发现分辨率随着激光功率的减小而提高, 随扫描速度的增大而提高, 且能突破光学衍射极限, 最终获得125 nm的加工线宽, 并加工了线宽240 nm、周期1.0 μm的线阵列, 如图3所示.

飞秒激光三维微纳加工中加工的纵向分辨率与横向分辨率对于材料加工质量起着同样重要的作用. 这里, 纵向分辨率是指沿着脉冲传播方向的加工分辨率, 横向分辨率是指垂直脉冲传播方向的加工分辨率. 中国科学院上海光学精密机械研究所程亚研究组[13]提出利用飞秒激光时空聚焦原理实现纵向加工分辨率的提高. 通过对激光脉冲的不同

频率成分引入不同的空间啁啾, 然后再利用物镜进行聚焦. 在物镜焦点处, 不同频率的光在空间上重合, 达到傅里叶变换极限的最短脉冲宽度, 峰值光强也最高. 而在偏离焦点的位置, 不同频率的光在空间上分开, 从而展宽了脉冲宽度, 峰值光强会迅速下降. 因此, 基于飞秒激光时空聚焦技术可有效提高飞秒激光纵向加工分辨率. 该小组利用时空聚焦技术在石英玻璃内部直写并辅以化学腐蚀制备了截面纵横比可调的微流通道[13]. 该技术不用考虑直写的方向, 可以在透明材料内部加工出截面为圆形的任意复杂的三维微结构, 在微流体、微光子学、三维光流集成等研究领域中有巨大的应用前景. 利用飞秒激光对人体组织进行精密切割手术是目前飞秒激光微加工最为重要的商业应用之一, 该研究组利用时空聚焦技术有效提高了飞秒激光对生物组织的烧蚀精度[14].

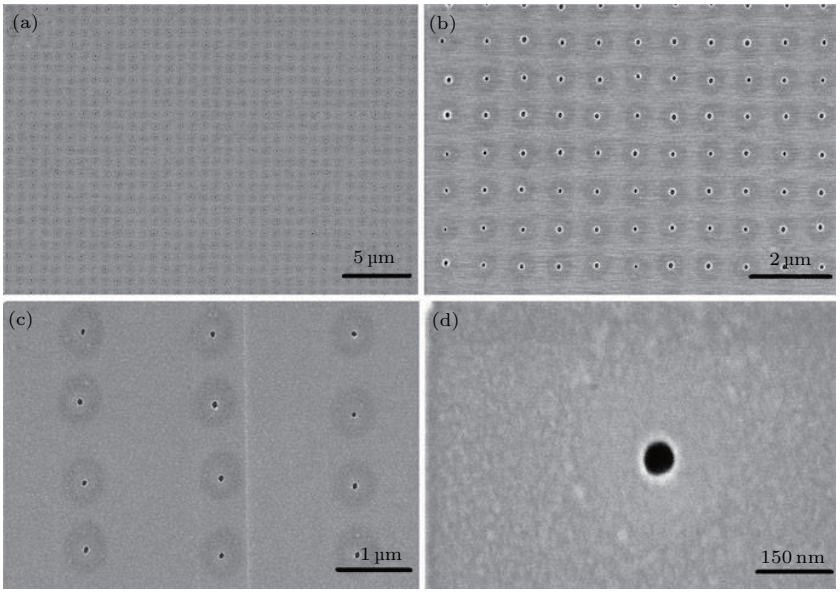


图 2 激光直写 40 nm 厚钛薄膜纳米孔阵列不同放大倍率的扫描电镜 (SEM) 图像, 纳米孔直径大约为 40 nm[9]

Fig. 2. SEM images at different magnifications of hole array fabricated by LDW on a 40 nm thick Ti film, each hole with a diameter of 40 nm[9].

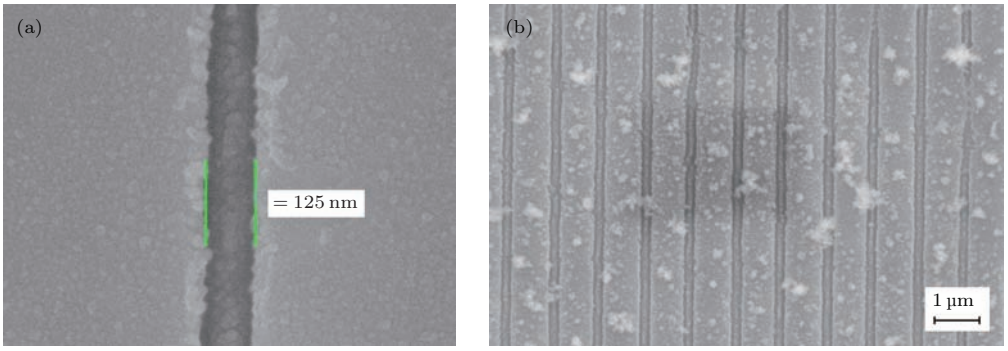


图 3 (a) 飞秒激光超衍射极限加工 6H-SiC 纳米线 SEM 图片; (b) 周期 1 μm, 线宽 240 nm 的 6H-SiC 线阵列 SEM 图片[12]

Fig. 3. (a) SEM picture of the super diffraction limit resolution fabrication of 6H-SiC nano-line by femtosecond laser; (b) SEM picture of line array on 6H-SiC with period of 1 μm, width of 240 nm[12].

2.2 激光直写金属-透明金属氧化物灰度掩模超衍射加工

激光直写改性是指激光诱导材料性质改变的加工过程. 超衍射激光直写改性加工种类繁多, 这里主要对激光直写金属-透明金属氧化物 (metal-transparent metallic oxide, MTMO) 灰度掩模超衍射加工进行介绍. MTMO 灰度掩模是基于 In, Sn, Zn 等金属与其相应氧化物在可见光波段相反的透过率特性, 利用激光直写氧化金属薄膜的方法制备

而成. 通过调节激光功率来改变辐照区域金属薄膜的氧化程度, 氧化程度决定该区域的灰度值, 从而通过激光直写逐点扫描加工的方式实现了MTMO灰度掩模图案的加工[15−19]. 图4给出了刘前研究组利用532 nm激光直写20 nm厚Sn超细晶金属薄膜加工而成的狼头灰度图案, 其加工分辨率可达200 nm, 实现了超衍射加工[9,16].



图4 基于20 nm锡薄膜的狼灰度图案, 分辨率为200 nm[16]

Fig. 4. Grayscale pattern of the wolf written on the 20 nm Sn films with a resolution of 200 nm[16].

南开大学张心正研究组对激光直写MTMO灰度掩模的加工机理进行了深入研究[20,21]. 研究表明, 激光氧化MTMO灰度掩模过程不仅有热作用, 还有激光诱导Cabrera-Mott氧化作用. 数值模拟功率为10 mW的激光脉冲诱导氧化In-MTMO灰度掩模1 μs后的氧化程度示意图见图5, 图中不同颜色代表不同温度. 从图中可以看到, 激光氧化区域半径大约为100 nm. 他们给出了激光诱导氧化的速度方程:

$$\mathrm{d}L/\mathrm{d}t = av\exp\left(-\frac{W}{kT}\right)\exp\left(\frac{qaV'}{2kTL}\right), \quad (1)$$

其中, L是指氧化层厚度, a是晶格常数, v是离子跃迁频率, W是跃迁势垒, k是玻尔兹曼常数, T为温度, q是离子电荷量, V'是激光诱导莫特电势. 可以看出, 激光诱导氧化速率是莫特电势和温度的指数函数, 而高斯型激光光强分布决定着莫特电势和薄膜温度场的分布. 因此, 氧化速率沿径向向外下降得十分剧烈, 从而限制激光氧化区域的大小, 实现了超衍射加工[20,21].

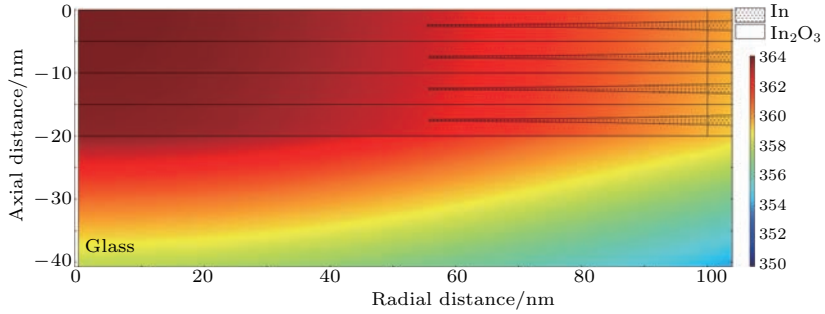


图5 10.0 mW激光诱导氧化In-MTMO灰度掩模1 μs后的温度场和氧化区域分布图[21]

Fig. 5. Temperature field and oxide distribution in the sample at the laser power of 10.0 mW after 1 μs pulsed laser-induced oxidation[21].

2.3 超衍射激光直写光聚合加工技术

基于飞秒激光直写的多光子聚合加工技术具有突破光学衍射极限实现三维纳米尺度任意复杂结构加工的特点, 其中研究最广泛的是双光子聚合效应. 1931年, Goppert-Mayer理论预言当介质受到强光激发时, 基态电子有可能同时吸收两个光子而跃迁至激发态, 即发生双光子吸收现象. 1961年, Kaiser和Garrett[22]利用694.3 nm的红宝石激光器的强激光作为激发光源, 观测到了GaF_2:Eu^{2+}晶体中存在425 nm的蓝色荧光, 首次在实验上实现了双光子吸收现象. 1997年, 日本科学家Kawata研究组首次利用双光子聚合效应实现了三维螺旋结构的制作[23], 并于2001年利用波长为780 nm的近红外飞秒激光器诱导光刻胶发生双光子聚合反应, 雕刻出了一个纳米牛[24], 其激光加工分辨率达到了120 nm, 突破了衍射极限. 之后, Sun等利用这种超衍射飞秒激光双光子聚合技术制备出了微链条[25]和光子晶体等[26]微纳米器件, 从而引起了人们对双光子加工技术的极大关注. 目前, 超衍射激光直写双光子聚合加工技术主要包括简并/非简并双光子吸收聚合加工技术和基于受激辐射损耗(stimulated emission depletion, STED)原理的光聚合加工技术.

2.3.1 简并双光子吸收聚合加工技术

飞秒激光直写双光子聚合是光刻胶等有机物质对飞秒激光发生双光子吸收效应从而使得其进行光聚合形成聚合物, 其理论基础是多光子吸收理论. 目前, 大部分双光子吸收聚合加工都基于简并双光子聚合. 图6阐述了单光子吸收与简并双光子吸收过程的区别.

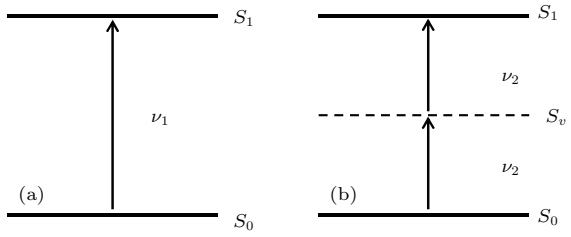


图6 单光子吸收与简并双光子吸收过程

Fig. 6. The processes of single-photon absorption and two-photon absorption.

当激发光光子能量$h\nu_1$等于物质基态S_0与激发态S_1之间的能量差时, 物质吸收该光子, 小于此能级差的光子无法吸收. 而当光子能量$h\nu_2$为原来的一半时, 在光子简并度极高的情况下, 基态的电子可以同时吸收两个光子跃迁到激发态S_1, 如图6 (b)所示. 此时, 可以认为原本的能级间存在虚能级S_v.

双光子吸收是三阶非线性过程[27], 根据非线性光学的理论, 双光子吸收概率与光强的关系为:

$$P = \sigma^{(2)} \frac{I^2}{h\nu}, \tag{2}$$

其中, P为双光子吸收概率, $\sigma^{(2)}$为双光子吸收截面, 其对于同一材料一般为定值, I为光强. 因此, 材料的双光子吸收概率与光强的平方成正比, 发生双光子过程的作用区域不仅取决于材料的光学非线性系数的大小, 还取决于光与物质发生双光子过程的能量密度的高低, 即引发双光子聚合反应的激光阈值. 根据材料的非线性光学特性, 通过控制所使用的激光强度, 可以使达到双光子聚合阈值的范围远小于通过透镜聚焦而得到的光斑直径, 所获得的双光子聚合区域可以远小于光的衍射极限. 由于在进行双光子聚合时所采用的激光仅与材料产生双光子过程, 因此激光光束可以直达材料内部, 在材料内部特定位置引发光聚合反应, 从而可以通过对激光焦点的控制进行三维激光直写, 实现三维图形的微纳加工.

2005年, Kawata研究组[28]通过在高分子树脂中添加阻聚剂获得100 nm的聚合线条, 该线宽为所使用波长的1/8. 2009年, 吉林大学孙洪波研究组利用飞秒激光双光子聚合效应制备了具有100%填充率的表面粗糙度在10 nm左右的双曲面透镜阵列[29]和衍射效率高达37.6%的SU8衍射光学元件[30]. 2010年, 他们通过飞秒激光双光子聚合诱导加工透明均匀且稳定的由修饰了四氧化三铁的甲基丙烯酸酯和光阻剂组成的低铁流体树脂, 设计并制作得到了可远程磁力控制的微弹簧[31]. 2012年, 他们利用蛋白质飞秒激光直写技术, 制备出了多种蛋白质基微纳器件, 比如多种蛋白质水凝胶微透镜阵列[32]和蛋白质基谐衍射微透镜等[33]. 中国科学院理化研究所段宣明研究组通过使用高效率双光子引发剂、优化激光加工参数等手段分别在2007年和2008年将双光子加工分辨率提升到80和50 nm[34,35], 并于2011年在SCR500负胶材料中利用简并双光子加工技术实现了最小特征尺寸35 nm的连续聚合线条[36], 如图7所示. 2013年, 澳大利亚 Gu等[37]基于一种新型的双光子吸收树脂实现了最小尺寸9 nm和分辨率高达52 nm的双光子超衍射三维加工. 南开大学张心正研究组研究了飞秒多光子光聚合微纳加工中存在的多脉冲累积效应和前后脉冲加工的相互影响, 数值模拟研究了加工过程中作用微区材料体系的光学参数变化对最终加工体元轮廓的影响, 发现倏逝波对亚波长结构的外形有很大的影响[38], 这为深入理解多光子光聚合超衍射加工的微观机理提供了一个新的视点, 并有助于进一步准确控制光聚合纳米加工形貌, 同时为选取新型的光聚合纳微加工材料体系提供了参考. 双光子聚合加工技术已经真正成为一种激光超衍射纳米加工技术. 华中科技大学熊伟课题组在飞秒激光双光子聚合加工碳纳米管(CNTs)材料组装和三维功能器件制造方面取得进展, 他们通过高精密飞秒激光直写技术并结合自主研发的富含碳纳米管制备的非线性光刻胶, 实现了CNTs在任意三维空间的高定向、高精度的分子组装和三维微电子器件的制造[39]. 北京大学现代光学研究所李炎研究组对拉盖尔-高斯模式叠加形成的双螺旋光束进行了优化, 利用双光子聚合技术单次曝光就能制备出无黏连且螺旋圈数高的双螺旋微结构, 从而加工出了周期为4 μm的双螺旋微结构阵列[40]. 飞秒激光直写双光子聚合加工技术已被应用于多种微尺

度光学元件、微机械系统的制备中[41].

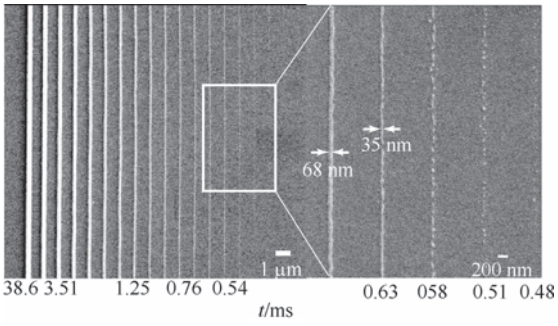


图7 双光子聚合加工技术实现了最小特征尺寸35 nm的连续聚合线条[36]

Fig. 7. 35 nm-fabrication size of continuous line by two-photon polymerization[36].

2.3.2 非简并双光子吸收聚合加工技术

非简并双光子吸收效应是指材料基态电子同时吸收两个不同频率的光子跃迁到激发态的过程. 如图8所示, 材料同时吸收频率分别为ν_1和ν_2的两个光子, 电子从基态S_0经虚拟中间态S_v跃迁至激发态S_1. 通过非简并双光子激发过程的阈值效应来实现空间受限的化光化学反应, 最终可以实现超越光学衍射极限的纳米尺度加工.

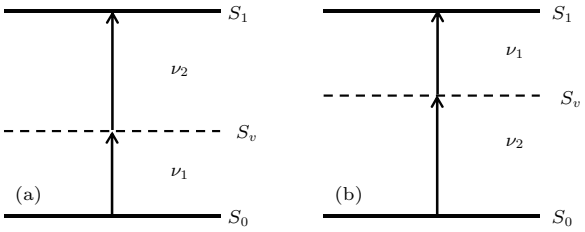


图8 非简并双光子吸收

Fig. 8. Non-degenerate two-photon absorption.

南开大学张心正研究组以硫化锌为模型样品, 利用抽运探测系统研究了400 nm抽运、800 nm探测下的非简并双光子吸收过程, 发展了非简并双光子吸收系数的测量方法[42]. 中国科学院理化研究所段宣明研究组研究发现非简并双光子吸收截面总是大于简并双光子吸收截面, 即双光子吸收中间体共振增强效应, 在相同阈值的条件下, 非简并双光子吸收比简并双光子吸收具有更小的作用范围. 该研究组建立了非简并双光子超衍射纳米加工系统, 在SOI基板上进行加工实验, 固定400 nm激光功率, 通过改变800 nm激光功率, 获得了最小特征尺寸优于30 nm的聚合物纳米线结构.

2.3.3 基于STED原理的光聚合加工技术

STED显微技术是德国科学家Stefan Hell教授于1994年基于量子光学中的受激辐射耗竭理论提出的新型超衍射极限技术[43]. STED显微技术的核心理念就是利用具备一定空间结构的消激发光束选择性地消除荧光激发, 从而实现压缩荧光点扩散函数达到突破衍射极限的目的, 其原理图如图9所示. 初始时刻荧光分子基本上分布在基态上, 首先采用一束超短脉冲激光将荧光分子激发至激发态上, 然后用一束具有特定波长和圆环形焦斑形状的STED激光诱导荧光态粒子, 使荧光态上粒子受激辐射损耗跃迁至暗态, 可抑制环形焦斑荧光发射, 把发射荧光区限制在小于衍射极限区域内, 从而突破衍射极限的限制. 该理论工作起初并没有引起科研工作者的重视, 在提出后沉寂了数年之久. 直到2000年, Hell第一次基于STED原理实现了超衍射显微成像[44], 获得了纳米级的荧光图像, STED技术才引起广泛关注并逐渐在超分辨成像领域得到推广. Stefan Hell教授凭借此项显微技术获得了2014年诺贝尔化学奖.

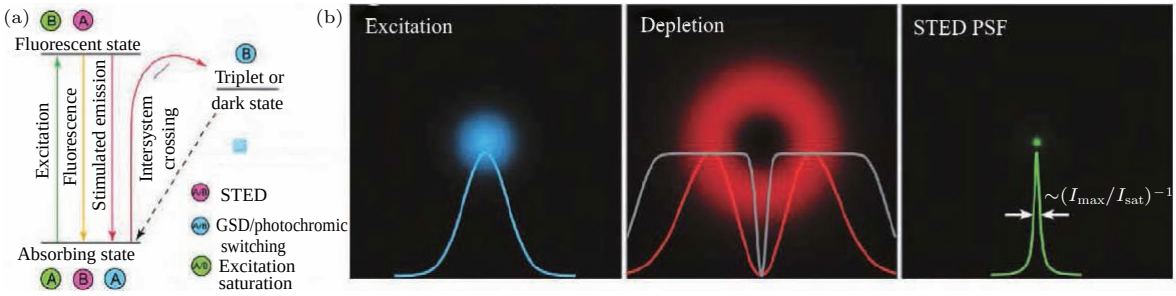


图9 受激辐射损耗光刻机理示意图[45]

Fig. 9. The mechanism of stimulated emission depletion lithography[45].

2009年, 三个独立研究小组首次分别将STED原理用于纳米加工[46−48]. 美国马里兰大学Fourkas研究组[46]在利用800 nm的脉冲激光多光子吸收效应诱导聚合物光刻胶聚合的同时, 利用800 nm连续光的单光子吸收效应去阻止光聚合作用, 从而得到了最小尺寸为40 nm的聚合物. 美国科罗拉多大学的McLeod等[47]则利用473 nm和364 nm的激光实现了分辨率低于100 nm的光聚合物. 美国麻省理工学院的Menon研究组[48]利用了一种光致变色分子薄膜, 这种薄膜分别对325 nm和633 nm透明, 但当同时照射这两种波长的光时, 除了非常小的区域能透过325 nm的光外, 薄膜不再透明, 制作的结构尺寸可达36 nm. 至此, 基于STED原理的激光直写纳米加工技术得以发展. 2010年, 德国科学家Fischer等[49]基于STED激光直写加工技术在一种新型光刻胶上利用810 nm的激发光和532 nm的损耗光实现了65 nm的线宽加工. 2013年, 德国Wollhofen等[50]利用780 nm的激光直写光束和532 nm的STED光束实现了加工分辨率为120 nm, 尺寸最小为54 nm的结构, 如图10所示.

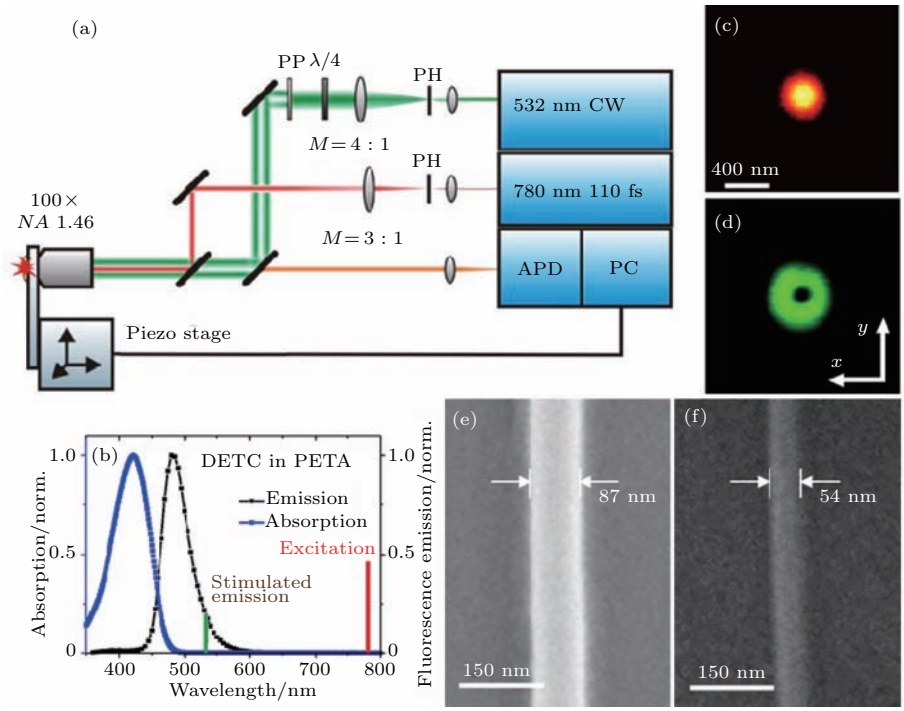


图10 基于STED原理实现最小加工尺寸为54 nm线条[50]

Fig. 10. The 54 nm fabrication size of line based on the STED[50].

3 基于倏逝波的近场激光超衍射加工技术

自1958年美国德州仪器(Texas Instruments)试制了世界上首个集成电路板[51], 半个多世纪以来集成电路按着摩尔定律以一种不可思议的速度快速发展, 而光刻技术决定着芯片的制程, 是集成电路发展的关键因素. 目前, 为了获得更小的加工尺寸, 科学家们已将目光从深紫外(约157 nm)纳米光刻技术投向极紫外(约13 nm)纳米光刻技术[52]. 然而, 这些深紫外、极紫外激光光源面临着诸如高成本、低输出和光强不稳定等问题. 在近场光学中, 光束不受衍射极限的限制, 因此可以实现高分辨的图形刻写. 近场和远场指的是围绕在发射天线或散射体等物体周围电磁场的存在区域, 近场区域一般只有一个波长半径的范围. 近场区域包含辐射场和非辐射场成分, 非辐射场是被限制在物体表面并且在远处迅速衰减的倏逝场成分, 由于其存在着非常强的电感和电容效应, 电场强度与磁场强度的大小没有确定的比例关系. 发展扫描近场光刻技术、超分辨近场结构加工技术和表面等离激元光刻技术等基于倏逝波的近场激光超衍射加工技术成为人们追求的目标.

3.1 扫描近场光刻技术

扫描近场光刻技术(scanning near field photolithography, SNP)基于激光与锥形光纤探针的耦合作用, 光纤尖端非常小, 大约为50 nm, 与样品表面的距离大约为10—20 nm, 如图11所示. 在光纤尖端处产生倏逝场, 由于倏逝场的波矢远大于同一频率光子的波矢, 因此就有可能实现超衍射加工. 尖端与样品的超近距离也保证了有足够能量的倏逝波与样品表面发生作用. Krausch等[54]基于扫描近场显微镜利用裸露的玻璃光纤尖端实现了横向分辨率高达100 nm的加工. Sun和Leggett[55,56]利用SNP技术选择性地氧化一种在金衬底上的强束缚自组装纳米光刻胶, 经过化学腐蚀后, 得到了20—25 nm分辨率的表面结构, 实现了超衍射极限加工. Grigoropoulos和Huang[57]利用金属探针的近场扫描光学显微镜激发表面等离激元, 在25 nm厚的金膜上实现了14 nm宽的网格加工. Wang等[58]利用领结型纳米结构激发局域表面等离激元, 在光刻胶上实现了直径大约为50 nm的纳米孔(如图12所示), 最近的实验结果将这种光刻技术的分辨率提高至22 nm[59].

近场光存储技术是光存储研究的一个重要发展方向, 研究者提出了固态浸没透镜(solid immersion lens, SIL)技术. 当光束通过SIL后, 光束被限制在亚波长尺度, 其传播距离大约在1个波长范围内, 如图13左图所示. 固态浸没透镜被用来提高数值孔径达到提高分辨率的目的, 光束通过固态浸没透镜形成近场光, 在记录层上实现图形的刻写. Terris等[60,61]利用SIL技术实现了125 nm大小记录点的刻写. 这种方式最大的限制是工作距离很短(在40 nm左右), 对工业制造提出了很大的挑战.

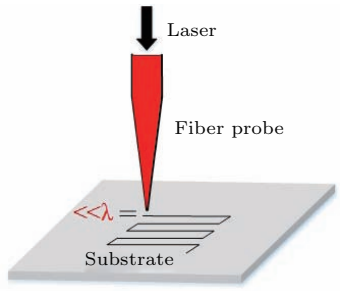


图11 扫描近场光刻技术示意图[53]

Fig. 11. The schematic of scanning near field photolithography[53].

超分辨近场结构(super resolution near-field structure, Super-RENS)技术是人们提出的另一种近场光存储技术, 其长工作距离使得近场存储技术更加接近实用. 1998年, 日本的Tominaga等[62]通过引进介质保护层/非线性材料掩膜层/介质保护层的三明治膜层Super-RENS技术在实现超分辨的同时, 将工作距离提高到了毫米量级, 如图13右图所示. 在Super-RENS中, 当一定功率的激光作用在掩膜层上, 材料的特性会发生变化, 通过控制激光功率可以使发生变化的区域限制在很小的范围, 利用通过这一区域的光束实现近场光, 达到超分辨. Super-RENS技术在纳米光刻领域也可实现超分辨加工, 分辨率一般为30—100 nm[63,64].

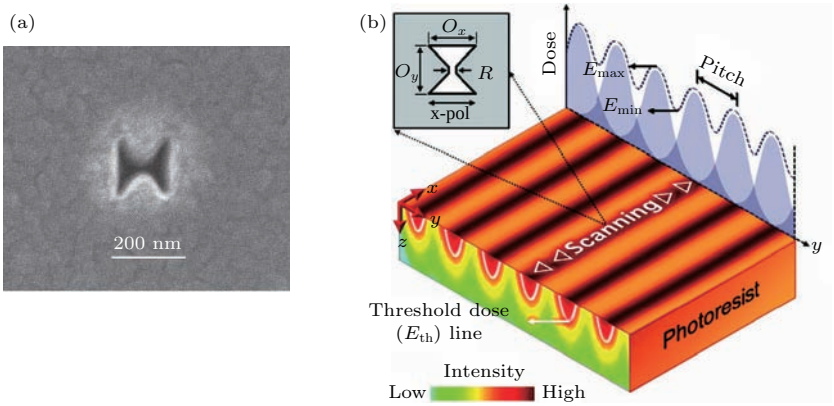


图12 (a) 领结型纳米孔结构, (b) 基于领结型纳米结构激发局域表面等离激元的扫描近场光刻示意图[58]

Fig. 12. (a) Structure of nano-bowtie aperture; (b) scanning near field photolithography based on the SPPs excited by nano-bowtie aperture[58].

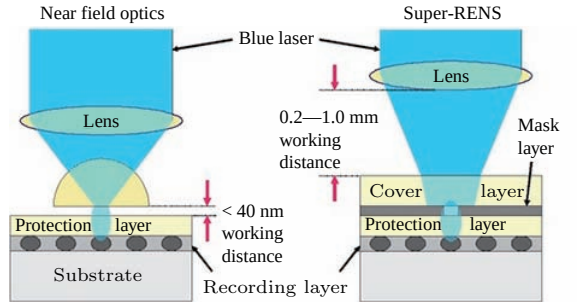


图 13 固态浸没透镜技术和近场超分辨结构技术 [62]

Fig. 13. Solid immersion lens technology and super resolution near-field structure technology [62].

3.2 表面等离激元干涉光刻技术

表面等离激元(surface plasmon polaritons, SPPs)是在金属-介质界面处自由电子集体振荡与电磁波耦合的元激发 [65], 它只存在于该界面的近场区域并沿界面传播, 随着离开金属表面距离的增大而迅速衰减. SPPs的波长比同一频率介质中传播的光的波长要小很多, 并且其能量聚集在金属表面亚波长区域内, 从而使得SPPs在突破衍射极限的高分辨率光刻领域具有巨大的应用潜力 [66].

首先将SPPs应用于光刻的技术是表面等离激元干涉光刻技术. 2004年, 日本理化研究所Luo和Ishihara [67] 搭建了由石英、铝金属光栅、光刻胶和硅基底四部分组成的光刻系统, 利用436 nm的激光在周期300 nm的铝金属光栅上激发出表面等离激元, 在铝光栅和光刻胶界面处产生的SPPs在光刻胶内干涉形成了大约100 nm周期的干涉条纹, 如图14所示.

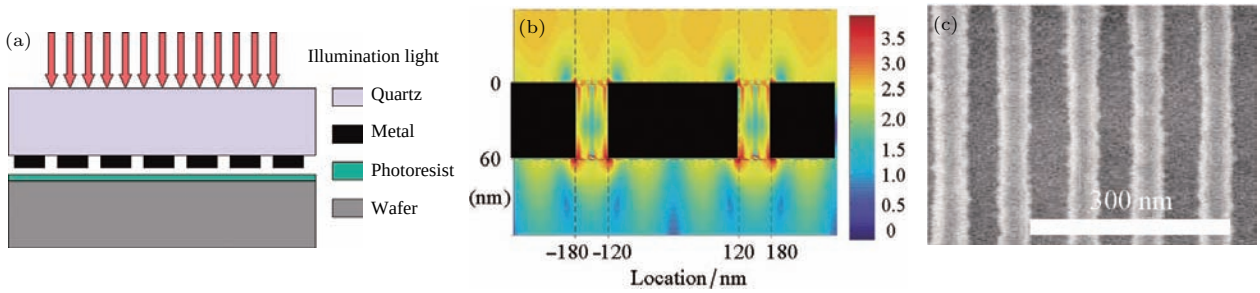


图 14 表面等离激元干涉光刻示意图 [67]

Fig. 14. The schematic of surface plasmon polaritons interference lithography [67].

美国加州大学伯克利分校张翔研究组利用双层甚至多层的光栅来激发多个SPPs并进行相互干涉, 从而可以实现任意干涉图案的超衍射干涉光刻 [68,69]. 2009年, 中国科学院光电技术研究所罗先刚研究组 [70] 提出通过激发金属-绝缘体-金属(MIM)结构奇模式来有效减小SPPs干涉周期长度; 2014年, Dong等 [71] 数值计算预测基于MIM奇模式的SPPs光刻可以达到15 nm的分辨率; 2016年, Chen等 [72] 基于此技术实验上实现了61 nm的线间距. 最近, 罗先刚研究组 [66] 更是将这一记录提高到了45 nm. 基于金属/介质多层结构的双曲超材料的体等离激元(BPPs)干涉光刻技术也被用来制备深亚波长分辨率的干涉图案, 罗先刚研究组 [73] 利用SiO_2/Al双曲超材料对BPPs进行压缩从而产生大面积、均匀、分辨率高达22.5 nm (约$\lambda/16$)的任意BPPs干涉图案. 近年来, 清华大学黄翊东研究组 [74,75] 将双光子吸收效应与SPPs干涉光刻结合提出了一种双SPPs吸收干涉(two-SPP-absorption interference, TSPPA)光刻技术来提高曝光图案的质量, 基于800 nm飞秒激光激发两侧480 nm周期光栅产生的SPPs干涉光刻线宽可达120 nm.

1965年, Birnbaum教授 [76] 利用红宝石脉冲激光照射GaAs表面首次发现了周期性条纹的现象. 后来, 人们发现激光诱导周期性结构(laser-induced periodic surface structures, LIPSS)是一种普遍现象, 在金属、半导体和电介质等材料中均可以制备出来. 2003年, Borowiec和Haugen [77] 在InP半导体材料上成功制备出高频表面波纹结构. 2005年, Jia等 [78] 在ZnSe表面实现了纳米级光栅结构的制备; 同年, 美国罗切斯特大学Vorobyev和Guo [79] 在Au表面获得了表面微纳结构, 并发现其显著的光吸收能力. 2009年, Qi等 [80] 首次在不锈钢表面上制备出排列整齐的亚波长周期性结构. LIPSS加

工方法最初由于其可重复性和可控性较差, 一直以来没有得到有效利用. 直到2013年, Oktem等 [81] 利用反馈机理实现了周期性结构的调控, 制备了具有低成本、均匀一致的结构, 如图15所示. 同年, Bonse等 [82] 通过优化参数在金属钛表面加工出周期小于100 nm的波纹结构. 2016年, He等 [83] 在SU-8光刻胶上利用飞秒激光制备出排列整齐的纳米线和纳米沟槽, 其宽度分别达到了40和60 nm.

LIPSS的形成过程是一个复杂的非线性、非平衡过程. 2009年, 中山大学和中国科学院上海光学精密机械研究所共同对其成因进行了系统的理论和实验研究, 在国际上首次提出了关于超快激光诱导近亚波长条纹的完整物理模型, 如图16所示 [84]. 他们认为条纹的形式是由入射的飞秒激光与激发出的SPPs相互干涉, 致使能量在空间中周期性分布造成的. 在波纹形成初始阶段, SPPs与激光相互干涉起主导作用, 随着浅层波纹的产生, 其促进了SPPs与激光的进一步耦合. 北京理工大学的姜澜研究组 [85] 也对飞秒激光诱导表面波纹结构进行了系统深入的理论和实验研究, 该课题组将激光的波特性引入到等离子体模型中, 结合等离子体模型和激光的波粒二象性提出了一种新的量子模型, 并研究了飞秒激光脉冲序列加工熔融石英的过程. 南开大学吴强研究组 [86] 实验与理论分析了飞秒激光诱导硅表面微纳近亚波长周期性条纹的形成机理, 确认了飞秒激光与激发的表面等离激元相互干涉是条纹形成的主要原因, 并提出了表面熔化作用会阻碍条纹的产生. 不同的背景气体氛围中, 可实现硅的不同掺杂改性.

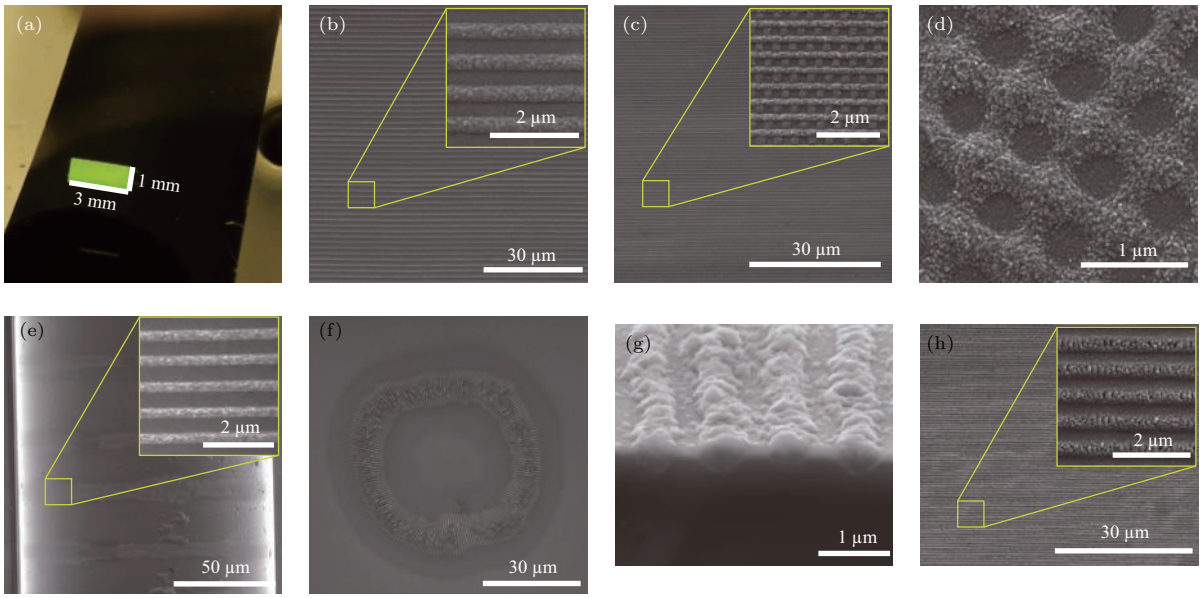


图15 基于LIPSS制作的均匀纳米结构 [81]

Fig. 15. The uniform nanostructures based on the LIPSS [81].

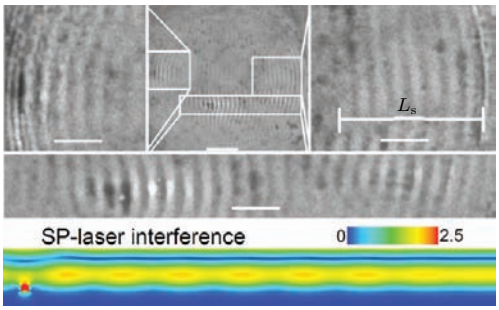


图16 超快激光诱导近亚波长条纹形成的物理模型 [85]

Fig. 16. The physical model of sub-wavelength interference fringes by ultrafast laser [85].

2003年, Shimotsuma等 [87] 利用飞秒激光在玻璃内部诱导出与激光偏振方向垂直且具有类似于单轴晶体的双折射特性的自组装亚波长周期条纹结构——纳米光栅, 成为飞秒激光与物质相互作用研究领域的一大热点. 纳米光栅为发展工艺简单的先进微纳器件的制备技术和集成技术以及超高容量的多维光存储技术等开辟了新方向. 纳米光栅的形成归因于多个物理过程间的相互作用, 比如入射光与散射光之间的干涉、多重散射、局域场增强效应和多光子电离驱动的积累过程. 浙江大学邱建荣

研究组[88]对飞秒激光诱导玻璃内部自组织纳米光栅的研究现状、形成机理和应用探索进行了系统的介绍, 并针对纳米光栅形成的新机理进行了研究. 他们在实验中观察到石英玻璃内部纳米光栅在三维空间上的可控旋转, 这种三维旋转取决于脉冲强度前倾与激光偏振方向之间的夹角. 随后他们通过改变激光扫描方向, 对纳米光栅在横截面上的旋转进行调制, 从而实现了飞秒激光直写纳米光栅技术从二维平面到三维空间的跨越[89]. 中国科学院上海光学精密机械研究所程亚研究组[90]理论与实验研究了飞秒激光在多孔玻璃内部诱导纳米光栅结构的机理, 他们认为经过整形的多脉冲飞秒激光在多孔玻璃内部形成半径40 nm左右的等离子体区域, 在等离子体区域与未被加工区域的界面处会激发出表面等离子波驻波, 从而在界面处导致了周期性纳米空隙即纳米光栅的产生.

3.3 超透镜成像光刻技术

超透镜成像光刻技术可分为金属超透镜成像光刻技术和双曲超透镜成像光刻技术. 金属超透镜的概念是由英国帝国理工学院Pendry教授[91]于2000年提出, 他指出这种超透镜可以对倏逝波进行放大传播, 使得成像能够突破衍射极限, 从而可以用来提高光刻的分辨率. 2005年, 加州大学伯克利分校张翔研究组[92]第一次实现了金属超透镜超衍射光刻实验. 他们设计的金属超透镜光刻系统如图17所示, 分为石英基底、铬掩模板、40 nm的聚甲基丙烯酸甲酯(PMMA)层、35 nm的银超透镜和光刻胶. 曝光光波长365 nm, 实现了“NANO”字母图案的超衍射光刻, 平均线宽89 nm. 当掩模板为120 nm周期的光栅时, 该光刻系统实现了半节距为60 nm的光栅图案.

随后, 人们对这种金属超透镜成像光刻的分辨率和性能展开了进一步的研究. Chaturvedi等[93]利用纳米压印和Ge引晶技术制作了一层6 nm的分隔层和一层15 nm光滑的银超透镜, 实现了30 nm半线宽分辨率的加工. Liu等[93]指出平滑界面对超透镜性能起着关键作用, 并利用15 nm平滑银超透镜在45 nm厚的光刻胶上实现了50 nm半线宽的分辨率和更高的纵横比.

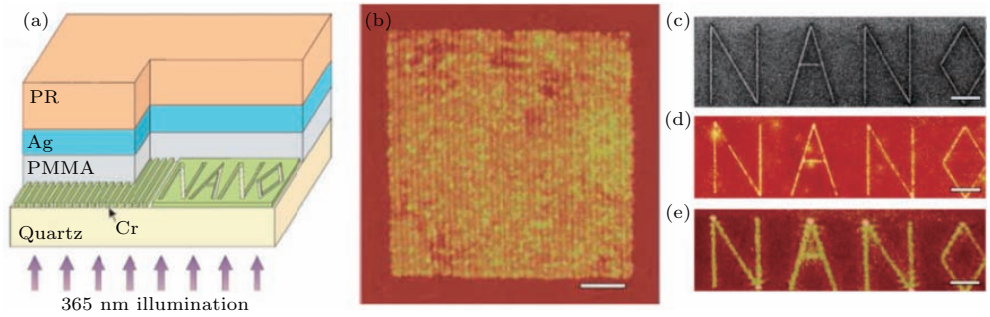


图17 金属银超透镜成像光刻示意图[93]

Fig. 17. The schematic of Ag superlens plasmonic imaging lithography[93].

普林斯顿大学的Jacob等[95]于2006年提出用金属和电介质交替堆砌而成的层状结构来实现倏逝波成分的远场区域恢复成像, 该类层状结构具有双曲色散特性, 被称为双曲超透镜(hyperlens). 双曲超透镜中每层薄膜的厚度都非常小, 以致可以在相邻薄膜之间进行较强耦合[66]. 双曲超透镜独特的各向异性色散关系, 可以不依靠共振关系就能提供高波矢分量, 从而可实现超分辨成像. 张翔研究组实验上第一次在紫外波段实现了双曲超透镜成像[96], 其透镜结构由弯曲的16层Ag和Al_2O_3交替堆积在半圆柱石英模子上而成, 每层厚度为35 nm, 实现了$\lambda/2.92$的成像分辨率[97]. 圆柱型双曲超透镜只能在一个方向上实现成像, 而球型双曲超透镜可以在可见光波段提高二维成像分辨率. 张翔研究组[98]设计的球双曲超透镜由18层Ag和Ti_3O_5在半球型石英模子上交替堆积而成, 每层厚度为30 nm, 高折射率的Ti_3O_5被用来与可见光波段Ag的高介电常数进行匹配, 波长410 nm照射下其成像分辨最小尺寸可达160 nm. 2008年, 张翔研究组[99]利用双曲超透镜实现了在405 nm照射下50 nm周期结构的超分辨光刻. 他们在随后的理论模拟中指出在375 nm的工作波长下, 280 nm的周期结构可利用双曲超透镜实现20 nm周期的光刻结构[100]. 2009年, 武汉大学汪国平研究组[101]提

出棱锥形双曲超透镜, 其结构由银膜和电解质膜交替堆积而成, 支持三维远场成像. 双曲超透镜的最新研究主要集中在非线性双曲超透镜[102]和可调谐双曲超透镜[103]. 前者的介质层由高克尔非线性材料构成, 能够实现更长的传播距离和更广的操控带宽. 后者主要是金属层由单层石墨烯代替, 通过外加偏压调控石墨烯化学势来对材料的响应进行动态调节.

近年来, 人们从理论与实验提出超透镜与等离激元反射镜的结合可以提高成像光刻的分辨率, 但是这种结构只能放大光刻胶一侧的倏逝波. 等离激元共振腔则可以使SPPs波在腔内多次反射从而放大光刻胶内的倏逝波, 进而在整个光刻胶内提高加工分辨率. 2013年, Xu等[104]指出基于等离激元微腔光刻技术可以在10 nm厚光刻胶中实现了15 nm的加工分辨率. 最近, 罗先刚研究组[105]实验上利用等离激元微腔光刻技术实现的最小加工分辨率为22 nm.

4 结 论

随着纳米科技的发展, 为满足低成本、高效率、大面积, 尤其是高精度的激光微纳加工制造, 激光超衍射加工技术至关重要. 本文综述了两大类激光超衍射加工技术的原理和研究进展, 包括基于非线性效应的远场激光直写超衍射加工技术和基于倏逝波的近场激光超衍射加工技术.

目前, 可实现激光超衍射加工的材料种类依然有限, 如何扩大激光超衍射加工适用的材料范围将是未来重点研究的方向之一. 比如, 激光增材制造技术是一种利用激光逐层累加制作物体的制造技术, 可实现钛合金、铁基合金等高难加工金属的制造, 可用于航空航天领域复杂高性能构件的加工制造. “激光制造与增材制造”为2016年科技部发布的国家重点研发计划重点专项, “多材料结构逐点/逐域控制的增材制造”被列为2017年国家自然科学基金委重大项目“高性能构件材料——结构一体化设计与制造”的研究内容之一. 激光超衍射微纳加工技术将可能为增材制造实现前所未有的精密制造效果, 显著提高增材制造的加工质量, 从而引起新的研究和发展热点. 此外, 石墨烯等二维材料是目前备受瞩目的国际前沿和热点材料, 石墨烯微纳结构加工是石墨烯应用于场效应管、传感器、光调制器等器件的关键所在. 传统加工手段如光刻、FIB等技术步骤繁琐、成本高昂, 而飞秒激光直写微纳加工石墨烯的方法具有无需模板、步骤简单、结构灵活可控等优点. 但是, 目前飞秒激光直写加工石墨烯结构的分辨率仍未突破衍射极限, 如何利用激光加工技术实现石墨烯加工线宽突破衍射加工, 甚至到100 nm以下将对于提高石墨烯在光电集成中的实际应用具有重要的意义.

近年来, 激光超衍射加工分辨率不断取得突破: 飞秒激光简并双光子聚合加工分辨率达到35 nm, 基于STED原理的超衍射激光直写加工技术加工的结构尺寸最小为36 nm扫描近场光刻技术、超分辨结构加工技术和表面等离激元光刻技术等激光超衍射光刻技术加工分辨率已可与深紫外曝光相媲美. 研究人员正在不断发展新型激光超衍射加工技术, 并集成研发功能强大的先进纳米制造系统, 这必将进一步促进激光超衍射加工先进制造技术在工业生产、通讯、医疗卫生和军事等方面的实际应用.

参考文献

[1] Wagner C, Harned N 2010 *Nat. Photon.* **4** 24

[2] Gale M T, Knop K 1983 *Proc. SPIE* **0398** 347

[3] Roth W, Schumacher H, Beneking H 1983 *Electron. Lett.* **19** 142

[4] Rensch C, Hell S, Schickfus M V, Hunklinger S 1989 *Appl. Opt.* **28** 3754

[5] Goltsos W C, Liu S A 1990 *Proc. SPIE* **1211** 137

[6] Haruna M, Takahashi M, Wakahayashi K, Nishihara H 1990 *Appl. Opt.* **29** 5120

[7] Cui Z 2005 *Micro-Nanofabrication Technologies and Applications* (Beijing: Higher Education Press) p51

[8] Wang Y, Guo C, Cao S, Miao J, Ren T, Liu Q 2010 *J. Nanosci. Nanotechnol.* **10** 7134

[9] Liu Q, Duan X, Peng C 2014 *Novel Optical Technologies for Nanofabrication* (Berlin Heidelberg: Springer-Verlag) p8

[10] Kurihara K, Nakano T, Ikeya H, Ujiie M, Tominaga J 2008 *Microelectron. Eng.* **85** 1197

[11] Hao Y F, Sun M Y, Shi S, Pan X, Zhu J Q 2017 *Chin. J. Lasers* **44** 0102015 (in Chinese) [郝艳飞, 孙明营, 时双, 潘雪, 朱健强 2017 中国激光 **44** 0102015]

[12] Yun Z Q, Wei R S, Li W, Luo W W, Wu Q, Xu X G, Zhang X Z 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 068101 (in Chinese) [云志强, 魏汝省, 李威, 罗维维, 吴强, 徐现刚, 张心正 2013 物理学报 **62** 068101]

[13] He F, Xu H, Cheng Y, Ni J, Xiong H, Xu Z, Sugioka K, Midorikawa K 2010 *Opt. Lett.* **35** 1106

[14] Block E, Greco M, Vitek D, Masihzadeh O, Ammar D A, Kahook M Y, Mandava N, Durfee C, Squier J 2013 *Biomed. Opt. Exp.* **4** 831

[15] Guo C F, Cao S, Jiang P, Fang Y, Zhang J, Fan Y, Wang Y, Xu W, Zhao Z, Liu Q 2009 *Opt. Express* **17** 19981

[16] Guo C F, Zhang J, Miao J, Fan Y, Liu Q 2010 *Opt. Express* **18** 2621

[17] Guo C F, Zhang Z, Cao S, Liu Q 2009 *Opt. Lett.* **34** 2820

[18] Wang M, Wang C, Tian Y, Zhang J, Guo C, Zhang X, Liu Q 2014 *Appl. Surf. Sci.* **296** 209

[19] Wang Y, Miao J, Tian Y, Guo C, Zhang J, Ren T, Liu Q 2011 *Opt. Express* **19** 17390

[20] Xia F, Zhang X Z, Wang M, Yi S, Liu Q, Xu J J 2014 *Opt. Express* **22** 16889

[21] Xia F, Zhang X Z, Wang M, Liu Q, Xu J J 2015 *Opt. Express* **23** 29193

[22] Kaiser W, Garrett C G B 1961 *Phys. Rev. Lett.* **7** 229

[23] Maruo S, Nakamura O, Kawata S 1997 *Opt. Lett.* **22** 132

[24] Kawata S, Sun H B, Tanaka T, Takada K 2001 *Nature* **412** 697

[25] Sun H B, Kawakami T, Xu Y, Ye J Y, Matuso S, Misawa H, Miwa M, Kaneko R 2000 *Opt. Lett.* **25** 1110

[26] Sun H B, Suwa T, Takada K, Zaccaria R P, Kim M S, Lee K S, Kawata S 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 3708

[27] Boyd R W 2003 *Nonlinear Optics-Handbook of Laser Technology and Applications* (Philadelphia: Taylor & Francis) p161

[28] Takada K, Sun H B, Kawata S 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 071122

[29] Wu D, Chen Q D, Niu L G, Jiao J, Xia H, Song J F, Sun H B 2009 *IEEE Photon. Tech. L.* **21** 1535

[30] Wu D, Niu L G, Chen Q D, Wang R, Sun H B 2008 *Opt. Lett.* **33** 2913

[31] Xia H, Wang J, Tian Y, Chen Q D, Du X B, Zhang Y L, He Y, Sun H B 2010 *Adv. Mater.* **22** 3204

[32] Sun Y L, Dong W F, Yang R Z, Meng X, Zhang L, Chen Q D, Sun H B 2012 *Angew. Chem. Int. Ed.* **51** 1558

[33] Sun Y L, Dong W F, Niu L G, Jiang T, Liu D X, Zhang L, Wang Y S, Chen Q D, Kim D P, Sun H B 2014 *Light: Sci. Appl.* **3** e129

[34] Xing J F, Dong X Z, Chen W Q, Duan X M, Takeyasu N, Tanaka T, Kawata S 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 131106

[35] Dong X Z, Zhao Z S, Duan X M 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 091113

[36] Song Y, Dong X Z, Zhao Z S, Duan X M 2011 *High Power Laser Part Beams* **23** 1780 (in Chinese) [宋旸, 董贤子, 赵震声, 段宣明 2011 强激光与粒子束 **23** 1780]

[37] Gan Z, Cao Y, Evans R A, Gu M 2013 *Nat. Commun.* **4** 2061

[38] Li W, Cao T X, Zhai Z, Yu X, Zhang X Z, Xu J J 2013 *Nanotechnology* **24** 215301

[39] Long J, Xiong W, Liu Y, Jiang L J, Zhou Y S, Li D W, Jiang L, Lu Y F 2017 *Chin. J. Lasers* **44** 0102003 (in Chinese) [龙婧, 熊伟, 刘莹, 蒋立佳, 周云申, 李大卫, 姜澜, 陆永枫 2017 中国激光 **44** 0102003]

[40] Liu L P, Zhan S J, Yang H, Gong Q H, Li Y 2017 *Chin. J. Lasers* **44** 0102006 (in Chinese) [刘力谱, 张世杰, 杨宏, 龚旗煌, 李焱 2017 中国激光 **44** 0102006]

[41] Sugioka K 2017 *Nanophotonics* **6** 393

[42] Wu Y E, Ren M X, Wang Z H, Li W, Wu Q, Yi S, Zhang X Z, Xu J J 2014 *AIP Adv.* **4** 057107

[43] Hell S W, Wichmann J 1994 *Opt. Lett.* **19** 780

[44] Klar T A, Jakobs S, Dyba M, Egner A, Hell S W 2000 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **97** 8206

[45] Hell S W, Dyba M, Jakobs S 2004 *Curr. Opin. Neurobiol.* **14** 599

[46] Li L, Gattass R R, Gershgoren E, Hwang H, Fourkas J T 2009 *Science* **324** 910

[47] Scott T F, Kowalski B A, Sullivan A C, Bowman C N, Mcleod R R 2009 *Science* **324** 913

[48] Andrew T L, Tsai H Y, Menon R 2009 *Science* **324** 917

[49] Fischer J, von Freymann G, Wegener M 2010 *Adv. Mater.* **22** 3578

[50] Wollhofen R, Katzmann J, Hrelescu C, Jacak J, Klar T A 2013 *Opt. Express* **21** 10831

[51] Kilby J S 1976 *IEEE Trans. Electron Devices* **23** 648

[52] Chong T C, Hong M H, Shi L P 2010 *Laser Photon. Rev.* **4** 123

[53] Zhou W, Bridges D, Li R, Bai S, Ma Y, Hou T, Hu A 2016 *Sci. Lett. J.* **5** 228

[54] Krausch G, Wegscheider S, Kirsch A, Bielefeldt H, Meiners J, Mlynek J 1995 *Opt. Commun.* **119** 283

[55] Sun S, Leggett G J 2002 *Nano Lett.* **2** 1223

[56] Sun S, Leggett G J 2004 *Nano Lett.* **4** 1381

[57] Grigoropoulos C P, Hwang D J 2007 *MRS bull.* **32** 16

[58] Wang L, Uppuluri S M, Jin E X, Xu X 2006 *Nano Lett.* **6** 361

[59] Kim S, Jung H, Kim Y, Jang J, Hahn J W 2012 *Adv. Mater.* **24** OP337

[60] Terris B, Mamin H, Rugar D, Studenmund W, Kino G 1994 *Appl. Phys. Lett.* **65** 388

[61] Terris B, Mamin H, Rugar D 1996 *Appl. Phys. Lett.* **68** 141

[62] Tominaga J, Nakano T, Atoda N 1988 *Appl. Phys. Lett.* **73** 2078

[63] Kuwahara M, Nakano T, Tominaga J, Lee M B, Atoda N 1999 *Jpn. J. Appl. Phys.* **38** L1079

[64] Kuwahara M, Nakano T, Mihalcea C, Shima T, Kim J H, Tominaga J, Atoda N 2001 *Microelectron. Eng.* **57–58** 883

[65] Barnes W L, Dereux A, Ebbesen T W 2003 *Nature* **424** 824

[66] Wang C, Zhang W, Zhao Z, Wang Y, Gao P, Luo Y, Luo X 2016 *Micromachines* **7** 118

[67] Luo X, Ishihara T 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 4780

[68] Liu Z W, Wei Q H, Zhang X 2005 *Nano Lett.* **5** 957

[69] Liu Z, Wang Y, Yao J, Lee H, Srituravanich W, Zhang X 2009 *Nano Lett.* **9** 462

[70] Xu T, Fang L, Ma J, Zeng B, Liu Y, Cui J, Wang C, Feng Q, Luo X 2009 *Appl. Phys. B: Lasers O.* **97** 175

[71] Dong J, Liu J, Kang G, Xie J, Wang Y 2014 *Sci. Rep.* **4** 5618

[72] Chen X, Yang F, Zhang C, Zhou J, Guo L J 2016 *ACS Nano* **10** 4039

[73] Liang G, Wang C, Zhao Z, Wang Y, Yao N, Gao P, Luo Y, Gao G, Zhao Q, Luo X 2015 *Adv. Opt. Mater.* **3** 1248
[74] Li Y, Liu F, Xiao L, Cui K, Feng X, Zhang W, Huang Y 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 063113
[75] Li Y, Liu F, Ye Y, Meng W, Cui K, Feng X, Zhang W, Huang Y 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 081115
[76] Birnbaum M 1965 *J. Appl. Phys.* **36** 3688
[77] Borowiec A, Haugen H 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 4462
[78] Jia T, Chen H, Huang M, Zhao F, Qiu J, Li R, Xu Z, He X, Zhang J, Kuroda H 2005 *Phys. Rev. B* **72** 125429
[79] Vorobyev A, Guo C 2005 *Phys. Rev. B* **72** 195422
[80] Qi L T, Nishii K, Namba Y 2009 *Opt. Lett.* **34** 1846
[81] Oktem B, Pavlov I, Ilday S, Kalaycioglu H, Rybak A, Yavas S, Erdogan M, Ilday F O 2013 *Nat. Photon.* **7** 897
[82] Bonse J, Höhm S, Rosenfeld A, Krüger J 2013 *Appl. Phys. A* **110** 547
[83] He X, Datta A, Nam W, Traverso L M, Xu X 2016 *Sci. Rep.* **6** 35035
[84] Huang M, Zhao F, Cheng Y, Xu N, Xu Z 2009 *ACS Nano* **3** 4062
[85] Yuan Y, Jiang L, Li X, Wang C, Lu Y 2012 *J. Appl. Phys.* **112** 103103
[86] Yang M, Wu Q, Chen Z, Zhang B, Tang B, Yao J, Drevensek Olenik I, Xu J J 2014 *Opt. Lett.* **39** 343
[87] Shimotsuma Y, Kazansky P G, Qiu J, Hirao K 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 247405
[88] Wang Y C, Zhang F T, Qiu J R 2017 *Chin. J. Lasers* **44** 0102001 (in Chinese) [王珏晨, 张芳腾, 邱建荣 2017 中国激光 **44** 0102001]
[89] Dai Y, Wu G, Lin X, Ma G, Qiu J R 2012 *Opt. Express* **20** 18072
[90] Liao Y, Ni J, Qiao L, Huang M, Bellouard Y, Sugioka K, Cheng Y 2015 *Optica* **2** 329
[91] Pendry J B 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 3966
[92] Fang N, Lee H, Sun C, Zhang X 2005 *Science* **308** 534
[93] Chaturvedi P, Wu W, Logeeswaran V, Yu Z, Islam M S, Wang S Y, Williams R S, Fang N X 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 043102
[94] Liu H, Wang B, Ke L, Deng J, Chum C C, Teo S L, Shen L, Maier S A, Teng J 2012 *Nano Lett.* **12** 1549
[95] Jacob Z, Alekseyev L V, Narimanov E 2006 *Opt. Express* **14** 8247
[96] Liu Z, Lee H, Xiong Y, Sun C, Zhang X 2007 *Science* **315** 1686
[97] Lee H, Liu Z, Xiong Y, Sun C, Zhang X 2007 *Opt. Express* **15** 15886
[98] Rho J, Ye Z, Xiong Y, Yin X, Liu Z, Choi H, Bartal G, Zhang X 2010 *Nat. Commun.* **1** 143
[99] Xiong Y, Liu Z, Zhang X 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 111116
[100] Xiong Y, Liu Z, Zhang X 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 203108
[101] Chen L, Wang G P 2009 *Opt. Express* **17** 3903
[102] Aronovich D, Bartal G 2013 *Opt. Lett.* **38** 413
[103] Zhang T, Chen L, Li X 2013 *Opt. Express* **21** 20888
[104] Xu F, Chen G, Wang C, Cao B, Lou Y 2013 *Opt. Lett.* **38** 3819
[105] Gao P, Yao N, Wang C, Zhao Z, Luo Y, Wang Y, Gao G, Liu K, Zhao C, Luo X 2015 *Appl. Phys. Lett.* **106** 093110

SPECIAL ISSUE—Diffraction limit of electromagnetic waves

The mechanisms and research progress of laser fabrication technologies beyond diffraction limit*

Zhang Xin-Zheng[1)] Xia Feng[2)] Xu Jing-Jun[1)†]

1) (*The MOE Key Laboratory of Weak-Light Nonlinear Photonics, TEDA Institute of Applied Physics, School of Physics, Nankai University, Tianjin 300457, China*)

2) (*College of Physics Science, Qingdao University, Qingdao 266071, China*)

(Received 28 April 2017; revised manuscript received 31 May 2017)

Abstract

Laser is recognized as one of the top technological achievements of 20th century and plays an important role in many fields, such as medicine, industry, entertainment and so on. Laser processing technology is one of the earliest and most developed applications of laser. With the rapid development of nanoscience and nanotechnology and micro/nano electronic devices, the micro/nanofabrication technologies become increasingly demanding in manufacturing industries. In order to realize low-cost, large-area and especially high-precision micro-nanofabrication, it has great scientific significance and application value to study and develop the laser fabrication technologies that can break the diffraction limit. In this article, the super resolution laser fabrication technologies are classified into two groups, far-filed laser direct writing technologies and near-field laser fabrication technologies. Firstly, the mechanisms and progress of several far-field laser direct writing technologies beyond the diffraction limit are summarized, which are attributed to the laser-matter nonlinear interaction. The super-diffraction laser ablation was achieved for the temperature-dependent reaction of materials with the Gaussian distribution laser, and the super-diffraction laser-induced oxidation in Metal-Transparent Metallic Oxide grayscale photomasks was realized by the laser-induced Cabrera-Mott oxidation process. Besides, the multi-photon polymerization techniques including degenerate/non-degenerate two-photon polymerization are introduced and the resolution beyond the diffraction limit was achieved based on the third-order nonlinear optical process. Moreover, the latest stimulated emission depletion technique used in the laser super-resolution fabrication is also introduced. Secondly, the mechanisms and recent advances of novel super diffraction near-field laser fabrication technologies based on the evanescent waves or surface plasmon polaritons are recommended. Scanning near-field lithography used a near-field scanning optical microscope coupled with a laser to create nanoscale structures with a resolution beyond 100 nm. Besides, near-field optical lithography beyond the diffraction limit could also be achieved through super resolution near-field structures, such as a bow-tie nanostructure. The interference by the surface plasmon polariton waves could lead to the fabrication of super diffraction interference fringe structures with a period smaller than 100 nm. Moreover, a femtosecond laser beam could also excite and interfere with surface plasmon polaritons to form laser-induced periodic surface structures. Furthermore, the super-resolution superlens and hyperlens imaging lithography are introduced. Evanescent waves could be amplified by using the superlens of metal film to improve the optical lithography resolution beyond the

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2013CB328702), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11674182), the Natural Science Foundation of Tianjin, China (Grant No. 17JCYBJC16700), the 111 Project, China (Grant No. B07013), the PCSIRT (Grant No. IRT_13R29), and the Collaborative Innovation Center of Extreme Optics of Shanxi University, China.

† Corresponding author. E-mail: jjxu@nankai.edu.cn

diffraction resolution. The unique anisotropic dispersion of hyperlens could provide the high wave vector component without the resonance relationship, which could also realize the super resolution imaging. Finally, prospective research and development tend of super diffraction laser fabrication technologies are presented. It is necessary to expand the range of materials which can be fabricated by laser beyond the diffraction limit, especially 2D materials.

Keywords: beyond diffraction limit, laser micro/nano-fabrication, laser direct writing, laser near-field fabrication

PACS: 42.40.Lx, 42.81.Bm, 87.64.mt **DOI:** 10.7498/aps.66.144207

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

基于线性成像系统的光学超分辨显微术回顾

胡睿璇　潘冰洋　杨玉龙　张伟华

Brief retrospect of super-resolution optical microscopy techniques

Hu Rui-Xuan　Pan Bing-Yang　Yang Yu-Long　Zhang Wei-Hua

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 144209 (2017)　DOI: 10.7498/aps.66.144209
在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.144209
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I14

您可能感兴趣的其他文章
Articles you may be interested in

嵌入式三色光变器
Design of embedded tri-color shift device
物理学报.2017, 66(12): 124201　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.124201

透射光学系统像平面一阶散射光照度分布规律研究
The research on the illumination distribution law of the first-order scattered light in the focal plane of transmission optical system
物理学报.2017, 66(4): 044201　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.044201

基于全相位谱分析的剪切光束成像目标重构
Sheared-beam imaging target reconstruction based on all-phase spectrum analysis
物理学报.2017, 66(2): 024203　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.024203

部分相干条件下的弱散射样品 ptychography iterative engine 成像
Ptychographic iterative engine with partially coherent illumination for weakly scattering samples
物理学报.2016, 65(18): 184202　http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.184202

专题: 电磁波衍射极限

基于线性成像系统的光学超分辨显微术回顾*

胡睿璇 潘冰洋 杨玉龙 张伟华†

(南京大学现代工程与应用科学学院, 南京大学固体微结构物理国家重点实验室, 南京大学人工微结构科学与技术协同创新中心, 南京 210093)

(2017年3月29日收到; 2017年6月21日收到修改稿)

随着纳米科学技术的发展, 如何打破光学衍射极限, 将光学显微术的分辨本领推进到纳米尺度, 已经成为光学领域的一个核心议题. 在此背景下, 过去的三十年间, 发展了多种超分辨光学显微技术, 并在生物、材料、化学领域取得了一系列令人瞩目的应用. 本文以衍射理论为线索, 回顾各类基于线性成像系统的超分辨光学显微技术; 对以固浸物镜、结构光照明、扫描近场光学显微术、完美透镜以及超振荡透镜为代表的超分辨光学显微技术进行综述, 讨论各种技术的原理, 对其特点、应用与局限加以总结, 并对该领域的未来发展予以展望.

关键词: 衍射极限, 空间频率, 超分辨

PACS: 42.25.Fx, 07.60.Pb, 07.79.Fc **DOI:** 10.7498/aps.66.144209

1 引 言

光学显微术是人类科技史上最重要的发明之一, 它将人类视觉的分辨本领从亚毫米, 提高到亚微米, 极大地拓展了人类在微米尺度上的认知, 直接引发了生命科学的革命. 虽然早在十七世纪, Leeuwenheok 显微镜的分辨率已经达到了微米尺度[1], 但直到1873年德国物理学家 Abbe 提出光学衍射极限, 人类才真正从理论上认识光学显微镜的分辨能力并摆脱经验性的镜片制备[2]. 而今天, 随着科技的发展, 光学显微镜已不仅在于简单的"看到", 而发展为一门集分辨能力、微区物理与化学分析能力以及超灵敏(甚至单分子)检测灵敏度的平台. 而光学显微术也因此成为一门涵盖多个领域的综合性学科, 涉及到光的衍射理论[3]、光-物质相互作用理论[4,5]以及微信号探测技术等重要方向[6,7]. 特别是光-物质相互作用, 以及单分子探测在过去的二十年内已经逐渐成长为两个独立的学科, 亦有大量的文献综述, 故此本文将讨论的范围限制在光学显微术空间分辨能力这一光学显微术的核心议题.

光学显微镜的分辨极限是 Abbe 所建立的光衍射理论的直接推论, 它指出由于光的波动性, 光学显微镜的分辨率不可以好于 $\lambda/2$. 后由 Rayleigh 给出理想点光源像的半高宽, 即我们今日天所熟知的瑞利判据[3]. 为绕过这一物理极限, 在过去的一个多世纪中提出了多种超分辨显微术. 其中近场光学显微术是最早提出的技术, 1928年, Synge[4]提出可以利用亚波长探测器在样品的近场区域采集光信号并逐点扫描成像的方式实现超分辨成像, 其中核心的思想是将含有样品细节信息的非辐射成分, 即隐失场的信息提取出来. 由于实验上的困难, 近场扫描成像的想法直到20世纪70年代由 Ash 和 Nicholls[8]在微波波段首次实现, 而光学频段上的实现则一直等到20世纪80年代扫描隧道显微技术被发明之后[9−11]. 今天扫描近场光学显微镜(scanning near-field optical microscope, SNOM)已经发展成为一个庞大的家族, 被应用在生物、表面化学、材料分子、纳米器件分析等重要领域[12,13].

随着纳米技术的发展, 特别是等离激元光子学

* 国家重点研发计划(批准号: 2016YFA0201104)、国家重点基础研究发展计划(批准号: 2015CB659400)和国家自然科学基金(批准号: 11374152, 11574142, 11621091)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zwh@nju.edu.cn

© 2017 中国物理学会 Chinese Physical Society

与超材料领域的兴起, 出现了一类新型的无需扫描的宽场型近场显微技术. 其中最具代表性的是超透镜与等离激元显微镜[14−16]. 这些技术不再需要扫描, 只需将超分辨介质、负折射率材料或金属膜放置于样品的近场区域, 即可达到超分辨成像的目的.

与近场成像手段相呼应的是基于远场技术的超分辨光学显微术, 尤其是基于荧光技术的超分辨光学显微术. 特别是近十年间, 基于荧光的超分辨显微术已经成为生物成像领域中的重要分支, 为了解亚细胞层次的生理过程提供了一种原位、实时、高精度的研究手段. 具体而言, 基于荧光样品的超分辨显微术可分为两类, 即结构光照明荧光显微镜和基于荧光物质的非线性响应的超分辨显微术. 前者将照明光的空间频率与样品的空间频率进行混频[17], 可将分辨能力提高一倍; 后者是以STED (stimulated emission depletion microscopy)、PALM (photo-active localization microscopy)/STORM (stochastic optical reconstruction microscopy) 为代表的一类成像方法[12,13,18,19], 此类基于荧光的开关特性, 通过确定荧光分子的高精度定位而获得超高空间分辨能力. 由于在生命科学领域的重要影响, S.W. Hell 和 E.Betzig 因发明 STED 和 PALM 技术而于 2014 年被授予诺贝尔化学奖.

除去以上方法之外, 研究者对其他新型远场超分辨手段也进行了不断的探索, 其中最有影响力的是超振荡技术 (super oscillatory lens)[20]. 其在物理原理上利用光场在局域的快速振荡来绕过衍射极限, 从而实现远场超分辨的目的. 使用该技术, 研究者已经在光学频段成功演示了光在远场区域的亚波长聚焦与成像.

从上述讨论中可以看出, 超分辨技术根据实现的方法大概可以分为两类: 仪器层面的超分辨和后处理超分辨. 仪器超分辨如近场光学显微镜, 将含有超分辨信息的近场细节通过散射引入到远场达到打破衍射极限的目标. 而基于后处理的超分辨技术则常基于光和样品的非线性作用, 如 PALM/STORM. 这一方法依赖于样品的一些预知信息, 即样品由稀疏的发光点组成, 通过计算得到被成像系统丢失掉的信息. 事实上, 依赖于样品预知信息的光学显微术已经成为一门独立的学科, 并有很多综述对此进行了充分的论述[21,22]. 为了本文理论框架的完整性, 我们的讨论限制在第一类仪器层面的超分辨技术.

本文具体组织如下: 首先给出线性光学成像系统的理论框架、光衍射极限的物理本源、并讨论打破衍射极限的途径; 接下来将按照不同原理对线性超分辨光学显微镜的原理与应用分别进行论述; 最后总结并展望光学超分辨领域的发展.

2 线性光学成像系统

迄今我们所看到的绝大多数成像系统都可以看作一个线性的系统, 如图 1 (a) 所示, 光从样品到像面的过程在数学上可以用扰动与响应来描述:

$$g(\boldsymbol{r}) = \int \mathrm{d}\boldsymbol{r}' h(\boldsymbol{r}, \boldsymbol{r}') f(\boldsymbol{r}'), \tag{1}$$

这里 $f(\boldsymbol{r})$ 是携带样品光学信息的光场, $g(\boldsymbol{r})$ 是像, h 是光学系统的点扩散函数. 这一描述同时适用于相干与非相干系统. 对于相干系统, 系统对于复振幅为线性, 而对于非相干系统, 系统对于强度为线性.

数学上为方便讨论, 需要把 (1) 式, 映射到动量空间. 利用卷积定理, (1) 式可写成

$$G(\boldsymbol{k}) = H(\boldsymbol{k}) F(\boldsymbol{k}), \tag{2}$$

这里

$$H(\boldsymbol{k}) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathrm{d}\boldsymbol{r} h(\boldsymbol{r}) \exp(-\mathrm{i}\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}) \tag{3}$$

是 $h(\boldsymbol{r})$ 的傅里叶变换, 也叫做传递函数. (2) 式从物理上来讲, 像是由物通过一个由光学系统定义的、在空间频率上的滤波器的结果.

在自由空间中, 只有当 $k < 2\pi/\lambda$ 的信息才能够传播到处于像面的远场, 而空间频率大于 $2\pi/\lambda$ 的信息将被束缚在样品表面. 为此将 $H(\boldsymbol{k})$ 可以看作一个低通滤波器, 对应高空间频率信息 ($k > 2\pi/\lambda$) 将形成隐失波不能传播到像面, 从而导致信息丢失. 这就造成了所谓的 Abbe 衍射极限.

上面的数学可以在倒空间 (k 空间) 中用图像描述 (图 1 (b)). 类似晶体衍射, 成像的过程可以反映在 Ewald 球与各类型衍射的关系上. 其中 Ewald 球面规定传播系统的带宽, 只有球面内的光可以传播. 对于薄样品, 样品与光的相互作用满足 Raman-Nath 衍射条件, 如图 1 (b)[23]; 而样品中的高频信息和光作用后将超出 Ewald 球, 不能传播到远场, 如图 1 (c) 所示.

从图 1 (b) 和图 1 (c) 可直观看出要获得超分辨有如下几个途径: 1) 利用增大环境折射率的办法

提高带宽 (即, 扩大Ewald球), 固浸物镜技术 (solid immersion lens, SIL) 是此类方案的代表; 2) 结构光照明显微镜 (structured illumination microscopy, SIM), 利用结构光照明改变 $F(\boldsymbol{k})$, 通过和样品光响应 (透射、反射、散射等) 分布的混频将一部分不能传播的光变为可传播的光场 (图1 (d)); 3) 近场光学技术 (near-field optics, NFO) 利用纳米探针局域的提取携带高空间分辨能力的近场光学信息. 上述三种方法是在傅里叶变换理论的框架内, 而最近人们从衍射理论的适用范围出发提出了基于超振荡效应 (super oscillation) 的超分辨成像方案, 指出 $H(\boldsymbol{k})$ 是一个描述全局的函数, 对于局域的场变化速度可以大于系统的带宽 (即所谓的超振荡效应), 从而有可能打破衍射极限.

下面将按照上述顺序, 对基于SIL, SIM, NFO和超振荡成像技术进行分别论述.

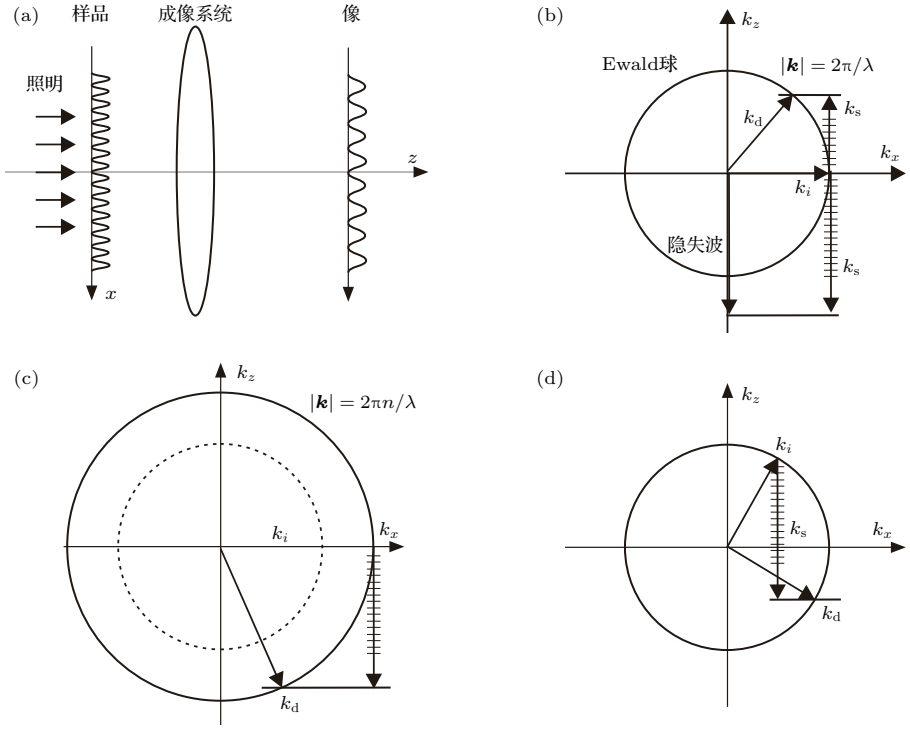


图1 光学显微成像原理的Ewald球表示 (a) 线性光学成像系统示意图; (b) 传统成像系统; (c) 高折射率对分辨本领的提高作用; (d) 照明和样品的空间频率的混频效应

Fig. 1. Ewald sphere and diffraction conditions for different optical microscopy techniques: (a) Schematic drawing of an optical imaging system; (b) Raman-Nath diffraction for conventional optical microscope; (c) high refractive index supports high spatial frequency propagating waves; (d) spatial frequency mixing between the sample and illumination.

3 固浸物镜

从瑞利极限公式可知, 波长不变提高空间分辨力最直接的办法是提高物镜端的折射率. 今天, 此方法已经大量应用于商用显微物镜中, 利用浸油的方式, 当前物镜的数值孔径可达到1.5左右. 而SIL是在油镜的基础上发展而来, 其用折射率更大的固体介质来代替油, 在固体中光波长变短, 波矢变大, 从而能够携带更高的空间频率.

固浸物镜的概念来自Born和Wolf的理论[3]. 这条理论指出了高折射率小球中的两个“等光程点”可以将光线聚焦而不产生球差. 基于这两个点相应也产生了两种SIL, 即hemispherical SIL(h-SIL) 和 super SIL(s-SIL). h-SIL利用了第一个“等光程点”——球心 (图2 (a)). 各路光线垂直入射到半球中, 不产生球差. 同时由于聚焦距离与折射率 n 无关, 也不会产生色差. h-SIL 在带来 n 倍折射率的提升的同时, 还带来了 n 倍的放大倍率. s-SIL则利用了第二个“等光程点”——球心旁 $\frac{n_0}{n_1}R$ 处, 不产生球差 (n_0 为小球折射率, n_1 为周围空气折射率, R 为小球半径). s-SIL提供了 n^2 的分辨率提升 (受整个系统限制, 提升最大为 n), 以及 n^2 倍的放大倍率, 如图2 (b) 所示[24].

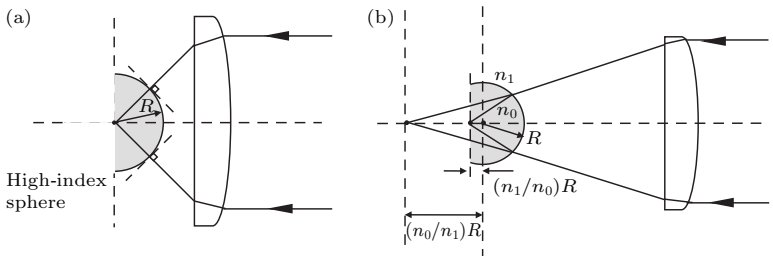


图 2 固浸物镜的两种形式 (a) 半球形 SIL; (b) 超级 SIL

Fig. 2. The two cases of solid immersion lens: (a) Hemispherical SIL; (b) super SIL.

两种 SIL 都能实现高分辨的表面成像和亚表面成像, 但在与样品的接触面要实现折射率匹配 (添加折射率匹配油或者压紧). 在亚表面成像中, 一般的显微镜都要受到样品折射率的影响, 整个显微系统分辨率下降为 $1/n$, 而 s-SIL 整个显微系统的分辨率则不会受到影响. 其工作距离遵循公式 $H = R(1 + 1/n) - D$, D 为样品内待观测的面位于样品表面之下的距离 [24], H 为 h-SIL 的高度. 但由于 s-SIL 的焦距与 n 有关, 使用 s-SIL 时会产生色差.

h-SIL 首先由 Mansfield 和 Kino [25] 在 1990 年实现, 他们用一块折射率为 2 的固浸物镜在 436 nm 的光照明下实现了 100 nm 的分辨率. 随后, s-SIL 也被 Kino 等 [26] 在 1994 年实现, 他们将 780 nm 的照明光汇聚成了一个 317 nm 的光斑, 并分辨了 500 nm 周期的光栅. 在这之后, 固浸物镜显微术不断发展, 很多工作都取得了 2—3 倍的分辨率提升 [27−30], 如图 3 (a) 所示. 由于其非破坏性的亚表面成像特性, 最终在半导体芯片领域形成产业. Serrels 等 [24] 利用 s-SIL 结合非线性成像技术 ($\sqrt{2}$ 的增强因子), 成功用自由空间 1530 nm 的波长, 获得了约 100 nm 的分辨率.

近年来, 不少学者将固浸物镜缩小到波长尺度, 进一步获得了分辨率的突破 [31−34]. Lee 等 [32] 在 2009 年制成 nanoscale lenses of calix hydroquinone (CHQ), 成功地用 663 nm 的光分辨了 250/220 nm 的条纹图案 (图 3 (b)). 随后 Mason 等 [33] 指出, 纳米尺度 SIL(n-SIL) 相对于传统 SIL 在分辨率上将会有 25% 的提升.

2011 年, Wang 等 [34] 利用直径几微米的 SiO_2 小球, 实现了 50 nm ($\lambda/8$—$\lambda/14$) 的分辨率 (图 3 (c)), 引起了众多关注. 值得注意的是此类基于微球成像的工作中, 分辨率采用的是最小可分辨的物体边缘间的距离, 而不是传统成像理论中物体中心点之间的距离, 这在具体参数比较中需要明确. 另外, 至今该类成像系统的点扩散函数仍未见报道, 这也给其详细的性能评估带来了困难.

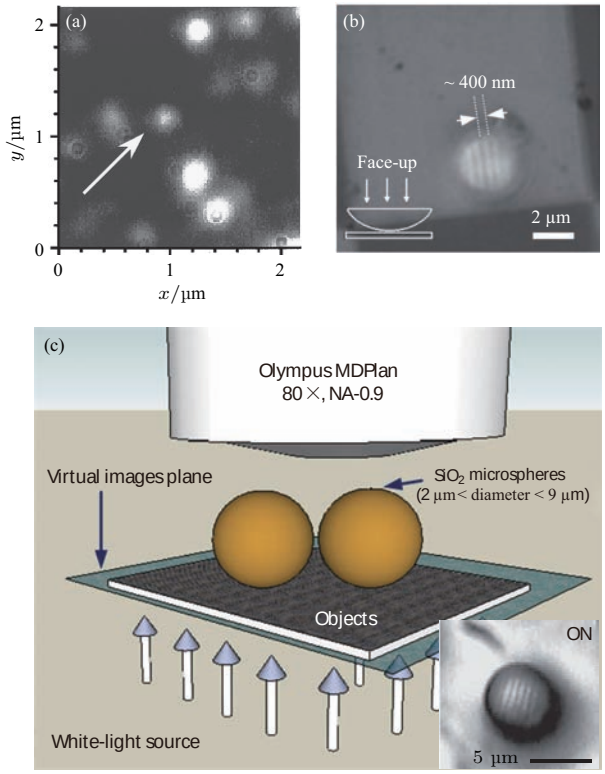


图 3 固浸物镜应用 (a) GaP SIL 对染料分子球的超分辨成像 [28]; (b) 纳米光栅的微米 SIL 成像 [32]; (c) 光栅的微球成像 [34]

Fig. 3. Super-resolution imaging by different SIL: (a) Fluorescence image of dye nanoball by GaP SIL [28]; (b) optical image of nanograting via a polymer microlens [32]; (c) super-resolution image of nanograting via a microsphere lens [34].

4 结构光照明显微术

结构光显微术即 SIM 首先在 1963 年由 Lukosz 和 Marchand [35] 提出, 在实空间中, 摩尔条纹可以用来简略地说明其原理 (图 4 (a)) [17]. 两个精细度

超过衍射极限图案, 将他们重叠之后, 得到一个精细度低于衍射极限的新图案, 这个新图案可以很容易地观察到. 重要的是, 这个新图案是由原先两个精细图案按一定规律矢量线性叠加而来, 如果知道其中一个图案, 另一个图案也能知晓. 在倒空间中, 结构光照明显微术可以得到更好的说明 (图 4 (b)—图 4 (d)). 能够传播的光场的波矢形成了一个圆 (图 4 (b)), 圆的半径为 k_{cutoff}, 空间频率低于 k_{cutoff} 的可以传播, 即圆内的各点都是能够传播的. 为了传播圆外的具有高频空间信息的点, 我们可以将圆外的点“移到”圆内. 这个过程通过携带相应空间频率的照明光与样品相互作用实现. 例如, 对于一个正弦照明光 (图 4 (c)), 其携带三种空间频率 $(0, \pm k_{\mathrm{illumination}})$. 当它与样品 ($k_{\mathrm{sample}}$) 相互作用时, 会产生 $(k_{\mathrm{sample}}, k_{\mathrm{sample}} \pm k_{\mathrm{illumination}})$ 的光, 只要这三种空间频率的光有一种低于 k_{cutoff}, 那么 k_{sample} 所包含的信息就可以被探测到.

实验中, 如何分离交叠的 $(k_{\mathrm{sample}}, k_{\mathrm{sample}} \pm k_{\mathrm{illumination}})$ 信息是 SIM 中的关键, 为此研究者们发展了诸多不同的方法. 最常用的是相移法, 通过对照明光 $k_{\mathrm{illumination}}$ 进行相移操作并多次曝光, 再按照两种光叠加的规律 (相位差) 反推, 就可将 k_{sample} 分离出来, 并最终重现样品图案 [17]. 从结果上来看这种方法相当于将圆心移动到了圆周上再次画圆 (图 4 (d)), 最大形成半径为 $2k_{\mathrm{cutoff}}$ 的圆 (图 4 (e)), 即最多将分辨率提升两倍. 由于利用的是光强信息, SIM 的照明从理论上对光的相干性并不要求, 但由于非相干光光源强度较弱, 实验中多使用激光光源.

横向 [17,36−38] 和轴向 [39] 的 SIM 很快被开发实现, 其中 Gustafsson 等做了重要贡献. 2000 年, 他们用 605 nm 的照明光, 获得了 115 nm 的分辨率 [17]. 2008 年, Gustafsson 等 [40] 又制成了三维的结构光显微镜, 在 605 nm 的照明光波长下, 获得了 104 nm 的横向分辨率和 280 nm 的轴向分辨率. 几乎同时, Schermelleh 等 [41] 也利用三维结构光照明显微技术实现了对核周缘的彩色成像, 获得了与之相当的分辨率.

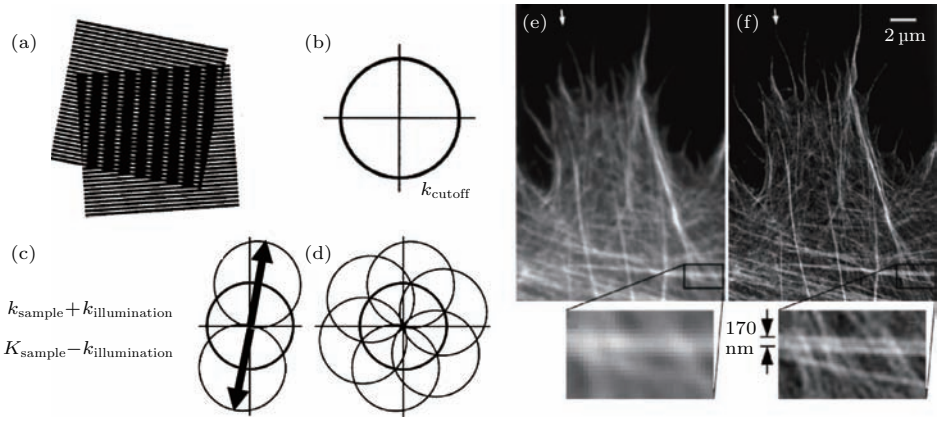


图 4 结构光照明显微术 [17] (a) 摩尔条纹; (b) 传统显微镜的 Ewald 球表示; (c), (d) 单一与多方向正弦结构光照明; (e), (f) HeLa 细胞边缘蛋白骨架在传统显微镜与结构光照明显微镜下的成像

Fig. 4. Structured illumination microscopy [17]: (a) Moire fringes; (b) Ewald sphere of conventional microscope; (c), (d) Ewald sphere of sinusoidally striped illumination along one direction and multiple directions; (e), (f) optical image of actin cytoskeleton of HeLa cell with conventional and SIM microscope.

近年来, 不少学者将 SIM 与其他高分辨成像技术, 尤其是一些非线性成像技术相结合, 实现了远低于 100 nm 的超分辨 [41−44]. Gustafsson 等 [42] 制成了饱和结构光照明显微镜, 将结构照明光所提供的波矢多次叠加 ($nk_{\mathrm{illumination}}$) 获得了 50 nm 的分辨率. 随后, Gustafsson 等 [43] 又将 SIM 与 TIRF 结合, 引入空间光调制器, 实现了对活细胞的 100 nm 分辨率每百点 11 Hz 的动态成像.

今天 SIM 技术已经非常成熟并商用化, 由于其具备实现相对简单、速度快、可三维成像并对样品要求少的优点, 已被广泛应用于超高分辨生物成像领域 [45]. 但由于原理的限制, SIM 的分辨能力相比传统成像系统最多只能提高一倍.

5 扫描近场光学显微术

与 SIL 和 SIM 技术只对传播光场操作不同, 扫描近场光学显微术基于对束缚在样品表面含有高

空间频率(即样品细节信息)的隐失波的操作, 利用纳米尺度探针将样品近场信息转化为可检测远场信号. 从某种程度上, 近场光学显微术可以看作是纳米光学领域的主要源头之一. 今天, 经过三十多年的发展, 已发明了大量不同种类的SNOM, 并广泛地应用于光学、化学、材料和生物等领域中.

在SNOM中, 纳米光学探针占据了核心地位; 探针-光场, 或者探针-样品的光学作用决定了其关键性能参数, 包括空间分辨能力、衬度机理、信号强度等. 为此, 我们可以通过探针的不同将SNOM分为有孔SNOM、无孔SNOM和发光探针SNOM[46], 如图5所示. 由于篇幅的关系, 基于光力, 近场热辐射等特殊近场显微技术在这里不再做回顾[47,48].

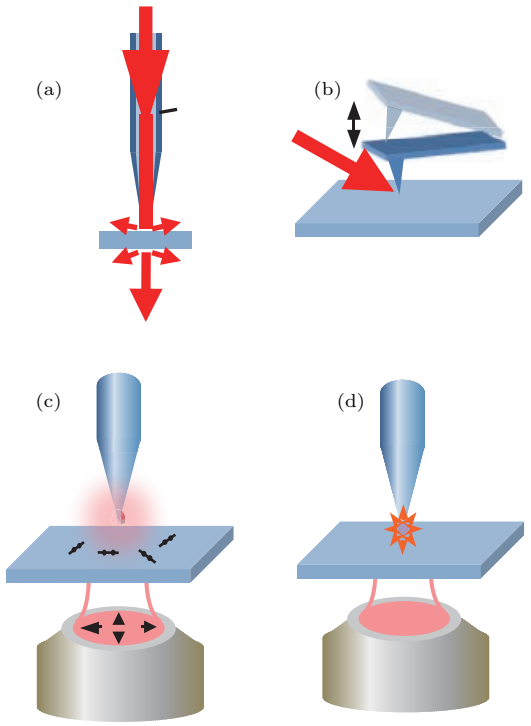


图5 主要的近场光学显微镜类型[46] (a) 有孔探针SNOM; (b) 散射型SNOM; (c) 探针增强型SNOM; (d) 纳米发光探针SNOM

Fig. 5. Four major types of SNOMs[46]: (a) Aperture-SNOM; (b) scattering-SNOM; (c) tip-enhanced spectroscopy technique; (d) nano-emitter tip technique.

5.1 有孔探针SNOM

光学频段的有孔探针SNOM最早由Pohl和Lewis[9,10]独立实现. 其核心是利用一个纳米尺寸的通光孔来实现光在纳米尺度的局域化和采集, 由于光场局域程度由通光孔的尺寸决定, 当通光孔小于半波长时, 系统的分辨率将优于衍射极限.

同等重要的是, 分辨率的提高(特别是样品激发区域的缩小)也伴随着背景杂散光强度下降, 这对实现单分子荧光检测至关重要. 利用有孔SNOM的这一优势, 1993年贝尔实验室的Betzig与Chichester[49]合作获得了diIC12的单分子荧光图像, 达到了高于$\lambda/50$空间分辨率, 事实上也是人类第一次在室温下获得单分子的实空间光学像, 为单分子荧光成像以及以后PALM技术的发明打下了基础. 之后, 其一直致力于近场光学显微镜的研究并不断提高系统工作的稳定性和分辨率[6,7]. 1994年, Betzig团队[50]又利用S-SNOM实现在室温下对PMMA膜上的荧光染料分子diI进行探测, 同样达到了分子级别的空间分辨率. 在这一过程中, 著名华人科学家谢晓亮[51]也在单分子荧光成像领域做出了重要的贡献. 在90年代后期, 研究者在该领域亦有所突破, 特别是2000年之后, 文献[52—54]利用微纳加工技术对光纤探针进行了优化, 通过控制激发与收集过程中的光偏振, 获得了荧光分子与量子点包括偏振、取向等的大量定量信息.

有孔探针另一类重要的应用是对光场分布的成像, 特别是微纳光学器件模式分布的超分辨定量表征[55]. 这类应用中最常用的技术之一当属光子隧道显微镜(PSTM), 其利用锥形光纤探针将束缚于波导或共振腔表面的隐失场散射并耦合至远场, 从而获得超高空间分辨的光场信号[56]. 在此基础上, 文献[57]将时间分辨的技术与有孔SNOM技术结合起来, 成功的观测到飞秒光脉冲沿波导传播的图像. 于此同时, 利用各类特殊形状探针对电磁场各向异性的散射效应, 超分辨的矢量光场成像已经成为可能[58].

由于在荧光成像领域的成就及前景, 在20世纪90年代, 有孔探针SNOM领域吸引了大量的研究者加入[54,59]. 但很快在技术层面上, 即分辨率和光信号强度这两核心参数的优化上遇到了不可克服的难题[60]. 研究者尝试了各种探针设计, 特别是锥形光纤探针和金字塔形探针, 但当孔径小于100 nm时, 信号的透过率将急剧下降, 到50 nm时只有不到10^{-5}的光强能够透过微孔. 从原理上, 纳米孔的超低透过率可以从散射的角度解释. 根据巴贝涅原理[3], 微孔的散射可以看作磁偶极子的辐射问题, 其强度正比于$(a/\lambda)^4$, 所以纳米孔尺寸远小于波长时, 其透射效率非常的低[5].

5.2 无孔探针SNOM

无孔探针技术始于20世纪90年代[61], 稍晚于有孔探针技术. 随着人们意识到有孔SNOM 的限制, 以及以针尖增强拉曼光谱技术和散射型SNOM技术的突破, 在2000年后, 无孔探针技术开始成为SNOM领域的主要方向. 特别是随着纳米天线理论的发展, 新型探针设计以及新的光-物质作用机理的大量的应用为该领域在光谱学、分析和成像领域带来了众多的应用. 在这一节里, 我们将重点回顾无孔探针SNOM的两个重要分支: 针尖增强光谱技术和散射型SNOM技术.

针尖增强光谱技术是无孔探针SNOM中的重要一类, 20世纪90年代最早被应用于荧光成像. 1999年, Sánchez等[62]利用15 nm直径的金属针尖的强局域场激发分子双光子荧光效应, 由于双光子吸收得到了很好的成像衬度, 对荧光染料成像达到了20 nm的空间分辨率; 2004年, 文献[63]利用Au纳米棒作为纳米天线识别出了单个量子点. 2006年, Novotny课题组[64]研究了在Au纳米颗粒的作用下单分子荧光增强的效果, 并发现了当纳米颗粒与单分子距离很近时, 由于金属材料的吸收, 荧光分子会发生猝灭. 之后, Novotny课题组及Sandoghdar课题组都利用Au纳米颗粒作为纳米天线, 研究了Au纳米颗粒对样品的荧光增强, 单分子的荧光增强达到了10—20倍, 相应的激发态寿命也缩短了20倍以上, 并且得到了10 nm的空间分辨率[65,66]. 2007年, Tam等[67]在SiO_2纳米颗粒表面镀上Au层, 将纳米颗粒修饰到针尖上作为纳米天线, 将与其邻近的荧光分子信号增强超过了50倍. 而2014年, Wientjes等[68]利用Au纳米棒对捕光复合物LHCII激发, 得到了大约100倍的荧光增强, 使相应的激发态寿命缩短到20 ps.

但真正让针尖增强光谱技术引起广泛关注的是针尖增强拉曼光谱技术(tip-enhanced Raman spectroscopy, TERS), 由于拉曼光谱可用于无标记的化学分析, TERS在各类纳米材料的分析中具有广阔的应用前景. 但与荧光不同, 拉曼散射效应极微弱, 其微分界面约为10^{-31} cm^2/SR量级, 远小于荧光分子的吸收界面10^{-16} cm^2[69]. 正因为如此, 虽然人们在20世纪90年代利用有孔针尖做了大量尝试, 但没有获得实质性的成果. 直到2000年, 文献[70—72]分别独立的报道了针尖增强拉曼效应, 利用金属纳米探针尖端对光场的近场增强效应, 实现了有机分子大于10^3倍的增强(图6(a)). 之后Hartschuh 等[73]成功地将该技术应用于纳米碳管的表征, 以30 nm的空间分辨本领观测到了碳管的结构变化(图6(b)). 但早期TERS只能应用在具有强烈共振拉曼效应的样品, 如染料分子和碳管结构, 这种情况一直持续到Pettinger课题组[74]和Zenobi课题组[75]对TERS的探针技术进行了系统性优化, 发展出狭缝模式的TERS 和低折射率探针金属化办法. 利用优化后的系统, 本文作者及其他课题组在2007年前后最终将TERS的灵敏度推进到单个分子[76−78]. 在这期间, 亦有课题组报道了单分子TERS实验, 但其拉曼峰和其样品并不能对应, 不能排除来自与样品污染(特别是无定形碳)的可能[79].

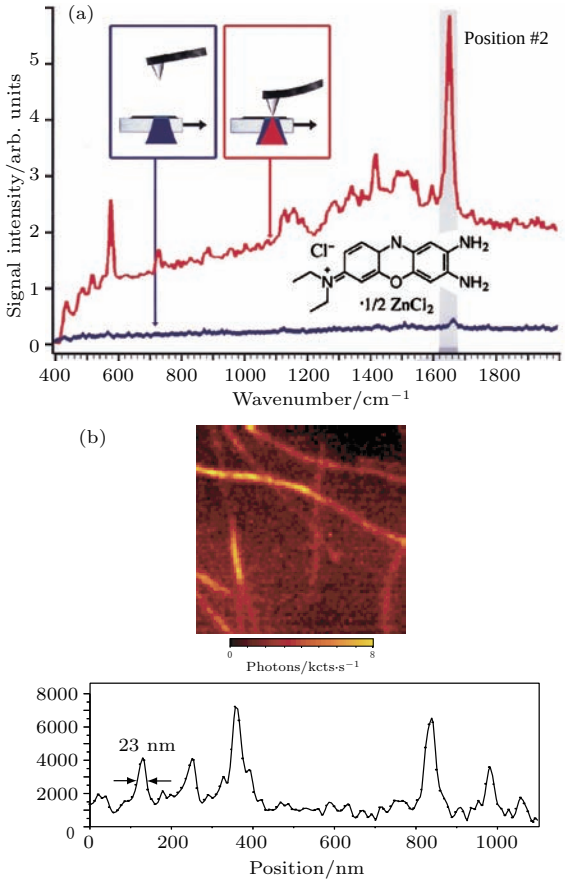


图6 针尖增强拉曼技术 (a) 最早的针尖增强拉曼光谱实验结果, 银探针可将染料分子的拉曼信号增强40000倍[71]; (b) 单壁纳米碳管的针尖增强拉曼扫描图像, 空间分辨本领优于30 nm[73]

Fig. 6. Tip-enhanced Raman spectroscopy: (a) 40000-fold enhancement of the Raman scattering of dye molecules[71]; (b) near-field Raman mapping of single-walled carbon nanotubes[73].

TERS的一个核心应用在于表面化学, 它的超高空间分辨本领以及单分子灵敏度使其成为了解

表面催化过程的一个“终极”手段. 在此方向, 厦门大学任斌与Pettinger[80]合作, 首次用TERS研究了CN^-离子在Au(111)以及孔雀石绿(MGITC)分子在Au(111)和Pt(111)这一重要催化剂表面的吸附行为. 之后Steidtner和Pettinger[81]将TERS应用与超高真空系统, 并首次获得了关联的单分子形貌与拉曼光谱像. 之后TERS的一个里程碑式工作也由我国科学家完成, 2013年中国科学技术大学侯建国课题组在超高真空下将TERS的光学分辨本领推进到了1 nm, 成功地观测到了分子在金属表面的不同吸附形态[82]. 该工作吹响了光学检测向亚纳米尺度进军的号角.

散射SNOM(scattering-SNOM, s-SNOM)是另一类重要的无孔探针SNOM技术, 它和TERS构成了今天最重要的两类纳米光谱分析手段. 与TERS不同, s-SNOM的成像不依赖针尖的局域增强效应, 而是借助于探针-样品高度局域化的近场光学响应[83]. 该技术早期的基础主要由德国科学家Keilmann奠定, 他从20世纪90年代开始年围绕s-SNOM中的近场相互作用信号提取问题做了大量的基础研究与技术创新, 发展出了一系列基于信号调制和解调的办法, 并通过探针-样品耦合模型成功的解释了散射信号和样品光学常数间的关系, 为s-SNOM奠定了核心基础(图7 (a))[84].

至今, 结合红外傅里叶光谱技术, s-SNOM已经发展为一项成熟的纳米尺度红外光谱分析技术, 可以实现对几乎所有材料的超灵敏超高空间的化学分析[85]. 2012年, Hillenbrand课题组[86]利用中红外波段的入射光源, 对PMMA薄膜上的聚二甲基硅氧烷(PDMS)的红外吸收光谱进行探测, 达到了20 nm的空间分辨率. 随后, 他们又对蛋白质结构的傅里叶变换红外光谱的吸收谱进行测量成像, 达到25 nm的空间分辨率, 识别出了单个蛋白质复合物[87]. 2013年, 他们又将传统的Si探针尖端用金属Au尖锥代替作为纳米天线, 研究了针尖增强红外光谱成像, 对单个烟草花叶病毒(TMV)进行红外吸收谱的探测和成像[88]. 纳米傅里叶红外光谱仪可以实现对半导体、生物矿物、蛋白质纳米结构、单个病毒等表面不同组分的结构进行成像[89].

除对有机物的分析外, 散射SNOM也被广泛地应用于无机样品中, 特别是新型材料的检测中. 例如, 2012 年, Hillenbrand课题组和Keilmann课题组先后利用散射SNOM和红外激发光对锥形石墨烯纳米结构进行研究, 将石墨烯纳米结构转化为可调谐振等离子腔(图7 (b))[90,91]. 又如Basov课题组和Taubner课题组都对由不同的二维材料组成的原子级别薄晶层——范德瓦耳斯晶体的代表六角氮化硼(hBN)进行了探测, 改变晶体层数, 同时检测红外光谱并成像[92,93]. 同时, 值得注意的是, 由于涉及到样品的非定域光学性质(如石墨烯等离激元模式的探测), 此类研究中传统基于样品定域光学响应的成像机理模型已经不再适用, 故需要新的理论模型.

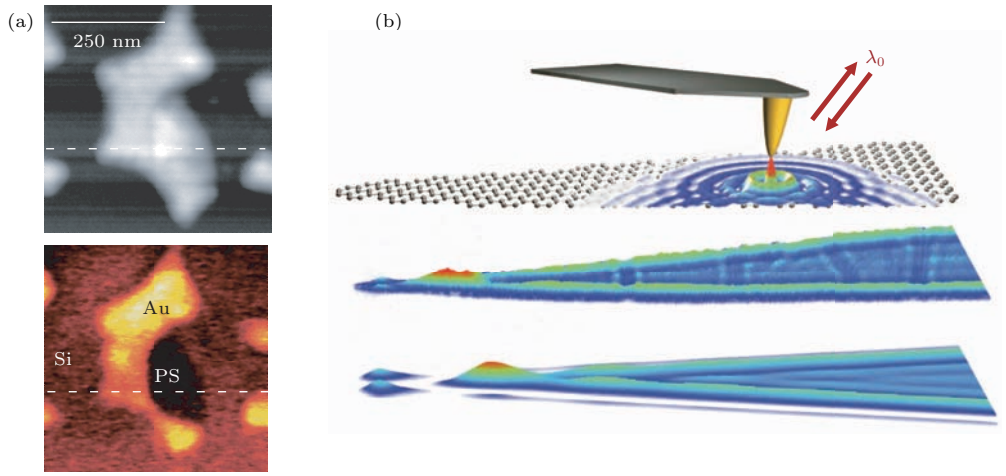


图7 散射型SNOM (a) 最早的超分辨散射SNOM的光学成像图[84]; (b) 利用散射SNOM采集的石墨烯等离激元干涉图样[91]

Fig. 7. Scattering SNOM: (a) The super-resolution optical image of Au nanostructures by scattering SNOM[84]; (b) the interference pattern of surface plasmons of a graphene nano-ribbon collected by scattering-SNOM[91].

5.3 纳米发光探针SNOM

上述有孔与无孔探针SNOM都属于被动探针SNOM, 而纳米发光探针SNOM则是与之对应的主动发光探针技术. 该类技术以纳米发光体(如单量子点、单分子、上转换荧光纳米颗粒或色心)为探针, 测量探针所在位置局域的物理参数. 由于纳米发光体的发光特性可对局域的光、电、热、磁等物理量有响应, 理论上该类探针可以实现多物理场测量[94]. 同时由于纳米发光体的尺寸非常小, 量子点一般小于10 nm, 而色心的尺度则在1 nm, 故该技术的空间分辨率可以达到10 nm以下, 甚至1 nm.

利用纳米发光探针, 研究者在过去近20年中取得了一系列的突破. 最早Sandoghdar课题组[95]利用单分子修饰的探针实现了纳米结构的高分辨成像. 之后, Banin课题组[96]将不同的半导体量子点修饰到探针尖端, 演示了在扫描过程中探针尖端的半导体量子点和样品上的染料分子之间的FRET过程. Temirov课题组[97]利用半导体量子点修饰的探针, 在低温下扫描Ag(111)表面的PTCDA和NTCDA粉末, 真正在纳米尺度下实现了对静电势分布的三维成像.

虽然具有广阔的应用前景, 但由于此类探针的制备难度高, 且检测技术复杂, 尚处于发展阶段. 可以预见, 随着纳米加工技术的进步与光学检测技术的发展, 纳米发光探针SNOM将会取得快速发展. 特别是随着基于纳米金刚石氮缺陷色心荧光的量子计量技术的发展[98], 该技术将成为一个重要方向.

6 宽场近场成像技术

扫描近场光学显微术依赖于纳米探针将隐失场转化为可传播的信号, 为此需要逐点扫描, 因而成像速度较慢. 随着纳米光学的发展, 特别是等离激元光子学和超材料领域的发展, 人们意识到, 利用负折射率或负介电常数材料制成的平板也可以支持隐失场, 并进一步将其转化为传播场, 从而发展出了各种基于超材料和表面等离激元的宽场超分辨光学成像技术.

基于负折射率材料的成像最早由Veselago在20世纪60年代提出. 2000年, Pendry[99]从理论上重新考察了基于负折射率材料的成像机理, 并证明了双负材料能够用来传递包括隐失波在内的所有的空间频率. 虽然人们很早地便在微波波段实现了完美透镜, 但是由于磁导率的限制, 在可见光波段, 这一完美透镜一直无法实现. 但近场条件下, 对于TM波, 只要满足负的介电常数即可, 无需考虑磁导率. 2004年, Luo和Ishihara[100]用表面等离激元光刻技术记录下周期100 nm ($\lambda/4.4$)的干涉条纹. 此后, 在超材料成像领域, 伯克利大学张翔团队做出了一系列的杰出贡献. 2005年, 张翔等用一块银板(35 nm)对表面等离激元(SPP)增强和传递, 最终在光刻胶上形成了60 nm ($\lambda/6$)分辨率的像(图8(a))[14]. 值得注意的是, 在这个过程中, 仅仅是隐失波的振幅发生了改变, 空间频率并未发生改变. 2007年, 利用双曲透镜的概念, 进一步发展出了半圆形的可放大超透镜, 分辨率为130 nm ($\lambda/3$)(图8(b))[101], 并进一步将该透镜与光刻系统结合, 实现了高速低成本光刻技术[102,103]. 2015年, Gao等[104]结合Hyperlens和反射银面实现了22 nm ($\lambda/16$)分辨率的超分辨近场成像. 除了半圆形之外, 还有学者用金属线阵列[105−107]以及独特色散关系的材料做双曲透镜[108−111].

除负折射材料外, 利用散射或其他方式也可以实现SPP到传播模式的转化, 从而实现宽场成像[112−115]. 2005年, Smolyaninov等[112]将甘油滴在金层之上并制成抛物线形的边界. 通过金层下的棱镜激发SPP, 制成了一个二维放大镜. 他们用502 nm的氩离子激光照射纳米孔洞阵列样品, 获得了60 nm($\lambda/8$)的分辨率(图8(c)). 由于SPP的波矢很大, 或者说液滴的有效折射率很高, 液滴边界对于由外向内传播的SPP 相当于一个会聚透镜, 而对于由内向外传播的SPP而言, 则是一个几乎全角度的全内反射镜. 液滴内, SPP按照几何光学的规律, 形成放大的像, 并最终通过散射转变为传播模式, 由液滴上方的普通显微镜观察到.

还有不少学者则将等离激元与结构光SIM相结合, 发明了等离激元结构照明显微术(PSIM)[114,115]. 传统的SIM中, 结构光的横向空间频率至多与衍射极限所对应的空间频率相当, 因而至多获得普通显微镜两倍的横向分辨率. SPP的横向空间频率可以轻易地达到很大, 用作结构光, 可以获得更高的空间分辨率. Wei和Liu[114]用442 nm的激光激发508 nm的荧光, 用0.85数值孔径(NA)的物镜收集, 获得了76 nm (4倍于普通荧光显微镜)的空间分辨率. 当然, PSIM的横向空间

频率不是没有限制的, 横向空间频率越大, SPP 在垂直方向的衰减就越快, 需要选择一个平衡点或设计复杂结构来增强SPP.

SPP 代替散射光来进行暗场显微成像也是一个很好的结合[113]. 受照明系统数值孔径的限制, 传统的暗场显微镜无法获得一个较大的 NA (物镜的 NA 要小于照明系统的 NA). Liu 课题组[113]用等离激元照明系统取代传统照明, 使得物镜可以获得较大的 NA. 由于SPP 只被样品结构散射才能转化为传播模式传播出去, 那些没有结构的区域, SPP 最终会衰减掉, 并不会被物镜收集, 这样就获得了很高的对比度.

相比于SNOM 技术, 基于超材料和表面等离激元的宽场超分辨光学成像技术无需扫描以及相应设备, 故速度快、成本低, 并对特定样品展示出了出色的成像性能. 但此类技术需要将样品放置于超材料或等离激元结构的临近区域, 使得样品在选择上受到很大限制; 同时其只能对样品表面信息成像, 这进一步限制了该类技术的应用.

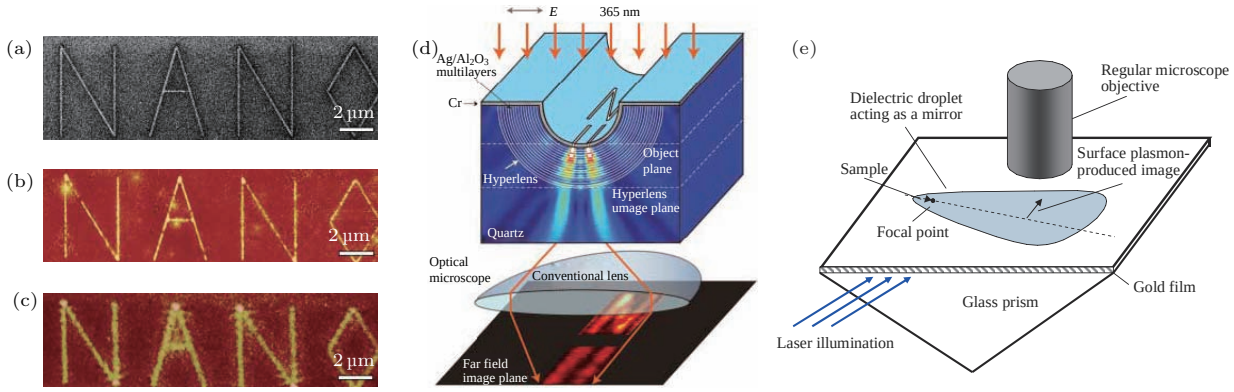


图 8 基于超材料和等离激元的宽场近场成像技术 (a)—(c) 使用银质超透镜实现的超分辨成像[14]; (d) 具有放大功能的超透镜[101]; (e) 等离激元照明超分辨技术[112]

Fig. 8. Wide-field near-field optical imaging using metamaterials and surface plasmon: (a)–(c) Super-resolution image by Ag superlens[14]; (d) magnified super-resolution optical image with hyperlens[101]; (e) SPP based super-resolution image technique[112].

7 超振荡透镜

上述成像技术都建立于傅里叶分析理论框架内, 其假定光场随空间的变化率的上限由成像系统的带宽所决定, 不能快于 $2/\lambda$, 故此两个理想的点光源距离小于 $\lambda/2$ 时, 经过成像系统后将不能被区分. 但在雷达天线设计和高能物理领域中人们发现, 在系统带宽受限的情况下, 场的局域振荡速度仍可以远快于其带宽所允许的速度, 这就是所谓的超振荡现象. 因此从原理上讲, 在特定情况下如果能够让光场的局域变化速率大于 $2/\lambda$, 两个距离小于 $\lambda/2$ 的点将可被区分[116,117].

关于超振荡, Berry 和 Popescu[116] 给出了一个简单的数学例子:

$$f(x)=(\cos x+\mathrm{i}a\sin x)^N \quad (a>1, N\gg 1), \quad (4)$$

一般情况下, 如果 N 是奇数, $f(x)$ 以 π 为周期振荡. 但当 $a=1$ 时, $f(x)=\exp(\mathrm{i}Nx)$, 代表一列波向正方向传播. 当 $a>1$ 时, 在 $x=0$ 附近,

$$f(x)\approx\exp(N\log(1+\mathrm{i}ax))\approx\exp(\mathrm{i}aNx), \quad (5)$$

振荡的速率加快了 a 倍, 但从傅里叶展开的角度来讲这是一件有趣的事情. 因为

$$f(x)=\sum_{m=0}^{N}c_m\exp(\mathrm{i}Nk_mx), \quad (6)$$

这里

$$k_m=1-\frac{2m}{N},$$

$$c_m=\frac{N!}{2^N}(-1)^m\frac{(a^2-1)^{N/2}\left[\dfrac{a-1}{a+1}\right]^{Nk_m/2}}{[N(1+k_m)/2]![N(1-k_m)/2]!},$$

所有的波数都不大于 1. 也就是说在特定的位置上, 函数的变化速率可以高与带宽决定的速度.

利用上述原理, 多个课题组做了大量实验和理论工作, 通过设计传播函数 $H(\boldsymbol{k})$, 实现光在远场范围内的小于衍射极限的聚焦. 并且利用该方法对人工纳米结构实现了突破衍射极限的成像, 如图 9 [20,118,119].

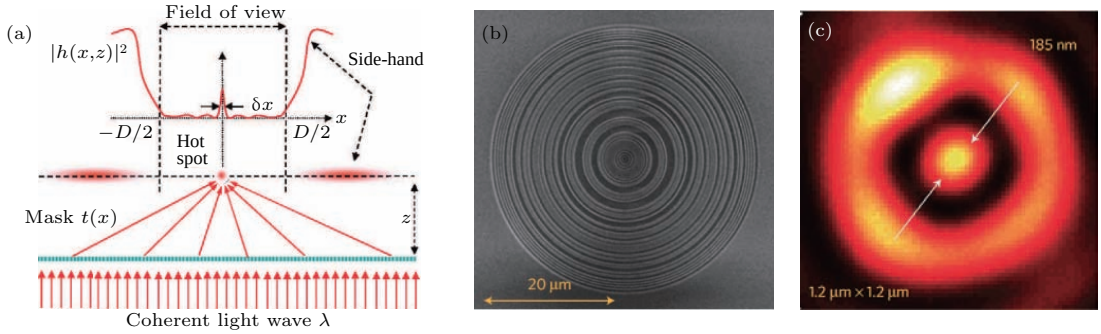


图 9 超振荡透镜成像 (a) 超振荡透镜纳米聚焦的数值模拟结果图[126]; (b) 超振荡透镜的电子显微镜图; (c) 利用 (b) 所示超振荡透镜获得的纳米聚焦斑[20]

Fig. 9. Super-oscillatory lens: (a) Simulated nanofocusing effect by a super-oscillatory lens[126]; (b) the SEM image of a fabricated super-oscillatory lens; (c) the measured nanofocus of a super-oscillatory lens[20].

这些工作的核心是超振荡透镜的设计技术. 在过去的几年间, 为获得最优化的超振荡透镜, 人们提出了不同的方法, 包括 ONSOL[120]、二维环状 mask[20]、准晶 mask[118]、光学本征模式的 mask 设计方法[121,122] 以及等离激元超表面 mask[123]. 而我国南京大学张勇与肖敏课题组在此领域也做出了独创的贡献, 将超振荡的概念与非线性介电超晶格结合在一起, 实现非线性的超聚焦[124,125].

需要强调的是超振荡透镜对空间分辨能力的提高是建立在牺牲信号强度和成像范围的基础之上的. 在利用超振荡透镜形成打破衍射极限的狭长光锥的同时, 必然伴随着强度高数个量级的旁瓣 (如图 9 (a) 所示), 这给该方法在实际中的应用带来了巨大的困难[119]. 事实上, 也正因为此因素, 超振荡现象虽然在传统天线领域已经被发现了近一个世纪, 但在实际应用中仍没有得到广泛的应用. 同时, 通过优化光锥与高强度之间距离往往在波长尺度, 这极大地限制了该方法的成像尺寸.

8 总结与展望

超分辨光学显微术在过去三十年间取得了一系列的突破, 利用不同的原理, 研究者开发了多种基于对成像系统点扩散函数进行修改的硬件超分辨技术. 特别是微纳光学以及控制技术的进步, 让以扫描近场光学显微镜为代表的近场超分辨技术获得了极大的发展, 不仅将光学成像的分辨能力推进到了纳米尺度, 同时通过利用局域信号增强、散射、光力等不同探针-样品的耦合作用提供了一系列的探索样品物理化学性质的手段, 在材料和表面科学领域获得了众多令人瞩目的结果. 同时, 以结构光照明技术为代表的远场超分辨光学显微术被提出并已成功的商用化, 为生物学的观测提供了一个有效的平台.

而与此同时, 在过去十多年中利用光-物质相互作用特性的超分辨光学显微技术亦取得了一系列重大的突破. 该类技术的核心机理是通过已知的样品信息, 如离散点光源的点扩散函数, 恢复被系统过滤的信息, 从而打破衍射定律所定的分辨极限. 今天, 如何将硬件超分辨方法和基于样品预知信息的后处理超分辨方法结合已经成为一个重要的发展方向. 特别是如何结合最新关于矢量光学与结构光领域的发展, 将光学的偏振与角动量等信息结合成像系统的硬件与图形处理算法, 实现高速准确的超分辨显微术将是一个重要的方向[127,128].

另一个值得注意的方向是量子光学领域的发展, 在光子数空间上引入了新的维度, 这为突破传统基于空间频率空间的衍射极限提供了新的可能性[129]. 基于这一想法, 最近研究者在理论和实验上形成了一系列的突破, 成功地演示了两个临近点状热光源的超分辨成像[130].

通过考察超分辨光学显微术在过去三十年间的发展, 以及该领域与单分子荧光检测、结构光场、量子计量学等方向的交叉, 我们相信如何将硬件对光学传递函数的设计与新兴技术所带来的新的信息有效结合将会在未来为超分辨技术带来巨大发展. 这不仅将带来成像领域的突破, 同时也将对生命、材料、信息等学科具有巨大的推动作用.

感谢南京大学物理学院祝世宁院士的指导与张利剑教授的讨论.

参考文献

[1] Bradbury S 1967 *The Evolution of the Microscope* (London: Pregamon Press Ltd.)
[2] Abbe E 1873 *Archiv für Mikroskopische Anatomie* **9** 413
[3] Borm M, Wolf E 1980 *Principle of Optics* (New York: Pergamon)
[4] Synge E H 1928 *Phil. Mag.* **6** 356
[5] Novotny L, Hecht B 2012 *Principles of Nano-Optics* (Cambridge: Cambridge University Press)
[6] Betzig E, Trautman J K, Harris T D, *et al.* 1991 *Science* **251** 1468
[7] Betzig E, Trautman J K 1992 *Science* **257** 189
[8] Ash E A, Nicholls G 1972 *Nature* **237** 510
[9] Lewis A, Isaacson M, Harootunian A, Muray A 1984 *Ultramicroscopy* **13** 227
[10] Pohl D W, Denk W, Lanz M 1984 *Appl. Phys. Lett.* **44** 651
[11] Binnig G R H 1981 *IBM J. Res. Dev.* **30** 355
[12] Thomas A K, Hell S W 1999 *Opt. Lett.* **24** 954
[13] Rust M J, Bates M, Zhuang X 2006 *Nat. Methods* **3** 793
[14] Fang N, Lee H, Sun C, Zhang X 2005 *Science* **308** 534
[15] Taubner T, Korobkin D, Urzhumov Y, *et al.* 2006 *Science* **313** 1595
[16] Smolyaninov II, Hung Y J, Davis C C 2007 *Science* **315** 1699
[17] Gustafsson M G L 2000 *J. Microsc.* **198** 82
[18] Hell S W, Wichmann J 1994 *Opt. Lett.* **19** 780
[19] Betzig E, *et al.* 2006 *Science* **313** 1642
[20] Rogers E T F, *et al.* 2012 *Nat. Materials* **11** 432
[21] Hell S W 2007 *Science* **316** 1153
[22] Jones S A, Shim S H, He J, Zhuang X W 2011 *Nat. Methods* **8** 499
[23] Pohl D W, Kawata S 2001 *Near-Field Optics and Surface Plasmon Polaritons* (Germany: Springer-Verlag)
[24] Serrels K A, Ramsay E, Dalgarno P A, *et al.* 2008 *J. Nanophoton.* **2** 021854
[25] Mansfield S M, Kino G S 1990 *Appl. Phys. Lett.* **57** 2615
[26] Terris B D, Mamin H J, Rugar D 1994 *Appl. Phys. Lett.* **65** 388
[27] Ghislain L P, Elings V B 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 501
[28] Wu Q, Feke C D, Crober R D 1999 *Appl. Phys. Lett.* **75** 4064
[29] Ippolito S B, Goldberg B B, Unlu M S 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 4071
[30] Liu Z H, *et al.* 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 071905
[31] Serrels K A, *et al.* 2008 *Nat. Photon.* **2** 311
[32] Lee J Y, *et al.* 2009 *Nature* **460** 498
[33] Mason D R, Jouravlev M V, Kim K S 2010 *Opt. Lett.* **35** 2007
[34] Wang Z, *et al.* 2011 *Nat. Commun.* **2** 218
[35] Lukosz W, Marchand M 1963 *J. Mod. Opt.* **10** 241
[36] Heintzmann R, Cremer C 1999 *Proc. SPIE* **3568** 185
[37] Frohn J T, Knapp H F, Stemmer A 2000 *Proc. Nat. Acad. Sci. USA* **97** 7232
[38] Gustafsson M G L, Agard D A, Sedat J W 2000 *Proc. SPIE* **3919** 141
[39] Neil M A A, Juskaitis R, Wilson T 1997 *Opt. Lett.* **22** 1905
[40] Gustafsson M G L., *et al.* 2008 *Biophys. J.* **94** 4957
[41] Schermelleh L, *et al.* 2008 *Science* **320** 1332
[42] Gustafsson M G L 2005 *Proc. Nat. Acad. Sci. USA* **102** 13081
[43] Kner P, *et al.* 2009 *Nat. Methods* **6** 339
[44] Planchon T A, *et al.* 2011 *Nat. Methods* **8** 417
[45] Demmerle J, *et al.* 2017 *Nat. Protoc.* **12** 988
[46] Weisenburger S, Sandoghdar V 2015 *Contemp. Phys.* **56** 123
[47] De Wilde Y, *et al.* 2006 *Nature* **444** 740
[48] Betzig E, Finn P, Weiner J 1992 *Appl. Phys. Lett.* **60** 2484
[49] Betzig E, Chichester R J 1993 *Science* **262** 1422
[50] Trautman J K, *et al.* 1994 *Nature* **369** 40
[51] Xie X S, Dunn R C 1994 *Science* **265** 361
[52] Matsuda K, *et al.* 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 177401
[53] Moerland R J, van Hulst N F 2005 *Opt. Express* **13** 1604
[54] Taminiau T H, *et al.* 2007 *Nano Lett.* **7** 28
[55] Rotenberg N, Kuipers L 2014 *Nat. Photon.* **8** 919
[56] Reddick R, Warmack R, Ferrell T 1989 *Phys. Rev. B* **39** 767
[57] Balistreri M, *et al.* 2001 *Science* **294** 1080
[58] Balistreri M, *et al.* 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 294
[59] Veerman J A, *et al.* 1998 *Appl. Phys. Lett.* **72** 3115
[60] Dunn R C 1999 *Chem. Rev.* **99** 2891
[61] Knoll B, Keilmann F 1999 *Nature* **399** 134
[62] Sánchez E J, Novotny L, Xie X S 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 4014
[63] Gerton J M, *et al.* 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93**180801
[64] Anger P, Bharadwaj P, Novotny L 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 113002
[65] Höppener C, Novotny L 2008 *Nano Lett.* **8** 642
[66] Eghlidi H, *et al.* 2009 *Nano Lett.* **9** 4007
[67] Tam F, *et al.* 2007 *Nano Lett.* **7** 496
[68] Wientjes E, *et al.* 2014 *Nat. Commun.* **5** 4236
[69] Kneipp K, *et al.* 2002 *J. Phys.* **14** R597
[70] Anderson M S 2000 *Appl. Phys. Lett.* **76** 3130
[71] Hayazawa N, *et al.* 2000 *Opt. Commun.* **183** 333
[72] Stöckle R M, *et al.* 2000 *Chem. Phys. Lett.* **318** 131
[73] Hartschuh A., *et al.* 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 095503
[74] Ren B, Picardi G, Pettinger B 2004 *Rev. Sci. Instru.* **75** 837
[75] Yeo B S, *et al.* 2007 *Anal. Bioanal. Chem.* **387** 2655
[76] Zhang W, *et al.* 2007 *J. Phys. Chem. C* **111** 1733
[77] Ichimura T, *et al.* 2007 *J. Phys. Chem. C* **111** 9460
[78] Domke K F, Zhang D, Pettinger B 2006 *J. Am. Chem. Soc.* **128** 147217
[79] Neacsu C C, *et al.* 2006 *Phys. Rev. B* **73** 193406
[80] Pettinger B, *et al.* 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 096101
[81] Steidtner J, Pettinger B 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 236101
[82] Zhang R, *et al.* 2013 *Nature* **498** 82
[83] Knoll B, Keilmann F 2000 *Opt. Commun.* **182** 321
[84] Keilmann F, Hillenbrand R 2004 *Philos. Trans. A* **362** 787
[85] Huth F, *et al.* 2011 *Nat. Mater.* **10** 352
[86] Huth F, *et al.* 2012 *Nano Lett.* **12** 3973

[87] Amenabar I, *et al.* 2013 *Nat. Commun.* **4** 2890
[88] Huth F, *et al.* 2013 *Nano Lett.* **13** 1065
[89] Hermann P, *et al.* 2014 *Opt. Express* **22** 17948
[90] Chen J, *et al.* 2012 *Nature* **487** 77
[91] Fei Z, *et al.* 2012 *Nature* **487** 82
[92] Dai S, *et al.* 2014 *Science* **343** 1125
[93] Li P, *et al.* 2015 *Nat. Commun.* **6** 7507
[94] Jaque D, Vetrone F 2012 *Nanoscale* **4** 430
[95] Michaelis J, *et al.* 2000 *Nature* **405** 325
[96] Ebenstein Y, Mokari T, Banin U 2004 *J. Phys. Chem. B* **108** 93
[97] Wagner C, *et al.* 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 026101
[98] Kühn S, *et al.* 2001 *J. Microsc.* **202** 2
[99] Pendry J B 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 3966
[100] Luo X G, Ishihara T 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 4780
[101] Liu Z W, *et al.* 2007 *Science* **315** 1686
[102] Xiong Y, Liu Z, Zhang X 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 203108
[103] Ren G, *et al.* 2013 *Plasmonics* **8** 1065
[104] Gao P, *et al.* 2015 *Appl. Phys. Lett.* **106** 093110
[105] Ono A, Kato J, Kawata S 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 267407
[106] Ikonen P, *et al.* 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 104102
[107] Shvets G, *et al.* 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 053903
[108] Han S, *et al.* 2008 *Nano Lett.* **8** 4243
[109] Kildishev A V, Shalaev V M 2008 *Opt. Lett.* **33** 43
[110] Tsang M, Psaltis D 2008 *Phys. Rev. B* **77** 035122
[111] Li J, *et al.* 2009 *Opt. Lett.* **34** 3128
[112] Smolyaninov II, *et al.* 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 057401
[113] Hu H, Ma C, Liu Z 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 113107
[114] Wei F F, Liu Z W 2010 *Nano Lett.* **10** 2531
[115] Yuan G, Wang Q, Yuan X 2012 *Opt. Lett.* **37** 2715
[116] Berry M V, Popescu S 2006 *J. Phys. A* **39** 6965
[117] Ferreira P J S G, Kempf A 2006 *IEEE Trans. Sig. Proc.* **54** 3732
[118] Huang F M, *et al.* 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 091119
[119] Huang F M, Zheludev N I 2009 *Nano Lett.* **9** 1249
[120] Rogers E T F, *et al.* 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 031108
[121] Baumgartl J, *et al.* 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 181109
[122] Kosmeier S, *et al.* 2011 *J. Opt.* **13** 105707
[123] Tang D L, *et al.* 2015 *Laser Photon. Rev.* **9** 713
[124] Zhang Y, *et al.* 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 183901
[125] Liu D, Zhang Y, Wen J, *et al.* 2014 *Sci. Rep.* **4** 6134
[126] Huang B, Bates M, Zhuang X W 2009 *Annu. Rev. Biochem.* **78** 993
[127] Chen B C, *et al.* 2014 *Science* **346** 439
[128] Legant W R, *et al.* 2016 *Nat. Methods* **13** 359
[129] Wang H, Han S, Kolobov M I 2012 *Opt. Express* **20** 23235
[130] Nair R, Tsang M 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 190801

SPECIAL ISSUE—Diffraction limit of electromagnetic waves

Brief retrospect of super-resolution optical microscopy techniques*

Hu Rui-Xuan Pan Bing-Yang Yang Yu-Long Zhang Wei-Hua†

(*Collaborative Innovation Center of Advanced Microstructures, National Laboratory of Solid State Microstructures, College of Engineering and Applied Sciences, Nanjing University, Nanjing 210093, China*)

(Received 29 March 2017; revised manuscript received 21 June 2017)

Abstract

In the last few decades, nanoscience and nanotechnology have been growing with breath taking speed, and how to break through the diffraction limit and tame the light on a nanoscale have become the major challenges in optics. In this field, several super-resolution optical nanoscopy techniques have been developed, leading to a series of breakthroughs in physics, chemistry, and life sciences. In the work, we give a retrospect of the newly developed techniques in diffraction theory of linear optical systems, including the solid immersion lens, structured light illumination microscopy, scanning near-field optical microscopy, metamaterial-based wide field near-field imaging technique and super-oscillatory lens. Brief discussion on their principles, advantages and applications is also provided.

Keywords: diffraction limit, spatial frequency, super-resolution

PACS: 42.25.Fx, 07.60.Pb, 07.79.Fc **DOI:** 10.7498/aps.66.144209

* Project supported by the National Key Technologies R&D Program of China (Grant No. 2016YFA0201104), the National Basic Research Program of China (Grant No. 2015CB659400), and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11374152, 11574142, 11621091).

† Corresponding author. E-mail: zwh@nju.edu.cn

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

基于DNA自组装的金属纳米结构制备及相关纳米光子学研究

张祎男　王丽华　柳华杰　樊春海

DNA self-assembly-based fabrication of metallic nanostructures and related nanophotonics

Zhang Yi-Nan　Wang Li-Hua　Liu Hua-Jie　Fan Chun-Hai

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 147101 (2017)　DOI: 10.7498/aps.66.147101
在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.147101
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I14

您可能感兴趣的其他文章
Articles you may be interested in

基于SPPs-CDEW混合模式的亚波长单缝多凹槽结构全光二极管
All-optical diode of subwavelength single slit with multi-pair groove structure based on SPPs-CDEW hybrid model
物理学报.2017, 66(11): 117102　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.117102

Al辐照损伤初期的第一性原理研究
First-principle study of initial irradiation damage in aluminum
物理学报.2017, 66(5): 057104　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.057104

基于表面等离子体耦合的高密度金纳米线阵列
High-density array of Au nanowires coupled by plasmon modes
物理学报.2012, 61(23): 237105　http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.237105

专题: 电磁波衍射极限

基于DNA自组装的金属纳米结构制备及相关纳米光子学研究*

张祎男[1)2)] 王丽华[1)] 柳华杰[1)†] 樊春海[1)‡]

1) (中国科学院上海应用物理研究所, 上海光源生物成像中心, 中国科学院微观界面物理与探测重点实验室, 上海 201800)

2) (中国科学院大学, 北京 100049)

(2017 年 1 月 23 日收到; 2017 年 4 月 19 日收到修改稿)

纳米光子学是研究光在纳米尺度下的行为以及光和纳米材料相互作用的一门科学. 金属纳米材料凭借其独特的表面等离子体效应, 可以在衍射极限以下对光进行传递和聚焦, 因而是纳米光子学研究的重点. 大量研究表明, 通过调控金属纳米材料的形貌和成分可以控制表面等离子体的性质, 从而对光进行可控调节. 近年来, 随着DNA纳米技术的发展, 又为纳米光子学的发展带来了新的机遇. 首先, 人们发现不同的DNA序列可以调控金属纳米颗粒的成长, 从而影响金属纳米颗粒的形貌和成分. 此外, 利用DNA自组装技术, 可以将金属纳米颗粒组装成为有序可控的纳米结构. 因此, 基于DNA的纳米光子学研究近年来发展十分迅速. 在此背景下, 本文对相关研究进行归纳与总结, 以期吸引更多研究人员的关注, 推动该领域的进一步发展. 本文首先介绍了金属纳米结构基于表面等离体实现突破光学衍射极限的原理, 然后按照DNA对金属纳米结构的形貌或成分影响方式的不同分成若干部分, 对基于DNA的纳米光子学做了系统的综述, 最后展望了未来可能的发展方向.

关键词: DNA, 纳米光子学, 表面等离子体, 金属纳米结构

PACS: 71.45.Gm, 71.55.Ak, 82.39.Pj, 82.35.Np **DOI:** 10.7498/aps.66.147101

1 引 言

光的波粒二象性决定其与其他形式的波一样, 都受到衍射极限的限制, 传统的介质透镜无法把光聚焦成小于约 $\lambda/2$ 波长的光斑. 长期以来, 突破光的衍射极限一直是研究人员追求的目标. 2014年诺贝尔化学奖授予Stephen Hell, Eric Betzig和William Moerner, 以表彰其在超高分辨荧光显微镜上的贡献, 他们成功地在生物活体成像中突破了可见光的衍射极限(约200 nm), 获取了分辨率在几十纳米之内的荧光图像. 但突破光学衍射极限的研究并未止步于此. 首先, 超分辨荧光显微镜需要实现荧光在样品表面的标记, 并非所有样品都适合观察; 其次, 对光的应用并不仅局限于超分辨成像, 还在于检测和催化等领域. 因此, 对于突破光的衍射极限的研究仍方兴未艾.

纳米光子学作为光学与纳米技术高度交叉的一个分支, 主要研究金属纳米材料与光的相互作用及对光的调控. 金属纳米材料在光波影响下会产生表面等离子体(surface plasmons, SPs), 可以在极小区域内实现光波的传播和聚焦. SPs是在外部电磁场的影响下, 金属表面的自由电子与振荡频率相同的电磁波产生集体共振, 并进而产生沿金属-介质界面传播的表面波. 由于SPs的存在, 金属纳米

* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2013CB932803)、国家自然科学基金(批准号: 21473236, 31371015)和中国科学院青年创新促进会资助的课题.

† 通信作者. E-mail: liuhuajie@sinap.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: fchh@sinap.ac.cn

© 2017 中国物理学会 Chinese Physical Society

结构可以在亚波长范围内引导光的传播, 并且可以把光聚焦成几纳米区域的高密度态, 实现局域增强, 并且不受衍射极限的限制[1]. 因此, 近些年来纳米光子学的研究受到了广泛的关注.

脱氧核糖核酸(deoxynucleic acid, DNA)是多个脱氧核苷酸的聚合物, 每个核苷酸包括一个脱氧核糖、一个磷酸和一个碱基. 脱氧核苷酸的碱基可分为腺嘌呤(A)、鸟嘌呤(G)、胞嘧啶(G) 和胸腺嘧啶(T)四种, 其中A与T, C与G在氢键作用下特异性地互相配对, 形成了作为遗传物质基础DNA. 在经典的DNA双链结构中, 外侧的磷酸骨架带负电, 而金属离子一般带正电, 因此金属离子和DNA 之间存在静电吸附作用. 根据这个原理, 可以通过设计不同形状的DNA模板进行金属化, 获得形貌可控的金属纳米结构[2]. 此外, 不同DNA碱基与金属具有不同的亲和力, 不同的DNA序列也会形成不同的二级结构. 研究发现, 通过改变DNA的序列可以得到具有特定形貌的金属纳米颗粒[3]. 通过对金属纳米颗粒形貌和组分的调控, 可以影响其表面等离子体的性质, 从而构建出特殊的光学器件, 在衍射极限以下对光谱进行调节. 近年来, DNA 对于金属纳米颗粒生长的调控得到迅速的发展[2−5].

另一方面, 基于碱基互补配对原理, DNA可以自组装构建出形状各异、尺寸可控的各种DNA纳米结构, 以此为模板, 将可以实现不同纳米颗粒的有序排列, 也可以对金属纳米结构进行精确的构建与调控. 20世纪90年代, Alivisatos等[6]和Mirkin等[7]同时提出用巯基标记的DNA修饰金纳米颗粒, 通过DNA自组装形成了纳米金高级结构, 由此揭开了基于DNA 自组装构建金属纳米结构的帷幕. 随着DNA纳米技术[8]的持续发展, 越发复杂和精确的金属纳米结构不断出现[9,10], 并被广泛用于构建特殊的纳米光学器件[11]. 相比于DNA对金属纳米颗粒生长的调控, 基于DNA的自组装可以对数量更多的纳米颗粒同时进行操作, 构建尺寸较大的光学器件, 实现特殊的用途.

无论是DNA对金属纳米颗粒生长的调控, 还是基于DNA自组装对金属纳米颗粒的排列, 两种方式都实现了DNA对金属纳米结构的调控, 即对表面等离子体性质的调控, 从而实现了在衍射极限以下对光的操作. 因此, 基于DNA的纳米光子学已成为相关研究中的热点. 相比之下, 通过化学模板法及纳米光刻技术等化学和物理手段, 虽然也可以制备出某些特殊金属纳米结构[12−14], 但这些方法尚存在一些缺点: 如化学模板法只适用于制备具有高度对称性的结构; 纳米光刻技术受到分辨率的制约, 在制备三维金属纳米结构上也存在较大难度. 而基于DNA自组装技术能够构建出复杂、不对称的金属纳米结构, 并且具有更好的成分可控性. 尤其是通过这种方法, 可以制备出尺寸在亚波长范围内的复杂金属纳米结构, 并且可以实现对结构的精确调控, 从而影响结构表面等离子体的性质, 对该结构的纳米光子学特性进行调控. 随着DNA合成成本的降低, 基于DNA自组装的金属纳米结构将具有更加广阔的应用前景.

本文接下来首先介绍DNA纳米技术的发展, 然后按照DNA对金属纳米结构影响方式的不同, 对基于DNA 的纳米光子学做系统的综述, 涵盖DNA对于金属纳米颗粒生长的影响以及DNA自组装对金属纳米颗粒的排列两个方面, 最后探讨了该领域未来的发展方向. 需要指出的是, 在介绍通过DNA自组装制备金属纳米结构方法的基础上[15,16], 本文并着重强调了这些结构在纳米光子学上的应用, 包括在荧光增强[11]、光学异构性[17]、表面拉曼散射增强(surface-enhanced Raman scattering, SERS)[18]以及暗场散射光谱调节[19]上的应用等.

2 DNA纳米技术

DNA纳米技术是以DNA为基本单元构建纳米组装结构的科学, 与传统上仅将DNA视为遗传信息载体的思路不同, DNA纳米技术主要着眼于DNA单双链的力学参数, 以DNA的碱基互补配对为基础, 通过合理的结构设计形成有一定刚性的DNA纳米结构. 自从20世纪80年代由Seeman等[20] 提出以来, 已经发展出种类繁多的DNA纳米结构, 主要可以分为DNA tile[21]和DNA折纸[22,23]两大类. 基于这些DNA纳米结构, 实现了对金属纳米结构的更高层次的调控, 极大推进了基于DNA的纳米光子学的发展.

2.1 DNA tile

DNA tile[24−30]由几条至几十条短链(几十个碱基)按照化学等比例退火合成, 尺寸一般从几纳

米到几十纳米不等. 20世纪80年代, Seeman等从基因同源重组的Holliday中间体受到启发, 设计了一种称为“四臂结”的简单但有开创性的结构, 它是由四条DNA单链依次互补配对而成, 每条链不是与另外一条完全结合, 而是与其他多条链结合, 同时Seeman还设想把四臂结的每一臂都伸出一个黏性末端并两两互补, 则有可能连成大的网状结构, 这些构成了DNA tile设计和自组装的基本思想. 经过多年的发展, DNA tile已经衍生出众多系列, 比如n臂结[27,28], DX[25], TX[29], 4 × 4 tile[30]以及单链tile等[31] (图1 (a)— 图1 (d)). 与后来出现的DNA折纸相比较, DNA tile合成要求较高, 需要参与合成的短链间较为精确的化学计量比. 在实际应用中, DNA tile通常借助彼此之间的相互连接形成较大的二维结构, 并在特定位点伸出序列用于不同纳米物体的有序排布.

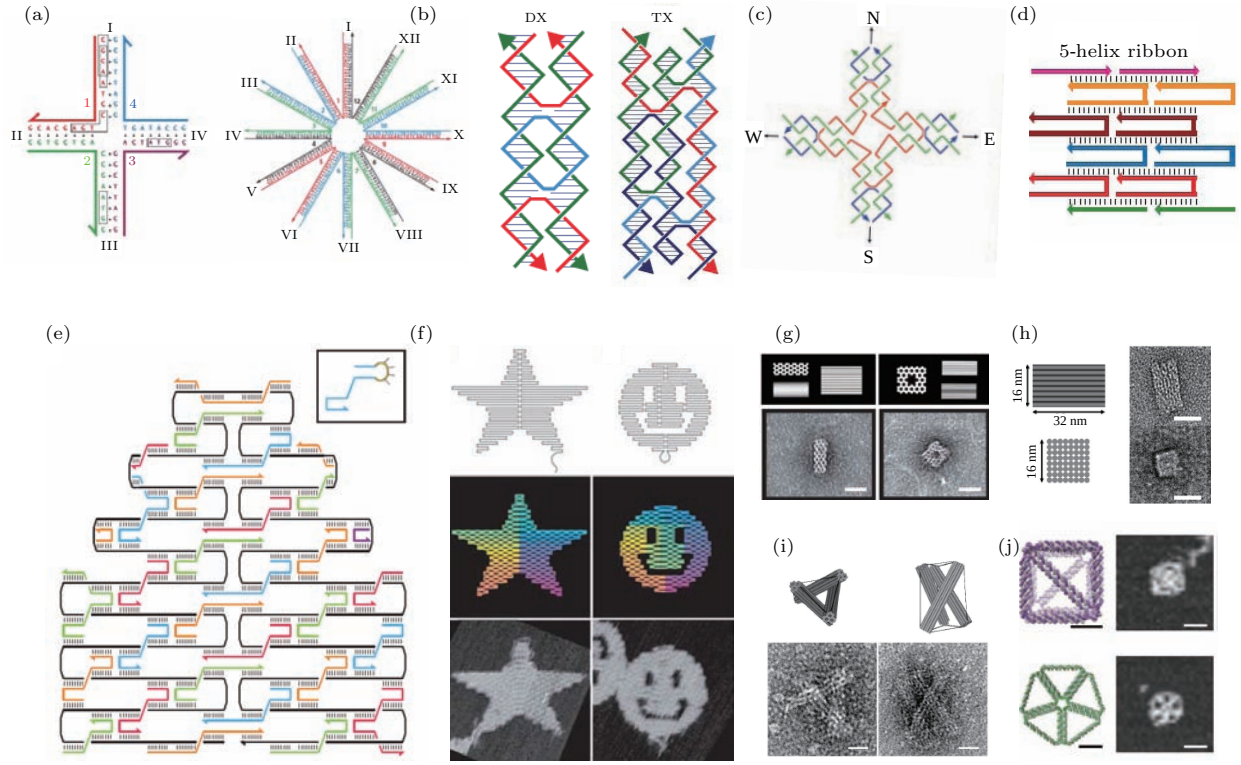


图1 DNA tile和DNA折纸结构 (a) DNA四臂结和十二臂结[27,28]; (b) DX tile[25]和TX tile[29]; (c) 4 × 4 tile[30]; (d) 单链tile[31]; (e) DNA折纸的设计图[22]; (f) 一些二维DNA折纸的原子力显微照片[22]; (g) 基于“蜂窝”网格模型[32]的三维DNA折纸设计(上)和铀染电镜图(下); (h) 基于立方网格模型[33]的三维DNA折纸设计(上)和铀染电镜图(下); (i) DNA折纸全张力结构[34]; (j) 三维框架网格DNA折纸[35]

Fig. 1. DNA tile and DNA origami: (a) DNA 4-arm and 12-arm junctions[27,28]; (b) DX tile[25] and TX tile[29]; (c) 4 × 4 tile[30]; (d) single-strand DNA tile[31]; (e) the details of DNA origami design[22]; (f) two-dimensional DNA origami fabricated by Rothemund[22]; (g) the design (top) and stained TEM images (bottom) of three-dimensional DNA origami based on honeycomb lattice model[32]; (h) the design (top) and stained TEM images (bottom) of three-dimensional DNA origami based on square lattice model[33]; (i) DNA tensegrity structures[34]; (j) three-dimensional DNA meshes[35].

2.2 DNA 折纸

DNA折纸是由一条较长的骨架链(一般取自病毒单链DNA, 几百到几千碱基)和数十至数百条订书链(几十个碱基)共同退火而成的一种DNA结构[22], 尺寸一般在几十纳米到上百纳米, 由Rothemund于2006年发明. 该技术的原理是: 用上百条短链与一条长链进行杂交, 通过对长链的来回折叠形成纳米结构的基本轮廓, 从而最终构建出特定形状的DNA纳米结构(图1 (e),(f)). 由于短链只与长链杂交而彼此间没有相互作用, 该方法避免了类似DNA tile制备过程中苛刻化学计量比的限制, 而且所用的长链可来自商业化的M13 mp18噬菌体. 同时由于DNA双链本身的刚性和彼此间的协同作用, DNA折纸具有良好的力学性质. DNA折纸的发明对DNA纳米技术领域产生了深远的影响, 并

得到了迅速的发展.

此后, 更加复杂的DNA折纸构建原理也相继被提出. Douglas等[32]设计了“蜂窝”网格模型, 将DNA折纸从二维的平面结构发展为三维的立体结构(图1(g)). Ke等[33]提出了立方网格模型, 以另外一种方式实现了三维DNA折纸结构的构建(图1(h)). 此外还有DNA折纸全张力结构[34]和最近出现的三维框架网格结构等[35,36](图1(i),(j)). 不断提出的新型DNA折纸结构为DNA纳米排布提供了丰富的模板, 极大地促进了DNA纳米技术及相关领域的发展.

3 DNA对金属纳米颗粒生长的调控

根据作用机理的不同, DNA与金属离子间的相互作用可归为两种: 一种是带负电的DNA骨架与金属离子间的静电相互作用, 另一种是DNA碱基或二级结构与金属离子间的配位作用. 通过调节这些相互作用, 可以调控金属离子在DNA结构中的分布, 在还原剂作用下可以得到形貌可控的金属纳米颗粒或结构. 近年来越来越多的研究表明, DNA对金属纳米颗粒的形貌控制行之有效, 甚至能发挥类似“基因密码”的作用.

3.1 DNA对金属纳米颗粒表面形貌的影响

将DNA链与金属纳米颗粒种子一起孵育时, 由于与种子间的相互作用, DNA倾向于吸附在种子表面. 当发生氧化还原反应时, 溶液中金属离子将不断地在种子表面被还原, 而吸附的DNA会对纳米颗粒的最终形貌产生影响. 根据DNA序列的不同其产生的影响也不同, 通过改变与金属纳米颗粒种子共孵育的DNA序列, 可以对金属纳米颗粒的最终形貌进行调控, 从而控制金属纳米颗粒的光学性质.

Wang等[37]分别将A30, T30, C30三种DNA链与纳米金种一起孵育, 然后通过纳米金的再生长研究了不同序列对纳米金形貌的影响. 他们发现T30对纳米金的生长没有影响, 而A30, C30会诱导形成纳米金花, 其紫外可见吸收光谱(ultraviolet-visible absorption spectroscopy, UV-Vis)完全不同. 在此基础上, 他们通过观察与不同DNA序列组合孵育并进行再生长后纳米金形貌的演变, 发现了不同DNA序列对于纳米金生长的影响, 以及这些序列彼此间对纳米金生长的协同和竞争作用, 提出了决定纳米金形貌的“基因密码”理论[3](图2(a)). Song等[5]将纳米金棒种子与A20, T20, C20, G20四种DNA链一起孵育, 然后通过纳米金棒的再生长合成了不同的各向异性结构. 他们发现与纳米金棒种子孵育的DNA序列及其排列组合以及改变生长时间, 都将影响最终产物的形貌结构, 并进而影响其紫外可见吸收光谱(图2(b)). 而Tan等[38]采用相同的方法探究了A30, T30, C30, G20四种DNA链对于纳米金三角生长的影响, 并以T30为例, 观察了随还原时间不同导致的UV-Vis变化, 获得了DNA浓度和$HAuCl_4$浓度对产物最终形貌的影响规律(图2(c)). Wu等[39]还将这种思路沿用在研究DNA序列对纳米银颗粒生长的影响, 发现除G10外, A10, T10, C10均可以使立方体状的银纳米种子生长成为顶点截断的八面体, 对应的UV-Vis发生了明显的变化.

最近, Satyavolu等[40]还研究了不同DNA序列对于铂金二元纳米颗粒生长的影响, 他们以铂的纳米立方颗粒为种子, 分别加入A10, T10, C10, G10四种DNA链, 观察了铂金纳米颗粒的最终形貌. 他们通过紫外可见吸收光谱、扫描电子显微镜(scanning electron microscope, SEM)和扫描透射电子显微镜(scanning transmission electron microscopy, STEM)对纳米颗粒生长的动力学进行了探究, 认为DNA通过影响金属原子在铂种子上的扩散和吸附影响纳米颗粒的最终形貌. 他们的研究表明, DNA对于纳米颗粒形貌的控制不仅适用于单一组分体系, 也可拓展到二元金属体系中, 制备出具有特殊性质的表面等离子体的复合纳米材料, 形成独特的光学性质.

以上工作采用的方法均是将DNA序列与金属纳米颗粒种子通过非共价吸附. 与之不同, Shen等[41]研究了巯基修饰的A30序列对纳米金生长的调控, 在他们的研究中, DNA通过金硫键作用共价连接在纳米金种子上. 他们发现, 在还原剂过量的情况下, 通过改变金前驱体($AuCl_4^-$)的浓度, 可以得到形貌可控的纳米金花结构(图2(d)). 由于在该反应中$AuCl_4^-$的浓度是影响纳米金花结构的惟一因素, 因此他们将五种不同$AuCl_4^-$浓度下形成的纳米金花结构分别视为逐步提高$AuCl_4^-$浓度过程中五个阶段对应的中间产物, 并通过小角X

射线散射 (small-angle X-ray scattering, SAXS) 和 TEM 表征模拟了纳米金花结构的生长过程. 他们的研究表明, 在前三个阶段随着 $AuCl_4^-$ 浓度的提高, "花瓣" 开始出现并逐渐生长, 但在第四个阶段 "花瓣" 开始变钝并且不同 "花瓣" 间发生融合, 当进入第五个阶段时结构表面已经基本平滑.

通过 DNA 对金属纳米种子生长过程中的影响, 可以得到高度不对称的金属纳米结构, 这在一般的湿法合成中是难以实现的. 这些不对称金属纳米结构上可形成特殊性质的表面等离子体, 因而具有独特的光学特性, 可用于制备特殊用途的纳米光子学器件.

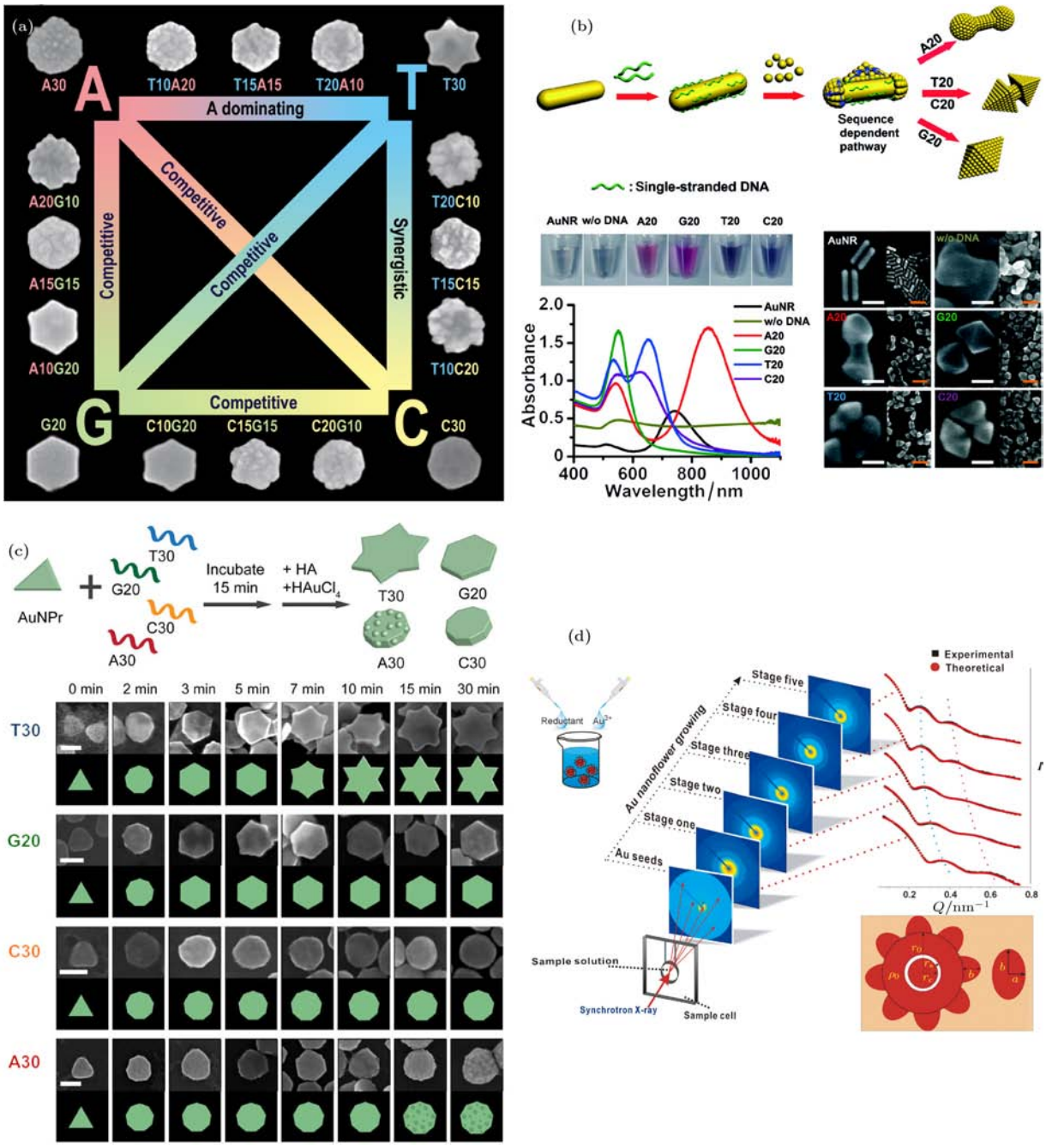


图 2 DNA 对金属纳米颗粒表面形貌的影响 (a) 不同 DNA 序列对纳米金形貌的影响 [3]; (b) DNA 调控纳米金棒的形貌和光学性质 [5]; (c) DNA 对金三角生长的影响 [38]; (d) DNA 调控纳米金生长过程的 SAXS 表征 [41]

Fig. 2. Effect of DNA on the morphology of metal nanoparticles: (a) Effect of DNA sequence on the morphology of gold nanoparticles [3]; control of geometric and plasmonic properties of gold nanorods [5] (b) and gold prisms [38] (c) with DNA; (d) tuning the SAXS spectra of gold nanoparticles mediated by DNA-induced morphological changes [41].

3.2 DNA介导的金属纳米颗粒定向生长

除了DNA序列不同对金属纳米颗粒生长的调控作用以外, 研究还发现, 通过调节外部反应环境, 可以实现DNA包覆金属纳米颗粒的进一步定向生长. 在此过程中, 如果使用另一种金属离子进行定向生长, 将可获得二元有序复合金属纳米颗粒结构, 如二聚体、核壳结构等, 这些复杂有序结构普遍具有较为独特的光学性质.

Lee等[4]在巯基DNA修饰的纳米金上继续生长银纳米颗粒, 构造出了特殊的纳米"雪人"结构(图3(a)). 通过控制银纳米颗粒生长过程中的盐浓度, 可以对生长出的银纳米颗粒尺寸进行调节, 在高盐浓度下银倾向于包覆金纳米颗粒形成核壳结构, 降低盐浓度后银在金纳米颗粒上占据的面积逐渐减小, 形成类似雪人的二聚体结构, 其紫外可见吸收光谱不断发生变化. 通过在金颗粒尚未被银包覆的区域杂交小纳米金结构, 他们还构建了不同的卫星结构. 基于这种具有独特性质的表面等离子体的金银二聚体结构, 他们在结构的缝隙处连接了不同的拉曼染料分子, 研究了不同的二聚体结构对其拉曼散射的增强作用[42]. 他们通过控制盐浓度对金银二聚体结构中银纳米颗粒的粒径进行了调节, 制备出不同缝隙的金银二聚体结构, 并且研究了不同缝隙对于表面拉曼散射增强的影响.

Shen等[43]则通过DNA的调控合成了独特的金银二聚体"香菇"结构, 他们在纳米金表面修饰标记有拉曼分子的巯基DNA, 然后, 除去胶体中的NaCl, 通过在纳米金表面继续生长纳米银得到了目标结构(图3(b)). 在金银二聚体的缝隙处存在着局域增强的电场, 会对DNA上的拉曼分子信号产生极强的增强作用. 在没有除去NaCl而直接在纳米金表面生长纳米银时, 最终得到的结构中则没有缝隙, 因而无法产生表面拉曼散射增强作用. 他们还研究了纳米金种子的粒径和DNA修饰密度对最终结构和拉曼散射增强的影响, 探索了香菇结构的形成机理.

Xu等[44]发现在形成金银二聚体结构后, 还可以通过氧的刻蚀作用对银纳米颗粒的尺寸进行控制, 使二聚体结构的表面等离子体性质发生改变, 从而调节结构的紫外可见吸收光谱. 另外他们还研究了温度、NaCl浓度以及刻蚀时间三种变量对结构及光谱影响的规律, 并且发现当完全刻蚀掉纳米银后, 其表面修饰的DNA会保留在残留的纳米金表面, 通过这种方法他们构建出了各向异性的金属纳米卫星结构.

通过DNA的介导可以形成特殊的金属核壳结构, 该结构有特殊的紫外可见吸收光谱, 此外在内部的核和外层的壳之间的缝隙中存在强大的区域增强电场, 对该处拉曼分子的散射信号有极强的增强作用.

Lim等[45]在纳米金表面修饰上一层标记拉曼分子的巯基DNA, 然后通过再生长将这层DNA包在里面形成核壳结构. 通过改变拉曼分子在DNA上标记的位置, 可以改变其在核壳结构中的位置, 他们发现当拉曼分子在缝隙区时其拉曼散射增强最为明显, 内核其次而外层最弱. 他们还分别观察了核壳结构缝隙中不同拉曼分子的数目以及不同壳层厚度下的拉曼散射光谱, 发现了两者对拉曼信号强度影响的规律.

Zhao等[46]用含有连续腺嘌呤核苷酸的双嵌段DNA修饰纳米金, 由于腺嘌呤核苷酸对纳米金具有良好的吸附性, 含有连续腺嘌呤核苷酸的一段吸附在纳米金表面, 而另外一段DNA 伸向纳米金外侧(图3(c)). 然后, 他们将拉曼分子吸附在纳米金表面, 并通过还原在纳米金表面生长出一层金壳, 留在核壳结构缝隙处的拉曼分子在局域增强电场中其散射信号极大地增强. 他们选用五种不同的拉曼分子, 并在核壳结构中分别观察到对应的散射特征峰, 接着他们在标记不同拉曼分子的核壳结构外修饰了不同的探针链, 对于三种不同亚型的肝炎病毒DNA及其组合进行了检测, 对于每种肝炎病毒亚型得到了特征的表面拉曼散射增强信号.

Hu等[47]用类似的办法, 以15 nm的金纳米颗粒为核制备了缝隙在1.1 nm左右的纳米核壳结构(图3(d)). 他们在核壳结构的缝隙中标记有荧光分子, 研究了其拉曼信号增强的程度与金纳米颗粒粒径的关系, 发现当金纳米颗粒粒径为76 nm时拉曼增强达到峰值. 他们还在金纳米颗粒外修饰可与癌症相关表面受体CD44特异识别的透明质酸, 将核壳结构作为特异性探针, 实现了对癌细胞在荧光、暗场和拉曼散射模式下的多重成像.

Li等[48]则在前列腺特异抗原(PSA)小球外组装一层银纳米颗粒, 然后标记上拉曼分子, 接着在外面生长一层SiO_2形成核壳结构. 他们在核壳结

构外修饰探针DNA, 每种 DNA 序列对应标记的特定拉曼分子, 由此构建出特异性的纳米SERS探针, 根据拉曼散射特征峰即可以分辨出探针的种类. 他们通过这种SERS探针成功地实现了对不同靶标DNA的检测.

通过DNA的影响在金属纳米种子生长形成二聚体或者核壳结构, 在结构中的缝隙处由于表面等离子体的作用可以形成局域增强的电场, 对于荧光及拉曼信号具有较强的放大作用, 在检测等领域具有巨大的应用前景.

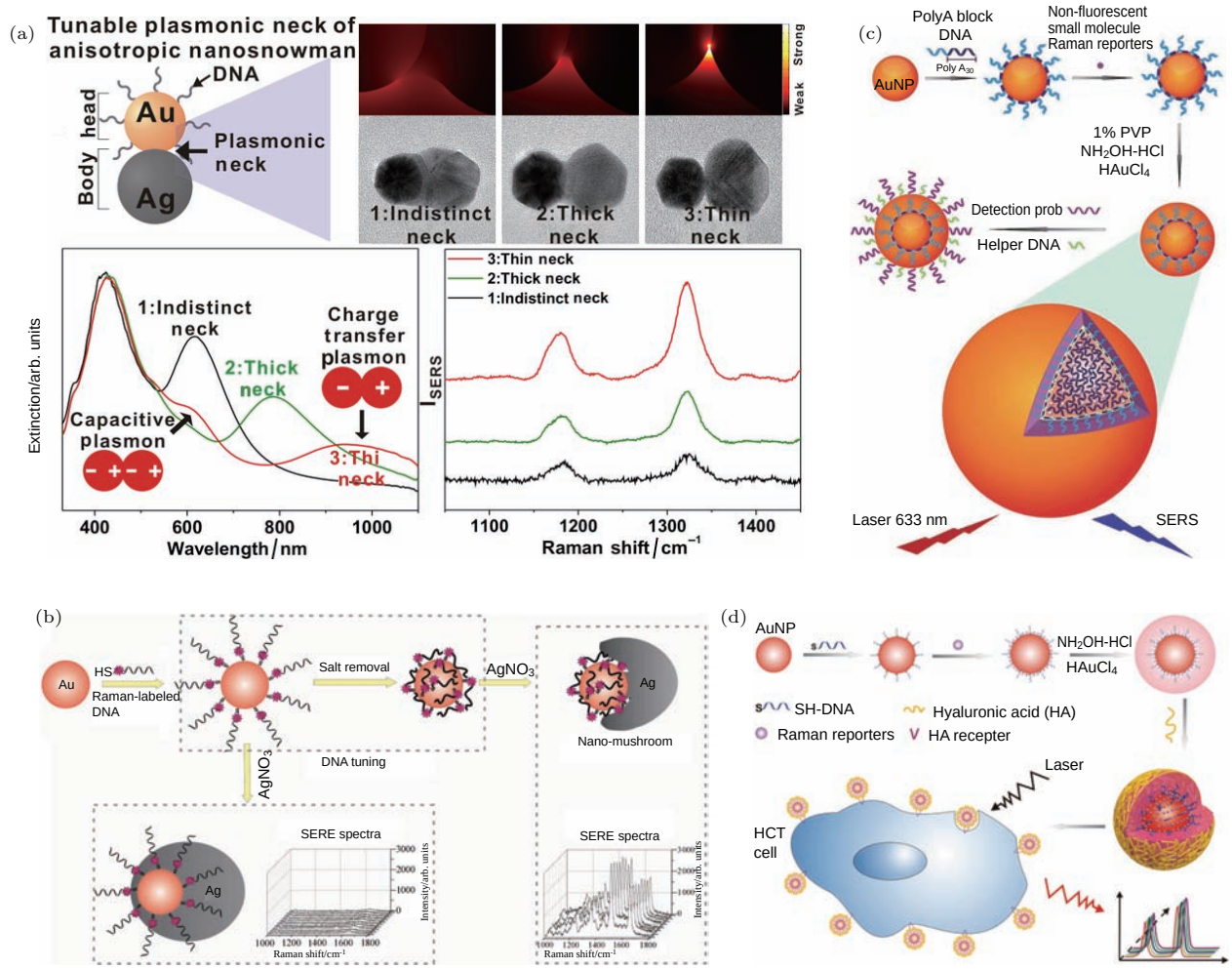


图3 DNA介导金属纳米结构构建及其纳米光子学性质 (a) 金银二聚体纳米“雪人”结构[42]; (b) 金银二聚体“香菇”结构[43]; (c) DNA介导的核壳结构[46]; (d) DNA介导形成的核壳结构拉曼探针[47]

Fig. 3. Nanophotonic devices fabricated through DNA-mediated metallic nanostructures: (a) “Nanosnowmen” structures for SERS[42]; (b) DNA-mediated Au-Ag heterodimers[43]; (c) DNA-mediated core-shell structures[46]; (d) DNA-mediated SERS probes[47].

3.3 DNA为模板的金属化

由于DNA链与金属离子间的相互作用以及DNA结构形状的可设计性, 用DNA结构为模板可以实现对于金属纳米结构的形状控制, 进而实现纳米光子学性质的调控. 这种方法对于金属的种类没有特殊限制, 具有广泛的适用性, 甚至可以用于生长多元金属纳米结构. 常用的DNA模板包括DNA双链、DNA tile以及DNA折纸等.

DNA双链作为最简单的DNA结构, 常被用作DNA金属化的模板使用. Braun等[2]在金电极表面修饰了特定序列的DNA单链, 用以将一条DNA双链组装在两极之间. 然后他们在该DNA双链上吸附Ag^+, 并加入对苯二酚作为还原剂, 沿DNA双链模板生长银纳米线, 最终将两极连接起来. Monson和Woolley[49]在硅片表面修饰带正电的多聚赖氨酸, 然后将DNA双链吸附在硅片表面上, 紧接着在吸附DNA的区域滴加Cu^{2+}, 使DNA双链上吸附大量的Cu^{2+}, 此时在硅片上加入抗坏血酸作为

还原剂, 吸附在DNA链上的Cu^{2+}被还原为Cu^0, 他们通过这种方法制备出约3 nm高的Cu纳米线. Gu等[50]则先在DNA双链上吸附Pd^{2+}, 然后以二甲基胺硼烷(dimethylamine broane, DMAB)作为还原剂沿着DNA双链生长出Pd晶核, 在洗去多余的Pd^{2+}后再加入Co^{2+}, 通过Pd的催化在DMAB还原作用下生长Co纳米线(图4(a)). 随着Co纳米线的生长, 其紫外可见吸收光谱发生变化, 基于这种变化他们对Co纳米线的生长过程进行了跟踪.

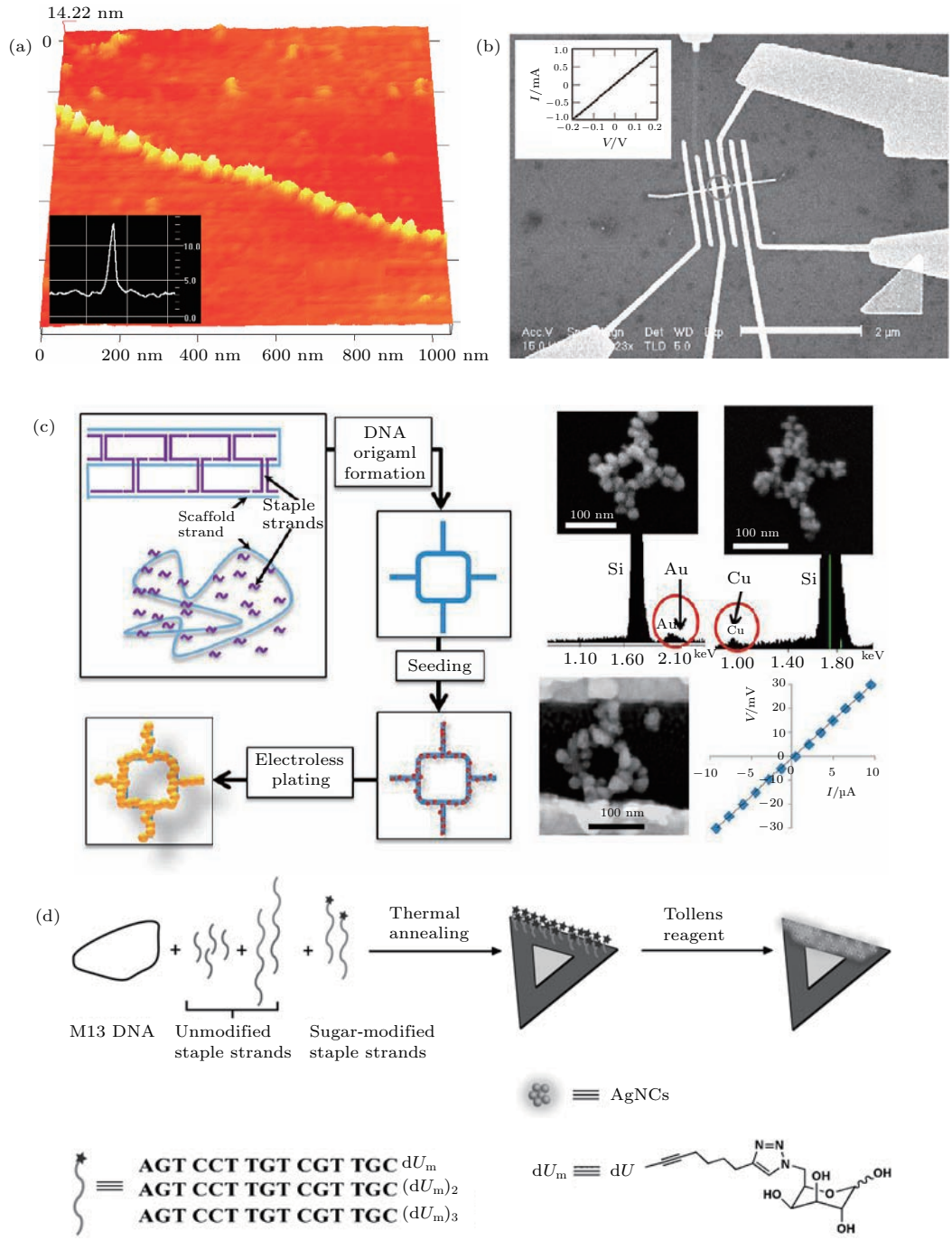


图4 以DNA为模板的金属化 (a) 以DNA双链为模板金属化形成的Co纳米线[50]; (b) 对4 × 4 tile金属化形成银纳米线[30]; (c) 基于回路状DNA折纸金属化形成金和铜的回路状纳米结构[53]; (d) 直接在三角DNA折纸上金属化形成银纳米簇[55]

Fig. 4. DNA-templated metallization: (a) Cobalt nanowires fabricated with double-stranded DNA template[50]; (b) silver nanowires prepared with a 4 × 4 tile ribbon template[30]; (c) DNA origami-templated Au and Cu nanostructures with a circuit-shape[53]; (d) direct metallization on a triangular DNA origami[55].

随着DNA tile和DNA折纸的出现, 基于DNA的金属化开始以DNA tile和DNA折纸作为模板, 形成特定形状的金属结构. Yan等[30]利用4 × 4 DNA tile的自组装形成了微米尺度的DNA带, 将DNA带吸附在电极之间, 然后以DNA带为模板进行金属化合成银纳米线, 使电极形成回路(图4(b)). Liu等[51]采用DNA TX tile作为模板, 基于类似的方法也生长出银纳米线, 并测出了其伏安曲线.

更多的工作选择易合成的DNA折纸作为金属化模版. Liu等[52]设计了一种T形DNA折纸, 并沿DNA折纸生长出了T形的金纳米颗粒聚集体. 他们首先在DNA折纸表面生长出Pd种子, 通过多次生长提高了Pd种子在DNA折纸表面的密度, 然后在Pd种子的催化作用下通过氧化还原反应在DNA折纸表面生长出致密的金纳米结构. 他们将这种思路沿用在回路状DNA折纸的金属化上[53], 先在DNA上生长Ag种子, 然后继续生长出了回路形的金或铜纳米结构(图4(c)).

Pilo Pais等[54]采用了不同的方法. 他们先在DNA折纸上组装纳米金, 然后以这些纳米金作为种子在表面生长纳米银, 随着银纳米颗粒的不断生长, 纳米颗粒逐渐变大并发生融合, 通过这种方法构建出了包括环形、H形在内的不同金属纳米结构. Pal等[55]则是直接将还原基团特异性地连接在三角DNA折纸的一边, 这样在加入银氨溶液后, 银的还原只发生在修饰还原基团的区域, 从而在三角DNA折纸上定点形成了具有荧光性质的银纳米簇(图4(d)), 他们比较了在三角DNA折纸上形成的银纳米簇和游离DNA上还原基团形成的银纳米簇两者之间荧光发射和激发光谱的不同.

基于DNA模板进行金属化可以发挥DNA模板形状可控的优势, 得到形状同样可控的金属纳米结构, 但目前金属化得到的结构在尺寸控制上较为粗糙, 且多局限于简单的一维或者二维结构, 在控制的精确性以及三维尺寸控制方面尚存在较大困难.

4 DNA指导金属纳米结构自组装

除了直接调控金属纳米颗粒的生长以外, DNA还可以指导金属纳米颗粒的自组装, 以DNA结构为模板可以实现不同纳米颗粒之间的有序排列, 此外通过调节金属纳米颗粒表面修饰的DNA密度, 也可以构建出有序的结构, 实现特殊的纳米光子学性质.

4.1 基于DNA tile的金属纳米结构自组装

DNA tile尺寸较小, 但可通过设计调节tile间的相互识别获得有限大小的tile图案或无限延展的tile阵列, 因而可以进一步作为组装金属纳米颗粒的模板. 2002年, Xiao等[56]首先用DX阵列实现了纳米金的有序排列, 他们先合成了4种DX tile, 其中一种用巯基连接一个纳米金颗粒, 通过4种tile杂交形成DX阵列形成条纹状纳米金排列. 按照类似的思路, Zheng等[57]用DX三角阵列和Sharma等[58]用4 × 4 tile阵列实现了不同的纳米金排布. John等[59]将纳米金杂交在一种DX tile上, 通过几种DX tile形成DX阵列也实现了纳米金的条纹排列. Zhang等[60]先合成了4 × 4 tile的网格结构, 然后通过加入与网格特定位点伸出序列互补的纳米金实现了等间距的纳米金二维排列.

随着DNA纳米技术的发展, 出现了一些尺寸较大的DNA tile, 在单个DNA tile或者有限几个DNA tile上可以实现金属纳米颗粒的有序排布. Zhang等[61]利用N角星系列通用tile分别组装出四面体、八面体和十二面体的DNA笼子, 可以装入不同数目的金纳米颗粒. 他们还在笼子外面组装纳米金, 形成了类似CH_4, SF_6, $W(CH_3)_6$等多种小分子结构的金属纳米结构[62]. 有些工作在实现金属纳米颗粒有序排布的同时, 还能对结构进行动态的调节. Aldaye和Sleiman[63]合成了一种有机杂化DNA环, 将纳米金组装成数量可控的聚集体, 并且通过DNA链置换可实现纳米金的动态可控解离与重新组装. Elbaz等[64]则合成了环环相扣的DNA纳米结构, 可以选择性地在不同的环上组装纳米金, 通过链置换反应控制DNA环的构型, 进而对金属纳米结构进行动态调控.

通过金属纳米结构的可控调节, 可以实现特殊性质的表面等离子体, 从而在衍射极限以下实现对光的改变. Ding等[65]则将三个不同粒径的纳米金成线性组装在加长的TX tile上, 构建出了纳米尺寸的光透镜. Sharma等[66]将纳米金共价连接在一种DX tile上, 通过几种tile组装形成DX阵列, 由于纳米金的位阻排斥作用, DX阵列卷曲成为柱状,

从而形成左旋螺旋线型的纳米金排列, 通过改变DX tile相连的方式可以形成不同螺旋构象的纳米金排列(图5(a)).

4.2 基于DNA折纸的金属纳米结构自组装

DNA折纸通常用于合成尺寸在几十至上百纳米的DNA纳米结构[22], 由于产率高、易合成、刚性好、可控性好, 已经成为DNA纳米技术研究的主要对象. 伴随着DNA折纸的蓬勃发展, 以DNA折纸为模板的自组装金属纳米结构及其纳米光子学研究迅速兴起.

2008年, Sharma等[67]用双巯基标记的订书链制备了单修饰的纳米金, 这些单修饰的纳米金与其他订书链一起和骨架链退火可以合成含有纳米金图案的方块DNA折纸, 纳米金在方块DNA折纸上的位置对应着修饰在纳米金上订书链在折纸上的位置. 由于双巯基修饰在较高温度下的稳定性, 单修饰纳米金可以承受DNA折纸退火合成的温度, 最终合成的DNA折纸中纳米金的连接效率在90%以上.

更多的研究中使用DNA修饰的纳米金与DNA折纸上伸出链的直接杂交. Ding等[68]直接将5个三种不同粒径的纳米金杂交到三角DNA折纸上的特定位置, 形成对称的线性排列. Pal等[69]则在三角DNA折纸的一条边上杂交了不同数目的银纳米颗粒, 形成了不同的银纳米结构, 还实现了金银纳米二聚体的组装. Pal等[70]还实现了各向异性纳米结构在DNA折纸上的组装, 他们在三角DNA折纸的一边组装了两个40 nm × 12 nm的纳米金棒, 通过改变金棒在折纸上的组装位置, 可以精确地调节纳米金棒的二聚体结构和对应的紫外可见吸收光谱. 而Schreiber等[71]提出另一种思路, 在柱状DNA折纸上组装不同数量的纳米金或纳米银粒子, 然后将柱状DNA折纸组装在大粒径纳米金上, 他们通过这种方法构造出了众多的卫星结构.

由于DNA折纸自组装的金属纳米结构具有极好的可控性, 并且可以实现大尺寸金属纳米颗粒的自组装, 因而被广泛应用于构建亚波长光学器件, 在表面等离子体的作用下实现荧光增强[11]、光学活性[17]、表面拉曼散射增强[18]以及调节结构散射光谱等[19]用途.

Acuna等[11]在一个柱状DNA折纸两侧组装了一对金纳米颗粒构成纳米天线, 在激光照射下纳米天线缝隙处在表面等离子体作用下形成局域增强的电场(图5(b)). 他们在缝隙处组装上荧光分子, 研究了在23 nm的固定缝隙宽度下荧光增强与纳米金数目和粒径的关系, 发现在一对100 nm的纳米金中荧光增强可以达到117倍的峰值. Puchkova等[72]沿用相同的思路, 通过改进DNA折纸的尺寸, 进一步减小缝隙的尺寸, 改变入射光的偏振方向以及使用淬灭剂降低荧光产率的方法, 极大地提高了缝隙处的荧光增强倍数(超过5000倍), 在25 μM的背景荧光分子浓度下实现了单分子荧光检测. Ko等[73]则在一个方块DNA折纸上同时组装纳米金和量子点, 通过控制量子点周围纳米金的数量以及与纳米金间的相对位置, 实现了对量子点荧光寿命的调整, 并与模拟结果符合较好. Pellegrotti等[74]则利用纳米金与荧光分子之间的作用, 研究了在激光照射下荧光分子的漂白过程受纳米金粒径的影响. 他们在柱状DNA折纸上标记了一个荧光分子和一个金纳米颗粒, 两者的距离保持在8.5 nm, 通过改变纳米金的粒径, 记录了荧光漂白前发射光子数的变化, 发现20 nm及以下的纳米金对于荧光漂白过程几乎没有影响, 而80 nm的纳米金由于产生的电场增强较强, 会使荧光分子在漂白前发射超过前者4倍数量的光子.

Kuzyk等[17]在柱状DNA折纸上组装纳米金的螺旋结构(图5(c)), 构建出具有光学活性的结构, 通过改变纳米颗粒的粒径和成分, 可以对圆二色光谱进行调节, 得到与模拟结果重合较好的圆二色谱信号. 同样是构建光学活性器件, Lan等[75]则是在方块DNA折纸上下两面分别组装一个纳米金棒, 两个金棒相互垂直, 通过调节两个金棒间的相对位置可以得到不同的圆二色谱信号. Urban等[76]在DNA折纸的设计上做出了改进, 他们合成了一种弧形DNA折纸, 将四个弧形折纸拼接成一个环形, 然后在环形结构上沿螺旋线杂交纳米金, 他们通过这种方法组装出了具有不同光学活性的结构. 2017年, Shen等[77]合成了一种包括纳米金球和金棒的新型手性结构, 他们将纳米金棒包裹在卷曲的方块DNA折纸中, 然后在DNA折纸表面沿螺旋线杂交一圈纳米金球, 得到了纳米金球沿纳米金棒的螺旋排列, 通过改变纳米金球螺旋排列的走向即可形成光学活性相反的结构.

Zhang 等[78] 在构建光学活性结构时采用了较为独特的方法. 他们首先将三角 DNA 折纸每条边中点桥接上一段特定序列的 DNA, 然后通过链置换反应将这些 DNA 原位转印到一个大粒径金纳米颗粒上, 接着利用该纳米金的转印 DNA 去分别杂交修饰互补 DNA 的不同粒径纳米金, 这样便形成了一个纳米金的金字塔结构, 因为每个顶点纳米金的粒径皆不相同, 所以该结构具有光学活性, 通过调节三角 DNA 折纸上伸出序列的相对位置, 即可得到不同光学活性的结构.

此外, Kuzyk 等[79] 还制备出光学活性可变的金属纳米结构, 实现了对于光的动态调控. 他们将两根金棒分别组装在两个交叉的柱状 DNA 折纸上, 通过链置换反应可以改变两个柱状 DNA 折纸的相对角度, 随之改变两根金棒的相对构型, 使表面等离子体的性质发生变化, 从而产生不同的圆二色谱信号. Zhou 等[80] 则是在 DNA 折纸的一面组装一根金棒, 然后在另外一面组装另一根金棒, 并通过链置换反应驱动一根金棒的滚动, 来不断改变结构的手性, 得到不断变化的圆二色谱. 而 Urban 等[81] 基于同样的原理, 在一面组装金棒的同时, 实现了两根金棒在另一面的同时滚动, 由此不断改变结构的构型来实现光谱的调节. 这些工作都通过 DNA 折纸为模板的自组装形成独特的金属纳米结构, 在衍射极限以下通过表面等离子体的作用观察到了纳米结构的细微变化.

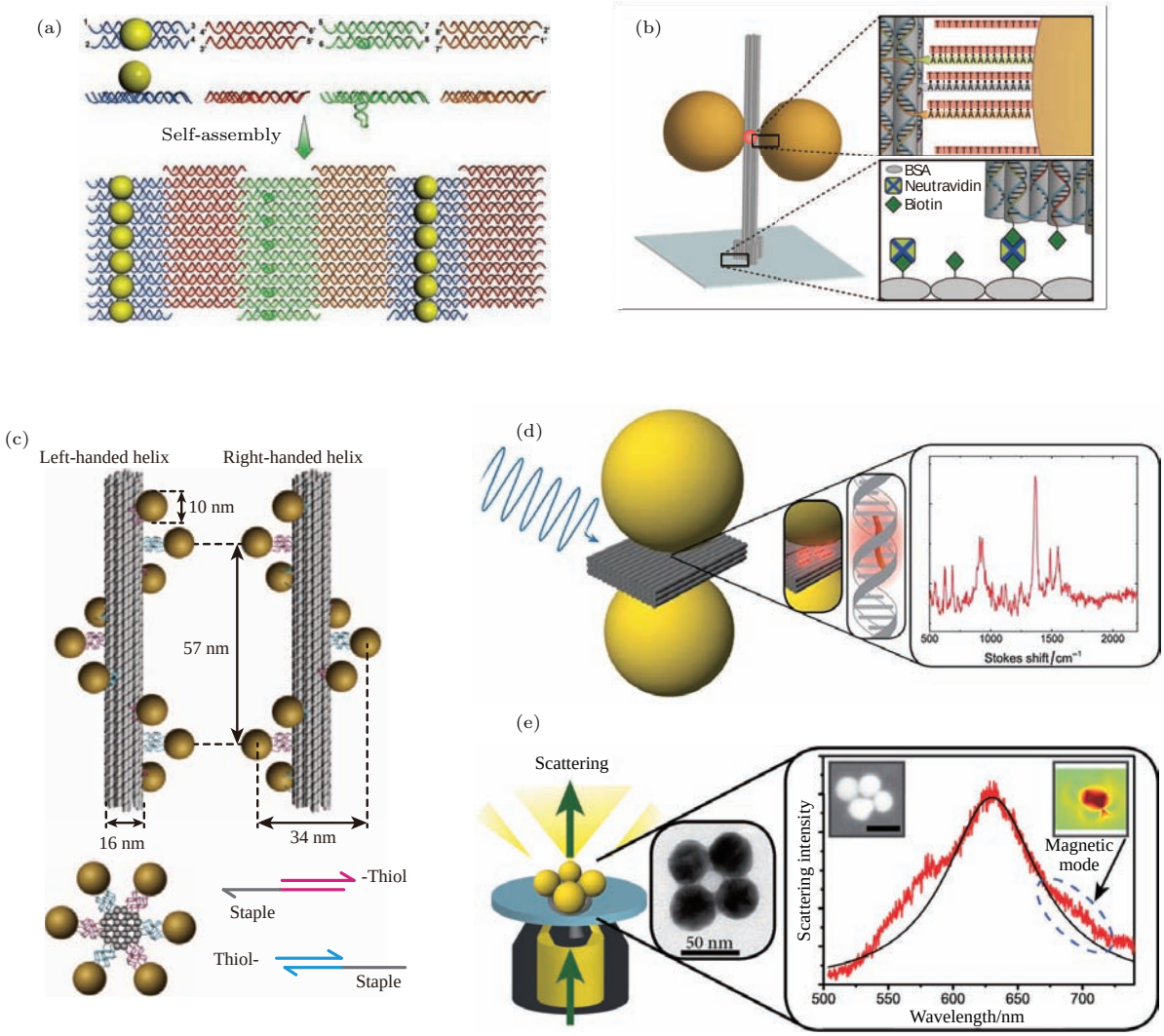


图 5 DNA 结构指导金属纳米结构自组装及其纳米光子学研究 (a) 基于 DNA tile 的纳米金螺旋排列[66]; (b) 荧光增强纳米金二聚体[11]; (c) 纳米金在 DNA 折纸上的螺旋排列[17]; (d) 纳米金二聚体及其 SERS 研究[82]; (e) 基于 DNA 折纸自组装形成的金四聚体结构[19]

Fig. 5. Nanophotonic devices based on DNA tiles or DNA origami: (a) AuNPs spirals formed with DNA tile arrays[66]; (b) DNA origami-templated Au dimers for fluorescence enhancement[11]; (c) AuNPs spirals on DNA origami[17]; (d) DNA origami-templated Au dimers for SERS[82]; (e) self-assembly of Au tetramers on DNA origami[19].

通过表面等离子体形成的局域增强来实现表面增强拉曼散射也是构建DNA折纸自组装结构的目的之一. Thacker等[18]在DNA折纸上组装一对40 nm的纳米金颗粒, 在入射光作用下纳米金之间的缝隙区域会出现局域增强的电场, 通过对染料分子和不同序列寡聚核苷酸拉曼散射信号的检测, 他们发现了几个数量级的超强拉曼散射增强. Kuhler等[82]在DNA 折纸的两侧分别组装一个金纳米颗粒构建出纳米天线(图5 (d)), 在DNA折纸内嵌入染料分子, 通过纳米天线的增强作用染料分子的拉曼散射信号被放大, 而且他们发现放大的效果和入射光的偏振有关, 当激光偏振沿纳米天线轴向时增强效果达到峰值, 而当偏振与纳米天线轴向垂直时增强效果最弱. 基于与Kuhler等[82]同样的结构, Simoncelli等[83]实现了从单分子到四个分子的定量拉曼散射信号检测, 他们通过激光产热来调节纳米金之间DNA折纸模板的尺寸, 并跟踪了这种尺寸的细微变化对染料分子拉曼散射信号的影响, 这是首次实现定量分子拉曼散射增强的检测.

通过DNA折纸自组装还可以调控金属纳米结构的瑞利散射, 在暗场显微镜下可以观察散射的变化. Roller 等[19]设计了一种环形DNA折纸, 并在DNA折纸上杂交不同数目、不同粒径的纳米金, 形成了复杂的纳米金环形排列(图5 (e)). 他们选用40 nm的纳米金四聚体结构为主要研究对象, 观察了这种结构的暗场散射光谱, 发现缝隙大小对于四聚体对称结构的散射光谱有重要的影响. 此外, 当该结构处于干燥环境中时, DNA折纸在脱水后形状发生细微变化, 导致四聚体结构偏离了设计的对称性, 在暗场显微镜下的散射光谱发生红移, 并出现了新的散射峰. 他们还在DNA折纸两侧组装一对纳米金构成纳米天线[84], 研究了纳米天线的等离子体共振与结构散射的耦合现象. Weller 等[85]则通过DNA折纸分别组装了纳米金/金、金/银和银/银二聚体, 实现了对金属纳米结构组分的调控, 并研究了二聚体的间隙大小和入射光偏振角度对结构散射光谱的影响. 2017年, Zhan 等[86]在三脚架状DNA 折纸的每条棱上分别组装了一根纳米金棒, 然后通过链置换反应改变DNA折纸每条棱之间的夹角, 从而调控纳米金棒的构象, 由此对该纳米金棒三聚体的紫外可见吸收光谱和散射光谱进行调节.

基于DNA模板的自组装, 尤其是基于DNA折纸的自组装, 已经实现了高度复杂的金属纳米粒子的有序排列, 并且通过这种有序排列构建出多种用途的纳米光子学器件, 随着更多DNA模板的出现, 该领域仍具有广阔的发展前景.

4.3 不依赖DNA结构模板的金属纳米结构

有些金属纳米结构的组装并不依靠DNA模板, 而是依靠金属纳米颗粒表面修饰的DNA相互杂交形成有序的纳米结构, 结构中的纳米颗粒表面等离子体之间发生耦合, 从而产生独特的光学性质.

Lim等[87]通过控制探针链与保护链在纳米金上的比例, 降低了探针链在纳米金上的修饰密度, 在靶标链的连接下, 修饰两种探针链的纳米金会形成二聚体结构, 在二聚体中央区域会形成局域增强的电场(图6 (a)). 他们在这种结构表面生长了一层银膜以进一步实现局域增强, 由于一种纳米金颗粒上的探针链标记有拉曼分子, 因此一旦有靶标分子引导的二聚体形成, 即可以观察到其增强的特征拉曼散射信号. Yan等[88]通过金属纳米颗粒的自组装构建了不同的手性结构, 他们首先制备了单修饰的纳米银、量子点以及两种粒径的纳米金, 然后通过四种纳米颗粒的自组装形成纳米金字塔结构(图6 (b)). 由于每个定点纳米颗粒的性质不同, 整个结构呈现出独特的光学活性, 通过改变顶点位置的纳米颗粒可以对光的偏振进行调节. Li等[89]则通过金属纳米结构表面等离子体的变化研究单颗粒催化过程, 他们将具有催化活性的小纳米金颗粒组装在大纳米金颗粒表面形成光晕结构, 由于小纳米金表面的催化反应改变了其介电性质, 会对光晕结构的表面等离子体产生影响, 进而改变结构的散射光谱, 他们在暗场显微镜下观察到了光晕结构散射光谱随着催化反应进行的变化.

此外, DNA自组装的金属纳米结构还被应用于细胞成像中. Lee等[90]用可与特定mRNA互补的DNA修饰纳米金作为探针, 当遇到特定mRNA时探针会杂交在mRNA上形成金纳米二聚体, 但对于该mRNA的不同变体, 所形成的二聚体其空隙的距离不同, 造成的耦合强度也不同, 由此可以产生不同的散射光谱, 基于此可以实现细胞中特定mRNA剪接变体的定量观察.

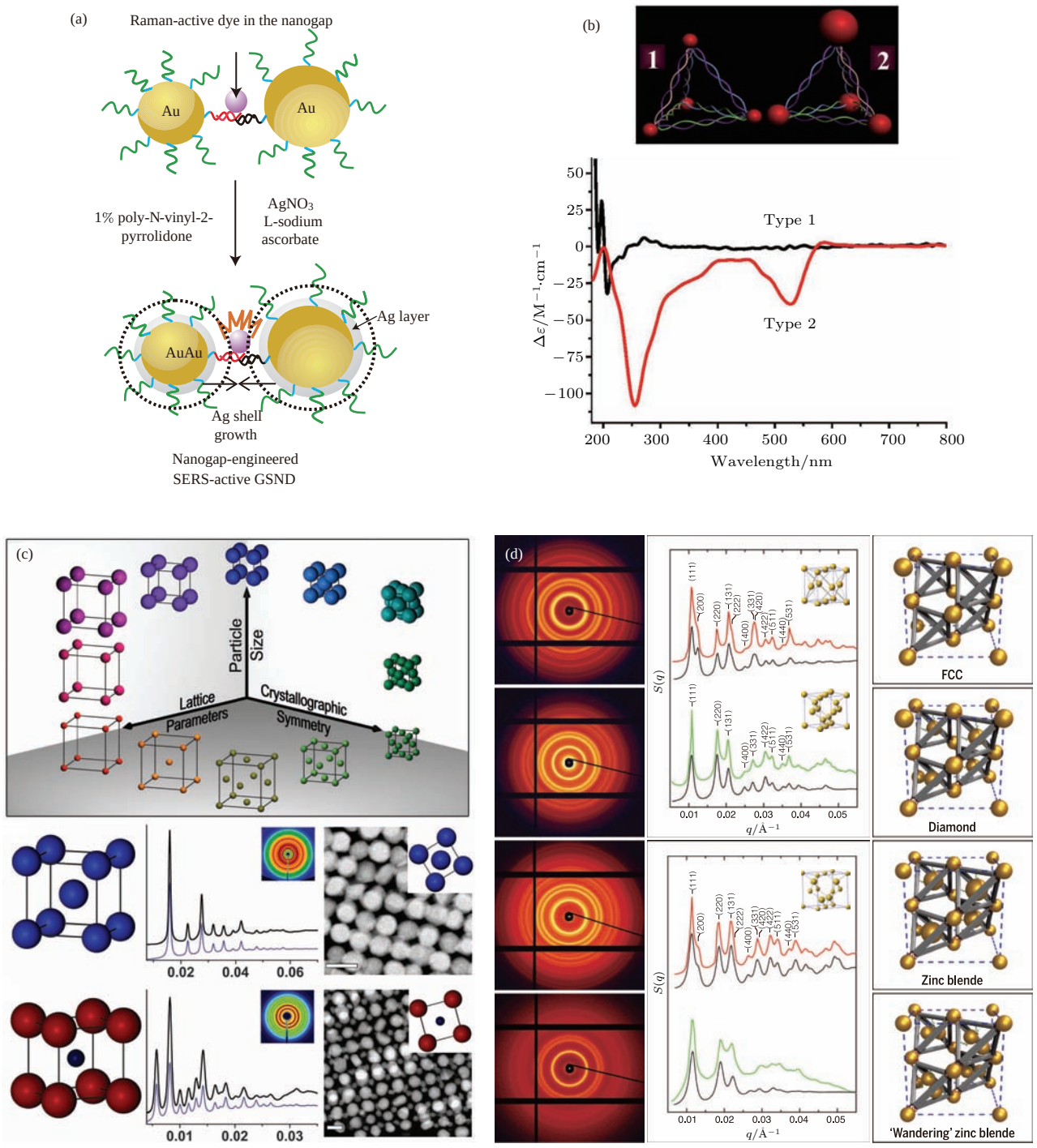


图 6 无 DNA 模板的 DNA 自组装金属纳米结构及其纳米光子学性质 (a) 纳米金二聚体 SERS 探针 [87]; (b) 具有光学活性的金字塔纳米结构 [88]; (c) Mirkin 组的 DNA-纳米颗粒超晶格结构 [91]; (d) Gang 组基于四面体的 DNA-纳米颗粒超晶格结构 [99]

Fig. 6. DNA template-free nanophotonic devices: (a) Au dimers as SERS probes [87]; (b) optically active nanopyramids [88]; (c) DNA-nanoparticles superlattices from Mirkin's group [91]; (d) diamond family of superlattices from Gang's group [99].

Mirkin 组基于纳米金之间的自组装发展出了独特的 DNA-纳米颗粒超晶格结构 [91] (图 6 (c)), 这种结构是由 DNA 修饰的金属纳米颗粒通过相互杂交形成的长程有序结构, 通过调节修饰 DNA 的序列或者金属纳米颗粒的形状组分等可以形成各式各样的超晶格结构 [92]. Jones 等 [93] 分别用 DNA 修饰的纳米金棒、纳米金三角和纳米金十二面体构建了不同的超晶格结构, 并用 X 射线小角散射对形成的超晶格进行观察, 发现对于不同的连接方式, 其小角散射的结果对应不同的晶体结构. Macfarlane 等 [91] 则以 DNA 修饰的纳米金球为基本单元, 构建了很多种不同晶体结构和晶格参数的超晶格, 并总

结出形成超晶格结构的基本规律. Auyeung 等[94]进一步发现, 对于相同的连接方式, 通过刻蚀掉特定某种DNA修饰纳米金的内核而仅仅保留DNA, 也可以改变所形成超晶格的晶体结构. 他们还通过缓慢的退火使结晶过程始终处于热平衡状态, 得到了类似原子结晶过程中伍尔夫多面体的超晶格结构[95]. 最近Kim 等[96]又通过在纳米金表面修饰多种DNA, 使纳米金之间具有多种连接方式的可能性, 通过激活不同的连接方式, 纳米金可以形成不同的超晶格结构.

Gang课题组也在DNA-纳米颗粒超晶格结构方面做出了杰出工作. Maye 等[97]在纳米金的DNA连接间插入环状结构, 通过链置换反应改变纳米金之间的距离, 通过小角散射观察到所形成的超晶格结构晶格参数的变化. Zhang 等[98]通过调节纳米金间的DNA连接方式实现了对于超晶格晶体结构的可控转变. 最近, Liu 等[99]在超晶格自组装中创新性地引入DNA四面体模板, 将纳米金单元组装在四面体模板中, 由于四面体模板提供了固定的价态和键角, 从而形成类似于有机分子中的基本单元四价碳键的结构(图6 (d)). 基于此, 他们不仅构建了面心立方结构, 还构建了独特的金刚石和闪锌矿结构, 并在小角散射中得到了验证.

依靠金属纳米粒子表面的DNA相互杂交形成有序结构, 是DNA模板出现以前通过DNA引导形成有序结构的主要方法. 由于缺少DNA模板, 通过这种方法得到的结构在有序范围上受到限制(超晶格除外), 但较为灵活, 多通过形成固定数目的聚集体构建特殊的纳米光子学器件, 具有广阔的应用空间.

5 结论与展望

基于DNA的纳米光子学是通过DNA对金属纳米结构形貌和组分的调控来影响入射光下金属纳米结构中表面等离子体发生的区域和强度, 从而对光场进行调控. 由于金属纳米结构的尺寸在纳米尺度, 所以该方法突破了光的衍射极限, 即使是纳米级的结构变化也可以在光谱中得到明显的反映, 如纳米天线中缝隙宽窄的细微变化会强烈影响缝隙中荧光分子的荧光增强程度. 而借助于这种表面等离子体引起的局域电场增强作用, 在金属纳米结构的电场增强区域已经可以实现对单分子荧光和单分子拉曼的检测. 得益于这些无可比拟的优势, 基于DNA的纳米光子学具有巨大的应用潜力和广泛的发展前景. 然而目前的研究中尚存在一些难以解决的问题, 如大粒径纳米粒子在DNA折纸模板上难以精确定位, 以及DNA模板尺寸上的限制, 此外, 对三维的金属纳米结构进行精确调控也一直没有实现.

随着DNA纳米技术的发展, DNA对金属纳米结构的调控愈加精确, 尤其是随着新型DNA折纸的不断涌现, 通过DNA自组装有望形成更加复杂的金属纳米结构. 而基于DNA为模板的金属化, 作为一种仍在发展中的金属纳米结构构建方式, 也将受益于DNA折纸的不断进步, 未来有望用于构建有特殊光学性质的金属纳米结构. 与此同时, DNA自组装作为一种重要的自下而上方法, 也正在与自上而下的微纳加工技术相结合, 用以构建更大范围的有序结构[100,101], 二者的相互补充将促进相关纳米光子学研究的进一步发展.

参考文献

[1] Schuller J A, Barnard E S, Cai W, Jun Y C, White J S, Brongersma M L 2010 *Nat. Mater.* **9** 193

[2] Braun E, Eichen Y, Sivan U, Ben-Yoseph G 1998 *Nature* **391** 775

[3] Wang Z, Tang L, Tan L H, Li J, Lu Y 2012 *Angew. Chem. Int. Ed.* **51** 9078

[4] Lee J H, Kim G H, Nam J M 2012 *J. Am. Chem. Soc.* **134** 5456

[5] Song T, Tang L, Tan L H, Wang X, Satyavolu N S, Xing H, Wang Z, Li J, Liang H, Lu Y 2015 *Angew. Chem. Int. Ed.* **54** 8114

[6] Alivisatos A P, Johnsson K P, Peng X, Wilson T E, Loweth C J, Bruchez M P, Schultz Jr P G 1996 *Nature* **382** 609

[7] Mirkin C A, Letsinger R L, Mucic R C, Storhoff J J 1996 *Nature* **382** 607

[8] Pinheiro A V, Han D, Shih W M, Yan H 2011 *Nat. Nanotechnol.* **6** 763

[9] Chao J, Zhang Y, Zhu D, Liu B, Cui C, Su S, Fan C, Wang L 2016 *Sci. China: Chem.* **59** 730

[10] Lan X, Lu X, Shen C, Ke Y, Ni W, Wang Q 2015 *J. Am. Chem. Soc.* **137** 457

[11] Acuna G, Moller F, Holzmeister P, Beater S, Lalkens B, Tinnefeld P 2012 *Science* **338** 506

[12] Murphy C J, Thompson L B, Chernak D J, Yang J A, Sivapalan S T, Boulos S P, Huang J Y, Alkilany A M, Sisco P N 2011 *Curr. Opin. Colloid Interf. Sci.* **16** 128

[13] Feng L, Romulus J, Li M, Sha R, Royer J, Wu K T, Xu Q, Seeman N C, Weck M, Chaikin P 2013 *Nat. Mater.* **12** 747

[14] Hedrick J L, Brown K A, Kluender E J, Cabezas M D, Chen P C, Mirkin C A 2016 *ACS Nano* **10** 3144

[15] Kumar A, Hwang J H, Kumar S, Nam J M 2013 *Chem. Commun.* **49** 2597

[16] Tan S J, Campolongo M J, Luo D, Cheng W 2011 *Nat. Nanotechnol.* **6** 268

[17] Kuzyk A, Schreiber R, Fan Z, Pardatscher G, Roller M, Hogele A, Simmel F, Govorov O, Liedl T 2012 *Nature* **483** 311

[18] Thacker V V, Herrmann L O, Sigle D O, Zhang T, Liedl T, Baumberg J J, Keyser U F 2014 *Nat. Commun.* **5** 3448

[19] Roller E M, Khorashad L K, Fedoruk M, Schreiber R, Govorov O, Liedl T 2015 *Nano Lett.* **15** 1368

[20] Kallenbach N R, Ma R I, Seeman N C 1983 *Nature* **305** 829

[21] Seeman N C 2003 *Nature* **421** 427

[22] Rothemund P W 2006 *Nature* **440** 297

[23] Nangreave J, Han D, Liu Y, Yan H 2010 *Curr. Opin. Chem. Biol.* **14** 608

[24] Chen J, Seeman N C 1991 *Nature* **350** 631

[25] Fu T, Seeman N C 1993 *Biochemistry* **32** 3211

[26] Mao C D, Sun W, Seeman N C 1997 *Nature* **386** 137

[27] Ma R I, Kallenbach N R, Sheardy R D, Petrillo M L, Seeman N C 1986 *Nucl. Acids Res.* **14** 9745

[28] Wang X, Seeman N C 2007 *J. Am. Chem. Soc.* **129** 8169

[29] LaBean T H, Yan H, Kopatsch J, Liu F R, Winfree E, Reif J H, Seeman N C 2000 *J. Am. Chem. Soc.* **122** 1848

[30] Yan H, Park S H, Finkelstein G, Reif J H, LaBean T H 2003 *Science* **301** 1882

[31] Yin P, Hariadi R F, Sahu S, Choi H M, Park S H, Labean T H, Reif J H 2008 *Science* **321** 824

[32] Douglas S M, Dietz H, Liedl T, Hogberg B, Graf F, Shih W M 2009 *Nature* **459** 414

[33] Ke Y, Douglas S M, Liu M, Sharma J, Cheng A, Leung A, Liu Y, Shih W M, Yan H 2009 *J. Am. Chem. Soc.* **131** 15903

[34] Liedl T, Hogberg B, Tytell J, Ingber D E, Shih W M 2010 *Nat. Nanotechnol.* **5** 520

[35] Veneziano R, Ratanalert S, Zhang K, Zhang F, Yan H, Chiu W, Bathe M 2016 *Science* **352** 1534

[36] Benson E, Mohammed A, Gardell J, Masich S, Czeizler E, Orponen P, Hogberg B 2015 *Nature* **523** 441

[37] Wang Z, Zhang J, Ekman J M, Kenis P J, Lu Y 2010 *Nano Lett.* **10** 1886

[38] Tan L H, Yue Y, Satyavolu N S, Ali A S, Wang Z, Wu Y, Lu Y 2015 *J. Am. Chem. Soc.* **137** 14456

[39] Wu J, Tan L H, Hwang K, Xing H, Wu P, Li W, Lu Y 2014 *J. Am. Chem. Soc.* **136** 15195

[40] Satyavolu N S, Tan L H, Lu Y 2016 *J. Am. Chem. Soc.* **138** 16542

[41] Shen J, Xu L, Wang C, Pei H, Tai R, Song S, Huang Q, Fan C, Chen G 2014 *Angew. Chem. Int. Ed.* **53** 8338

[42] Lee J H, You M H, Kim G H, Nam J M 2014 *Nano Lett.* **14** 6217

[43] Shen J, Su J, Yan J, Zhao B, Wang D, Wang S, Li K, Liu M, He Y, Mathur S, Fan C, Song S 2014 *Nano Res.* **8** 731

[44] Xu L, Wang G, Shen J, Geng H, Li W, Wu L, Gao S, Wang J, Wang L, Fan C, Chen G 2016 *Nanoscale* **8** 9337

[45] Lim D K, Jeon K S, Hwang J H, Kim H, Kwon S, Suh Y D, Nam J M 2011 *Nat. Nanotechnol.* **6** 452

[46] Zhao B, Shen J, Chen S, Wang D, Li F, Mathur S, Song S, Fan C 2014 *Chem. Sci.* **5** 4460

[47] Hu C, Shen J, Yan J, Zhong J, Qin W, Liu R, Aldalbahi A, Zuo X, Song S, Fan C, He D 2016 *Nanoscale* **8** 2090

[48] Li J, Wei C, Ma W, An Q, Guo J, Hu J, Wang C 2012 *J. Mater. Chem.* **22** 12100

[49] Monson C F, Woolley A T 2003 *Nano Lett.* **3** 359

[50] Gu Q, Cheng C, Haynie D T 2005 *Nanotechnology* **16** 1358

[51] Liu D, Park S H, Reif J H, LaBean T H 2004 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **101** 717

[52] Liu J, Geng Y, Pound E, Gyawali S, Ashton J R, Hickey J, Woolley A T, Harb J N 2011 *ACS Nano* **5** 2240

[53] Geng Y, Pearson A C, Gates E P, Uprety B, Davis R C, Harb J N, Woolley A T 2013 *Langmuir* **29** 3482

[54] Pilo-Pais M, Goldberg S, Samano E, Labean T H, Finkelstein G 2011 *Nano Lett.* **11** 3489

[55] Pal S, Varghese R, Deng Z, Zhao Z, Kumar A, Yan H, Liu Y 2011 *Angew. Chem. Int. Ed.* **50** 4176

[56] Xiao S J, Liu F R, Rosen A E, Hainfeld J F, Seeman N C, Musier-Forsyth K, Kiehl R A 2002 *J. Nanopart. Res.* **4** 313

[57] Zheng J, Constantinou P E, Micheel C, Alivisatos A P, Kiehl R A, Seeman N C 2006 *Nano Lett.* **6** 1502

[58] Sharma J, Chhabra R, Liu Y, Ke Y, Yan H 2006 *Angew. Chem. Int. Ed.* **45** 730

[59] Le J D, Pinto Y, Seeman N C, Musier-Forsyth K, Taton T A, Kiehl R A 2004 *Nano Lett.* **4** 2343

[60] Zhang J, Liu Y, Ke Y, Yan H 2006 *Nano Lett.* **6** 248

[61] Zhang C, Li X, Tian C, Yu G, Li Y, Jiang W, Mao C 2014 *ACS Nano* **8** 1130

[62] Li Y, Liu Z, Yu G, Jiang W, Mao C 2015 *J. Am. Chem. Soc.* **137** 4320

[63] Aldaye F A, Sleiman H F 2007 *J. Am. Chem. Soc.* **129** 4130

[64] Elbaz J, Cecconello A, Fan Z, Govorov A O, Willner I 2013 *Nat. Commun.* **4** 2000

[65] Ding B, Cabrini S, Zuckermann R, Bokor J 2009 *J. Vac. Sci. Technol. B* **27** 184

[66] Sharma J, Chhabra R, Cheng A, Brownell J, Liu Y, Yan H 2009 *Science* **323** 112

[67] Sharma J, Chhabra R, Andersen C S, Gothelf K V, Yan H, Liu Y 2008 *J. Am. Chem. Soc.* **130** 7820

[68] Ding B, Deng Z, Yan H, Cabrini S, Zuckermann R, Bokor J 2010 *J. Am. Chem. Soc.* **132** 3248

[69] Pal S, Deng Z, Ding B, Yan H, Liu Y 2010 *Angew. Chem. Int. Ed.* **49** 2700

[70] Pal S, Deng Z, Wang H, Zou S, Liu Y, Yan H 2011 *J. Am. Chem. Soc.* **133** 17606

[71] Schreiber R, Do J, Roller E M, Zhang T, Schuller V J, Nickels P C, Feldmann J, Liedl T 2014 *Nat. Nanotechnol.* **9** 74

[72] Puchkova A, Vietz C, Pibiri E, Wunsch B, Sanz M, Acuna P, Tinnefeld P 2015 *Nano Lett.* **15** 8354

[73] Ko S H, Du K, Liddle J A 2013 *Angew. Chem. Int. Ed.* **52** 1193
[74] Pellegrotti J V, Acuna G P, Puchkova A, Holzmeister P, Gietl A, Lalkens B, Stefani D, Tinnefeld P 2014 *Nano Lett.* **14** 2831
[75] Lan X, Chen Z, Dai G, Lu X, Ni W, Wang Q 2013 *J. Am. Chem. Soc.* **135** 11441
[76] Urban J, Dutta K, Wang P, Duan X, Shen X, Ding B, Ke Y, Liu N 2016 *J. Am. Chem. Soc.* **138** 5495
[77] Shen C, Lan X, Zhu C, Zhang W, Wang L, Wang Q 2017 *Adv. Mater.* **29** 1606533
[78] Zhang Y, Chao J, Liu H, Wang F, Su S, Liu B, Zhang L, Shi J, Wang L, Huang W, Wang L, Fan C 2016 *Angew. Chem. Int. Ed.* **55** 8036
[79] Kuzyk A, Schreiber R, Zhang H, Govorov O, Liedl T, Liu N 2014 *Nat. Mater.* **13** 862
[80] Zhou C, Duan X, Liu N 2015 *Nat. Commun.* **6** 8102
[81] Urban J, Zhou C, Duan X, Liu N 2015 *Nano Lett.* **15** 8392
[82] Kuhler P, Roller M, Schreiber R, Liedl T, Lohmuller T, Feldmann J 2014 *Nano Lett.* **14** 2914
[83] Simoncelli S, Roller E M, Urban P, Schreiber R, Turberfield A J, Liedl T, Lohmuller T 2016 *ACS Nano* **10** 9809
[84] Roller M, Argyropoulos C, Hogele A, Liedl T, Pilo-Pais M 2016 *Nano Lett.* **16** 5962
[85] Weller L, Thacker V, Herrmann O, Hemmig A, Lombardi A, Keyser F, Baumberg J 2016 *ACS Photon.* **3** 1589
[86] Zhan P, Dutta P K, Wang P, Song G, Dai M, Zhao S X, Wang Z G, Yin P, Zhang W, Ding B, Ke Y 2017 *ACS Nano* **11** 1172
[87] Lim D K, Jeon K S, Kim H M, Nam J M, Suh Y D 2010 *Nat. Mater.* **9** 60
[88] Yan W, Xu L, Xu C, Ma W, Kuang H, Wang L, Kotov N A 2012 *J. Am. Chem. Soc.* **134** 15114
[89] Li K, Wang K, Qin W, Deng S, Li D, Shi J, Huang Q, Fan C 2015 *J. Am. Chem. Soc.* **137** 4292
[90] Lee K, Cui Y, Lee L P, Irudayaraj J 2014 *Nat. Nanotechnol.* **9** 474
[91] Macfarlane R J, Lee B, Jones M R, Harris N, Schatz G C, Mirkin C A 2011 *Science* **334** 204
[92] Senesi A J, Eichelsdoerfer D J, Macfarlane R J, Jones M R, Auyeung E, Lee B, Mirkin C A 2013 *Angew. Chem. Int. Ed.* **52** 6624
[93] Jones M R, Macfarlane R J, Lee B, Zhang J, Young K L, Senesi A J, Mirkin C A 2010 *Nat. Mater.* **9** 913
[94] Auyeung E, Cutler J I, Macfarlane R J, Jones M R, Wu J S, Liu G, Zhang K, Osberg K D, Mirkin C A 2012 *Nat. Nanotechnol.* **7** 24
[95] Auyeung E, Li T I, Senesi A J, Schmucker A L, Pals B C, de la Cruz M O, Mirkin C A 2014 *Nature* **505** 73
[96] Kim Y, Macfarlane R J, Jones M R, Mirkin C A 2016 *Science* **351** 579
[97] Maye M M, Kumara M T, Nykypanchuk D, Sherman W B, Gang O 2010 *Nat. Nanotechnol.* **5** 116
[98] Zhang Y, Pal S, Srinivasan B, Vo T, Kumar S, Gang O 2015 *Nat. Mater.* **14** 840
[99] Liu W, Tagawa M, Xin H L, Wang T, Emamy H, Li H, Yager K G, Starr F W, Tkachenko A V, Gang O 2016 *Science* **351** 582
[100] Gopinath A, Miyazono E, Faraon A, Rothemund P W 2016 *Nature* **535** 401
[101] Hung A M, Micheel C M, Bozano L D, Osterbur L W, Wallraff G M, Cha J N 2010 *Nat. Nanotechnol.* **5** 121

SPECIAL ISSUE—Diffraction limit of electromagnetic waves

DNA self-assembly-based fabrication of metallic nanostructures and related nanophotonics*

Zhang Yi-Nan[1)2)] Wang Li-Hua[1)] Liu Hua-Jie[1)†] Fan Chun-Hai[1)‡]

1) (*Division of Physical Biology and Bioimaging Center, Shanghai Synchrotron Radiation Facility; CAS Key Laboratory of Interfacial Physics and Technology; Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China*)

2) (*University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

(Received 23 January 2017; revised manuscript received 19 April 2017)

Abstract

Nanophotonics focuses on the study of the behavior of light and the interaction between light and matter on a nanometer scale. It has often involved metallic nanostructures which can concentrate and guide the light beyond the diffraction limit due to the unique surface plasmons (SPs). Manipulation of light can be accomplished through controlling the morphologies and components of metallic nanostructures to incur special surface plasmons. However, it is still a severe challenge to achieve exquisite control over the morphologies or components of metallic nanostructures: chemical methods can provide anisotropic but highly symmetric metallic nanostructures; lithographic methods have a limited resolution, especially for three-dimensional metallic nanostructures. By comparison, DNA self-assembly-based fabrication of metallic nanostructures is not restricted to these confinements. With the high-fidelity Waston-Crick base pairing, DNA can self-assemble into arbitrary shapes ranging from the simplest double strands to the most sophisticated DNA origami. Due to the electrostatic interactions between negatively charged phosphate backbones and positively charged metal ions, as well as the sequence-dependent DNA-metal interactions, DNA can affect the metal ions to a certain degree. Depending on the shape and sequence, DNA self-assembly nanostructures can exert different influences on the growth of metallic nanoparticles, which in turn gives rise to deliberately controllable metallic nanostructures. Besides, DNA self-assembly nanostructures can act as ideal templates for the organization of metallic nanoparticles to construct special metallic nanostructures. In this case, DNA-modified metallic nanoparticles are immobilized on DNA self-assembly nanostructures carrying complementary sticky ends. The geometry and component arrangements of metallic nanostructures both can be precisely dictated on the DNA nanostructures by programming the sticky end arrays. Complicated metallic nanostructures which can be hardly fabricated with conventional chemical or lithographic methods have been readily prepared with the DNA self-assembly-based fabrication method, thereby greatly promoting the development of nanophotonics. Therefore, the studies of DNA self-assembly-based fabrication of metallic nanostructures and related nanophotonics have received rapidly growing attention in recent years. This review first gives a brief introduction of the mechanism for breaking the diffraction limit of light with metallic nanostructures based on SPs. Then we give a systematic review on DNA self-assembly-based fabrication of metallic nanostructures and related nanophotonics, which is divided into several parts according to the different pathways by which DNA self-assembly can influence the morphologies or components of metallic nanostructures. Finally, the remaining problems and limitations for the existing DNA self-assembly-based fabrication of metallic nanostructures are presented and an outlook on the future trend of the field is given as well.

Keywords: DNA, nanophotonics, surface plasmons, metallic nanostructures

PACS: 71.45.Gm, 71.55.Ak, 82.39.Pj, 82.35.Np **DOI:** 10.7498/aps.66.147101

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2013CB932803), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 21473236, 31371015), and the Youth Innovation Promotion Association of Chinese Academy of Sciences.

† Corresponding author. E-mail: liuhuajie@sinap.ac.cn

‡ Corresponding author. E-mail: fchh@sinap.ac.cn

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

非线性光学超构表面

邓俊鸿　李贵新

Nonlinear photonic metasurfaces

Deng Jun-Hong　Li Gui-Xin

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 147803 (2017)　DOI: 10.7498/aps.66.147803
在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.147803
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I14

您可能感兴趣的其他文章
Articles you may be interested in

复合结构螺旋超材料对光波前的高效调控
High-efficiency wavefront control with based on helical metamaterials
物理学报.2016, 65(21): 217802　http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.217802

宽入射角度偏振不敏感高效异常反射梯度超表面
Polarization-insensitive and broad-angle gradient metasurface with high-efficiency anomalous reflection
物理学报.2015, 64(23): 237802　http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.237802

工字形太赫兹超材料吸波体的传感特性研究
Study on sensing characteristics of I-shaped terahertz metamaterial absorber
物理学报.2015, 64(11): 117801　http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.117801

用最小结构单元频率选择表面实现大入射角宽频带的透波材料
Wideband and large incident angle wave transparent material based on frequency selective surface with miniaturized elements
物理学报.2014, 63(13): 137803　http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.137803

基于加权实数编码遗传算法的超材料优化设计
Optimization of metamaterial based weighted real-coded genetic algorithm
物理学报.2014, 63(8): 087804　http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.087804

专题: 电磁波衍射极限

非线性光学超构表面

邓俊鸿 李贵新†

(南方科技大学材料科学与工程系, 深圳 518055)

(2017 年 5 月 15 日收到; 2017 年 6 月 5 日收到修改稿)

在线性光学范畴内, 人们已经通过亚波长尺度的超薄超构表面成功实现了对光的众多新颖特性的调控功能. 其主要理念是通过对具有亚波长尺度且空间方向变化的超构功能基元进行特定的排列, 从而实现对光的偏振、相位和振幅的有效控制. 近来, 超构表面上的非线性光学特性也引起了大家的广泛关注. 在本综述中, 我们对非线性光学超构表面的设计、超构功能单元的材料和对称性选择、非线性手性光学、非线性贝里几何相位和非线性波前整形等内容进行了总结; 最后对非线性光学超构表面在调控光与物质的相互作用中面临的挑战和前景进行了展望.

关键词: 超构表面, 非线性光学, 贝里几何相位, 超构材料

PACS: 78.67.Pt, 81.05.Xj, 02.65.–k **DOI:** 10.7498/aps.66.147803

1 引 言

光学超构材料可定义为人工设计的光学结构材料, 其功能基元或“超构原子”允许以天然材料不可能的方式来控制光的传播[1−4]. 通过合理选择超构功能基元的材料和几何形状, 我们可以人为地设计超构材料的线性光学参数, 例如其有效介电常数、磁导率以及折射率等, 而且超构单元的电磁响应可以不受其化学成分的限制. 目前, 人们利用超构材料已经实现了许多新奇的光物理现象, 例如负折射、超分辨成像和光学隐身等[1−4]. 然而, 在光学波段, 三维超构材料在纳米加工技术中面临的困难和不可避免的光损耗限制了其实际应用.

光学超构表面的出现为解决三维超构材料中所面临的困难提供了崭新的解决思路. 超构表面是一类由具有空间变化的超构功能基元组成的结构化界面. 通过在金属或介质材料构成的二维或准二维表面上引入光的相位突变, 可以在亚波长尺度下实现对光的偏振、振幅和相位的有效调控[1−3,5−8]. 与三维超构材料相比, 超构表面的二维属性更容易实现体积更紧凑、损耗更低的光学器件的制备. 此外, 光通过亚波长厚度的超构表面不像其在三维超构材料中那样更依赖传播效应, 因此所带来的色散效应更弱. 此外, 超薄超构表面往往比三维的超构材料更易与现有的互补金属氧化物半导体(CMOS)技术兼容, 因此更容易集成到现有的光电技术中. 从某种意义上说, 超构表面的出现预示着“平面光学”时代的到来. 近几年, 人们利用超构表面实现了许多有趣的光学现象, 如异常反射和透射、平面透镜成像、光学全息显示、光自旋霍尔效应和涡旋光束等[9−20]. 此前, 本领域多篇综述文章已经讨论了线性光学系统中超构表面光学器件的进展[6−8]. 当前, 有关超构表面的研究逐渐转向以实际应用为主的相关领域. 例如, 利用超构表面可实现高效的全息成像[21−24]、高数值孔径透镜[25−27]、产生和测量光的自旋和轨道角动量[28,29]. 众所周知, 将多种光学功能集成于微小尺寸的单一芯片上在光电集成领域是迫切需要解决的问题, 而光学超构表面的出现为未来设计新型光学元件提供了很好的契机. 另一方面, 非线性光学效应在频率转换、光开关设计等领域有着重要应用, 因而对于进一步拓展超构表面功能集成能力将起到至关重要的作用[30,31].

† 通信作者. E-mail: ligx@sustc.edu.cn

© 2017 中国物理学会 Chinese Physical Society

非线性光学的研究已经涵盖了从X-射线到微波波段, 在本综述中, 我们主要总结了近年来从可见光到红外光波长范围内的有关非线性光学超构表面研究的最新进展, 特别是非线性光学频率转换过程. 首先, 简单介绍了非线性光学频率转换的基本原理, 讨论了非线性超构功能基元的材料选择和对称性设计原理; 然后, 总结了非线性手性光学超构表面的设计思路; 介绍了非线性光学相位精确控制的新方法, 讨论了其在非线性光学自旋轨道相互作用、光束整形和波前调控中的应用; 最后展望了非线性光学超构表面所面临的挑战及未来发展前景.

2 非线性光学超构表面

在电偶极近似下, 材料对光的电场的非线性响应可以用材料的非线性极化强度来描述, 其表达形式可描述为[30,31]: $P^{\mathrm{NL}} = \varepsilon_0(\chi^{(2)}E^2 + \chi^{(3)}E^3 + \cdots)$, 其中$\varepsilon_0$是真空介电常数, E是电场, $\chi^{(2)}$和$\chi^{(3)}$分别是二阶和三阶非线性极化率. 通过泵浦光的倍频、和频、三倍频(SHG和THG)和四波混频(FWM)等过程(图1), 可以在非线性光学材料中产生新频率的光. 这些过程已广泛应用于商用的激光系统中. 其中, 二倍频和三倍频过程是二阶非线性光学参量过程, 可以获得频率为基波频率的二倍或者三倍的非线性光波. 而四波混频是另外一种三阶非线性光学参量过程, 对非简并四波混频而言, 三个具有不同能量的基波光子在与非线性物质相互作用的过程中可以产生新频率的光子. 四波混频在光相位共轭[32]、光开关和产生频率梳等领域具有广泛的应用[33].

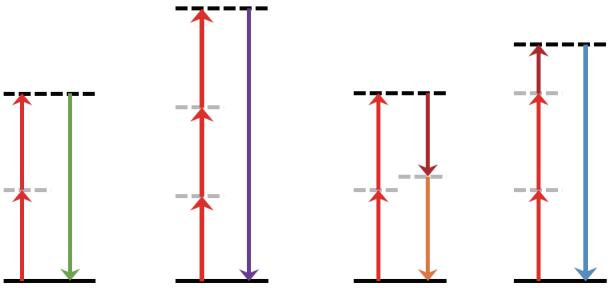


图1 非线性光学过程中的能级示意图 (a) SHG; (b) THG; (c) 非简并FWM; 实线和虚线分别表示电子能级以及材料极化对应的虚能级

Fig. 1. Schematic energy diagrams of important nonlinear optical processes: (a) Secondharmonic generation (SHG); (b) third harmonic generation (THG); (c) nondegeneratefour-wave mixing (FWM).

本部分将首先讨论表面等离激元共振结构中的非线性光学现象, 然后进一步扩展到非线性光学超构材料[34,35]. 在非线性等离激元共振和超构表面器件的研究中, 一个关键问题是如何通过调控超构功能基元的排列、构成材料和几何形状来提高非线性光学过程的效率.

2.1 非线性光学材料的选择

等离激元超构材料的非线性效率应由超构原子的宏观极化率和构成材料在微观尺度下的极化率所共同决定. 利用局域表面等离激元共振, 可以极大地增强超构功能基元附近的电磁场强度. 由于局域电磁场强度对超构单元的几何形状极其敏感, 因此可以通过设计不同几何形状的超构功能基元来调控等离激元超构表面的非线性光学响应(图2). 由于光在三维等离激元超构材料的传播过程中, 能量会显著地被金属结构所散射、吸收而产生强烈的衰减, 因而限制了其在光频率转换过程的实际应用. 为解决此问题, 人们在不断探索各种物理机理以实现超构功能基元上非线性光学效率的提高. 例如, 利用等离激元共振的超构功能基元中的电、磁共振已被证明可用于提高倍频[36−49]、三倍频[50−57]和四波混频[58−64]的效率. 此外, 通过将有机和无机半导体材料与等离激元共振超构单元结合构造出复合型超构表面, 也可极大地提高非线性光学效率[55,65]. 例如, 将多重量子阱半导体异质结构的亚带间跃迁与超构功能基元的等离激元共振效应进行耦合, 可将金属/多重量子阱复合超构表面上产生的倍频效率比量子阱本身提高几个数量级[65,66]. 另一种增强超构表面上非线性光学效率的方法是将超构表面与具有高的三阶非线性极化率的π共轭有机聚合物进行集成. 相比于单纯的金属超构表面, 这种金属有机复合超构表面可将产生三倍频的效率提高两个数量级[55]. 以上提高非线性光学效率的方法主要通过增强超构功能基元的表面附近的局域光场, 实现在其邻近增益材料中产生高效率的非线性光学相互作用.

然而, 等离激元共振超构表面亦具有明显的缺点: 其较低的损伤阈值, 在强脉冲激光照射下易于损坏, 这极大地限制了其非线性光学转换效率的进一步提高. 为了避免这一限制, 一些课题组提出由电介质或半导体材料制成的非线性超构表面, 例如, 利用硅超构单元中电[67]和磁的米氏共振, 可在硅基超构表面上(图2(b))产生高效率的三倍频信号[68]. 另外, 在具有三阶极化率的非线性光学材料

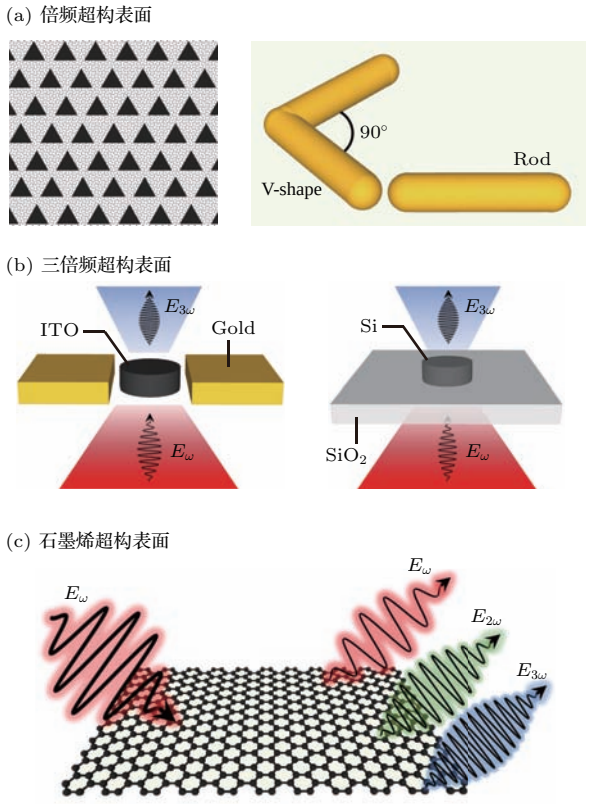


图 2 非线性光学超构表面 (a) 等离激元共振激元超构表面上产生的 SHG, 超构功能基元具有反演对称性破缺的几何结构 [43,46]; (b) 基于等离激元共振 (左) 和介质 (右) 超构表面可产生增强的 THG[53,67]; (c) 石墨烯纳米岛上产生地电致可调谐 SHG 和 THG 辐射 [75], 其中石墨烯膜单层结构即为超构功能基元; ω, 频率; E, 电场; ITO, 氧化铟锡

Fig. 2. Nonlinear photonic metasurfaces: (a) Examples of plasmonic metasurfaces for second harmonic generation (SHG)[43,46]; (b) plasmonic (left) and dielectric (right) metasurfaces for third harmonic generation (THG)[53,67]; (c) electrically tunable SHG and THG in graphene nanoislands[75]. ω, frequency; E, electric field; ITO, indium tin oxide.

中, 可以将外部电场与基波进行和频从而产生倍频光. 这种与三阶极化率相关的非线性效应称为电致倍频, 其物理机理不同于传统的与二阶极化率相关的倍频过程 [69,70]. 由于介质的空间对称性对三阶极化率的限制要比对二阶极化率的少, 所以电致倍频效应为电光非线性超构表面的发展提供了新的思路. 目前, 相关研究小组使用基于单层 WSe_2 的晶体管结构 (文献 [71—74]) 中激子电荷效应, 可获得具有较大调制深度的电致倍频效应. 此外, 通过掺杂石墨烯超构表面 [75] 和纳米石墨烯表面 [76](图 2 (c)) 上电可调谐等离激元共振效应, 可实现石墨烯结构与基波的强相互作用, 进而可高效地产生倍频和三倍频信号. 可以预测, 电致倍频效应和超构功能基元中的等离激元共振效应为可调谐非线性超构表面器件的研发开辟出了新的思路. 除非线性谐波辐射外, 等离激元共振超构表面亦可用于实现四波混频过程 [58—64], 例如, 通过金属介电金属纳米光学微腔中的四波混频可实现非线性光学负折射效应 [60].

2.2 对称性

对称性在非线性谐波辐射中起着重要的作用. 在非线性光学中, 频率转换过程中的选择定则不仅由材料的化学成分所决定, 而且由晶体材料的空间对称性决定 [30,31]. 目前多数的研究所涉及的超构功能基元主要是多晶 (金属) 和无定形 (聚合物) 材料, 而不是单晶材料制成, 所以本文中我们不讨论微观晶体对称性对非线性光学响应的影响, 关于非线性光学的微观选择定则的研究在文献 [30,31] 有着更深入的讨论. 与微观对称性的选择定则相似, 超构表面的宏观对称性也在非线性光学过程中起着重要作用 [77,78]. 超构表面的宏观对称性由单个超构功能基元的局域对称性和超构功能基元晶格的全局对称性所共同决定. 因此, 我们可以通过合理设计超构功能基元的几何结构来调节其非线性光学响应. 例如, 由各向同性材料构成的超构功能基元上亦可产生二阶非线性过程 (例如倍频), 尽管根据微观选择规则, 二阶非线性过程在各向同性材料中原则上是被禁止的. 表面等离激元共振超构表面上每个超构单元的光学响应对结构尺寸、形状和周围介电环境都非常敏感, 因此超构功能基元的局域对称性对于倍频的产生尤为重要. 因此, 针对具有局域反演对称性破缺的等离激元共振超构表面, 比如 U 形共振器 [36] 和 L 形超构功能基元等 [37,40], 有关倍频效应已经被广泛地研究. 在这些体系中, 结构表面对倍频的贡献是最重要的, 因此倍频对表面缺陷和粗糙度也会非常敏感. 当超构功能基元的尺寸不在深亚波长范围时, 需要考虑由延迟效应引起的与对称性相关的多极子的贡献 [37]. 此外, 通过对超构表面的局域和全局对称性的调控, 可以有效地操控倍频辐射的相位、振幅和偏振特性. 例如, 通过加入不产生倍频信号的无源超构单元, 可增强非中心对称的超构功能基元的倍频信号 [40]. 基于类似的概念, 通过控制邻近超构功能基元的集体相干辐射效应或单个超构功能基元的多级谐振效应 [46], 可极大地提高等离激元共振超构表面产生倍频的效率. 这些关于对称性的考虑也适用于

其他二阶非线性光学过程中, 例如和频或参量下转换过程.

非线性光学研究中较多使用的是线偏振的泵浦源. 然而在光的自旋轨道耦合相互作用这一新研究领域中, 与光子自旋相关的圆偏振态具有相当重要的作用. 其实, 在早期的非线性光学研究中, 人们已经发现在圆偏振光泵浦条件下, 非线性谐波产生的过程也遵循特定的选择定则, 这些选择定则与非线性谐波辐射的级次和晶体的旋转对称性相关[77,78]. 对于在非线性光学晶体中传播的圆偏振基波, 入射光子和所产生的非线性谐波光子的自旋总角动量是不守恒的, 自旋角动量的差值必须由晶体来提供. 因此非线性晶体的旋转对称性具有重要的作用. 对于 m 重对称的晶体, 从晶体向产生的谐波光子传递的角动量 p 是旋转对称阶数的整数倍, 即 $p = m\hbar$ (其中 $\hbar$ 是约化普朗克常数). 对于第 n 次非线性谐波辐射, 入射光子的自旋角动量为 $n\hbar$, 而所产生的光子具有 $+\hbar$ (与入射光子相同的自旋) 或 $-\hbar$ (与入射光子相反的旋转) 的自旋角动量. 因此, 允许产生谐波辐射级数为 $n = l\ (m \pm 1)$, 其中 l 是任意整数, $+$ 或 $-$ 符号对应于所生成的谐波与入射基波分别具有相同或相反的圆偏振态. 这一选择定则已成功应用于具有各种旋转对称性的非线性光学超构表面研究中[43,55]. 例如, 具有三重和四重旋转对称性的超构表面上可产生与基波偏振态相反的圆偏振的倍频和三倍频信号[43,55]. 有趣的是, 圆偏振态的基波泵浦下, 具有三重旋转对称性的结构不能产生三倍频[43], 然而在线偏振态的基波泵浦下却可以实现.

2.3 超构表面的优势

在非线性光学材料的设计过程中, 相比于三维超构材料, 二维元件的设计限制较少[35,79−81]. 如同三维超构材料, 只要能够选择合适的亚波长超构功能基元, 超构表面可用于同时调节光的线性和非线性响应. 通常情况下, 相位匹配[79−86]对于非线性谐波辐射和四波混频是至关重要的, 但是对于超构表面而言对这一条件的要求可以大大放宽, 因为有效的非线性光学过程仅发生在亚波长厚度的材料层中. 在这种情况下, 相位匹配条件的地位不再像在常规的非线性光学晶体中那样重要[30,31]. 由于超构功能基元允许我们在亚波长尺度下进行局域控制非线性光学频率转换, 并能够调制出射非线性光的相位、振幅和偏振等参量, 所以在非线性功能集成方面, 超构表面已超越了过去研究中仅包含均匀排列的等离激元共振结构的传统超构材料.

3 手性非线性光学

如果物体的镜像不能与其本身重叠, 我们就可以称物体具有手性特征. 长期以来, 人们已经广泛地使用手性光学技术来表征化学表面、生物分子和光学晶体的对称性. 手性物质对左旋和右旋圆偏振光之间相位和吸收的差异表现为材料的光学活性和圆二向色性这两种手性光学特性. 通常情况下, 天然材料的手性光学效应是相当弱的[87,88]. 利用人工手性超材料中的强等离激元共振效应, 为获得强的手性光学响应开辟了新的途径[89−97]. 手性超构材料已被用于实现光学负反射[89]、红外圆偏振器[93]和高灵敏度生物传感等[94]. 利用对物理界面对称性的高度敏感性, 基于倍频的非线性手性光学技术已经成为探测化学表面和生物分子手性的重要手段[98−101]. 与线性圆二向色性类似, 不同圆偏振态的基波产生的倍频信号的效率不同, 由此可定义为非线性圆二向色性 (图 3 (a)). 近来, 等离激元共振超构材料中的非线性手性光学效应引起了广泛的关注. 在许多情况下, 文献所报道的非线性手性光学响应一般是与下列两种性质密切相关: 第一种源于超构材料 (图 3 (b)) 的三维性质引起的内禀线性手性光学效应; 另外一种来自于基波的倾斜入射引起的外禀结构手性[63,102−107].

非线性手性光学超构表面在产生非线性光学的圆二向色性的研究中引起了广泛关注. 它们不仅比三维超构材料更容易加工制备, 而且更易与手性化学分子的物理界面相容. 当然, 超构功能基元两侧的不对称介电环境可以引起线性手性效应光学响应, 但是线性光学手性通常很弱, 所以在非线性光学过程中难以得到体现. 下文中我们总结了近期在等离激元共振超构表面上实现非线性手性光学效应的研究中所取得的进展. 例如通过调整超构功能基元之间的耦合效应, 在具有手性的超构表面上实现了非线性倍频圆二向色性, 其 CD 值高达 52%[108] (如图 3 (c); 其中倍频圆二向色性定义为 $(I^{2\omega}_{\mathrm{LCP}} - I^{2\omega}_{\mathrm{RCP}})/(I^{2\omega}_{\mathrm{LCP}} + I^{2\omega}_{\mathrm{RCP}})$, 其中 ω 是入射光的频率, I_{LCP} 和 I_{RCP} 分别是左和右旋圆偏振光的倍频信号的强度). 利用金三角形等离激元共

振结构[109]组成的非线性超构表面, 能产生CD值高达37%的倍频圆二向色性信号, 可用于非线性光学手性水印技术(图3(d)). 此外, 具有三重(trisceli型, 图3(e))和四重(gammadion型)旋转对称性的非手性超构表面被证明可用于产生极强的非线性手性光学效应, 测量所得的倍频圆二向色性和三倍频圆二向色性值分别高达98%和79%[110]. 与之前的手性超构表面观察到的非线性圆二向色性效应相比[108−110], 垂直入射的基波在线性光学范畴下几乎不产生圆二向色性. 通过以上研究我们可以看出, 要实现非常强的非线性光学圆二向色性, 三维超构材料并不是必需的. 此外, 对于超构材料, 将外禀手性与强烈的非线性光学效应相结合, 可观察到极强的非线性光学活性[111], 例如U形超构表面上产生的非线性光学活性比碘酸锂晶体高出数百倍. 具有强非线性手性光学效应的超构表面可为设计新型的手性光电子器件和手性生物传感器件提供新的发展方向[99,100].

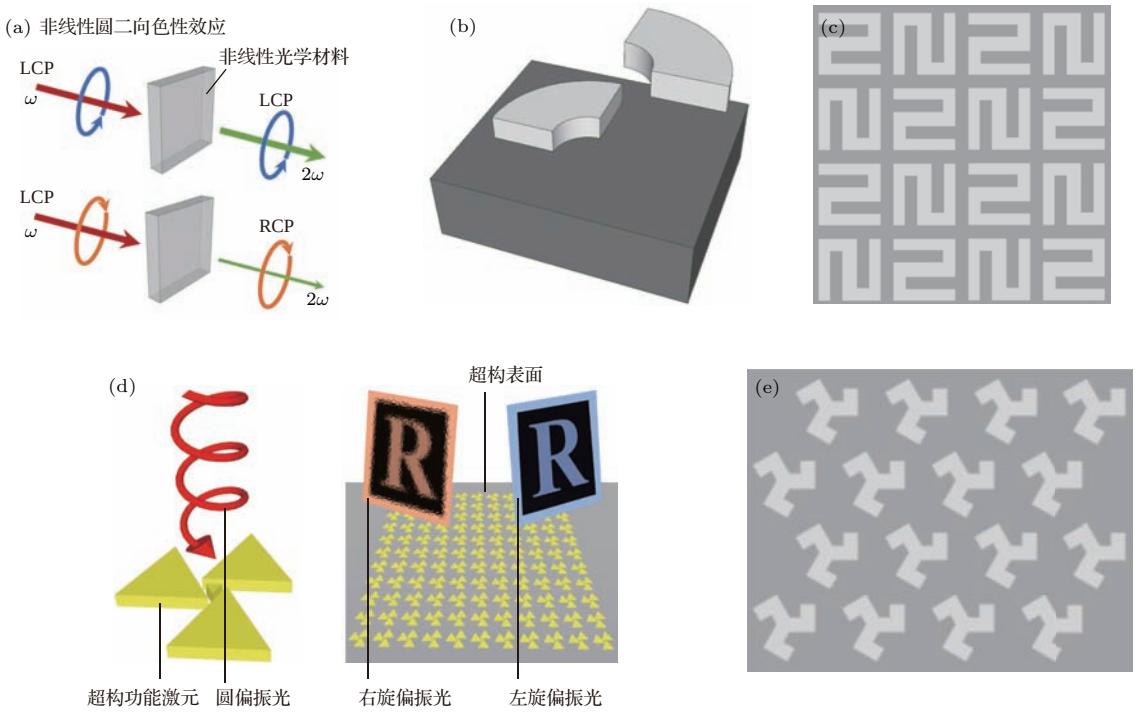


图3 非线性光学圆二向色性 (a) 在非线性手性材料中产生SHG的非线性圆二向色性的示意图(ω为频率), 例如, 左旋圆偏振(LCP)强于右旋圆偏振(RCP)基波所产生的倍频信号; (b) 由于三维镜像的对称性破缺, 三维非线性手性超构单元同时显示出强的线性和非线性手性光学响应[107]; (c) 超手性光学超构表面示意图, 其产生的线性圆二向色性很弱但是非线性手性效应非常强[108]; (d) 用于非线性手性水印的等离激元共振超构表面: 左右旋偏振光基波泵浦下获得倍频图像L/R, 类似超构表面可用于将图像编码[109]; (e) Trisceli型手性超构表面, 基波在垂直入射时显示出极强的倍频光手性光学效应[110]

Fig. 3. Nonlinear optical circular dichroism: (a) Schematic illustration of nonlinear circular dichroism for second harmonic generation (SHG) in a bulk nonlinear chiral material; (b) three-dimensional nonlinear chiral meta-atom displaying simultaneously strong linear and nonlinear chirality due to its broken 3D mirror symmetry[107]; (c) scanning electron microscopy image of a chiral metasurface that gives rise to very strong nonlinear but weak linear circular dichroism[108]; (d) a plasmonic metasurface for nonlinear chiral watermarking[109]; (e) trisceli-type chiral metasurface showing strong SHG chirality for normal light incidence[110].

4 非线性光学相位设计

常规介质中折射率的色散阻碍了基波向非线性谐波的有效转化, 通过在人工微结构中引入非线性极化率的相位调制可以克服这一困难, 因为用这种方式可以补偿由于色散效应导致基波和非线性谐波之间的相位失配, 从而使非线性频率转化效率获得显著提高[30,31]. 因此, 在非线性光学研究中, 在局域空间上能控制非线性光学极化率相位的有效设计方法是非常令人期待的[79−81]. 此前, 最成功的设计空间非线性相位的方法是准相位匹配技术, 例如, 在铁电材料中的周期性电极化(即利用强电场使材料中的畴向发生定向偏转)已被广泛用于实现准相位匹配, 从而获得高效率的倍频和参量下转换过程等[82,83].

虽然传统的准相位匹配方案已经被成功地应用, 但这一技术也有其缺陷. 例如, 电极化技术仅能在非线性极化率中用于产生二元相位状态 (0 和 π). 然而, 这种二进制相位态可能导致一些并不希望的非线性光学过程出现. 此外, 由于极化铁电材料的周期单元通常比光的波长大很多, 这可能导致产生不需要的衍射级次. 如果能克服二元相位和大的单元尺寸这两个问题, 将可以通过准相位匹配技术实现更高效率的非线性光学效率以及更好地控制非线性光学过程. 而利用非线性超构表面可以在空间上连续地调控非线性光学极化率的相位 (从 0 到 2π), 它的出现为我们解决上述问题提供了新的方案.

4.1 超构表面的人工极化

在非线性材料上用电极化的方式实现二元相位的概念最近已经被应用于设计非线性光学超构表面. 例如, 对于 U 形超构功能基元 [45], 可以简单地通过反转 U 形结构的开口方向 (图 4 (a)) 来使二阶非线性极化率携带 0, π 的相位. 这一概念可用于设计基于二元相位掩模的超构表面, 从而可以控制倍频光的衍射和聚焦效应 [45]. 然而, 对于非线性过程中更复杂的光束操控, 在空间上能进行连续的相位调控是大家迫切希望看到的技术.

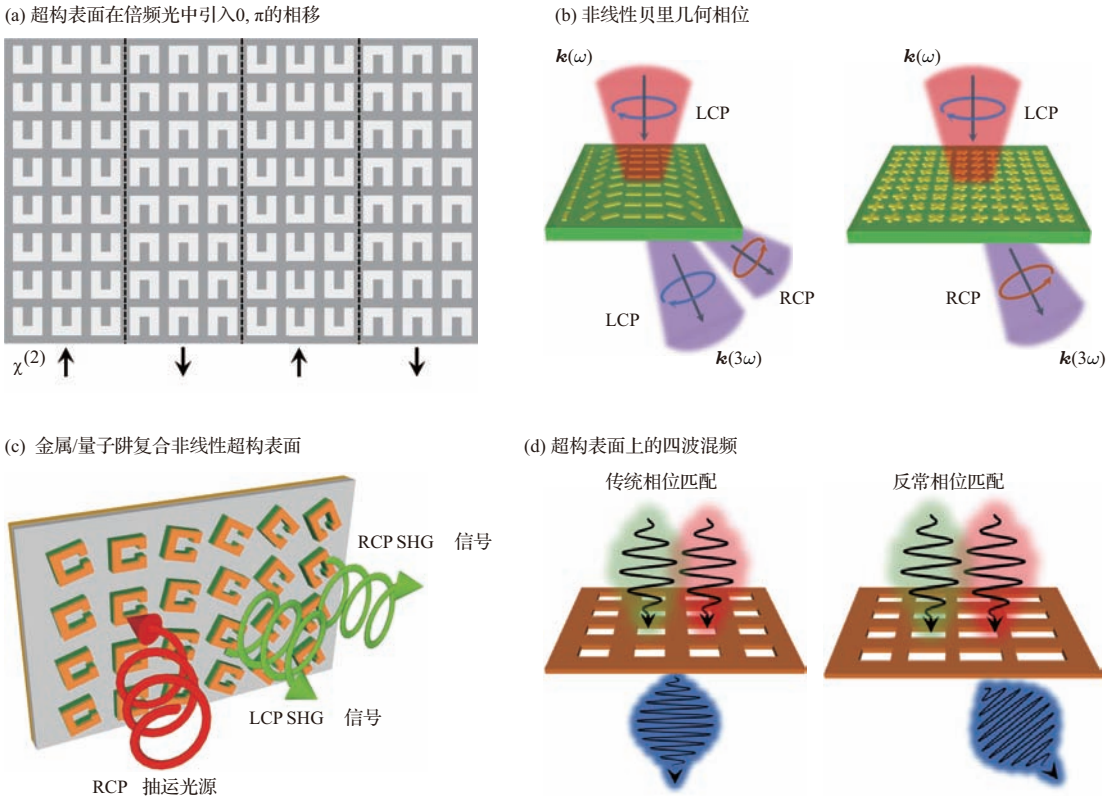


图 4 用于相位控制的非线性光学超构表面 (a) U 形超构功能基元组成的非线性光学超构表面 [45]; (b) 基于贝里几何相位超构功能基元的非线性超构表面可用于 THG 产生, 超构功能基元的空间方向变化可对三倍频信号引入连续的梯度相位, 从而导致 THG 光束的偏转; 由 C_2 对称的超构功能基元所构成的超构表面可以将左旋圆偏振 (LCP) 和右旋圆偏振 (RCP) 的三倍频信号分别衍射到第一和第二级方向, 而使用具有 C_4 对称的超构功能基元构成的超构表面仅可以将具有反向圆偏振态的三倍频信号衍射到第一级方向 [116]; (c) 基于贝里几何相位的金属/量子阱复合超构表面产生圆偏振倍频效应, 亚能带间跃迁与等离激元共振耦合可产生高效率的倍频辐射 [117]; (d) 通过调整超构功能基元的共振条件, 对等离激元共振超构表面上的 FWM 过程进行相位控制 [118]; $\chi^{(2)}$, 等效非线性二阶极化率; ω, 频率; $\boldsymbol{k}$, 波矢

Fig. 4. Nonlinearmetasurfaces for phase control: (a) Nonlinear photonic metasurface consisting of split-ring resonator meta-atoms [45]; (b) THG from a nonlinear metasurface based on geometric Berry phase meta-atoms, the spatially varying orientation of the meta-atoms results in a continuous phase gradient for the THG signal, leading to a deflection of the nonlinear beam[116]; (c) metal/quantum-well hybrid metasurface exhibiting a Berry phase for SHG[117]; (d) phase control of FWM in plasmonicmetasurfaces[118]. $\chi^{(2)}$, effective nonlinear second-order susceptibility; ω, frequency; $\boldsymbol{k}$, wave vector.

4.2 非线性贝里几何相位

在线性光学系统中, 入射圆偏振光与各向异性的超构功能基元相互作用, 散射光中具有与入射光手性相反的圆偏振光并且携带了与超构功能基元的旋转角度有关的几何相位[112,113], 即Pancharatnam-Berry几何相位(也称为贝里几何相位). 早期, 以色列科学家使用亚波长光栅实验验证了这一概念[114,115]. 贝里几何相位的主要优点是它不依赖于结构的尺寸、光学共振或固有的材料色散. 类比于线性光学的贝里几何相位, 我们在超构表面上所引入的非线性光学几何相位已被证明能够连续控地局域控制有效非线性极化率的相位[116] (图4(b), (c)).

如文献[116]中所描述, 可以通过简单的坐标变换来理解材料非线性极化率中的贝里几何相位. 对于沿着超构功能基元的旋转对称轴方向传播的圆偏振态基波, 局域的有效非线性偶极矩(极化强度)可以表示为$\boldsymbol{P}_{\theta}^{n\omega}=\alpha_{\theta}(\boldsymbol{E}^{\sigma})^{n}$, 其中$\alpha_{\theta}$是超构功能基元的第$n$次谐波的非线性极化率张量, θ为超构原子的方位角, $\boldsymbol{E}^{\sigma}$为基波的电场强度, $\sigma=\pm1$分别表示左旋或右旋圆偏振. 对于与基波圆偏振态的旋向相同或相反的非线性谐波辐射, 超构功能基元的非线性极化率可以分别表示为$\alpha_{\theta,\sigma,\sigma}^{n\omega}\propto \mathrm{e}^{(n-1)\mathrm{i}\theta\sigma}$和$\alpha_{\theta,-\sigma,\sigma}^{n\omega}\propto \mathrm{e}^{(n+1)\mathrm{i}\theta\sigma}$, 从而得出非线性极化率的相位因子为: $(n-1)\mathrm{i}\theta\sigma$和$(n+1)\mathrm{i}\theta\sigma$, 可见这是仅取决于超构原子旋转的几何方位角.

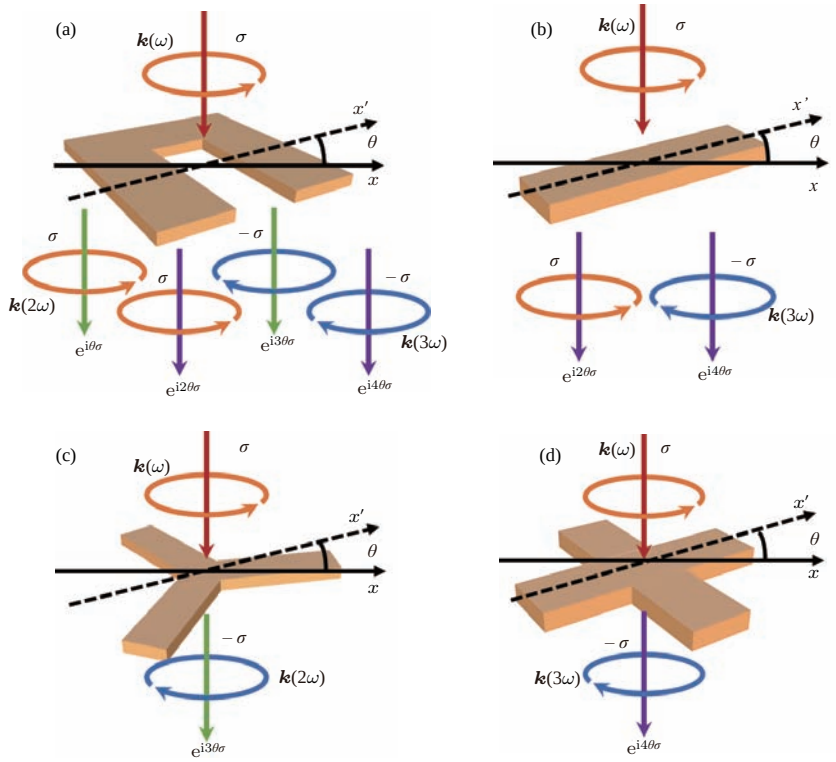


图5 超构功能基元对应的非线性光学几何相位. 具有一、二、三和四重旋转对称性(C_1—C_4)的非线性几何相位超构功能基元, 第n次非线性谐波对应的几何相位为$(n-1)\theta\sigma$或$(n+1)\theta\sigma$ (a) C_1对称超构功能基元上产生的SHG, $(n=2)$对应的几何相位为$\sigma\theta$和$3\sigma\theta$ (绿色箭头), THG, $(n=3)$对应的几何相位为$2\sigma\theta$和$4\sigma\theta$ (紫色箭头); (b) C_2超构功能基元上禁止产生倍频信号, 与基波的圆偏振相同和相反的THG光对应的几何相位为$2\sigma\theta$和$4\sigma\theta$; (c) 在C_3超构功能基元中, 在圆偏振基波泵浦下, 三倍频辐射是被禁止的; 倍频光圆偏振态与基波相反, 对应的几何相位为$3\sigma\theta$; (d) 在C_4超构功能基元中, 无法产生SHG, THG的圆偏振态与基波手性相反, 对应的几何相位为$4\sigma\theta$

Fig. 5. Nonlinear geometric phase elements Nonlinear phase elements with one-, two-, three- and four-fold rotational symmetry (C_1–C_4): (a) The relative phases of the SHG, $(n=2)$ waves from a C_1 symmetric meta-atom are θ and 3θ (green arrows), the relative phases of the THG, $(n=3)$ waves are 2θ and 4θ (purple arrows); (b) SHG from a C_2 symmetric structure is forbidden, hence only the relative phases for the THG are observed, 2θ and 4θ; (c) for a C_3 meta-atom the THG is forbidden, and the relative phase of SHG, with opposite circular polarization compared with the incoming wave, is 3θ; (d) SHG from C_4 meta-atoms is forbidden, and the relative phase of the THG, with opposite circular polarization, is 4θ.

图5总结了圆偏振基波泵浦下非线性谐波辐射的选择定则, 具有m重旋转对称的单个超构功能基元仅允许特定级数的非线性谐波辐射. 因此通过选择超构功能基元的旋转对称性, 可以获得特定圆偏振态的非线性谐波辐射. 通过进一步旋转超构功能基元, 可以实现谐波辐射的非线性贝里几何相位从0—2π连续可调(表1). 更重要的是, 具有旋转对称性($m \geqslant 3$)的超构功能基元在线性光学中具有各向同性响应. 因此, 为得到某些谐波级次而调整超构功能基元的方位角进而控制的非线性相位的做法, 并不影响基波的线性光学响应的均匀性. 因此, 具有旋转对称性的超构功能基元的线性和非线性光学响应可以相互分离. 可以说, 基于贝里几何相位的超构表面为控制非线性光辐射提供了一种强大而简单的方法.

表1 非线性贝里几何相位(非线性谐波级次和超构功能基元的旋转对称性决定了谐波辐射过程中的非线性几何相位. n, 谐波振荡级数; C_1—C_4, 一到四重旋转对称性的超构功能基元; θ, 超构功能基元相对于参考系的旋转角; σ, 光的圆偏振态)

Table 1. Nonlinear geometric Berry phase (n, order of harmonic generation; C_1–C_4, one- to four-fold rotational symmetry of the meta-atom; θ, relative orientation angle of the meta-atom with respect to the reference system; σ, circular polarization state of the light).

谐波阶数	σ 的符号	C_1	C_2	C_3	C_4
$n=1$	+				
	−	$2\theta\sigma$	$2\theta\sigma$		
$n=2$	+	$\theta\sigma$			
	−	$3\theta\sigma$		$3\theta\sigma$	
$n=3$	+	$2\theta\sigma$	$2\theta\sigma$		
	−	$4\theta\sigma$	$4\theta\sigma$		$4\theta\sigma$
$n=4$	+	$3\theta\sigma$		$3\theta\sigma$	
	−	$5\theta\sigma$			
$n=5$	+	$4\theta\sigma$	$4\theta\sigma$		$4\theta\sigma$
	−	$6\theta\sigma$	$6\theta\sigma$	$6\theta\sigma$	

此前, 我们通过具有三重和四重旋转对称性的超构功能基元组成的具有相位梯度的超构表面(图5(c), (d)), 从实验上已证明了可以连续控制倍频和三倍频辐射的非线性几何相位. 在这两种情况下, 倍频和三倍频的圆偏振态与基波的相反, 并且这两种非线性辐射分别具有$3\theta\sigma$和$4\theta\sigma$的非线性几何相位. 此外, 也可以使用具有较低旋转对称性的超构功能基元来获得非线性几何相位. 例如, 具有两重旋转对称性的纳米棒产生的三倍频的圆偏振分别与基波相同或者相反, 对应的非线性几何相位分别为$2\theta\sigma$和$4\theta\sigma$[116] (图5(b)). 类似地, 具有一重旋转对称性的U形超构功能基元, 可用于产生圆偏振态与基波相同或相反的倍频, 分别对应$\theta\sigma$和$3\theta\sigma$的贝里几何相位[117] (图5(a)). 总体来看, 我们可以通过简单地旋转超构功能基元的方向, 实现对不同级次的非线性谐波辐射的贝里几何相位的连续可调.

4.3 非线性相位的突变

光通过线性超构表面时引入突变相位可用于操控基于线偏振基波引起的非线性谐波辐射和四波混频信号的非线性相位[118]. 通过精确调整矩形纳米孔[118]或者纳米腔超构原子结构的长宽比, 可以实现对四波混频信号的非线性相位在0—2π的连续调控(图4(d)). 虽然类似方法也可以对非线性谐波辐射中的光辐射相位进行连续控制, 然而这种方法的缺点是: 非线性极化率的相位和幅度同时依赖于每个超构功能基元的大小和形状, 不利于非线性光学器件复杂功能的设计.

4.4 非线性动态贝里相位

到目前为止, 我们讨论的非线性光学相位主要是与超构功能基元的几何性质有关. 其实, 旋转的超构表面中的时间效应也是相当有趣的. 我们首先回顾线性光学中的动态贝里几何相位. 具有自旋角动量$\sigma\hbar$的光($\sigma = \pm 1$)[119], 分别对应于左旋或右旋圆偏振态, 当其通过以角频率Ω旋转的半波片后, 其自旋会产生反转. 在这个过程中, 光波叠加了一个时间依赖的动态贝里几何相位$\pm 2\Omega t$, 其中t是时间. 在这一过程中, 动态相位的变化会导致透射光产生$\pm 2\Omega$的频移, 正号或负号表示相对于与基波的圆偏振光的旋转方向相同或者相反[120−125], 该频移通常称为旋转多普勒频移.

尽管在线性光学中人们已经成功证明了动态贝里相位的存在, 研究者也在不断地探索这一现象在非线性光学过程中是否亦有对应. 在非线性光学范畴下, 根据旋转超构表面上非线性谐波辐射中的自旋角动量守恒定律和对称选择定则, 本文作者与合作者详细描述了非线性动态贝里相位的产生机理[126]. 相关理论指出非线性谐波的动态贝里相位等于$-(n \mp 1)s\sigma\Omega t$, 其中$s = \pm 1$表示超构表面的旋转方向, $\mp$符号对应于产生的n次谐波与基波具有相同或相反的圆偏振态. 实验上, 通过旋转具有三重旋转对称性的β硼酸钡晶体所产生的倍频信

号可观察到非线性旋转多普勒效应[126]. 我们有理由认为, 在旋转超构表面产生的非线性谐波中可以以相同的方式产生旋转多普勒效应. 虽然关于超构表面的非线性光学相位的研究仍处于初期阶段, 但是近期的研究结果充分体现了超构表面在调控非线性光学过程的巨大潜力.

5 非线性光的波前调控

光的波前调控已经成功应用于超分辨率成像和高维度光子纠缠等领域. 虽然诸如透镜、衍射光学元件和空间光调制器等常规光学元件已被广泛用于光的波前整形, 然而, 这些常规的光学元件的厚度或像素尺寸通常远大于光的波长, 这不可避免地限制了光电子器件的进一步小型化. 相比之下, 具有亚波长分辨率的超薄光学超构表面在光的波前整形方面有着卓越的表现. 例如, 使用超构表面可产生光学涡旋波束和艾里光束(Ariy beam)等[127,128]. 在可见光到近红外光波段, 等离激元共振和介电超构表面已用于计算全息图像显示的研究[13,14,19,21–24]. 超薄超构表面全息器件的光学效率已经高于80%, 这已表明其具有很大的实际应用潜力[21]. 此外, 通过单次的电子束曝光过程, 可以制备出具有对光自旋依赖的贝里几何相位涵盖0到2π范围的超构功能基元[21,24]. 因此, 从制造成本的角度来看, 超构表面全息器件的成本要远低于具有相同相位阶数的传统衍射光学元件.

将用于线性光波前调控的相关技术推广到非线性光学过程, 并将它们与非线性光学中的概念结合起来, 将为设计集成型的超快光学器件开辟新途径. 例如, 利用超薄超构表面实现的非线性光学频率转换过程, 可为波前整形和模式转换提供更大的自由度.

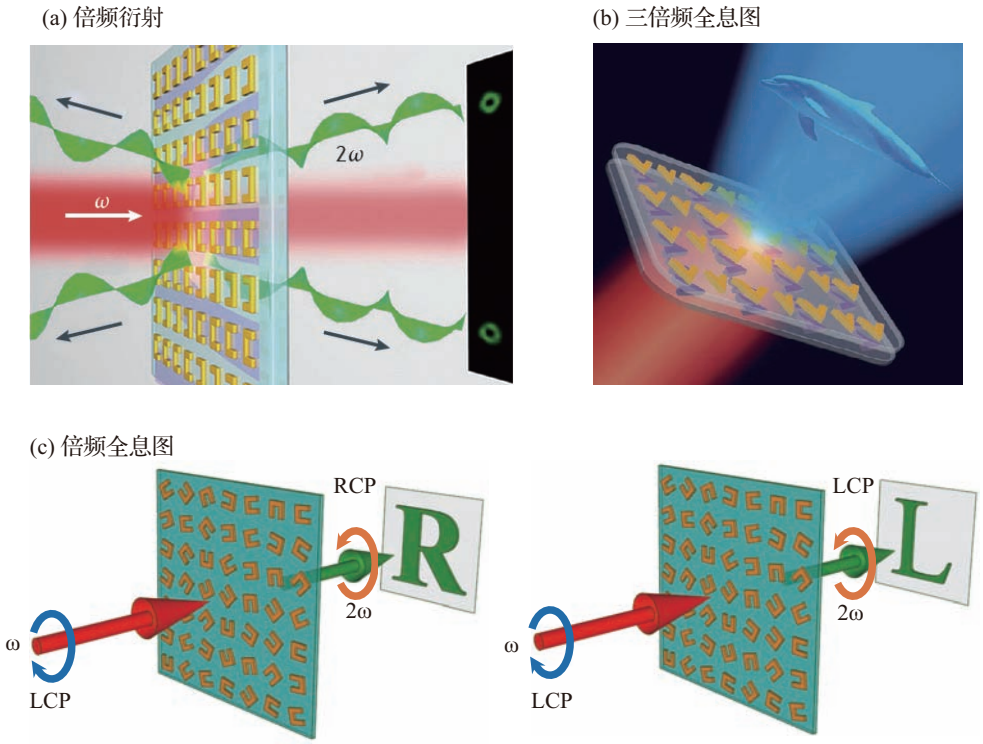


图6 非线性光束整形和全息成像 (a) 由U形超构功能基元构成的超构表面上的倍频衍射, 控制U形结构的开口取向, 可以在材料的非线性极化率中引入0或π的离散相位[137]; (b) 由V形超构功能基元构成的超构表面所产生的三倍频全息图[138]; (c) 圆偏振基波光泵浦下产生的非线性超构表面全息图, U形超构功能基元的不同取向决定了产生不同贝里几何相位的非线性极化率, 这种技术利用不同圆偏振态的倍频光的相位不同, 从而可以将不同非线性图像编码在同一个超构表面上[139]. ω, 频率; LCP, 左旋圆偏振态; RCP, 右旋圆偏振态

Fig. 6. Nonlinear beam shaping and holography: (a) Diffraction of second harmonic generated (SHG) signals from a metasurface made of split-ring resonator meta-atoms[137]; (b) artistic depiction of a nonlinear THG hologram obtained using V-shaped meta-atoms[138]; (c) nonlinear metasurface hologram for circularly polarized light, the local Berry phase in the nonlinear polarization results from the orientation of the split-ring resonator meta-atoms[139]. ω, frequency; LCP, left circular polarization; RCP, right circular polarization.

5.1 二元非线性相位与光束整形

非线性光学领域中最著名的波前整形器件之一便是相位共轭反射镜, 其主要功能是可以将入射光沿原入射方向反射回去, 并且反射光与入射光与具有共轭相位[129,130]. 自从相位共轭反射镜的概念提出之后, 人们对非线性光束的波前整形的研究也取得了越来越多的进展. 例如, 通过电场极化方法对铁电晶体进行二元相位编码, 实现对倍频光的的非线性拉曼-奈斯衍射的控制[131,132]. 利用非线性微结构材料中的二元非线性相位也可以产生非线性艾里光束[133,134], 这种光束在光镊和弯曲的等离子体通道的产生方面具有重要的应用. 在金属有机复合光学微结构上可利用二元相位实现对 $\chi^{(3)}$ 的调制, 从而产生三倍频涡旋光束[135]. 此外, 通过将U形超构功能基元与量子阱结合, 可以实现两个亚波长光源的相干叠加进而可用于操控远场倍频辐射的偏振态及传播路径[136]. 近来, 基于U形超构功能基元的二元相位特性, 非线性超构表面已被用于实现倍频信号的光学涡旋和艾里光束[137](图6 (a)). 以上讨论的非线性光束整形器件中仅使用了二阶相位, 因此会引入非线性光学极化率中高阶的傅里叶成分, 从而将不可避免地产生高阶光衍射效应等, 进而可能影响光束整形的效果和效率.

5.2 全息成像中的连续非线性相位

非线性超构表面的一个的强大应用是非线性全息成像. 利用最近有关非线性超构表面的贝里几何相位和突变相位调控的研究结果, 可实现对非线性谐波辐射和四波混频信号进行在0—2π 的连续相位控制[116−118]. 非线性相位的连续调控不仅能够更好地控制非线性光束的辐射分布, 还可以解决二元相位元件中的孪生图像问题. 目前, 人们已经从实验上验证了许多有趣的光学现象, 例如: 光的非线性自旋轨道相互作用、光束偏转和聚焦效应等. 将非线性超构表面的概念与成熟的全息成像技术相结合, 可以通过单个超构表面将一束基波转换为多个非线性光束或图像[138,139](图6 (b), (c)). 此外, 使用非线性几何相位元件, 可实现自旋和波长多路复用编码技术的全息成像. 这种与光自旋相关的非线性超构表面全息成像可为全息复用成像提供无光色散和无信号串扰的新解决方案, 在多维光学数据存储和光学加密领域极具应用前景.

6 结束语

本文综述了近年来非线性光学超构表面及其各种光学功能的快速发展现状. 可以看出, 通过调控超构功能基元的局域和全局对称性, 人们能够以前所未有的自由度对光学超构表面上非线性谐波辐射和四波混频过程进行有效控制. 超构表面上所引入的非线性贝里几何相位和非线性突变相位, 可用于非线性光束的波前整形以及全息成像中信息复用等. 目前, 由于非线性超构表面的光学转换效率仍然非常低, 因此需要探索新的材料和系统, 以提高非线性频率的转换效率. 其中一种比较有效的方法是将超构功能基元的光学共振与半导体的子带间跃迁耦合[65]. 随着非线性光学超构表面功能和性能的进一步发展, 我们预计更多的应用及新物理现象会不断涌现. 例如, 非线性贝里几何相位的概念可以扩展到高次谐波产生的过程中[140−145]; 通过控制超构表面的对称性与高次谐波级数, 可以有效地操控高次谐波的偏振态和波前. 随着太赫兹非线性光学技术的不断发展, 结合半导体中丰富的元激发物理可能会为量子电子学的研究开辟出新的研究方向[141,144]. 我们预计基于过渡金属二硫化物半导体薄膜或者其他二维材料等所制备而成的超构表面, 在太赫兹光源泵浦下可借助带间跃迁和等离激元共振效应进而高效率地产生高次谐波. 另一方面, 光学超构表面也会在量子光学领域的应用获得更多关注. 例如, 非线性光学晶体在参量下转换过程中产生的纠缠光子对量子通信过程等起着关键作用. 尽管人们可以使用各种相位匹配方案来操纵纠缠光子的偏振态, 但是用于高维信息编码的光子波前整形仍然高度依赖光学空间光调制器, 而目前空间光调制器的尺寸严重限制了量子芯片集成等应用. 我们期望未来可能出现的集成了超构光学表面与传统量子光源的新型器件, 即同时拥有操控光子偏振态和波前能力的非线性量子超构表面.

简而言之, 非线性光学超构表面具有很好的应用潜力. 将来, 我们可以很容易地将多个非线性光学功能集成于超薄光学芯片上. 这一新的研究领域涉及多个学科, 它不仅为研究基础物理现象提供了一个新的平台, 同时也有机会在诸如生物传感[145]、成像、经典和量子光学信息处理中得到实际的应用[146].

本文主要内容翻译自作者李贵新等于2017年为《自然综述: 材料学》撰写的英文版综述文章[147], 中文翻译获得了Springer Nature出版集团的官方授权. 作者对欧阳敏博士通读全文并提出宝贵修改意见表示由衷感谢.

参考文献

[1] Soukoulis C M, Wegener M 2011 *Nat. Photon.* **5** 523

[2] Hess O, Pendry J B, Maier S A, Oulton R F, Hamm J M, Tsakmakidis K L 2012 *Nat. Mater.* **11** 573

[3] Zheludev N I, Kivshar Y S 2012 *Nat. Mater.* **11** 917

[4] Pendry J B, Luo Y, Zhao R 2015 *Science* **348** 521

[5] Yu N, Genevet P, Kats M A, Aieta F, Tetienne J, Capasso F, Gaburro Z 2011 *Science* **334** 333

[6] Kildishev A V, Boltasseva A, Shalaev V M 2013 *Science* **339** 1232009

[7] Meinzer N, Barnes W L, Hooper I R 2014 *Nat. Photon.* **8** 889

[8] Yu N, Capasso F 2014 *Nat. Mater.* **13** 139

[9] Ni X, Emani N K, Kildishev A, Boltasseva V A, Shalaev V M 2012 *Science* **335** 427

[10] Sun S, He Q, Xiao S, Xu Q, Li X, Zhou L 2012 *Nat. Mater.* **11** 426

[11] Chen X, Huang L, Mühlenbernd H, Li G, Bai B, Tan Q, Jin G, Qiu C W, Zhang S, Zentgraf T 2012 *Nat. Commun.* **3** 1198

[12] Chen W T, Yang K Y, Wang C M, Huang Y W, Sun G, Chiang I D, Liao C Y, Hsu W L, Lin H T, Sun S, Zhou L, Liu A Q, Tsai D P 2013 *Nano Lett.* **14** 225

[13] Ni X, Kildishev A V, Shalaev V M 2013 *Nat. Commun.* **4** 2807

[14] Huang L, Chen X, Mühlenbernd H, Zhang H, Chen S, Bai B, Tan Q, Jin G, Cheah K W, Qiu C W, Li J, Zentgraf T, Zhang S 2013 *Nat. Commun.* **4** 2808

[15] Li G, Kang M, Chen S, Zhang S, Pun E Y B, Cheah K W, Li J 2013 *Nano Lett.* **13** 4148

[16] Yin X B, Ye Z L, Rho J, Wang Y, Zhang X 2013 *Science* **339** 1405

[17] Lin D, Fan P, Hasman E, Brongersma M L 2014 *Science* **345** 298

[18] Khorasaninejad M, Crozier K B 2014 *Nat. Commun.* **5** 5386

[19] Huang Y W, Chen W T, Tsai W Y, Wu P C, Wang C M, Sun G, Tsai D P 2015 *Nano Lett.* **15** 3122

[20] Chong K E, Staude I, James A, Dominguez J, Liu S, Campione S, Subramania G S, Luk T S, Decker M, Neshev D N, Brener I, Kivshar Y S 2015 *Nano Lett.* **15** 5369

[21] Zheng G, Mühlenbernd H, Kenney M, Li G, Zentgraf T, Zhang S 2015 *Nat. Nanotechnol.* **10** 308

[22] Arbabi A, Horie Y, Bagheri M, Faraon A 2015 *Nat. Nanotechnol.* **10** 937

[23] Huang L, Mühlenbernd H, Li X, Song X, Bai B, Wang Y, Zentgraf T 2015 *Adv. Mater.* **27** 6444

[24] Wen D, Yue F, Li G, Zheng G, Chan K, Chen S, Chen M, Li K F, Wong P W, Cheah K W, Pun E Y B, Zhang S, Chen X 2015 *Nat. Commun.* **6** 8241

[25] Aieta F, Kats M A, Genevet P, Capasso F 2015 *Science* **347** 1342

[26] Khorasaninejad M, Chen W T, Devlin R C, Oh J, Zhu A Y, Capasso F 2016 *Science* **352** 1190

[27] Wang Q, Rogers, E T F, Gholipour B, Wang C M, Yuan G, Teng J, Zheludev N I 2016 *Nat. Photonics* **10** 60

[28] Maguid E, Yulevich I, Veksler D, Kleiner V, Brongersma M L, Hasman E 2016 *Science* **352** 1202

[29] Chen S, Cai Y, Li G, Zhang S, Cheah K W 2016 *Laser Photonics Rev.* **2** 322

[30] Shen Y R 1984 *The Principles of Nonlinear Optics* (New York: John Wiley and Sons)

[31] Boyd R W 2008 *Nonlinear Optics* (3rd Ed.) (Burlington: Academic)

[32] Yariv A, Pepper D M 1997 *Opt. Lett.* **1** 16

[33] Sefler G A, Kitayama K 1998 *J. Lightwave Technol.* **16** 1596

[34] Kauranen M, Zayats A V 2012 *Nat. Photon.* **6** 737

[35] Lapine M, Shadrivov I V, Kivshar Y S 2014 *Rev. Mod. Phys.* **86** 1093

[36] Klein M W, Enkrich C, Wegener M, Linden S 2006 *Science* **313** 502

[37] Kujala S, Canfield B K, Kauranen M, Svirko Y, Turunen J 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 167403

[38] Zhang Y, Grady N K, Ayala-Orozco C, Halas N J 2011 *Nano Lett.* **11** 5519

[39] Aouani H, Navarro-Cia M, Rahmani M, Sidiropoulos T P H, Hong M, Oulton R F, Maier S A 2012 *Nano Lett.* **12** 4997

[40] Husu H, Siikanen R, Mäkitalo J, Lehtolahti J, Laukkanen J, Kuittinen M, Kauranen M 2012 *Nano Lett.* **12** 673

[41] Linden S, Niesler F B P, Grynko Y, Meier T, Wegener M 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 015502

[42] Czaplicki R, Husu H, Siikanen R, Makitalo J, Kauranen M 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 093902

[43] Konishi K, Higuchi T, Li J, Larsson J, Ishii S, Kuwata-Gonokami M 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 135502

[44] O'Brien K, Suchowski H, Rho J, Salandrino A, Kante B, Yin X, Zhang X 2015 *Nat. Mater.* **14** 379

[45] Segal N, Keren-Zur S, Hendler N, Ellenbogen T 2015 *Nat. Photon.* **9** 180

[46] Celebrano M, Wu X, Baselli M, Großmann S, Biagioni P, Locatelli A, de Angelis C, Cerullo G, Osellame R, Hecht B, Duò L, Ciccacci F, Finazzi M 2015 *Nat. Nanotechnol.* **10** 412

[47] Kruk S, Weismann M, Bykov A Y, Mamonov E A, Kolmychek I A, Murzina T, Panoiu N C, Neshev D N, Kivshar Y S 2015 *ACS Photonics* **2** 1007

[48] Sartorello G, Olivier N, Zhang J, Yue W, Gosztola D J, Wiederrecht G P, Wurtz G, Zayats A V 2016 *ACS Photonics* **3** 1517

[49] Camacho-Morales R, Rahmani M, Kruk S, Wang L, Xu L, Smironva D A, Solntsev A S, Miroshnichenko A, Yan H H, Kaouta F, Naureen S, Vora K, Carletti L, de Angelis C, Jagadish C, Kivshar Y S, Neshev D N 2016 *Nano Lett.* **16** 7191

[50] Hanke T, Krauss G, Trautlein D, Wild B, Bratschitsch B, Leitenstorfer A 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 257404

[51] Utikal T, Zentgraf T, Paul T, Rockstuhl C, Lederer F, Lippitz M, Giessen H 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 133901

[52] Liu H, Li G X, Li K F, Chen S M, Zhu S N, Chan C T, Cheah K W 2011 *Phys. Rev. B* **84** 235437

[53] Aouani H, Rahmani M, Navarro-Cía M, Maier S A 2014 *Nat. Nanotechnol.* **9** 290

[54] Metzger B, Schumacher T, Hentschel M, Lippitz M, Giessen H 2014 *ACS Photon.* **1** 471

[55] Chen S M, Li G, Zeuner F, Wong W H, Pun E Y B, Zentgraf T, Cheah K W, Zhang S 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 033901

[56] Grinblat G, Li Y, Nielsen M P, Oulton R F, Maier S A 2016 *Nano Lett.* **16** 4635

[57] Smirnova D A, Khanikaev A B, Smirnov L A, Kivshar Y S 2016 *ACS Photon.* **3** 1468

[58] Renger J, Quidant R, van Hulst N, Novotny L 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 046803

[59] Chen P Y, Alù A 2011 *Nano Lett.* **11** 5514

[60] Palomba S, Zhang S, Park Y, Bartal G, Yin X, Zhang X 2012 *Nat. Mater.* **11** 34

[61] Suchowski H, O'Brien K, Wong Z J, Salandrino A, Yin X, Zhang X 2013 *Science* **342** 1223

[62] Zhang Y, Wen F, Zhen Y R, Nordlander P, Halas N J 2013 *Proc. Natl: Acad. Sci. USA* **110** 9215

[63] Rose A, Powell D A, Shadrivov I V, Smith D R, Kivshar Y S 2013 *Phys. Rev. B* **88** 195148

[64] Simkhovich B, Bartal G 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 056802

[65] Lee J, Tymchenko M, Argyropoulos C, Chen P, Lu F, Demmerle F, Boehm G, Amann M, Alù, A, Belkin M 2014 *Nature* **511** 65

[66] NookulaN, Lee J, Tymchenko M, Gomez-Diaz J S, Demmerle F, Boehm G, Lai K, Shvets G, Amann M, Alu A, Belkin M 2016 *Optica* **3** 283

[67] Shcherbakov M R, Neshev D N, Hopkins B, Shorokhov A S, Staude I, Melik-Gaykazyan E V, Decker M, Ezhov A A, Miroshnichenko A E, Brener I, Fedyanin A A, Kivshar Y S 2014 *Nano Lett.* **14** 6488

[68] Yang Y, Wang W, Boulesbaa A, Kravchenko I I, Briggs D P, Puretzky A, Geohegan D, Valentine J 2015 *Nano Lett.* **15** 7388

[69] Terhune R W, Maker P D, Savage C M 1962 *Phys. Rev. Lett.* **8** 404

[70] Lee C, Chang R, Bloembergen N 1967 *Phys. Rev. Lett.* **18** 167

[71] Cai W, Vasudev A P, Brongersma M L 2011 *Science* **333** 1720

[72] Kang L, Cui Y, Lan S, Rodrigues S, Brongersma M L, Cai W 2014 *Nat. Commun.* **5** 4680

[73] Lan S, Kang L, Schoen D T, Rodrigues S P, Cui Y, Brongersma M L, Cai W 2015 *Nat. Mater.* **14** 807

[74] Seyler K L, Schaibley J R, Gong P, Rivera P, Jones A M, Wu S, Yan J, Mandrus D G, Yao W, Xu X 2015 *Nat. Nanotechnol.* **10** 407

[75] Cox J D, Garcia de Abajo F J 2014 *Nat. Commun.* **5** 5725

[76] Cox J D, Garcia de Abajo F J 2015 *ACS Photon.* **2** 306

[77] Burns W K, Bloembergen N 1971 *Phys. Rev. B* **4** 3437

[78] Bhagavantam S, Chandrasekhar P 1972 *Proc. Indian Acad. Sci. A* **76** 13

[79] Zheludev N I, Emelyanov V I 2004 *J. Opt. A* **6** 26

[80] Rose A, Huang D, Smith D R 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 063902

[81] Rose A, Huang D, Smith D 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 063901

[82] Armstrong J A, Bloembergen N, Ducuing J, Pershan P S 1962 *Phys. Rev.* **127** 1918

[83] Patel C K N, Van Tran N 1969 *Appl. Phys. Lett.* **15** 189

[84] Shelton J W, Shen Y R 1970 *Phys. Rev. Lett.* **25** 23

[85] Fejer M M, Magel G A, Jundt D H, Byer R L 1992 *IEEE J. Quantum Electron.* **28** 2631

[86] Zhu S N, Zhu Y, Qin Y, Wang H, Ge C, Ming N 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 2752

[87] Hazen R M, Sholl D S 2003 *Nat. Mater.* **2** 367

[88] Ernst K H 2012 *Phys. Status Solidi B* **249** 2057

[89] Pendry J B 2004 *Science* **306** 1353

[90] Kuwata-Gonokami M, Saito N, Ino Y, Kauranen M, Jefimovs K, Vallius Y, Turunen J, Svirko Y 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 227401

[91] Rogacheva A V, Fedotov V A, Schwanecke A S, Zheludev N I 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 177401

[92] Plum E, Fedotov V A, Zheludev N I 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 191911

[93] Gansel J K, Thiel M, Rill M S, Decker M, Bade K, Saile V, Freymann G, Linden S, Wegener M 2009 *Science* **325** 1513

[94] Hendry E, Carpy T, Johnston J, Popland M, Mikhaylovskiy R V, Lapthorn A J, Kelly S M, Barron L D, Gadegaard N, Kadodwala M 2010 *Nat. Nanotechnol.* **5** 783

[95] Zhang S, Zhou J, Park Y S, Rho J, Singh R, Nam S, Azad A K, Chen H T, Yin X, Taylor A J, Zhang X 2012 *Nat. Commun.* **3** 942

[96] Wu C, Arju N, Kelp G, Fan J A, Dominguez J, Gonzales E, Tutuc E, Brener I, Shvets G 2014 *Nat. Commun.* **5** 3892

[97] Kan T, Isozaki A, Kanda N, Nemoto N, Konishi K, Takahashi H, Kuwata-Gonokami M, Matsumoto K, Shimoyama I 2015 *Nat. Commun.* **6** 8422

[98] Verbiest T, Kauranen M, Persoons A 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 3601

[99] Petralli-Mallow T, Wong T M, Byers J D, Yee H I, Hicks J M 1993 *J. Phys. Chem.* **97** 1383

[100] Byers J D, Yee H I, Hicks J M 1994 *J. Chem. Phys.* **101** 6233

[101] Maki J J, Kauranen M, Persoons A 1995 *Phys. Rev. B* **51** 1425
[102] Verbiest T, Kauranen M, Rompaey Y V, Persoons A 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 1456
[103] Valev V K, Smisdom N, Silhanek A V, de Clercq B, Gillijns W, Ameloot M, Moshchalkov V V, Verbiest T 2009 *Nano Lett.* **9** 3945
[104] Valev V K, Silhanek A V, Verellen N, Gillijns W, Van Dorpe P, Aktsipetrov O A, Vandenbosch G A E, Moshchalkov V V, Verbiest T 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 127401
[105] Belardini A, Larciprete M C, Centini M, Fazio E, Sibilia C 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 257401
[106] Huttunen M J, Bautista G, Decker M, Linden S, Wegener M, Kauranen M 2011 *Opt. Mater. Express* **1** 46
[107] Rodrigues S P, Lan S, Kang L, Cui Y, Cai W 2014 *Adv. Mater.* **26** 6157
[108] Valev V K, Baumberg J J, de Clercq B, Braz N, Zheng X, Osley E J, Vandendriessche S, Hojeij M, Blejean C, Mertens J, Biris C G, Volskiy V, Ameloot M, Ekinci Y, Vandenbosch G A E, Warburton P A, Moshchalkov V V, Panoiu N C, Verbiest T 2014 *Adv. Mater.* **26** 4074
[109] Kolkowski R, Petti L, Rippa M, Lafargue C, Zyss J 2015 *ACS Photon.* **2** 899
[110] Chen S, Zeuner F, Weismann M, Reineke B, Li G, Valev V K, Cheah K W, Panoiu N C, Zentgraf T, Zhang S 2016 *Adv. Mater.* **28** 2992
[111] Ren M, Plum E, Xu J, Zheludev N I 2012 *Nat. Commun.* **3** 833
[112] Pancharatnam S 1956 *Proc. Indian Acad. Sci. A* **44** 247
[113] Berry M V 1984 *Proc. R. Soc. A* **392** 45
[114] Bornzon Z, Biener G, Kleiner V, Hasman E 2002 *Opt. Lett.* **27** 1141
[115] Hasman E, Kleiner V, Biener G, Niv A 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 328
[116] Li G, Chen S, Pholchai N, Reineke B, Wong P W H, Pun E Y B, Cheah K W, Zentgraf T, Zhang S 2015 *Nat. Mater.* **14** 607
[117] Tymchenko M, Gomez-Diaz J S, Lee J, Nookala N, Belkin M A, Alù A 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 207403
[118] Almeida E, Shalem G, Prior Y 2016 *Nat. Commun.* **7** 10367
[119] Poynting J H 1909 *Proc. R. Soc. A* **82** 560
[120] Beth R A 1936 *Phys. Rev.* **50** 115
[121] Allen P J 1966 *Am. J. Phys.* **34** 1185
[122] Garetz B A, Armold S 1979 *Opt. Commun.* **31** 1
[123] Garetz B A 1980 *J. Opt. Soc. Am.* **71** 609
[124] Simon R, Kimble H J, Sudarshan E C G 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 19
[125] Dholakia K 1988 *Am. J. Phys.* **66** 1007
[126] Li G, Zentgraf T, Zhang S 2016 *Nat. Phys.* **12** 736
[127] Li L, Li T, Wang S M, Zhang C, Zhu S N 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 126804
[128] Dolev I, Epstein I, Arie A 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 203903
[129] Gabor D 1948 *Nature* **161** 777
[130] Pendry J B 2008 *Science* **332** 71
[131] Berger V 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 4136
[132] Broderick N G R, Ross G W, Offerhaus H L, Richardson D J, Hanna D C 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 4345
[133] Ellenbogen T, Voloch-Bloch N, Ganany-Padowicz A, Arie A 2009 *Nat. Photon.* **3** 395
[134] Hong X, Yang B, Zhang C, Qin Y Q, Zhu Y Y 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 163902
[135] Li G, Chen S, Cai Y, Zhang S, Cheah K W 2014 *Adv. Opt. Mater.* **2** 389
[136] Wolf O, Campione S, Benz A, Ravikumar A P, Liu S, Luk T S, Kadlec E, Shaner E A, Klem J F, Sinclair M B, Brener I 2015 *Nat. Commun.* **6** 7667
[137] Keren-Zur S, Avayu O, Michaeli L, Ellenbogen T 2016 *ACS Photon.* **3** 117
[138] Almeida E, Bitton O, Prior Y 2016 *Nat. Commun.* **7** 12533
[139] Ye W, Zeuner F, Li X, Reineke B, He S, Qiu C W, Liu J, Wang Y, Zhang S, Zentgraf T 2016 *Nat. Commun.* **7** 11930
[140] Zürch M, Kern C, Hansinger P, Dreischuh A, Spielmann C H 2012 *Nat. Phys.* **8** 743
[141] Fleischer A, Kfir O, Diskin T, Sidorenko P, Cohen O 2014 *Nat. Photon.* **8** 543
[142] Schubert O, Hohenleutner M, Langer F, Urbanek B, Lange C, Huttner U, Golde D, Meier T, Kira M, Koch S W, Huber R 2014 *Nat. Photon.* **8** 119
[143] Hickstein D D, Dollar F J, Grychtol P, Ellis J L, Knut R, Hernández-García C, Zusin D, Gentry C, Shaw J M, Fan T, Dorney K M, Becker A, Jaroń-Becker A, Kapteyn H C, Murnane M M, Durfee C G 2015 *Nat. Photon.* **9** 743
[144] Hohenleutner M, Langer F, Schubert O, Knorr M, Huttner U, Koch S W, Kira M, Huber R 2015 *Nature* **523** 572
[145] Baykusheva D, Ahsan M S, Lin N, Wörner H J 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 123001
[146] Walmsley I A 2015 *Science* **348** 525
[147] Li G, Zhang S, Zentgraf T 2017 *Nat. Rev. Mater.* **3** 17010

SPECIAL ISSUE—Diffraction limit of electromagnetic waves

Nonlinear photonic metasurfaces

Deng Jun-Hong Li Gui-Xin†

(*Department of Materials Science and Engineering, Southern University of Science and Technology, Shenzhen 518055, China*)

(Received 15 May 2017; revised manuscript received 5 June 2017)

Abstract

In linear optical regime, many novel optical functions have been demonstrated by using ultrathin photonic metasurfaces. The main concept of metasurface is to appropriately assembly the spatially variant meta-atoms on a subwavelength scale, and realize the manipulations of polarization, phase and amplitude of light. Recently, the nonlinear optical properties of photonic metasurfaces have attracted a lot of attention. In this review, we discuss the design, material selection, symmetry consideration of the meta-atoms, as well as the applications such as nonlinear chiral optics, nonlinear geometric Berry phase and nonlinear wavefront engineering. Lastly, we point out the challenges and potentials of nonlinear photonic metasurfaces for manipulating the light-matter interactions.

Keywords: metasurface, nonlinear optics, geometric berry phase, metamaterials

PACS: 78.67.Pt, 81.05.Xj, 02.65.–k **DOI:** 10.7498/aps.66.147803

† Corresponding author. E-mail: ligx@sustc.edu.cn

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

超分辨成像及超分辨关联显微技术研究进展

林丹樱　屈军乐

Recent progress on super-resolution imaging and correlative super-resolution microscopy

Lin Dan-Ying　Qu Jun-Le

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 148703 (2017)　DOI: 10.7498/aps.66.148703
在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.148703
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I14

您可能感兴趣的其他文章
Articles you may be interested in

表面等离激元结构光照明显微成像技术研究进展
Research progress of plasmonic structure illumination microscopy
物理学报.2017, 66(14): 148701　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.148701

Fresnel 波带片编码成像的高分辨重建
High-resolution reconstruction of Fresnel zone plate coded imaging
物理学报.2017, 66(5): 054203　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.054203

基于累积量标准差的超分辨光学涨落成像解卷积优化
Deconvolution optimization in super-resolution optical fluctuation imaging based on cumulant standard deviation
物理学报.2016, 65(19): 198701　http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.198701

基于法布里-珀罗调谐滤波器的傅里叶域锁模扫频激光光源
Fiber Fabry-Perot tunable filter based Fourier domain mode locking swept laser source
物理学报.2013, 62(6): 068703　http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.068703

大口径多层介质膜光栅衍射效率测量及其在制作工艺中的应用
Diffraction efficiency measurement of large aperture multilayer dielectric grating and its application in the fabrication process
物理学报.2012, 61(17): 174203　http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.174203

专题: 电磁波衍射极限

超分辨成像及超分辨关联显微技术研究进展*

林丹樱 屈军乐†

(深圳大学光电工程学院, 光电子器件与系统教育部/广东省重点实验室, 深圳 518060)

(2017 年 4 月 19 日收到; 2017 年 6 月 21 日收到修改稿)

光学成像系统中有限孔径对光波的衍射, 使得光学显微成像技术的分辨率受到“衍射极限”限制而无法进一步提高. 自 1873 年 E. K. Abbe 提出该问题以来, 衍射极限就一直是学术界研究的热点. 近年来, 随着高强度激光、高灵敏探测器等光电器件研制技术以及新型荧光探针开发等相关领域的快速发展, 光学显微技术衍射极限问题的研究迎来了新的契机, 超分辨显微成像技术 (super-resolution microscopy, SRM) 在近十年内取得了令人瞩目的巨大成就. 本文从空域和频域角度回顾了衍射极限分辨率的基本原理, 并据此对目前常见的各种 SRM 技术“绕过”衍射极限提高分辨率的机理给予了详解, 同时介绍了各类技术的发展动态和研究方向; 作为 SRM 的一个新的重要的发展趋势, 本文详细介绍了超分辨关联显微技术的最新研究进展, 包括 SRM 与活细胞实时荧光显微、荧光寿命显微、光谱测量和成像、电子显微、原子力显微、质谱技术等的关联, 着重讨论了各类超分辨关联显微技术的作用和意义; 最后, 对 SRM 技术和超分辨关联显微技术的未来发展方向进行了展望.

关键词: 衍射极限, 超分辨成像, 关联显微技术, 超分辨关联显微技术

PACS: 87.64.M–, 42.40.Lx, 42.30.Va, 42.25.–p **DOI:** 10.7498/aps.66.148703

1 引 言

光学成像系统中客观存在的有限孔径对光波的衍射使得光学显微镜的分辨率无法通过提高放大倍率和消除像差而无限提高, 而是存在一个理论上限, 称为衍射极限. 该问题由 E. K. Abbe 于 1873 年提出显微镜的二次成像理论时指出并成为困扰光学设计界长达一个多世纪的难题 [1], 同时也一直是学术界研究的热点问题. 近年来, 随着高强度激光、高灵敏探测器等光电器件研制技术以及新型荧光探针开发等相关领域的快速发展, 光学显微衍射极限问题的研究迎来了新契机, 超分辨显微成像技术 (super-resolution microscopy, SRM) 在近十年内取得了令人瞩目的巨大成就, 为现代生物医学研究提供了强有力的工具. 2014 年诺贝尔化学奖授予了 E. Betzig, S. W. Hell 和 W. Moerner 三位科学家, 以表彰他们发明和发展 SRM 技术的贡献, 其中前两位分别是单分子定位和受激辐射耗尽两类代表性 SRM 技术的发明人, 第三位发现的荧光蛋白光激活效应则是单分子定位 SRM 技术的基础. 他们的获奖肯定了化学、物理、生物等多学科交叉在当今前沿科学技术发展中的重要作用, 同时也掀起了 SRM 技术和应用研究的新高潮. 如今不仅 SRM 技术本身在快速发展和完善, SRM 应用领域在迅速拓展和深化, 而且 SRM 与其他技术还碰撞出了许多火花, 例如超分辨关联显微技术就是近年来 SRM 的一个新的重要的发展趋势. 本文介绍和分析各种 SRM 技术的基本原理和发展历程, 并讨论将 SRM 技术与活细胞实时荧光显微、荧光寿命显微、光谱测量和成像、电子显微、原子力显微等技术进行关联显微的研究进展, 同时对 SRM 技术

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2015CB352005)、国家自然科学基金 (批准号: 61525503, 61378091, 61620106016) 和广东省自然科学基金创新研究团队项目 (批准号: 2014A030312008) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: jlqu@szu.edu.cn

© 2017 中国物理学会 Chinese Physical Society

和超分辨关联显微技术的未来发展进行展望.

2 光学显微镜的衍射极限分辨率

光学显微镜的衍射极限分辨率可从空域和频域两个角度来理解.

从空域角度, 显微镜的成像过程满足透镜成像规律, 理想情况下只要系统放大倍率足够高且很好地消除了各种像差, 就能将任何极微小的样品放大到可被观察的程度. 然而在19世纪, E. K. Abbe研究显微镜制造技术的改进时却发现显微镜的分辨率并不能无限提高, 而且一个小孔径的消像差物镜甚至可能比一个大孔径的普通物镜得到更差的分辨率. 从空域角度理解, 其根本原因在于成像系统的有限通光孔径使光波发生衍射, 导致物平面上无限小的物点在像平面变成有限尺寸的衍射斑, 因此当两个物点相距太近导致两个衍射斑叠加形成一个像斑时就无法在图像上对它们进行区分了. 也就是说, 有限孔径的衍射使得光学成像系统存在一个分辨率上限, 这就是衍射极限分辨率. 显微镜中圆形孔径的衍射形成的像斑称为艾里斑[2], 其原理可用图1 (a) 的单透镜成像来说明: 物点O发出的光波经透镜L后在孔径A处发生衍射, 波前各点发出的子波在像平面P相干叠加, 几何像点P_0处因各子波光程相同发生相长干涉而光强最强, P_1点因光程相差半波长发生相消干涉而光强为零, 其余则介于两者之间, 故形成如图所示的艾里斑图样, 其能量大部分集中在中央亮斑内, 且孔径A越小、波长越长, P_1离P_0就越远, 亮斑半径r越大. 其定量关系为$r = 0.61\lambda/u'$[3], 其中λ为波长, u'为像方孔径角. 根据系统观点, 物点通过成像系统后形成的像斑称为点扩展函数 (point spread function, PSF), 系统的成像特性由该PSF决定. 当两个物点同时经过系统时, 其像斑将叠加, 如图1 (b) 所示. 可见, 两个像斑存在一个临界距离, 小于该距离时像斑叠加后将变得无法区分. 该临界距离的确定通常采用瑞利判据, 即以一个像斑的中心与另一个像斑的第一暗环重合作为区分标准, 此时两像斑中心距离等于艾里斑半径. 计算此时对应的两个物点的距离, 可得到极限分辨率为$d = 0.61\lambda/NA$, 其中$NA = n\sin u$称为数值孔径, n和u分别为物方折射率和孔径角.

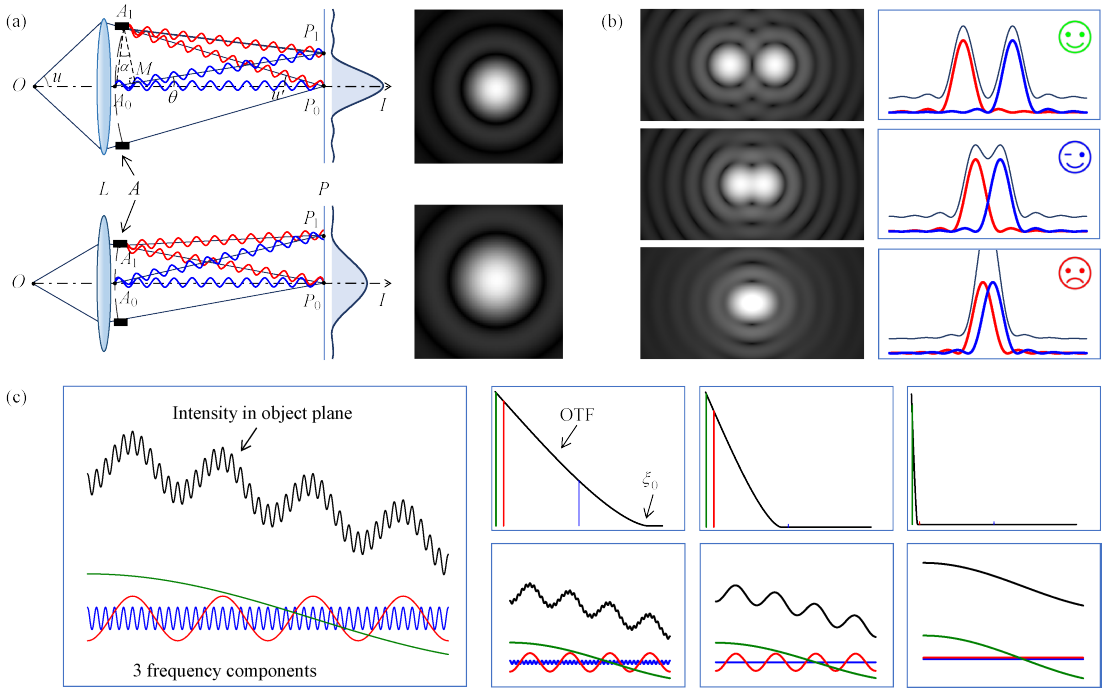


图1 从空域和频域理解衍射极限分辨率 (a) 系统孔径衍射形成的艾里斑; (b) 区分两个像斑的瑞利判据; (c) 频率分量、光学传递函数和截止频率

Fig. 1. Understanding diffraction limit resolution from spatial and frequency domain: (a) Airy disk formed by system aperture diffraction; (b) Rayleigh criterion for distinguishing two image spots; (c) frequency component, optical transfer function and cutoff frequency.

从频域角度, 显微镜的成像过程可用二次成像理论解释[1], 即物体使光波产生衍射后, 各级衍射波通过物镜聚焦到后焦面形成衍射图样, 图样上各点发出的子波在像平面相干叠加形成像. 其中物镜后焦面也称频谱面, 其上形成的图样称为空间频谱, 靠近光轴的频谱点对应小角度衍射波, 距离光轴较远的频谱点对应大角度衍射波, 每个频谱点的坐标对应一组空间频率. 由此可推论, 由于光学系统存在有限孔径, 角度过大的衍射波将无法通过, 从而频谱面上将不出现相应的频谱点, 也没有相应的子波传播到像平面. 也就是说, 频谱面上的空间频谱将由于系统存在孔径而被限制在一个有限范围内, 超出该范围的空间频率对应的衍射波将被滤除, 可通过的最高空间频率称为系统的截止频率. 对于荧光显微成像系统, 只有平行于光轴的零级衍射波能全部通过, 其他方向的衍射波随角度增大将逐渐被部分滤除. 根据系统观点, 该现象称为系统对不同频率成分有不同的传递能力, 用光学传递函数(optical transfer function, OTF)表征, 如图1(c)所示. 系统的像方截止频率ξ_0'由孔径角u'和波长λ决定, 定量关系为$\xi_0' = 2u'/\lambda$[4], 相应的物方截止频率为$\xi_0 = 2NA/\lambda$. 截止频率的存在, 意味着得到的像缺少了来自物体的高阶衍射波的贡献, 而这些高阶衍射波对应的正是物体的细节, 系统无法传递这部分信息导致无法分辨与其对应的细节, 因而分辨率存在上限. 图1(c)模拟了三个截止频率不同的系统对同一物体的成像, 其中代表物体光强分布的黑色曲线由图中蓝、红、绿三色代表的三个不同余弦分量叠加而成. 可见, 当截止频率较高、三个频率分量均能通过时, 物体结构在像中得到了较好的重现; 而当截止频率逐渐降低使部分高频分量不能通过时, 得到的像将逐渐丢失相应细节. 因此, 截止频率决定了系统的分辨能力, 其倒数即为极限分辨率, 即$d = 1/\xi_0 = \lambda/2NA$, 这就是E. K. Abbe提出的极限分辨率公式, 称为阿贝衍射极限.

3 超分辨显微成像技术原理及发展

3.1 超分辨的含义和实现途径

衍射是光波的基本性质, 而显微成像系统的有限孔径又是客观存在的, 因此如前所述的衍射极限分辨率, 确实是一个客观存在、无法超越的理论极限. 既然如此, 又何以“超分辨”呢? 实际上, 近十几年来发展非常迅速的各种SRM技术, 并非真的发明了不再受该理论极限限制的显微镜, 而是通过各种巧妙的办法在衍射受限的系统中“绕过”衍射极限对图像分辨率的限制, 获得分辨率高于衍射极限分辨率的超分辨显微图像. 如果非要将从物体到超分辨图像之间看成一个系统的话, 则该系统不仅包括荧光显微成像系统, 还应包括获得超分辨图像所需的用来绕过衍射极限的手段. 根据采取手段的不同, 可将目前常见的各种SRM技术分为以下三类.

第一类是针对宽场成像系统的空域处理技术, 以基于单分子定位的稀疏重构技术为主, 代表性技术包括2006年几乎同时报道的三种技术, 即Betzig等[5]发明的光激活定位显微(photoactivated localization microscopy, PALM), Rust等[6]提出的随机光学重建显微(stochastic optical reconstruction microscopy, STORM)和Hess等[7]报道的荧光激活定位显微(fluorescence photoactivated localization microscopy, FPALM), 其共同特点是控制荧光分子稀疏发光, 使得一个衍射极限范围内基本不会有两个分子同时发光而导致不可区分, 通过多次成像和定位获得各个荧光分子的位置而重构出超分辨图像.

第二类是针对扫描成像系统的空域处理技术, 也称为点扩展函数工程(PSF engineering), 以1994年Hell等[8,9]提出并于2000年实现的受激辐射耗尽(stimulated emission depletion, STED)技术为代表, 其特点是针对点扫描系统中激光会聚于样品时因物镜孔径衍射形成一个艾里斑样激发斑的问题, 利用套在激发光周围的高强度环形光使衍射极限范围内除中心点外的荧光分子发生受激辐射而不产生荧光, 等效于将系统的PSF尺寸大幅缩小以获取超分辨图像.

第三类是频域处理技术, 主要针对宽场成像系统, 以2000年Gustafsson发明的结构光照明显微(structured illumination microscopy, SIM)[10]及其2005年在此基础上提出的饱和SIM(saturated SIM, SSIM)[11]为代表, 其特点是从频域的角度提高分辨率, 利用摩尔条纹将不可探测的高频信息转化为可探测的低频信息, 即将超出截止频率以外的空间频率分量平移到截止频率范围内, 因此也有人形象地称其为“移频法”.

3.2 针对宽场成像系统的空域处理技术

普通荧光显微(fluorescence microscopy, FM)作为最简单的宽场荧光显微成像技术被广泛应用于生物医学领域. FM一般采用汞灯、氙灯或激光作为激发光源, 对样品中的内源性荧光分子或外源性荧光探针进行全场激发, 所发荧光由物镜收集后被面阵探测器(如电荷耦合器(charge-coupled device, CCD), 互补金属氧化物半导体等)接收形成荧光图像. 如前所述, 由于系统孔径的衍射, 样品中靠近的两个荧光分子形成的像斑中心距离若小于艾里斑半径则无法分辨. 然而这里有个前提, 即两个分子的光是同时被探测的, 才导致两个像斑叠加无法区分. 假如两个分子是先后发光并分别被探测的, 则情况将大不相同. 因为即使每次成像得到的仍然是艾里斑而不是理想像点, 但由于已知每个像斑仅对应一个荧光分子, 则此时不管像斑多大均可利用质心定位法、高斯拟合法等[12]确定其中心(理想像点)位置, 从而将系统衍射的影响剔除; 由于确定该点的过程不可能绝对精确, 还原出来的像点尺寸将由定位精度(与探测到的光子数有关[13])决定. 将两张图像做相同处理后再叠加在一起, 此时只要还原后两个像点的半径小于其间距, 叠加后将不会互相影响. 这样一来, 两个原本在分辨率极限内的分子就变得可分辨了, 这就是基于单分子定位的稀疏重构技术"绕过"衍射极限实现超分辨的基本原理, 如图2(a)所示.

然而, FM通常采用有机染料、量子点或荧光蛋白等作为荧光探针, 标记或表达于样品中的特定分子或结构上, 且一般需要足够高的标记密度方可如实反映被标记结构的特征, 它们在宽场激发情况下将同时被激发而发射荧光, 又如何能让靠近的两个荧光分子先后发光而不被同时探测呢? 假如荧光分子具有开/关两个状态, 即在相同激发条件下既有可发荧光的, 也有不发荧光的, 那么只要能控制每次探测时只有少数分子处于开态, 则位于衍射极限内的两个分子同时发光的概率就会很小, 这样每次探测得到的像斑对应一批单个的开态荧光分子, 可通过定位获得它们的几何像点位置, 然后通过反复的开关控制、探测和定位后将得到的大量像点叠加在一起, 便可得到一幅分辨率远高于衍射极限的超分辨荧光显微图像. 这就是1995年Betzig[14]提出的基于单分子信号实现超分辨成像的构思. 该思路除了需要具有开关效应的荧光探针外, 还需要探测器的灵敏度足够高、采集速度足够快, 因此该方法能否实现, 不仅依赖于荧光探针的开发和特性研究, 也依赖于高灵敏探测器的发展.

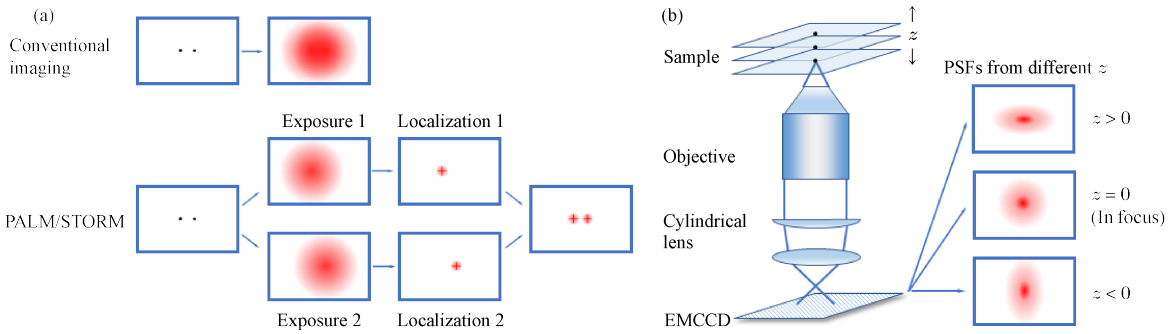


图2 基于单分子定位的稀疏重构技术原理示意图 (a) PALM/STORM分辨衍射极限内两个荧光分子的基本原理; (b) 利用柱透镜实现三维单分子定位的基本原理

Fig. 2. Schematic diagram of SRM technology based on single molecule localization and reconstruction: (a) Basic principle of resolving two fluorescent molecules within the diffraction limit by PALM/STORM; (b) basic principle of three-dimensional single molecule localization based on cylindrical lens.

2006年, Betzig等[5]利用光激活荧光蛋白(photoactivatable green fluorescent protein, PA-GFP)和高灵敏、低噪声的电子倍增CCD(electron-multiplying CCD, EMCCD)将其构思变成现实, 实现了PALM技术. 同时, Zhuang团队[6]和Hess等[7]也分别提出了基于相同原理的STORM和FPALM技术, 区别仅在于PALM和FPALM利用荧光蛋白的光激活效应[15]实现开关, 而STORM则利用花菁染料Cy5的闪烁特性. 这种基于单分子定位的稀疏重构SRM技术虽然只有短短十年左右的发展历史, 但由于对成像设备要求不高, 成为各类SRM技术中应用较广泛、研究最活跃的一类,

近十年来发展非常迅速. 以STORM为例, 早期技术基于Cy3-Cy5染料分子对[6], Cy5的激发光在一定条件下将其由开态转至关态而不再发光, 但采用短波长激光激活后可使关态分子重新转回开态而发光. 这种转换与Cy3-Cy5分子对间的距离有关[16], 经过巧妙设计的染料对在光漂白之前可被开关几百次, 且每次处于开态时可探测到几千个荧光光子, 定位精度可达10 nm左右. 利用类似原理, Zhuang团队[17]进一步设计了不同的染料对并通过选择性激活实现了多色STORM. 紧接着, Heilemann等[18]发现单独的Cy5(或Alexa 647)也可以直接用短波长激光激活实现开关, 相应技术称为直接STORM(direct STORM, dSTORM), 是目前普遍采用的形式. 为提高纵向分辨率, 研究者们又进一步在STORM等单分子定位SRM系统中引入柱透镜像散[19,20]或双螺旋点扩展函数等[21]方法, 使轴向不同位置的分子形成不同形状或取向的像斑而可以区分和定位(如图2(b)所示), 从而实现了三维STORM(3D-STORM).

然而, 基于单分子定位的SRM也不全是依赖荧光分子开关特性的. 例如, 同样在2006年, Sharonov和Hochstrasser[22]提出利用溶液中自由扩散的荧光探针与目标间的瞬时结合和分离实现荧光分子稀疏探测的方法, 称为点积累纳米成像(points accumulation for imaging in nanoscale topography, PAINT). 该技术可采用普通荧光探针, 样品制备简单且标记密度不受限制, 但缺点是成像速度非常慢, 获得一副超分辨图像往往需要几个小时甚至几天. 此后发展的利用配体标记的uPAINT[23]和利用DNA标记的DNA-PAINT[24]或Exchange-PAINT等[25], 对该技术进行了改进, 但成像速度相比PALM和STORM等仍然慢得多, 因此应用相对较少. 2008年, Hell团队[26]则提出了先将大部分荧光分子激发至三重态, 只探测剩余的或自发返回基态的少数分子的荧光以实现稀疏激发的基态损耗后返回技术(ground-state depletion followed by single-molecule return, GSDIM). 由于原理相似, PAINT, GSDIM也经常与前面的PALM/FPALM, STORM一起被统称为单分子定位显微(single-molecule localization microscopy, SMLM).

实际上, 要想将衍射极限范围内的多个荧光分子分开, 除了不让它们同时发光外, 只要还有其他手段能将叠加在一起的信号区分开, 则即使它们同时发光也有可能实现超分辨. 因此针对宽场成像系统的空域处理技术除SMLM外还有一些其他方法. 例如, 对于能够闪烁(包括自发间歇性发光)的荧光探针, 由于每个荧光分子的闪烁过程是互不相关的, 因此通过记录荧光分子的闪烁过程并对其随时间涨落的实时荧光信号进行高阶统计分析可区分不同分子信号, 实现超分辨成像, 这种技术称为超分辨光学涨落成像(super-resolution optical fluctuation imaging, SOFI)[27]. 与SMLM不同的是, SOFI通常采用荧光量子效率更高的量子点进行标记, 且不要求稀疏发光, 成像速度更快. 又如, 荧光分子一般都是极性分子, 当利用不同朝向的偏振光激发时, 偏振方向与每个荧光分子的偶极矩夹角不同将导致荧光强度不同, 通过周期性地改变偏振光方向并记录荧光强度随偏振方向的改变过程, 也可以分析变化规律区分不同的分子实现超分辨, 这种技术称为偏振反解调超分辨(super resolution by polarization demodulation, SPoD)[28].

近年来我国在这类宽场成像空域处理SRM技术方面的研究一直紧跟国际前沿, 并取得了许多研究进展, 例如中国科学院生物物理研究所的徐涛教授和徐平勇教授小组致力于研发新型光开关蛋白[29], 华中科技大学的黄振立教授小组开发新的定位算法[30], 张玉慧教授小组研究活细胞超分辨标记新策略[31], 东南大学崔一平教授小组开展SMLM的生物应用研究[32], 北京大学的席鹏教授小组报道了关于SOFI的工作[33,34], 并与清华大学张奇伟教授小组等共同提出了一种新的基于SPoD的超分辨偶极子取向解析技术(super-resolution dipole orientation mapping via polarization demodulation, SDOM)[35]等. 深圳大学牛憨笨院士小组则针对3D-STORM对轴向漂移敏感的问题, 设计了性能远高于市售设备的轴向防漂移系统, 并结合3D-STORM和基于分子信标的荧光原位杂交技术实现了对长度仅2.5 kb的非重复基因组序列的三维超分辨成像, 是目前国际上的最短记录[36].

3.3 针对扫描成像系统的空域处理技术

共聚焦激光扫描显微(confocal laser scanning microscopy, CLSM)是最典型的扫描荧光显微成像技术, 它借助一对“共焦小孔”将焦平面以外的荧光信号滤除, 不仅获得了远比普通FM清晰的图像, 而且提高了纵向分辨率[37], 具有光学层切和三维

成像能力, 在生物医学领域应用广泛. 在扫描成像系统中, 激光经物镜聚焦到样品上逐点扫描, 扫描点上荧光分子的荧光由光电倍增管(photomultiplier tube, PMT)等点探测器收集, 经数据处理形成一幅对应扫描点阵的图像, 图像分辨率与扫描点阵有关. 然而, 是否缩小采样间距就能无限提高扫描成像系统的分辨率呢? 答案是否定的. 这是因为扫描成像系统同样受到衍射极限的限制, 只是形式与宽场成像略有不同: 宽场成像时衍射极限直观地表现为样品中一个荧光分子发出的光到达面探测器时变成了一个像斑, 而在扫描成像系统中则更主要地体现在激光聚焦在样品上时不能形成一个理想的扫描点, 而是形成一个艾里斑样的激发斑. 因此每个扫描点处PMT收集到的荧光信号并非只来自理想扫描点, 而是激发斑范围内全部荧光分子信号的累积, 导致靠近的两个荧光分子在扫描得到的图像上同样无法区分. 因此, 对于扫描成像系统而言, 提高成像分辨率的关键在于缩小激发斑尺寸, 而该尺寸由衍射极限公式决定, 无法无限缩小.

那么, 在激发斑无法缩小的前提下, 如何才能进一步提高成像分辨率呢? 实际上这里的衍射极限限制仍然隐含着一个前提, 即整个激发斑内的荧光分子同时发出荧光并被点探测器收集. 假如可使激发斑内的荧光分子即使全部激发也只有中心点发荧光, 则探测信号就只来自于理想扫描点, 等效于将有效激发斑大幅缩小, 提高成像分辨率. 这就是Hell等[8,9]于1994年提出并在2000年实现的STED技术的基本思路, 其令激发斑内中心点外其他分子不发荧光的办法, 是利用一束与激发光共轴且波长与荧光分子发射波长匹配的环形光(称为STED光、损耗光或擦除光), 使处于该环形光范围内的激发态分子由于受激辐射而迅速回落到基态, 阻止它们发荧光, 如图3(a)所示. 扫描系统的激发斑也称激发PSF, 与探测端的PSF共同决定荧光成像系统的PSF; 对于一般的扫描成像系统, 系统PSF更多地由激发PSF决定, 因此Hell[38]也将其提出的STED技术称为PSF工程. 在该技术中, 环形STED光的产生和质量决定了等效激发PSF的尺寸, 因此成为影响STED分辨率的关键. 实验上产生STED环形光的方法一般是通过引入相位调制, 使光束中心由于相消干涉而光强近似为零, 例如在Hell最早的实验报道中采用的是在玻璃基板中心附近蒸镀一层光程为STED光半波长的氟化镁薄膜的方法, 而目前常用的做法则是利用相位从0到2π连续变化的螺旋相位片来进行调制[39](图3(b)), 使得调制后任意角度对称两侧的光波前均反相而在中心处相消干涉获得极小的暗点. 而环形STED光能否有效地将激发态荧光分子通过受激辐射途径迅速耗尽, 则与其功率密度密切相关, 因此系统最终达到的分辨率由衍射极限分辨率和STED光功率密度I与饱和功率密度I_s的比值共同决定, 即$d = \lambda/2NA \cdot (1 + I/I_s)^{-1/2}$, 其中$I_s$为STED光将90%的激发态分子受激辐射耗尽所需的功率密度. 可见, STED光功率越高, 系统分辨率也越高, 因此引入STED光后分辨率可以大幅提高到远高于衍射极限分辨率的水平(几十纳米甚至更高).

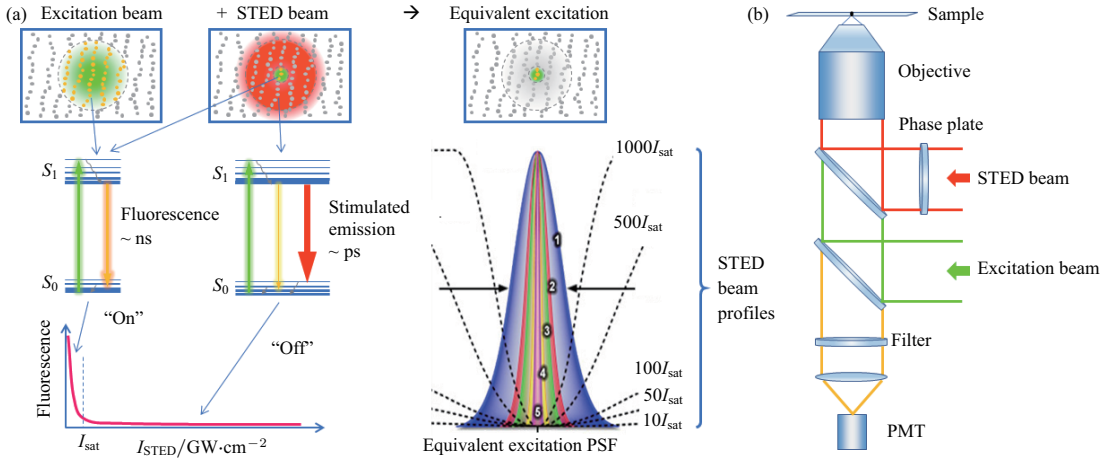


图3 STED技术原理示意图 (a) 激发光、STED光、相应能级图和等效激发PSF; (b) STED光的产生及STED系统示意图

Fig. 3. Schematic diagram of STED: (a) Excitation beam, STED beam, corresponding energy level diagram and equivalent excitation PSF; (b) generation of STED beam and schematic diagram of STED system.

然而STED技术中I_s一般为10—10^3 MW/cm^{2}量级, 只有这样才能使激发态分子通过受激辐射返回基态的速率明显高于其通过自发辐射发出荧光返回基态的速率[40]. 这就意味着STED光必须是高强度脉冲激光, 这不仅增加了系统造价, 而且对样品损伤也较大, 影响了STED技术在活细胞成像中的应用. 因此, Hell[41]在提出STED思路后紧接着又提出了另一个设想, 称为基态耗尽(ground-state depletion, GSD)技术, 基本原理是将激发斑周边荧光分子抽运到三重态, 使得只有扫描点附近的分子具备被激发至单重激发态并发出荧光的条件. 许多荧光染料分子的激发过程本来就常常伴随这种从单重态到三重态的系间窜越过程(概率约为5%—20%), 且三重态的亚稳态性质使得该过程更容易饱和, 因此理论上利用该过程所需的饱和功率密度相比STED技术可低2—4个数量级, 这一方面可使系统更容易获得更高的分辨率, 另一方面可将损耗光强度大幅降低而使该技术更适合活细胞成像[40]. Hell研究小组还进一步从理论上对STED和GSD技术进行分析, 并将类似的抑制一部分荧光分子发光的途径归纳为可逆饱和线性荧光跃迁(reversible saturable optical fluorescence transitions, RESOLFT)[40]. 2005年, 他们利用具有开关效应的荧光探针在实验上实现了RESOLFT技术, 并成功将损耗光功率密度降低了8个数量级[42].

目前国际上研究STED技术和应用的团队很多, 而发明STED的Hell研究团队也在不断改进STED技术使其更适用于生物研究: GSD和RESOLFT等概念的提出和实现在降低对激光器要求的同时提高了该技术与生物样品的兼容性[43], 双色STED技术的实现扩展了其应用范围[44], 连续光激光器的采用降低了使用成本[45], 快速STED技术实现了细胞囊泡运动、神经突触生长等活细胞动态过程的实时超分辨研究[46,47]等. 在我国, 北京大学的席鹏教授研究组[48]2012年首次在国内实现了STED技术, 随后浙江大学的刘旭教授研究组[49]、中国科学院化学研究所的方晓红教授研究组[50]、北京大学的施可彬教授研究组等[51]也报道了STED方面的研究进展. 针对光学系统像差和生物样品光学性质不均匀等导致STED对厚样品进行超分辨成像时分辨率急剧降低的问题, 我们团队开展了利用相干光学自适应技术(coherent optical adaptive technique, COAT)改善STED光质量从而提高STED成像深度的研究工作, 并取得很好效果[52].

3.4 频域处理技术

如前所述, 从频域角度, 显微成像技术的衍射极限分辨率来源于系统OTF的截止频率, 高于截止频率的成分被滤除, 样品中周期小于截止频率倒数的余弦分量丢失. 针对这一问题, Gustafsson[10]于2000年提出了SIM技术, 基本原理是利用摩尔条纹把原本不能通过系统的高频信息平移到可观察的频率范围内来实现超分辨(图4(a)). 具体地, 是利用周期性结构照明光激发样品, 使频域上由于结构光频谱与物频谱的卷积而产生携带物体信息的多级频谱. 例如, 采用正弦结构光可产生0级和±1级频谱, 两两间距离ξ_1为结构光周期的倒数, 其中±1级频谱将携带物体细节信息的高频部分平移至截止频率范围内而被探测. 但这些高频信息与0级频谱的低频信息叠加在一起(图4(b)), 需要后期数据处理将三级频谱分开才能有效获得样品的高频信息. 这种思路在信号处理或其他光学成像领域(如光学三维成像[53], X射线相衬成像等[54])也有广泛应用, 且发展了较成熟的图像处理方法. SIM技术中通常采用相移法, 基本思路是令结构光在一个周期内等间距平移若干次($\geqslant 3$)并利用获得的多个叠加光强来求解. 处理的结果使频谱范围从原来的$(-\xi_0,\xi_0)$拓展到$(-\xi_0-\xi_1,\xi_0+\xi_1)$, 因此$\xi_1$越大(结构光周期越小)等效截止频率越高, 分辨率越高. 将结构光的取向进行旋转(图4(c))可实现二维平面的频率拓展. 然而由于结构光条纹照射在样品上也受到系统衍射限制($\xi_1 \leqslant \xi_0$), 因此等效截止频率最多可拓展到$2\xi_0$, 即SIM的分辨率最多能在衍射极限基础上提高一倍. 然而即便SIM的分辨率不如前两类SRM技术的高, 由于不需要扫描且获取一幅超分辨图像需要的原始图像数量少, 成像速度快, 加上对样品制备和荧光探针没有任何特殊要求, 对激发光功率要求也不高, 光漂白和光损伤程度小, SIM在活细胞成像方面具有独特的优势.

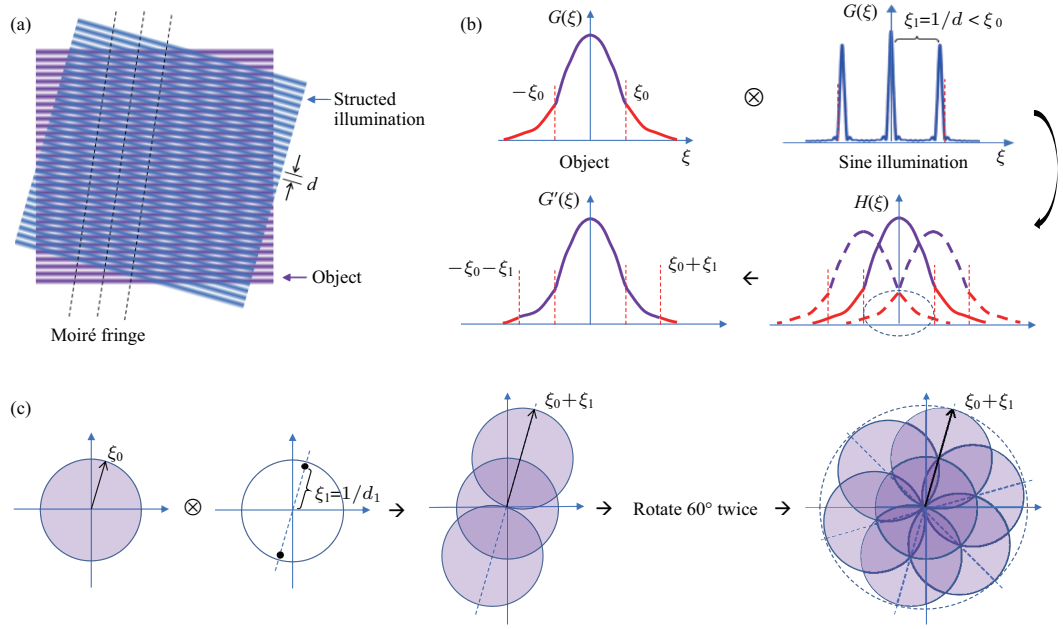


图 4 SIM 技术原理示意图 (a) 摩尔条纹的形成; (b) 正弦结构光产生的移频效应; (c) 二维空间频率拓展的实现

Fig. 4. Schematic diagram of SIM: (a) Formation of moiré fringes; (b) frequency shift produced by sinusoidal structured illumination; (c) realization of two-dimensional spatial frequency expansion.

光栅衍射告诉我们, 正弦光栅只有 0 级和 ±1 级频谱, 而矩形光栅的频谱则要丰富得多, 根据占空比的不同, 除 0 级和 ±1 级外, 还可能出现 ±2 级、±3 级等其他高阶频谱. 因此, 假如能够产生一个占空比较小的矩形条纹作为结构光, 则可以产生多级频谱, 使等效截止频率得到多次拓展而大幅提高分辨率. 但由于结构光的产生也受到光学系统衍射的限制, 直接在物平面上形成一个周期接近衍射极限分辨率的矩形条纹并不现实. 2005 年, Gustafsson [11] 在 SIM 的基础上提出了 SSIM 技术, 巧妙地利用荧光分子的饱和激发使样品在正弦光波激发下发出具有高阶频率分量的非正弦分布结构荧光, 从而实现多级频谱拓展, 将分辨率提高到了几十纳米的水平. 然而由于需要较高能量才能实现荧光分子的饱和激发, 这种方法并不适合活细胞成像, 无法发挥 SIM 的优势, 因此并未被广泛应用. Heintzmann 等 [55] 于 2002 年提出的饱和图案激发显微 (saturated patterned excitation microscopy, SPEM) 概念, 也是基于类似的基本原理.

早期 SIM 系统采用置于显微镜管镜前焦面的透射式相位光栅来产生结构光照明 [10], 即令光栅产生的 ±1 级衍射光分别会聚于物镜后焦面上对称的两点, 从而在物平面上产生两束互成一定角度的光干涉形成结构光照明样品. 通过调整物镜后焦面上两个会聚光斑的相对距离可改变结构光的周期, 当两个会聚斑尽量靠近孔径边缘时得到频率最高 ($\xi_1 \approx \xi_0$) 的结构光. 根据类似原理, Gustafsson 团队 [56] 进一步通过改变光栅参数使物平面上产生三维结构光, 将三维 OTF 的截止频率在横向和轴向上同时进行拓展, 实现了三维 SIM(3D-SIM). 为克服原始图像获取过程中相位光栅平移和旋转对成像速度的限制, 他们又引入空间光调制器 (spatial light modulator, SLM) 代替光栅, 先后实现了二维和三维活细胞实时超分辨成像 [57,58], 并采用全内反射荧光 (total internal reflection fluorescence, TIRF) 照明进一步提高成像质量. 此后, 他们又在光路中引入可调液晶相位延迟器实现了双色 3D-SIM 并用于活细胞研究 [59].

不幸的是 Gustafsson 罹患癌症于 2011 年英年早逝, 与其同在美国霍华德·休斯医学研究所 Janelia 研究园的 PALM 发明人 Betzig 承接了他的 SIM 实验室和研究小组并继续将 SIM 技术发扬光大. 近几年来, Betzig 团队致力于发展适合活细胞三维快速成像的光片显微 (light sheet microscopy, LSM), 先后发展了贝塞尔 (Bessel) 光 [60] 和格子 (lattice) 光片照明技术 [61], 并将其与 SIM 和 PAINT 等技术结合, 实现了对厚样品的三维超分辨成像 [62]. 2015 年, Betzig 等 [63] 将 lattice-LSM 和采用光控开关荧光探针的非线性 SIM (nonlinear SIM, NL-SIM) 结合在一起, 不仅实现了对

活细胞的双色三维快速成像, 且空间分辨率最高可达 45 nm, 突破了 SIM 只能将分辨率提高一倍的限制, 同时又避免了早期提出的 SSIM 中高功率激光对细胞的光毒性等问题, 具有很好的发展前景. 在我国, 中国科学院西安光学精密机械研究所姚保利课题组 [64] 报道了基于 DMD 光调制的 SIM 技术.

3.5 三类方法的优缺点和发展趋势比较

综上所述, 可以看出各类 SRM 技术虽然原理各不相同, 但由于均是面向生物医学应用发明和发展起来的, 因此不管对于哪种技术, 提高分辨率均已不是惟一的追求, 如何满足生物医学需要的多色、三维、活体等成像需求, 一直以来也是各类 SRM 技术发展的目标. 而由于三类方法各有优缺点, 它们所面临的挑战也各不相同.

以活细胞成像为例: STORM 和 PALM 等宽场成像空域处理技术, 其分辨率取决于定位精度, 可达到横向高于 20 nm、轴向高于 50 nm 的水平, 但由于重构一幅超分辨图像需要采集平均数万张原始图像, 成像速度受限, 通常只能用于固定细胞, 尽管也有一些活细胞成像的报道 [65], 但到目前为止距离实际应用仍较远, 这是因为活细胞应用的高帧频要求和单分子定位精度对光子数的要求是矛盾的, 提高激光功率密度虽可一定程度上同时得到较高的帧频和光子数, 但由此带来的光漂白问题限制了活细胞实时观察的时长 (几十秒). 因此, 如何在较低功率密度和不降低光子数的同时提高帧频以适应活细胞实时超分辨成像的需求, 还有赖于荧光探针闪烁特性的改善 (包括探针结构的改进和化学环境的优化等) 和活体标记技术的研究 [66].

STED 和 RESOLFT 等针对扫描系统的技术, 其分辨率由擦除光功率密度与饱和光功率密度的比值决定, 也可以达到几十纳米的水平, 成像速度取决于扫描速度, 与普通 CLSM 的成像速度基本一致, 可以适应活细胞成像的需求, 然而由于 STED 光功率密度相比 STORM 光功率密度要高 4—6 个数量级, 因此对活细胞的光毒性和光损伤不能忽略, 且高功率 STED 光在实现荧光擦除的同时也加剧了荧光分子的光漂白, 这些都限制了 STED 在活细胞成像中的应用. 采用光控开关荧光探针的 RESOLFT 技术一定程度上克服了这些问题, 在活细胞成像方面具有一些优势; 但由于原理不同, RESOLFT 需要的光控开关荧光探针与现有的 STORM 探针不同, 因为 STORM 需要探针单次闪烁期间光子数足够多, 而 RESOLFT 则要求其在光漂白之前闪烁次数要足够多, 因此, RESOLFT 的进一步发展和应用, 也与荧光探针的研发和闪烁机理研究有着密切关系.

频域处理的 SIM 技术由于仅需要采集九幅宽场图像便能恢复出一幅超分辨图像, 因此不管是相比需要采集几万张原始图像的 STORM/PALM 技术还是相比需要点扫描的 STED/RESOLFT 技术, 其成像速度都要快得多; 而其激光功率密度比 STORM/PALM 技术还要低 2—3 个数量级, 对样品的光漂白和光损伤等问题几乎可以忽略, 因此在活细胞实时成像方面具有绝对的优势. 然而由于成像原理的限制 SIM 只能将分辨率提高一倍, 即最高 100 nm 左右; SSIM 技术可以将分辨率提高到可与 STORM/PALM 或 STED/RESOLFT 相比拟的几十纳米水平, 但饱和激发所需的高功率密度却使其失去了活细胞成像的优势; 采用光控开光荧光探针的 NL-SIM 同时克服了这两方面的问题, 在活细胞实时超分辨成像方面具有非常好的应用前景.

4 超分辨关联显微技术研究进展

超分辨关联显微技术是近年来 SRM 的一个新的发展趋势. 关联显微的概念原指光学-电子关联显微 (correlative light-electron microscopy, CLEM) [67], 即将具有纳米分辨能力但特异性差的电子显微 (electron microscopy, EM) 和具有分子特异性识别能力但由于衍射限制只能分辨几百纳米的光学显微技术, 尤其是 FM 相结合, 从而架起微观世界和纳米世界之间的桥梁. 广义地, 关联显微也指利用具有不同特点的两种或多种显微成像技术同时或先后对同一样品的同一区域进行成像, 并将获得的结果进行融合、对比和/或相关性分析, 从而实现不同技术间的优势互补.

实际上, 就像我们需要综合运用视觉、嗅觉、触觉等对一个物体的形状、颜色、气味、质地等做出判断方可对其全面认知一样, 任何一种先进的显微成像技术都不可能单独提供研究一个问题的全面数据, 甚至无法完备地描述一个体系的结构, 因此这种优势互补在任何时候都是有益的. 关联显微综合运用两种或多种先进显微成像技术, 可以实现多维度、多尺度、多模态信息获取, 从而综合得到生物样

品在形态、功能、动力学、微环境和化学成分等多方面的信息[68].

近年来快速崛起的SRM技术为关联显微的发展带来了新的挑战和机遇. 目前已有许多SRM与其他显微技术关联的报道. 例如, 2011年《Nature Methods》就报道了联用多种SRM技术和EM对多种蛋白在亚细胞水平进行定位的研究, 获得了组蛋白H2B在细胞核中的高分辨定位和TOM20蛋白在线粒体中的定位[69]. SRM缩小了普通FM与EM之间的分辨率差距, 因此这种关联有助于提高结果相关性分析的准确性, 使关联显微获得的结果更有意义. 与此同时, SRM作为一种新兴技术, 其与分辨率更高、技术相对成熟的EM技术的关联反过来也有助于对其所取得的新结果进行验证. 除了SRM-EM关联显微, 目前报道的基于SRM 的关联显微技术还有很多, 这些超分辨关联显微技术可以大致分为几类: SRM与其他衍射受限光学显微技术的关联, SRM与光谱测量技术的关联, 以及SRM与非光学显微技术的关联. 这些关联往往都能为同一个生物学问题提供不同尺度、不同维度或不同角度的信息互相印证, 从而可使研究更加深入.

4.1 超分辨成像与其他衍射受限光学显微技术的关联

这一类型的关联是最直接的, 因为两者有可能采用相同的样品制备流程和性质相似的荧光探针, 也有可能基于相同或相似的光学系统进行成像, 因而为关联带来了极大便利. 这种关联的主要作用是弥补SRM目前的一些弱点, 以便最大程度地发挥其在分辨率方面的优势, 作用包括: 识别和区分特定目标、提供多层次背景结构信息、提高时间分辨能力、丰富功能成像信息、实现多色超分辨等.

4.1.1 超分辨-普通荧光关联显微

SRM通常采用高倍物镜进行成像, 其视场一

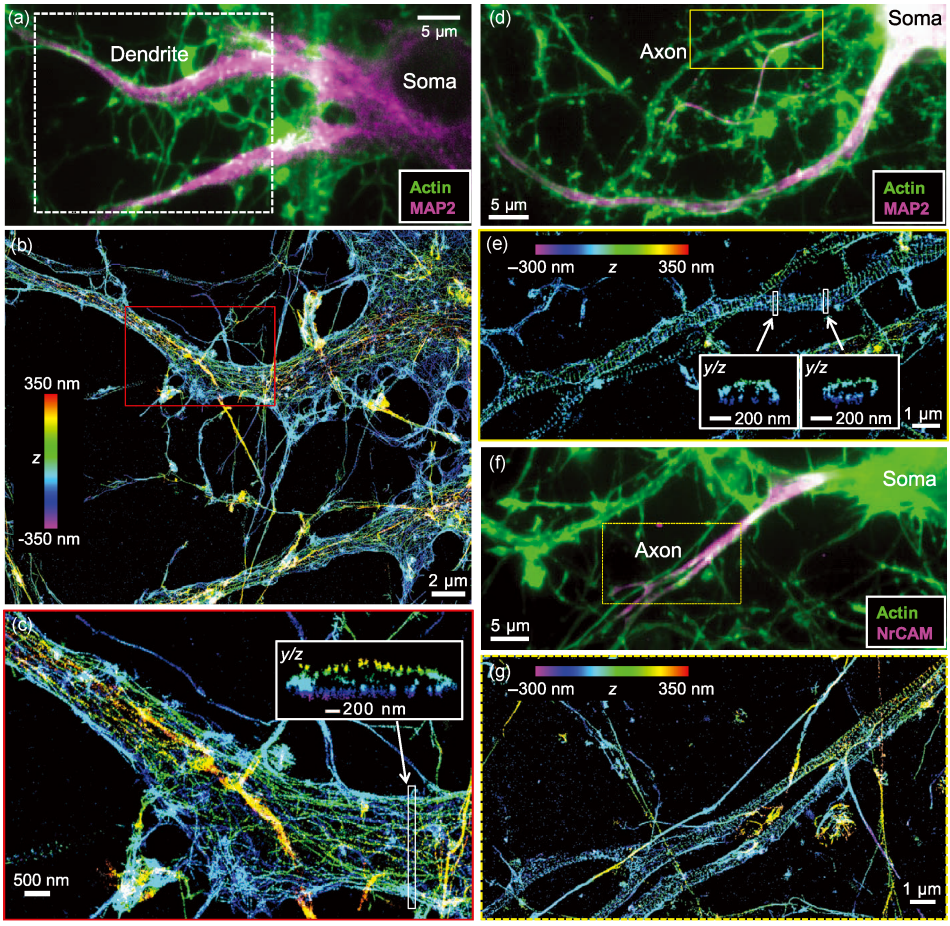


图5 SRM-FM关联显微应用实例: 识别和区分特定目标[70]

Fig. 5. Correlative SRM-FM applications: Identifying and distinguishing specific targets[70].

般仅有几十微米, 直接在SRM成像模式下寻找特定目标往往比较困难. 而传统FM作为最简单、应用最广泛的荧光显微成像技术, 在特定细胞或结构的标记和判别方面已形成了一套比较完整的体系. 因此, 将SRM与普通FM进行关联, 可以先利用FM在较低分辨率下快速寻找到感兴趣区域后再切换到SRM模式进行超分辨成像, 还可以采用与SRM成像所用荧光探针具有不同光谱性质的其他探针对特定细胞或结构进行特异性标记, 以更好地识别和区分感兴趣的目标. 例如, Xu等[70]利用3D-STORM技术对神经元细胞骨架进行超分辨成像研究的工作中就采用了这种SRM-FM关联技术来区分神经元中的树突和轴突两种不同的突触结构. 如图5所示, 他们除了使用联接有荧光分子Alexa 647的鬼笔环肽标记肌动蛋白微丝外, 还利用另一种荧光探针Alexa 555免疫标记了树突中的特异性蛋白MAP2(图5 (a)和图5 (d))和轴突起始段中的特异性蛋白NrCAM(图5 (f)), 首先利用传统FM成像区分树突和轴突, 再利用3D-STORM对两者的微丝结构进行SRM成像(图5 (b), (e)和(g)), 从而发现神经元两种突触中的微丝具有完全不同的超分辨结构, 其中轴突的微丝具有明显的周期性结构.

4.1.2 超分辨-共聚焦关联显微

目前, 虽然如前所述各种SRM都在努力实现多色成像, 但多数SRM技术由于对荧光探针或光学系统有特殊要求, 还不能方便地实现很好的多色成像. 而CLSM作为另一种在生物医学领域应用广泛的荧光显微成像技术, 其多通道成像功能可以很好地弥补SRM这方面的不足: 在利用SRM对一些细微结构进行超分辨成像之前, 可先通过CLSM获取多色标记样品的背景结构信息, 这样一方面起到与SRM-FM关联显微相同的识别和区分特定目标的作用, 另一方面由于CLSM可以提供比普通FM更清晰的不同尺度的图像, 尤其是提供组织、细胞、亚细胞等不同层次的结构信息作为分析超分辨结构的背景, 从而有助于分析超分辨图像的生物学意义. 例如, Crossman等[71]报道了一种用于多尺度组织成像的dSTORM-CLSM关联显微技术, 他们首先对人心脏组织中含有心肌亲联蛋白JPH(Alexa 680标记)和兰尼碱体RyR(Alexa 750标记)的大分子膜复合体进行超分辨成像(图6 A(c)), 接着利用CLSM对这两种蛋白以及标记了麦胚凝集素WGA(Alexa 594标记)的细胞膜进行成像(图6 A(a)和(b)), 通过融合分析两种方法获得的图像, 将dSTORM结果分割到细胞膜和细胞质两种不同区域进行统计分析(图6 A(c), (d)和(e)), 从而发现RyR与JPH在质膜上有更高的共定位水平. Barna等[72]采用类似的方法对固定的心脏和肾脏组织切片等进行了STORM-CLSM关联显微成像(图6 B), 并详细报道了利用开源软件VividSTORM对该类型关联显微图像进行分析以获取特定细胞或亚细胞结构内某种分子的含量、密度、间距等定量信息的流程.

4.1.3 超分辨-实时荧光关联显微

虽然目前各种SRM技术都有不少关于提高成像速度的报道, 其中甚至不乏帧频达到视频级别的结果[46,73], 然而在实际应用中多数SRM技术要想将获得单幅超分辨图像的时间控制在10 s以内仍然是比较困难的, 尤其是对分辨率和图像质量要求较高时, 而这对于活细胞中的一些动态过程而言显然还是太慢. 因此将具有高空间分辨能力的SRM和空间分辨率相对较低但时间分辨率可以很高的活细胞实时荧光显微成像(live-cell time-lapse fluorescence microscopy, LTFM)[74]相关联, 是目前提高SRM时间分辨能力的一个有效途径. Bálint等[75]将用于活细胞的LTFM与用于固定细胞的3D-STORM相关联, 结合单粒子追踪(single particle tracking, SPT)技术, 通过追踪活细胞中单个溶酶体的运输路径并与微管的超分辨结构进行关联分析(图7), 研究了溶酶体在微管交接处的行为特征, 从而为马达蛋白驱动的囊泡运输机理研究提供了丰富的数据和新的视角. 这种关联的难点之一是要确保超分辨成像时固定细胞的骨架结构与活细胞成像阶段的骨架结构一样, 而该工作的巧妙之处就是在活细胞成像阶段对细胞采用药物处理使细胞既能保持活性又能使骨架保持基本不变, LTFM成像结束时再原位对细胞进行固定和免疫荧光标记等一系列超分辨样品处理流程并进行超分辨成像, 为此该研究小组还发明了一种能够原位实现细胞固定和超分辨标记的装置[76], 采用计算机控制样品处理过程中所需的各种不同试剂的自动注入.

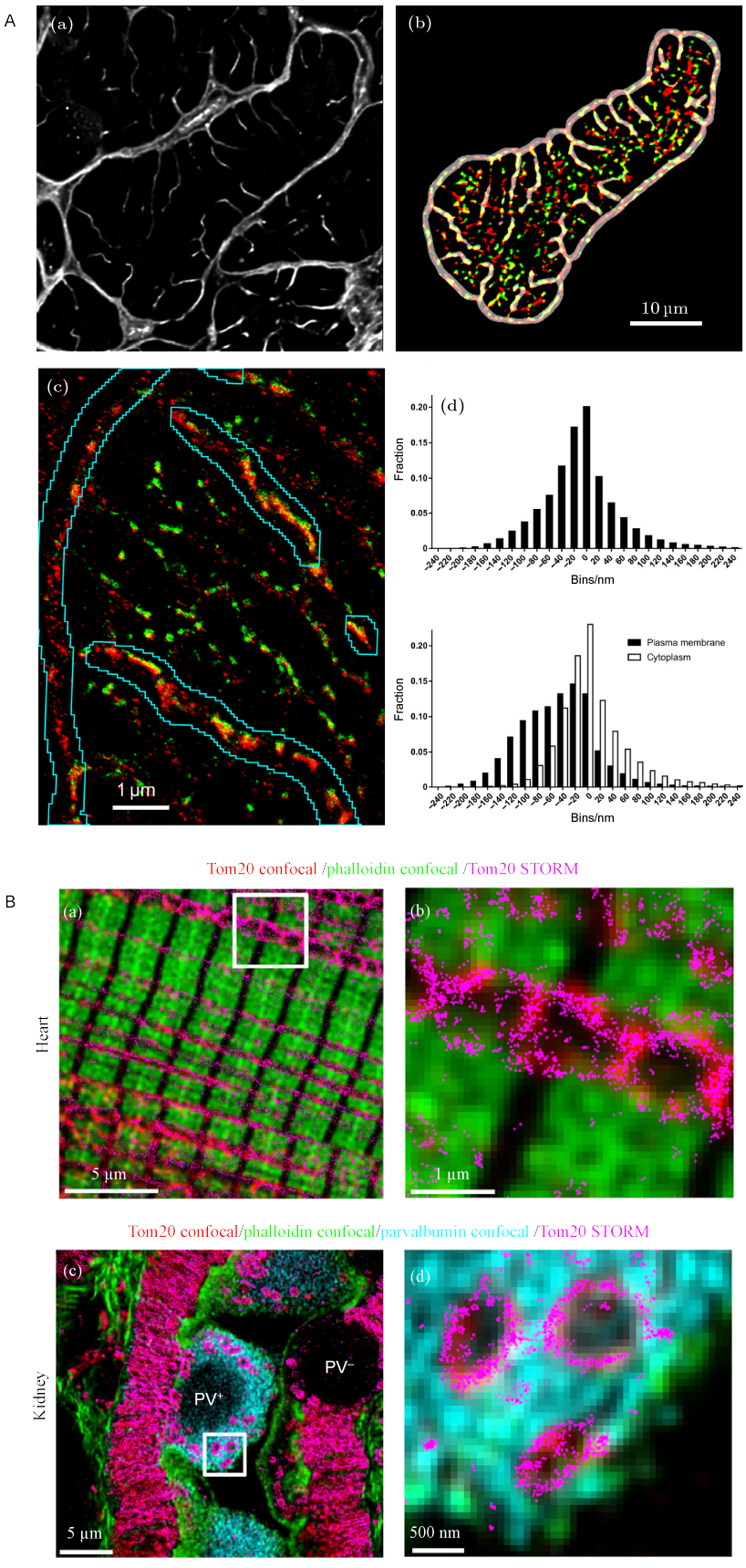


图 6 SRM-CLSM 关联显微应用实例: 提供多层次背景结构信息 [71,72]

Fig. 6. Correlative SRM-CLSM applications: providing multi-level background structural information [71,72].

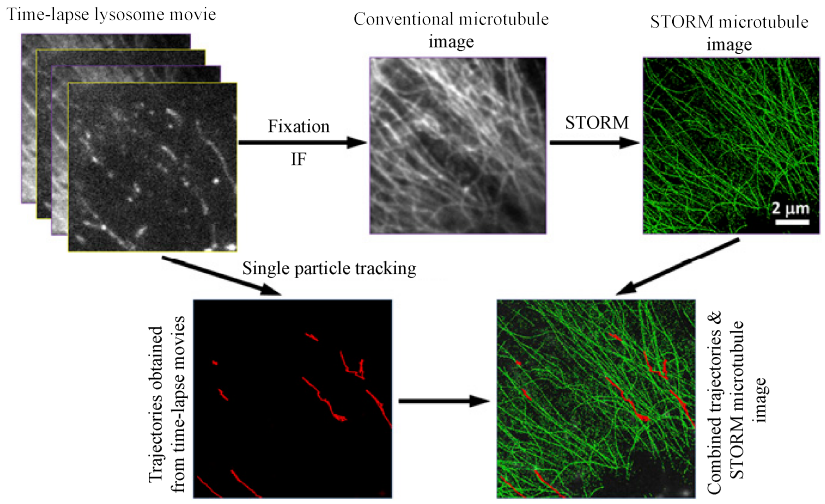


图 7 SRM-LTFM 关联显微应用实例: 提高时间分辨能力 [75]

Fig. 7. Correlative SRM-LTFM applications: improving time resolution [75].

4.1.4 超分辨-荧光寿命关联显微

荧光寿命显微成像 (fluorescence lifetime imaging microscopy, FLIM) 技术通过探测样品中荧光探针的荧光衰减速率来反映其与微环境的相互作用, 已被广泛应用于定量检测细胞中的离子浓度、pH 值、氧含量、黏滞度、折射率等多种生物化学或生物物理参数, 是一种典型的功能成像技术. 而目前多数 SRM 技术主要是针对结构进行成像, 因此 SRM-FLIM 关联显微可为 SRM 技术提供一个正交维度, 丰富其功能成像信息. 例如, Auksorius 等 [77] 报道的 STED-FLIM 技术, 首次获得了高于衍射极限分辨率的 FLIM 图像. 另一方面, 利用不同荧光分子荧光寿命的不同, 可以区分光谱性质相似的荧光探针, 将这一性质应用于 SRM 技术还有助于实现多色 SRM. 例如, Hell 研究团队 [78] 利用 STED-FLIM 关联实现了双色 STED 技术, 他们利用荧光探针 ATTO 647N 和 KK 114 分别标记了固定细胞中的微管蛋白和核纤层蛋白并进行 STED 成像, 同时在扫描过程中利用时间相关单光子计数技术 (time-correlated single-photon counting, TCSPC) 对荧光分子的寿命进行测量, 由于两种荧光分子的吸收光谱和发射光谱均很相似, 系统只需采用一束激发光和一束 STED 光, 而获得的荧光强度图像中两种分子的荧光信号将重叠在一起 (图 8 (a)), 但由于两种分子的荧光寿命明显不同, 因而可利用寿命信息将两个通道分开 (图 8 (b)), 从而实现了单激发波长的双色 STED. 此外, 我们团队还将 SMLM 与 FLIM 进行关联, 利用单分子定位

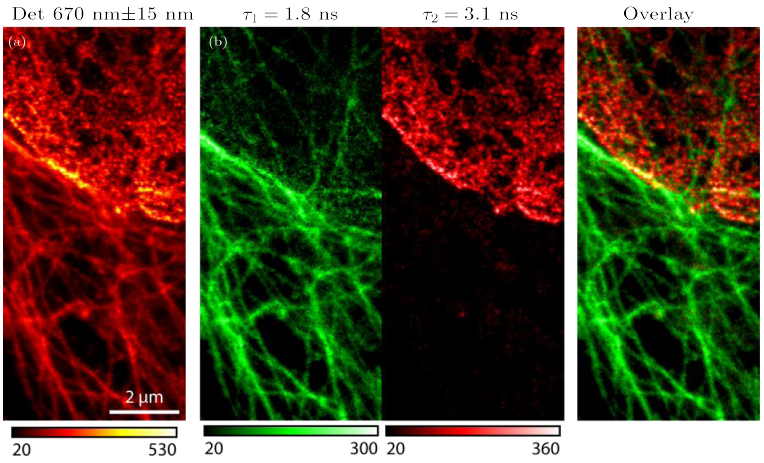


图 8 SRM-FLIM 关联显微应用实例: 实现多色超分辨 [78]

Fig. 8. Correlative SRM-FLIM applications: Realizing multi-color super-resolution [78].

算法和反馈控制发展一种能够对活细胞中的运动目标进行荧光寿命追踪的方法[79], 进一步与SMLM获取的超分辨结构结合将有助于揭示细胞中微环境变化或相互作用与超分辨结构间的关系.

4.2 超分辨成像与光谱测量技术的关联

光谱测量可以提供样品的化学成分或分子结构信息. 然而多数光谱测量技术是针对溶液、粉末等样品的, 获得的往往是样品中分子的统计信息, 而不包含样品的空间分布信息, 也不能直接对单个分子的光谱进行测量. 基于光谱测量的光谱成像技术虽可利用样品不同位置的光谱信息进行成像, 但分辨率一般较低. 将SRM技术与光谱测量技术相关联, 可大幅提高光谱成像技术的空间分辨率, 同时也为SRM增加额外的信息维度.

4.2.1 超分辨-荧光光谱关联显微

由于SRM技术本身就是基于探测荧光的, 因此将其与探测荧光发射光谱的荧光光谱测量技术(fluorescence spectrometry, FS)进行关联是比较直接的一种关联方式. 这种SRM-FS关联显微一方面便于实现单分子FS测量和成像, 另一方面还可为SRM技术提供实现多色成像的另一个途径. Zhang等[80]利用STORM-FS关联同时实现了高通量单分子FS测量和光谱分辨的多色STORM技术. 如图9 A所示, 他们搭建了一套双物镜系统(图9 A(a)), 其中一个物镜用于获取单个荧光分子的位置信息(图9 A(b)), 另一个物镜采集的单分子荧光信号经过一个棱镜后产生的色散被同时记录下来(图9 A(c)和(d)), 这样单次曝光即可同时获得上百个单分子荧光光谱, 并且由于STORM中荧光分子的稀疏激发, 这些单分子荧光光谱大多不会互相重叠, 从而实现了每分钟10^6个的高通量单分子FS测量. 通过对STORM图像中每个荧光分子的光谱进行分析, 还可以获得每个分子的发射峰值波长并据此赋予相应的颜色, 从而形成一幅具有“真彩色”的超分辨图像, 实现光谱分辨的多色STORM技术. 如图9 B所示, 他们采用了四种发射中心波长彼此仅相差10 nm左右的荧光分子对细胞中四种不同结构同时进行标记, 利用这种光谱分辨STORM技术可以很好地区分四个通道, 串扰率小于1%. 随后, Hess研究团队[81]又报道了一种基于单物镜的FPALM-FS关联技术, 他们采用分束器将物镜收集的荧光分为两部分, 分别用于单分子定位和单分子FS测量, 虽然这样一来不可避免地减少了各光路中的光子数, 但系统设计相对简单, 且单物镜系统对样品的要求比双物镜系统要低很多, 更适合细胞成像.

4.2.2 超分辨-红外光谱关联显微

相比FS测量和FM成像, 红外光谱技术的优点在于无需标记, 可提供样品的化学信息. 近年来, 同步辐射傅里叶变换红外(synchrotron radiation-based Fourier transform infrared spectromicroscopy, SR-FTIR)光谱显微的最新研究进展已揭示了细胞中一些很有价值的化学信息[82], 然而其空间分辨率仅为5 μm左右. Whelan等[83]报道了将SR-FTIR光谱测量技术和SMLM进行关联并用于单细胞研究的工作, 他们对固定前后的细胞进行SR-FTIR光谱分析(图10 (a)—(c)), 然后再对免疫荧光标记后的同一个细胞的细胞骨架微管蛋白进行超分辨成像(图10 (d)—(k)), 通过对两种结果进行相关性分析, 观察到采用不同固定方法造成的细胞不同程度的成分和结构变化, 从而为优化超分辨样品制备流程提供了一种新的手段.

4.3 超分辨成像与非光学显微技术的关联

由于图像衬度形成机理的不同, SRM与EM等非光学显微技术对样品制备的要求往往很不相同, 甚至有可能互相冲突, 这给两者关联带来了极大的挑战, 成为实现这类关联必须解决的关键技术问题. 近20年来, 关联了普通FM与EM的CLEM技术已取得了丰硕的研究成果[84−86], 关联样品制备技术也日趋成熟. 因此在普通FM基础上发展起来的SRM技术与EM的关联相比SRM与其他非光学显微技术的关联具有更坚实的基础, 其成果也更丰富.

4.3.1 超分辨-电子关联显微

EM技术包括扫描电子显微(scanning electron microscopy, SEM)和透射电子显微(transmission electron microscopy, TEM)两类, 前者对样品表面成像, 分辨率高于10 nm; 后者对超薄切片(约50—100 nm)成像, 分辨率可达亚纳米. EM成像过程需要在真空环境下进行, 对样品制备有严格要求, 对生

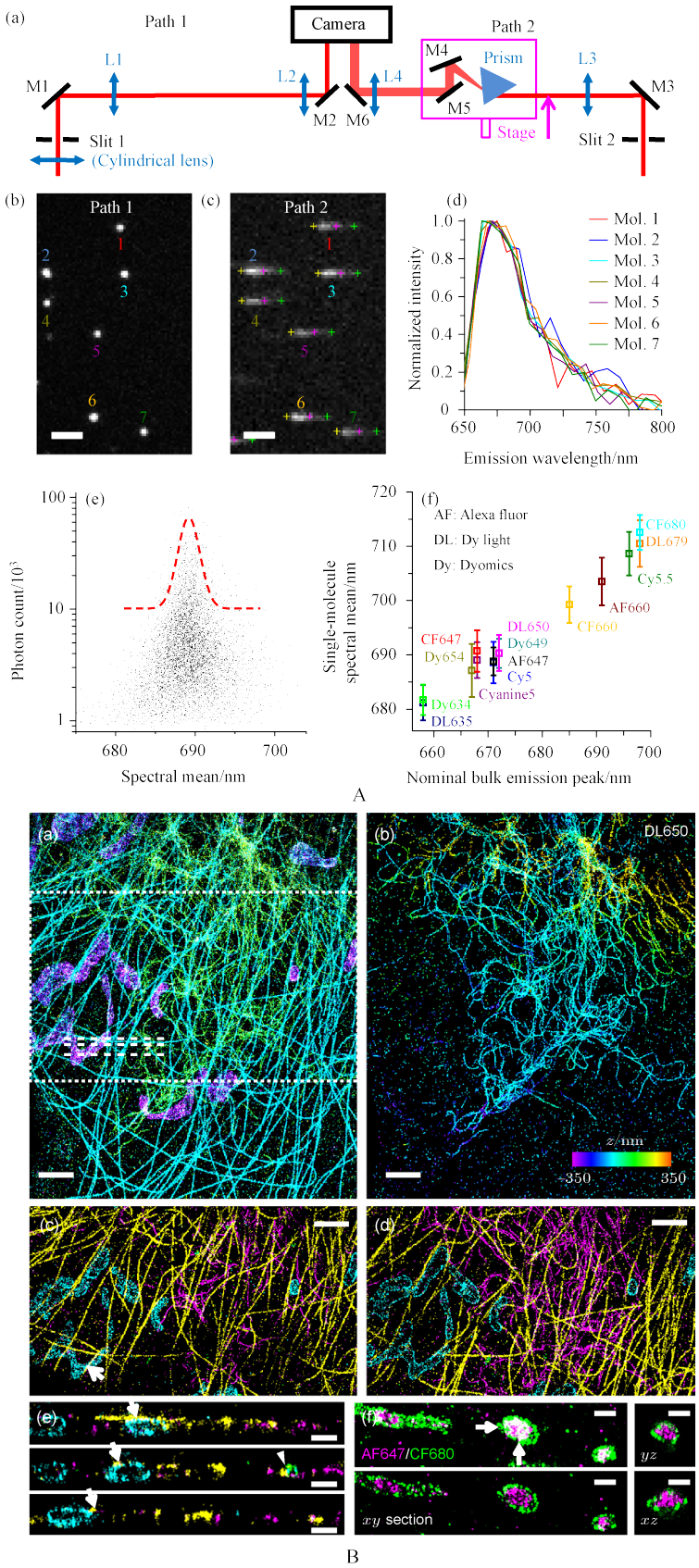


图 9 SRM-FS 关联显微应用实例: 实现高通量单分子 FS 测量和光谱分辨多色超分辨 [80]

Fig. 9. Correlative SRM-FS applications: Realizing high throughput single molecule FS measurements and spectrally resolved multi-color super-resolution [80].

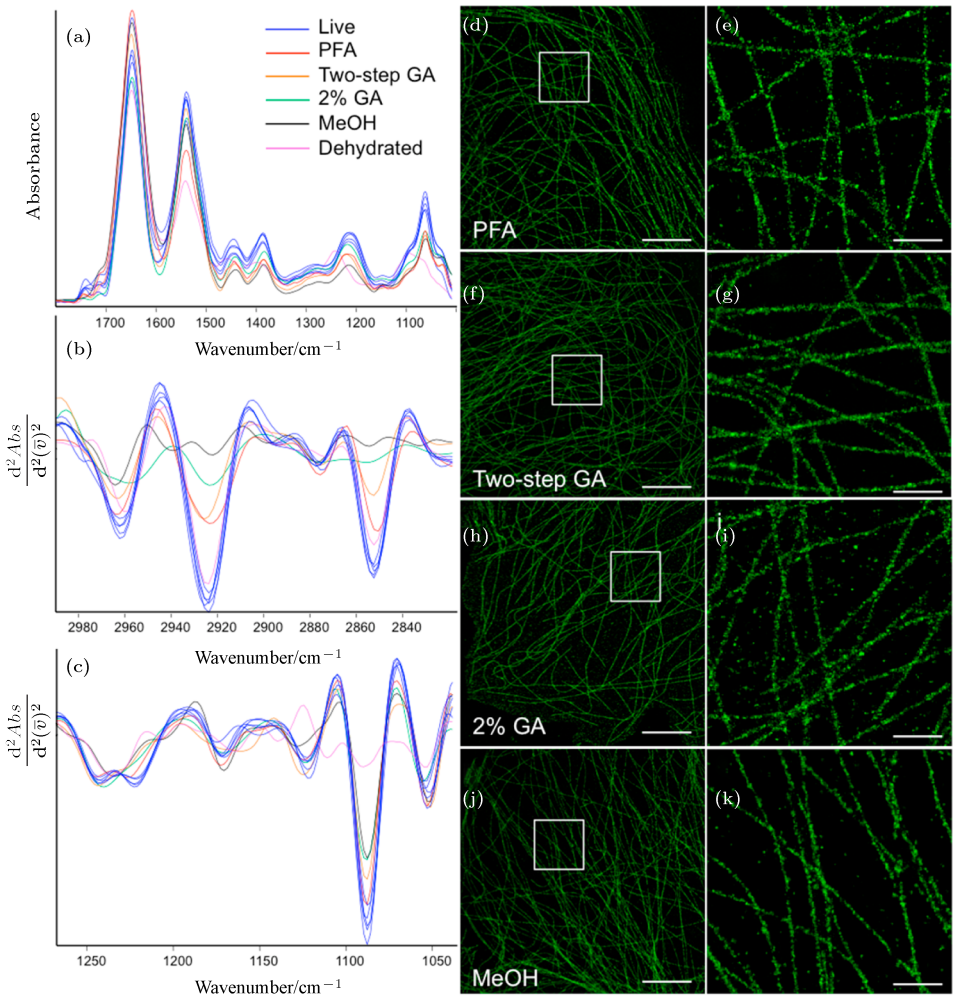


图 10 SRM-IR 关联显微应用实例: 架起结构变化和化学成分变化之间的桥梁 [83]

Fig. 10. Correlative SRM-IR applications: Bridging between structural changes and chemical composition variations [83].

物样品而言通常需要固定、脱水、干燥、包埋、切片等环节, 此外SEM还需要导电处理, TEM一般还需要染色. 其中染色是因为生物样品中主要为轻元素原子, 要形成较强的图像衬度需要利用重金属对脂类或蛋白质进行染色, 但这种染色并非特异性标记, 因此EM的分子特异性识别功能很差. 利用联接有金纳米颗粒的抗体对样品进行免疫标记可提供较好的分子特异性, 但目前其应用还受到标记密度低、可标记目标分子少等限制. 将SRM与EM 进行关联可弥补EM在分子特异性识别方面的缺点, 实现优势互补; 但EM样品制备流程中脱水、干燥等环节对于SRM样品中的荧光探针有着致命的影响, 因此SRM和EM不仅不能同时成像, 而且样品制备和成像流程都必须经过优化设计才有可能实现二者的有效关联. SRM-EM关联最早在Betzig等 [5] 提出PALM技术的同时就开始了, 他们采用CLEM中应用较多的冷冻切片TEM样品制备技术, 利用PALM-TEM关联结果的高度相关性证明了利用PALM技术直接对细胞内蛋白质进行超分辨成像的有效性和准确性 (图 11). 随后其他SRM-EM关联技术也陆续发展起来, 关联样品除冷冻切片还有树脂包埋切片、非切片等, 而针对不同样品需要不同的处理和不同的成像流程 [87]. 以SRM-SEM关联为例, Löschberger等 [88] 利用dSTORM-SEM关联研究了非洲爪蟾卵母细胞核膜中的核孔复合物, 他们首先对分离出来的核膜进行常规的dSTORM样品制备并进行超分辨成像, 接着用较高浓度的戊二醛进行后固定并依次进行四氧化锇固定、丙酮脱水、临界点干燥等处理, 最后覆盖一层碳以提高样品导电性用于SEM成像. 通过分析dSTORM-SEM关联结果, 他们发现大多数NPC由8个核膜糖蛋白gp210 的同

源二聚体(图12(e)—(h))组成(少数含有9个). 最近, Wojcik等[89]提出了利用石墨烯直接对湿样品进行STORM-SEM关联显微的新方法. 厚度极薄(单原子层)的石墨烯膜具有可穿透光和电子、可完全隔绝气体和液体、可导电和不易发生化学反应等优点, 因此在细胞样品表面覆盖一层石墨烯膜则无需对细胞进行后固定、脱水、干燥、镀导电膜等处理, 不仅大幅简化了样品制备流程, 而且降低了对细胞固定和荧光标记的要求, 将使SRM-EM的发展前景更加光明.

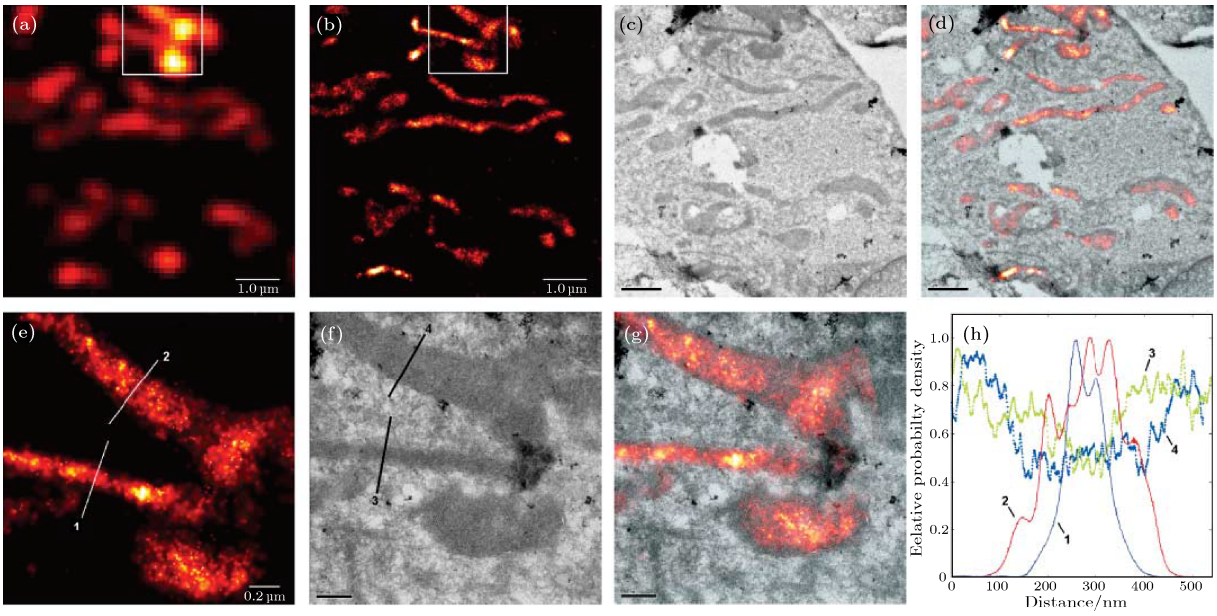


图11 SRM-TEM关联显微应用实例: 验证超分辨成像结果[5]

Fig. 11. Correlative SRM-TEM applications: Validating super-resolution imaging results[5].

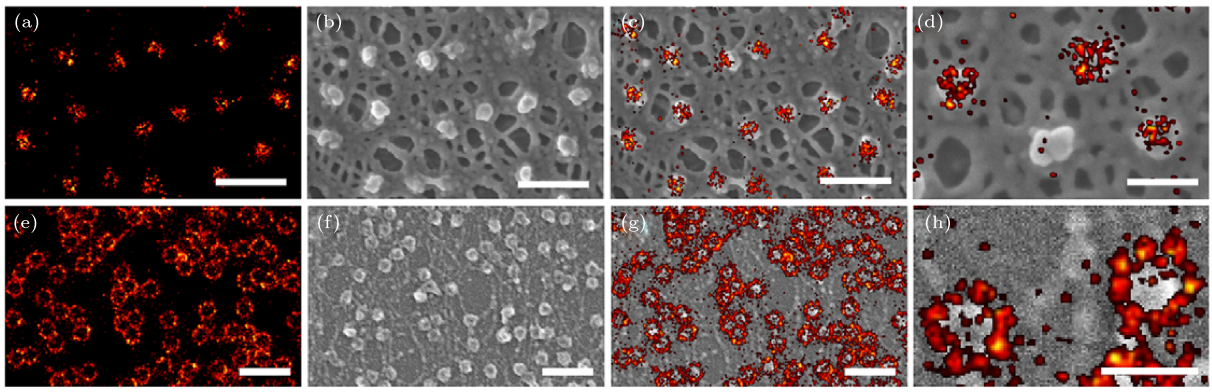


图12 SRM-SEM关联显微应用实例: 实现分子特异性超分辨[88]

Fig. 12. Correlative SRM-SEM applications: Realizing molecular specificity in super-resolution imaging[88].

4.3.2 超分辨-原子力关联显微

原子力显微(atomic force microscopy, AFM)作为另一种常用的表面成像技术, 广泛用于纳米技术和材料领域, 通过测量探针与样品表面的相互作用实现对样品表面形貌的三维成像, 横向分辨率为10 nm左右, 纵向分辨率可达亚纳米量级. 此外, 利用AFM还可以进行作用力和弹性模量等力学参数的测量; 换上专用的金属涂层光纤探针则可实现近场扫描光学显微(near-field scanning optical microscopy, NSOM)功能, 即早期Betzig和Trautman[90]提出的近场超分辨技术. 由于AFM成像无需真空环境, 对样品制备要求不高, 因此近几年也越来越多地被用于生物样品成像, 甚至可对活细胞或组织直接进行成像[91,92]. 因此SRM-AFM关联相比SRM-EM要简单得多. 例如, Harke等[93]利用可安装在倒置显微镜上的AFM扫描装

置实现了STED-AFM关联, 并通过荧光珠进行了实验验证. 此后这种关联方式也被广泛应用于其他SRM与AFM的关联[94,95]. 不过, 由于SRM采用的油浸物镜会受到AFM悬臂振动的影响, 且两者采用的激光会彼此干扰, 所以即使是集成于一套系统, 这两种技术通常还是通过先后成像来实现关联的, 但这种设计由于可确保方便地对样品中的同一个感兴趣区域进行成像, 大幅降低了关联数据采集和分析的难度, 为两者关联提供了便利条件. SRM-AFM关联最重要的作用是可以从样品表面和内部两方面提供特定目标的多重信息. 例如, Odermatt等[94]将PALM-AFM关联应用于活细胞成像, 先利用AFM监测活细胞前缘形貌随时间的变化(图13 (b)), 再利用PALM对同一部位进行超分辨成像, 利用细胞中联接有光激活蛋白mEos2的桩蛋白实时成像结果(图13 (c)—(g))在纳米尺度显示了细胞移动过程中其前缘黏着斑的动态变化. 与SRM-EM关联类似, SRM-AFM关联也可用于对超分辨结果进行验证, 例如 Monserrate等[96]利用SMLM-AFM关联对荧光标记的离体λDNA进行成像, 通过对比SMLM和AFM的成像结果, 发现AFM图像中连续的结构在超分辨图像中存在间隙, 从而反映超分辨样品标记和图像重构过程可能导致的伪影. 此外, SRM-AFM关联还有另一种功能, 即利用AFM 对样品进行纳米操作并利用SRM技术进行成像甚至为纳米操作提供反馈信息[97].

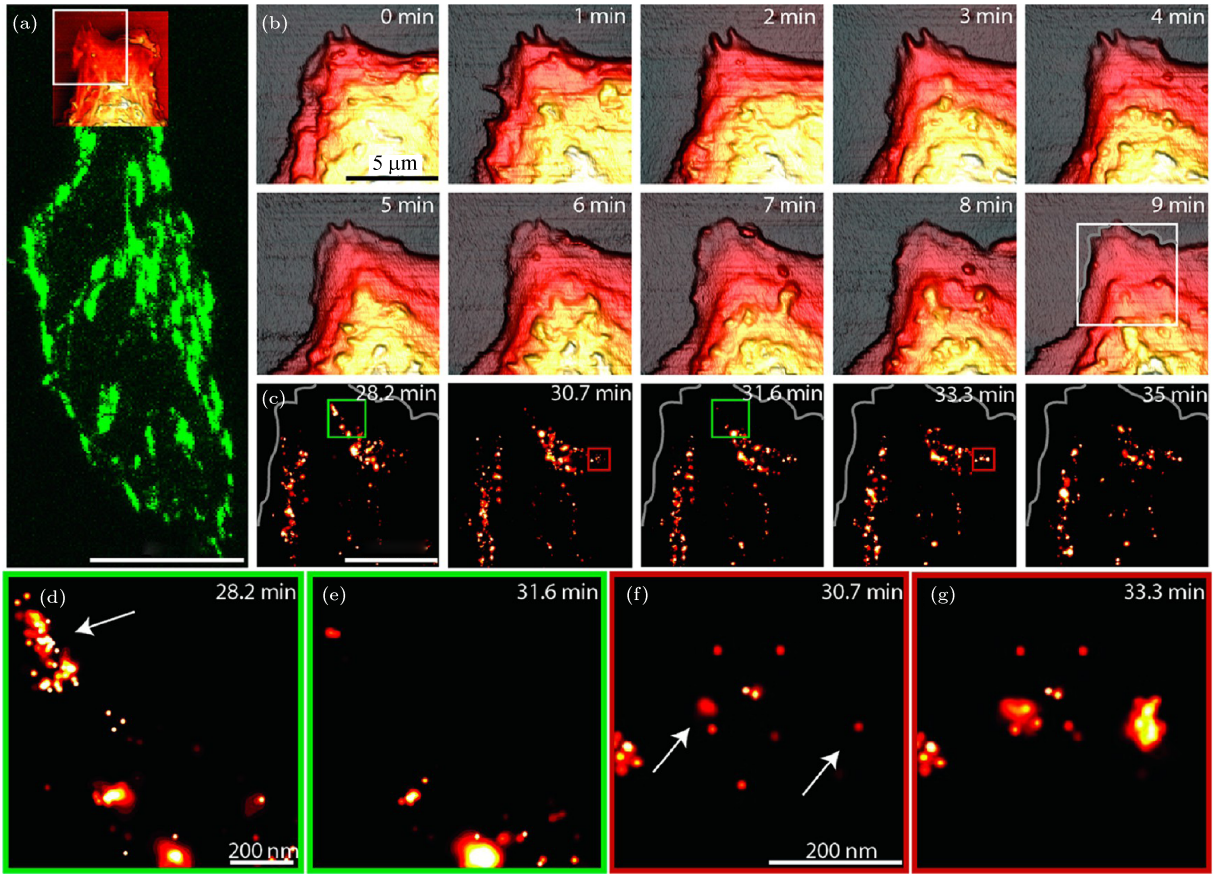


图13 SRM-AFM关联显微应用实例: 提供内外结构信息[94]

Fig. 13. Correlative SRM-AFM applications: Providing both internal and external structural information[94].

4.3.3 超分辨-质谱关联显微

质谱在同位素、原子团簇和分子的鉴别方面一直以来都扮演着非常重要的角色, 而近几年利用二次离子质谱进行成像的二次离子质谱技术(secondary ion mass spectrometry, SIMS)则为生物样品的化学分析提供了一种新的方法, 目前空间分辨率已达100 nm左右, 与SRM技术基本相当[98]. SIMS成像也需要在真空环境进行, 因此SRM-SIMS关联面临着与SRM-EM关联同样的问题, 即只有解决关联样品的制备问题才能实现有效

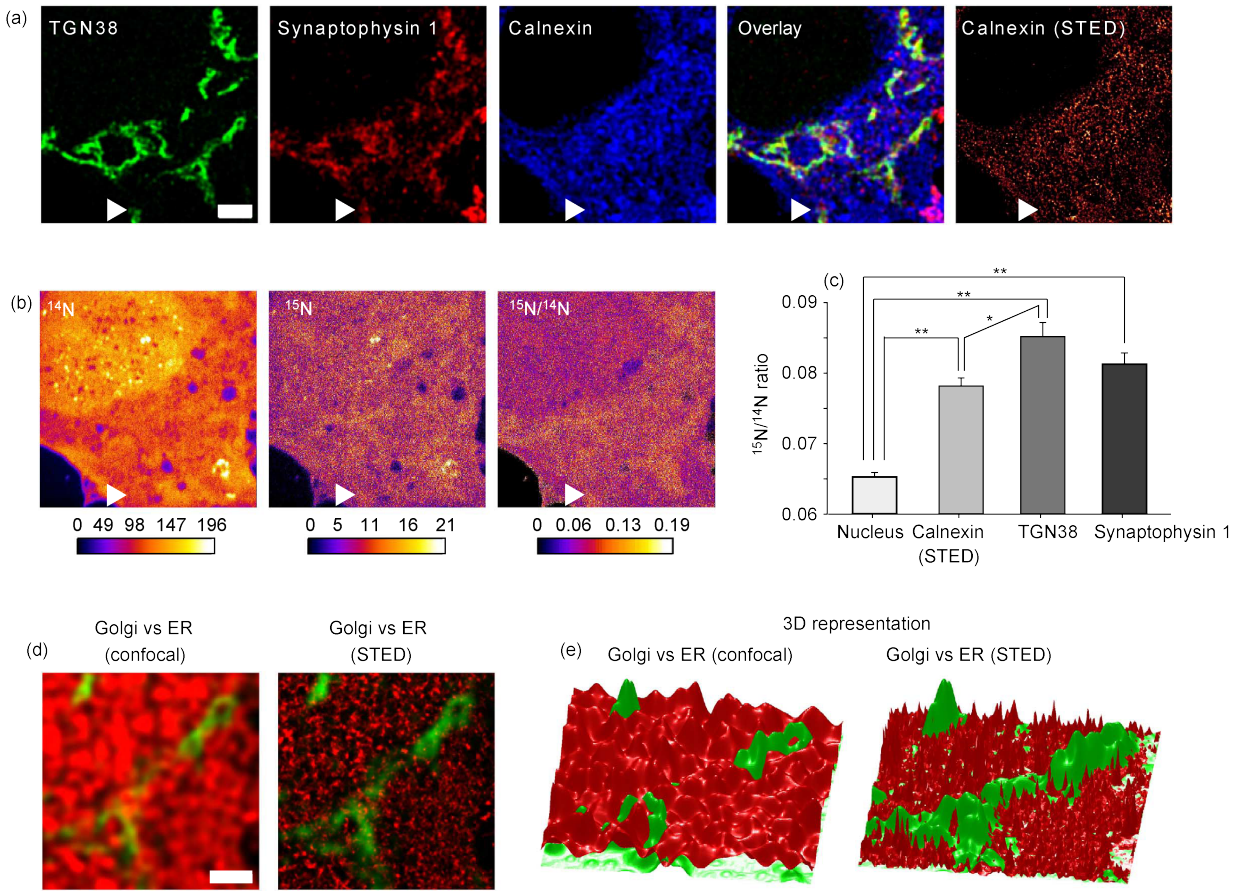


图 14 SRM-SIMS 关联显微应用实例: 提供新的信息维度 [99]

Fig. 14. Correlative SRM-SIMS applications: Providing additional information dimension [99].

的关联. 例如, Saka 等 [99] 利用 STED-SIMS 关联研究了体外培养海马神经元中的蛋白质周转, 他们将含有同位素 ^{15}N 的标记物添加在神经元的培养液中, 利用其代谢状态作为后期蛋白质周转速率的量化表征, 接着他们对细胞进行固定、免疫荧光标记、脱水、树脂包埋、切片等处理, 并对处理后的样品先后进行 CLSM, STED 和 SIMS 成像, 通过分析 CLSM 和 STED 获得的细胞结构图像 (图 14 (a)) 和 SIMS 获得的 ^{15}N/^{14}N 密度比分布 (图 14 (b)) 在超分辨细胞结构背景下对比了不同细胞器中蛋白质周转速率的不同 (图 14 (c)).

5 总结和展望

光学显微成像由于系统孔径的衍射存在着分辨率极限, 而近十几年来迅速发展的 SRM 技术采用各种巧妙的办法却可以“绕过”该限制获得远高于衍射极限分辨率的超分辨图像. 其中, STORM, PALM 等技术针对宽场成像系统进行空域处理, 通过衍射极限范围内荧光分子先后发光和分时探测, 实现单分子定位并重构超分辨图像; STED, RESOLFT 等技术针对扫描成像系统进行空域处理, 通过抑制激发斑中心点以外荧光分子发光, 避免了激发斑尺寸对分辨率的影响而获得超分辨图像; SIM, SSIM 等技术则从频域角度进行处理, 利用摩尔条纹将样品的高频信息平移到系统 OTF 的截止频率范围内实现超分辨成像.

SRM 技术将荧光显微成像的分辨率提高了近一个数量级, 其取得的巨大发展为生物医学研究提供了强有力的工具; 然而作为一种新兴技术, SRM 技术在实际应用于生物医学研究时仍面临着许多亟待解决的问题, 尤其是当研究对象是活的、具有一定厚度的、成分和结构复杂的细胞、组织等生物样品时. 因此, 除了进一步提高分辨率, 如何实现 SRM 的多色成像、厚样品三维成像、活细胞快速成像等也是目前 SRM 领域的研究重点, 这些问题的研究和解决将使 SRM 技术未来有可能为生物医学研究提供更有意义的活细胞实时超分辨图像和

数据.

在SRM技术尚未十分完善的今天, 将SRM与其他技术进行关联的超分辨关联显微是实现优势互补的最佳途径, 成为近年来SRM的一个重要发展趋势. SRM技术与FM, CLSM, LTFM, FLIM等衍射受限光学显微技术的关联可弥补SRM目前的一些弱点, 起到识别和区分特定目标、提供多层次背景结构信息、提高时间分辨能力、丰富功能成像信息、实现多色超分辨等作用, 最大程度地发挥SRM在分辨率方面的优势; SRM与FS, SR-FTIR等光谱测量和成像技术的关联可大幅提高光谱成像技术的空间分辨率, 同时为SRM增加额外的信息维度; SRM与EM, AFM, SIMS等非光学显微技术的关联, 一方面能为同一个生物学问题提供不同尺度、不同维度或不同角度的信息互相印证, 使研究更加深入, 另一方面还能为验证SRM结果的正确性提供直接的证据.

然而, 由于成像原理的不同, 进行关联的两种显微成像技术对成像环境和样品制备的要求有可能大相径庭, 尤其是SRM与EM等非光学显微技术的关联, 尽管目前已经发展了许多关联样品制备方法和关联显微成像流程, 但这一类关联显微的实际应用到目前为止仍然难度较大. 同时, 对于分辨率同样达到几十纳米甚至更高水平的两种或多种技术之间的关联, 图像的对准和融合要求也非常高, 因为不同方法获得的图像之间对准的精度必须控制在10 nm以内, 否则由于没有精确对准而造成的伪影或分辨率降低等问题也会大幅削弱关联显微的意义. 因此, 只有深入地研究和解决这些问题, 才能实现真正有效的超分辨关联显微并应用于生物医学研究.

需要补充的是, 除了SRM技术与其他技术的关联, 目前不同的SRM技术之间也在尝试进行关联显微, 如SIM-SMLM等[100,101]. 而所有关联显微研究的目的都只有一个, 即更好地发挥这些先进技术的优势, 通过优势互补为生物医学领域提供更好的研究方法和手段. 相信随着各种技术自身的进步, 以及关联所涉及的样品制备、图像处理等相关技术的进一步发展完善, 超分辨成像技术和超分辨关联显微技术将为生物医学研究提供越来越多的更有意义的数据, 帮助人们更深入、更全面地理解生命和疾病, 为科学技术和人类社会的发展提供帮助.

感谢深圳大学于斌教授关于衍射极限分辨率的讨论, 感谢美国华盛顿大学化学系Joshua C. Vaughan教授和研究生Marco Howard, Lauren Gagnon关于各种超分辨成像技术的讨论.

参考文献

[1] Volkmann H 1966 *Appl. Opt.* **5** 1720
[2] Airy G B 1835 *Trans. Cambridge Philos. Soc.* **5** 283
[3] Yu D Y, Tan H Y 2011 *Engineering Optics* (3rd Ed.) (Beijing: China Machine Press) p400 (in Chinese) [郁道银, 谈恒英 2011 工程光学 (第三版) (北京: 机械工业出版社) 第400页]
[4] Su X Y, Li J T, Cao Y P, Zhang Q C 2011 *Information Optics* (3rd Ed.) (Beijing: Science Press) p74 (in Chinese) [苏显渝, 李继陶, 曹益平, 张启灿 2011 信息光学 (第三版) (北京: 科学出版社) 第74页]
[5] Betzig E, Patterson G H, Sougrat R, Lindwasser O W, Olenych S, Bonifacino J S, Davidson M W, Lippincott-Schwartz J, Hess H F 2006 *Science* **313** 1642
[6] Rust M J, Bates M, Zhuang X 2006 *Nat. Methods* **3** 793
[7] Hess S T, Girirajan T P K, Mason M D 2006 *Biophys. J.* **91** 4258
[8] Hell S W, Wichmann J 1994 *Opt. Lett.* **19** 780
[9] Klar T A, Jakops S, Dyba M, Hell S W 2000 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **97** 8206
[10] Gustafsson M G L 2000 *J. Microsc.* **198** 82
[11] Gustafsson M G L 2005 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **102** 13081
[12] Lin D, Ma W, Liu X, Sun Y, Wu Y 2008 *Proc. 2008 CISP* **4** 244
[13] Thompson R E, Larson D R, Webb W W 2002 *Biophys. J.* **82** 2775
[14] Betzig E 1995 *Opt. Lett.* **20** 237
[15] Dickson R M, Cubitt A B, Tsien R Y, Moerner W E 1997 *Nature* **388** 355
[16] Bates M, Blosser T R, Zhuang X 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 108101
[17] Bates M, Huang B, Dempsey G T, Zhuang X 2007 *Science* **317** 1749
[18] Heilemann M, van de Linde S, Schuttpelz M, Kasper R, Seefeldt B, Mukherjee A, Tinnefeld P, Sauer M 2008 *Angew. Chem. Int. Ed.* **47** 6172
[19] Huang B, Wang W, Bates M, Zhuang X 2008 *Science* **319** 810
[20] Huang B, Jones S A, Brandenburg B, Zhuang X 2008 *Nat. Methods* **5** 1047
[21] Pavani S R P, Thompson M A, Biteen J S, Lord S J, Liu N, Twieg R J, Piestun R, Moerner W E 2009 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **106** 2995
[22] Sharonov A, Hochstrasser R M 2006 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **103** 18911
[23] Giannone G, Hosy E, Levet F, Constals A, Schulze K, Sobolevsky A I, Rosconi M P, Gouaux E, Robert Tampé, Choquet D, Cognet L 2010 *Biophys. J.* **99** 1303
[24] Jungmann R, Steinhauer C, Scheible M, Kuzyk A, Tinnefeld P, Simmel F C 2010 *Nano Lett.* **10** 4756

[25] Jungmann R, Avendano M S, Woehrstein J B, Dai M, Shih W M, Yin P 2014 *Nat. Methods* **11** 313

[26] Folling J, Bossi M, Bock H, Medda R, Wurm C A, Hein B, Jakobs S, Eggeling C, Hell S W 2008 *Nat. Methods* **5** 943

[27] Dertinger T, Colyer R, Iyer G, Weiss S, Enderlein J 2009 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **106** 22287

[28] Hafi N, Grunwald M, van den Heuvel L S, Aspelmeier T, Chen J H, Zagrebelsky M, Schütte O M, Steinem C, Korte M, Munk A, Walla P J 2014 *Nat. Methods* **11** 579

[29] Chang H, Zhang M, Ji W, Chen J, Zhang Y, Liu B, Lu J, Zhang J, Xu P, Xu T 2012 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **109** 4455

[30] Quan T, Li P, Long F, Zeng S, Luo Q, Hedde P N, Nienhaus G U, Huang Z 2010 *Opt. Exp.* **18** 11867

[31] Pan D, Hu Z, Qiu F, Huang Z L, Ma Y, Wang Y, Qin L, Zhang Z, Zeng S, Zhang Y 2014 *Nat. Commun.* **5** 5573

[32] Chen C, Zong S, Wang Z, Lu J, Zhu D, Zhang Y, Cui Y 2016 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **8** 25825

[33] Zeng Z, Chen X, Wang H, Huang N, Shan C, Zhang H, Teng J, Xi P 2015 *Sci. Rep.* **5** 8359

[34] Chen X, Zeng Z, Wang H, Xi P 2015 *Nano Res.* **8** 2251

[35] Zhanghao K, Chen L, Yang X, Wang M, Jing Z, Han H, Zhang M Q, Jin D, Gao J, Xi P 2016 *Light: Sci. Appl.* **5** e16166

[36] Ni Y, Cao B, Ma T, Niu G, Huo Y, Huang J, Chen D, Liu Y, Yu B, Zhang M Q, Niu H 2017 *eLife* **6** e21660

[37] Lin D Y, Ma W Y 2007 *Physics* **36** 783 (in Chinese) [林丹樱, 马万云 2007 物理 **36** 783]

[38] Hell S W 1997 *Topics in Fluorescence Spectroscopy: Nonlinear and Two-Photon-Induced Fluorescence* (Vol. 5) (New York: Plenum) p361

[39] Wildanger D, Bückers J, Westphal V, Hell S W, Kastrup L 2009 *Opt. Exp.* **17** 16100

[40] Hell S W, Willig K I, Dyba M, Jakobs S, Kastrup L, Westphal V 2006 *Handbook of Biological Confocal Microscopy* (3rd Ed.) (New York: Pawley, Springer-Science+Business Media) p571

[41] Hell S W, Kroug M 1995 *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* **60** 495

[42] Hofmann M, Eggeling C, Jakobs S, Hell S W 2005 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **102** 17565

[43] Bretschneider S, Eggeling C, Hell S W 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 218103

[44] Donnert G, Keller J, Wurm C A, Rizzoli S O, Westphal V, Schönle A, Jahn R, Jakobs S, Eggeling C, Hell S W 2007 *Biophys. J.* **92** L67

[45] Willig K I, Harke B, Medda R, Hell S W 2007 *Nat. Methods* **4** 915

[46] Westphal V, Rizzoli S O, Lauterbach M A, Kamin D, Jahn R, Hell S W 2008 *Science* **320** 246

[47] Berning S, Willig K I, Steffens H, Dibaj P, Hell S W 2012 *Science* **335** 551

[48] Liu Y, Ding Y, Alonas E, Zhao W, Santangelo P J, Jin D, Piper J A, Teng J, Ren Q, Xi P 2012 *PLoS One* **7** e40003

[49] Wang Y, Kuang C, Li S, Hao X, Xu Y, Liu X 2014 *Microsc. Res. Techniq.* **77** 935

[50] Yu J, Yuan J, Zhang X, Liu J, Fang X 2013 *Chin. Sci. Bull.* **58** 4045

[51] Yu W, Ji Z, Dong D, Yang X, Xiao Y, Gong Q, Xi P, Shi K 2016 *Laser Photon. Rev.* **10** 147

[52] Yan W, Yang Y, Tan Y, Chen X, Li Y, Qu J, Ye T 2017 *Photon. Res.* **5** 176

[53] Cai Z, Liu X, Jiang H, He D, Peng X, Huang S, Zhang Z 2015 *Opt. Exp.* **23** 25171

[54] Du Y, Huang J, Lin D, Niu H 2012 *Anal. Bioanal. Chem.* **404** 793

[55] Heintzmann R, Jovin T M, Cremer C 2002 *J. Opt. Soc. Am. A* **19** 1599

[56] Gustafsson M G L, Shao L, Carlton P M, Wang C J R, Golubovskaya I N, Cande W Z, Agard D A, Sedaty J W 2008 *Biophys. J.* **94** 4957

[57] Kner P, Chhun B B, Griffis E R, Winoto L, Gustafsson M G L 2009 *Nat. Methods* **6** 339

[58] Shao L, Kner P, Rego E H, Gustafsson M G L 2011 *Nat. Methods* **8** 1044

[59] Fiolka R, Shao L, Rego E H, Davidsonc M W, Gustafsson M G L 2012 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **109** 5311

[60] Planchon T A, Gao L, Milkie D E, Davidson M W, Galbraith J A, Galbraith C G, Betzig E 2011 *Nat. Methods* **8** 417

[61] Chen B C, Legant W R, Wang K, Shao L, Milkie D E, Davidson M W, Janetopoulos C, Wu X S, Hammer J A, Liu Z, English B P, Mimori-Kiyosue Y, Romero D P, Ritter A T, Lippincott-Schwartz J, Fritz-Laylin L, Mullins R D, Mitchell D M, Bembenek J N, Reymann A, Böhme R, Grill S W, Wang J T, Seydoux G, Tulu U S, Kiehart D P, Betzig E 2014 *Science* **346** 1257998

[62] Gao L, Shao L, Chen B, Betzig E 2014 *Nat. Protoc.* **9** 1083

[63] Li D, Shao L, Chen B, Zhang X, Zhang M, Moses B, Milkie D E, Beach J R, Hammer J A, Pasham M, Kirchhausen T, Baird M A, Davidson M W, Xu P, Betzig E 2015 *Science* **28** 349

[64] Dan D, Lei M, Yao B, Wang W, Winterhalder M, Zumbusch A, Qi Y, Xia L, Yan S, Yang Y, Gao P, Ye T, Zhao W 2013 *Sci. Rep.* **3** 1116

[65] Jones S A, Shim S H, He J, Zhuang X 2011 *Nat. Methods.* **8** 499

[66] Yang Z, Sharma A, Qi J, Peng X, Lee D Y, Hu R, Lin D, Qu J, Kim J S 2016 *Chem. Soc. Rev.* **45** 4651

[67] Samuel D 1996 *Science* **273** 488

[68] Caplan J, Niethammer M, Taylor R M, Czymmek K J 2011 *Curr. Opin. Struct. Biol.* **21** 686

[69] Watanabe S, Punge A, Hollopeter G, Willig K I, Hobson R J, Davis M W, Hell S W, Jorgensen Erik M 2011 *Nat. Methods* **8** 80

[70] Xu K, Zhong G, Zhuang X 2013 *Science* **339** 452

[71] Crossman D J, Hou Y, Jayasinghe I, Baddeley D, Soeller C 2015 *Methods* **88** 98

[72] Barna L, Dudok B, Miczan V, Horvath A, Laszlo Z I, Katona I 2016 *Nat. Protoc.* **11** 163

[73] Huang F, Hartwich T M P, Rivera-Molina F E, Lin Y, Duim W C, Long J J, Uchil P D, Myers J R, Baird M A, Mothes W, Davidson, M W, Toomre Derek, Bewersdorf J 2013 *Nat. Methods* **10** 653

[74] Lin D, Ma W, Duan S, Zhang Y, Du L 2006 *Apoptosis* **11** 1289

[75] Bálint Š, Vilanova I V, Álvarez Á S, Lakadamyali M 2013 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **110** 3375

[76] Tam J, Cordier G A, Bálint Š, Álvarez Á S, Borbely J S, Lakadamyali M 2014 *PLoS One* **9** e115512

[77] Auksorius E, Boruah B R, Dunsby C, Lanigan P M P, Kennedy G, Neil M A A, French P M W 2008 *Opt. Lett.* **33** 113

[78] Bückers J, Wildanger D, Vicidomini G, Kastrup L, Hell S W 2011 *Opt. Exp.* **19** 3130

[79] Wu Q, Qi J, Lin D, Yan W, Hu R, Peng X, Qu J 2017 *Proc. SPIE* **10069** 1006922

[80] Zhang Z, Kenny S J, Hauser M, Li W, Xu K 2015 *Nat. Methods* **12** 935

[81] Mlodzianoski M J, Curthoys N M, Gunewardene M S, Carter S, Hess S T 2016 *PLoS One* **11** e0147506

[82] Holman H Y N, Bechtel H A, Hao Z, Martin M C 2010 *Anal. Chem.* **82** 8757

[83] Whelan D R, Bell T D M 2015 *ACS Chem. Biol.* **10** 2874

[84] Giepmans B N G 2008 *Histochem. Cell Biol.* **130** 211

[85] van Rijnsoever C, Oorschot V, Klumperman J 2008 *Nat. Methods* **5** 973

[86] de Boer P, Hoogenboom J P, Giepmans B N G 2015 *Nat. Methods* **12** 503

[87] Hauser M, Wojcik M, Kim D, Mahmoudi M, Li W, Xu K 2017 *Chem. Rev.* **117** 7428

[88] Löschberger A, Franke C, Krohne G, van de Linde S, Sauer M 2014 *J. Cell Sci.* **127** 4351

[89] Wojcik M, Hauser M, Li W, Moon S, Xu K 2015 *Nat. Commun.* **6** 7384

[90] Betzig E, Trautman J K 1992 *Science* **257** 189

[91] Sun Y, Lin D, Rui Y, Han D, Ma W 2006 *J. Electron Microsc.* **55** 165

[92] Ge G, Han D, Lin D, Chu W, Sun Y, Jiang L, Ma W, Wang C 2007 *Ultramicroscopy* **107** 299

[93] Harke B, Chacko J V, Haschke H, Canale C, Diaspro A 2012 *Opt. Nanoscopy* **1** 3

[94] Odermatt P D, Shivanandan A, Deschout H, Jankele R, Nievergelt A P, Feletti L, Davidson M W, Radenovic A, Fantner G E 2015 *Nano Lett.* **15** 4896

[95] Chacko J V, Zanacchi F C, Diaspro A 2013 *Cytoskeleton* **70** 729

[96] Monserrate A, Casado S, Flors C 2014 *ChemPhysChem* **15** 647

[97] Chacko J V, Canale C, Harke B, Diaspro A 2013 *PLoS One* **8** e66608

[98] Boxer S G, Kraft M L, Weber P K 2009 *Annu. Rev. Biophys.* **38** 53

[99] Saka S K, Vogts A, Krönert K, Hillion F, Rizzoli S O, Wessels J T 2014 *Nat. Commun.* **5** 3664

[100] Hamel V, Guichard P, Fournier M, Guiet R, Fluckiger I, Seitz A, Gonczy P 2014 *Biomed. Opt. Exp.* **5** 3326

[101] Rossberger S, Best G, Baddeley D, Heintzmann R, Birk U, Dithmar S, Cremer C 2013 *J. Opt.* **15** 094003

SPECIAL ISSUE—Diffraction limit of electromagnetic waves

Recent progress on super-resolution imaging and correlative super-resolution microscopy*

Lin Dan-Ying Qu Jun-Le†

(*Key Laboratory of Optoelectronic Devices and Systems of Ministry of Education and Guangdong Province, College of Optoelectronic Engineering, Shenzhen University, Shenzhen 518060, China*)

(Received 19 April 2017; revised manuscript received 21 June 2017)

Abstract

The diffraction of the finite aperture in the optical imaging system restricts further improvement of the resolution of optical microscopy, which is called the "diffraction limit". Since raised by Ernst Abbe in 1873, the problem of diffraction limit has been one of the foci of academic research. In recent years, with the rapid development of related fields such as the development of optoelectronic devices including high energy lasers and high sensitivity detectors and the development of new fluorescent probes, the problem of diffraction limit in optical microscopy ushered in a new opportunity, and super-resolution microscopy (SRM) has made remarkable achievements in the past decade. The basic principles of diffraction limited resolution in both space and frequency domains are reviewed, and on this basis, the mechanisms for the various SRM technologies to circumvent the diffraction limit and improve the resolution are explained in detail. The development trends and research directions of various SRM techniques are also introduced. As a new and important development trend of SRM, correlative super-resolution microscopy and its recent progress are reviewed, including correlative studies on SRM and time-lapse live cell fluorescence microscopy, fluorescence lifetime imaging microscopy, spectrometry and spectroscopy, electron microscopy, atomic force microscopy, etc. The role and significance of various correlative super-resolution microscopy are discussed. The future development of super-resolution microscopy and correlative super-resolution microscopy is also prospected.

Keywords: diffraction limit, super-resolution imaging, correlative microscopy, correlative super-resolution microscopy

PACS: 87.64.M–, 42.40.Lx, 42.30.Va, 42.25.–p **DOI:** 10.7498/aps.66.148703

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2015CB352005), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61525503, 61378091, 61620106016), and the Natural Science Foundation of Guangdong Province for Innovation Research Team, China (Grant No. 2014A030312008).

† Corresponding author. E-mail: jlqu@szu.edu.cn

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

结构光照明显微中的偏振控制

赵天宇 周兴 但旦 千佳 汪召军 雷铭 姚保利

Polarization control methods in structured illumination microscopy

Zhao Tian-Yu Zhou Xing Dan Dan Qian Jia Wang Zhao-Jun Lei Ming Yao Bao-Li

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 148704 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.148704
在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.148704
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I14

您可能感兴趣的其他文章
Articles you may be interested in

表面等离激元结构光照明显微成像技术研究进展
Research progress of plasmonic structure illumination microscopy
物理学报.2017, 66(14): 148701 http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.148701

基于累积量标准差的超分辨光学涨落成像解卷积优化
Deconvolution optimization in super-resolution optical fluctuation imaging based on cumulant standard deviation
物理学报.2016, 65(19): 198701 http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.198701

基于法布里-珀罗调谐滤波器的傅里叶域锁模扫频激光光源
Fiber Fabry-Perot tunable filter based Fourier domain mode locking swept laser source
物理学报.2013, 62(6): 068703 http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.068703

专题: 电磁波衍射极限

结构光照明显微中的偏振控制*

赵天宇[1)2)] 周兴[1)] 但旦[1)] 千佳[1)] 汪召军[1)] 雷铭[1)†] 姚保利[1)‡]

1) (中国科学院西安光学精密机械研究所, 瞬态光学与光子技术国家重点实验室, 西安 710119)

2) (中国科学院大学, 北京 100049)

(2017 年 5 月 16 日收到; 2017 年 6 月 13 日收到修改稿)

结构光照明显微 (structured illumination microscopy, SIM) 作为一种宽场超分辨光学显微成像技术, 具有成像速度快、光漂白和光毒性弱等优点, 是目前主流超分辨成像方法之一. 在 SIM 技术中, 正弦强度分布的条纹结构光场的对比度决定了 SIM 超分辨图像的质量. 低的条纹对比度将导致样品中超衍射极限的高频信息被噪声掩盖, 从而无法解析出超分辨信息. 结构照明入射光的偏振态调控决定了干涉条纹的对比度, 是 SIM 的关键技术. 鉴于此, 本文总结对比了几种典型的 SIM 系统偏振控制方法, 同时提出了一种使用零级涡旋半波片的偏振控制方法. 实验证明, 与其他方法相比, 采用零级涡旋半波片法可以获得更高效的偏振控制效果, 具有系统结构简单、易使用、可将光能利用率提升到接近 100% 的优点.

关键词: 结构光照明显微, 超分辨, 偏振控制, 零级涡旋半波片

PACS: 87.64.M–, 87.64.kv **DOI:** 10.7498/aps.66.148704

1 引 言

自十七世纪荷兰人列文虎克发明光学显微镜以来, 光学显微镜一直是研究活细胞生命现象的主流方法. 这一发明极大地推动了人类文明的进程, 将人类的观察视野由宏观世界延伸至微观领域. 然而, 传统光学显微镜的空间分辨率受到光学衍射极限的限制, 空间分辨率最高只能达到大约半个波长, 故而对低于 200 nm 的细节信息无能为力, 制约了其在亚细胞水平观测中的应用[1−3]. 以无损光学成像进一步探索生命活动的构想似乎在阿贝的预言下戛然而止. 然而近几十年伴随着荧光探针技术的发展, 提出了一系列超分辨光学显微成像方法, 使得光学显微镜的空间分辨率突破了阿贝极限. 其中最具代表性的技术包括受激发射损耗显微技术 (stimulated emission depletion microscopy, STED)[4,5]、光激活定位显微技术 (photo-activation localization microscopy, PALM)[6,7]、随机光学重构显微技术 (stochastic optical reconstruction microscopy, STORM)[8,9], 结构光照明显微技术 (structured illumination microscopy, SIM)[10−12] 等. 在这些技术的推动下, 超分辨显微镜已经可以观察纳米尺度范围内的生物体结构及其变化过程, 为现代生物学提供了强有力的研究工具, 将相关领域的研究推向了新的高度.

由于 SIM 是成像速度最快的超分辨成像技术, 自该技术出现伊始, 就受到了国内外的广泛关注. SIM 技术最初由 Heintzmann 和 Cremer[10] 于 1999 年提出, 通过将光栅经由物镜投影在样品上产生的正弦强度分布的条纹结构光场, 利用四步相移法重构超分辨图像, 得到近 100 nm 空间分辨率的超分辨图像. 在此基础上, Gustafsson 等[11] 于 2000 年采用三步相移法进一步提高了 SIM 的时间分

* 国家自然科学基金 (批准号: 61522511, 11404389, 81427802, 11474352) 和陕西省自然科学基础研究计划 (批准号: 2016JZ020) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: leiming@opt.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: yaobl@opt.ac.cn

© 2017 中国物理学会 Chinese Physical Society

辨率. 随着研究的深入, SIM技术也得到进一步的改进与拓展. 2008年, Schermelleh 等[13]使用三光束干涉, 成功地记录到细胞核膜上核孔复合体的精细三维结构, 其横向分辨率达到100 nm, 纵向分辨率200 nm. 同年, Shao等[14]使用六光束干涉并结合非相干光干涉照明干涉成像显微技术(incoherent interference illumination image interference microscopy, I5M), 实现了纵向及横向空间分辨率均为100 nm的三维结构光照明显微, 使得从三维上精确定位细胞内部各种细胞器及观测活体细胞内的活动及反应成为可能. 线性SIM最大可以将光学显微系统的空间分辨率提高一倍. 2005年Gustafsson[15]利用荧光分子的非线性响应, 进一步将空间分辨率提升至50 nm. Li等[16]于2015年使用铁电液晶空间光调制和相位延迟器提升了SIM 的时间分辨率, 他们对细胞内吞作用和细胞骨架动力学的研究极大地推动了SIM在生物学领域的应用.

以线性SIM为例, 将其超分辨成像原理概述如下. 显微物镜的空间分辨率取决于它能采集到的最大空间频率 $f_0 = 2NA/\lambda$ (其中 NA 是物镜的数值孔径). 当样品包含的高频信息 $f > f_0$ 时, 将难以分辨样品的细节. 如果使用空间频率为 f_1 的正弦条纹结构光照明样品, 则会产生空间频率为 $f_m = |f - f_1|$ 的低频莫尔条纹(Moiré fringes). 莫尔条纹实际上是样品与结构光的拍频信号, 它包含有样品超衍射分辨的高频信息f. 当 $f_m < f_0$ 时, 可以在显微物镜下观察到莫尔条纹, 通过解码, 可以提取出样品的超分辨率信息, 进而重构出样品的高分辨率图像. 为保证结构光照明显微系统光学传递函数(OTF)的各向同性, 实验中需要旋转照明光场在多个方向上对称地对样品照明. 通常在每一个成像平面旋转3个位置, 两两夹角60°, 如图1所示. 从频域来看, 结构光照明拓展了显微系统的OTF从 f_0 提高到了 f_0+f_1. 因此 f_1 越大, SIM显微的空间分辨率就越高. 但是结构照明光场的空间频率 f_1 同样受衍射极限限制, 即 $f_1 \leqslant f_0$, 所以线性SIM显微技术至多可以将光学显微系统的空间分辨率提高一倍.

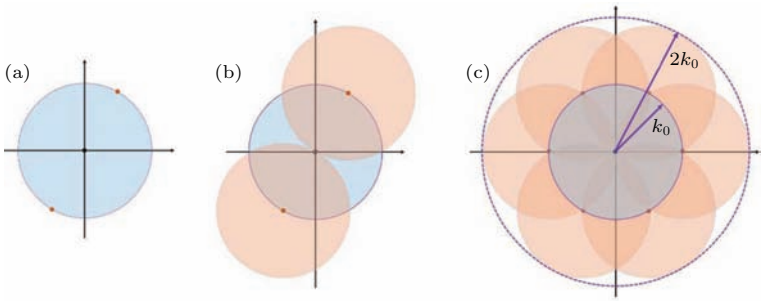


图1 (a) 普通宽场频谱; (b) 单一频率方向结构光扩展了这一方向的频谱; (c) 三个方向结构光得到近各向同性的频谱

Fig. 1. (a) Wide-field spectrum; (b) extended spectrum with single frequency direction; (c) extended nearly isotropic spectrum with three frequency directions.

产生高空间频率正弦强度分布条纹结构光场是SIM的核心. 大多数的结构光照明显微系统都使用线偏振的激光束照明衍射光栅或者空间光调制器产生±1级衍射光, 再将两束衍射光干涉产生周期性正弦干涉条纹照明样品. 改变干涉条纹的相位和旋转方向需要通过电控平移台和旋转台移动衍射光栅来实现, 这将不可避免地带来机械振动并降低系统的时间分辨率. 因此目前大多数的SIM 系统都采取液晶空间光调制器(spatial light modulator, SLM)代替衍射光栅的方案, 通过编程控制SLM上加载的光栅结构可以实时改变正弦干涉条纹的旋转方向和相位, 整个显微系统的时间分辨率和稳定性都得到了极大的提高. 实验中双光束干涉条纹的对比度受两束光偏振态影响, 只有在线偏振入射光偏振方向与条纹方向呈特定角度时条纹对比度才能达到最高. 为保证结构光照明显微系统OTF的各向同性, 需要改变条纹光场对称地照明样品. 因此在实验上必须同步控制入射线偏振光的偏振方向与加载在空间光调制器上的光栅方向, 使二者始终保持平行.

本文针对几种典型的SIM偏振控制方法进行了对比, 同时提出了一种使用零级涡旋半波片的偏振控制方法. 实验证明零级涡旋半波片法可以对SIM系统进行更高效的偏振控制, 并具有操作简单和光能利用率高等优点.

2 理论分析

2.1 偏振方向对干涉条纹对比度的影响

我们首先理论分析干涉条纹对比度与入射光偏振方向的关系, 模拟因偏振引起的条纹对比度变化对最终超分辨图像重构质量的影响.

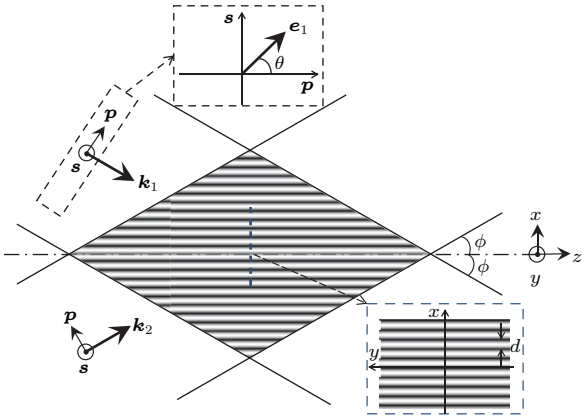


图 2 双光束干涉示意图

Fig. 2. Sketch of two beam interference.

如图 2 所示, 为了简化问题, 设强度相同、关于 z 轴对称入射的两束相干平面波在空间 xz 平面相干叠加, 其电场复振幅矢量分别为:

$$\boldsymbol{E}_1 = \boldsymbol{e}_1 \exp(\mathrm{i}\boldsymbol{k}_1 \cdot \boldsymbol{r}), \tag{1}$$

$$\boldsymbol{E}_2 = \boldsymbol{e}_2 \exp(i\boldsymbol{k}_2 \cdot \boldsymbol{r}), \tag{2}$$

其中 $\boldsymbol{e}_1$, $\boldsymbol{e}_2$ 分别表示 $\boldsymbol{E}_1$, $\boldsymbol{E}_2$ 振动方向的单位矢量; $\boldsymbol{k}_1$, $\boldsymbol{k}_2$ 是波矢, $|\boldsymbol{k}_1| = |\boldsymbol{k}_2| = k = 2\pi/\lambda$; $\boldsymbol{r}$ 是位矢. 设 ϕ 表示 $\boldsymbol{k}$ 与 z 轴夹角, $\phi \in (0, \pi/2)$; θ 为 $\boldsymbol{e}$ 与 xz 平面夹角, $\theta \in (0, \pi)$; $\boldsymbol{e_x}$, $\boldsymbol{e_y}$, $\boldsymbol{e_z}$ 分别为 x, y, z 轴的单位方向矢量. 则有

$$\begin{aligned}\boldsymbol{E}_1 = {} & (\cos\theta\cos\phi\boldsymbol{e}_x + \sin\theta\boldsymbol{e}_y + \cos\theta\sin\phi\boldsymbol{e}_z) \\ & \times \exp\left[\mathrm{i}\frac{2\pi}{\lambda}(-x\sin\phi + z\cos\phi)\right],\end{aligned} \tag{3}$$

$$\begin{aligned}\boldsymbol{E}_2 = {} & (\cos\theta\cos\phi\boldsymbol{e}_x + \sin\theta\boldsymbol{e}_y - \cos\theta\sin\phi\boldsymbol{e}_z) \\ & \times \exp\left[\mathrm{i}\frac{2\pi}{\lambda}(x\sin\phi + z\cos\phi)\right].\end{aligned} \tag{4}$$

当两束光发生干涉时, 由光波的叠加原理可知干涉场的复振幅分布为

$$\begin{aligned}\boldsymbol{E} = {} & \boldsymbol{E}_1 + \boldsymbol{E}_2 \\ = {} & 2\cos\left(\frac{2\pi}{\lambda}x\sin\phi\right)\cos\theta\cos\phi\exp\left(\mathrm{i}\frac{2\pi}{\lambda}z\cos\phi\right)\boldsymbol{e}_x \\ & + 2\cos\left(\frac{2\pi}{\lambda}x\sin\phi\right)\sin\theta\exp\left(\mathrm{i}\frac{2\pi}{\lambda}z\cos\phi\right)\boldsymbol{e}_y \\ & - 2\mathrm{i}\sin\left(\frac{2\pi}{\lambda}x\sin\phi\right)\cos\theta\sin\phi \\ & \times \exp\left(\mathrm{i}\frac{2\pi}{\lambda}z\cos\phi\right)\boldsymbol{e}_z.\end{aligned} \tag{5}$$

所以, 干涉场的光强分布为

$$\begin{aligned}I = {} & |\boldsymbol{E}|^2 \\ = {} & 4(\cos^2\theta\cos 2\phi + \sin^2\theta)\cos^2\left(\frac{2\pi}{\lambda}x\sin\phi\right) \\ & + 4\cos^2\theta\sin^2\phi,\end{aligned} \tag{6}$$

其中干涉条纹周期 $d = \dfrac{\lambda}{2\sin\phi}$, 两光束夹角 ϕ 越大, 条纹周期 d 越小, 能采集到的高频成分频率越高, 超分辨效果越好. 干涉条纹对比度 m 与偏振方向角 θ 及双光束夹角 ϕ 的关系可以根据 (6) 式计算:

$$\begin{aligned}m = {} & \frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}} \\ = {} & \left|\sin^2\theta + \cos^2\theta\cos(2\phi)\right|,\end{aligned} \tag{7}$$

其图像如图 3 所示.

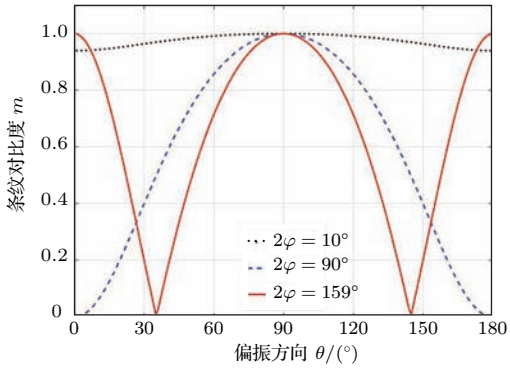


图 3 干涉条纹对比度随偏振方向及双光束夹角的变化规律

Fig. 3. The variation of the interference fringe contrast with different polization angles and the cross angle between the two beams.

可以看出, 当双光束偏振方向角 $\theta = 90°$, 即垂直于光束平面 xz, 亦即为 s 偏振时, 干涉条纹具有最大对比度. 而对于双光束夹角接近 180°, 如 $2\phi = 159°$ 时, 当双光束偏振方向平行于光束平面 xz 时 (即为 p 偏振时), 干涉条纹也可以接近最大对比度, 而其他偏振方向条纹对比度则逐渐下降. 因此为了获得更高的条纹对比度, 就必须对偏振方向进行控制, 以实现高质量的超分辨图像重构, 一般都将双光束偏振方向调制为 s 偏振, 即在 xy 观察平面内看, 偏振方向与干涉条纹方向一致.

2.2 条纹对比度对重构图像的影响

目前, 常用的 SIM 图像重构算法包括 Shroff 等 [17] 提出的 POP (phase of peaks) 算法, Wicker [18] 提出的 ACR (auto-correlation reconstruction) 算法, Zhou 等 [19] 提出的 IRT (image recombination transform) 算法. 在不同的条纹对比

度下, 三种算法分别呈现不同的图像重构效果. 下面就这三种算法在不同条纹对比度情况下的重构结果进行对比.

模拟中为了与实验条件匹配, 设置物镜的数值孔径为1.49, 浸油折射率为1.515, 同时, 考虑到SIM系统中常选用高灵敏度的sCMOS相机作为探测器, 设探测器分辨率为2048 × 2048像素, 像素大小为6.5 μm. 如图4(a)所示, 选用分辨率渐变的USAF1951分辨率测试板作为测试目标, 该分辨率板空间频率在中心处达到最高, 往外缘呈逐级减小趋势. 在波长为500 nm时, 模拟系统的衍射极限为168 nm. 当条纹频率增至衍射极限时, 算法估测误差将显著增大, 且精度受到噪声干扰, 因此模拟中加载的条纹周期为170 nm, 并使用高斯噪声模拟退化图像. 模拟重构图像结果如图4所示, 其中图4(a)为宽场结果. 在图4(b)—图4(d)中, 当$m = 0.01$时, 由于高频信息被淹没在噪声中, 三种算法均失效, 无法提供重构结果. 在图4(e)—图4(g)中, 当$m = 0.1$时, POP和ACR算法可以辨认出分辨率板上的图案, 但是由于伪影存在, 不能提供真实可靠的细节信息, 而IRT算法已经可以得到良好的重构结果. 在图4(h)—图4(j)中, 当条纹对比度$m = 0.5$时, 三种算法均可以得到较好的重构图像, 并且没有伪影产生. 由此可见, 对于不同的SIM图像重构算法, 高的条纹对比度是获得高品质图像的必要条件. 而偏振方向的变化将影响条纹对比度进而影响最终的图像重构质量, 因此, 为了得到高质量的超分辨结果, 就必须对系统进行偏振控制.

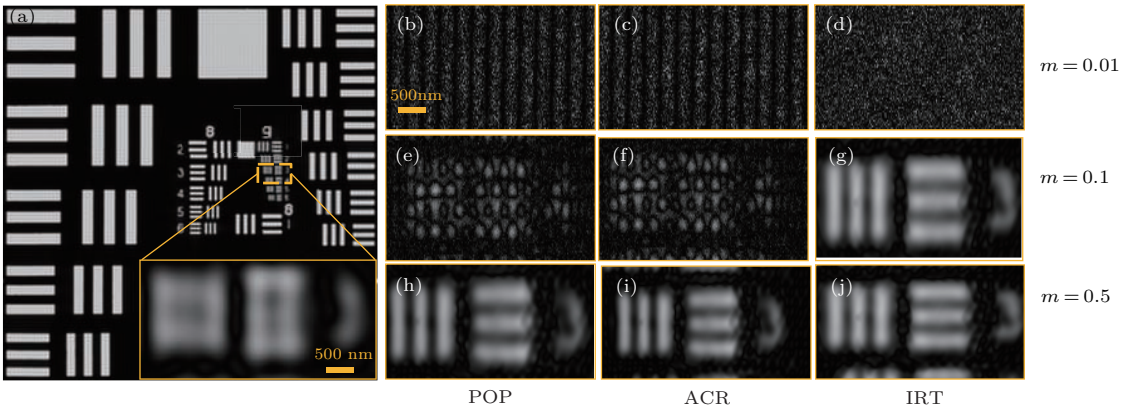


图4 三种算法在不同条纹对比度情况下的重构结果对比 (a) 普通显微镜结果; (b)—(d) $m = 0.01$重构结果; (e)—(g) $m = 0.1$重构结果; (h)—(j) $m = 0.5$重构结果

Fig. 4. Comparison of reconstructed images of the simulated object by using three algorithms at different fringe contrast: (a) Wide-field; (b)–(d) reconstructed images with $m = 0.01$; (e)–(g) reconstructed images with $m = 0.1$; (h)–(j) reconstructed images with $m = 0.5$.

3 结构光照明显微中的几种偏振控制方法

由于条纹对比度是SIM重构超分辨图像的重要参数, 而上文的模拟显示干涉光束的偏振态决定了干涉条纹的对比度. 这里选取具有代表性的3种方法, 对SIM技术中的偏振控制方法进行详细介绍与对比.

3.1 相位延迟器法

在早期Gustafsson等机械式地旋转和平移衍射光栅的方式来控制干涉条纹的相位和方向时, 需要在光路中加入一个可以同步旋转控制的半波片来实现双光束的偏振态的同步控制. 然而机械转动的半波片已经无法满足高速成像实验对系统的速度与稳定性的要求. Kner等[20]在SIM系统中使用铁电液晶SLM时, 同时还使用了一对铁电液晶相位延迟器(ferro-electric liquid crystal phase retarders, FLC)进行光束的偏振控制(如图5(a)所示). FLC由充满液晶分子的透明液晶盒组成, 液晶分子在未加电压的情况下, 其快轴方向竖直, 对入射光束产生的相位延迟量为0. 加载一定电压后, 液晶分子快轴方向将会旋转45°, FLC对入射光束产生的相位延迟量和外加电压大小相关.

该系统的偏振控制原理如图5(b)所示, 其中

红色箭头表示系统中各个位置处激光的偏振方向, 蓝线代表两个FLC和一个1/4波片(QWP)的快轴方向. 入射光依次通过两个FLC和一个1/4波片, 控制两个FLC的相位延迟量为$\lambda/3$, 即每一个FLC相当于一个快轴方向可变的1/3波片. 如图5(b)第一行所示, 当所需条纹方向为0°时, 两个FLC均不加载电压, 则入射光没有旋转, 出射光即为垂直偏振. 如图5(b)第二行所示, 当所需条纹方向为60°时, 则第一个FLC不变, 第二个加载电压, 出射光即为60°线偏振. 如图5(b)第三行所示, 当所需条纹方向为−60°时, 则两个FLC都加载电压, 出射光为−60°线偏振.

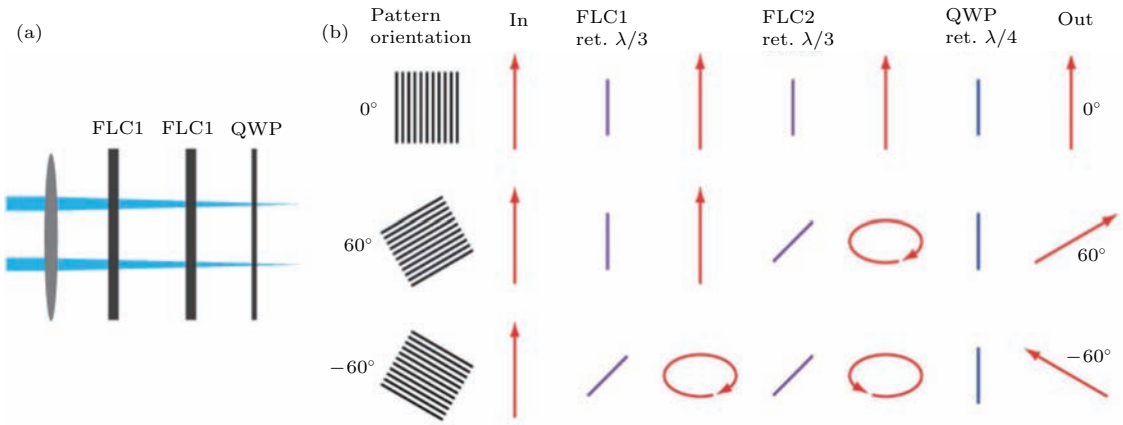


图5 (a) 相位延迟器法装置示意图; (b) 使用三个相位延迟器对光束进行偏振控制的示意图[20]

Fig. 5. (a) Schematic of polarization control by using phase retarders; (b) process of polarization control by using three phase retarders[20].

FLC最大的优点在于可以快速(<100 μs)准确地对光束偏振方向进行调制. 然而由于其变化过程需要编程控制, 并需要同空间光调制器等器件进行同步, 使得系统的复杂度增加. 另外, 由于需要使用两个FLC, 实验系统的总透过率将小于90%.

3.2 分区偏振片法

为了解决FLC操作复杂的问题, 2014年Förster等[21]设计了一个特殊的分区偏振片(segmented polarizer), 其结构如图6所示. 该分区偏振片是一个无源器件, 由12个偏振片胶合而成, 其中每一个小扇形代表一块偏振片, 其偏振透光轴方向如箭头所示. 实验时将由SLM衍射得到的两束线偏振光通过1/4波片调制为圆偏振光, 当两束圆偏光沿图6中所示两个相同颜色的圆斑位置入射分区偏振片时, 出射线偏光的偏振方向可以调制为圆斑内箭头所指的偏振方向, 并且与两光束的干涉条纹方向平行, 从而实现SIM系统的偏振控制.

分区偏振片的优点在于其本身为无源器件, 调整好光路后不需要加入额外的同步控制, 从而简化了SIM系统的操作. 然而由于入射的圆偏光经过分区偏振片后, 理论上将损失50%的光强, 如果再考虑到偏振片材料的吸收特性, 该方法的能量利用率将小于50%.

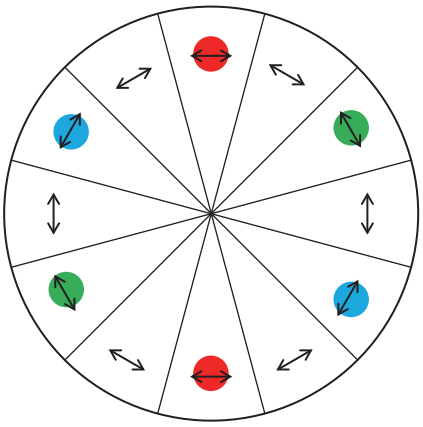


图6 分区偏振片结构示意图[21]

Fig. 6. Methord of polarization control by using segmented polarizer.

3.3 零级涡旋半波片法

针对前两种偏振调制技术的不足, 本文提出了一种使用零级涡旋半波片进行偏振控制的方法. 零级涡旋半波片(zero-order vortex half-wave retarder, VHR)是一种非均匀半波片, 其快轴方向并不惟一, 图7中的单箭头方向为该位置处半波片的快轴方向. 图8是使用VHR进行偏振控制的原

理示意图, 如果需要产生方向如图8 (d) 所示的干涉条纹, 首先将两束入射线偏光的偏振方向调节为图8 (a) 双箭头所示垂直方向, 红色圆斑为两光束的入射位置, 图8 (b) 中的单箭头代表零级涡旋半波片的快轴方向. 当两光束通过VHR调制后, 出射光的偏振方向为图8 (c) 中红色圆斑位置处的双箭头方向, 即为所需的偏振方向. 同理, 其余两个方向的偏振控制原理如图8 (e)—(l), 从而实现了SIM偏振控制.

在能量利用率方面, VHR透过率与普通半波片类似, 几乎没有能量损失, 理论上接近100%, 从而大大提高了系统的能量利用率. 同时VHR与之前的分区偏振片一样, 都是无源器件, 不需要像液晶相位延迟器一样进行同步控制, 可以简化SIM系统.

由以上分析可知, 三种偏振控制方法均可对光束进行偏振控制, 具体比较结果列于表1. 可以看出, 零级涡旋半波片法在系统复杂度和能量利用率方面有着明显的优势.

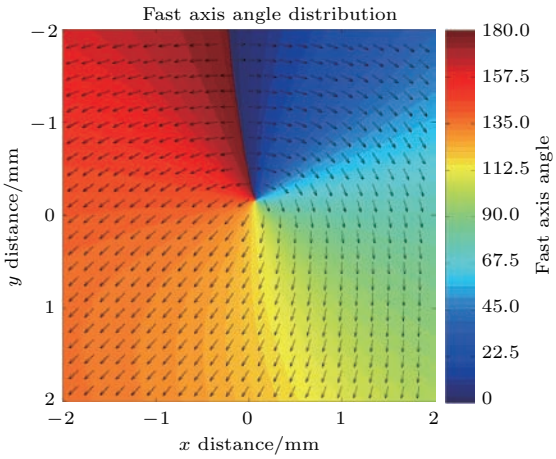


图7 零级涡旋半波片快轴方向分布示意图

Fig. 7. Distribution of the fast axis orientation of the zero-order vortex half-wave retarder.

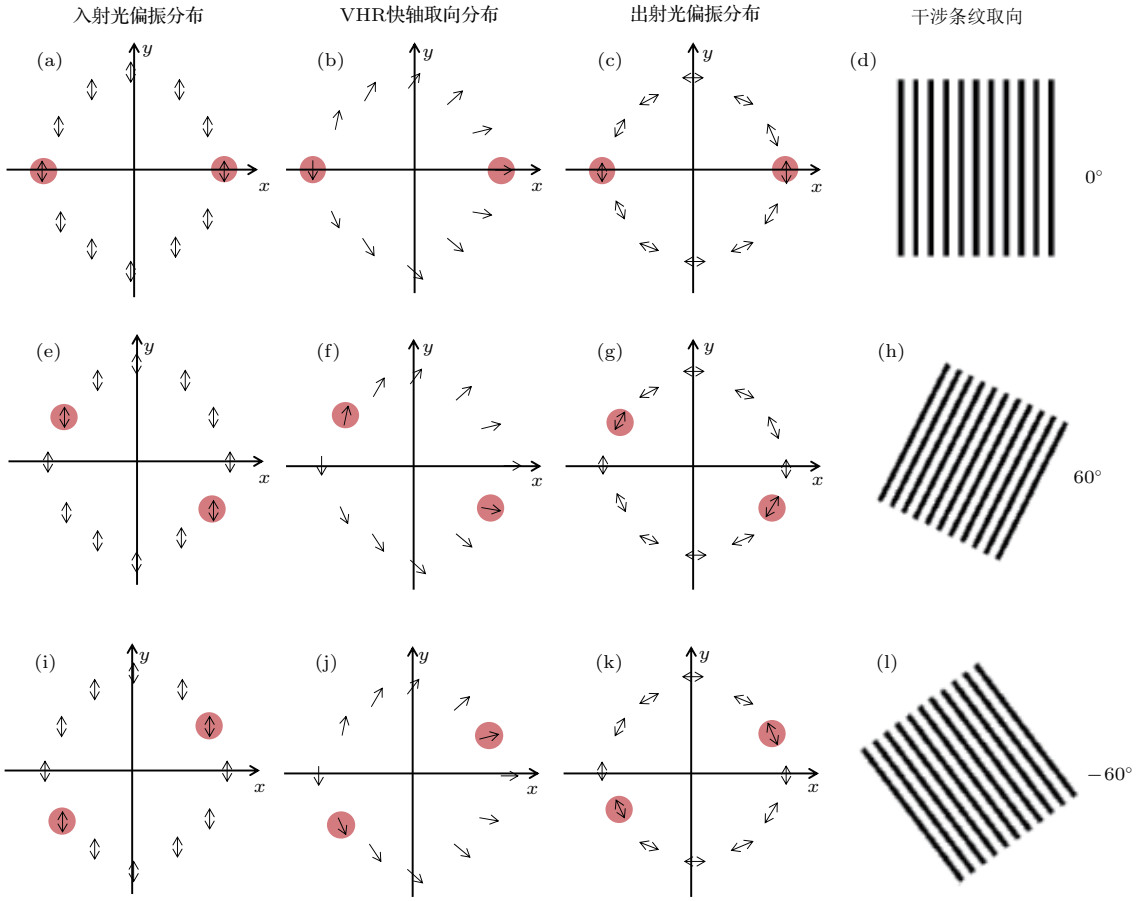


图8 零级涡旋半波片偏振控制过程示意图

Fig. 8. Scheme of polarization control by using the zero-order vortex half-wave retarder.

表 1 不同偏振控制方法的比较

Table 1. Comparison of different polarization control methods.

方法	系统复杂度	能量利用率/%
相位延迟器法	高	<90
分区偏振片法	低	<40
零级涡旋半波片法	低	>97

4 实验结果

为了验证零级涡旋半波片的效果, 我们搭建了如图 9 所示的 SIM 实验系统. 波长 532 nm 激光器发出的水平线偏振光, 通过偏振分光棱镜 (PBS) 和半波片, 垂直入射铁电液晶空间光调制器 (2048 × 1536 pixels, QXGA-3 DM, 英国 Forth Dimension Displays 公司). 利用 Wen 等 [22] 编写的程序计算衍射光栅图像, 并加载到空间光调制器上. 经空间光调制器衍射的光原路返回, 再次通过半波片并由 PBS 反射进入后续光路. 其中偏振分光棱镜、半波片和铁电液晶空间光调制器共同作用, 相当于入射激光照射一个相位型衍射光栅 [20], 产生的垂直偏振 ±1 级衍射光进入透镜 1 (焦距 500 mm). 实验中使用一个空间滤波器阻挡零级光, 保留 ±1 级衍射光通过. ±1 级衍射光经过零级涡旋半波片改变偏振态后, 再通过透镜 2 (焦距 175 mm) 和透镜 3 (焦距 125 mm) 组成的共焦系统进入显微物镜 (100×, $NA = 1.49$, 日本 Nikon 公司), 两衍射光在物镜的焦平面附近上形成干涉条纹, 激发样品产生荧光. 荧光信号由物镜收集后通过二向色镜反射, 经过筒镜, 由 sCMOS 相机 (2048 × 2048 pixels, ORCA-flash4.0, 日本滨松公司) 采集图像.

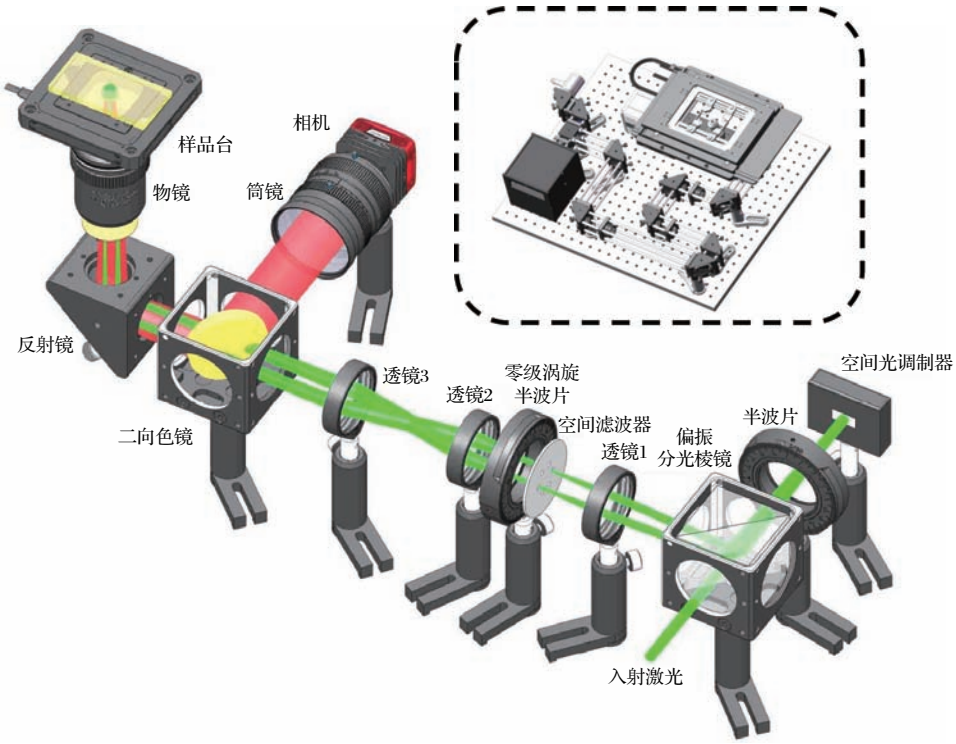


图 9 使用零级涡旋半波片法进行偏振控制的 SIM 系统实验光路图

Fig. 9. Experimental setup of the interference-type structured illumination microscope by using the zero-order vortex half-wave retarder for polarization control.

我们首先测试了偏振调制对作用在样品上的结构光干涉条纹对比度的影响. 在这个实验中, 为了调制 ±1 级衍射光的偏振方向, 将实验光路中的 VHR 换为一个半波片. 实验以牛肺动脉内皮细胞 (bovine pulmonary artery endothelial, BPAE) 为测试样品, 并选取了方向分别为 0°, 60° 和 −60° 的条纹光场进行照明. 为了更好地展示偏振控制对条纹对比度的影响, 设置条纹的周期约为 300 nm. 图 10 显示了不同条纹方向下偏振方向对条纹对比度的影响. 其中图 10 (a), (d), (g) 为 0° 条纹时,

条纹对比度随着偏振方向θ角的增大而增加, 当$\theta = 90°$, 即偏振方向为s偏振时, 系统可获得最大的条纹对比度. 图10 (b), (e), (h)为条纹方向60°的情况; 图10 (c), (f), (i) 为条纹方向$-60°$的情况. 可见, 使用零级涡旋半波片对偏振方向进行调制, 保证了偏振方向始终为s偏振, 从而可获取最大的条纹对比度.

接下来我们使用直径40 nm荧光小球对SIM系统进行了分辨率标定, 结果如图11所示. 图11 (b)—图11 (d)是两个近邻的小球成像结果. 可以看出, 在SIM下可以分辨的两个小球, 由于两球相距180 nm, 小于衍射极限, 普通宽场下无法区分. 同时, 我们还测量了单个荧光小球的半高宽, 如图11 (e)—图11 (g)所示, 虚线表示普通宽场结果, 其半高宽为240 nm, 略大于衍射极限220 nm; 实线表示SIM超分辨结果, 半高宽为108 nm, 比宽场结果分辨率提升一倍, 实现了SIM技术可以达到的2倍分辨率提升效果.

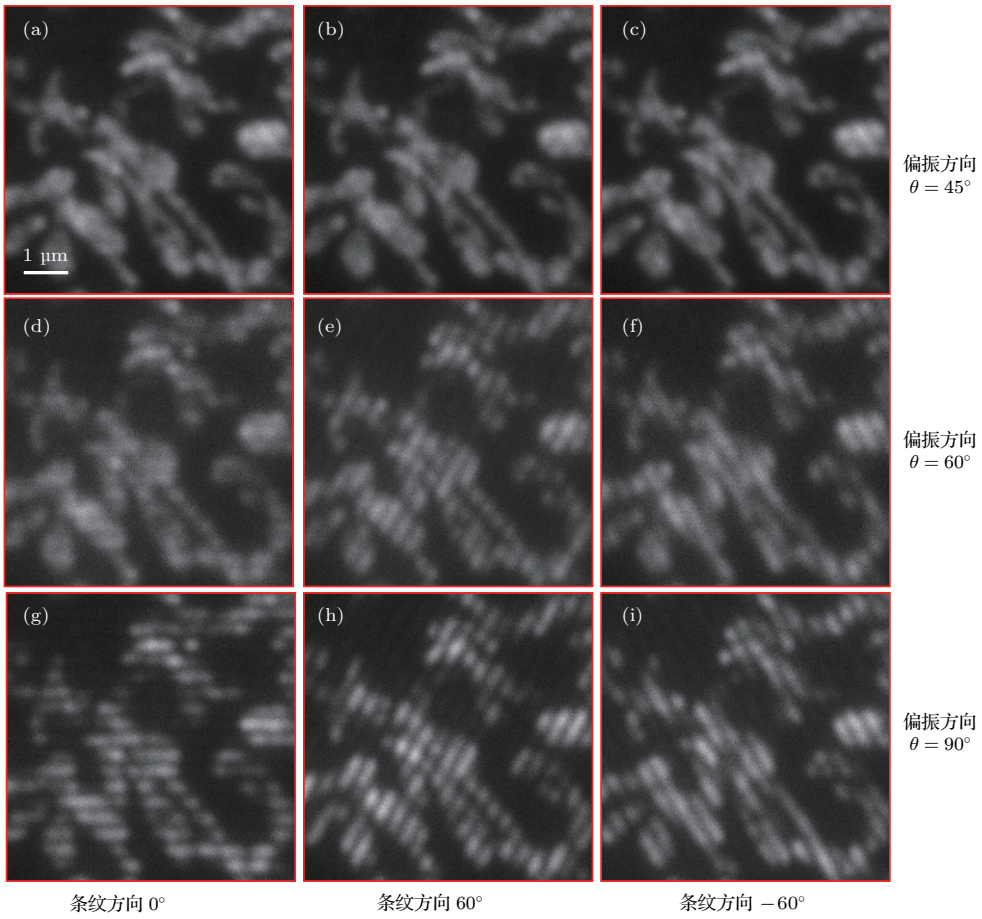


图10 偏振方向对于不同方向条纹对比度的影响 对于0°, 60°和$-60°$三个不同方向的条纹, 偏振方向对样品上产生的干涉条纹对比度的影响: (a)—(c) $\theta = 45°$, (d)—(f) $\theta = 60°$, (g)—(i) $\theta = 90°$

Fig. 10. Comparison of the interference fringe contrast at different polarization directions. For different fringe orientations of 0°, 60° and $-60°$, the variation of fringe contrast with the polarization directions: (a)–(c) $\theta = 45°$; (d)–(e) $\theta = 60°$, (g)–(i) $\theta = 90°$.

为了检验系统对生物样品的成像分辨能力, 我们分别对大肠杆菌和人视网膜色素上皮细胞进行拍摄. 图12是对大肠杆菌进行的超分辨成像结果. 样品由Syto-64标记荧光, 并吸附于经过poly-L-lysine处理后的盖玻片上. 其中图12 (a)左半边为普通宽场图像, 右半边为SIM超分辨结果, 可以清楚地看出, 相对于宽场成像, 我们的装置对图像分辨率有很大提升. 图12 (b)和图12 (c)是图12 (a)中虚线方框部分放大结果, 图12 (d)为图12 (b)和图12 (c)中直线标记位置的归一化强度分布, 相对于虚线表示的宽场图像结果, 实线表示的超分辨结果可以观察到大肠杆菌细胞质的分布变化.

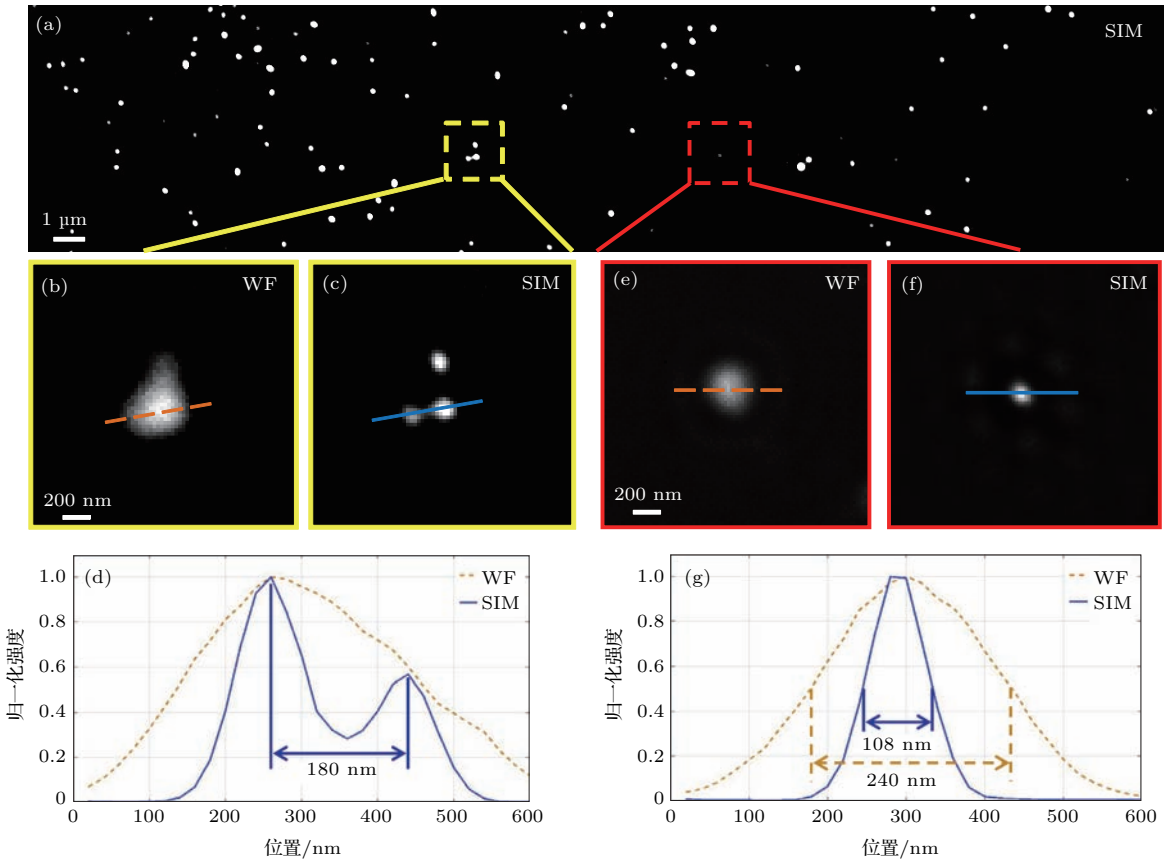


图 11 直径 40 nm 荧光小球超分辨结果 (a) 结构光照明显微结果; (b)—(d) 两个相邻小球的局部放大以及强度分布对比; (e)—(g) 单个小球局部放大以及半高宽测量对比

Fig. 11. Super-resolution image of 40 nm-diameter fluorescent beads: (a) SIM; (b)–(d) zoom-in of two beads and measurement of normalized intensity; (e)–(g) zoom-in of one bead and measurement of full width at half maximum.

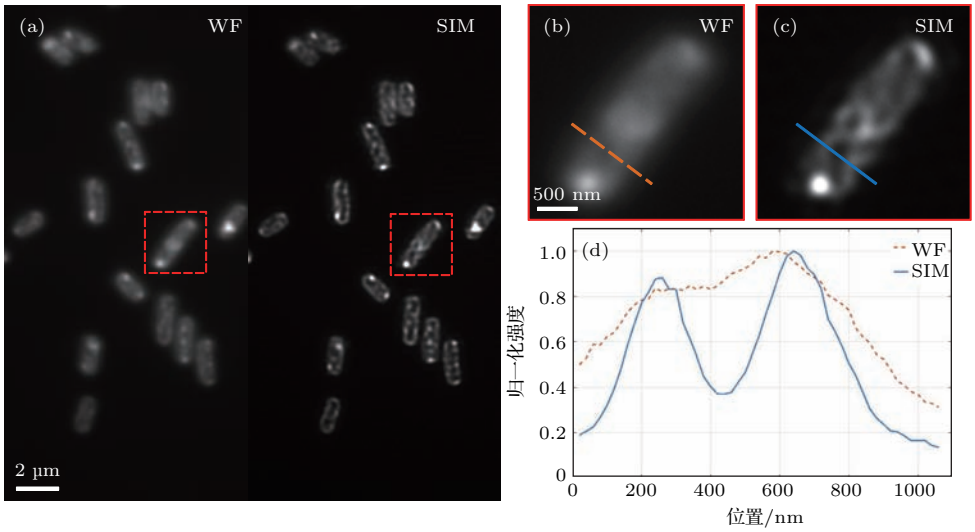


图 12 大肠杆菌超分辨实验结果 (a) 普通显微镜和结构光照明显微镜结果对比; (b) 普通显微镜局部放大图; (c) 结构光照明显微镜局部放大图; (d) 局部放大图中直线标记处的归一化强度分布曲线

Fig. 12. Super-resolution image of *E. coli*: (a) Comparison of wide-field and SIM; (b) partly enlarged view of wide-field; (c) partly enlarged view of SIM; (d) normalized intensity profiles along the marked lines in (b) and (c).

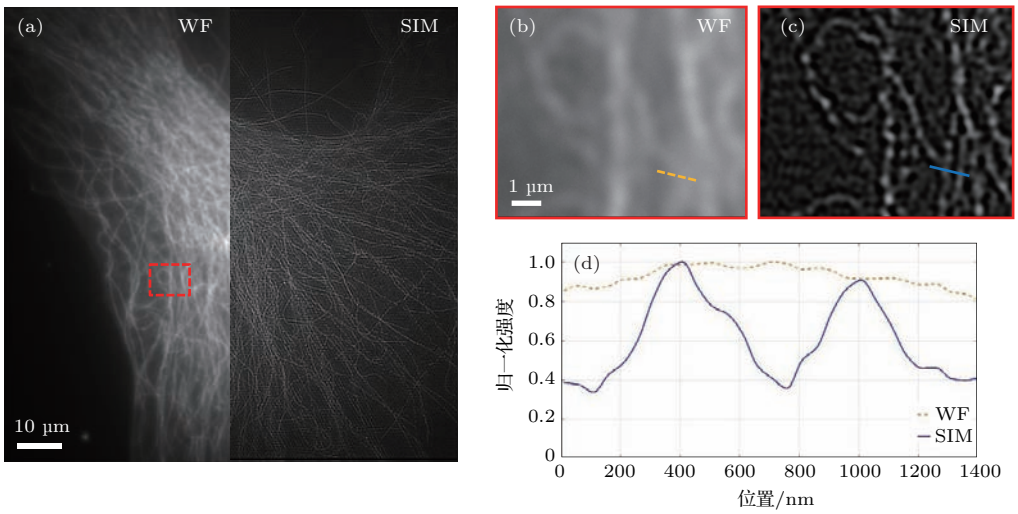


图 13 人视网膜色素上皮细胞超分辨结果 (a) 普通显微镜和结构光照明显微镜结果对比; (b) 普通显微镜局部放大图; (c) 结构光照明显微镜局部放大图; (d) 局部放大图中直线标记处的归一化强度分布曲线

Fig. 13. Super-resolution image of human retinal pigment epithelium: (a) Comparison of wide-field and SIM; (b) partly enlarged view of wide-field; (c) partly enlarged view of SIM; (d) normalized intensity profiles along the marked lines in (b) and (c).

图 13 是对人视网膜色素上皮细胞进行的超分辨成像结果, 样品经过荧光免疫蛋白 ab6160 对细胞微管蛋白标记荧光. 其中图 13 (a) 左半边为普通宽场图像, 右半边为 SIM 超分辨结果. 图 13 (b) 和图 13 (c) 为图 13 (a) 中红色虚线方框部分放大结果, 相对于普通宽场结果, SIM 图像可以更清晰地分辨细胞微管结构. 图 13 (d) 为图 13 (b) 和图 13 (c) 中直线标记位置处的归一化强度分布, 可以看出在普通显微镜下无法分辨的两条微管结构, 在 SIM 中可以清晰分辨.

5 结 论

在主流的远场超分辨光学显微成像技术中, SIM 技术凭借高时间分辨率、低光毒性和低光漂白性等诸多优点, 尤其适合对生物医学领域的活体样本进行超分辨动态观测. 而激光干涉型 SIM 中的偏振控制是关键, 决定了能否最终得到高质量的超分辨图像. 本文详细对比了三种不同的偏振控制方法: 相位延迟器法、分区偏振片法和零级涡旋半波片法. 通过对三种方法的分析比较, 证明了零级涡旋半波片法能对不同入射方向的光束进行偏振控制, 并具有操作简单、光能利用率高的优点, 对 SIM 技术的应用推广具有一定的意义.

感谢美国 Buffalo 大学 Piero Bianco 副教授提供大肠杆菌样品, 感谢北京大学孙育杰课题组提供人视网膜色素上皮细胞样品.

参考文献

[1] Abbe E 1873 *Arc. F. Mikr. Anat.* **9** 413
[2] Conchello J A, Lichtman J W 2005 *Nat. Methods* **2** 920
[3] Wicker K, Sindbert S, Heintzmann R 2009 *Opt. Express* **17** 15491
[4] Hell S W, Wichmann J 1994 *Opt. Lett.* **19** 780
[5] Klar T A, Hell S W 1999 *Opt. Lett.* **24** 954
[6] Betzig E, Patterson G H, Sougrat R, Lindwasser O W, Olenych S, Bonifacino J S, Davidson M W, Lippincott-Schwartz J, Hess H F 2006 *Science* **313** 1642
[7] Huang F, Hartwich T M P, Riveramolina F E, Lin Y, Duim W C, Long J J, Uchil P D, Myers J R, Baird M A, Mothes W 2013 *Nat. Methods* **10** 653
[8] Huang B, Wang W, Bates M, Zhuang X 2008 *Science* **319** 810
[9] Rust M J, Bates M, Zhuang X 2006 *Nat. Methods* **3** 793
[10] Heintzmann R, Cremer C G 1999 *Proceedings of SPIE* Stockholm, Sweden, January 19, 1999 p1399
[11] Gustafsson M G, Agard D A, Sedat J W 2000 *Proceedings of SPIE San Jose, USA, May* 2, 2000 p141
[12] Shao L, Kner P, Rego E H, Gustafsson M G 2011 *Nat. Methods* **8** 1044
[13] Schermelleh L, Carlton P M, Haase S, Shao L, Winoto L, Kner P, Burke B, Cardoso M C, Agard D A, Gustafsson M G 2008 *Science* **320** 1332
[14] Shao L, Isaac B, Uzawa S, Agard D A, Sedat J W, Gustafsson M G 2008 *Biophys. J.* **94** 4971
[15] Gustafsson M G 2005 *Proc. Natl. Acad. Scis* **102** 13081

[16] Li D, Shao L, Chen B C, Zhang X, Zhang M, Moses B, Milkie D E, Beach J R, Pasham M 2015 *Science* **349** aab3500

[17] Shroff S A, Fienup J R, Williams D R 2009 *J. Opt. Soc.Am. A: Opt. Image Sci. Vis.* **26** 413

[18] Wicker K 2013 *Opt. Express* **21** 24692

[19] Zhou X, Lei M, Dan D, Yao B, Yang Y, Qian J, Chen G, Bianco P R 2016 *J. Biomed. Opt.* **21** 96009

[20] Kner P, Chhun B, Griffis E, Winoto L, Gustafsson M G 2009 *Nat. Methods* **6** 339

[21] Föster R, Luwalther H W, Jost A, Kielhorn M, Kai W, Heintzmann R 2014 *Opt. Express* **22** 20663

[22] Wen L H, Martin K, Föster R, Jost A, Kai W, Rainer H 2015 *Methods Appl. Fluoresc.* **3** 014001

SPECIAL ISSUE—Diffraction limit of electromagnetic waves

Polarization control methods in structured illumination microscopy*

Zhao Tian-Yu[1)2)] Zhou Xing[1)] Dan Dan[1)] Qian Jia[1)] Wang Zhao-Jun[1)]
Lei Ming[1)†] Yao Bao-Li[1)‡]

1) (*State Key Laboratory of Transient Optics and Photonics, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710119, China*)

2) (*University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

(Received 16 May 2017; revised manuscript received 13 June 2017)

Abstract

Structured illumination microscopy (SIM) is one of the most promising super-resolution techniques, owing to its advantages of fast imaging speed and weak photo bleaching. The quality of the SIM image is greatly dependent on the contrast of the sinusoidal fringe illumination patterns. Low fringe contrast illumination will seriously affect the super-resolution result and lead to additional artifacts. The generation of fringe patterns with high contrast is the key requirement in hardware for the SIM technique. This can be done by the interference of two laser beams diffracted from the phase gratings addressed on a spatial light modulator. Meanwhile, for maximal interference contrast, precise polarization control to maintain s-polarization for different fringe orientations is critical. In this paper, we review several typical polarization control methods in SIM, and propose a new method by using a zero-order vortex half-wave retarder (VHR). Compared with the other methods, the presented VHR-based polarization control method is very efficient in terms of simple system configuration, ease of use, and high light energy utilization efficiency near to 100%.

Keywords: structured illumination microscopy, super-resolution, polarization control, zero-order vortex half-wave retarder

PACS: 87.64.M–, 87.64.kv **DOI:** 10.7498/aps.66.148704

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61522511, 11404389, 81427802, 11474352) and the Basic Research Plan of Natural Science in Shaanxi Province, China (Grant No. 2016JZ020).

† Corresponding author. E-mail: leiming@opt.ac.cn

‡ Corresponding author. E-mail: yaobl@opt.ac.cn

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

基于焦散线方法的自加速光束设计

闻远辉　陈钰杰　余思远

Design of accelerating beams based on caustic method

Wen Yuan-Hui　Chen Yu-Jie　Yu Si-Yuan

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 144210 (2017)　DOI: 10.7498/aps.66.144210
在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.144210
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I14

您可能感兴趣的其他文章
Articles you may be interested in

拼接型光栅对压缩器中刻线密度差对输出脉冲的影响及补偿方案
Effect of grating groove density error on the output pulses of the tiled grating compressor and corresponding compensation scheme
物理学报.2017, 66(2): 024201　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.024201

双 Pearcey 光束的构建及数学机理研究
Construction of Bi-Pearcey beams and their mathematical mechanism
物理学报.2016, 65(21): 214208　http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.214208

反射式棱栅对展宽器用于啁啾脉冲放大激光的研究
A reflective grism pair stretcher for chirped pulse amplification
物理学报.2013, 62(9): 094202　http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.094202

基于光线光学的非线性自聚焦现象的仿真分析
Simulation and analysis of nonlinear self-focusing phenomenon based on ray-tracing
物理学报.2013, 62(4): 044202　http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.044202

光学频率梳空间光谱分辨精度研究
Spatial dispersion of pulse shaping system with high resolution based on the frequency comb
物理学报.2012, 61(18): 184201　http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.184201

专题: 电磁波衍射极限

基于焦散线方法的自加速光束设计*

闻远辉[1)] 陈钰杰[1)†] 余思远[1)2)]

1) (中山大学电子与信息工程学院, 光电材料与技术国家重点实验室, 广州 510275)

2) (布里斯托大学电气与电子工程系, 布里斯托 BS81TR, 英国)

(2017 年 6 月 16 日收到; 2017 年 7 月 17 日收到修改稿)

以艾里光束为代表的自加速光束是一类在自由空间中具有弯曲传播特性的新型特殊光束. 这类光束因其具有无衍射、自加速和自修复等奇异特性引起了人们的广泛关注, 有望应用于光学微粒操控、激光微加工、全光路由和超分辨成像等诸多领域. 由于艾里光束只能沿着抛物线的轨迹传播, 限制了其在实际应用中的灵活性, 因而设计出能够沿着不同轨迹传播的自加速光束是这一研究领域的关键问题, 而基于焦散线方法的自加速光束设计是解决该问题的有效途径之一. 这一方法是将设计的传播轨迹与光学焦散线联系起来, 通过分析形成该焦散线所需的光线簇构造出对应的初始场分布. 基于该原理并经过不断发展, 不同类型的自加速光束相继得以实现, 并且借助维格纳函数还可以同时实现实空间和傅里叶空间的自加速光束设计, 为自加速光束的应用提供了更多的可能性. 本文对基于焦散线方法的自加速光束设计原理和进展进行全面介绍.

关键词: 物理光学, 自加速光束, 焦散线, 维格纳函数

PACS: 42.15.Dp, 42.68.Ay, 42.30.Lr, 42.30.Kq **DOI:** 10.7498/aps.66.144210

1 引 言

一般宏观情况下, 光在自由空间中是沿着直线传播的, 然而近些年来由于艾里光束的发现, 在自由空间中具有弯曲传播特性的新型光束 (即自加速光束) 引起了人们的极大兴趣和广泛关注. 艾里光束是由美国中弗罗里达大学的 Siviloglou 等 [1] 于 2007 年率先在实验上实现的. 这一类光束除了与贝塞尔光束一样具有无衍射和自修复等特性外, 其最吸引人的地方在于没有任何外界作用的情况下光束能够沿着抛物线的轨迹弯曲传播, 而不像贝塞尔光束等绝大多数光束一样沿直线传播. 正是由于具备这些奇异特性, 基于艾里光束的各种潜在应用相继被提出并在实验上进行了演示, 包括光学微粒操控 [2,3]、弯曲等离子通道的产生 [4]、光子弹 [5,6]、激光微加工 [7]、全光路由 [8]、超分辨成像 [9,10], 和激光诱导放电 [11] 等. 此外, 由于艾里波包只是波动方程的解, 并不局限于光学领域, 对于表面等离子体波 [12−15]、物质波 [16,17]、声波 [18,19]、水波 [20] 等各种波动系统也同样适用, 因而极大地拓展了艾里波包研究的适用领域. 关于以艾里光束为代表的自加速光束这一研究领域的更详细介绍可以参见南开大学 Chen 课题组 [21] 和苏州大学 Cai 课题组 [22] 近期的综述文章.

本文主要聚焦讨论自加速光束的设计这一问题. 由于艾里光束只能沿着抛物线的轨迹弯曲传播, 这在实际应用中缺乏足够的灵活性, 因而设计其他不同轨迹传播的自加速光束一直以来是这一研究领域的一个关键问题. 其中一个解决思路是继续寻找波动方程中对应艾里光束以外的其他解析解. 在这一思路指导下, 在非傍轴情况下沿着圆

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2014CB340000)、国家自然科学基金 (批准号: 11690031, 61323001, 61490715, 51403244)、广州市科技计划科学研究一般项目 (批准号: 2018) 和中山大学高校基本科研业务费青年教师重点培育项目 (批准号: 17lgzd06, 16lgjc16, 15lgpy04, 15lgzs095, 15lgjc25) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: chenyj69@mail.sysu.edu.cn

© 2017 中国物理学会 Chinese Physical Society

形、椭圆形和抛物线轨迹传播的半贝塞尔光束[23]、马修光束和韦伯光束[24]以及在三维空间中沿着球体、椭球体传播的亥姆霍兹型光束[25]相继被发现. 然而要想继续寻找到沿着其他轨迹传播的自加速光束则变得愈加困难. 相比之下, 另一个更为有效的解决思路则是基于光学焦散线的方法. 这种方法是将设计的光束传播轨迹与光学焦散线[26,27](即光线簇形成的包络)联系起来, 它最早是由Greenfield等[28]提出, 在傍轴近似下可以构造出沿着任意二维凸轨迹传播的自加速光束. 随后不久, Froehly等[29]将这一方法拓展到非傍轴情况下, 从而可以实现大角度的弯曲传播, 但还是仅限于二维凸轨迹的情况. 在此之后, 基于焦散线方法设计的自加速光束类型不断得到拓展, 包括从凸轨迹拓展到非凸轨迹[30]、从二维轨迹拓展到三维轨迹[30,31]、从单一主瓣拓展到多个主瓣[32]等. 本文对基于焦散线方法设计自加速光束的理念及实现进行讨论.

2 基于焦散线的自加速光束设计原理

2.1 傅里叶空间设计自加速光束

在自由空间中, 对于线偏振光, 光场的传播满足亥姆霍兹方程, 其通解可以表示为沿不同方向传播的平面波叠加的角谱衍射积分形式:

$$\begin{aligned} &E(X,Y,Z)\\ &=\frac{1}{(2\pi)^2}\iint A(k_x,k_y)\exp\left[\mathrm{i}\left(k_xX+k_yY\right.\right.\\ &\quad\left.\left.+\sqrt{k^2-k_x^2-k_y^2}Z\right)\right]\mathrm{d}k_x\mathrm{d}k_y, \end{aligned}\tag{1}$$

其中 $A(k_x,k_y)\equiv P(k_x,k_y)\exp[\mathrm{i}\cdot\Phi(k_x,k_y)]$ 是初始场分布的空间频谱, 光场的传播完全由这一傅里叶空间的角谱决定. 为了简化起见, 下面主要讨论二维情况, 即光场不随 Y 方向变化的情况(三维情况的讨论将在3.3节中给出), 此时角谱衍射积分可以简化为

$$\begin{aligned} E(X,Z)&=\frac{1}{2\pi}\int P(k_x)\exp\left[\mathrm{i}\left(k_xX\right.\right.\\ &\quad\left.\left.+\sqrt{k^2-k_x^2}Z+\Phi(k_x)\right)\right]\mathrm{d}k_x\\ &\equiv\frac{1}{2\pi}\int P(k_x)\exp[\mathrm{i}\cdot\Psi(k_x)]\,\mathrm{d}k_x, \end{aligned}\tag{2}$$

其中 $E(X,Z)$ 为二维平面 (X,Z) 的场分布, $P(k_x)$ 和 $\Phi(k_x)$ 为则为初始角谱的振幅和相位分布. 如果相位部分 $\exp[\mathrm{i}\cdot\Psi(k_x)]$ 振荡足够快而振幅 $P(k_x)$ 变化相对比较缓慢, 衍射积分的主要贡献将来源于相位函数的驻相点附近对应相位变化较为缓慢的地方, 而其他点的贡献则由于相位的快速振荡倾向于相互抵消, 即所谓的驻相近似[33](这里称为一阶驻相近似), 其中驻相点对应于相位函数的一阶导为零:

$$\Psi'(k_x)=X-\frac{k_x}{\sqrt{k^2-k_x^2}}Z+\Phi'(k_x)=0.\tag{3}$$

对于固定的空间频率 k_x, 方程(3)是关于空间坐标 X 和 Z 的直线方程, 对应于几何光学里的一根光线, 因而在一阶驻相近似下, 光场可以近似用光线簇进行描述, 如图1(a1)所示. 进一步地, 如果令相位函数的二阶导也为零,

$$\Psi''(k_x)=-\frac{k^2}{(k^2-k_x^2)^{3/2}}Z+\Phi''(k_x)=0\tag{4}$$

将对应二阶驻相近似. 通过联立(3)式和(4)式可以得到空间坐标 X 和 Z 之间的关系, 即确定出二维平面内的一条曲线 $X=f(Z)$, 并且该曲线满足:

$$f'(Z)=\frac{k_x}{\sqrt{k^2-k_x^2}},\tag{5}$$

即曲线上每一点都与光线相切, 表明该曲线实际上是光线簇所成的包络, 如图1(a2)所示. 如果进一步要求 $\Psi'''(k_x)=0$, 则可以确定出空间内的一点 $(X,Z)=(X_f,Z_f)$, 此时所有光线都将经过这一点, 对应于光束聚焦的情况, 如图1(a3)所示. 通过对比可以看到, 图1(a2)实际上是光场没有完全聚焦到一点上, 而是由于散焦聚焦到一条线上的情况, 这样一条曲线称为焦散线. 由于在焦散线上相位函数的一阶导和二阶导均为0, 因此可以保证在焦散线附近的光强具有极大值. 如果将自加速光束的弯曲轨迹与焦散线联系起来, 通过焦散线的设计就能得到光束主瓣沿着不同弯曲轨迹传播的自加速光束, 这就是基于焦散线方法设计自加速光束的基本思路. 从(4)式和(5)式可以看到, 给定自加速光束的弯曲轨迹 $X=f(Z)$, 对应所需的初始角谱的相位函数 $\Phi(k_x)$ 即可得到. 进而通过对入射光束调制上这一相位分布并由透镜做傅里叶变换即可产生出设计的自加速光束.

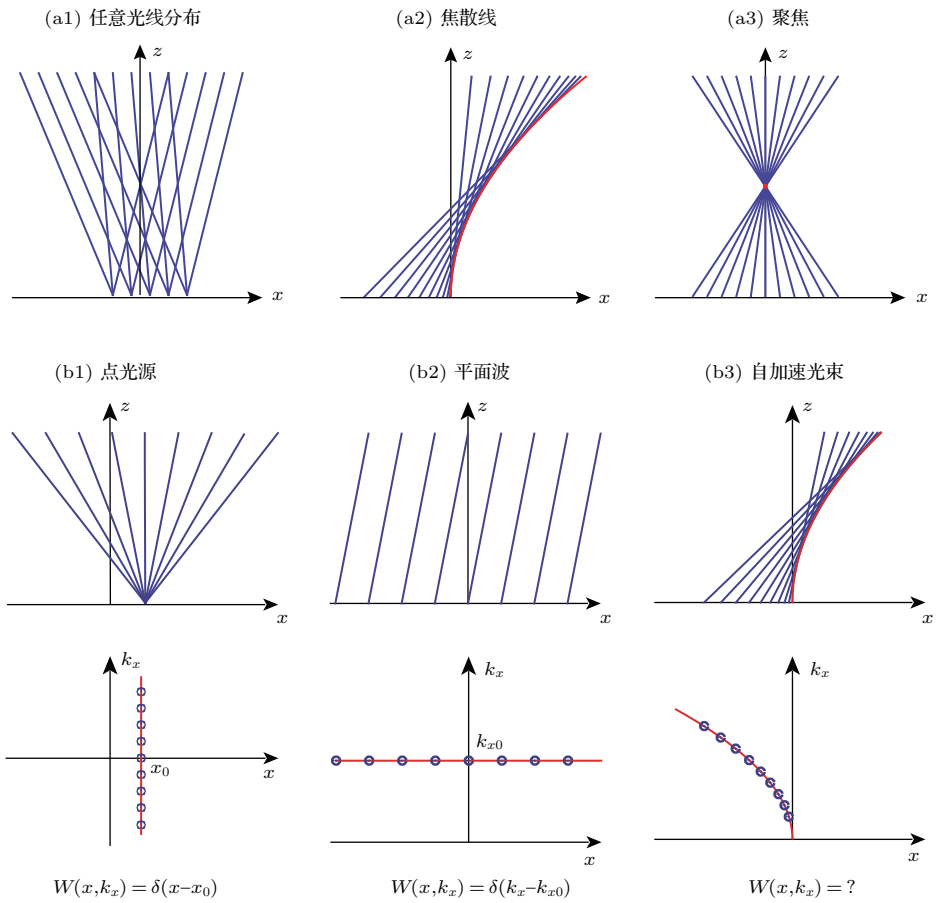


图 1 (a1)—(a3) 空间光场在不同阶驻相近似下的光线描述; (b1)—(b3) 对于点光源、平面波和自加速光束的光线描述和对应相空间的维格纳函数

Fig. 1. (a1)–(a3) Light-ray description of the light field under the stationary phase approximation in different orders; (b1)–(b3) light-ray description and the corresponding form of the WDF in phase space for a point source, a plane wave, and a self-accelerating beam.

2.2 相空间设计自加速光束

以上基于焦散线方法设计自加速光束是从傅里叶空间的角谱衍射积分出发进行分析的, 类似地也可以从实空间的菲涅耳衍射积分出发进行分析[28]. 在傅里叶空间和实空间构造自加速光束原则上是等价的, 但对于实际产生自加速光束则各有优点. 基于傅里叶空间的构造方法是在傅里叶平面对光场进行调制, 然后再经过一个透镜做傅里叶变换产生出自加速光束, 由于产生自加速光束的平面是光场调制平面的远场, 因而实际中调制平面的离散化以及相位调制的细微偏差对光束质量的影响较小, 光束主瓣在传播过程中的强度变化也相对均匀. 而基于实空间的构造方法则是直接在实空间对光场进行调制, 由于调制平面即是自加速光束传播的初始平面, 经过调制平面后直接就产生出自加速光束, 因而光路相对紧凑, 有利于进一步的集成. 而最近的研究发现[31], 这两种在实空间和傅里叶空间设计自加速光束的方法可以统一到在相空间构造维格纳函数的方法中去. 这一方法的设计思路是通过类比点光源和平面波的情况, 根据焦散线确定出构造自加速光束所需的光线簇, 其中每一根光线具有特定的初始坐标 x 和方向 k_x, 对应于相空间内的一点 (x, k_x), 如图 1 (b) 所示, 由此可以构造出相应的维格纳函数:

$$W(x,k_x)=\int_0^{Z_{\max}}\delta(x-F_1(Z))\delta(k_x-F_2(Z))\,\mathrm{d}Z, \quad (6)$$

其中 $Z_{\max}$ 是设计的弯曲传播轨迹的最远距离, $F_1(Z)=f(Z)-Z\cdot f'(Z)$, $F_2(Z)=k\cdot f'(Z)$. 利用维格纳函数的性质即可得到所需的初始场分布 $E(x)=\rho(x)\exp[\mathrm{i}\cdot\varphi(x)]$ 和角谱 $A(k_x)=P(k_x)\exp[\mathrm{i}\cdot\Phi(k_x)]$.

$$\rho^2(x)=\int W(x,k_x)\,\mathrm{d}k_x,$$
$$\varphi'(x)=\frac{\int k_x W(x,k_x)\,\mathrm{d}k_x}{\int W(x,k_x)\,\mathrm{d}k_x}, \tag{7}$$
$$P^2(k_x)=\int W(x,k_x)\,\mathrm{d}x,$$
$$\Phi'(k_x)=\frac{\int xW(x,k_x)\,\mathrm{d}x}{\int W(x,k_x)\,\mathrm{d}x}. \tag{8}$$

3 不同类型的自加速光束设计

3.1 二维情况下沿凸轨迹传播的自加速光束

利用焦散线方法最先实现的是沿着任意凸轨迹传播的自加速光束[28], 其中典型的代表则是沿着幂律轨迹 $X=f(Z)=a_nZ^n$ ($a_n>0, n>0$ 且 $\neq 1$) 传播的情况. 根据前面的理论分析可以推导出其在实空间和傅里叶空间对应的初始场分布也为相应的幂函数:

$$\rho^2(x)=A_n(-x)^{-1+1/n},$$
$$\varphi(x)=B_n(-x)^{2-1/n}, \tag{9}$$
$$P^2(k_x)=C_nk_x^{1-1/(n-1)},$$
$$\Phi(k_x)=D_nk_x^{2+1/(n-1)}, \tag{10}$$

其中 A_n, B_n, C_n, D_n 为特定系数. 图2所示为其中 $n=3$, 2 和 3/2 的三个例子, 虚线对应的是相应幂函数的焦散线. 可以看到, 光束的主瓣是沿着这一设计的轨迹弯曲传播的. 值得注意的是, 在傅里叶空间设计的 $n=2$ 的情况实际上对应的就是艾里光束.

3.2 二维情况下沿非凸轨迹传播的自加速光束

从(5)式可以看到, 只有对于凸轨迹情况, 其一阶导才是单值函数, 与空间频率 k_x 才能一一对应, 从而求解出对应的初始场分布和角谱. 因此, 先前的研究利用这种基于焦散线方法设计自加速光束

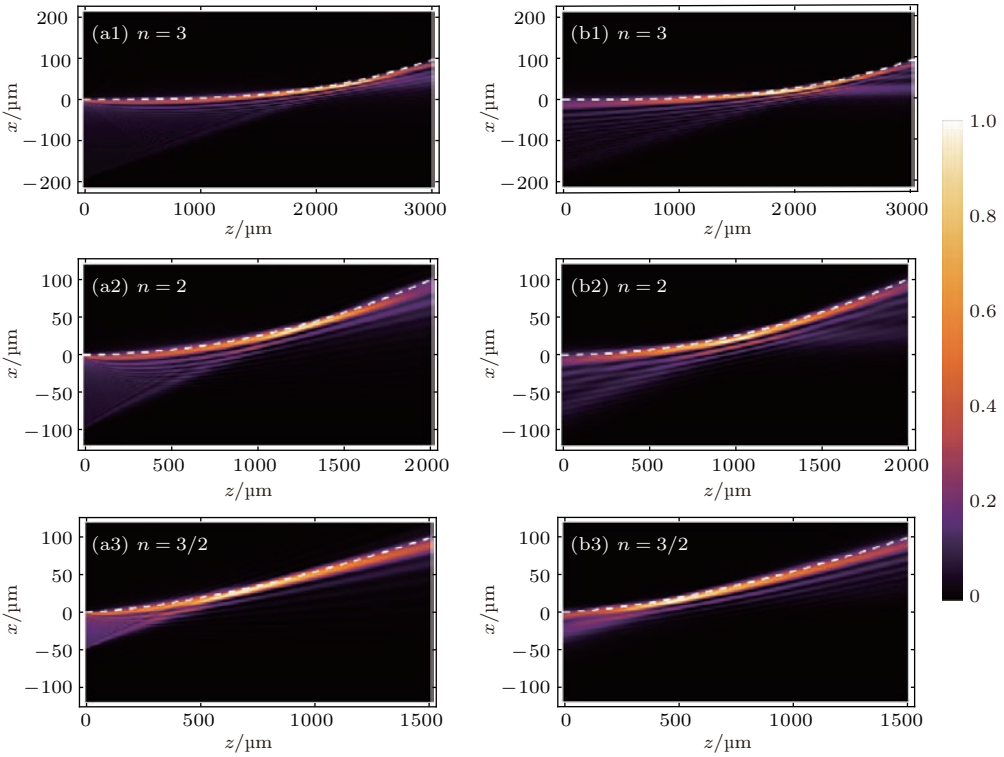


图2 沿着幂律轨迹传播的自加速光束的光强分布图, 其中指数 n 取 3, 2 和 3/2 作为示例, 这里自加速光束分别通过 (a1)—(a3) 实空间的初始场分布和 (b1)—(b3) 傅里叶空间的角谱构造得到, 其中设计的传播轨迹在图中用虚线表示

Fig. 2. Intensity distribution of accelerating beams propagating along power-law trajectories with power n chosen to be 3, 2, and 3/2 for demonstration. Accelerating beams are constructed in (a1)–(a3) real space and (b1)–(b3) Fourier space based on the initial field distribution and the angular spectrum, respectively. The predesigned trajectories are depicted by dashed curves.

仅仅局限于二维凸轨迹的情况, 表现为自加速光束只能朝着一个方向弯曲而不能像“S”型曲线那样多次弯曲, 如图3 (a) 所示. 而我们在最近的研究[30]中提出的叠加焦散线的方法则可以实现这种沿非凸轨迹传播的自加速光束, 其设计的思路是将非凸轨迹在所有拐点处断开成若干段凸轨迹, 每一段凸轨迹可以利用前面的焦散线方法得到对应所需的初始场分布或角谱, 然后把这些初始场分布或角谱叠加起来:

$$A(k_x) = \sum_{j=1}^{n} A_j(k_x) = \sum_{j=1}^{n} P_j(k_x)\exp\left[\mathrm{i}\cdot\Phi_j(k_x)\right], \tag{11}$$

从而实现完整的非凸轨迹传播. 值得注意的是, 在叠加过程中每段凸轨迹之间的连接处存在$\pi/2$的相位差, 原因是在一阶驻相近似后得到的光线在经过焦散线后会有$\pi/2$的相位改变, 进一步的分析详见文献[27]. 基于这种叠加焦散线方法设计的一种沿着正弦轨迹传播的自加速光束的仿真和实验结果对比如图3 (b) 和图3 (c) 所示, 可以看到二者符合得非常好, 光束主瓣沿着预设的正弦轨迹传播. 值得一提的是, 图3中自加速光束的产生是基于集成光子技术通过制备微结构对光场波前调控实现的, 其中相位调制是通过刻蚀不同深度的台阶得到不同的相位延迟; 而振幅调制则是通过蒸镀不同占空比的金属得到不同的透过率, 以此获得设计的初始光场分布. 相比于传统的基于空间光调制器产生自加速光束的方法, 近年来通过光子微纳结构实现精确的光场波前调控进而产生出各类新型光束已成为这一领域的重要发展趋势[34−38], 有望实现新型光束产生器件的小型化.

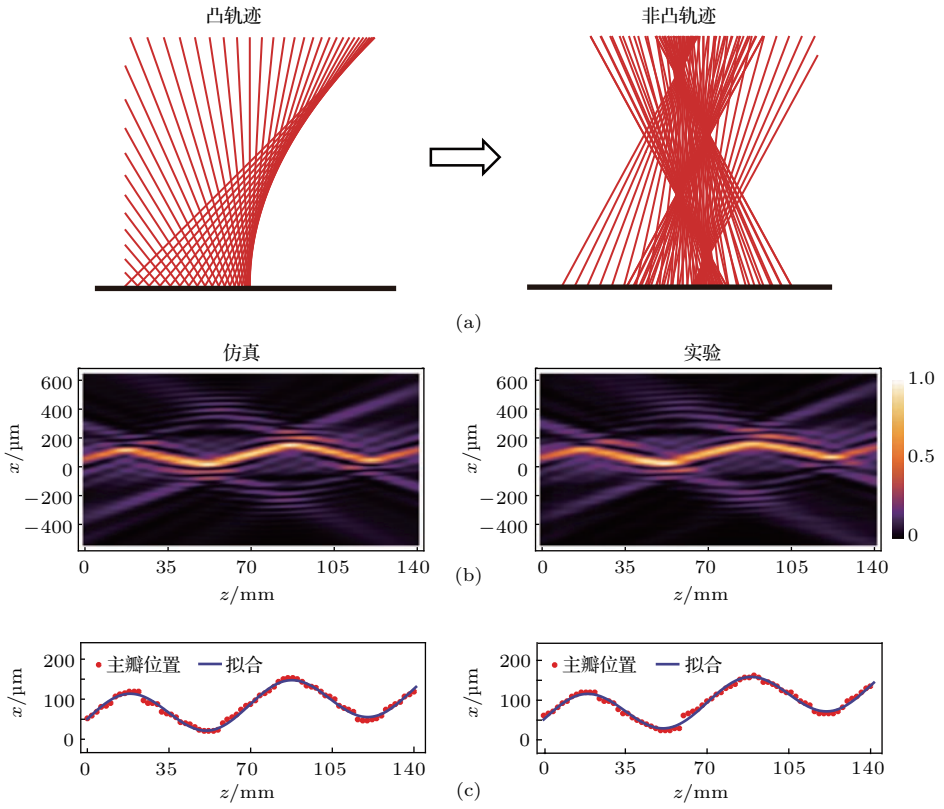
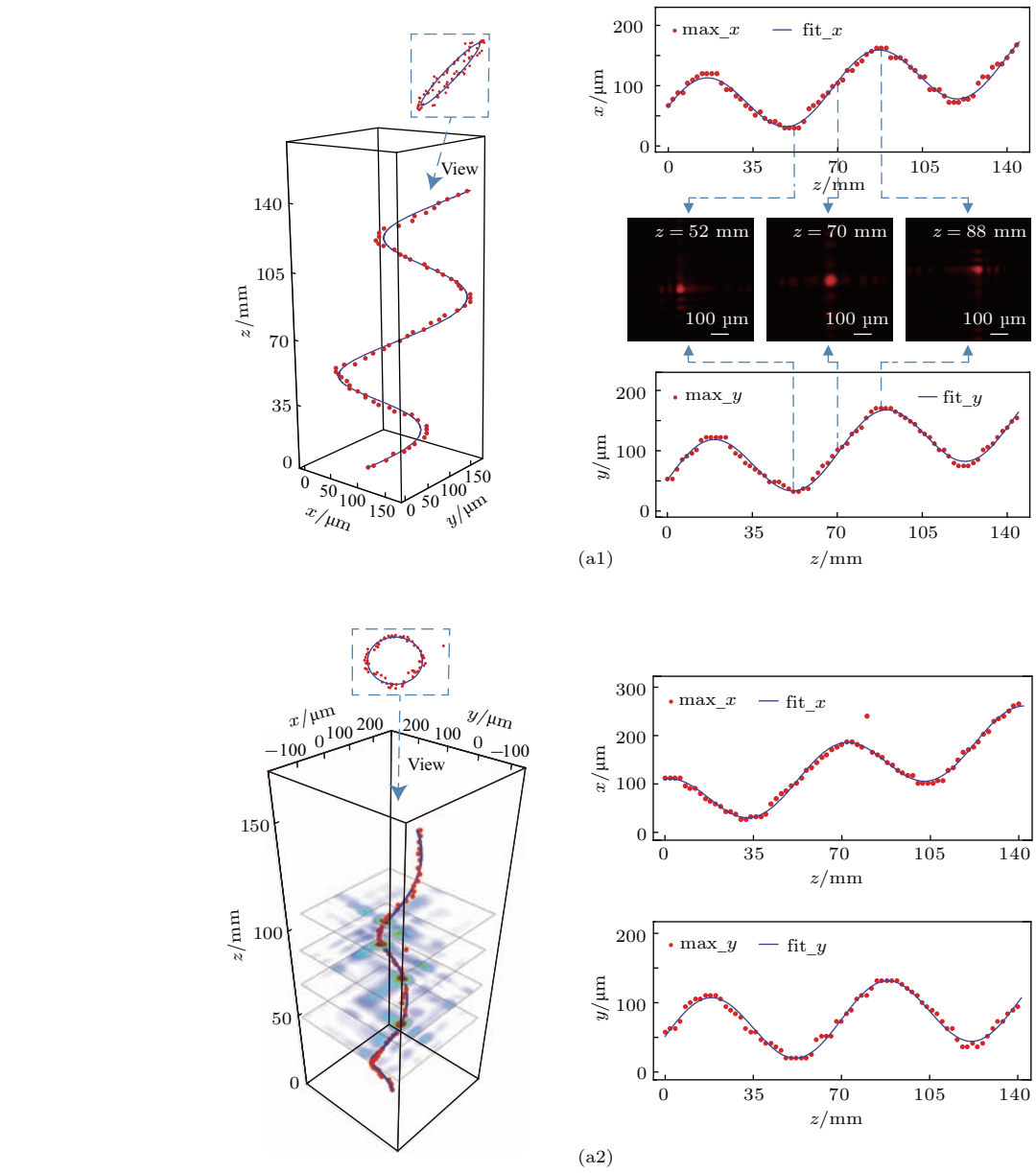


图3 (a) 从凸轨迹传播的自加速光束拓展到非凸轨迹的示意图; (b) 构造的二维情况下的正弦型光束传播过程中的光强分布的仿真和实验结果对比; (c) 光束主瓣传播轨迹的定量分析, 其中红色圆点标记的是各个截面光强最大值所在的位置, 而蓝色曲线则是拟合出来的轨迹. 具体实验及拟合信息详见文献[30]

Fig. 3. (a) Schematic of the extension of accelerating beams from convex trajectories to nonconvex trajectories; (b) simulated and experimental intensity distribution for the sinusoidal beam propagating in 2D space; (c) quantitative analysis of the main lobe trajectory, here red dots mark the positions of the intensity maxima at the cross sections and the blue curves are the fitted trajectories. Detailed information can be referred to Ref. [30].



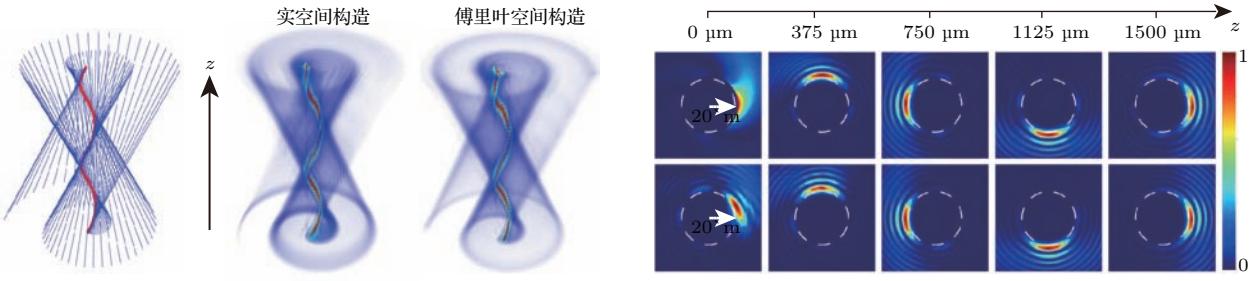


图 4 三维空间中的自加速光束设计[30,31] 基于二维情况下的 Sine 型光束合成三维空间中的 (a1) Sine 型光束和 (a2) 螺旋型光束; 直接通过三维焦散线方法设计螺旋型光束, 其中 (b1) 是光线表示, (b2) 和 (b3) 则是螺旋型光束在传播过程中的三维光场重构图和切片的光强分布图

Fig. 4. Design of accelerating beams in three-dimensional (3D) space[30,31]: Construction of the Sine beam (a1) and helical beam in 3D space based on the 2D Sine beam (a2); design of helical beams with 3D caustic methods, where (b1) is the light ray representation, while (b2) and (b3) are the 3D tomography and slices of the helical beams during propagation, respectively.

3.3 三维情况下的自加速光束

以上讨论的是二维情况下的自加速光束, 即光场分布在Y方向上保持不变, 实际上, 自加速光束的设计可以从二维情况推广到三维情况. 其中一种方法是利用在傍轴近似下的波动方程关于X和Y可分离变量这一性质, 将三维情况下的自加速光束设计分解为X和Y两个方向上独立的二维自加速光束设计[30]. 以图3设计的二维情况下的正弦型自加速光束为例, 如果将三维情况下的X和Y方向都设计成正弦型传播轨迹, 最终在三维空间中则表现为沿着X轴和Y轴的对角线方向的正弦型轨迹传播, 如图4 (a1)所示; 如果将X方向设计为正弦型轨迹, Y方向设计为余弦型轨迹, 最终在三维空间中则是沿着螺旋型轨迹传播, 如图4 (a2)所示. 因而X和Y两个方向通过组合不同的二维自加速光束就可以构造出沿着三维不同轨迹传播的自加速光束.

另一种方法是直接设计三维的焦散线[31,32], 考虑一般三维曲线的参数方程:

$$X = f\left(t + t_0\right), \quad Y = g\left(t + t_0\right), \quad Z = at, \tag{12}$$

其中t为参数, t_0和a为待定参数, 通过分析构造该焦散线所需的光线簇, 可以构造出相应的维格纳函数:

$$\begin{aligned} &W(x, y, k_x, k_y) \\ &= \int_0^{t_{\max}} \delta\left[x - F_1(t, t_0), y - G_1(t, t_0)\right] \\ &\quad \times \delta[k_x - F_2(t, t_0), k_y - G_2(t, t_0)]\,\mathrm{d}t, \end{aligned} \tag{13}$$

其中

$$\begin{aligned} F_1\left(t, t_0\right) &= f\left(t + t_0\right) - t \cdot f'\left(t + t_0\right), \\ G_1\left(t, t_0\right) &= g\left(t + t_0\right) - t \cdot g'\left(t + t_0\right), \\ F_2\left(t, t_0\right) &= ka^{-1} f'\left(t + t_0\right), \\ F_2\left(t, t_0\right) &= ka^{-1} g'\left(t + t_0\right), \end{aligned}$$

然后利用维格纳函数的性质就能得到对应所需的初始场分布和角谱. 基于这种方法设计的螺旋型光束如图4 (b)所示. 值得一提的是, 对于三维自加速光束的设计, 除了基于焦散线的设计方法, 还有一种基于类贝塞尔光束的设计思路, 即将初始场平面分割成足够细的圆周, 不同圆周上发出的锥形光线会聚到空间中的不同点[3,39,40]. 对于贝塞尔光束这些会聚点连成一条直线, 因而表现为光束主瓣沿直线传播; 而对于类贝塞尔光束则是通过将不同圆周错开, 从而得到一条弯曲的聚焦线, 表现出光束主瓣沿着弯曲轨迹传播. 基于这一方案最早得到的是零阶类贝塞尔螺旋光束[39], 在局部保持贝塞尔光束的无衍射性和自修复性下实现了主瓣沿着螺旋轨迹传播. 值得注意的是, 这一方案还可以进一步将光束的轨道角动量加载上去, 实现贝塞尔光束、自加速光束和涡旋光束的结合[3].

3.4 多个主瓣的自加速光束

上述所讨论的自加速光束设计思路中, 都是只有一个能量最为集中的主瓣, 而实际上主瓣的数目也是一个可供设计的自由度, 可以从常见的一个拓展至其他所需的个数, 这在一些特定的应用场景比如在光学微粒操控中同时操控不同大小或数量的微粒将非常有用. 多主瓣自加速光束的设计可以在单主瓣自加速光束的基础上通过空间上的平移旋转等变换形成若干相互错开的焦散线来实现, 图5所示的则是在前面单主瓣螺旋光束的基础上通过这一方法设计出不同主瓣个数的情况[32]. 由于图5展示的是在弯曲传播的2个周期中沿着传播方向等间距地截取9个截面来反映螺旋光束的传播情况, 因而可以看到相邻截面之间螺旋光束主瓣逆时针旋转90°, 体现出多主瓣螺旋光束依然保持着很好的螺旋结构, 不仅如此, 从图5 (d)还可以更直观地看到, 不同截面的光束主瓣在弯曲传播的同时还保持着高度的相似性, 反映出光场主瓣附近具有局部的无衍射特性.

4 结 论

本文介绍了基于焦散线方法设计自加速光束的基本原理, 包括从傅里叶空间和实空间的衍射积分出发进行分析以及统一到相空间构造维格纳函数的方法. 在此基础上, 二维情况下沿任意凸轨迹传播的自加速光束首先得以实现, 随后通过不断发展这一焦散线方法, 设计得到的自加速光束类型得以不断拓展, 包括从凸轨迹拓展到非凸轨迹, 从二维轨迹拓展到三维轨迹, 从单一主瓣拓展到多个主瓣, 为基于自加速光束的各种新应用提供了更多的可能. 展望未来, 最初基于艾里光束的各种研究和应用必将推广到各类新型自加速光束中, 借助自加速光束设计的灵活性, 在这个过程中极有可能激发出更多新的应用场景, 因而具有极大的发展潜力.

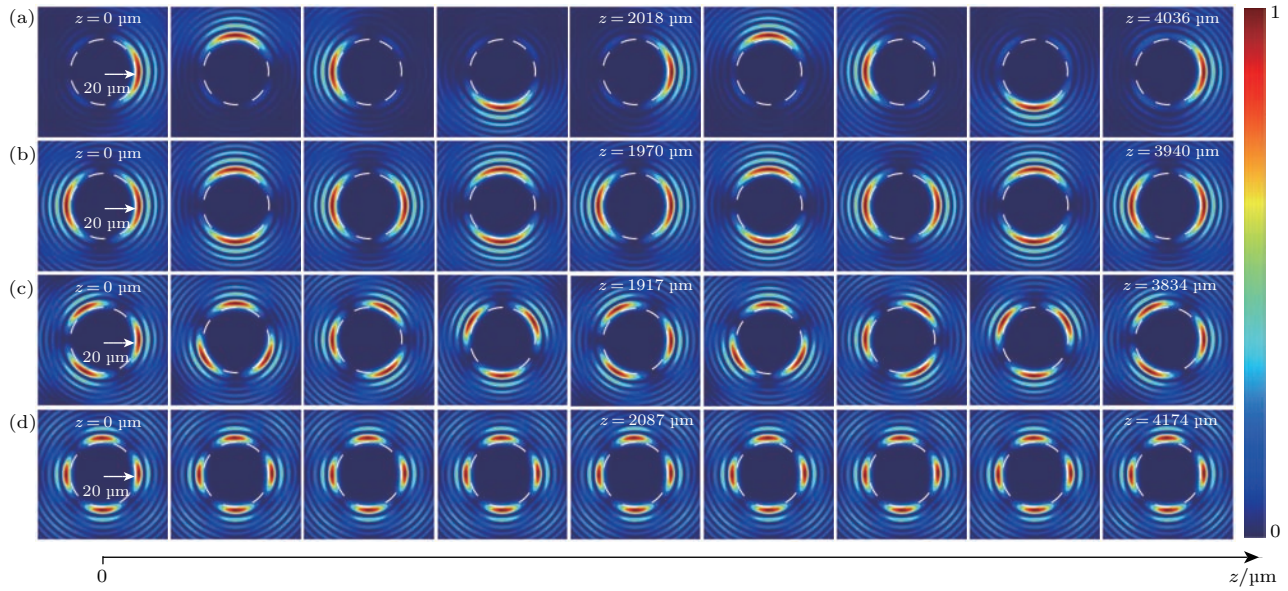


图 5 具有不同主瓣个数的螺旋型光束的传播动力学特征 [32] 图中所示的螺旋型光束包括: (a) 1 个主瓣, (b) 2 个主瓣, (c) 3 个主瓣, (d) 4 个主瓣; 螺旋型传播的周期分别为 2018, 1970, 1917, 2087 μm

Fig. 5. Propagation dynamics of helical beams with different numbers of main lobes[32]. The helical beams presented include (a) one-lobe, (b) two-lobe, (c) three-lobe, and (d) four-lobe with slightly different periods of 2018, 1970, 1917, and 2087 μm, respectively.

参考文献

[1] Siviloglou G A, Broky J, Dogariu A, Christodoulides D N 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 213901

[2] Baumgartl J, Mazilu M, Dholakia K 2008 *Nat. Photon.* **2** 675

[3] Zhao J, Chremmos I D, Song D, Christodoulides D N, Efremidis N K, Chen Z 2015 *Sci. Rep.* **5** 12086

[4] Polynkin P, Kolesik M, Moloney J V, Siviloglou G A, Christodoulides D N 2009 *Science* **324** 229

[5] Chong A, Renninger W H, Christodoulides D N, Wise F W 2010 *Nat. Photon.* **4** 103

[6] Abdollahpour D, Suntsov S, Papazoglou D G, Tzortzakis S 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 253901

[7] Mathis A, Courvoisier F, Froehly L, Furfaro L, Jacquot M, Lacourt P A, Dudley J M 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 071110

[8] Rose P, Diebel F, Boguslawski M, Denz C 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 101101

[9] Jia S, Vaughan J C, Zhuang X 2014 *Nat. Photon.* **8** 302

[10] Vettenburg T, Dalgarno H I C, Nylk J, Coll-Lladó C, Ferrier D E K, Čižár T, Gunn-Moore F J, Dholakia K 2014 *Nat. Method* **11** 541

[11] Clerici M, Hu Y, Lassonde P, Milián C, Couairon A, Christodoulides D N, Chen Z, Razzari L, Vidal F, Légaré F, Faccio D, Morandotti R 2015 *Sci. Adv.* **1** e1400111

[12] Minovich A, Klein A E, Janunts N, Pertsch T, Neshev D N, Kivshar Y S 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 116802

[13] Li L, Li T, Wang S M, Zhang C, Zhu S N 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 126804

[14] Zhang P, Wang S, Liu Y, Yin X, Lu C, Chen Z, Zhang X 2011 *Opt. Lett.* **36** 3191

[15] Epstein I, Arie A 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 023903

[16] Voloch-Bloch N, Lereah Y, Lilach Y, Gover A, Arie A 2013 *Nature* **494** 331

[17] Efremidis N K, Paltoglou V, von Klizing W 2013 *Phys. Rev. A* **87** 043637

[18] Zhang P, Li T, Zhu J, Zhu X, Yang S, Wang Y, Yin X, Zhang, X 2014 *Nat. Commun.* **5** 4316

[19] Zhao S, Hu Y, Lu J, Qiu X, Cheng J, Burnett I 2014 *Sci. Rep.* **4** 6628

[20] Fu S, Tsur Y, Zhou J, Shemer L, Arie A 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 034501

[21] Chen Z G, Xu J J, Hu Y, Song D H, Zhang Z, Zhao J Y, Liang Y 2016 *Acta Opt. Sin.* **36** 1026009 (in Chinese) [陈志刚, 许京军, 胡毅, 宋道红, 张泽, 赵娟莹, 梁毅 2016 光学学报 **36** 1026009]

[22] Wen W, Cai Y J 2017 *Laser Optoelectr. Prog.* **54** 020002 (in Chinese) [文伟, 蔡阳健 2017 激光与光电子学进展 **54** 020002]

[23] Kaminer I, Bekenstein R, Nemirovsky J, Segev M 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 163901

[24] Zhang P, Hu Y, Li T, Cannan D, Yin X, Morandotti R, Chen Z, Zhang X 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 193901

[25] Aleahmad P, Miri M, Mills M S, Kaminer I, Segev M, Christodoulides D N 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 203902

[26] Kravtsov Y A, Orlov Y I 1983 *Sov. Phys. Usp.* **26** 1038

[27] Vaveliuk P, Lencina A, Rodrigo J A, Matos O M 2015 *Phys. Rev. A* **92** 033850

[28] Greenfield E, Segev M, Walasik W, Raz O 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 213902

[29] Froehly L, Courvoisier F, Mathis A, Jacquot M, Furfaro L, Giust R, Lacourt P A, Dudley J M 2011 *Opt. Express* **19** 16455

[30] Wen Y, Chen Y, Zhang Y, Chen H, Yu S 2016 *Phys. Rev. A* **94** 013829

[31] Wen Y, Chen Y, Zhang Y, Chen H, Yu S 2017 *Phys. Rev. A* **95** 023825

[32] Wen Y, Chen Y, Zhang Y, Yu S 2017 *Chin. Opt. Lett.* **15** 030011

[33] Wong R 2001 *Asymptotic Approximations of Integrals*. (Society for Industrial and Applied Mathematics) p76

[34] Li Z, Cheng H, Liu Z, Chen S, Tan J 2016 *Adv. Opt. Mater.* **4** 1230

[35] Pu M, Li X, Ma X, Wang Y, Zhao Z, Wang C, Hu C, Gao P, Huang C, Ren H, Li X, Qin F, Yang J, Gu M, Hong M, Luo X 2015 *Sci. Adv.* **1** e1500396

[36] Li X, Pu M, Zhao Z, Ma X, Jin J, Wang Y, Gao P, Luo X 2016 *Sci. Rep.* **6** 20524

[37] Lin J, Wang Q, Yuan G, Du L, Kou S S, Yuan X C 2015 *Sci. Rep.* **5** 10529

[38] Dolev I, Epstein I, Arie A 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 203903

[39] Jarutis V, Matijošius A, Trapani P D, Piskarskas A 2009 *Opt. Lett.* **34** 2129

[40] Zhao J, Zhang P, Deng D, Liu J, Gao Y, Chremmos I D, Efremidis N K, Christodoulides D N, Chen Z 2013 *Opt. Lett.* **38** 498

SPECIAL ISSUE—Diffraction limit of electromagnetic waves

Design of accelerating beams based on caustic method*

Wen Yuan-Hui[1)] Chen Yu-Jie[1)†] Yu Si-Yuan[1)2)]

1) (*State Key Laboratory of Optoelectronic Materials and Technologies, School of Electronics and Information Technology, Sun Yat-sen University, Guangzhou 510275, China*)

2) (*Photonics Group, Merchant Venturers School of Engineering, University of Bristol, Bristol BS8 1UB, United Kingdom*)

(Received 16 June 2017; revised manuscript received 17 July 2017)

Abstract

Self-accelerating beam is a kind of light beam capable of self-bending in free space without any external potential, of which a typical one is the well-known Airy beam. Such a beam has gained great attention for its extraordinary properties, including nondiffracting, self-accelerating and self-healing, which may have versatile applications in the delivery and guiding of energy, information and objects using light, such as particle manipulation, micro-machining, optical routing, super-resolution imaging, etc. However, since Airy beam can only propagate along parabolic trajectory, which reduces the flexibility in practical applications, thus how to design accelerating beam's propagating along arbitrary trajectory is still a crucial problem in this area. One scheme is to keep on finding other analytical solutions of the wave equation besides Airy beam, such as semi-Bessel accelerating beams, Mathius beams, and Weber beams, moving along circular, elliptical, or parabolic trajectories, but it becomes increasingly difficult to find out any more solutions. A more effective solution to this problem is based on the caustic method, which associates the predesigned trajectory with an optical caustics and then obtains the necessary initial field distribution by performing a light-ray analysis of the caustics. This method has been implemented in real space and Fourier space based on Fresnel diffraction integral and angular-spectrum integral, respectively. It has been found recently that they can be unified by constructing Wigner distribution function in phase space. Based on the caustic method, accelerating beams were constructed to propagate along arbitrary convex trajectories in two-dimensional space at first. With continuous development of this method, the types of accelerating beams available have been extending from convex trajectories to nonconvex trajectories, from two-dimensional trajectories to three-dimensional trajectories, and from one main lobe to multiple main lobes, which opens up more possibilities for emerging applications based on accelerating beams. In future, previous researches and applications based on Airy beams will certainly be generalized to all these new types of accelerating beams, and owing to the great flexibility in designing accelerating beams, more application scenarios may emerge in this process with huge development potential. Thus in this paper, we review the principle and progress of the caustic method in designing accelerating beams.

Keywords: physical optics, self-accelerating beams, caustic, Wigner distribution function

PACS: 42.15.Dp, 42.68.Ay, 42.30.Lr, 42.30.Kq **DOI:** 10.7498/aps.66.144210

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2014CB340000), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11690031, 61323001, 61490715, 51403244), the Science and Technology Program of Guangzhou, China (Grant No. 2018), and Sun Yat-sen University Fundamental Research Funds for the Central Universities of China (Grant Nos. 17lgzd06, 16lgjc16, 15lgpy04, 15lgzs095, 15lgjc25).

† Corresponding author. E-mail: chenyj69@mail.sysu.edu.cn

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

超构天线: 原理、器件与应用

马晓亮 李雄 郭迎辉 赵泽宇 罗先刚

Meta-antenna: principle, device and application

Ma Xiao-Liang Li Xiong Guo Ying-Hui Zhao Ze-Yu Luo Xian-Gang

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 147802 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.147802
在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.147802
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I14

您可能感兴趣的其他文章
Articles you may be interested in

复合结构螺旋超材料对光波前的高效调控
High-efficiency wavefront control with based on helical metamaterials
物理学报.2016, 65(21): 217802 http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.217802

宽入射角度偏振不敏感高效异常反射梯度超表面
Polarization-insensitive and broad-angle gradient metasurface with high-efficiency anomalous reflection
物理学报.2015, 64(23): 237802 http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.237802

工字形太赫兹超材料吸波体的传感特性研究
Study on sensing characteristics of I-shaped terahertz metamaterial absorber
物理学报.2015, 64(11): 117801 http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.117801

用最小结构单元频率选择表面实现大入射角宽频带的透波材料
Wideband and large incident angle wave transparent material based on frequency selective surface with miniaturized elements
物理学报.2014, 63(13): 137803 http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.137803

基于加权实数编码遗传算法的超材料优化设计
Optimization of metamaterial based weighted real-coded genetic algorithm
物理学报.2014, 63(8): 087804 http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.087804

专题: 电磁波衍射极限

超构天线: 原理、器件与应用*

马晓亮 李雄 郭迎辉 赵泽宇 罗先刚†

(中国科学院光电技术研究所, 微细加工光学技术国家重点实验室, 成都 610209)

(2017 年 4 月 17 日收到; 2017 年 5 月 14 日收到修改稿)

自从电磁波被发现和应用以来, 利用各种材料或者结构调节电磁波的辐射行为、构造高性能的电磁辐射器件一直是研究人员的追求目标. 经过百余年的发展, 电磁辐射器件的方向性提高、带宽拓展等技术逐渐达到瓶颈. 受自然材料电磁特性的限制, 微带天线、喇叭天线等传统电磁辐射器件存在体积重量大、工作带宽窄、无法快速动态调控等缺陷, 难以满足日益发展的通信技术的需求. 近年来出现的亚波长结构可在深度亚波长尺度下调控电磁波的传输行为, 出现了多种奇异的电磁现象, 完善了传统的电磁学理论, 在一定程度上突破了传统材料电磁特性的限制, 形成全新的电磁辐射技术, 有效解决了传统天线存在的口径大、厚度高、带宽窄等难题, 促进了电磁学、光子学、材料学等领域的发展. 这种基于超构材料的新型天线可以被称为超构天线, 具有高方向性、低副瓣、超宽带、可重构等传统天线难以实现的功能. 本文主要回顾了近年来基于亚波长超构材料的超构天线技术的发展现状和取得的成果, 介绍了超构材料在亚波长尺度下对电磁波振幅、相位、偏振态等的衍射调控机理, 以及在此基础上形成的新型辐射器件, 例如相控阵天线、高方向性天线、低雷达散射截面天线, 基于亚波长结构的多种偏振调控器件及其在天线中的应用等. 在衍射极限尺度下, 这种亚波长结构的调控行为可有效提升电磁辐射器件的方向性、带宽, 并可重构天线的工作频率、偏振态等性能.

关键词: 亚波长结构, 超构材料, 超构天线, 衍射调控

PACS: 78.67.Pt, 43.35.Bf, 52.40.Fd, 42.25.Bs **DOI:** 10.7498/aps.66.147802

1 引 言

1886 年, 赫兹在德国卡尔斯鲁厄工学院建立了世界上第一套实验室中的天线系统, 验证了电磁波用于无线传输的可能, 为信息传递方式的改变提供了理论和技术基础. 20 世纪初, 古利莫·马可尼成功地将天线从实验原型样机应用于商业通信, 使人类社会正式进入无线通信时代. 经过一个世纪的发展, 无线通信技术已经成为人们日常生活必不可少的组成部分, 使人们探索世界的脚步越走越远, 也为人类探索宇宙深处提供了基本保证. 作为无线通信技术的核心, 天线等辐射器件的性能成为决定无线通信能力的关键因素之一. 经过百余年的发展, 人们设计和制造了多种不同结构和功能的天线, 包括偶极子天线、微带天线、喇叭天线、螺旋线天线等; 天线的功能和工作频段也在不断拓展, 微波天线、太赫兹天线甚至光学天线都已经得到广泛应用.

随着现代通信技术、雷达探测技术等对定向通信、保密通信等的需求不断增加, 高方向性天线、波束扫描天线以及多频段、多偏振态天线等具有特殊功能的天线正在成为基础研究和工程应用的热点. 传统技术手段中, 天线方向性的提高依赖于天线口径的增大, 因此应用于雷达探测、远距离通信的天线体积和重量庞大, 不利于在空基、天基等系统中的应用. 近些年发展起来的相控阵天线技术, 通过在天线阵列单元中加载传输/接收(T/R)组件, 实现对天线辐射波束扫描和波束赋形. 然而 T/R 组件的体积和重量也较大, 成本较高. 受制于传统电磁学理论和自然界材料电磁特性的限制, 往往不得

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2013CBA01700) 和国家自然科学基金 (批准号: 61405201, 61675208) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: lxg@ioe.ac.cn

© 2017 中国物理学会 Chinese Physical Society

不接受这种以牺牲体积和重量的方式获得天线方向性的提升以及波束扫描等能力; 而从硬件上来说, 传统技术手段难以实现工作频率、辐射偏振态等可动态调控的天线. 另外, 传统技术手段中, 对天线等辐射器件的隐身大多通过频率选择表面天线罩以及机械控制天线非工作状态时的转向等方式, 以降低辐射器件被雷达探测的概率, 但是这种方法难以兼顾天线正常工作状态下的隐身. 这也是辐射技术和隐身技术存在的难以解决的矛盾.

随着对电磁波衍射行为的深入研究, 人们发现在衍射极限尺寸下的深度亚波长结构中存在一些异常的衍射现象. 1998年, 法国Louis Pasteur大学的Ebbesen等[1]发现, 电磁波通过由直径小于波长的小孔组成的阵列结构时, 其透射率明显高于传统基尔霍夫衍射理论得到的衍射场强度, 并将该现象称为异常透射现象(extraordinary optical transmission, EOT). 通过对其物理本源的分析, 发现在光波照射下, 金属和介质的交界面处产生表面等离子体, 且表面等离子体在沿金属-介质界面传播以及二次辐射的过程中发生衍射, 衍射波在远场发生干涉, 形成了异常电磁透射现象. 在传统理论中, 电磁波在通过亚波长小孔后, 将发生全方向的衍射. 而通过在亚波长小孔周围设计一系列周期性的沟槽结构, 可大大压缩透射波的波束角度, 实现异常的定向辐射[2]. 研究结果表明, 沟槽结构对表面波的衍射调控在这种异常定向辐射现象中起到了决定性的作用. 基于亚波长结构衍射调控性能的电磁辐射技术, 为逼近甚至突破传统电磁辐射器件的方向性与口径之间的依赖关系提供了新的技术途径.

上述具有代表性的异常衍射现象, 证明了亚波长结构中存在某些特定的物理机理, 可以使电磁波在通过亚波长金属结构后, 表现出自然界的材料或者结构难以实现的调控作用, 为利用亚波长结构构造高效电磁辐射器件创造了可能性. 在上述亚波长结构现象和理论指导下, 研究人员提出了多种基于亚波长结构的新型电磁辐射理论, 并构造出一系列高性能电磁辐射器件, 包括宽带天线、小型化天线、超宽带偏振调控天线、可重构电磁辐射器件, 以及纳米尺寸的激光器等, 促进了电磁辐射技术的快速发展. 基于亚波长超构材料的新型天线具有传统天线器件难以实现的电磁功能, 因此也被称为超构天线(meta-antenna)[3,4].

本文对近年来发展迅速的亚波长结构辐射技术进行综述, 主要从以下几方面介绍了亚波长结构对电磁辐射性能的调控: 1) 亚波长超构材料及其在高方向性和低雷达散射截面(radar scatting sections, RCS)天线中的应用; 2) 相位调制型亚波长超构材料及相控阵天线技术; 3) 亚波长结构偏振调控技术及其在天线中的应用. 综述内容包括亚波长结构对电磁波的调控机理、调控方法和应用等方面, 并对亚波长结构的电磁辐射技术的发展趋势做了分析和展望.

2 基于超构材料的高性能天线辐射调控技术

相比于自然界存在的材料, 超构材料具有更加优异的电磁调控能力, 在电磁波的振幅、相位调控方面具有前所未有的灵活性, 并且其色散特性可人为设计, 为构造具有高方向性、低副瓣、宽频带等特性的高性能天线提供了技术基础. 本节主要介绍亚波长结构在提高天线的方向性、降低天线的RCS水平等方面的应用.

2.1 基于亚波长结构的高方向性天线

天线的方向性系数是表征天线定向辐射能力的一个重要指标, 是指天线在某一方向上辐射的能量与全向天线在该方向上的辐射能量的比值. 方向性越高, 说明在相同的辐射功率条件下, 天线信号的传输距离越远, 因此提高天线的方向性是天线领域研究人员的一个重要目标. 传统技术中, 天线方向性的提升主要通过增加天线的口径来实现, 进而导致天线的体积和重量相应增加, 不利于天线系统的集成化.

亚波长超构材料的出现为提高天线的方向性提供了全新的技术途径. 主要的技术方案包括在天线上加载光子晶体(photonic crystal)[5−9]、零折射率材料[10−13], 以及构造法布里-珀罗共振腔等方式. 光子晶体是指由介电常数呈周期性分布的电介质组成的人工结构材料, 根据组成光子晶体的介质材料的排布方式, 可分为一维、二维和三维光子晶体. 图1(a)为二维光子晶体结构示意图, 其由周期性排布的介质棒组成, 在该结构中引入缺陷态, 可产生与自然界晶体的电子能带类似的光学带隙

(photonic band-gap) (图 1 (b)). 入射的电磁波将被局域在该缺陷态中传播, 从而实现对电磁波传播方向的定向调控. 通过人为设计光子晶体的介电常数分布, 构造所需频段的光子带隙, 可使处于带隙中的电磁波沿着人为设定的方向传播. 将这种光子晶体引入到传统天线设计中, 可以有效压缩天线的辐射方向角, 达到控制电磁辐射、构造高方向性天线的目的. 在图 1 (a) 所示的光子晶体中嵌入单极子天线, 光子晶体可将传统天线辐射的全向电磁波转换为沿单一方向辐射的定向电磁波, 天线的辐射方向图见图 1 (c) [6]. 天线的 E 面和 H 面的半功率波束宽度都为 13°, 计算得到天线的方向性系数由 1.6 dB 增加到 23.9 dB.

加载一维光子晶体作为覆层的新型贴片天线结构如图 1 (d) 所示 [7]. 图 1 (e) 和图 1 (f) 分别为加载光子晶体覆层之前和之后的天线辐射方向图. 从图中可以看出, 加载光子晶体覆层结构后, 贴片天线的 E 面和 H 面的辐射波束与未加光子晶体覆层时相比得到了明显的压缩; 天线的方向性系数由 8 dB 提高到 20 dB.

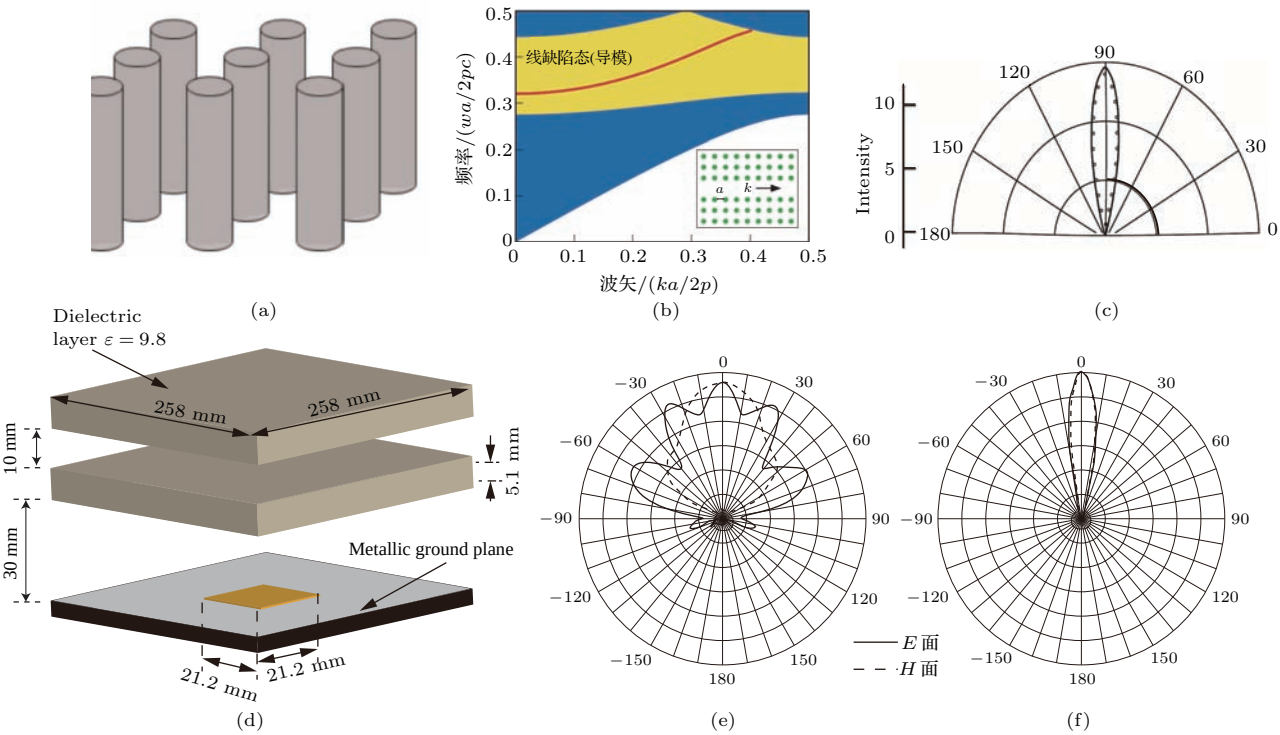


图 1 基于光子晶体的高方向性天线 (a) 典型的二维光子晶体结构示意图; (b) 光子晶体能带结构示意图; (c) 嵌入三维光子晶体的单极子天线辐射方向图 [6]; (d) 加载光子晶体覆层的贴片天线; (e), (f) 分别为未加载和加载光子晶体覆层时天线 E 面和 H 面的方向图 [7].

Fig. 1. High directivity antennas based on photonic crystals: (a) Scheme of the two-dimensional photonic crystal; (b) photonic band-gap of 2-D photonic crystal; (c) radiation pattern of monopole antenna inserted in 3-D photonic crystal [6]; (d) patch antenna with photonic crystal clad; (e), (f) are the radiation patterns of the patch without and with photonic crystal clad [7].

除了光子晶体之外, 具有近零折射率的亚波长超构材料也可用于构造高方向性天线. 根据斯涅耳定律可知, 当材料的折射率为零时, 对于任意的入射角, 折射角都等于零, 如图 2 (a) 所示. 然而自然界中折射率为零的材料是不存在的, 利用超构材料对电磁波的调控特性, 可以构造具有任意等效折射率的人工电磁媒质. Pendry 等提出合理利用电谐振结构 [14] 和磁谐振结构 [15], 可以构造出具有负折射率特性的超构材料. 利用相似的原理, 可以构造折射率等于零或者接近零的超构材料.

在天线辐射面上覆盖零折射率材料后, 天线的辐射场将沿着材料的法线方向传播, 从而提高天线的方向性. 例如, 将传统的单极子天线嵌入具有零折射率的多层超构材料中, 如图 2 (b) 所示, 单极子天线的全向辐射特性会被零折射率材料调制为定向辐射. 加载零折射率材料后, 天线的 E

面和 H 面的半功率波束宽度分别为8.9°和18.3°, 方向性系数由原来单极子天线的1.64 dB增加到25.7 dB[16], 如图2(c)所示. 零折射率超构材料还可以加载到传统的喇叭天线的辐射口径面上, 进一步提高喇叭天线的辐射性能. 图2(d)为加载了零折射率材料的喇叭天线结构示意图, 其中的零折射率材料由二维金属线"渔网结构"组成[13]. 从图2(e)所示的天线远场方向图可以看出, 在零折射率超构材料的工作频率处, 加载了近零折射率亚波长结构的喇叭天线的辐射波束宽度变窄, 辐射方向性系数明显提高, 其方向性与口径之间的关系接近理论的衍射极限. 通过结构参数的合理设计, 这种二维渔网结构可在不同谐振频点处针对不同的偏振态具有零折射率. 将这种双工作频点和双偏振态的零折射率材料作为覆层加载到传统微带天线上, 可构造高方向性的多功能天线, 如图2(f)所示[17]. 图2(g)和图2(h)为该天线在高频谐振频点处 y 偏振下的 E 面和 H 面辐射方向图. 从图中可以看出, 加载零折射率材料后, 天线的增益水平由原来的6 dB增加到19 dB, 辐射性能得到显著提升. 图2(i)和图2(h)为具有梯度折射率分布的超构材料, 其单元结构由不同结构参数的矩形金属环组成, 其等效折射率变化范围覆盖1.2—3.7, 且材料中心处的等效折射率最高, 沿径向递减[11]. 测试结果显示, 该超构材料可在65%的工作带宽范围内将传统天线的增益提高8 dB. 通过具有更高空间填充效率的分形几何结构构造零折射率超构材料, 可有效降低超材料单元的尺寸, 增加材料的均匀性, 提高超构材料等效电磁参数以及天线设计的准确性[18].

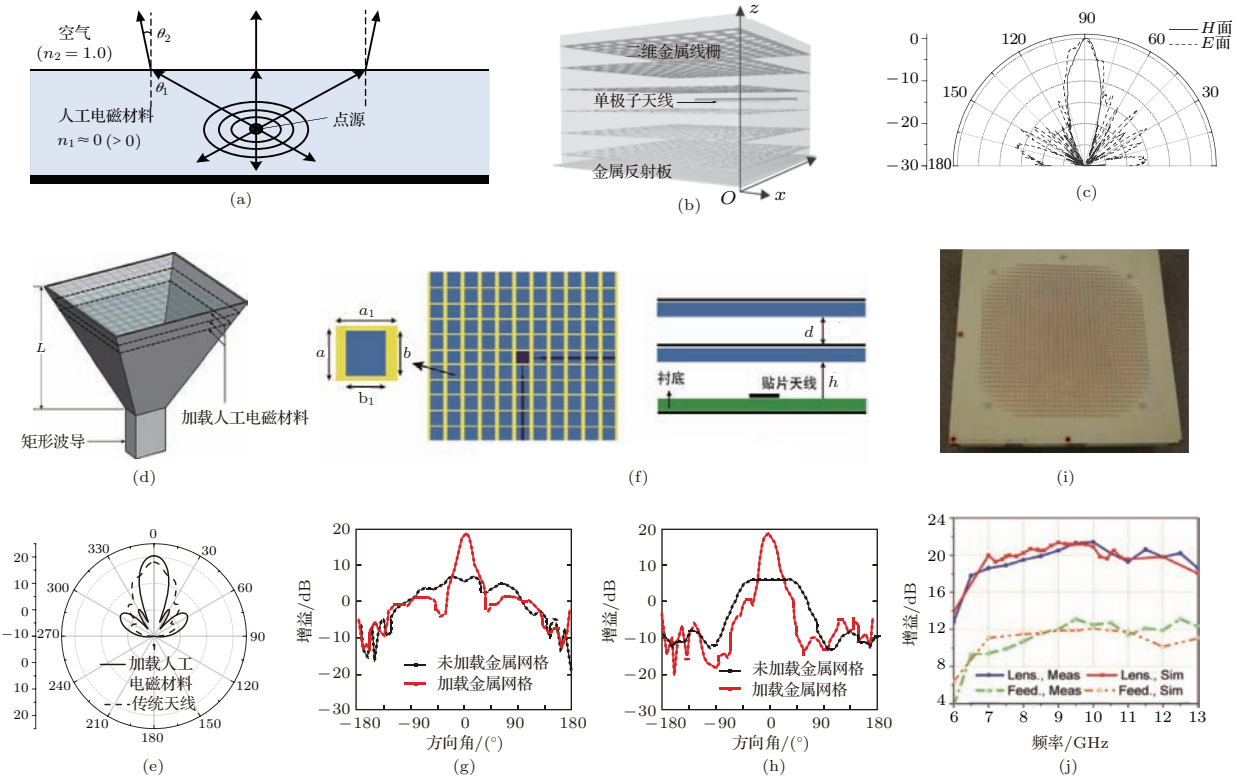


图2 基于零折射率超构材料的高方向性天线 (a) 零折射率材料中的折射示意图; (b), (c) 分别为嵌入零折射率材料中的单极子天线及其辐射方向图[16]; (d), (e) 加载零折射率超构材料的喇叭天线及其方向图[13]; (f), (g), (h) 为加载零折射率材料的双偏振贴片天线及其 x 偏振和 y 偏振方向图[17]; (i), (j) 基于梯度折射率超构材料的天线及其增益曲线[11].

Fig. 2. High directivity antennas based on zero refraction index metamaterials: (a) Refraction in zero-index materials; (b) and (c) are the monopole antenna inserted in zero-index metamaterial and its radiation pattern[16]; (d) and (e) are the horn antenna with zero-index metamaterial clad and its radiation pattern[13]; (f)–(h) are respectively the dual polarization patch antenna with zero-index metamaterial clad and the radiation pattern of x-polarization and y-polarization[17]; (i) and (j) are the antenna with gradient-index metamaterial cover and its gain spectra[11].

除了上述两种调制天线辐射性能的亚波长结构之外, 还有基于部分反射表面[19]、频率选择表面[20−22]以及渐变折射率超构材料[23,24]的新型平面天线, 前两者的原理是通过在超构材料与平面天线的接地板之间构造法布里-珀罗(F-P)谐振腔结构, 达到对电磁波的辐射方向进行调控的目的. 通过亚波长结构设计, 可以设计具有任意工作频段的反射表面, 此外还可通过人工磁导体等超构材料的反射相位调控性能实现对谐振腔高度的压缩, 从而降低天线整体的剖面高度.

通过零折射率超构材料和光子晶体的方法构造高方向性天线, 在降低天线口径尺寸等方面具有重要价值. 这种方法的主要缺陷在于其工作带宽一般较窄, 适用于偶极子天线、微带天线等方向性较低且工作频带较窄的天线. 而具有渐变折射率的超构材料, 可有效避免零折射率材料具有的窄带缺陷, 将其与传统天线技术相结合, 可在宽带范围内提高天线的辐射方向性.

2.2 基于亚波长结构的低RCS天线

随着电子对抗技术的发展, 各国对飞行器的隐身性能需求越来越迫切, 雷达探测与目标(尤其是飞行器)的隐身技术已成为电子对抗中最主要的对抗领域之一. 而随着飞行器RCS的不断减小, 机载天线系统对飞行系统RCS的贡献越来越大. 传统的电磁吸收材料不具有频率选择功能, 加载到天线上用以降低天线的RCS会同时降低天线的辐射性能, 从而导致天线的RCS缩减与辐射性能之间的矛盾. 超构材料的出现为解决这一矛盾提供了有效的技术途径. 通过在传统天线结构中加载具有频率选择特性的电磁吸收结构, 可以在实现对外界入射的电磁波吸收的同时, 不影响天线本身的辐射性能, 从而提高天线的隐身能力. 实现天线RCS缩减的超构材料主要包括电磁吸收型结构和电磁散射型结构, 其中电磁吸收结构将入射的电磁波转换为表面波并且通过材料自身的阻抗特性转换为欧姆损耗等形式, 从而降低天线的反射波能量[25,26]; 而电磁散射型超构材料是将入射的电磁波散射到非威胁方向, 降低天线在来波方向上的反射强度, 达到降低天线RCS的目的[27,28].

图3给出了部分利用超构材料解决天线RCS降低和辐射性能之间矛盾的实例. 图3(a)为利用电磁吸收型亚波长结构实现天线RCS缩减并提高天线辐射增益的微带天线结构[25]. 作为天线覆层的超构材料包含两层结构, 上表面为具有电磁吸收功能的亚波长方形金属环结构, 每个环形结构中加载了四个电阻, 调节结构的表面阻抗以实现宽带的电磁吸收. 材料的下表面为具有带通特性的部分反射表面, 其与天线的接地板形成F-P腔结构, 从而在谐振频点处提高天线的辐射增益. 加载亚波长结构后, 在6—14 GHz范围内天线的RCS水平降低了4 dB (图3(b)), 天线的增益在11.4 GHz处由7 dB增加到13 dB, 大幅提升了天线的辐射性能和隐身能力, 同时实现了在工作频带范围内降低天线的RCS(图3(c)).

图3(d)所示为基于散射调控型超构材料的低RCS天线[27]. 在波导缝隙天线的出射面上加载二维相位调控型亚波长结构, 通过在二维方向上构造反射式相位梯度, 将入射的电磁波反射到其他方向, 从而降低天线正方向的RCS. 天线的正向反射率如图3(e)所示, 在4.0—8.0 GHz范围内大幅度降低了天线正向的反射率. 此外, 引入超构表面后, 天线的等效口径效率得以提升, 因此其增益水平在5.4—5.9 GHz范围内提升了2 dB以上. 图3(g)为同时具有天线RCS缩减以及工作频率动态调控复合功能的新型微带天线[28]. 天线的覆层材料与图3(a)中的超构材料覆层相似, 为电磁吸收材料和部分反射表面双层结构的超构材料, 可实现天线RCS的缩减; 而在天线的接地板上加载反射相位可调控的超构表面, 该动态超构表面与覆层材料中的部分反射表面构成可动态调谐的F-P腔结构, 可动态调节天线的最大辐射增益对应的频率. 结果显示该天线在7—14 GHz范围内RCS得到明显缩减, 如图3(h)所示, 同时天线的辐射增益峰值对应的频率可在9—10 GHz范围内动态调节.

除了上述的高方向性和低RCS天线之外, 亚波长超构材料在降低天线的副瓣、提高天线的工作带宽和降低天线的尺寸等方面也有明显的优势. 例如利用超构材料构造的软表面[29], 加载到传统喇叭天线垂直于电场方向的内壁, 通过超构材料的宽带的阻抗匹配特性, 在超过一个倍频的宽带范围内降低天线的副瓣水平, 同时该超构材料的等效折射率的虚部极小, 带来的损耗可以忽略不计, 因此不会引入额外的电磁损耗. 此外, 亚波长结构材料的色散可调控特性在拓展传统窄带天线的工作带宽

方面也有重要应用价值[30]. 例如通过左右手复合材料构造的宽带微带圆极化天线, 可将传统微带天线的相对工作带宽拓展到45%以上[31]. 超构材料的等效电磁参数可人为设计的特性在降低天线的尺寸、构造小型化天线方面也取得了良好的应用效果. 例如利用高等效介电常数的超构材料作为天线的衬底材料, 可有效降低天线的尺寸[32,33]; 基于超构材料构造的人工磁导体, 其反射相位与金属反射相位相比相差180°, 将该材料作为谐振腔的反射面, 可以大大降低谐振腔的高度[19,34].

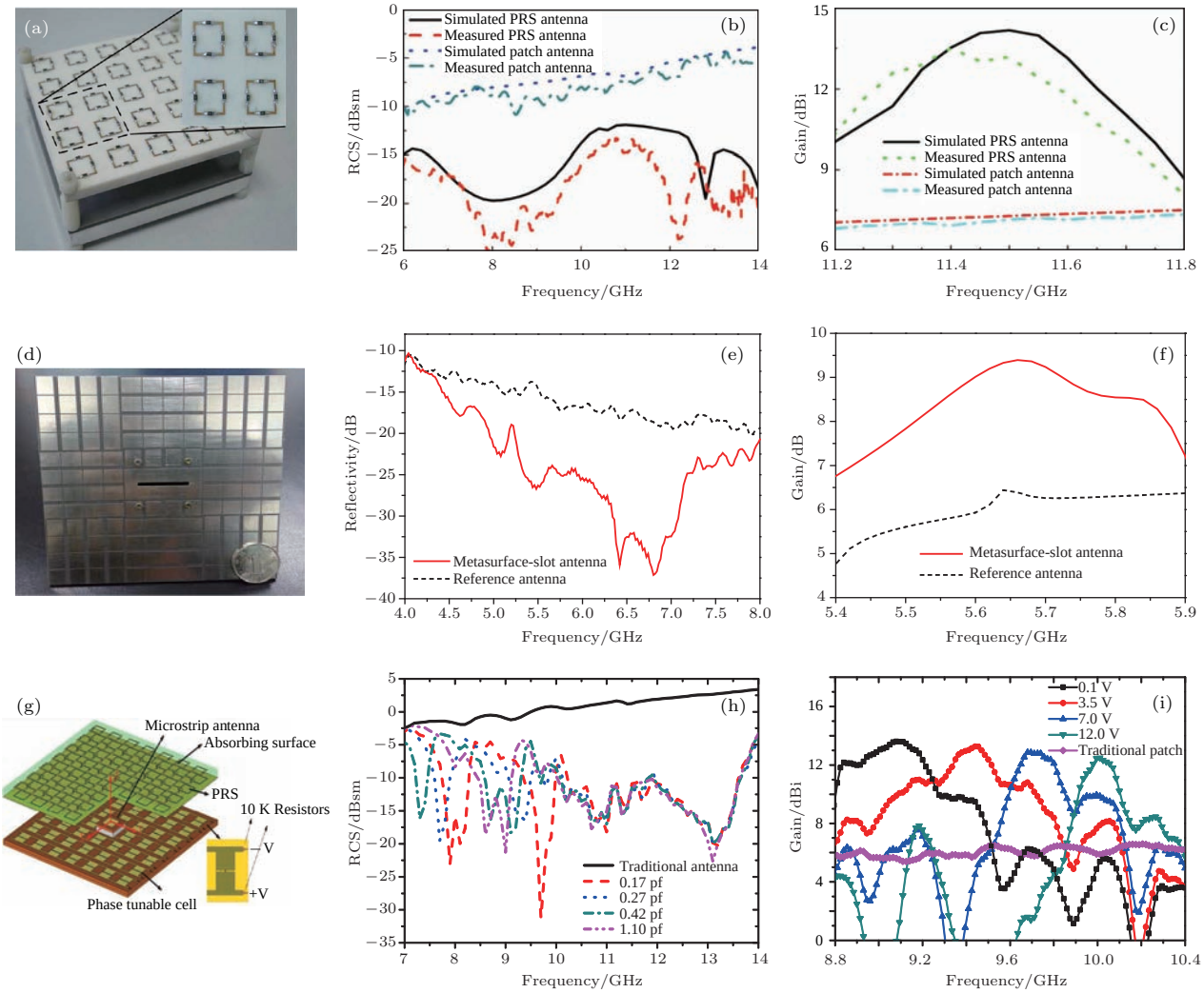


图3 基于亚波长超构材料的低RCS天线 (a) 基于电磁吸收型超构材料的低RCS天线; (b), (c) 分别为图(a)中天线的RCS曲线和增益曲线[25]; (d) 基于电磁散射型超构材料的低RCS天线; (e), (f) 分别为天线的反射率和增益结果[27]; (g) 可实现频率动态调控的低RCS天线; (h), (i) 分别为天线的RCS曲线和增益曲线[28]

Fig. 3. Low RCS antenna based on metamaterials: (a) Low RCS antenna based on absorption metamaterial; (b) and (c) are respectively the spectra of RCS and gain[25]; (d) low RCS antenna based on scattering metamaterial; (e) and (f) are the reflectivity and gain spectra[27]; (g) frequency tunable low RCS antenna; (h) and (i) are the RCS and gain spectra[28].

3 相位调制型超构材料及相控阵天线技术

电磁波在传播过程中, 其相位由介质材料的折射率n和传输距离l决定, 即$\Delta\Phi = 2\pi ln/\lambda$, 其中$\lambda$为波长. 可以看出, 传统光学技术中, 光学相位的调控主要通过光程的累积来实现, 因此传统光学器件必须利用相当厚度的材料以及特定的面形实现对入射光波前的调控, 导致传统器件的体积和重量较大, 难以实现小型化和集成化. 而在微波天线技术中, 相位调控也是构造高性能天线的必要技术. 例如微带阵列天线技术中, 天线单元之间的相位匹配需要通过一定长度的金属微带线来实现. 这种相

位调控方法使得阵列天线的设计较为复杂, 天线的体积难以小型化.

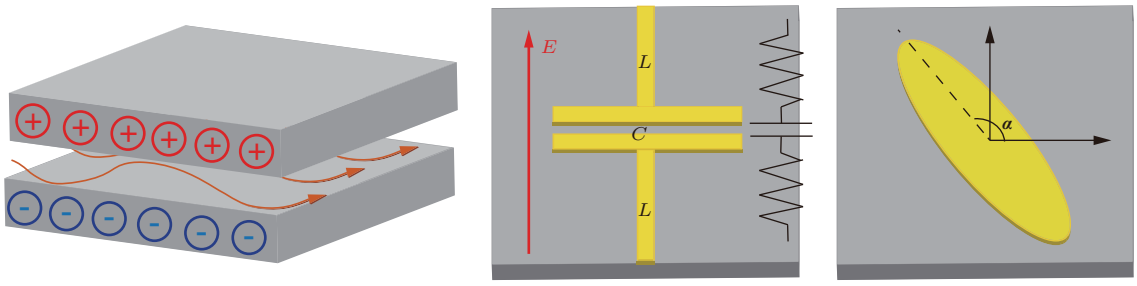
亚波长超构材料的出现有效弥补了传统材料在电磁波相位调控方面的缺陷. 通过超构材料单元中人为设计的亚波长结构, 将入射的传播波转换为结构中的表面波, 通过亚波长结构的传输相位或者谐振相位调控方式, 甚至是这两种方式的结合, 可有效调节表面波的相位, 进而实现对辐射波相位的调控 [35−39].

3.1 超构材料相位调控原理

亚波长金属狭缝结构是实现传输型相位调控的有效方式, 如图 4 (a) 所示, 通过调控金属狭缝的宽度, 可有效调节电磁波的出射相位. 这种相位调控方式主要工作在光波段, 其本质是通过调节在金属-介质界面产生的表面等离子体的传播常数, 从而实现对相位的调控. 这种结构被广泛应用于光学超构材料器件中, 包括平面光束偏折器件 [40−42]、平面透镜 [43−47] 等.

而在微波、毫米波等波段, 难以在金属表面激发出表面等离子体, 大多通过另一种方式调节电磁波的相位, 即构造等效谐振电路的方法 [35,36,48]. 通过构造出谐振型亚波长结构, 将其等效为谐振电路形式, 如图 4 (b) 所示, 结构中垂直于电场的金属缝隙可以等效为谐振电路中的电容, 平行于电场的金属线可以等效为电路中的电感. 根据麦克斯韦方程组, 可以看出这种具有特定阻抗特性的人工表面结构可以有效调节电磁波的相位以及振幅. 这种相位调控型亚波长超构材料的厚度远远小于波长, 可以看作二维表面结构, 也被称为超构表面 (metasurface).

在上述两种相位调控机理的基础上, 可以通过将这两种相位调控方法有效结合, 形成更加灵活的相位调控手段. 除此之外, 通过在亚波长结构中引入有源材料或者有源器件, 可以实现对电磁波相位的动态调控. 例如, 在微波波段的亚波长结构中, 加载 PIN 二极管或者变容二极管, 可实现大范围的相位调控 [37,49,50]. 在太赫兹波段、红外波段甚至可见光波段, 一些电磁参数可以动态调控的材料, 例如 $Ge_2Sb_2Te_5$ (GST) [51,52]、石墨烯 [53−55]、半导体 [56−58] 等材料, 被广泛应用于构造动态超构材料.



(a) (b) (c)

图 4 三种实现亚波长结构相位调控的方法 (a) 基于表面等离子体的传输相位调控; (b) 基于等效电路模型的谐振相位调控; (c) 几何相位调控

Fig. 4. Three methods for phase manipulation using metamamterial: (a) Propagating phase manipulation based on surface plasmon polariton (SPP); (b) resonant phase manipulation based on effective circuit model; (c) geometry phase manipulation.

此外, 天线的概念也从微波波段延伸至光波段, 产生了用于调控光波辐射的光天线 [59−61]. 这种光天线也是实现局域相位调控的有效方式, 其基本原理是亚波长结构与光波相互作用过程中产生的几何相位 [62−66]. Berry [67] 和 Anandan [68] 分别从量子力学和光波偏振转换的角度对几何相位进行了研究和阐述, 得到了几何相位仅与系统演变的几何路径相关. 如图 4 (c) 所示的亚波长结构, 在圆偏振电磁波透过该结构时, 出射场中的交叉分量的相位延迟等于结构与坐标轴的夹角 α 的 2 倍.

3.2 基于亚波长结构的波束偏折技术

控制电磁波的传播方向在光束控制、信息传输、电磁隐身等领域具有重要应用价值. 传统技术手段中, 电磁波传输方向的调控主要通过机械扫描的方式实现天线的波束在某个角度范围内连续扫

描. 但是这种机械伺服系统扫描速度较慢, 容易丢失目标, 且体积重量庞大. 而光波段, 机械转动装置也被用于激光雷达等光束扫描系统中. 此外, 透镜、棱镜、反射镜等器件是调控光束传播方向的典型器件, 然而受传统折射/反射定律的限制, 这些器件的厚度远大于波长, 且难以实现波束方向的动态调控. 亚波长超构材料的出现, 改写了传统的折射/反射定律, 为实现小型化、平面化的波束调控提供了有效技术途径.

3.2.1 微波波段波束偏折技术

根据阵列天线原理, 通过调节阵列天线中每个辐射单元的出射相位, 可以实现天线辐射方向的有效控制. 其基本原理如图5 (a) 所示, 当相邻天线之间的相位差为$\Delta\phi$时, 出射波束方向角$\theta = \arcsin[-\Delta\phi/(\boldsymbol{k}d)]$, 其中$\boldsymbol{k}$为波矢, d为相邻天线之间的间距.

构建亚波长相控阵天线的本质是设计具有相位调制功能的亚波长结构, 在出射平面上形成一定的相位梯度, 从而控制出射电磁场的传播方向. 研究人员提出了多种亚波长相位调制结构, 以实现平面辐射波束控制. 图5 (b)—(d) 分别为几种典型的谐振式亚波长相位调控结构, 包括矩形缝隙谐振结构[69,71]、环形缝隙结构[36] 和工字型谐振结构[70]. 通过调节这几种亚波长结构的缝隙部分的结构参数, 可以有效调节其谐振性能, 实现对出射电磁波相位的调控. 微波频段中, 常在上述几种谐振式亚波长结构中加载PIN二极管、变容二极管等元件, 可实现出射相位的动态调节.

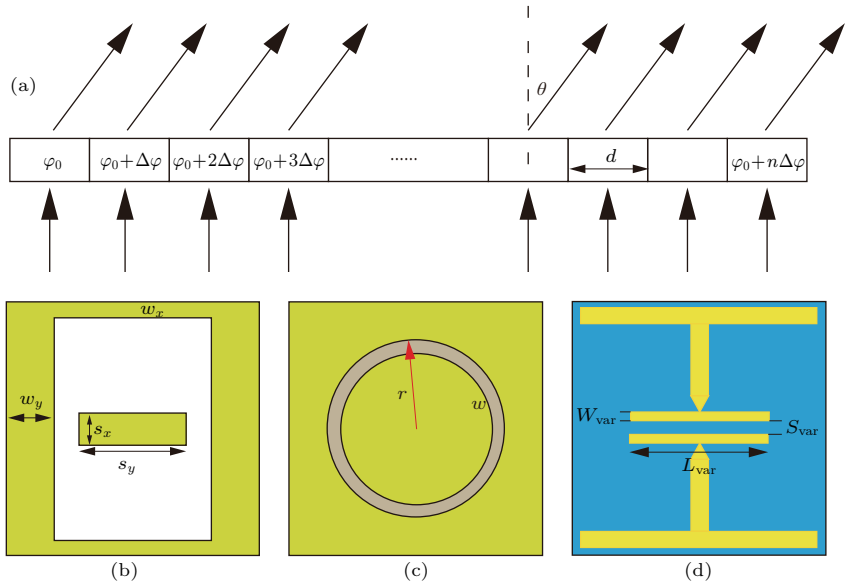


图5 (a) 亚波长结构相控阵工作天线原理示意图; 典型的相位调制型亚波长结构; (b) 矩形缝隙谐振结构[69]; (c) 环形缝隙谐振结构[36]; (d) 工字型谐振结构[70]

Fig. 5. (a) Scheme of the principle for phased array antennas; typical unit cells of metamaterial for phase manipulation, including (b) square slot structure[69], (c) ring slot structure[36], and (d) I-shape structure[70].

图6所示为几种典型的微波波段实现辐射方向调控的亚波长天线结构, 包括静态的波束偏折和动态波束扫描亚波长结构天线. 图6 (a) 中的静态波束偏折亚波长结构[37], 其单元由金属薄膜上的环形缝隙结构组成. 将具有不同环形缝隙半径和宽度的单元结构按照一定的相位梯度分布排列, 实现将正入射的平面波束偏转到偏离法向17.5°的方向, 其远场辐射场分布如图6 (b) 所示. 这种通过单元结构几何参数的变化实现相位调节的方式构造的波束偏折器件, 仅能实现定向的辐射方向调控, 而不能达到动态波束扫描的目的. 通过在单元结构中引入变容二极管、PIN二极管等动态调控元件, 可以构造超构材料相控阵天线. 图6 (c) 所示为基于变容二极管的动态超构材料相控阵天线[72], 其由6层相位调控亚波长超构材料和微带天线阵列馈源组成. 通过控制每排单元结构中的二极管两端的电压值, 在超构材料的出射面上形成动态可调的相位梯度, 进而将馈源天线沿法线方向辐射的电磁波偏转到不同的角度, 波束偏转范围约为30°.

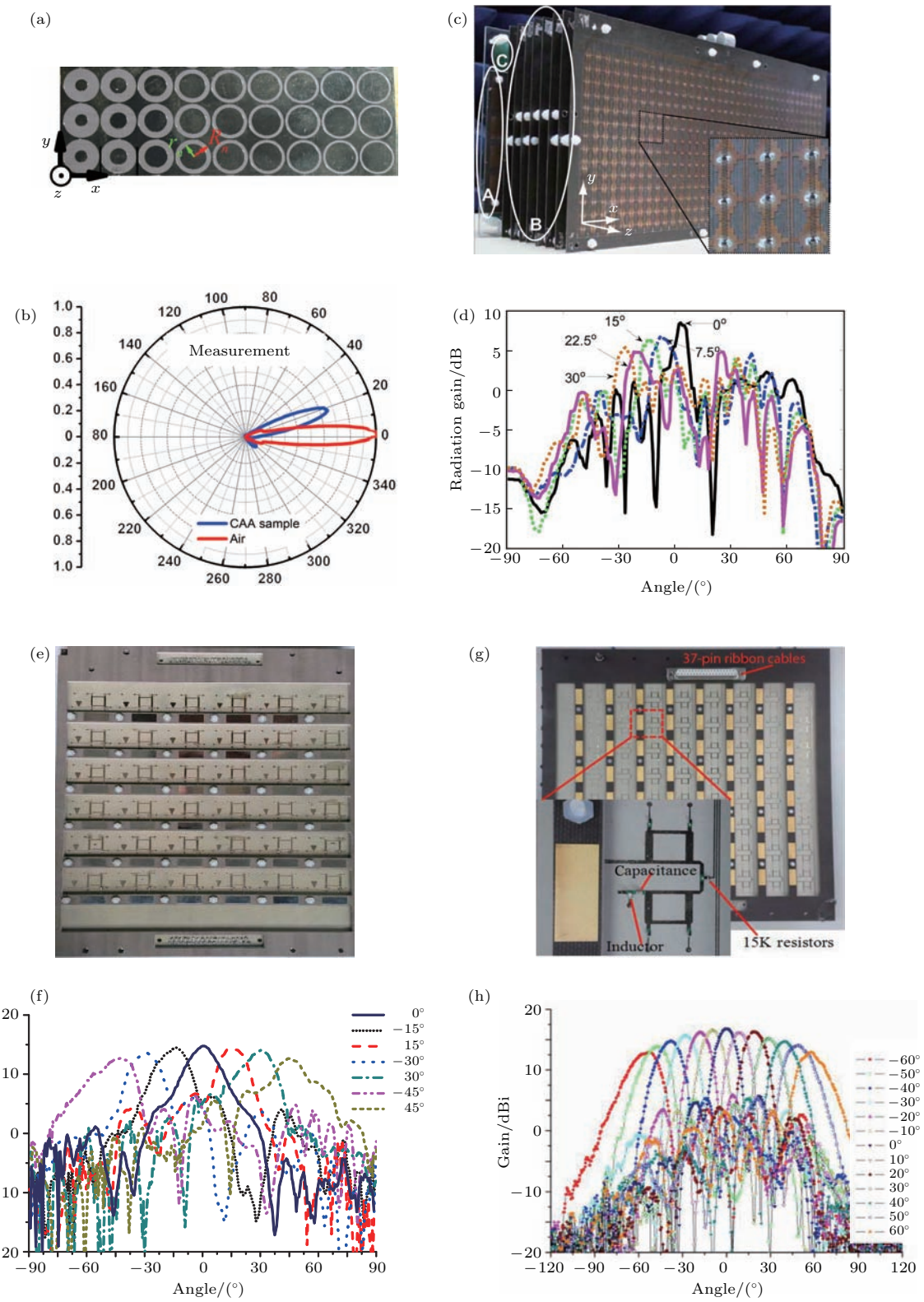


图 6 基于亚波长相位调制型超构材料的相控阵天线 (a), (b) 分别为基于圆环形缝隙结构的波束偏折天线及其辐射方向图[37]; (c), (d) 分别为加载变容二极管的超构材料相控阵天线及其辐射方向图[72]; (e), (f) 分别为具有偏振调制功能的超构材料相控阵天线及其辐射方向图[73]; (g), (h) 分别为具有偏振调制功能的二维超构材料相控阵天线及其辐射方向图[50]

Fig. 6. Phased array antennas based on phase manipulating metamaterials: (a) and (b) are respectively the photo of beam-steering antenna based on the metamaterial with ring slot and its far-field radiation pattern[37]; (c) and (d) are the phased array antenna based on the varactor loaded metamaterial and its radiation patterns[72]; (e) and (f) are the photo and radiation patterns of phased array beamsteering antenna with polarization manipulation function[73]; (g) and (h) are the photo and radiation patterns of phased array antenna with two-dimensional beamsteering and polarization manipulation functions[50].

亚波长结构对电磁波的奇异调制特性在于其电磁调制能力与人工结构密切相关, 通过结构的合理设计以实现多种自然界的材料所不具有的复合功能. 在基于亚波长结构构造的相控阵天线中, 可以通过结构设计, 使其同时具有偏振调控[50,74]、散射特性调控[75]等能力. 图6 (e) 所示的亚波长结构相控阵天线[73], 将相位调控结构与圆偏振辐射相结合, 在将馈源天线入射的线偏振电磁波转换为圆偏振电磁波的同时, 实现天线辐射波束在±45°范围内动态扫描, 如图6 (f) 所示. 图6 (g) 为同时具有偏振动态调制功能的亚波长结构, 其单元结构为传输阵列 (transmitarray) 形式[50]. 单元结构中加载变容二极管的移相电路可将辐射相位在0—360°范围内连续调控, 进而在二维方向上动态偏折天线的辐射波束; 而其出射面的微带天线中加载的PIN二极管可以有效调节天线辐射场的偏振态在左旋圆偏振、右旋圆偏振、水平线偏振和垂直线偏振四种状态之间动态切换. 图6 (h) 为天线在电场面上的远场方向图, 可以看出该天线具有±60°的波束动态扫描功能.

3.2.2 可见光波段的波束偏折

从上述举例中可以看出微波波段的相位调控主要通过构造等效谐振电路以及加载电控元件的形式实现. 而在高频波段, 例如光波段、红外波段等, 入射光与亚波长结构中的金属部分发生耦合, 产生表面等离子体 (surface plasmon, SP), 通过结构与表面等离子体的相互作用是实现光波段相位调控的有效方式. 此外, 亚波长结构的尺寸为纳米量级, 没有对应尺寸的电控元件, 因此在该波长范围内大多通过电磁可调谐材料实现对电磁波相位的动态调节, 如石墨烯、半导体材料、相变材料等.

图7为光波段波束偏折器件结构图及其波束调控结果. 图7 (a) 为基于SP传播相位调制的波束偏折器件[11], 其通过调节金属狭缝的宽度调控狭缝中SP的传播常数, 进而调节出射面的相位分布, 从而实现定向波束偏折, 其不同偏折角度对应的远场分布如图7 (b) 所示, 利用不同结构参数的亚波长狭缝合理组合, 分别实现了30°, 45°, 60°和80°的偏折. 这种平面相位调控器件突破了传统电磁学理论中折射定律对光学器件面形的限制, 改写了折射定律[76]. 随后, 这种利用金属狭缝结构中SP传输相位调控结构被用于构造多种光学平面聚焦和波束偏折器件[43], 在实验上验证了该方法的可行性.

通常情况下, 这种相位调控存在较大的色散, 不能满足宽带的波束偏折的要求. 通过将结构的色散特性与材料的色散特性合理结合, 可有效改善该亚波长结构的色散特性[42,77]. 图7 (c) 为基于亚波长金属狭缝结构的消色差波束偏折器件结构示意图, 利用亚波长结构的色散特性补偿了银材料在光波段的色散后, 该器件可以实现宽带的消色差波束偏折, 如图7 (d) 所示, 在1000—2000 nm波长范围内, 正入射的光束被偏折到相同的方向, 偏折角为20°.

图7 (e) 为基于相变材料GST的红外波段动态波束偏折器结构示意图[51], 其在一维金属缝隙中加载相变材料GST. GST材料在温度变化条件下, 其结构会在晶态和非晶态之间转换, 对应的折射率也会发生连续变化. 因此在该波束偏折器不同部位加载一定的温度梯度, 可实现一维方向的折射率分布, 进而调节出射红外波的相位梯度. 在1.55 μm波长处, 实现动态的波束扫描, 其波束偏折效果如图7 (f) 所示.

超构材料光学天线广泛采用偏振转换过程中产生的几何相位, 其通过旋转亚波长结构相对于法线的旋转角度, 即可实现对电磁波相位的调控, 而对材料的厚度无特定要求, 因此可用于构造多种平面器件, 实现对辐射光场的调控. 典型的几何相位光学天线结构包括V形结构[62,78−84], 矩形/椭圆形结构[85−89]、悬链线结构[90−94]等. 这些平面光学器件主要用于光束聚焦、波束偏折、轨道角动量 (orbital angular momentum, OAM) 的产生、光学全息器件等.

图8给出了几种典型的基于几何相位的光学天线结构及其对辐射光波的调控效果. 图8 (a) 和图8 (b) 所示为实现波束偏折的光学天线阵列结构, 其单元结构分别为V形金属结构[62]和其互补结构[95], 通过设计V形结构的臂长和张角大小, 可以实现对出射相位的调节. 在该设计中, 只需设计具有0°, 45°, 90°和135°相位调制效果的单元结构, 而将这四种结构绕中心旋转90°, 即可将原相位调控单元的出射相位增加180°. 几何相位的局域相位调控能力赋予了这种亚波长结构器件具有复合电磁功能. 图8 (c) 是一种亚波长椭圆形金属结构的平面透镜, 根据其相位分布, 该透镜可以将入射的

圆偏振光转换为携带轨道角动量的光束, 同时实现出射光束的聚焦[86]. 2016年, Capasso等[66]提出一种基于介质型几何相位调控亚波长结构的平面透镜, 其单元结构由沉积在衬底上的矩形二氧化钛柱构成, 如图8 (d)所示. 与金属亚波长结构相比, 这种介质型几何相位亚波长结构在能量利用率上有明显的优势, 但是其厚度远超过金属亚波长结构的厚度, 因此对加工工艺要求较高. 该透镜在可见光波段实现了170倍的放大成像效果, 且该透镜的能量利用率超过66%.

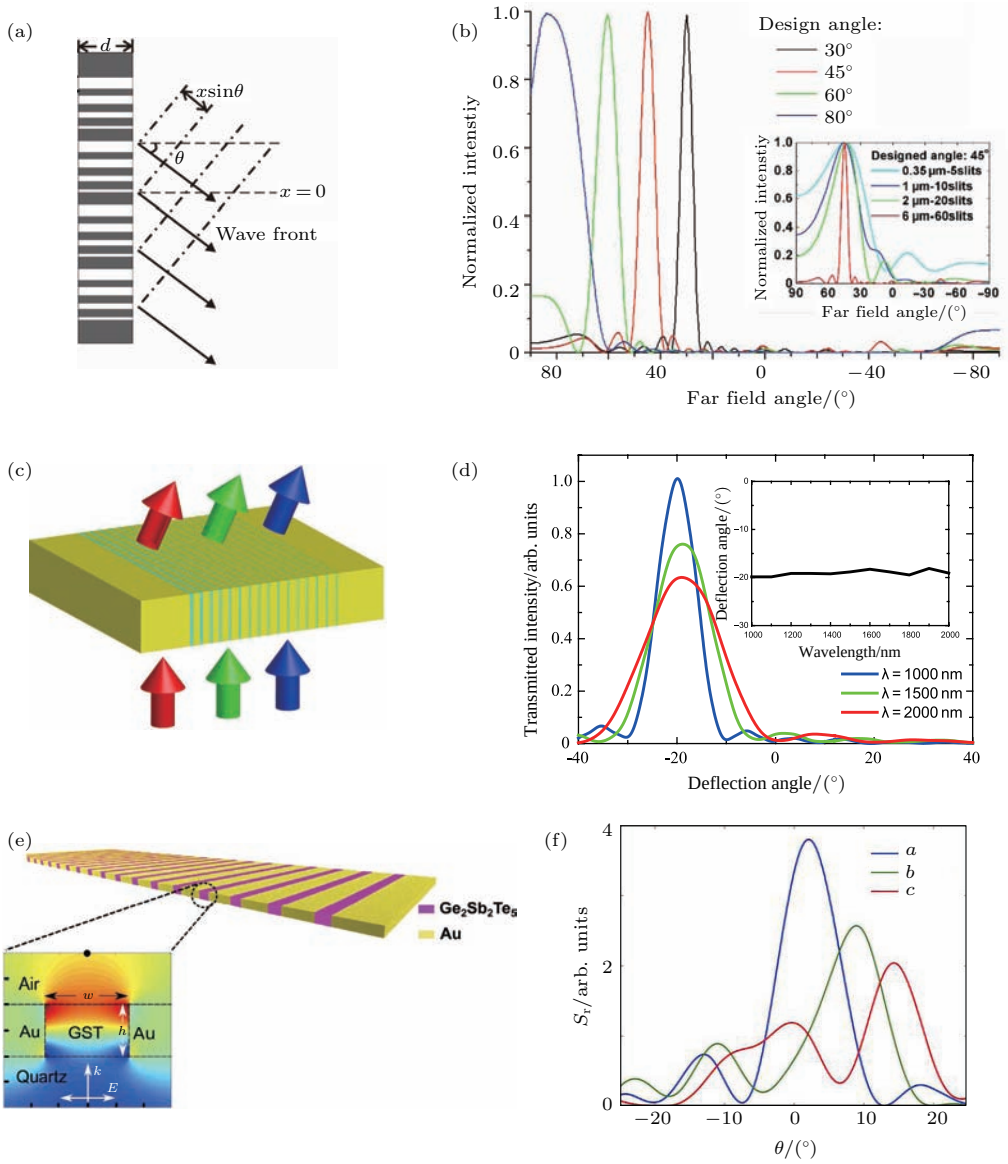


图7 光波段典型的波束偏折器件 (a) 基于金属狭缝结构中SP传播相位调控的波束偏折器和 (b) 波束偏折效果[11]; (c) 消色差的波束偏折器和 (d) 不同波长的波束偏折角度[42]; (e) 基于相变材料GST的红外动态波束偏折器和 (f) 动态波束偏折效果[51]

Fig. 7. Typical beam deflector in light wave range: (a) Deflector based on the SP propagating phase manipulation in metallic slot and (b) its beam deflection effect[11]; (c) achromatic beam deflector and (d) its beam deflection at different wavelength[42]; (e) active beam deflector based on GST in infrared range and (f) the radiation patterns with different deflection angles[51].

上述几何相位结构均为离散结构, 得到的相位分布也是离散的, 因此难以实现完美的辐射调控. 受自然界中悬链线力学结构的启发, 本课题组提出了一种可以连续调节几何相位的亚波长结构, 可将几何相位在0—360°之间连续调控[91,93]. 利用该结构构造的平面光学器件在辐射光场质量上有明显的提升. 图8 (e)为由这种亚波长悬链线结构排布而成的轨道角动量光束激发器件, 根据角向的相

位分布, 其可以产生携带不同拓扑荷数的轨道角动量光束. 入射的圆偏振光通过该器件后辐射的光场分布如图 8 (f) 所示, 仿真结果和测试结果均表明该器件可激发接近完美的OAM光束. 局域相位调控能力在计算全息器件上具有更为明显的优势. 其设计流程为: 首先通过点源法计算出产生任意全息物体的二维相位分布, 然后利用不同旋转方向角的亚波长结构即可实现这种二维的相位分布, 在特定偏振光照射下, 该器件可形成所设计的全息光场. 图 8 (g) 为利用矩形缝隙结构构造的彩色全息器件, 可产生的彩色叶片和太阳神鸟 (四川金沙遗址出土) 的全息图 (图 8 (h)) [96].

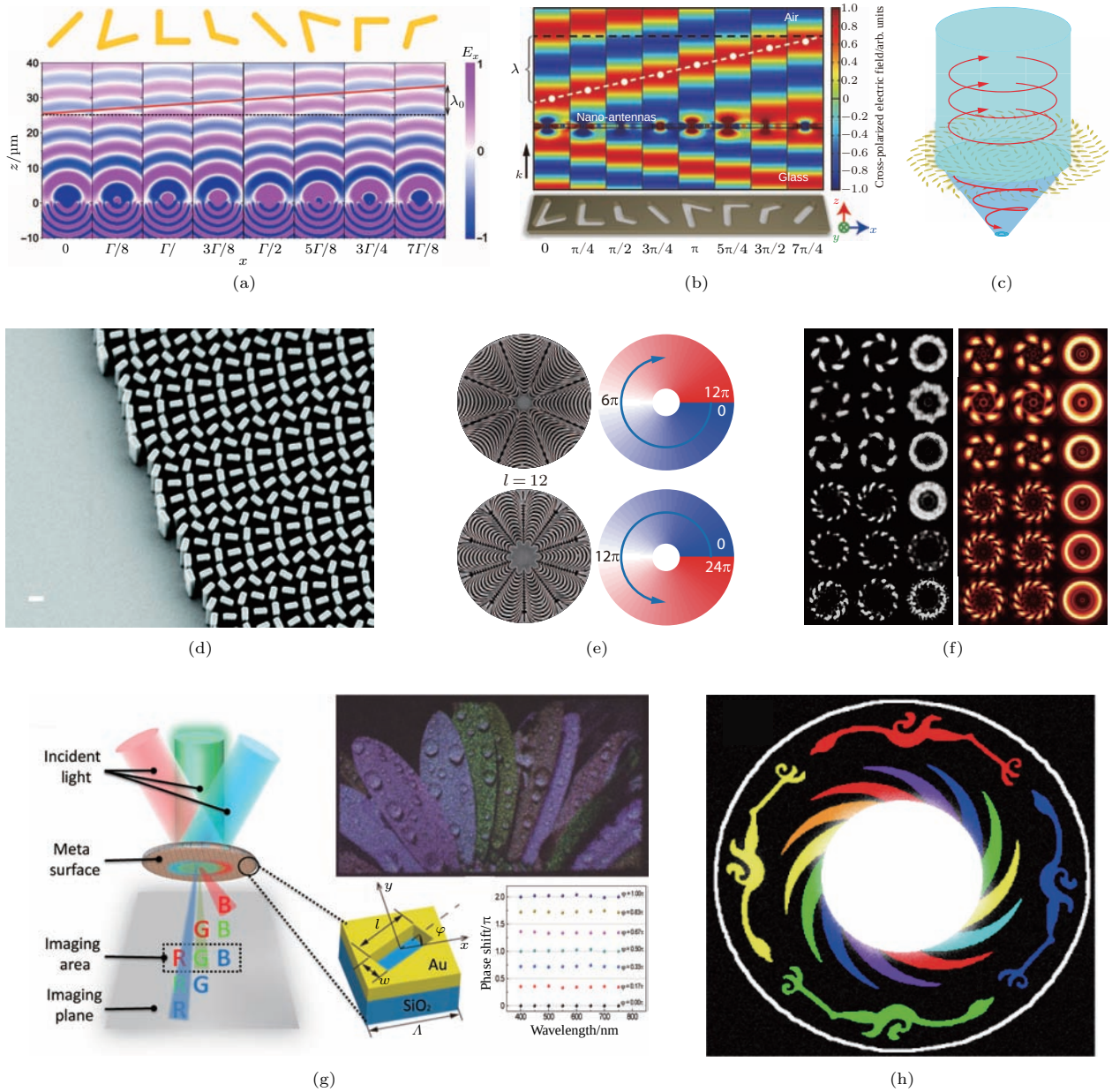


图 8 典型的几何相位亚波长结构 (a) 基于V形结构的几何相位调制亚波长结构 [62]; (b) 基于V形缝隙亚波长结构的光束偏折器件 [95]; (c) 同时实现轨道角动量光束激发和聚焦的平面透镜 [86]; (d) 基于介质型亚波长结构的平面透镜 [66]; (e), (f) 基于悬链线结构的完美 OAM 产生器和其辐射光场分布 [91]; (g), (h) 基于几何相位结构设计的三维彩色全息器件及其产生的全息图 [96]

Fig. 8. Typical metamaterials for geometric phase manipulation: (a) Geometric phase manipulation metamaterial based on V-shape structure [62]; (b) beam deflector based on the V-shape unit cell metamaterial [95]; (c) planar lens for orbital angular momentum generation and focusing [86]; (d) photo of planar lens based on dielectric metamaterial [66]; (e) and (f) are the perfect orbital angular momentum generator based on subwavelength catenary structure and the generated fields [91]; (g) and (h) are the three-dimensional holograph generator based on the geometric phase metamaterial and the radiated holograph [96].

随后, 这种几何相位调控方法被拓展至太赫兹、微波等低频波段[97], 由于这种几何相位调控与器件的厚度无关, 特别适用于构造超薄的电磁调控器件, 获得了良好的应用效果. 通过在结构中加载有源器件, 还可构造可重构的亚波长超表面结构, 实现对几何相位的动态调控[98]. 已经有研究人员对上述超表面结构的相位调控原理、方法和应用进行了总结, 可为超构表面相位调控器件的设计提供理论和技术指导[99].

4 亚波长结构偏振调控技术及其在天线中的应用

亚波长结构对电磁辐射的强效调控能力还体现在对电磁波偏振态的调控作用中. 电磁波的偏振态在通信领域具有重要的应用价值, 利用电磁波的偏振态作为信息载体, 即偏振位移键控技术, 可以有效提高通信质量. 此外, 偏振调控在多通道通信(如卫星通信)、立体显示以及成像技术(偏振成像)中具有重要应用价值.

传统的电磁偏振调制技术主要利用偏振光栅、半波片、四分之一波片等器件, 实现对入射的电磁波偏振态的筛选或转换. 偏振调制过程中, 材料的厚度至少需要满足 $(\boldsymbol{k}_1-\boldsymbol{k}_2)d=\pm\dfrac{\pi}{4},\pm\dfrac{\pi}{2},\pi,\cdots$, 其中 $\boldsymbol{k}_1$ 和 $\boldsymbol{k}_2$ 分别为各向异性介质中寻常光(o光)和非常光(e光)的等效波矢. 对于将线偏振波转换为圆偏振波的四分之一波片而言, 理论上最薄的厚度为 $d=\lambda/[8(n_{\rm o}-n_{\rm e})]$, 其中 $n_{\rm o}$ 和 $n_{\rm e}$ 为o光和e光对应的折射率. 但受限于自然界材料的折射率以及加工工艺的限制, 实际的四分之一波片的厚度远远大于该理论极限值. 并且由厚度与波长的对应关系可以看出, 每个具有特性厚度的波片只对应一个中心工作波长, 即这种波片不具有宽带调制特性. 由于亚波长结构的衍射行为调制不受材料厚度的制约, 具有构建超薄偏振调制材料的优势, 因此利用亚波长结构对电磁波衍射行为的异常调制构造偏振调制材料, 可以突破传统偏振调制手段对材料厚度的限制, 并且可从本源上解决传统偏振调制材料工作带宽窄的问题. 目前, 国际上利用亚波长结构材料实现对电磁波偏振特性调制的研究热点主要围绕着实现圆偏振辐射、宽带偏振转换、多频点的偏振转换以及动态的偏振调制等方面.

现阶段研究的偏振调控亚波长结构主要可以分为各向异性结构和手性结构两大类[36]. 其中各向异性结构类似于传统的双折射材料, 其通过设计两个正交方向上的传输相位差异实现对出射电磁波偏振态的调节, 如图9(a)所示. 图9(b)为典型的各向异性的亚波长结构偏振调控器件, 其单元结构由45°倾斜的周期性金属线结构组成. 根据电场的合成原理, y 偏振入射电场分解成与金属微带垂直和平行的两个电场分量 $E_{\perp}$, $E_{//}$. 根据等效电路分析可知, 在金属微带的垂直方向上的周期图形的等效电抗呈容性, 而在平行方向上的周期图形的等效电抗呈感性. 在容性和感性的电路中, 电路的反射相位或透射相位符号相反. 通过适当调整周期、金属线尺寸可以使得垂直和平行电场分量的反射或透射的幅相满足一定的相位差条件, 可实现辐射电磁场的偏振态调控. 例如 $\pm90°$ 和 $180°$ 的相位差可分别实现圆偏振出射和交叉线偏振辐射. 这种结构被广泛应用于构造各种频段的亚波长偏振调控材料[100−108]. 利用亚波长结构构造偏振调控器件已经有较长的历史, 早在1973年人们就提出利用亚波长曲折线结构实现对电磁波偏振特性的调控[109], 如图9(c)所示, 而当时超构材料的概念尚未被提出.

与透射式偏振调控亚波长结构相比, 反射式结构在能量利用率上具有明显的优势. 绝大部分入射的正交偏振电磁波会被反射, 因此在设计反射式偏振调控亚波长结构时, 只需要对正交偏振的相位差值进行调节, 因此更有利用拓展器件的响应带宽, 突破传统电磁材料的限制. 图9(d), 图9(f)和图9(h)为几种典型的反射式宽带各向异性亚波长结构, 其中图9(d)的单元为工字形结构[101]. 当入射电场沿着 y 方向时, 该结构可以视为串联的等效电感 L 以及等效电容 C, 其对应的表面阻抗可以表示为 $Z_y=\mathrm{j}\omega L+1/(\mathrm{j}\omega C)$, 其中电感来自于金属线, 电容来自于平行金属贴片. 当电场方向沿着 x 方向, 该结构可透过全部入射电磁波, 进而被背面的金属反射板全反射, 其等效阻抗为无穷大. 两个正交方向上的等效电磁参数的差异使出射电磁波之间产生 $180°$ 相位差, 且通过色散调控方法, 该结构可实现宽带偏振调控. 从图9(e)中的主偏振反射率曲线可以看出, 在5.5—16.5 GHz范围内主偏振的反射系数小于15 dB, 其偏振转换带宽达到100%. 基于类似原理, Grady等[106]提出了太赫兹

波段的各向异性偏振调控亚波长结构, 如图 9 (f) 所示. 该亚波长结构在 0.8—1.8 THz 范围内将入射的线偏振电磁波转换为交叉线偏振波 (图 9 (g)). 通过二维方向上的色散调控, 可以进一步增加亚波长偏振调制材料的工作带宽. 如图 9 (h) 所示的开口谐振环结构 [110,114], 其在二维正交方向上的阻抗特性可通过结构参数的设计实现宽带的匹配, 使其在在 3.5—16.5 GHz 范围内将入射的线偏振电磁波高效地转换为交叉线偏振波, 能量利用率接近 100%, 工作带宽达到 130%, 如图 9 (i) 所示.

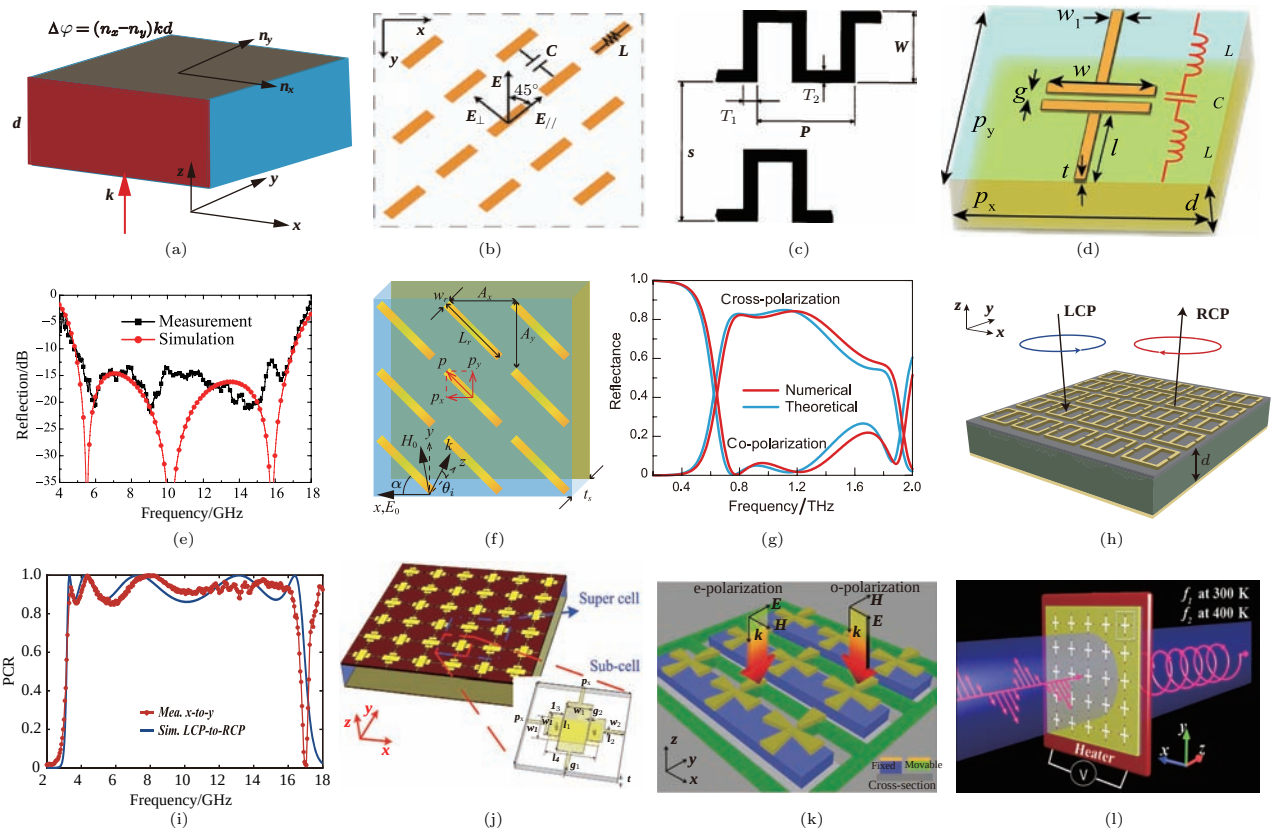


图 9 各向异性亚波长结构偏振调控材料 (a) 各向异性结构的偏振调制原理示意图; (b) 金属线结构亚波长偏振调控材料结构示意图; (c) 基于曲折线结构的偏振调控材料 [109]; (d), (e) 分别为基于工字形的宽带偏振调制亚波长结构及主偏振反射曲线 [101]; (f), (g) 分别为基于金属线结构的太赫兹偏振调控器件及主偏振和交叉偏振反射率曲线 [106]; (h), (i) 分别为基于二维色散调控的超宽带偏振调控材料及其偏振转换效率曲线 [110]; (j) 微波波段各向异性偏振动态调控亚波长结构材料 [111]; (k) 基于微机械系统的偏振动态调控亚波长结构材料 [112]; (l) 基于相变材料的太赫兹偏振动态调控亚波长结构材料 [113]

Fig. 9. Anisotropic polarization manipulating metamaterials: (a) Principle of polarization manipulation of anisotropic structure; (b) scheme of polarization manipulation metamaterial based on parallel strips; (c) meander-line metamaterial [109]; (d) and (e) are respectively the I-shape metamaterial and its reflectivity spectra of co-polarization [101]; (f) and (g) are the terahertz metamaterial based on metal strips and its reflectance spectra of co- and cross-polarization [106]; (h) and (i) are the ultra broadband metamaterial for polarization manipulation with 2-D dispersion management and the spectrum of polarization conversion ratio [110]; (j) the active anisotropic metamaterial in microwave band [111]; (k) tunable metamaterial based on MEMS [112]; (l) terahertz reconfigurable metamaterial based on phase change material for polarization control [113].

为了满足偏振成像探测、保密通信等技术对电磁波多偏振态的需求, 在静态的偏振调制亚波长结构的基础上, 通过在亚波长单元中引入有源器件、材料或者微机械结构等, 可动态调控亚波长结构的偏振调制性能 [52,111−113,115−117]. 图 9 (j) 为利用 PIN 二极管实现的微波波段偏振动态调控超构材料, 通过调控单元结构中加载的二极管的工作状态, 该超构材料可将入射的线偏振电磁波分别转换为交叉线偏振波、左旋圆偏振波和右旋圆偏振波 [111]. 通过微机械结构动态调节亚波长结构的结构形式, 可以动态改变亚波长结构的各向异性, 从而实现对电磁波偏振特性的动态调控. 如图 9 (k) 所示的亚波长结构 [112], 通过控制相邻悬臂的电压差值, 可将图中亮色部分结构在各向同性的十字形结构和各向异性的 T 字形结构之间调节, 从而动态调控其辐射电磁波的偏振态. 图 9 (l) 所示的亚波长

结构中加载了相变材料二氧化钒 (VO_2)[113], 通过外界温度的变化, 可调节相变材料的电阻率, 使其介电特性在介质相和金属相之间切换, 从而改变亚波长结构的各向异性特征, 将入射到该亚波长结构的线偏振电磁波分别转为左旋圆偏振波和右旋圆偏振波. 以上介绍的部分各向异性亚波长结构可用于构造圆偏振天线, 以降低传统圆偏振天线设计的难度. 将这些偏振调控超构材料与传统线偏振天线集成, 可构造出低损耗、低剖面的新型圆偏振天线, 可同时提高天线的方向性、增益以及降低天线的副瓣电平等[118−120].

除了各向异性亚波长结构之外, 手性亚波长结构近些年也被广泛用于偏振调控[121−132]. 手性超构材料指单元结构不具有轴对称特性, 即与自身的镜像结构无法通过平移、旋转等操作相重合. 由于其结构的不对称性, 电磁波在通过手性结构材料的过程中存在电场和磁场之间的耦合, 产生圆二向色性和旋光性等偏振调控特性. 与各向异性超构材料不同的是, 手性超构材料作用的基模为左旋圆偏振和右旋圆偏振, 如图 10 (a) 所示. 手性材料中左旋圆偏振波的折射率 n_{L} 和右旋圆偏振波的折射率 n_{R} 在谐振频点处存在差异, 且折射率实部的差异导致两种圆偏振波的辐射相位不同, 产生旋光性, 而折射率虚部的差异使两种圆偏振波的透过率存在差异, 即为圆二向色性的来源.

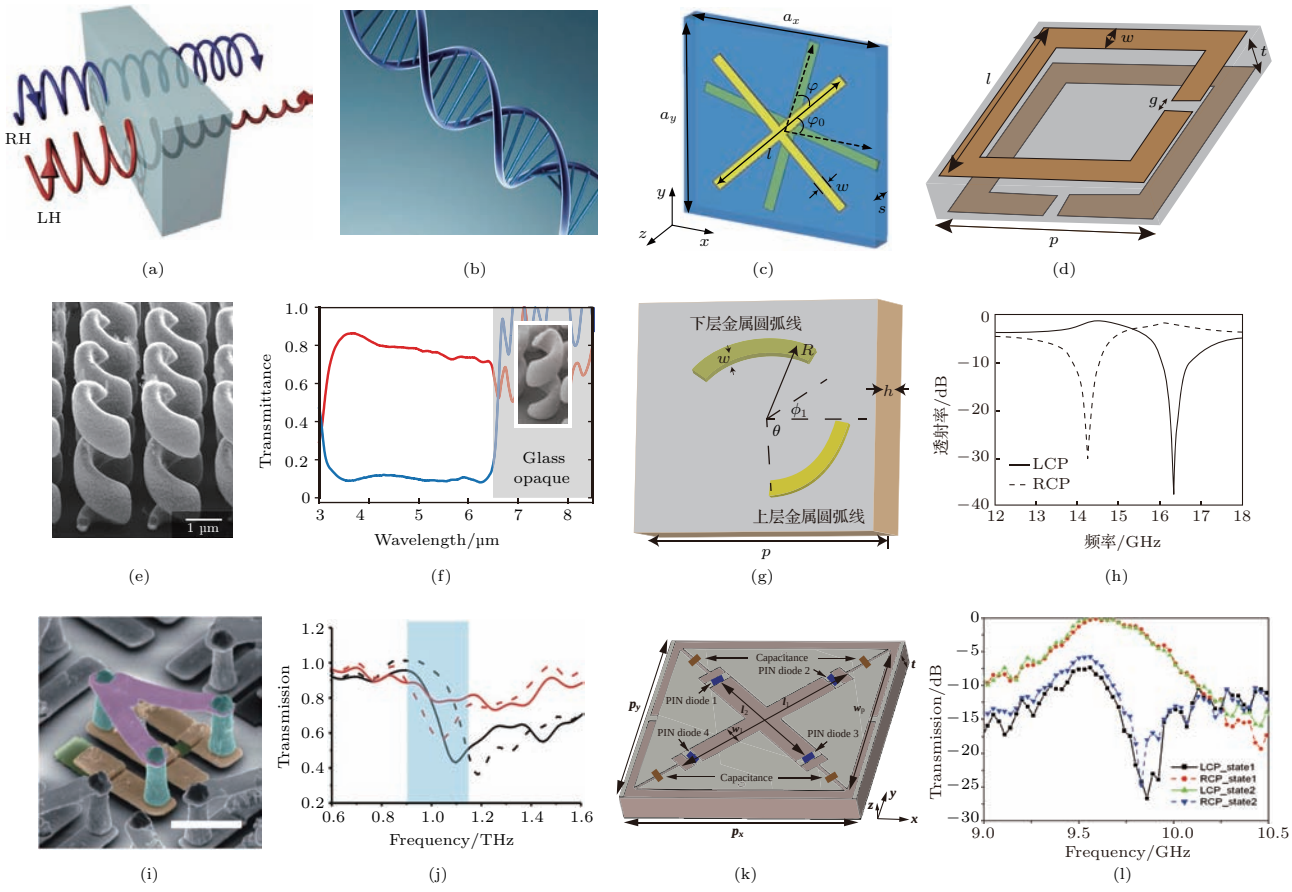


图 10 手性亚波长结构实现对电磁波的偏振调控 (a) 手性结构对圆偏振调控原理示意图[56]; (b) DNA 分子为典型的自然界手性材料; (c) 双层十字形手性亚波长结构[133]; (d) 双层开口谐振环型手性亚波长结构[134]; (e), (f) 分别为螺旋线结构的太赫兹宽带手性亚波长结构及其圆偏振透射率[122]; (g), (h) 分别为双层金属圆弧线型手性亚波长结构及其圆偏振透射率曲线[125]; (i), (j) 为基于半导体材料的动态手性亚波长结构及其圆偏振透射率曲线[56]; (k), (l) 为微波波段动态手性亚波长结构及其不同工作状态下的圆偏振透射率曲线[132]

Fig. 10. Chiral metamaterial for polarization control: (a) Principle of circular polarization manipulation in chiral materials[56]; (b) typical chiral material of DNA molecule; (c) chiral metamaterial of two-layer twisted cross structure[133]; (d) chiral metamaterial of two-layer twisted split rings[134]; (e) and (f) are the helix chiral metamaterial and its circular polarization transmission in terahertz band[122]; (g) and (h) are the chiral metamaterial with two-layer twisted arc structure and its circular polarization transmission[125]; (i) and (j) are the reconfigurable chiral metamaterial using semi-conductor and its circular polarization transmission spectra[56]; (k) and (l) are the active chiral metamaterial in microwave band and its circular polarization transmission spectra of different working states[132].

自然界中存在大量的手性结构, 例如DNA分子(如图10(b)所示)、蛋白质分子、蔗糖溶液、石英晶体等, 对手性材料的研究在生物分子探测、非线性光学等领域有重要价值. 然而自然界存在的手性材料的手性因子均较弱, 即电磁波在这些手性材料中电场和磁场之间的耦合作用极弱, 难以满足实际的偏振调控需求. 通过构造亚波长手性结构, 可以有效增强材料的手性因子, 降低对材料厚度的要求. 图10(c)和图10(d)为典型的手性亚波长结构, 分别为两层十字形[133]和开口谐振环[134]结构, 通过将两层结构依次旋转一定角度形成手性. 除了这两种结构之外, 典型的手性亚波长结构还包括U形结构[135−138]、万字形结构[139−141]、多层金属线结构等[142].

图10(e)为利用双光子工艺制备的周期性金属螺旋线结构, 这种螺旋线结构具有天然的手性, 且其旋向决定了其手性特征. 该亚波长螺旋线手性结构可在近一个倍频程(3—6 μm)范围内表现出强烈的圆二向色性[122]. 从图10(f)中的左旋圆偏振(红色曲线)和右旋圆偏振(蓝色曲线)的透射率曲线可以看出其宽带偏振调控效果. 传统的手性亚波长结构大多具有高损耗、交叉偏振态透过率差值较小的缺陷. 图10(g)所示的双层弧形金属线结构有效解决了上述问题, 该结构有效结合了手性和各向异性, 提高了能量利用率的同时明显增加了两种圆偏振电磁波在谐振频点处的透过率差值[125]. 图10(h)中的圆偏振透过率曲线显示其交叉偏振比值大于25 dB, 能量利用率大于−2.5 dB. 此外, 通过增加每一层结构中的弧形金属线的数量, 可以成倍地增加亚波长结构的工作频点个数, 为实现多频点的偏振调控提供了可行的技术途径[126]. 这种具有多频点、低损耗特性的手性亚波长结构被拓展至可见光波段[127], 并用于非线性成像[143].

与各向异性亚波长结构类似, 手性亚波长结构也可以通过结构设计实现动态的偏振调控. 但由于其结构的不对称性, 构造动态手性亚波长结构的复杂度明显超过各向异性亚波长结构. 图10(i)为Zhang等[56]提出的三维手性亚波长结构, 通过在结构中引入半导体材料, 在不同光照强度条件下, 半导体材料的电学性能分别表现为介质和金属特性, 从而在等效结构上实现亚波长结构手性特性的动态切换. 其不同工作状态下的圆偏振波透射曲线如图10(j)所示, 其中黑色曲线为没有光照条件下左旋(实线)和右旋(虚线)圆偏振透过率; 红色曲线为光照条件下左旋(实线)和右旋(虚线)圆偏振透过率. 显然通过光照强度的调控, 可以动态调节亚波长结构的手性特征. 图10(k)为微波波段的动态手性亚波长结构[132], 通过控制加载在矩形缝隙中的二极管的工作状态, 不仅可以实现其结构在手性和各向同性之间切换, 同时材料表现为手性结构时, 其手性特征还可以在左手特征和右手特征之间切换, 并且材料的损耗小于1.5 dB (如图10(l)所示), 可以应用于微波通信系统中, 实时调制出射电磁波的偏振状态.

由于手性亚波长结构中圆偏振电磁波的折射率与手性因子密切相关, Pendry[144]提出通过设计具有大手性因子的亚波长结构, 可构造出具有负折射率以及零折射率的手性亚波长结构. 前面2.1节中已经介绍, 具有近零折射率的亚波长结构可以有效提高天线的辐射方向性. 因此手性亚波长结构也可以用于天线技术中, 提高圆偏振天线的辐射性能[145−147].

5 总 结

本文综述了基于亚波长结构对电磁波衍射行为调控的新型辐射技术, 包括新型高方向性天线、低RCS天线、相控阵天线技术, 基于亚波长结构的偏振调控技术等. 从文中内容可以看出, 亚波长结构的电磁调控能力在提高天线辐射性能、降低天线剖面和尺寸等方面具有明显的优势. 我们将亚波长结构材料的种类、对天线性能的提升效果和对应的调控原理进行了总结, 列于表1, 但亚波长结构材料在天线中的应用并非仅有表中的形式.

除上述基于亚波长结构的电磁辐射调控技术之外, 亚波长结构在红外辐射、可见光辐射等领域也有极大的应用价值. 红外辐射器件在红外探测、热学成像、热光伏、被动降温等领域具有广阔的应用前景, 基于亚波长结构的新型热辐射器件可突破传统材料的限制, 其辐射带宽、辐射效率等可大幅改善[148−150].

表 1 基于亚波长结构的超构天线归纳

Table 1. Collection of meta-antennas on a sub-wavelength scale.

超构天线类型	对应的超构材料类型	调控原理
高方向性天线	光子晶体, 零折射率超构材料	基于光子晶体电磁带隙特性对电磁波的定向传导; 零折射率材料的出射场沿着法线方向传播
低 RCS 天线	吸收和透射一体化超构材料, 散射和透射一体化超构材料	电磁吸收功能实现宽带 RCS 缩减, 窄带透射功能实现天线辐射
小型化天线	人工磁导体, 高等效电磁参数超构材料	人工磁导体反射相位为 0°, 可有效降低谐振腔高度; 高等效电磁参数的茶瓯材料作为衬底, 降低天线尺寸
相控阵天线	相位调制型超构材料	构造平面相位梯度, 实现天线波束动态偏折
圆偏振天线	各向异性和手性亚波长结构	将各向异性和手性超构材料作为覆层加载到传统天线中, 构造宽带、多频、多圆极化态天线

利用电磁波在亚波长尺度内的局域谐振作用, 可以极大地增强局域场的强度, 产生超越传统性能的电磁辐射器件, 例如表面等离子体激光器[151−153], 量子级联激光器[154] 等新型纳米尺度的激光光源. 这些基于表面等离子体的纳米激光器将亚波长纳米结构增益介质与谐振腔集成, 通过表面等离子体实现光场调控和激发. 利用表面等离子体的短波长特性以及局域场增强特性, 使光场能量集中在纳米线中心区域, 可突破传统光学衍射极限, 构造适用于片上系统的集成化光源. 上述新型电磁辐射技术体现了亚波长结构对电磁波衍射效应的调控能力, 为高性能电磁辐射器件的设计提供了全新的技术手段, 可有效解决传统技术对材料特性的依赖. 目前基于亚波长结构的电磁辐射器件在宽带、多功能化、小型化等方面仍存在部分难题尚未解决, 但是其相对于传统辐射技术的优势是不言而喻的, 可以预期这种新型的电磁辐射技术的应用前景将极为广阔.

参考文献

[1] Ebbesen T W, Lezec H J, Ghaemi H F, Thio T, Wolff P A 1998 *Nature* **391** 667

[2] Lezec H J, Degiron A, Devaux E, Linke R A, Martin-Moreno L, Garcia-Vidal F J, Ebbesen T W 2002 *Science* **297** 820

[3] Smith A T, Simonson D, Charipar N A, Piqué A 2012 *J. Laser MicroNanoengin.* **7** 306

[4] Tellechea A, Martini E, Gonzalez-Ovejero D, Faenzi M, Minatti G, Maci S 2015 *2015 9th Eur. Conf. Antennas Propag. EuCAP* p1

[5] Temelkuran B, Bayindir M, Ozbay E, Biswas R, Sigalas M M, Tuttle G, Ho K M 2000 *J. Appl. Phys.* **87** 603

[6] Caglayan H, Bulu I, Ozbay E 2005 *Opt. Express* **13** 7645

[7] Thevenot M, Cheype C, Reineix A, Jecko B 1999 *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* **47** 2115

[8] Leger L, Monediere T, Jecko B 2005 *IEEE Microw. Wirel. Compon. Lett.* **15** 573

[9] Bulu I, Caglayan H, Ozbay E 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 3263

[10] Liberal I, Engheta N 2017 *Nat. Photon.* **11** 149

[11] Erfani E, Niroo-Jazi M, Tatu S 2016 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **64** 1968

[12] Wu S, Yi Y, Yu Z, Huang X, Yang H 2016 *J. Electromagn. Waves Appl.* **30** 1993

[13] Wu Q, Pan P, Meng F Y, Li L W, Wu J 2007 *Appl. Phys. -Mater. Sci. Process.* **87** 151

[14] Pendry J, Holden A, Stewart W, Youngs I 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 4773

[15] Pendry J B, Holden A J, Robbins D J, Stewart W J 1999 *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* **47** 2075

[16] Enoch S, Tayeb G, Sabouroux P, Guerin N, Vincent P 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 213902

[17] Huang C, Zhao Z, Wang W, Luo X 2009 *J. Infrared Millim. Terahertz Waves* **30** 700

[18] Xu H X, Wang G M, Cai T 2014 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **62** 3141

[19] Alireza F, Lotfollah S 2011 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **59** 4

[20] Ranga Y, Matekovits L, Esselle K P, Weily A R 2011 *IEEE Antennas Wirel. Propag. Lett.* **10** 219

[21] Lee D H, Lee Y J, Yeo J, Mittra R, Park W S 2007 *IET Microw. Antennas Propag.* **1** 248

[22] Huang C, Zhao Z, Luo X 2010 *Microw. Opt. Technol. Lett.* **52** 160

[23] Xu H X, Wang G M, Tao Z, Cai T 2014 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **62** 4823

[24] Xu H X, Wang G M, Tao Z, Cui T J 2014 *Sci. Rep.* **4** 5744

[25] Pan W, Huang C, Chen P, Ma X, Hu C, Luo X 2014 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **62** 945

[26] Jiang H, Xue Z, Li W, Ren W, Cao M 2016 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **64** 4127

[27] Zhao Y, Cao X, Gao J, Yao X, Liu X 2015 *IEEE Antennas Wirel. Propag. Lett.* **15** 290

[28] Huang C, Pan W, Ma X, Luo X 2016 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **64** 1173

[29] Lier E, Werner D H, Scarborough C P, Wu Q, Bossard J A 2011 *Nat. Mater.* **10** 216

[30] Yu A, Yang F, Elsherbeni A 2008 *Prog. Electromagn. Res.* **78** 73

[31] Zhao G, Jiao Y C, Yang X, Li C, Song Y 2009 *Microw. Opt. Technol. Lett.* **51** 1790

[32] Bilotti F, Alu A, Vegni L 2008 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **56** 1640

[33] Buell K, Mosallaei H, Sarabandi K 2006 *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* **54** 135

[34] Feresidis A P, Goussetis G, Wang S, Vardaxoglou J C 2005 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **53** 209

[35] Luo X 2015 *Sci. China: Phys. Mech. Astron.* **58** 594201

[36] Luo X G 2016 *Sub-Wavelength Electromagnetics* (Vol.1) (Beijing: Science Press) pp210–213 (in Chinese) [罗先刚 2016 亚波长电磁学 (上册) (北京: 科学出版社) 第210—213页]

[37] Wei Z, Cao Y, Su X, Gong Z, Long Y, Li H 2013 *Opt. Express* **21** 10739

[38] Wang H, Deng Y, He J, Gao P, Yao N, Wang C, Zhao Z, Wang J, Jiang B, Luo X 2014 *J. Nanophoton.* **8** 083079

[39] Jiang M, Chen Z N, Zhang Y, Hong W, Xuan X 2017 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **65** 464

[40] Xu T, Wang C, Du C, Luo X 2008 *Opt. Express* **16** 4753

[41] Xu T, Zhao Y, Gan D, Wang C, Du C, Luo X 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 101501

[42] Li Y, Li X, Pu M, Zhao Z, Ma X, Wang Y, Luo X 2016 *Sci. Rep.* **6** 19885

[43] Verslegers L, Catrysse P B, Yu Z, White J S, Barnard E S, Brongersma M L, Fan S 2009 *Nano Lett.* **9** 235

[44] Verslegers L, Catrysse P B, Yu Z, Fan S 2009 *Appl. Phys. Lett.* **95** 071112

[45] Bohn B J, Schnell M, Kats M, Aieta F, Hillenbrand R, Capasso F 2015 *Nano Lett.* **15** 3851

[46] Lin D, Fan P, Hasman E, Brongersma M L 2014 *Science* **345** 298

[47] Arbabi A, Horie Y, Ball A J, Bagheri M, Faraon A 2015 *Nat. Commun.* **6** 7069

[48] Xu H X, Tang S, Ma S, Luo W, Cai T, Sun S, He Q, Zhou L 2016 *Sci. Rep.* **6** 38255

[49] Lau J Y, Hum S V 2012 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **60** 5679

[50] Huang C, Pan W, Ma X, Zhao B, Cui J, Luo X 2015 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **63** 4801

[51] Chen Y, Li X, Sonnefraud Y, Fernández-Domínguez A I, Luo X, Hong M, Maier S A 2015 *Sci. Rep.* **5** 8660

[52] Sieber P E, Werner D H 2013 *Opt. Express* **21** 1087

[53] Orazbayev B, Beruete M, Khromova I 2016 *Opt. Express* **24** 8848

[54] Lee S H, Choi J, Kim H D, Choi H, Min B 2013 *Sci. Rep.* **3** 2135

[55] Chen P Y, Farhat M, Askarpour A N, Tymchenko M, Alù A 2014 *J. Opt.* **16** 094008

[56] Zhang S, Zhou J, Park Y S, Rho J, Singh R, Nam S, Azad A K, Chen H T, Yin X, Taylor A J, Zhang X 2012 *Nat. Commun.* **3** 942

[57] Steinbusch T P, Tyagi H K, Schaafsma M C, Georgiou G, Rivas J G 2014 *Opt. Express* **22** 26559

[58] Kwong D, Hosseini A, Zhang Y, Chen R T 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 051104

[59] Schuller J A, Taubner T, Brongersma M L 2009 *Nat. Photon.* **3** 658

[60] Bharadwaj P, Deutsch B, Novotny L 2009 *Adv. Opt. Photon.* **1** 438

[61] Knight M W, Sobhani H, Nordlander P, Halas N J 2011 *Science* **332** 702

[62] Yu N, Genevet P, Kats M A, Aieta F, Tetienne J P, Capasso F, Gaburro Z 2011 *Science* **334** 333

[63] Aieta F, Genevet P, Kats M, Capasso F 2013 *Opt. Express* **21** 31530

[64] Genevet P, Capasso F 2015 *Rep. Prog. Phys.* **78** 024401

[65] Yu N, Capasso F 2014 *Nat. Mater.* **13** 139

[66] Khorasaninejad M, Chen W T, Devlin R C, Oh J, Zhu A Y, Capasso F 2016 *Science* **352** 1190

[67] Berry M V 1984 *Proc. R. Soc. Lond. Math. Phys. Eng. Sci.* **392** 45

[68] Anandan J 1992 *Nature* **360** 307

[69] Pfeiffer C, Grbic A 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 231116

[70] Sazegar M, Zheng Y, Kohler C, Maune H, Nikfalazar M, Binder J R, Jakoby R 2012 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **60** 5690

[71] Li Y B, Cai B G, Cheng Q, Cui T J 2016 *Adv. Funct. Mater.* **26** 29

[72] Jiang T, Wang Z, Li D, Pan J, Zhang B, Huangfu J, Salamin Y, Li C, Ran L 2012 *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* **60** 170

[73] Huang C, Pan W, Luo X 2016 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **64** 4471

[74] Pan W, Huang C, Ma X, Jiang B, Luo X 2015 *IEEE Antennas Wirel. Propag. Lett.* **14** 167

[75] Pan W, Huang C, Pu M, Ma X, Cui J, Zhao B, Luo X 2016 *Sci. Rep.* **6** 21462

[76] Zhao Z Y, Pu M B, Wang Y Q, Luo X G 2017 *Opto-Elec. Eng.* **44** 129 (in Chinese) [赵泽宇, 蒲明博, 王彦钦, 罗先刚 2017 光电工程 **44** 129]

[77] Aieta F, Kats M A, Genevet P, Capasso F 2015 *Science* **347** 1342

[78] Yu N, Genevet P, Aieta F, Kats M A, Blanchard R, Aoust G, Tetienne J P, Gaburro Z, Capasso F 2013 *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **19** 4700423

[79] Gao X, Han X, Cao W P, Li H O, Ma H F, Cui T J 2015 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **63** 3522

[80] Ni X, Emani N K, Kildishev A V, Boltasseva A, Shalaev V M 2012 *Science* **335** 427

[81] Yu N, Aieta F, Genevet P, Kats M A, Gaburro Z, Capasso F 2012 *Nano Lett.* **12** 6328

[82] Lin J, Wu S, Li X, Huang C, Luo X 2013 *Appl. Phys. Express* **6** 022004

[83] Qin F, Ding L, Zhang L, Monticone F, Chum C C, Deng J, Mei S, Li Y, Teng J, Hong M, Zhang S, Alù A, Qiu C W 2016 *Sci. Adv.* **2** e1501168

[84] Li J, Verellen N, Vercruysse D, Bearda T, Lagae L, Dorpe P V 2016 *Nano Lett.* **16** 4396

[85] Yang Y, Wang W, Moitra P, Kravchenko I I, Briggs D P, Valentine J 2014 *Nano Lett.* **14** 1394

[86] Ma X, Pu M, Li X, Huang C, Wang Y, Pan W, Zhao B, Cui J, Wang C, Zhao Z, Luo X 2015 *Sci. Rep.* **5** 10365

[87] Arbabi A, Horie Y, Bagheri M, Faraon A 2015 *Nat. Nanotechnol.* **10** 937

[88] Zhang Z, Luo J, Song M, Yu H 2015 *Appl. Phys. Lett.* **107** 241904

[89] Zhao Z, Pu M, Gao H, Jin J, Li X, Ma X, Wang Y, Gao P, Luo X 2015 *Sci. Rep.* **5** 15781

[90] Li X, Pu M, Zhao Z, Ma X, Jin J, Wang Y, Gao P, Luo X 2016 *Sci. Rep.* **6** 20524

[91] Pu M, Li X, Ma X, Wang Y, Zhao Z, Wang C, Hu C, Gao P, Huang C, Ren H, Li X, Qin F, Gu M, Hong M, Luo X 2015 *Sci. Adv.* **1** e1500396

[92] Wang Y, Pu M, Zhang Z, Li X, Ma X, Zhao Z, Luo X 2015 *Sci. Rep.* **5** 17733

[93] Luo X, Pu M, Li X, Ma X 2017 *Light Sci. Appl.* **6** e16276

[94] Li X, Pu M, Wang Y, Ma X, Li Y, Gao H, Zhao Z, Gao P, Wang C, Luo X 2016 *Adv. Opt. Mater.* **4** 659

[95] Ni X, Ishii S, Kildishev A V, Shalaev V M 2013 *Light Sci. Appl.* **2** e72

[96] Li X, Chen L, Li Y, Zhang X, Pu M, Zhao Z, Ma X, Wang Y, Hong M, Luo X 2016 *Sci. Adv.* **2** e1601102

[97] Pu M, Zhao Z, Wang Y, Li X, Ma X, Hu C, Wang C, Huang C, Luo X 2015 *Sci. Rep.* **5** 9822

[98] Xu H X, Wang G M, Cai T, Xiao J, Zhuang Y Q 2016 *Opt. Express* **24** 27836

[99] Li X, Ma X L, Luo X G 2017 *Opto-Elec. Eng.* **44** 255 (in Chinese) [李雄, 马晓亮, 罗先刚 2017 光电工程 **44** 255]

[100] Cong L, Xu N, Han J, Zhang W, Singh R 2015 *Adv. Mater.* **27** 6630

[101] Pu M, Chen P, Wang Y, Zhao Z, Huang C, Wang C, Ma X, Luo X 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 131906

[102] Shen B, Wang P, Polson R, Menon R 2014 *Optica* **1** 356

[103] Ma H F, Wang G Z, Kong G S, Cui T J 2014 *Opt. Mater. Express* **4** 1717

[104] Sun W, He Q, Hao J, Zhou L 2011 *Opt. Lett.* **36** 927

[105] Wang Y, Pu M, Hu C, Zhao Z, Wang C, Luo X 2014 *Opt. Commun.* **319** 14

[106] Grady N K, Heyes J E, Chowdhury D R, Zeng Y, Reiten M T, Azad A K, Taylor A J, Dalvit D A R, Chen H T 2013 *Science* **340** 1304

[107] Ma X, Huang C, Pu M, Hu C, Feng Q, Luo X 2012 *Microw. Opt. Technol. Lett.* **54** 1770

[108] Jiang Z H, Lin L, Ma D, Yun S, Werner D H, Liu Z, Mayer T S 2014 *Sci. Rep.* **4** 7511

[109] Young L, Robinson L A, Hacking C 1973 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **21** 376

[110] Guo Y, Wang Y, Pu M, Zhao Z, Wu X, Ma X, Wang C, Yan L, Luo X 2015 *Sci. Rep.* **5** 8434

[111] Cui J, Huang C, Pan W, Pu M, Guo Y, Luo X 2016 *Sci. Rep.* **6** 30771

[112] Zhu W M, Liu A Q, Bourouina T, Tsai D P, Teng J H, Zhang X H, Lo G Q, Kwong D L, Zheludev N I 2012 *Nat. Commun.* **3** 1274

[113] Wang D, Zhang L, Gu Y, Mehmood M Q, Gong Y, Srivastava A, Jian L, Venkatesan T, Qiu C W, Hong M 2015 *Sci. Rep.* **5** 15020

[114] Guo Y H, Pu M B, Ma X L, Li X, Luo X G 2017 *Opto-Elec. Eng.* **44** 3 (in Chinese) [郭迎辉, 蒲明博, 马晓亮, 李雄, 罗先刚 2017 光电工程 **44** 3]

[115] Yi G, Huang C, Ma X, Pan W, Luo X 2014 *Microw. Opt. Technol. Lett.* **56** 1281

[116] Wang D, Zhang L, Gong Y, Jian L, Venkatesan T, Qiu C W, Hong M 2016 *Photonics J. IEEE* **8** 5500308

[117] Xu H X, Sun S L, Tang S W, Ma S J, He Q, Wang G M, Cai T, Li H P, Zhou L 2016 *Sci. Rep.* **6** 27503

[118] Arnaud E, Chantalat R, Koubeissi M, Monediere T, Thevenot M, Jecko B 2009 *Proc. EuCAP* 3813

[119] Arnaud E, Chantalat R, Koubeissi M, Monediere T, Rodes E, Thevenot M 2010 *IEEE Antennas Wirel. Propag. Lett.* **9** 215

[120] Ren L, Jiao Y, Li F, Zhao J, Zhao G 2011 *IEEE Antennas Wirel. Propag. Lett.* **10** 407

[121] Bai B, Svirko Y, Turunen J, Vallius T 2007 *Phys. Rev. A* **76** 023811

[122] Gansel J K, Thiel M, Rill M S, Decker M, Bade K, Saile V, von Freymann G, Linden S, Wegener M 2009 *Science* **325** 1513

[123] Gansel J K, Wegener M, Burger S, Linden S 2010 *Opt. Express* **18** 1059

[124] Kaschke J, Wegener M 2015 *Opt. Lett.* **40** 3986

[125] Ma X, Huang C, Pu M, Hu C, Feng Q, Luo X 2012 *Opt. Express* **20** 16050

[126] Ma X, Huang C, Pu M, Wang Y, Zhao Z, Wang C, Luo X 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 161901

[127] Cui Y, Kang L, Lan S, Rodrigues S, Cai W 2014 *Nano Lett.* **14** 1021

[128] Li Y, Huang Q, Wang D C, Li X, Hong M H, Luo X G 2014 *Appl. Phys. A* **115** 57

[129] Zhang S, Park Y S, Li J, Lu X, Zhang W, Zhang X 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 023901

[130] Du L, Kou S S, Balaur E, Cadusch J J, Roberts A, Abbey B, Yuan X C, Tang D, Lin J 2015 *Nat. Commun.* **6** 10051

[131] Zhao Y, Belkin M A, Alù A 2012 *Nat. Commun.* **3** 870

[132] Ma X, Pan W, Huang C, Pu M, Wang Y, Zhao B, Cui J, Wang C, Luo X 2014 *Adv. Opt. Mater.* **2** 945

[133] Soukoulis C M, Wegener M 2011 *Nat. Photonics* **5** 523

[134] Huang C, Ma X, Pu M, Yi G, Wang Y, Luo X 2013 *Opt. Commun.* **291** 345

[135] Mutlu M, Akosman A E, Serebryannikov A E, Ozbay E 2011 *Opt. Lett.* **36** 1653

[136] Xiong X, Sun W H, Bao Y J, Wang M, Peng R W, Sun C, Lu X, Shao J, Li Z F, Ming N B 2010 *Phys. Rev. B* **81** 075119

[137] Li Z, Zhao R, Koschny T, Kafesaki M, Alici K, Colak E, Caglayan H, Ozbays E, Soukoulis C 2010 *Appl. Phys. Lett.* **97** 081901

[138] Mutlu M, Akosman A E, Serebryannikov A E, Ozbay E 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 213905

[139] Zarifi D, Soleimani M, Nayyeri V 2012 *IEEE Antennas Wirel. Propag. Lett.* **11** 334

[140] Huang W X, Zhang Y, Tang X M, Cai L S, Zhao J W, Zhou L, Wang Q J, Huang C P, Zhu Y Y 2011 *Opt. Lett.* **36** 3359

[141] Zhou J, Chowdhury D R, Zhao R, Azad A K, Chen H T, Soukoulis C M, Taylor A J, O'Hara J F 2012 *Phys. Rev. B* **86** 035448

[142] Liu M, Powell D A, Shadrivov I V, Kivshar Y S 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 111114

[143] Rodrigues S P, Lan S, Kang L, Cui Y, Cai W 2014 *Adv. Mater.* **26** 6157

[144] Pendry J B 2004 *Science* **306** 1353

[145] Hosseininnejad S E, Komjani N, Zarifi D, Rajabi M 2012 *IEICE Electron. Express* **9** 117

[146] Zarifi D, Oraizi H, Soleimani M 2012 *Prog. Electromagn. Res. Lett.* **123** 337

[147] Ma X, Huang C, Pan W, Zhao B, Cui J, Luo X 2014 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **62** 2307

[148] Raman A P, Anoma M A, Zhu L, Rephaeli E, Fan S 2014 *Nature* **515** 540

[149] Hossain M M, Jia B, Gu M 2015 *Adv. Opt. Mater.* **3** 1047

[150] Zhu L, Raman A P, Fan S 2015 *PNAS* **112** 12282

[151] Oulton R F, Sorger V J, Genov D A, Pile D F P, Zhang X 2008 *Nat. Photon.* **2** 496

[152] Noginov M A, Zhu G, Belgrave A M, Bakker R, Shalaev V M, Narimanov E E, Stout S, Herz E, Suteewong T, Wiesner U 2009 *Nature* **460** 1110

[153] Oulton R F, Sorger V J, Zentgraf T, Ma R M, Gladden C, Dai L, Bartal G, Zhang X 2009 *Nature* **461** 629

[154] Yu N, Fan J, Wang Q J, Pflugl C, Diehl L, Edamura T, Yamanishi M, Kan H, Capasso F 2008 *Nat. Photon.* **2** 564

SPECIAL ISSUE—Diffraction limit of electromagnetic waves

Meta-antenna: principle, device and application*

Ma Xiao-Liang Li Xiong Guo Ying-Hui Zhao Ze-Yu Luo Xian-Gang†

(*State Key Laboratory of Optical Technologies on Nano-Fabrication and Micro-Engineering, Institute of Optics and Electronics, Chinese Academy of Sciences, Chengdu 610209, China*)

(Received 17 April 2017; revised manuscript received 14 May 2017)

Abstract

Since electromagnetic waves were discovered, effectively controlling them has been a goal and radiators with better characteristics have always been chased by researchers. However, limited by the electromagnetic properties of nature materials, traditional radiation technology is reaching its bottleneck. For example, traditional microwave antenna has the disadvantages of large volume, heavy weight, narrow operating frequency band, etc., and cannot satisfy the development requirement of modern communication systems. Therefore, the state-of-art radiation technology meets the challenge of minimizing the size and broadening the bandwidth of radiators, and constructingmulti-functional and reconfigurable antennas. In recent years, metamaterials have aroused great interest due to the extraordinary diffraction manipulation on a subwavelength scale. Fruitful bizarre electromagnetic phenomena, such as negative refraction index, planar optics, perfect lens, etc. have been observed in metamaterials, and the corresponding theories improve the fundamental principle systems of electromagnetics. Based on these novel theories, a series of new radiators has been proposed, which has effectively overcome the difficulties in traditional radiation technology and broken through the limits of natural electromagnetic materials. The relating theory and technology may greatly promote the development of electromagnetics, optics, materials.

In this article, we mainly review the recent progress in the novel electromagnetic radiation technology based on metamaterials, which is named meta-antenna, including the principle of diffraction manipulation of metamaterial to control the amplitude, phase and polarization of the incident electromagnetic waves. Subsequently, a series of radiation devices is introduced, including the new phased array antenna on the concept of phase manipulating metamaterial, and the high directivity antenna based on zero refraction index metamaterial and photonic crystal, and the low RCS antenna simultaneously has the functions of gain enhancement and stealth ability. Besides, the polarization manipulation characteristics of metamaterial are also reviewed. The anisotropic and chiral metamaterials are analyzed, and several polarizers with broadband characteristics and reconfigurable ability are introduced. Furthermore, due to the importance as future radiation sources, nanolasers that work on a subwavelengh scale are demonstrated. Finally, we point out the current problems and future trend of the radiation technology based on metamaterials.

Keywords: subwavelength, metamaterial, meta-antenna, diffraction manipulation

PACS: 78.67.Pt, 43.35.Bf, 52.40.Fd, 42.25.Bs **DOI:** 10.7498/aps.66.147802

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2013CBA01700) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61405201, 61675208).

† Corresponding author. E-mail: lxg@ioe.ac.cn

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

利用波矢滤波超表面实现超衍射成像

郭畅　张岩

Super diffraction imaging with wave vector selective metasurface

Guo Chang　Zhang Yan

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 147804 (2017)　DOI: 10.7498/aps.66.147804
在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.147804
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I14

您可能感兴趣的其他文章
Articles you may be interested in

小波变换在太赫兹三维成像探测内部缺陷中的应用
Wavelet transform in the application of three-dimensional terahertz imaging for internal defect detection
物理学报.2017, 66(8): 088701　http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.088701

雪崩倍增GaAs光电导太赫兹辐射源研究进展
Research progress on avalanche multiplication GaAs photoconductive terahertz emitter
物理学报.2015, 64(22): 228702　http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.228702

太赫兹人工电磁媒质研究进展
Progress of terahertz metamaterials
物理学报.2015, 64(22): 228701　http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.228701

血凝素蛋白及抗体相互作用的太赫兹光谱主成分分析
Principal component analysis of terahertz spectrum on hemagglutinin protein and its antibody
物理学报.2015, 64(16): 168701　http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.168701

相位补偿算法对提高太赫兹雷达距离像分辨率的研究
Improvement in the range resolution of THz radar using phase compensation algorithm
物理学报.2014, 63(14): 148701　http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.148701

专题: 电磁波衍射极限

利用波矢滤波超表面实现超衍射成像*

郭畅 张岩†

(首都师范大学物理系, 北京市成像技术高精尖中心, 北京市超材料与器件重点实验室, 太赫兹光电子学教育部重点实验室, 北京 100048)

(2017年5月17日收到; 2017年7月13日收到修改稿)

超衍射成像是当前光学领域的研究热点. 本文利用一种不对称分裂环超表面结构来实现超衍射成像, 该结构由上下两个不对称的金属环组成, 通过集体陷模共振可实现对入射光的波矢选择性透过. 当物体发出或反射的光照射到超表面上时, 入射角大于某一角度的入射光会被共振电场耦合吸收或反射, 只有低空间频率的光波可以通过, 从而减小衍射的影响, 实现超衍射成像. 数值模拟结果表明了这一方法的可行性.

关键词: 超材料, 太赫兹, 频率选择表面, 超衍射

PACS: 78.67.Pt, 87.50.U–, 42.25.Bs **DOI:** 10.7498/aps.66.147804

1 引 言

在过去20年中, 太赫兹 (Terahertz, THz) 成像技术得到了迅速的发展. 由于太赫兹辐射对样品的损伤远小于X光, 并且能穿透干燥的非极性介质, 在医学[1]、通信[2]、无损检测[3]以及航空航天[4]等领域都有很重要的应用. 但是由于太赫兹辐射的波长较大, 容易在传播中发生衍射, 使得太赫兹图像模糊不清, 需要经过后期处理才能得到高分辨率图像. 消除太赫兹波衍射过程的影响, 提高成像分辨率, 对太赫兹成像技术的发展十分必要.

当物体发射或反射的光经过衍射, 携带物体高频信息的光具有更大的波矢, 衍射的角度会更大, 因此, 一个点光源经过衍射就会形成一个衍射光斑. 传统的成像系统利用透镜收集衍射的高频信息, 然后重新组合得到图像, 如果收集的高频信息足够多, 物体就可以得到高精度的重建, 所以人们不断增加成像系统的数值孔径来获取更多的高频信息, 从而提高图像的分辨率. 但是我们可以从另一个方面来考虑超衍射成像. 物体的衍射是由于空间高频分量具有更大的衍射角, 如果可以设计一种器件, 去除衍射空间高频衍射模糊, 只保留与原结构调制相同的低频信息, 也可以有效地提高成像质量. 研究者们提出了一种具有波矢选择性透过的超表面结构[5], 这种结构只允许垂直入射到该表面的光透过, 而具有较大入射角的光会被结构反射或吸收. 本文尝试将这种波矢选择超表面应用到成像系统中, 利用其空间低通滤波的效果, 降低空间衍射的作用, 提高成像分辨率. 基于波矢选择超表面的超衍射成像原理如图1所示, 物体发出或者反射的光照射在超表面器件上. 由于超表面器件具有波矢选择性透过, 携带物体空间高频分量的光具有更大的波矢, 经过空间传播后照在超表面上具有更大的入射角, 结构将反射或吸收这部分能量, 只有垂直入射的可以高效地通过结构, 在成像平面上产生图像. 超表面结构有效地实现空间滤波, 缩小了成像系统的点脉冲响应函数, 从而达到提高成像分辨率的目的.

平面超材料即超表面, 是一种经过特殊设计的层状结构. 这种结构具有一个厚度远小于工作波长的金属薄层, 薄层中图案的特征尺度远小于工作波长. 随着人工结构设计和加工技术的发展, 人们已经通过超表面技术制备了具有负折射率[6]、隐身[7]、磁镜[8]、非对称传输等[9]各种特性的材料.

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2013CBA01702)、国家自然科学基金 (批准号: 11474206, 91233202, 11374216, 11404224)、新世纪优秀人才项目 (批准号: NCET-12-0607) 和北京市教委科研项目 (批准号: KM201310028005) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yzhang@cnu.edu.cn

© 2017 中国物理学会 Chinese Physical Society

超表面材料还会增强光与物质间的相互作用[10], 产生相干辐射[11,12]. 本文将利用超表面材料实现太赫兹波段的波矢选择性透过, 通过合理设计超表面中微结构的结构参数与分布, 实现对物体衍射光波的波矢滤波, 将具有强衍射的高频分量滤除, 缩小成像系统的点脉冲响应函数, 最终达到超衍射成像的目的. 数值模拟的成像效果证明了该方法的可行性.

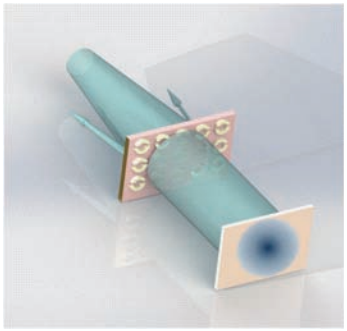


图 1 基于波矢量滤波超表面实现超衍射成像系统示意图

Fig. 1. Schematic diagram of a super diffraction imaging system based on wave vector selective metasurface.

2 结构设计

通常的超表面材料关注的是单个单元的个体共振, 相邻单元相距较远, 单元间的耦合非常微弱. 当单元间的距离变小, 相邻单元间电磁耦合变强[13], 超表面的响应光谱就不再由单元个体共振来决定, 激发光的入射角度变得非常重要, 此时电磁响应光谱由单元激励产生的集体模式和空间相干模式决定[14]. 本文选择的超表面结构是阵列排布的不对称分裂环矩阵, 周期性排列在介质基底上, 阵列周期 $d = 100$ μm. 单元结构如图 2 (a) 所示, 为一对不同长度的金属环, 半径为 40 μm, 金属丝宽为 10 μm, 上下两个圆弧分别为左右对称的 140° 和 150°. 器件的工作波段为太赫兹波. 利用基于时域有限差分 (FDTD) 法的 FDTD solution 软件对平面波经过该结构的传播特性进行了计算. 计算时金属为完美电导体. 样品选用硅基底, 在太赫兹波段的折射率为 3.4. 光源在基底前 1000 μm 处, 光源

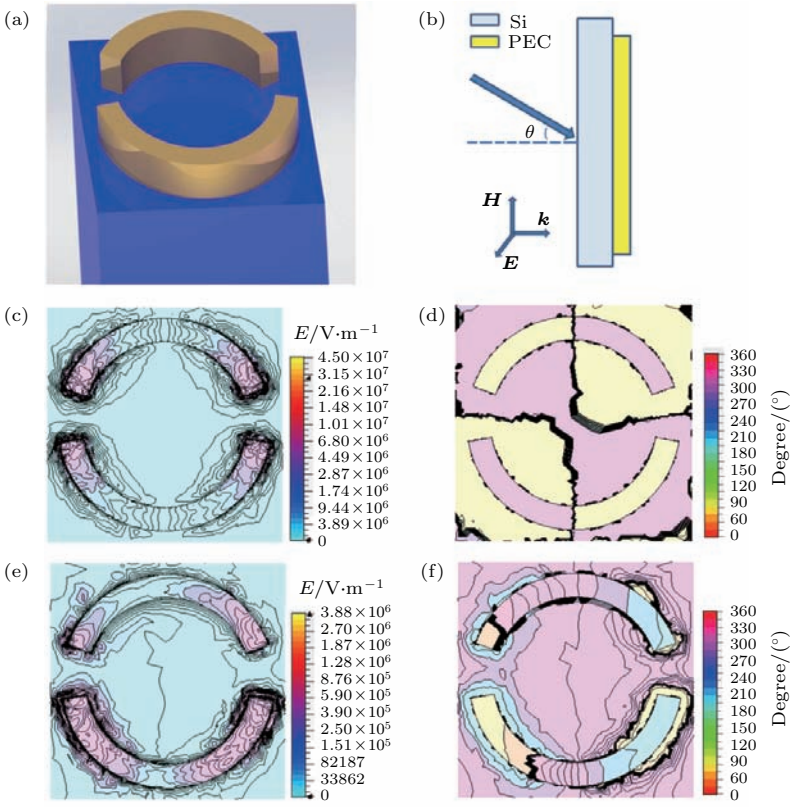


图 2 (a) 不对称分裂环结构立体示意图; (b) 不对称分裂环结构侧面示意图; (c) 垂直入射时的电场分布; (d) 垂直入射时的位相分布; (e) 倾斜入射时的电场分布; (f) 倾斜入射时的位相分布

Fig. 2. (a) Schematic of asymmetrically split ring; (b) side view of the structure; (c) field and (d) phase distributions of wave vector selective metasurface for normally incident wave; (e) field and (f) phase distributions for obliquely incident wave.

面积为100 μm × 3000 μm, 以高斯光束垂直照射超表面, 入射光的偏振方向平行于环的分裂方向. 图2 (b) 为图2 (a) 的顶面示意图, 其中θ为入射角. 波阵面模拟区域是12800 μm × 100 μm × 2900 μm.

在不同倾斜角度入射的照明光照射下, 所选超表面结构的频谱响应如图3所示. 可以发现结构中产生了窄带共振, 即频率选择. 由于超分子结构的对称性破缺, 周期性自由空间耦合产生了陷模, 继而由陷模激励产生了窄带共振. 图3中实线为垂直入射时透射光的频谱, 虚线和点划线分别是入射角为32°和56°时的归一化透过幅度. 当照明光垂直入射时, 超表面发生了明显的共振, 共振频率为0.456 THz. 随着入射角度的增大, 共振峰产生了明显的蓝移. 为了获得最好的波矢选择特性, 工作频率设定为0.454 THz. 可以看到, 随着入射角从0°增加到56°, 0.454 THz 处的透过率明显下降, 归一化后透过率由0.91 降低到0.087. 图2 (c), (d), (e) 和 (f) 分别给出了垂直照明和56°倾斜照明下, 超表面结构上一个周期单元内的电场分布以及位相分布. 电场单位为V/m, 位相单位为(°). 在图2 (c) 和图2 (d) 中的垂直照明情况下, 单元结构中的上下两个金属圆弧以相同的振幅但相反的位相进行振荡. 这个电流结构引起的电磁散射非常微弱, 从而减少了相邻单元之间的耦合以及辐射损失. 因此感应电流形成了陷模共振模式, 可以达到一个非常高的Q值, 产生很强的振荡[15]. 当入射光频率稍稍偏离共振峰时, 如图2 (e) 和图2 (f) 所示, 不对称分裂环的上下两个圆弧中的电流不再反相振荡, 且其中一个圆弧中的激励大于另一个[16], 结构便偏离了陷模共振模式, 透过率大大降低.

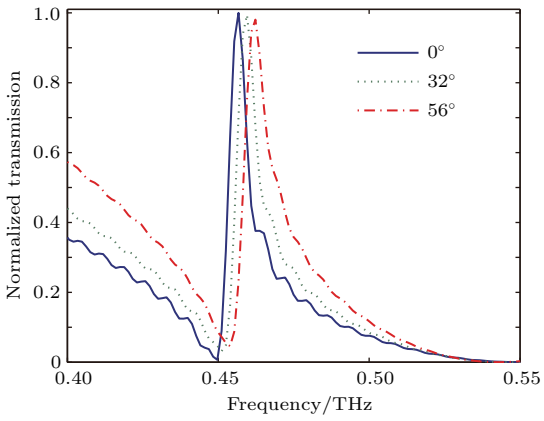


图3 集体陷模共振时的透射光在不同入射角时的频谱

Fig. 3. Transmission spectrum of the selected structure in collective trapped mode with different incident angles.

为了验证不对称分裂环结构对入射光的矢量滤波效果, 本文模拟了单一频率光源对超表面结构进行照明时, 透射振幅随入射角度变化. 照明光频率为0.454 THz. 如图4所示, 可以看到透射振幅呈现出明显的低通特性, 透过率随着入射角的变大而减小. 当入射角大于30°时, 透射振幅降低到垂直入射时振幅的60%, 强度降为峰值的36% 以下. 数值模拟表明, 当结构更加不对称时, 超材料对角度的选择性也会增加.

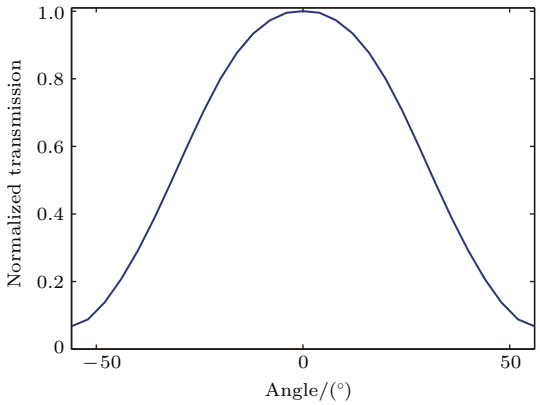


图4 集体陷模共振时, 0.454THz 透射光幅值随入射角的变化.

Fig. 4. Transmission of 0.454 THz light for different incident angles.

本文选用的不对称分裂环结构只有在入射光偏振方向平行于分裂口, 即TM偏振波激发时才能实现矢量滤波效应, 这是因为TE偏振波入射时产生的是磁场耦合, 而TM偏振波入射时产生的是电场耦合. 当入射光为TE偏振时, 此时磁偶极子间相互作用能为

$$\langle U^m \rangle \propto \frac{m_z^2}{d^3} \cos\left(k_{//} d\right), \tag{1}$$

其中d为单元结构的周期长度, m_z为光激发的磁偶极子强度. 在$k_{//}=0$时, $\cos(k_{//}d)$取最大值. 随着入射角的增大, $k_{//}$会不断变大, 而磁偶极子间相互作用力以及TE波激发的集体陷模能量则会逐渐减小. 当入射光为TM偏振时, 由于其垂直入射时超分子间吸引力耦合到的能量已经是最小值, 随着入射角的增大, 耦合到的由TM 波激发的陷模能量只会不断增加, 此时就会引起与陷模有关的透射峰的蓝移.

可以看到, 单元结构间的强耦合导致了一个“视野狭窄”现象, 即在光的传播方向上产生一个很窄的连续透明窗口. 这种效应一般会伴随对入射波前的“矫正”. 没有任何空间调制或自适应反馈的初

始球面波在通过波矢选择超表面结构后, 就会变成平行于超表面结构的平面波. 这种效应与入射波前的曲率无关. “视野狭窄”现象可以被理解为波矢滤波. 事实上, 在相同单元组成的亚波长周期平面阵列中, 由垂直入射的平面波激发的单元的振荡相位相同, 在一个周期内的耦合最强, 因此透过率最高. 任何非垂直入射的平面波都会令单元产生沿材料表面线性变化的位相延迟. 这一相位延迟会减小耦合强度, 并改变表面等离子体共振的能量. 因此, 透明窗口会移动到不同的频率, 而超表面材料变成不透明, 从而实现波矢选择性滤波.

3 超衍射成像

为进一步说明波矢选择超表面的应用, 我们利用上述的超表面结构实现一维超衍射成像. 在超表面结构前 1000 μm 处设置腰斑半径为 60 μm 的高斯光源, 并在超表面结构后 400 μm 处设置监视器, 利用 FDTD solution 软件计算监视器平面上的电场分布, 结果如图 5 所示. 在没有使用超表面结构时, 如图 5 (a) 所示, 由于衍射效应, 光斑的边缘变得不再清晰, 电场分布明显增大. 使用超表面结构后, 监视器平面上的电场分布如图 5 (b) 所示. 由于单元间的集体陷模共振, 大角度入射的光都无法透过, 因此光源的大部分散射光经过超表面结构后都被吸收和反射. 透射光的波矢基本都是垂直于超表面, 所以原入射光产生的散射斑经过超表面结构的调制后尺寸明显变小且边缘清晰.

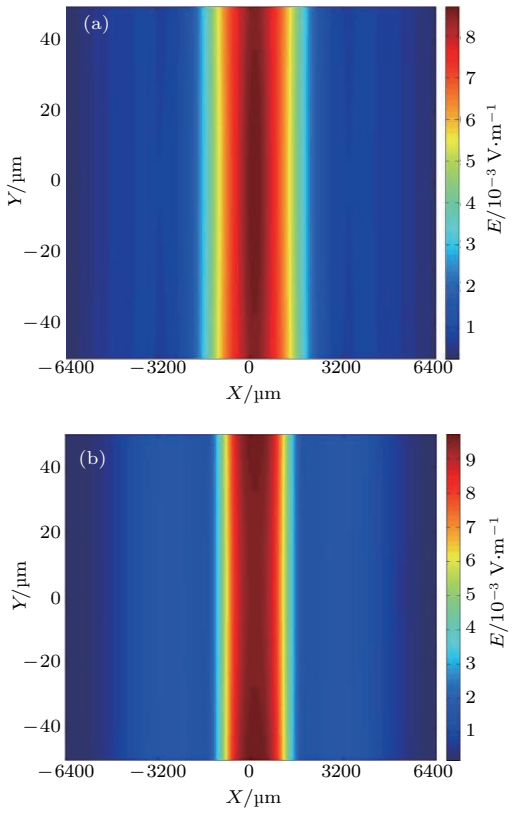


图 5 没有 (a) 及具有 (b) 波矢选择超表面时透射光振幅的对比.

Fig. 5. Comparison of transmission between (a) without and (b) with wavevector selective metasurface.

为了更直观地对比波矢选择超表面结构的效果, 我们在图 5 (a) 和图 5 (b) 中分别提取 $y = 0$ 时的电场分布, 进行归一化对比, 如图 6 所示. 图 6 中虚线为没有使用超表面结构时 x 轴上的电场分布, 实线为使用超表面结构后 x 轴上的电场分布. 可以明显看出, 当入射光经过波矢选择超表面结构后, 透射光的半高宽明显变窄, 由 2800 μm 减到了 2150 μm, 分辨率提高了 23.2%. 并且边缘处电场分布有了一个显著的减弱, 边缘陡峭度得到了提高. 数值模拟结果证明了具有波矢选择超表面结构的超衍射成像功能.

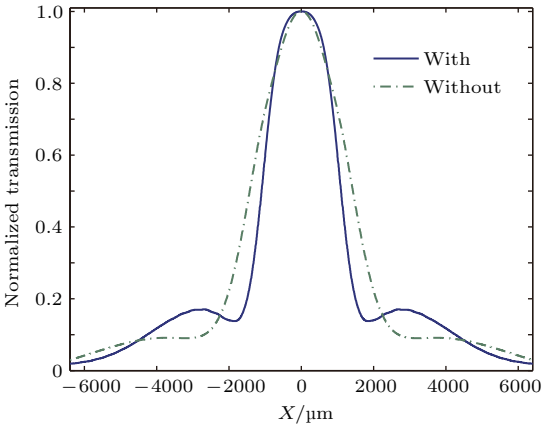


图 6 有、无波矢选择超表面结构时 x 轴上的电场分布

Fig. 6. Comparison of transmission light between with and without wavevector selective metasurface when $y = 0$.

4 结 论

本文通过合理设计超表面材料基本单元间的电磁耦合, 实现波矢选择超表面, 并将这一结构用于超衍射成像中. 这种特殊设计的超表面结构可以滤除照明光中具有大入射角的平面波分量, 仅使入射光波中接近垂直入射的分量通过. 这种效应使得任何没有空间调制或自适应反馈的波前在经过超表面材料之后都变成了近似平面波. 数值模拟计算表明, 这种波矢选择超表面可以克服衍射影响, 提高系统的分辨率. 还可以利用这一技术来阻挡杂散

光, 或者环境中露水、灰尘、划痕等发出的散射光, 进而改善观测仪器的性能.

参考文献

[1] Fitzgerald A J, Berry E, Zinov'ev N N, Homer-Vanniasinkam S, Miles R E, Chamberlain J M, Smith M A 2003 *J. Biol. Phys.* **29** 123

[2] Bergman D J, Stockman M I 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 027402

[3] Zimdars D, Valdmanis, J A, White, J S, Stuk G, Williamson S, Winfree W P, Madaras E I 2005 *AIP Conf. Proc.* **760** 570

[4] Cook D J, Hochstrasser R M 2000 *Opt. Lett.* **25** 1210

[5] Fedotov V A, Wallauer J, Walther M, Perino M, Papasimakis N, Zheludev N I 2015 *Light Sci. Appl.* **4** e306

[6] Smith D R, Pendry J B, Wiltshire M C K 2004 *Science* **305** 788

[7] Fedotov V A, Mladyonov P L, Prosvirnin S L, Zheludev N I 2005 *Phys. Rev. E* **72** 056613

[8] Tassin P, Zhang Lei, Koschny Th, Economou E N, Soukoulis C M 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 053901

[9] Fedotov V A, Mladyonov P L, Prosvirnin S L, Rogacheva A V, Chen Y, Zheludev N I 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 167401

[10] Zhao J, Zhang C, Braun P V, Giessen H 2012 *Adv. Mater.* **24** OP247

[11] Bitzer A, Merbold H, Thoman A, Feurer T, Helm H, Walther M 2009 *Opt. Express* **17** 3826

[12] Adamo G, Ou J Y, So J K, Jenkins S D, Angelis F D, MacDonald K F, Fabrizio E D, Ruostekoski J, Zheludev N I 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 217401

[13] Papasimakis N, Fedotov V A, Fu Y H, Tsai D P, Zheludev N I 2009 *Phys. Rev. B* **80** 041102

[14] Jenkins SD, Ruostekoski J 2012 *Phys. Rev. B* **86** 085116

[15] Luk'yanchuk B, Zheludev N I, Maier S A, Halas N J, Nordlander P, Giessen H, Chong C T 2010 *Nature Mater.* **9** 707

[16] Plum E, Fedotov V A, Zheludev N I 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 131901

SPECIAL ISSUE—Diffraction limit of electromagnetic waves

Super diffraction imaging with wave vector selective metasurface*

Guo Chang Zhang Yan†

(*Key Laboratory of Terahertz Optoelectronics, Ministry of Education, Beijing Key Laboratory of Metamaterials and Devices, Beijing Advanced Innovation Center for Imaging Technology, Department of Physics, Capital Normal University, Beijing 100048, China*)

(Received 17 May 2017; revised manuscript received 13 July 2017)

Abstract

Super diffraction imaging has been a research hotspot for a long time. We realize the super diffraction imaging with a metasurface structure, which is consisted of asymmetrically split rings. Based on the wave vector selectivity of the metasurface, radiation can be transmitted through it only in a narrow range of the incident angular. The metasurface acts as a high frequency spatial filter, reduces the diffraction effect, and obtains the super diffraction resolution. Numerical simulation results demonstrate the validity of this method.

Keywords: metamaterials, terahertz, frequency selective surface, super-diffraction

PACS: 78.67.Pt, 87.50.U–, 42.25.Bs **DOI:** 10.7498/aps.66.147804

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2013CBA01702), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11474206, 91233202, 11374216, 11404224), the Program for New Century Excellent Talents in University, China (Grant No. NCET-12-0607), and the Scientific Research Project of Beijing Education Commission, China (Grant No. KM201310028005).

† Corresponding author. E-mail: yzhang@cnu.edu.cn

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

基于双表面等离子激元吸收的纳米光刻

刘仿　李云翔　黄翊东

Nanolithography based on two-surface-plasmon-polariton-absorption

Liu Fang　Li Yun-Xiang　Huang Yi-Dong

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 148101 (2017)　DOI: 10.7498/aps.66.148101
在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.148101
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I14

您可能感兴趣的其他文章
Articles you may be interested in

基于微芯片的透射电子显微镜的低温纳米精度电子束刻蚀与原位电学输运性质测量
Nano-scale lithography and insitu electrical measurements based on the micro-chips in a transmission electron microscope
物理学报.2014, 63(24): 248105　http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.248105

多层金属纳米点阵的制备及其光学性质的研究
Fabrication of multilayer metal-dielectric nanoparticles and their optical properties
物理学报.2013, 62(18): 188104　http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.188104

假塑性流体纳米压印中影响填充度的因素
Factors influencing filling degree in nanoimprint lithography with pseudoplastic fluid
物理学报.2013, 62(18): 188105　http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.188105

局域表面等离激元诱导的三次谐波增强效应
Enhanced third harmonic generation by localized surface plasmon excitation
物理学报.2013, 62(17): 178104　http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.178104

掩膜板凸出环隔离压缩式纳米压印施压气体的研究
Analysis of gas isolation by prominent O-ring on the mold in compressional gas cushion press nanoimprint lithography
物理学报.2013, 62(6): 068103　http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.068103

专题: 电磁波衍射极限

基于双表面等离子激元吸收的纳米光刻*

刘仿† 李云翔 黄翊东‡

(清华大学电子工程系, 信息科学与技术国家实验室, 北京 100084)

(2017 年 6 月 19 日收到; 2017 年 7 月 5 日收到修改稿)

光刻技术 (lithography) 是微纳结构制备的关键技术之一. 受限于光的衍射极限, 传统光刻方法进一步缩小特征尺寸变得越来越难. 表面等离子激元 (surface plasmon polariton, SPP) 作为光与金属表面自由电子密度振荡相互耦合形成的一种特殊电磁形式, 具有波长短、场密度大、异常色散等特点, 在突破传统光学衍射极限的研究和应用中具有重要的学术和实用价值. 本文针对 SPP 在光刻胶中的非线性吸收及其在大视场纳米光刻中的应用进行了理论和实验探索. 在回顾 SPP 概念的基础上, 阐述了双 SPP 吸收的概念及其应用于纳米光刻的优势, 明确了该效应具有与传统双光子吸收不同的内涵和特性. 在 800 和 400 nm 飞秒激光的作用下, 实现了基于双 SPP 吸收效应的周期干涉条纹, 同时验证了双 SPP 吸收的阈值效应, 通过控制曝光计量实现了图形线宽的调控, 最小线宽小于真空光波长的 1/10. 利用 SPP 波长短、场增强的特点, 并结合非线性吸收的阈值效应, 单次曝光区域比纳米图形尺度大 4—5 个数量级, 曝光区域的直径可达 1.6 mm. 同时制备出较为复杂的同心圆环结构. 基于双 SPP 吸收独有的特性以及 SPP 丰富的模式, 有望进一步在大光刻视场、超小尺度图形光刻技术上获得突破.

关键词: 表面等离子激元, 纳米光刻, 光学非线性, 衍射极限

PACS: 81.16.Nd, 42.50.St, 42.65.–k **DOI:** 10.7498/aps.66.148101

1 引 言

光刻技术 (lithography) 是实现大规模制造微/纳尺度微电子和光电子器件的关键技术之一 [1]. 受光的衍射效应限制, 进一步缩小特征尺寸变得越来越困难, 常规的光刻技术也变得越来越复杂和昂贵 [1,2]. 在过去的几十年间, 人们在不断探索新原理、新方法、新技术, 期望突破光的衍射极限, 实现亚波长的纳米光刻技术, 例如基于双光子吸收 (two-photon-absorption, TPA) 的光刻 [3]、基于表面等离子激元 (surface plasmon polariton, SPP) 的光刻 [4]、纳米压印光刻 [5] 和激光消融光刻 [6] 等.

SPP 是光与金属表面自由电子密度振荡相互耦合形成的一种特殊电磁形式 [7,8]. 具有波长短、场密度大、异常色散等特点, 在突破传统光学衍射极限的研究和应用中具有巨大的潜力. 例如: 利用金属膜上的周期性小孔激励起 SPP, 实现了 90 和 60 nm 的周期点阵 [4,9]; 利用银膜上的周期光栅激励 SPP 干涉条纹, 获得了 50 nm 线宽的光刻胶图形 [10]; 利用同心圆环构成的 SPP 透镜实现了直写式的光刻, 获得了线宽小于 90 nm 的光刻光斑 [11]; 将 SPP 透镜集成在扫描飞行头上, 实现了 22 nm 的高产出率 SPP 光刻图形 [12,13]; 基于 SPP 制作完美透镜和超透镜, 实现了亚波长的光刻图形 [14].

尽管光刻图形的线宽对于纳米光刻至关重要, 但是光刻视场 (一次曝光所能覆盖的光刻面积) 和对复杂图形的刻写能力也是决定该项技术能否推广应用的关键. 基于 SPP 纳米光刻的诸多方案分

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2013CBA01704) 和国家自然科学基金 (批准号: 61575104, 61621064) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: liu_fang@tsinghua.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: yidonghuang@tsinghua.edu.cn

© 2017 中国物理学会 Chinese Physical Society

别利用了SPP不同的特点, 均表现出实现超光学衍射极限光刻的能力. 考虑到飞秒激光汇聚光斑与光刻胶发生的双光子吸收非线性光学作用[15−17], 本文提出并研究飞秒激光作用下光刻胶中的双SPP吸收效应, 探索该效应在纳米光刻中的应用; 既利用SPP这种特殊电磁模式的特点, 又利用SPP和光刻胶的非线性光学作用, 以期实现大光刻视场下的超小线宽SPP光刻.

本文首先回顾SPP的基本概念, 在厘清SPP和光子、表面等离子体等相互关系的基础上, 阐述双SPP吸收效应及其应用于纳米光刻的特性, 然后介绍双SPP吸收效应的仿真和实验方面的工作.

2 双SPP吸收的基本概念和特点

2.1 SPP的概念[18]

为了更清晰地认识SPP, 理解本文提出的双SPP吸收的概念, 下面结合图1, 厘清与SPP相关的若干概念及其相互关系.

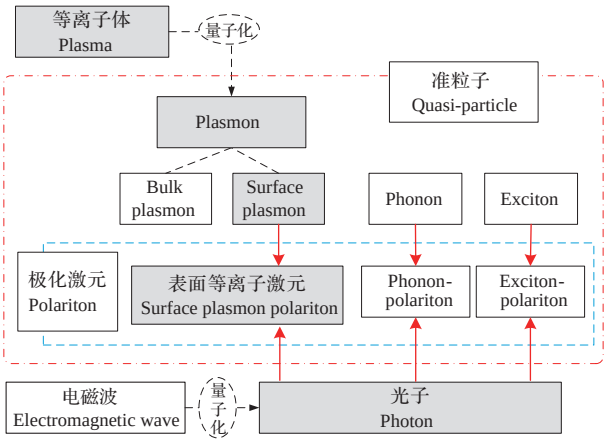


图1 SPP与其他(准)粒子的关系示意图

Fig. 1. The relation of SPP and other (quasi-) particles.

2.1.1 等离子体(plasma and plasmon)

等离子体(plasma)是由电子和正离子构成的混合物, 由于等离子体中的正负粒子存在电磁相互作用力, 等离子体中电子的运动可以描述为围绕着正电荷粒子的集体来回振荡, 其振荡频率 $\omega_{\rm p}=\sqrt{4\pi ne^2/m_0}$[19], 其中 n 为电子浓度, m_0 为电子质量. 常见的等离子体形式包括火焰、电弧等. 金属及半导体中的电子和正电粒子具有等离子体的特性, 故也可以看作是“固体等离子体”. Plasmon是plasma的量子化描述[19−22].

2.1.2 表面等离子体(surface plasma and surface plasmon)

表面等离子体存在于等离子体边界处的振荡[20−22], 其振荡频率不仅与金属材料的本征振荡频率 $\omega_{\rm p}$ 有关, 同时还与金属表面的介质材料介电常数 ε 有关, 即 $\omega_{\rm sp}=\omega_{\rm p}/(1+\varepsilon)^{1/2}$[23]. Surface plasmon是surface plasma的量子化描述[19,21−24].

2.1.3 极化激元(polariton)

极化激元指的是一个混合态的准粒子, 由光子(photon)与其他基本粒子或激发(excitation)(如电子、声子、磁子等)耦合构成[21,25]. Hopield[26]引入polariton的概念以描述光子与物质的相互作用与耦合. 常见的极化激元有surface-plasmon-polariton, phonon-polariton, exciton-polariton等.

2.1.4 表面等离子激元(surface plasmon polariton)

表面等离子激元指的是photon和surface plasmon相互作用形成的混合态准粒子[7,8], 刻画的是光与金属表面自由电子振荡相互耦合形成的一种特殊电磁形式. SPP这个名称本身就是一个量子化的概念, 体现了其作为一种准粒子的内涵. 而表面等离子体波(SPW)的提法是从波动的角度来看待这种现象的.

2.2 双SPP吸收的概念和特点[18,27]

双SPP吸收(two SPP absorption)是指介质分子内部电子吸收两个SPP的能量后从基态跃迁到激发态的三阶非线性过程. 从能量的角度来看, 双SPP吸收与双光子吸收的过程类似. 两者均是通过吸收两个“能量子”实现介质分子内部电子的跃迁. 不同的是, 双光子吸收中的能量单元是光子, 而双SPP吸收中的能量单元是photon与surface plasmon共同耦合作用形成的polariton.

双SPP吸收与双光子吸收同为双能量子参与的非线性吸收过程, 具有以下共同的特点[15]:

1) 非线性吸收的过程具有显著的阈值效应;

2) 非线性吸收概率与电磁场的强度平方 I^2 (电场的四次方)呈正比.

由于SPP是一种photon和surface plasmon相互耦合形成的准粒子, 金属自由电子的参与使得SPP具有异于光子的特殊性质. 不同于双光子吸收, 双SPP吸收效应具备的新特性为:

1) 尽管同频率下的光子和SPP具有相同的能量, 但是等离子体的参与使得SPP具有更大的动量(波矢)、更短的波长, 如图2中光波与SPP的色散曲线所示; SPP模式在媒质(光刻胶)中实现亚波长的电磁场分布, 在突破光学衍射极限的尺度范围内实现非线性吸收;

2) 由于photon与surface plasmon的相互耦合作用, 模场体积被压缩, 金属界面附近场强得到增强, 金属表面材料非线性吸收概率得到了提高; 双SPP吸收中的场增强效应可以降低非线性吸收对入射光源功率的要求, 或者对于相同输出功率的激光源可以增大单次曝光的面积.

可见, SPP参与的非线性过程与传统的光子参与的非线性吸收过程既有联系, 又有显著的不同. 双SPP吸收带来的新特性有助于大光刻视场、超小尺度图形光刻的技术取得突破.

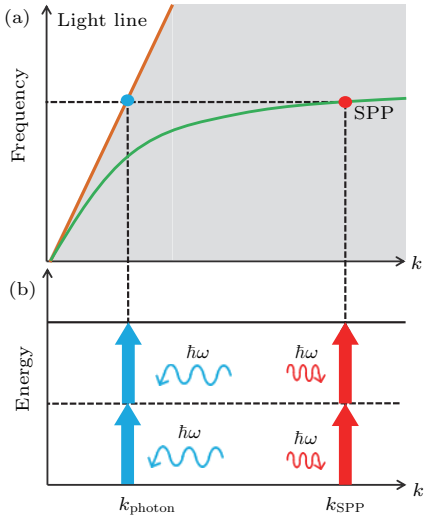


图2 双SPP吸收过程示意图 (a) SPP与光波的色散曲线; (b) 双SPP吸收和双光子吸收

Fig. 2. Schematic of two SPP absorption: (a) Dispersion curve of light and SPP; (b) two photon absorption and two SPP absorption.

3 基于双SPP吸收的光刻

3.1 800 nm飞秒激光作用下的双SPP吸收光刻[18,27]

图3所示为双SPP吸收光刻的示意图. 在透明的玻璃衬底上方为厚度为100 nm的金膜, 金膜上方的媒质为光刻胶. 金和光刻胶的介电常数分别为$\varepsilon_{Au} = -25 + 1.8\mathrm{i}$ [28] 和$\varepsilon_{resist} = 2.465$. 金膜上有两组周期性的光栅, 光栅的周期与金-光刻胶界面所支持的SPP波长一致. 中心波长为800 nm, 脉冲宽度为150 fs, x偏振态的飞秒激光从玻璃衬底照射至金属膜. 通过光栅补偿激励SPP所需的波矢,

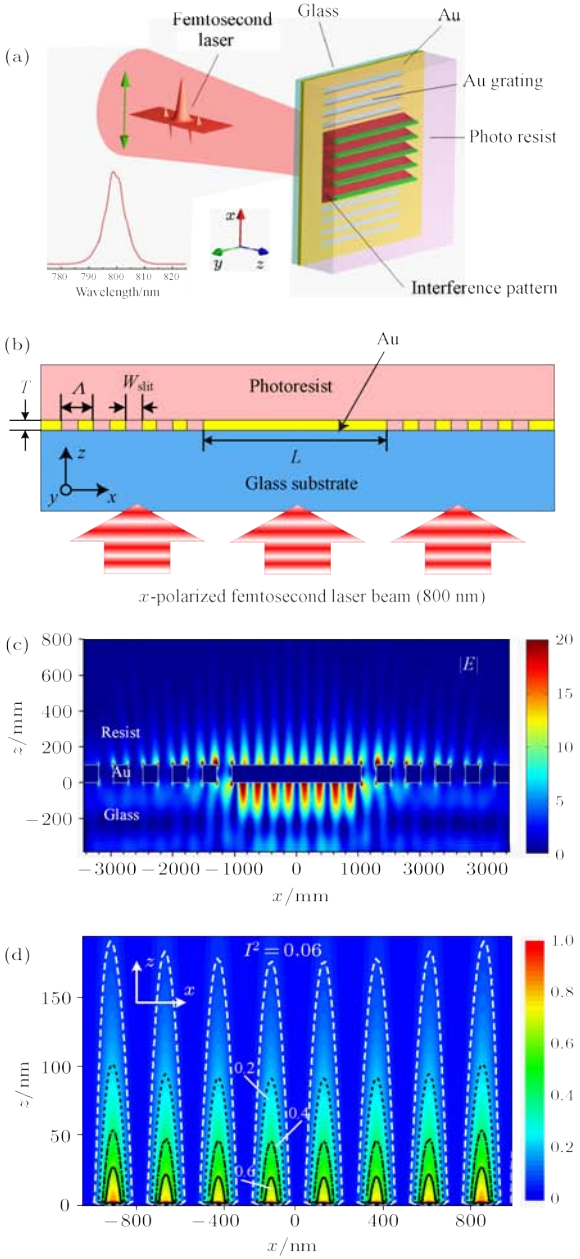


图3 基于双SPP吸收干涉光刻示意图和模拟结果 (a)和(b)为干涉光刻的3维和2维示意图; (c) 800 nm波长下SPP干涉条纹的仿真结果; (d) 金膜上方x-z平面SPP干涉条纹的电场强度平方的分布

Fig. 3. Schematic figure of two SPP absorption lithography and simulation results: (a) Three- dimensional and (b) two-dimensional schematic figure; (c) interference pattern of SPP under illumination of 800 nm femtosecond laser; (d) the square of SPP intensity on the metal film.

在金-光刻胶界面上产生相向传播的SPP, 在两组光栅之间的区域形成谐振腔, SPP相互叠加形成干涉条纹. 图3(c)为模拟仿真结果, 可见在800 nm飞秒脉冲激光作用下可以获得稳定且对比度高的干涉条纹. 飞秒激光的谱宽对干涉条纹的影响可以忽略. 图3(d)为金膜上方x-z平面内SPP干涉条纹电场强度平方I^2 (归一化)分布, 仿真结果表明干涉条纹具有很高的对比度, 同时条纹中心的强度最大, 远离条纹中心强度不断衰减. 因此, 通过控制入射光的功率, 可以使得干涉条纹分布中只有强度位于双SPP吸收阈值之上的部分能够有效地发生非线性反应, 从而调控光刻线宽.

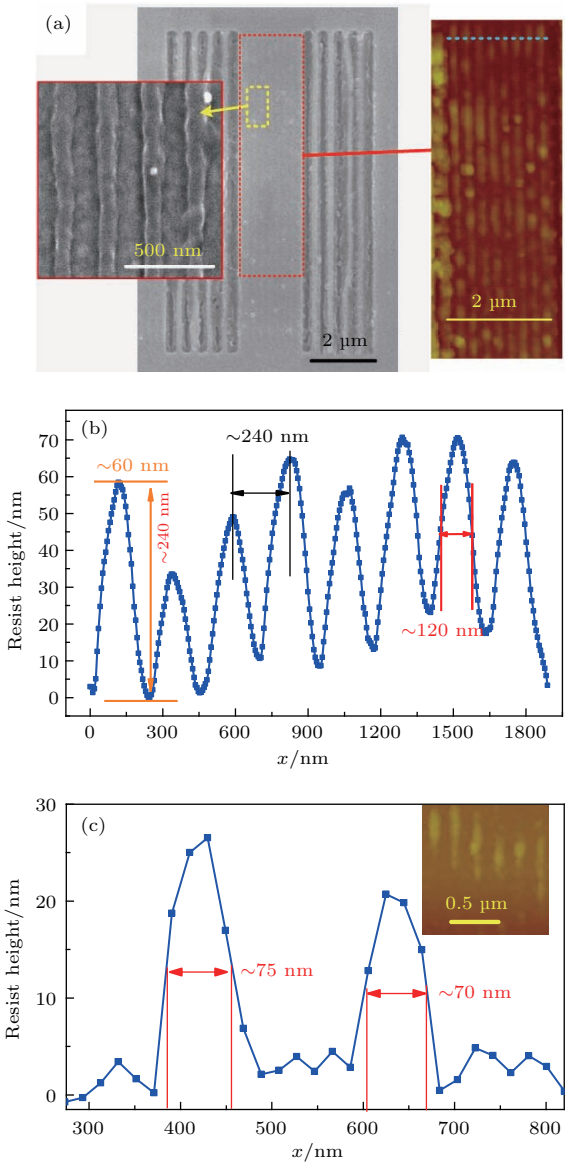


图4 双SPP吸收(800 nm飞秒激光作用下)干涉光刻结果 (a) 光刻胶图形的SEM显微照片和AFM扫描结果(激光平均功率630 mW); (b) 图(a)中蓝色虚线处的光刻胶表面形貌; (c) 降低曝光功率后光刻胶的表面形貌(激光平均功率230 mW)

Fig. 4. Experiment results of two-SPP-absorption lithography under illumination of 800 nm femtosecond laser: (a) SEM and AFM photos of resist patterns with illumination power of 630 mW; (b) the profile of resist along the blue dashed-line in figure (a); (c) the resist patterns with lower illumination power of 230 mW.

利用溅射、聚焦离子束刻蚀制备金属SPP光刻模板, 并旋涂具有非线性作用的光刻胶(在800 nm波长输入光作用下, 光刻胶不会发生单光子吸收; 在400 nm输入光作用下, 光刻胶发生单光子吸收的变性过程). 再将平均功率为630 mW的飞秒激光经透镜汇聚后照射到样品表面. 将经过10 s飞秒激光照射的样品依次在SU-8显影液、异丙醇和去离子水中浸泡35, 10和30 s. 利用扫描电子显微镜(SEM)和原子力显微镜(AFM)可以观察到金属光栅间明显的周期性光刻胶条纹, 如图4(a)所示. 图4(b)为图4(a)中蓝色虚线处光刻胶的表面形貌, 光刻胶的周期约为240 nm、线宽约为120 nm、平均高度约为60 nm. 利用双SPP吸收的阈值效应, 通过调控曝光剂量可以对光刻线宽进行控制. 将飞秒激光的平均功率从630 mW降低为230 mW, 曝光时间从10 s变为15 s, 图4(c)显示条纹线宽从约120 nm减小到约70 nm (条纹周期仍约为240 nm), 条纹线宽仅为曝光波长800 nm的1/11, 极大地突破了衍射极限的限制.

实验中条纹线宽不均匀、条纹不完整呈现断续状, 主要原因是激励SPP的金属周期光栅不均匀且有形变, 同时金膜的粗糙表面以及光刻条件对最终光刻条纹的质量造成了影响.

3.2 400 nm飞秒激光作用下的双SPP吸收光刻[18,29]

通过改变曝光波长可以进一步减小干涉条纹的周期与线宽. 为进一步挖掘双SPP吸收纳米光刻的潜力, 将曝光波长缩短为400 nm. 图5(a)所示为400 nm飞秒激光作用下基于双SPP吸收效应的光刻示意图. 此时, 采用铝膜作为金属材料(厚度T = 100 nm), 铝膜上方的媒质为光刻胶. 纳米狭缝代替光栅激励SPP模式. 图5(b)的仿真结果表明在400 nm飞秒激光作用下, 图5(a)所示结构可获得周期约240 nm的干涉条纹.

不同于800 nm飞秒激光作用下的光刻, 此处光刻胶采用深紫外光刻胶(在400 nm波长输入光作用下, 光刻胶不会发生单光子吸收; 在200 nm输

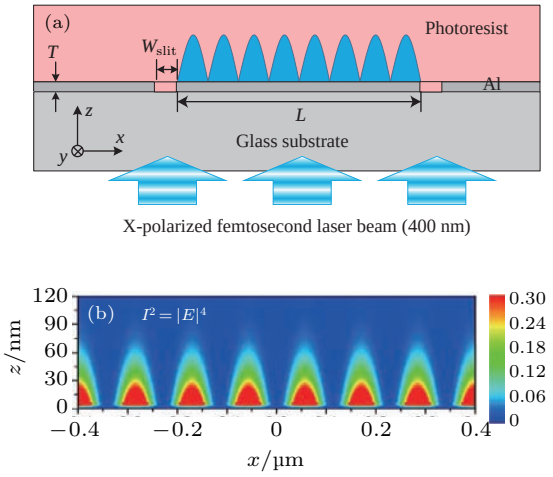


图5 波长400 nm飞秒激光作用下的双SPP吸收干涉光刻示意图和模拟结果 (a) 结构示意图; (b) 纳米狭缝激励的SPP干涉条纹强度平方分布

Fig. 5. Schematic figure of two-SPP-absorption lithography and simulation results for 400 nm femtosecond laser: (a) Two-dimensional schematic figure; (b) interference pattern of SPP on the metal film.

入光作用下, 光刻胶发生单光子吸收的变性过程). 利用平均功率为50 mW的飞秒激光曝光样品8 s, 并依次在显影液和去离子水中浸泡8和360 s. 光刻图形SEM和AFM照片如图6 (a)和图6 (b)所示, 可以观察到明显的周期性光刻胶条纹. 图6 (c)对应图6 (b)中黄色虚线的光刻胶条纹表面形貌, 光刻胶的空间周期约为138 nm, 条纹的平均线宽约为70 nm. 图中绿色虚线所指示的光刻胶是由透过金属狭缝的激光直接作用形成的.

与800 nm飞秒激光下的双SPP吸收光刻类似, 这里通过改变曝光的计量(激光功率或曝光时间), 同样也可以实现条纹线宽的调控. 平均曝光功率为50 mW时光刻胶平均线宽随曝光时间的变化如图6 (d)所示. 结果表明, 当曝光时间从20 s减小至5 s时, 光刻胶平均线宽从约85 nm减小到约50 nm. 实验中入射至样品表面的光斑直径约为1.6 mm, 表明基于双SPP吸收效应的纳米光刻可应用于大视场的纳米光刻.

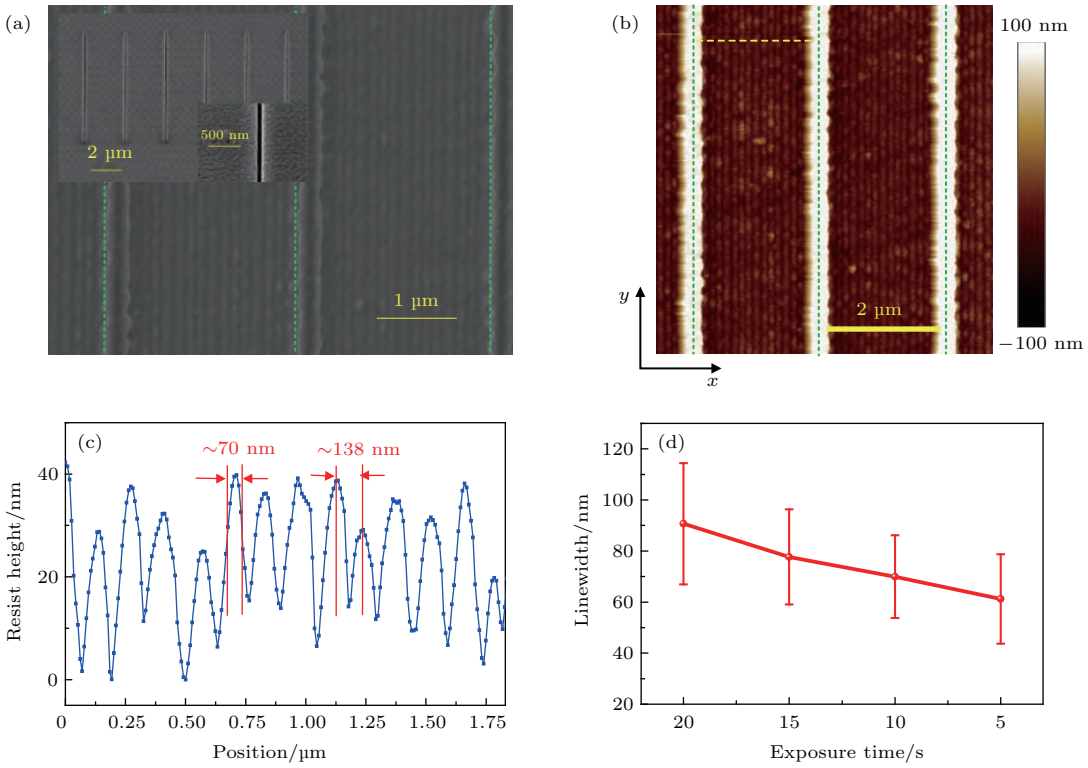


图6 双SPP吸收(400 nm飞秒激光作用下)干涉光刻结果 (a) 光刻胶图形的SEM照片(插图为激励SPP的纳米狭缝照片); (b) 光刻图形的AFM照片; (c) 对应图(b)中黄色虚线的光刻胶条纹表面形貌; (d) 光刻胶条纹线宽随曝光时间的变化

Fig. 6. Experiment results of two-SPP-absorption lithography under illumination of 400 nm femtosecond laser: (a) SEM and (b) AFM photos of resist patterns; (c) the profile of resist along the yellow dashed-line in figure (b); (d) the linewidth as a function of exposure time.

3.3 同心圆环纳米光刻[18,30]

利用双SPP吸收光刻还可以实现较为复杂的图形. 图7 (a)所示为利用双SPP吸收光刻实现同心圆环图形的示意图. 铝膜上的圆型狭缝结构在不同偏振光照射下可以实现复杂的同心圆环干涉图形. 仿真结果如图7 (b)和图7 (c)所示, 在垂直线偏振光作用下, 可获得扇形的周期环状干涉条纹; 在圆偏振光作用下, 可激励完整的周期同心圆环干涉条纹.

图8 (a)为在铝膜上制备的圆形狭缝结构. 当入射飞秒激光为线偏振时, 半径为2.5 μm的圆形狭缝形成的光刻图形如图8 (b)和图8 (c)所示, 可以看到明显的扇形周期环状光刻胶条纹, 环纹线宽约为70 nm. 图8 (c)相对图8 (b)的曝光时间较短, 根据前面提到的双SPP吸收光刻的阈值效应, 可以

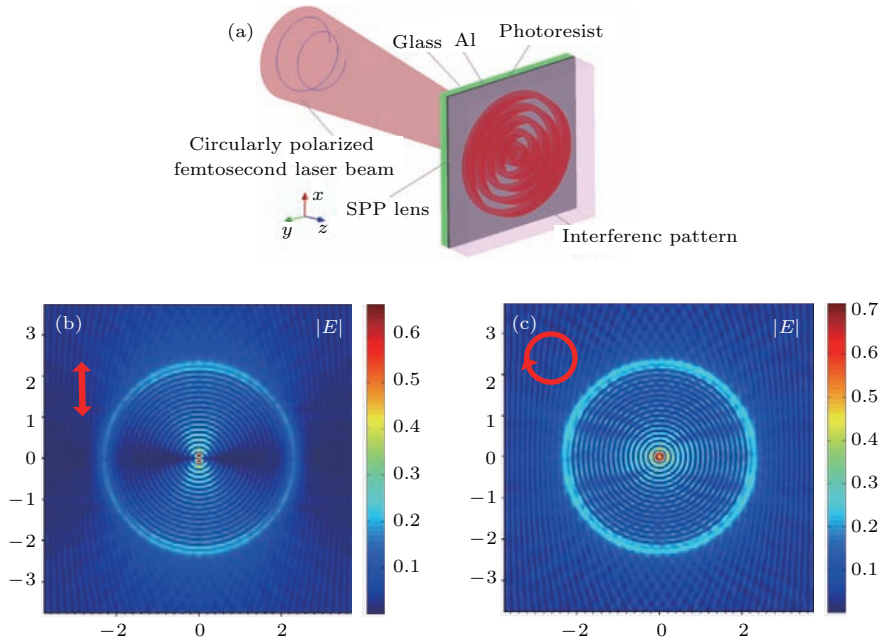


图7 基于双SPP吸收同心圆环纳米光刻示意图和模拟结果 示意图(a); 线偏振(b)和圆偏振(c)飞秒激光作用下SPP图形模拟结果

Fig. 7. Two-SPP-absorption lithography for concentric circles: Schematic figure (a); SPP interference pattern of concentric circles with linear (b) and (c) circular polarization.

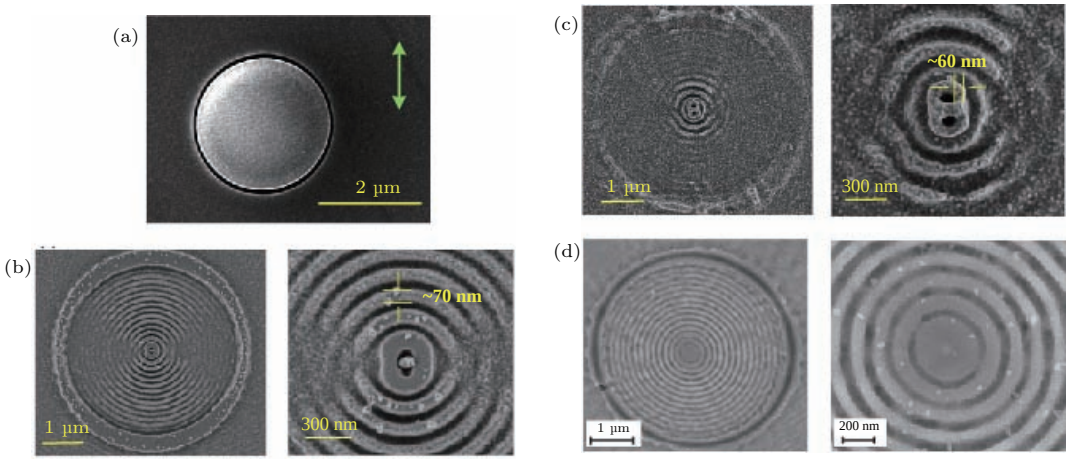


图8 基于双SPP吸收(400 nm飞秒激光)同心圆环纳米光刻实验结果 (a) 铝膜上用于激励SPP的圆形纳米狭缝; (b) 线偏振光作用下的部分同心圆环光刻图形; (c) 线偏振光短时间曝光后的光刻图形; (d) 圆偏振光作用下的同心圆环结构

Fig. 8. Experiment results of concentric circles based on two-SPP-absorption lithography: (a) The ring nano-slits on the Al film for SPP pattern; (b) resist pattern under illumination of linear polarized femtosecond laser; (c) resist pattern with lower illumination dose compared with that in figure (b); (d) resist pattern under illumination of circular polarized femtosecond laser.

看到光刻胶图形主要存在于光强较强的圆环中心区, 图形线宽约为60 nm. 若入射飞秒激光的偏振态为圆偏振, 获得的光刻图形为完整的同心圆环, 如图8 (d) 所示, 与模拟结果完全符合.

进一步, 可以将制备的同心圆环光刻图形转移至芯片衬底, 有望实现电磁波的聚焦、滤波等功能, 并有望在亚波长光学器件[31,32]、生化传感等[33,34]方面得到应用. 上述光刻结果表明, 利用基于双SPP吸收效应的光刻, 在不同结构和不同曝光条件下可以实现不同形状的复杂纳米图形. 同时该光刻方法精确地记录下SPP干涉的场分布信息, 提供了一种有效的记录SPP场的手段.

4 总 结

本文针对双SPP吸收(SPP在光刻胶中的非线性作用)突破光学衍射极限及其应用于大视场纳米图形制备中的关键问题展开了理论和实验研究. 阐明了双SPP吸收既有与双光子吸收相同的特点, 即显著的阈值效应和吸收概率与场强度平方成正比, 又有其独有的特点, 如更易实现亚波长电磁分布和更高的场强. 通过设计和制备金属SPP模板, 模拟仿真了飞秒激光作用下的SPP干涉图形, 利用800 nm飞秒激光实现了周期约为240 nm、线宽约为120 nm的光刻胶条纹, 并通过降低曝光功率, 将条纹线宽降低约为70 nm, 仅为曝光波长的1/11; 将曝光波长减小为400 nm, 实现了周期约为138 nm、线宽约为70 nm的光刻胶条纹, 并通过改变曝光时间, 实现了条纹线宽从约85 nm到约50 nm的有效调控. 此外, 利用简单的圆形纳米狭缝SPP模板, 实现了复杂的同心圆环结构. 实验中飞秒激光的单次曝光区域的直径达到1.6 mm, 较纳米图形尺度大4—5个数量级, 验证了双SPP吸收效应应用于大视场纳米光刻的可行性. 本文只对基于双SPP吸收的纳米光刻做了初步探索, 考虑到纳米金属/介质结构中丰富的SPP模式和不同的特性, 结合双SPP吸收效应的特点, 有望在更大的光刻视场下获得更多高质量的纳米光刻图形.

参考文献

[1] Mack C 2008 *Fundamental Principles of Optical Lithography: the Science of Microfabrication* (Hoboken: John Wiley & Sons)

[2] Bakshi V 2009 *EUV Lithography* (Vol. 178) (Bellingham: Spie Press)

[3] Cumpston B H, Ananthavel S P, Barlow S, Dyer D L, Ehrlich J E, Erskine L L, Heikal A A, Kuebler S M, Lee I Y S, McCord-Maughon D, Qin J 1999 *Nature* **398** 51

[4] Srituravanich W, Fang N, Sun C, Luo Q, Zhang X 2004 *Nano Lett.* **4** 1085

[5] Chou S Y, Krauss P R, Renstrom P J 1996 *J. Vacuum Sci. Technol. B: Microelectr. Nanometer Struct. Process. Measur. Phenom.* **14** 4129

[6] Zhai T, Zhang X, Pang Z, Dou F 2011 *Adv. Mater.* **23** 1860

[7] Zayats A V, Smolyaninov I I, Maradudin A A 2005 *Phys. Reports* **408** 131

[8] Brongersma M L, Kik P G 2007 *Surface Plasmon Nanophotonics.* (Berlin: Springer)

[9] Srituravanich W, Durant S, Lee H Sun C, Zhang X 2005 *J. Vacuum Sci. Technol. B: Microelectr. Nanometer Struct. Process. Measur. Phenom.* **23** 2636

[10] Luo X, Ishihara T 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 4780

[11] Seo S, Kim, H C, Ko H, Cheng M 2007 *J. Vacuum Sci. Technol. B: Microelectr. Nanometer Struct. Process. Measur. Phenom.* **25** 2271

[12] Srituravanich W, Pan L, Wang Y, Sun C, Bogy D B, Zhang X 2008 *Nature Nanotechnol.* **3** 733

[13] Pan L, Park Y, Xiong Y, Ulin-Avila E, Wang Y, Zeng L, Xiong S, Rho J, Sun C, Bogy D B, Zhang X 2011 *Sci. Reports* **1** 175

[14] Melville D O, Blaikie R J 2005 *Opt. Express* **13** 2127

[15] Sun H B, Kawata S 2004 *In NMR·3D Analysis· Photopolymerization* (Berlin: Springer Berlin Heidelberg) pp169–273

[16] Lee K S, Yang D Y, Park S H, Kim R H 2006 *Polym. Adv. Technol.* **17** 72

[17] Park S H, Yang D Y, Lee K S 2009 *Laser Photon. Rev.* **3** 1

[18] Li Y X 2014 *Ph. D. Dissertation* (Beijing: Tsinghua University) (in Chinese) [李云翔 2014 博士学位论文 (北京: 清华大学)]

[19] Bellan P M 2008 *Fundamentals of Plasma Physics* (Cambridge: Cambridge University Press)

[20] Ritchie R H 1957 *Phys. Rev.* **106** 874

[21] Ponath H E, Stegeman G I 2012 *Nonlinear Surface Electromagnetic Phenomena* (Vol. 29) (Amsterdam: Elsevier)

[22] Raether H 2013 *Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings* (Berlin: Springer-Verlag Berlin)

[23] Pines D 1956 *Rev. Modern Phys.* **28** 184

[24] Raether H 2006 *Excitation of Plasmons and Interband Transitions by Electrons* (Vol. 88) (Berlin: Springer)

[25] Chen D Z A 2007 *Ph. D. Dissertation* (Massachusetts: Massachusetts Institute of Technology)

[26] Hopfield J J 1958 *Phys. Rev.* **112** 1555

[27] Li Y, Liu F, Xiao L, Cui K, Feng X, Zhang W, Huang Y 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 063113

[28] Palik E D 1998 *Handbook of Optical Constants of Solids* (Vol. 3) (Cambridge: Academic Press)

[29] Li Y, Liu F, Ye Y, Meng W, Cui K, Feng X, Zhang W, Huang Y 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 081115

[30] Meng W S 2015 *M. S. Dissertation* (Beijing: Tsinghua University) (in Chinese) [孟维思 2015 硕士学位论文 (北京: 清华大学)]
[31] Fu Y, Zhou X 2010 *Plasmonics* **5** 287
[32] Carretero-Palacios S, Mahboub O, Garcia-Vidal F J, Martin-Moreno L, Rodrigo S G, Genet C, Ebbesen T W 2011 *Opt. Express* **19** 10429
[33] Gao Y, Gan Q, Bartoli F J 2014 *IEEE Photon. J.* **6** 1
[34] Gao Y, Xin Z, Zeng B, Gan Q, Cheng X, Bartoli F J 2013 *Lab on a Chip* **13** 4755

SPECIAL ISSUE—Diffraction limit of electromagnetic waves

Nanolithography based on two-surface-plasmon-polariton-absorption*

Liu Fang† Li Yun-Xiang Huang Yi-Dong‡

(*Tsinghua National Laboratory for Information Science and Technology, Department of Electronic Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084, China*)

(Received 19 June 2017; revised manuscript received 5 July 2017)

Abstract

Lithography is one of most important technologies for fabricating micro- and nano-structures. Limited by the light diffraction limit, it becomes more and more difficult to reduce the feature size of lithography. Surface plasmon polariton (SPP) is due to the interaction between electromagnetic wave and oscillation of free-electron on metal surface. For the shorter wavelength, higher field intensity and abnormal dispersion relation, the SPP would play an important role in breaking through the diffraction limit and realizing nanolithography. In this paper, we theoretically and experimentally study the optical nonlinear effect of SPP (two-SPP-absorption) in the photoresist and its application of nanolithography with large field. First, the concept and features of two-SPP-absorption are introduced. Like two-photo-absorption, the two-SPP-absorption based lithography is able to realize nanopatterns beyond the diffraction limit: 1) the absorption rate quadratically depends on the light intensity, which can further squeeze the exposure spot; 2) the pronounced power threshold provides a possibility for precisely controlling the linewidth by manipulating the illumination power. Nevertheless, unlike the two-photo-absorption lithography which focuses light onto a single spot and scans point by point, the two-SPP-absorption method could obtain the subwavelength field pattern by simply illuminating the plasmonic mask. The subwavelength field pattern due to the short wavelength of SPP would further result in the overcoming-diffraction-limit resist pattern. Besides, the highly concentrated SPP field leads to the strong electromagnetic field enhancement at the metal-dielectric interface, which could reduce the input power density of exposure source or enlarge the exposure area. Then the two-SPP absorption is realized under the illuminations of femtosecond lasers with vacuum wavelengths of 800 nm and 400 nm. Meanwhile, the interference periodic patternis realized and it is observed that the linewidth could be adjusted by controlling the exposure dose. The minimum linewidth of resist pattern is only one tenth of the vacuum wavelength. By utilizing the features of two-SPP-absorption, namely shorter wavelength, enhanced field and threshold effect, the lithography field could be of millimeter size, which is about four to five orders of magnitude larger than the characteristic size of nanostructure. Therefore, this two-SPP-absorption scheme could be used for large-area plasmonic lithography beyond the diffraction limit with the help of various plasmonic structures and modes.

Keywords: surface plasmon polariton, nano-lithography, nonlinear optics, diffraction limit

PACS: 81.16.Nd, 42.50.St, 42.65.–k **DOI:** 10.7498/aps.66.148101

* Project supported by the National Basic Research Programs of China (Grant No. 2013CBA01704) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61575104, 61621064).

† Corresponding author. E-mail: liu_fang@tsinghua.edu.cn
‡ Corresponding author. E-mail: yidonghuang@tsinghua.edu.cn

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

太赫兹表面极化激元

张学进 陆延青 陈延峰 朱永元 祝世宁

Terahertz surface polaritons

Zhang Xue-Jin Lu Yan-Qing Chen Yan-Feng Zhu Yong-Yuan Zhu Shi-Ning

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 148705 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.148705
在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.148705
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I14

您可能感兴趣的其他文章
Articles you may be interested in

小波变换在太赫兹三维成像探测内部缺陷中的应用
Wavelet transform in the application of three-dimensional terahertz imaging for internal defect detection
物理学报.2017, 66(8): 088701 http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.088701

崩倍增GaAs光电导太赫兹辐射源研究进展
Research progress on avalanche multiplication GaAs photoconductive terahertz emitter
物理学报.2015, 64(22): 228702 http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.228702

太赫兹人工电磁媒质研究进展
Progress of terahertz metamaterials
物理学报.2015, 64(22): 228701 http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.228701

血凝素蛋白及抗体相互作用的太赫兹光谱主成分分析
Principal component analysis of terahertz spectrum on hemagglutinin protein and its antibody
物理学报.2015, 64(16): 168701 http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.168701

相位补偿算法对提高太赫兹雷达距离像分辨率的研究
Improvement in the range resolution of THz radar using phase compensation algorithm
物理学报.2014, 63(14): 148701 http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.148701

专题: 电磁波衍射极限

太赫兹表面极化激元*

张学进† 陆延青 陈延峰 朱永元 祝世宁

(南京大学现代工程与应用科学学院, 固体微结构物理国家重点实验室, 人工微结构科学与技术协同创新中心, 南京 210093)

(2017 年 6 月 28 日收到; 2017 年 7 月 13 日收到修改稿)

作为束缚于表面或界面的电磁波与极性元激发的耦合模量子, 表面极化激元是克服衍射极限的核心物理. 在紫外、可见以及近红外波段, 表面等离子极化激元展现出了亚波长特性, 具有高分辨成像等应用, 并发展成为“表面等离子极化激元亚波长光学”学科; 在中红外波段, 表面声子极化激元发挥着同样的作用. 太赫兹波段曾是人类认识的空白区域, 近三十年来得以高速发展, 其战略意义重大. 具有克服衍射极限能力的太赫兹表面极化激元同样是小型化与集成化太赫兹器件, 以及太赫兹超高分辨成像的重要物理基础. 近几年来, 对以石墨烯为代表的二维材料的研究突飞猛进, 诞生了“石墨烯表面等离子极化激元亚波长光学”这门学科, 并贡献于太赫兹领域. 本文对可在太赫兹波段工作的人工超构材料、掺杂半导体、二维电子气、二维材料、拓扑绝缘体等结构材料的表面极化激元进行了较为全面的总结与介绍, 为研制克服衍射极限的太赫兹集成光子学器件提供可资借鉴的物理基础.

关键词: 太赫兹, 表面极化激元, 二维材料, 近场光学

PACS: 87.50.U–, 71.36.+c, 61.48.Gh, 78.67.Pt **DOI:** 10.7498/aps.66.148705

1 引 言

太赫兹 (terahertz, THz) 波通常是指频率在 0.1—10 THz(波长在 30 μm—3 mm) 波段的电磁波, 它的长波段与毫米波 (亚毫米波) 相衔接, 短波段与红外线 (远红外) 相衔接. 太赫兹波是电子学 (Electronics) 与光子学 (Photonics) 的交叉领域, 长期处于研究的“空隙” (THz gap) 领地, 如图 1 所示.

太赫兹波因其独特的“指纹”性、瞬态性、高穿透性、宽带性、相干性和低能性等特征而具有广泛的应用[1−8], 如在通信、雷达、天文、医学成像、生物化学物品鉴定、材料学、安全检查等领域. 太赫兹波谱、成像与集成器件是非常重要的交叉前沿领域, 给技术创新、国民经济发展和国家安全提供了一个非常诱人的机遇. 近些年来, 各国争先发展太赫兹科学与技术, 太赫兹源、探测器以及测量系统的研究已经进入高速发展期. 然而, 类似于其他电磁波谱段, 太赫兹波的衍射极限问题同样束缚着太赫兹光子学器件的小型化、集成化.

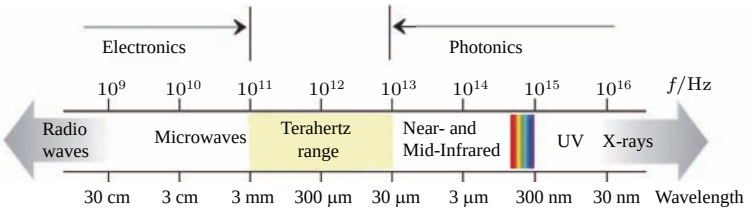


图 1 太赫兹在电磁波谱中所处位置的示意图

Fig. 1. Definition of THz waves.

* 国家重点研发计划 (批准号: 2017YFA0303700) 和国家自然科学基金 (批准号: 11621091, 11374150, 11274159) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xuejinzh@nju.edu.cn

© 2017 中国物理学会 Chinese Physical Society

表面等离子极化激元光学(plasmonics)是基于表面等离子极化激元(surface plasmon polaritons, SPPs)发展起来的一门新兴学科, 是"表面等离子极化激元亚波长光学(surface plasmon polaritons subwavelength optics)"的简称, 主要是研究纳米尺度的光学现象. 表面等离子极化激元是电磁波中的电磁场与材料表面的电荷振荡相互谐振的一种元激发, 在紫外-可见-近红外波段, 一般只有金属材料具有这种集体振荡的性质. 加州理工学院的Harry A. Atwater 教授在"The Promise of Plasmonics"一文中, 将"plasmonics"定义为"一种可以将电磁波压缩到极小结构中, 有望产生新一代超快计算机芯片和超灵敏分子探测器的技术", 认为表面等离子极化激元光学元器件最终将可以应用到一系列设备中, 极大地改善它们的性能. 表面等离子极化激元光学的涉及面非常广泛, 包括表面增强拉曼散射[9−14]、表面增强发光[15−23]、表面增强非线性参量过程[24−28]、增强透射[29]、表面增强的能量转移[30−36]、电磁诱导透明[37,38]、表面等离子极化激元纳米波导器件[39]、亚波长纳米激光器[40,41]、克服衍射极限的超分辨成像[42,43], 以及超构材料[44]与超构表面[45]等. 其应用前景广阔, 可被应用于纳米集成电路、纳米集成光路、亚波长光波导、数据存储、克服衍射极限的光成像、光源、太阳能电池, 以及生物传感器等.

在太赫兹波段, 我们仍从光与物质相互作用这一基本物理问题出发, 通过表面极化激元获得亚波长的光场限域. 对长波情况, 如中红外与太赫兹波, 金属表面等离子极化激元失去光场限域本领, 而表面声子极化激元[46−50]体现出在克服电磁波衍射极限方面的功能作用以及对器件小型化与集成化的实现能力. 本文在重点介绍表面声子极化激元的基础上, 介绍了金属超构材料、掺杂半导体、二维电子气以及二维狄拉克材料等可工作于太赫兹波段的表面等离子极化激元; 在分析对比表面声子极化激元与表面等离子极化激元各自优缺点的基础上, 提出构建混合型表面极化激元是裁剪亚波长太赫兹器件性能的有效途径.

2 极化激元与表面极化激元

在固体物理中引入元激发的概念后一个多体系统便可以简化为一个准粒子体系, 这为处理复杂物理问题提供了一条简便的途径. 固体中的元激发有很多种类: 声子、磁振子和等离子属于集体激发的元激发; 准电子、极化子和超导体中由库珀对(Cooper pairs)凝聚形成的Bogolons属于个别激发的元激发; 而激子和极化激元属于复合型的元激发.

元激发的概念已经在很大程度上得到了扩展, 比如电磁波与固体中的元激发的耦合模量子亦被称为元激发. 而电磁波(光子)与极性元激发的耦合模量子被通称为极化激元(polariton), 其中电磁波(光子)与声子耦合形成声子极化激元. 此外还有磁振子极化激元、等离子极化激元和激子极化激元等, 它们分别是光子与磁振子、等离子、激子相耦合形成的新型元激发.

声子极化激元通常是指光子(电磁波)和固体中横振动光学声子(TO格波)的耦合模量子, 又被称为"黄子", 这是最先得到研究的极化激元, 黄昆先生在这一领域做出了开创性并具有里程碑意义的工作, 1951年发表在《关于辐射场和离子晶体的相互作用》的论文中[51]. 而极化激元概念是在1958年由美国物理学家Hopfield研究光子与激子耦合形成激子极化激元时首次提出的[52], 随后等离子极化激元、磁振子极化激元等相继被研究者发现. 声子极化激元在实验上由美国物理学家Henry和Hopfield于1965年在半导体材料GaP的拉曼散射实验中首次观察到[53]. 迄今, 各种极化激元在光学的各个领域中得到深入和广泛的研究与应用.

表面极化激元是极化激元波场束缚于表面或界面的情形, 这样的结果会产生明显的优势, 如场增强效应以及小型化与集成化器件的研制. 表面极化激元不再是纯粹的电磁波模式, 如表面等离子极化激元是由电磁波与金属表面的电荷相耦合的模式[54], 如图2(a)所示, 其场分布束缚于金属/介质的界面; 在垂直于界面的方向场强呈指数衰减, 如图2(b)所示, 显示出束缚、非辐射的倏逝波特征. 图2(a)所示的电荷参与的场分布特性限制了激发电磁波的偏振状态, 同时较大的欧姆损耗决定了这种表面模式具有非常有限的传播距离. 在图2(c)给出的色散关系中, 表面模式在光锥的右侧, 这一大波矢特性使它具有克服衍射极限的能力, 不过其激发产生需要满足动量匹配条件. 表面极化激元的存在条件是支持表面极化激元的界面两侧材料的介电函数的实部异号, 负的介电函数实部通常伴随

着介电异常现象[55], 如图2 (d)—图2 (f) 的阴影部分所示. 一般来说, 结构材料中电磁波出现禁带的频率范围, 其介电函数的实部为负, 此时其表面/界面可支持表面模式, 如光子晶体表面/界面的光学Tamm态[56], 光学Tamm态还可与表面等离子极化激元耦合形成Tamm等离子极化激元[57].

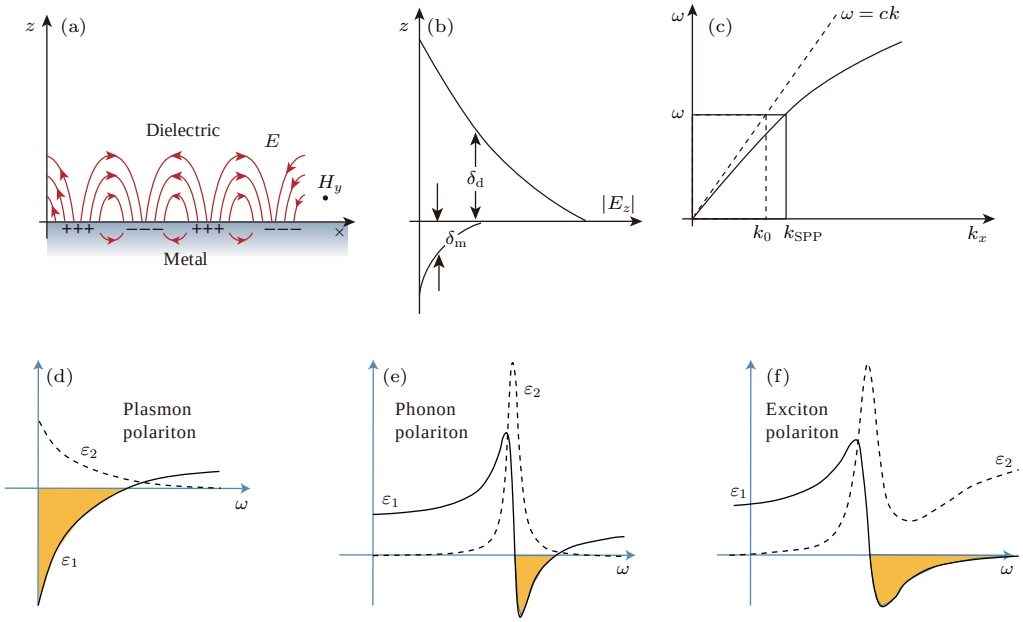


图2 表面极化激元的特征[54] (a) 表面等离子极化激元的横磁模场分布特性; (b) 场在垂直于界面的方向上指数式衰减, 介质中的衰减长度 δ_d 在电磁波的半波长量级, 在金属中的衰减长度 δ_m 与金属的趋肤深度相关; (c) 表面等离子极化激元模式的色散关系; 几类极化激元的介电函数曲线[55]: (d) 等离子极化激元; (e) 声子极化激元; (f) 激子极化激元, ε_1 为介电函数的实部, ε_2 为介电函数的虚部, ε_1 在阴影区域小于0

Fig. 2. Characteristics of surface polaritons[54]: (a) SPPs at the interface between a metal and a dielectric material have a combined electromagnetic wave and surface charge character; (b) this combined character leads to the field component perpendicular to the surface being enhanced near the surface and decaying exponentially with distance away from it. In the dielectric medium above the metal, the decay length of the field δ_d, is of the order of half the wavelength of light involved, whereas the decay length into the metal δ_m, is determined by the skin depth; (c) the dispersion curve for an SPP mode shows the momentum mismatch problem that must be overcome in order to couple light and SPP modes together, with the SPP mode always lying beyond the light line, that is, it has greater momentum ($\hbar k_{SPP}$) than a free space photon ($\hbar k_0$) of the same frequency ω; (d)–(f) the illustration of dielectric functions $\varepsilon_1 + i\varepsilon_2$ for plasmon polariton, phonon polariton, and exciton polariton. The corresponding surface polaritons can be supported within the frequency range when $\varepsilon_1 < 0$, as shown in the shaded area[55].

需要强调的是, 在太赫兹波段, 简单金属/介质界面的表面等离子极化激元波的束缚能力很弱, 几乎等同于自由传播的电磁波, 已经不具备克服衍射极限的能力. 我们必须寻求其他方案, 如金属超构材料、二维狄拉克材料, 以及其他类型的表面极化激元, 如表面声子极化激元.

3 太赫兹表面声子极化激元

3.1 声子极化激元

不管是否外加电磁场, 声子极化激元是极性材料的本征模式, 归属于元激发. 晶格振动波, 即格波与电磁波相互作用, 也就是说发生耦合效应是有条件的: 1) 从电磁波与格波的色散曲线可知, 在它们的交点处才可能会发生耦合作用, 如图3所示, 只有光学振动模能够满足这个条件, 两者必须具有相同的频率和波矢; 2) 在无限空间和体块材料中电磁波是横波, 能够与电磁波耦合的晶格振动模也应是横振动模; 3) 横晶格振动必须是具有极性的, 即伴随有旋极化波的产生, 极性晶格振动模存在于由不同符号的离子所组成的离子晶体以及所有的压电晶体中. 由于电磁波相对于弹性波的速度很大, 在色散关系中它是一根十分靠近频率轴的直线, 所以与电磁波直接相互作用的晶格振动模的频率非常接近基本固有晶格振动频率 (ω_{TO}). 实际晶体的

基本固有晶格振动频率一般位于10^{12}—10^{14} Hz范围, 属于太赫兹至中红外波段. 因此, 在实际晶体中声子极化激元的产生将会导致太赫兹至中红外的吸收和介电异常现象.

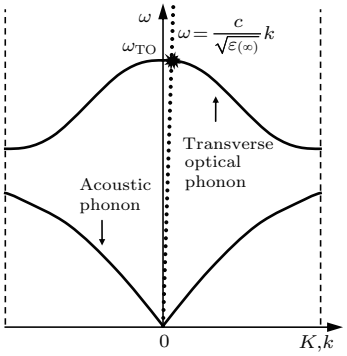


图3 电磁波与横光学模耦合示意图

Fig. 3. The schematic of the coupling between the electromagnetic wave and transverse optical phonon.

对于离子晶体, 正负离子振动时引起极化, 伴随有电场的产生, 该电场又反过来影响正负离子的振动情况. 如果用微观模型来处理上述过程, 问题会变得相当复杂, 其中涉及极化的微观机理、库仑场作用的长程性、不同晶体结构的退极化场的相异性等. 基于这一事实, 黄昆先生提出了一对唯象方程, 引进宏观电场这一新的物理量来描述离子振动中所受到的库仑力作用, 而且宏观电场和离子位移同时对电极化做贡献, 这就是黄昆方程的基本结构框架. 考虑光学各向同性的双原子离子晶体, 黄昆方程可写为[58−60]

$$\begin{aligned}\ddot{\boldsymbol{W}} &= b_{11}\boldsymbol{W} + b_{12}\boldsymbol{E},\\ \boldsymbol{P} &= b_{21}\boldsymbol{W} + b_{22}\boldsymbol{E},\end{aligned} \tag{1}$$

其中$\boldsymbol{W}$为约化位移, $\boldsymbol{E}$为宏观电场, $\boldsymbol{P}$为电极化, 系数b_{ij} $(i,j=1,2)$可通过对宏观物理量的测量而获得, 由能量守恒定律可以证明$b_{12}=b_{21}$. 与谐振子相类比, 该方程中第一式代表运动方程, 右边第一项代表弹性恢复力, 第二项代表宏观电场附加的恢复力; 第二式是极化方程, 右边第一项表示离子电荷的位移引起的电极化, 第二项则是一般电介质均有的对电场的响应, 在这里主要是电子的极化. 黄昆方程是一个宏观描述性的方程, 不能适用于波长在晶格常数量级的晶格振动, 同时它还忽略了非谐力与电矩的高阶项的作用以及阻尼作用, 但从实用的角度上具有简洁和有效的特点.

电磁波在真空和介质中的传播速度很快但非瞬时, 因此在研究电磁作用时应该考虑其传播速度的存在, 这就是电磁推迟效应. 将黄昆方程和麦克斯韦方程结合起来, 可以得到以下结论[60−63]: 1) 纵极化场无旋, 类静电场, 没有电磁性, 只是增加恢复力, 从而增加振动频率, 纵光学声子模不受电磁推迟作用的影响; 有著名的LST (Lyddane-Sachs-Teller)关系[64]成立, 即$\omega_{\rm LO}/\omega_{\rm TO}=\varepsilon(0)/\varepsilon(\infty)^{1/2}$, LST关系反映了静电介电常数$\varepsilon(0)$总是大于高频介电常数$\varepsilon(\infty)$, 以及与极化电场的作用而使长光学纵波的频率$\omega_{\rm LO}$大于长光学横波的频率$\omega_{\rm TO}$之间的一致性; 另外, 可以看出在离子晶体中由于$\omega_{\rm LO}\neq\omega_{\rm TO}$, 两长光学模简并消除, 而它们在非离子晶体中是简并的; 2) 横极化场有旋, 具有电磁性, 横光学声子模在长波情形下与光子相互耦合形成新的模式—— 声子极化激元. 声子极化激元的介电函数与Lorentz色散模型理论相符, 具有以下方程形式:

$$\varepsilon(\omega)=\varepsilon(\infty)\left(1+\frac{\omega_{\rm LO}^2-\omega_{\rm TO}^2}{\omega_{\rm TO}^2-\omega^2-{\rm i}\omega\gamma}\right), \tag{2}$$

这里γ表示材料的阻尼常数, 它的量纲同于频率. 方程(2)所对应的介电函数曲线形式如图2(e)所示. 图4为声子极化激元的色散关系示意图[63], 除了图中所示的可区分为类光、类声部分外, 一个最显著的特性便是在$\omega_{\rm TO}$与$\omega_{\rm LO}$的频带范围内电磁波不能在晶体中传播. 在此波段或频段内介电函数为负, 波矢为虚数, 如果忽略阻尼作用, 在这种频率范围内从外部入射到晶体的辐射将被完全反射, 这一频率范围常被称为剩余辐射带(reststrahlen band). 利用这一效应可以获得准单色光, 从而可与光子晶体、声子晶体等一道归于人工带隙工程的候选者行列.

一般来说, 极性材料中, 原子间的键合越弱、原子越重, 则声学声子的声速越小, 光学声子的振动频率也越低; 同时, 相邻原子质量差越大, 原子间的键合强度一般也会下降, 从而光学声子频率降低. 自然界中, $\omega_{\rm TO}$处于太赫兹波段的极性晶体为数不多, 它们有GaAs[65,66], InP[67], CaF_2[68]等. 图5为GaAs晶体在剩余辐射带附近的反射谱[69].

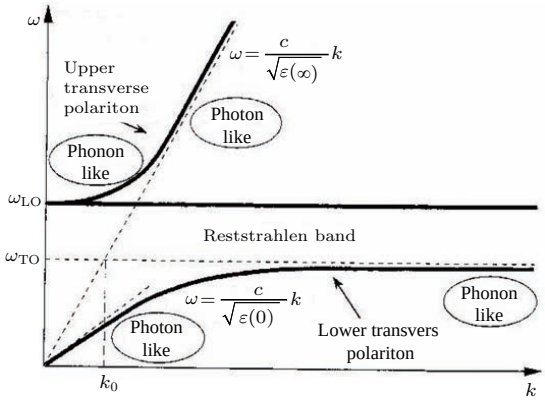


图 4 声子极化激元的色散关系示意图 [63] $\omega_{\rm LO}$ 为长光学纵波频率, $\omega_{\rm TO}$ 为长光学横波频率, 其间为剩余辐射带区域; $\varepsilon(0)$ 表示静电介电常数, $\varepsilon(\infty)$ 表示高频介电常数

Fig. 4. The schematic of the dispersion of phonon polaritons [63]: $\omega_{\rm LO}$ and $\omega_{\rm TO}$ are the longitudinal and transverse optical phonon frequencies, respectively; the permittivity is negative between $\omega_{\rm LO}$ and $\omega_{\rm TO}$, in which the plane wave is evanescent, named as the reststrahlen band; $\varepsilon(0)$ and $\varepsilon(\infty)$ are the low and high frequency permittivities.

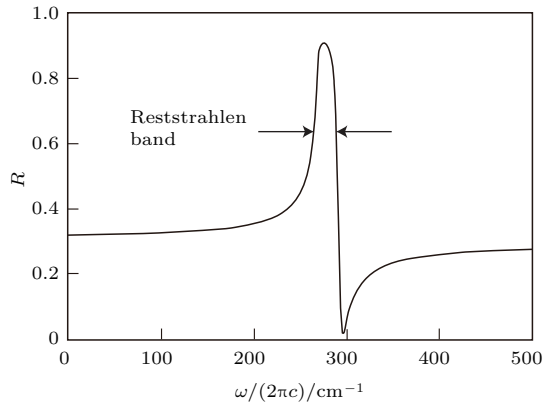


图 5 GaAs 的太赫兹声子极化激元产生的剩余辐射带 [69]

Fig. 5. The calculated reflectivity for GaAs [69].

3.2 人工声子极化激元

从下文我们将会看到, 等离子极化激元的响应频率由自由电荷浓度决定并调节, 而离子晶体支持的声子极化激元没有这样的可调性与灵活性. 但声子极化激元具有更低损耗等优势, 可在太赫兹波段任意位置响应的声子极化激元为人们所期待. 我们考虑在离子晶体中引入有规则的缺陷, 构成人工超结构, 通过结构周期大小来改变产生剩余辐射带的位置.

从广义上讲, 具有压电、压磁性质的材料经规则排布后, 其振动形成的宏观电/磁极化可与电磁波相互作用, 耦合谐振产生声子极化激元, 我们称之为压电/磁超构材料. 压电/磁超构材料较离子晶体有着很多新奇的地方, 在离子晶体中, 声子极化激元只能由电磁波与横振动光学格波的耦合产生, 而在压电/磁超构材料中, 电磁波可与声学格波相耦合, 不仅可与横振动声学格波耦合, 还可以与纵振动声学格波耦合. 更重要的是压电/磁超构材料可将声子极化激元的光子-声子耦合位置从红外波段下移至太赫兹甚至更低波段, 同时带隙大小也具有可调节性, 这些为太赫兹领域注入了生机与活力, 为实际应用提供了新的思路. 根据实际需要, 人们可通过调整压电/磁超构材料的周期大小来获得满足要求的工作频段, 通过选材等手段来获得所需带隙大小, 我们称这种具有灵活性与可调性的压电/磁超构材料中的声子极化激元为人工声子极化激元.

对于压电超构材料, 通过声场运动方程 [70]:

$$\nabla\cdot\boldsymbol{T}=\rho\frac{\partial^2\boldsymbol{u}}{\partial t^2}, \tag{3}$$

其中 $\boldsymbol{T}$, $\boldsymbol{u}$ 和 ρ 分别代表应力、粒子位移以及材料密度. 根据方程 (3) 和应变-位移关系 $\boldsymbol{S}=\nabla_{\rm s}\boldsymbol{u}$, 得到

$$\nabla_{\rm s}\nabla\cdot\boldsymbol{T}=\rho\frac{\partial^2\boldsymbol{S}}{\partial t^2}, \tag{4}$$

加上压电本构方程

$$\begin{aligned} T_I&=C_{IJ}^{\rm E}S_J-e_{Ij}E_j,\\ D_i&=e_{iJ}S_J+\varepsilon_{ij}^{\rm S}E_j, \end{aligned} \tag{5}$$

其中 T, S, E 和 D 分别表示应力、应变、电场强度和电位移; $C^{\rm E}$, e 和 $\varepsilon^{\rm S}$ 分别是短路弹性、压电和受夹介电张量. 其中 $i,j=1,2,3$; $I,J=1,2,3,4,5,6$.

这里我们以由铌酸锂 ($LiNbO_3$) 或钽酸锂 ($LiTaO_3$) 晶体组成的压电超构材料为例, 因为铌酸锂是一种铁电材料, 可以经由铁电畴工程技术制备压电超构材料. 铌酸锂晶体属于 $3m$ 点群, 电畴的自发极化沿 z 方向, 正负电畴的晶体学坐标之间的关系是绕 x 轴旋转 180° [71], 可以构建如图 6 所示的一维排列情况 [72]. 因此, 正负电畴的奇数阶张量的所有元素将具有相反的符号, 如在方程 (5) 中, 即只有压电张量在正负畴发生变号.

选取图 6 (a) 所示的沿 x 轴方向排列电畴的结构, 由方程 (4) 和方程 (5) 可得到纵振动的运动方程:

$$\rho\frac{\partial^2 S_1}{\partial t^2} - C_{11}^E\frac{\partial^2 S_1}{\partial x^2} = \frac{\partial^2 (e_{22}(x)E_2)}{\partial x^2}. \quad (6)$$

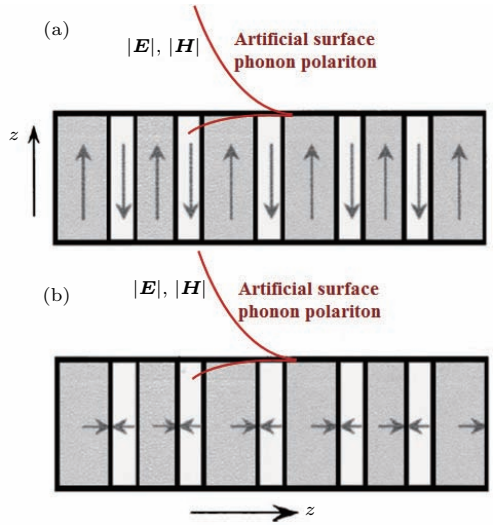


图 6 由铁电畴构成的一维压电超构材料示意图 [72] (a), (b) 表示两种排列构型, 箭头方向表示自发极化方向; 在人工声子极化激元的介电异常处, 压电超构材料的表面/界面处支持表面人工声子极化激元

Fig. 6. The schematic diagram of one-dimensional piezoelectric metamaterials with the ferroelectric domains arranged along (a) x or y axis, and (b) z axis. The arrows present the spontaneous polarization direction of ferroelectric domains. Artificial surface phonon polaritons exist at the surface/interface of piezoelectric metamaterials [72].

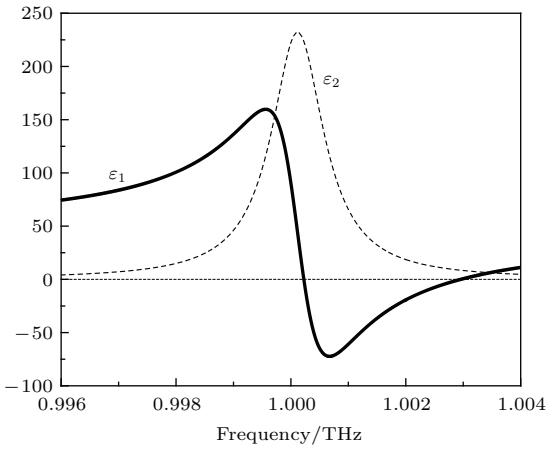


图 7 压电超构材料中太赫兹人工声子极化激元的介电函数曲线 ε_1 为介电函数的实部, ε_2 为介电函数的虚部; 阻尼常数为 $\gamma = 0.01\omega_{\rm LO}$, 在 ε_1 小于 0 的区域支持太赫兹表面人工声子极化激元

Fig. 7. The calculated dielectric function curves of an artificial phonon polariton operating around 1 THz in the piezoelectric metamaterial illustrated as Fig. 6 (a). The real and imaginary parts of dielectric function is ε_1 and ε_2 respectively. For safety, a rather large damping constant $\gamma = 0.01\omega_{\rm LO}$ is chosen. The artificial surface phonon polariton can be generated when $\varepsilon_1 < 0$.

从方程 (6) 可以看出, 压电超构材料类似于一个受迫振子, 电磁波将激发出沿 x 轴传播的纵声波. 通过一定的数学处理 [73−76], 得到形式如方程 (2) 的压电超构材料的等效介电函数. 进一步计算显示, 选取周期为几十纳米时, 人工声子极化激元位于 1 THz 附近, 考虑实际损耗, 以较大的阻尼常数 $\gamma = 0.01\omega_{\rm LO}$ 代入计算出的介电函数如图 7 所示.

因此, 对人工声子极化激元的研究不仅有基础研究的意义, 还具有很大的开发潜力与应用前景. 根据其特殊的物理性质, 可望开发出一些新型的光学器件和声学器件.

3.3 表面声子极化激元

与表面等离子极化激元类似, 单界面表面声子极化激元的色散关系

$$k_x = \omega/c\sqrt{\varepsilon_{\rm SPhP}\varepsilon_{\rm ambient}/(\varepsilon_{\rm SPhP} + \varepsilon_{\rm ambient})},$$

$\varepsilon_{\rm SPhP}$ 与 $\varepsilon_{\rm ambient}$ 分别是离子晶体与环境材料的介电函数, 其色散曲线如图 8 (a) 所示. 与图 2 (c) 表面

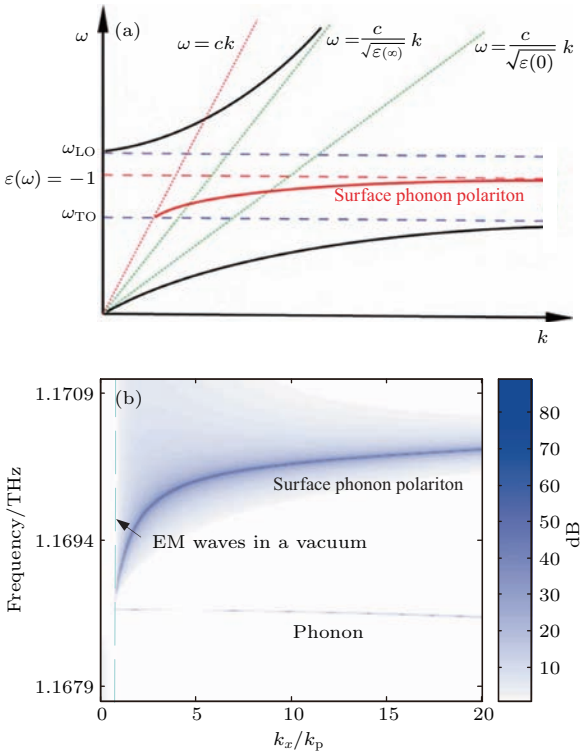


图 8 (a) 离子晶体 [77] 及 (b) 压电超构材料 [50] 与空气界面的表面声子极化激元的色散关系, 表面声子极化激元出现于声子极化激元的剩余辐射带 (亦见图 4 所示)

Fig. 8. The dispersion curves of surface phonon polaritons in (a) ionic crystals [77] and (b) piezoelectric metamaterials [50]. In (a), the dispersion curve of corresponding phonon polariton is a guide for the eyes, as well as those of photons in the low and high frequency limit, and in air; in (b), $k_{\rm p} = 50\ {\rm cm}^{-1}$.

等离子极化激元的色散曲线具有类似性, 其激发需满足动量匹配条件, 且具有更大的色散性. 虽然存在范围窄 ($\omega_{\rm TO}$ 与 $\omega_{\rm LO}$ 之间的区域), 但较表面等离子极化激元有低损耗的优势.

图 8 (b) 所示为压电超构材料的表面人工声子极化激元, 其色散曲线与图 8 (a) 相似[50,78]. 其场分布束缚于超构材料的表面, 在垂直于界面的方向场强呈指数衰减, 具有倏逝波特征, 如图 6 所示. 表面人工声子极化激元的工作频段具有可调性, 适合构建工作于太赫兹波段的表面声子极化激元, 为太赫兹波段克服衍射极限器件的研制提供了新的方案与途径.

4 太赫兹表面等离子极化激元

工作于可见光波段附近的表面等离子极化激元主要由金属 Au, Ag, Al, Cu 等支持, 在太赫兹波段, 这些金属的介电函数实部的绝对值较一般介质材料的大两三个数量级, 这时表面等离子极化激元的色散曲线非常接近于介质材料中的光线, 从而失去高束缚能力及场增强等特有意义.

这一问题的本质在于金属中电子浓度过高, 约 10^{22}—10^{23} cm^{-3}. 在表面等离子极化激元色散关系 $k_x=\omega/c\sqrt{\varepsilon_{\rm m}\varepsilon_{\rm ambient}/(\varepsilon_{\rm m}+\varepsilon_{\rm ambient})}$ 中, 以 Drude 模型简化金属的介电函数 $\varepsilon_{\rm m}=1-\omega_{\rm p}^2/\omega^2$, 得到表面等离子极化激元的渐近频率 $\omega_{\rm SPP}=\omega_{\rm p}/\sqrt{1+\varepsilon_{\rm ambient}}$, 其中等离子体频率 $\omega_{\rm p}=\sqrt{Ne^2/\varepsilon_0 m^*}$, N, m^*, e 分别表示自由电荷的浓度、有效质量及基本电荷, ε_0 是真空介电函数. 从上述可以得知, 金属的表面等离子极化激元只在紫外-可见光-近红外波段性能优异, 另一方面, $\omega_{\rm p}$ 随电荷浓度可调, 因此太赫兹表面等离子极化激元可通过稀释自由电荷浓度的途径来获得.

4.1 表面人工等离子极化激元

如图 9 (a), 在金属表面挖沟槽或打孔形成的超构材料[79], 等效于平均电荷浓度的降低. 类似于光子晶体的效能, 在具有周期图案化的金属表面, 传播的表面等离子极化激元会因经受布拉格 (Bragg) 反射而形成能带结构, 在布里渊区 (Brillouin zone) 边界, 带隙打开, 如图 9 (b) 所示, 具有与图 2 (c) 的类似特性. 这类表面等离子极化激元常被称为 spoof SPPs 或 designer SPPs[79−82]. 可基于此开展设计一些太赫兹表面等离子极化激元器件, 如图 10 所示的能量聚焦结构[83].

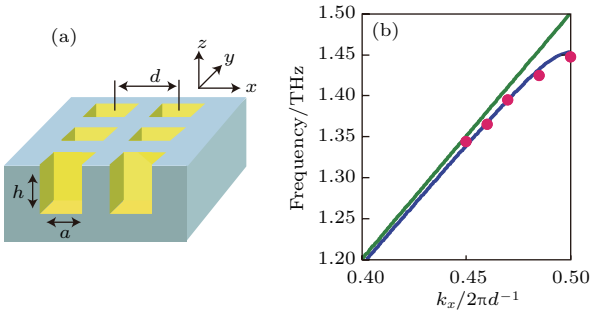


图 9 可支持太赫兹表面等离子极化激元的金属超构材料[79] (a) 金属超构材料示意图; (b) 表面等离子极化激元的色散关系

Fig. 9. Plasmonic metamaterials working at THz range[79]: (a) Schematic of the plasmonic metamaterial showing holes in yellow; (b) SPP dispersion curve near the Brillouin zone boundary. The green curve indicates the light line, the blue curve is calculated by modal expansion approximation, and red points are from finite-difference time-domain simulation.

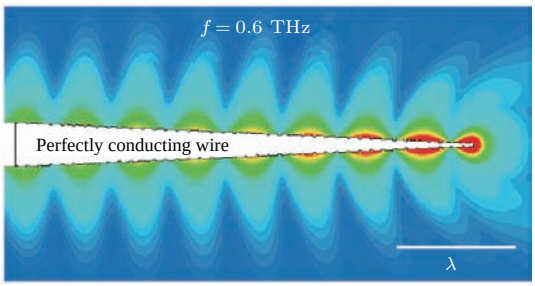


图 10 刻有凹槽结构的锥形完美导体的太赫兹波汇聚作用[83]

Fig. 10. Superfocusing on a corrugated cone of length 2 mm, with constant groove depth $h=5$ μm and period $d=5$ μm. Cylinder radius R is reduced from 100 to 10 μm. The plot shows the magnitude of the $\boldsymbol{E}$ field on a logarithmic scale spanning 2 orders of magnitude[83].

4.2 掺杂半导体的表面等离子极化激元

半导体工业对人类生产与生活产生了巨大的影响, 在 Si 电子芯片走向纳米级工艺制造的同时, 光通信领域的 Si 基光子学与光子集成芯片的发展日益成熟. 半导体 Si 的掺杂分为 n 型和 p 型, 其掺杂浓度 N 与等离子体频率 $\omega_{\rm p}$ 的关系已得到研究[84], 采用中等掺杂程度 $N\approx10^{16}$ cm^{-3} 的 n 型 Si, 其等离子体频率 $\omega_{\rm p}$ 在太赫兹范围. 太赫兹时域谱 (THz-TDS) 是有效的样品测量手段, 对太赫

兹表面等离子极化激元的测量需附加上如图 11 (a) 所示的耦入-耦出装置 [85]. 图 11 (b) 给出的是掺杂浓度 $N \approx 10^{18}$ cm^{-3} 的 n 型 Si 光栅的表面等离子极化激元透射谱信号 [86], 对时域信号进行傅里叶变换 (Fourier transform) $T = t(\omega)\exp[\mathrm{i}\phi(\omega)]$, $t(\omega)$ 是振幅, $\phi(\omega)$ 是相位, 由振幅 $t(\omega)$ 得到的频域透射谱如图 12 所示 [87]. 这一结果与 n 型 Si 光栅的表面等离子极化激元的能带结构一致, 即传播的表面等离子极化激元因布拉格反射在布里渊区边界带隙打开, 形成禁带, 在透射谱上表现为透射率的急剧降低. 对相位 $\phi(\omega)$ 数据进行处理, 可得到表面等离子极化激元的色散关系 [86], 如图 13 所示.

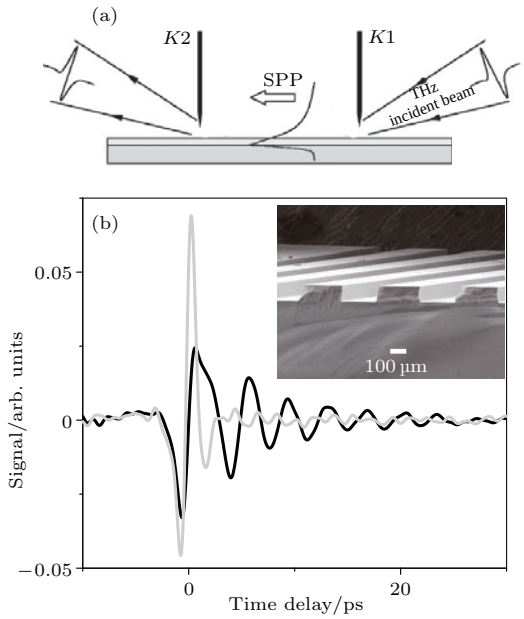


图 11 掺杂 Si 光栅表面传播的太赫兹表面等离子极化激元的时域谱测量 (a) 太赫兹表面等离子极化激元的实验测量装置示意图, 太赫兹脉冲在右端空隙处激发产生表面等离子极化激元, 传播到左端空隙处耦合出射 [85]; (b) 掺杂浓度 $N \approx 10^{18}$ cm^{-3} 的 n 型 Si 光栅的时域透射谱 [86], 插图是 Si 光栅的电子显微镜图

Fig. 11. (a) Experimental setup used for exciting THz SPPs on the sample [85], the incoming THz beam is focused on the incoupling aperture controlled by razor blade $K1$, the SPPs travel along the sample surface/interface until scattered at the outcoupling aperture controlled by another razor blade $K2$; (b) THz SPP transients, the gray curve corresponds to SPPs propagating on a flat n-doped Si surface with a carrier density of $N \approx 10^{18}$ cm^{-3}, the black curve corresponds to a SPP transient transmitted through a grating of 30 grooves with a lattice constant of 442 μm, groove depth of 100 μm, and groove width of 221 μm structured on a similar Si wafer; inset, scanning electron microscope image of an SPP grating [86].

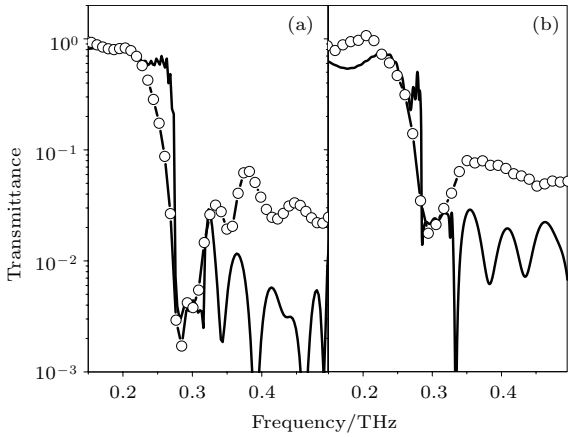


图 12 对时域信号进行傅里叶变换后得到的掺杂 Si 光栅的太赫兹透射谱 [86]

Fig. 12. Transmittance as a function of the frequency of SPPs propagating on gratings of grooves structured on Si wafers. The open circles are measurements and the solid curves numerical calculations: (a) Corresponds to a grating structured on n-doped Si with a carrier density of $N \approx 10^{18}$ cm^{-3}, while (b) corresponds to a similar grating structured on p-doped Si with a carrier density of $N \approx 10^{19}$ cm^{-3} [86].

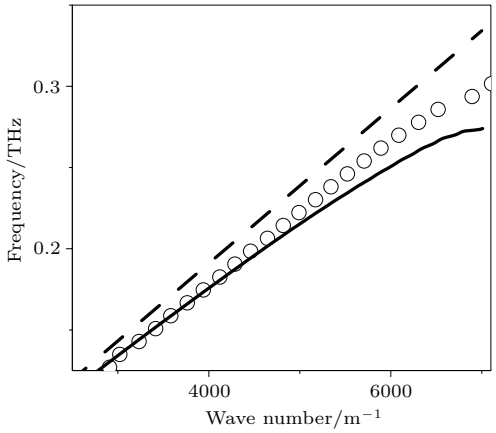


图 13 掺杂 Si 光栅所支持的表面等离子极化激元的色散关系 [86]

Fig. 13. Dispersion relation of SPPs on a grating of grooves structured on an n-doped Si wafer. The open circles are measurements, while the solid curve is a calculation. The dashed curve represents the dispersion relation of SPPs on a flat Si surface [86].

对掺杂 Si 的太赫兹表面等离子极化激元的研究, 利于太赫兹与 Si 基光子学的融合, 借鉴 Si 基光子学的成熟技术与工艺, 发展太赫兹科学与技术, 研制克服衍射极限的 Si 基太赫兹集成器件.

4.3 二维电子气

二维电子气 (two-dimensional electron gas, 2DEG) 是指电子气可以自由在二维方向移动, 而

在第三维上受到限制的现象. 它是许多场效应器件(例如金属 - 氧化物 -半导体场效应管 (metal-oxide-semiconductor field-effect transistor, MOSFET) 与高电子迁移率二极管 (high electron mobility transistor, HEMT)) 工作的基础. 二维电子气存在于掺杂半导体与绝缘层界面的反转层中, 与石墨烯 (graphene) 相比, 二维电子气属于一薄层, 在层厚的方向自由电荷浓度具有一定的分布, 其中电荷浓度可由栅极偏压调控, 电荷类型可以是电子或空穴. 因为光学响应发生在界面, 较为合适的是用面电导率来描述其光学性能, 二维电子气的面电导率可近似写成Drude 表达式 [87]:

$$\sigma(\omega)=\frac{e^2}{m^*}\frac{i}{\omega+i\tau^{-1}}n_s, \tag{7}$$

m^*, n_s, τ, e 分别表示自由电荷的有效质量、面电荷浓度、弛豫时间及基本电荷. 太赫兹响应所需的面电荷浓度 n_s 在 10^{12} cm^{-2} 量级, 如图 14 所示, 面电荷浓度越大, 响应频率越高 [88].

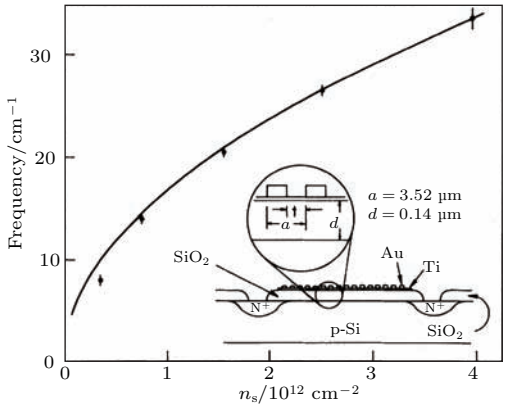


图 14 随面电荷浓度改变太赫兹响应的 Si 金属 -氧化物 - 半导体场效应晶体管 [88]

Fig. 14. Resonance position versus electron density n_s. The solid circles are the data from experiments. The solid curve is the calculated. Inset: the schematic of cross section through Si MOSFET with transparent gate and grating overlay [88].

二维电子气中等离子的集体振荡及其表面等离子极化激元的物理特性较早地得以研究 [89,90], 我们将在 5.1 节与石墨烯一并做比较性介绍.

5 二维材料的太赫兹表面极化激元

二维 (two-dimensional, 2D) 或范德瓦耳斯 (van der Waals, vdW) 材料是材料科学和凝聚态物理领域迅速发展的一个研究热点. 图 15 对二维材料中的极化激元予以概括性归总 [91], 包括二维等离子极化激元、声子极化激元、激子极化激元、库珀对极化激元、磁振子极化激元等. 这里我们介绍工作于太赫兹波段的二维狄拉克 (Dirac) 等离子极化激元与声子极化激元.

5.1 二维表面等离子极化激元

二维等离子材料在本质上属于二维电子气系统, 进一步与传统的二维电子气对比, 二维材料的特殊性表现在第三维上受到更大的限制, 即被限制于晶格原子周期性排布的单或多原子层中. 石墨烯就是这样一种具有六角蜂窝状点阵结构的单原子层, 物理性质来源于其独特的电子能带结构, 如图 16 所示, 能量为正的导带和能量为负的价带交汇于一点, 形成零带隙, 就像在零质量极限下的相对论狄拉克方程里正电子和负电子的能带在零动量处汇合一样. 因此, 在石墨烯中布里渊区边界的交汇点通常被称作狄拉克点 (Dirac point) [92].

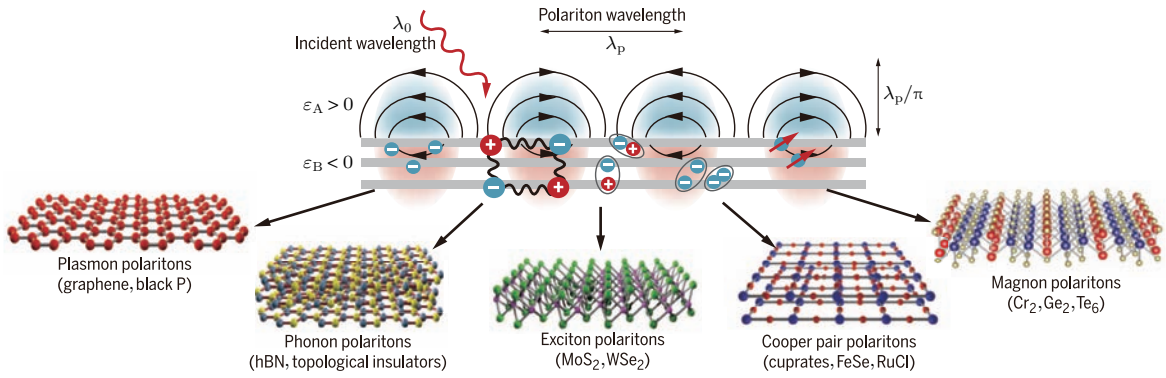


图 15 各类二维材料及其极化激元种类 [91]

Fig. 15. Polaritons in vdW materials [91], vdW polaritons exhibit strong confinement, as defined by the ratio of incident light wavelength λ_0 to polariton wavelength λ_p.

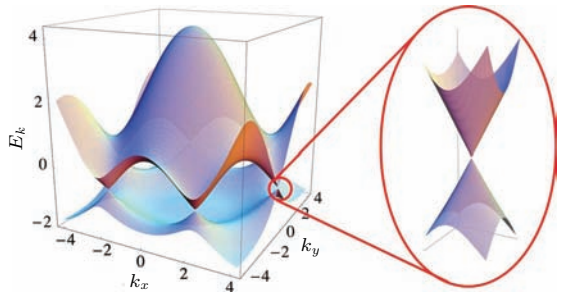


图 16 石墨烯的电子能带结构 [92]

Fig. 16. Electronic dispersion in the honeycomb lattice [92]: Left, energy spectrum; right, zoom in of the energy bands close to one of the Dirac points.

石墨烯的面电导率由带内跃迁项 $\sigma_{\rm intra}$ 与带间跃迁项 $\sigma_{\rm inter}$ 两部分组成 [93], 带内跃迁与带间跃迁过程分别如图 17 (a) 插图中的①与②所示. 太赫兹波段, 在高掺杂情况下, 即 $\hbar\omega \ll E_{\rm F}$ [$E_{\rm F}$ 为费米 (Fermi) 能, $\hbar$ 为约化普朗克常数 (reduced Planck constant), 有时称为狄拉克常数 (Dirac constant)] 时, 石墨烯的面电导率由带内跃迁项 $\sigma_{\rm intra}$ 决定, 可近似写成 Drude 表达式 [94]:

$$\sigma(\omega) = \frac{{\rm e}^2 E_F}{\pi\hbar^2}\frac{\rm i}{\omega + {\rm i}\tau^{-1}} = \frac{{\rm e}^2 \upsilon_{\rm F}}{\pi^{1/2}\hbar}\frac{\rm i}{\omega + {\rm i}\tau^{-1}}\sqrt{n_{\rm s}}, \tag{8}$$

其中 $\upsilon_{\rm F}$ 为费米速度, $\upsilon_{\rm F} \approx 10^6$ m/s. 比较方程 (7) 与方程 (8), 石墨烯为零质量电子狄拉克锥的线性能带, 面电导率 $\sigma(\omega) \propto n_{\rm s}^{1/2}$, 而二维电子气的电子能带结构呈抛物带型 [如图 17 (b) 中的插图所示], 其面电导率 $\sigma(\omega) \propto n_{\rm s}$. 前者的等离子体频率 $\omega_{\rm p} \propto n_{\rm s}^{1/4}$, 后者的等离子体频率 $\omega_{\rm p} \propto n_{\rm s}^{1/2}$. 图 17 给出了石墨烯与二维电子气的表面等离子极化激元在相同面电荷浓度 $n_{\rm s} = 10^{13}$ cm^{-2} 情况下的对比. 从图 17 的色散曲线可知, 石墨烯与二维电子气的太赫兹表面等离子极化激元的束缚能力不强, 但在中红外波段的传播波长较真空波长小两个数量级左右, 具有非常高的局域性, 即被约束体积达到衍射极限的 10^{-6} 倍.

有限尺寸石墨烯与二维电子气的棱边处所支持的表面等离子极化激元边模 (edge mode) 具有大的局域程度, 可实现太赫兹波段的强束缚能力, 其色散曲线如图 18 (a) 和图 18 (b)) 所示, 石墨烯带的单极 (monopole) 边模色散曲线呈 $\omega \propto q^{1/4}$ 的关系, 而二维电子气带很快拉平为与波矢无关的局域特征 [95], 这些特性与方程 (7) 和 (8) 所描述的面电导率紧密相关. 石墨烯带的太赫兹表面等离子极化激元边模与波导模的传播示意图如图 18 (c) 所示 [96], 这种极强的局域化不但可用来增强光与物质的相互作用, 而且可大大降低亚波长光波导的弯曲损耗 [97]. 石墨烯及二维电子气也因此成为克服衍射极限的太赫兹集成光子学器件及芯片的重要载体.

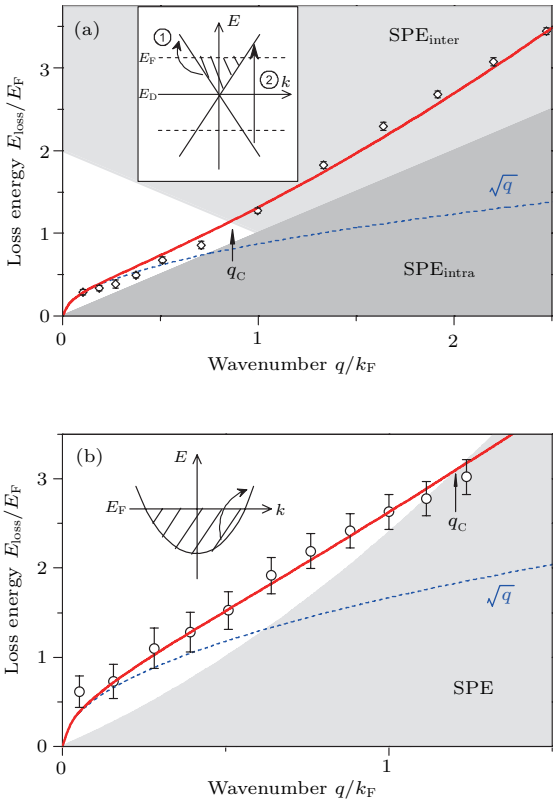


图 17 (a) 石墨烯与 (b) 二维电子气表面等离子极化激元的色散关系 [93]

Fig. 17. Plasmon dispersion for (a) graphene of similar charge density ($E_{\rm F} = 0.57$ eV, $n \sim 2\times10^{13}$ cm^{-2}) and (b) Si(111)-Ag surface-state band ($E_{\rm F} = 0.19$ eV, $n \sim 2\times10^{13}$ cm^{-2}). The respective band structures (inset diagrams) show the origin of single-particle excitations (SPEs) ① intraband and ② interband. Graphene is ambipolar with electron and hole carriers in separate π, π* bands. $q_{\rm c}$ indicates the onset where plasmon enters the damping region. The blue dashed curves correspond to $q^{1/2}$ dispersion of free 2DEGs with the same electron density, and the red full curves correspond to best fits to experimental results using high-resolution angle-resolved reflection electron-energy-loss spectrometer (HREELS) [93].

石墨烯及其微纳结构已经成为太赫兹领域的一颗冉冉升起的新星. 双层石墨烯、石墨烯纳米带、纳米盘等存在带隙, 并且禁带宽度可调, 多层石墨烯结构可制成 P-I-N 结, 应用于太赫兹等波段的光电探测、生物传感、可调激射等.

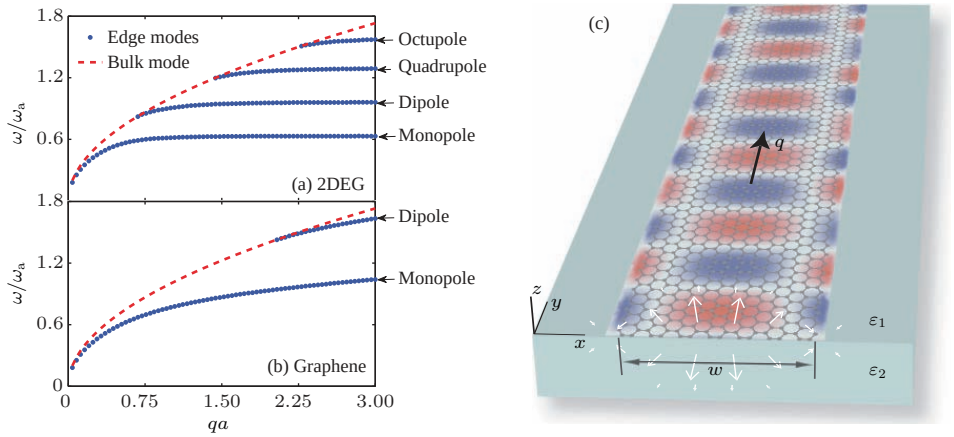


图 18 有限尺寸的 (a) 二维电子气与 (b) 石墨烯的表面等离子极化激元边模的色散关系 [95] 及其 (c) 太赫兹波段的边模及波导模的传播特征 [96]

Fig. 18. Calculated edge plasmon polariton dispersions for (a) 2DEG and (b) graphene with the edge layer width a, $\omega_a^2 = e^2 n_s/(2m^*\varepsilon a)$ in the 2DEG and $\omega_a^2 = e^2 v_F n_s^{1/2}/(2\pi^{1/2}\hbar\varepsilon a)$ in the graphene, where ε is the background dielectric constant [95]; (c) THz edge and waveguide modes. A graphene ribbon of the width w placed at the interface between two dielectric half spaces with dielectric constants ε_1 and ε_2, the mode propagates along the y axis. The color plot presents THz electric field x-component spatial distribution in the x-y plane, and the arrows correspond to the electric field lines in the x-z plane [96].

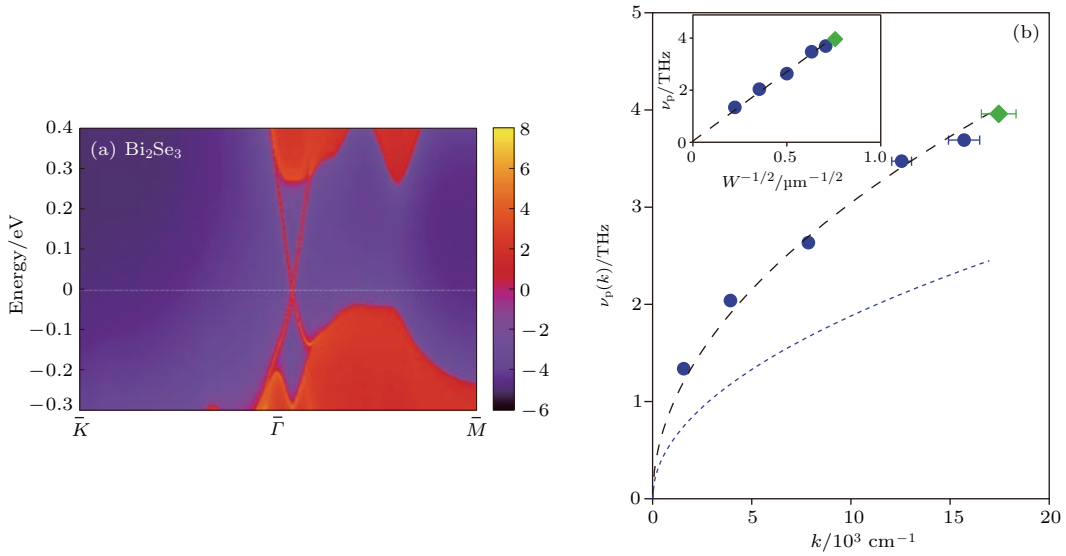


图 19 拓扑绝缘体 Bi_2Se_3 的 (a) 电子能带结构 [98] 与 (b) 太赫兹表面等离子极化激元色散关系 [99]

Fig. 19. Electronic dispersion and plasmon dispersion in topological insulator Bi_2Se_3: (a) The surface states with a single Dirac cone, the warmer colours represent higher local density of states (LDOS) on the [111] surface; the red regions indicate bulk energy bands and the blue regions indicate bulk energy gaps; the surface states can be clearly seen around the Γ point as red lines dispersing in the bulk gap [98]; (b) experimental and theoretical dispersion of plasmons in Bi_2Se_3 [99]. Main panel is experimental plamon dispersion at 6 K (blue circles) compared with the calculated plasmon dispersion for Dirac (dashed black line) and massive (dotted blue line) electrons, the additional point (green diamond) refers to a seventh sample with ribbon width $W = 1.8$ μm and period $L = 4$ μm; inset: linear dependence of plasmon frequency v_p on $W^{1/2}$.

拓扑绝缘体的表面态也具有狄拉克电子能带结构. 拓扑绝缘体是一种内部绝缘、界面允许电荷移动的材料. 在拓扑绝缘体的内部, 电子能带结构和常规的绝缘体相似, 其费米能级位于导带和价带之间. 拓扑绝缘体的表面存在完全由体电子态的拓扑对称结构所决定的、与表面具体结构无关的、不受杂质与无序影响的稳定量子态, 这些量子态位于块体能带结构的带隙之中, 具有不同自旋的电子运动方向相反. 图 19 (a) 所示的拓扑绝缘体 Bi_2Se_3 的电子能带结构表明, 在 Bi_2Se_3 的约 0.3 eV 的块体能

带结构的带隙之中存在穿越能隙的表面狄拉克电子态[98]. 拓扑绝缘体表面态的太赫兹表面等离子极化激元的色散关系遵循与石墨烯一致的零质量狄拉克电子的规律, 如图19 (b)所示[99].

此外, 双层石墨烯、过渡金属二硫化物、黑磷等二维材料也具有表面等离子极化激元效应.

5.2 二维表面声子极化激元

六角氮化硼(hexagonal boron nitride, hBN)提供各向异性的极性光学声子, 在不同轴向上的介电函数会有异号现象, 从而具有双曲超材料的性质[100]. 六角氮化硼的双曲声子极化激元特性发生在中红外波段, 而拓扑绝缘体材料Bi_2Se_3和Bi_2Te_3除了可见、近红外波段, 在太赫兹波段也具有双曲超材料性质[101]. 从图20所示的介电函数曲线可以预知拓扑绝缘体材料Bi_2Se_3的性能及其应用, 在区域A与C表现为双曲性, 区域B为剩余辐射带. 其表面模式的色散关系类似于图8所示, 双曲型声子极化激元的波导模式, 以及与表面等离子极化激元的耦合将在后文中讨论.

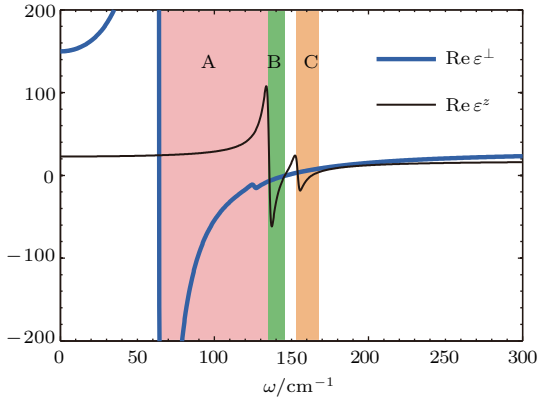


图20 拓扑绝缘体Bi_2Se_3的太赫兹介电函数及其双曲性[101]

Fig. 20. The real parts of the tangential and axial permittivities of Bi_2Se_3. The sign changes of the permittivities are due to the E_u and A_{2u} phonons. Surface- and bulk-confined collective modes exist inside the spectral regions where at least one of the permittivities is negative. They include the type-II hyperbolic region A ($\mathrm{Re}\,\varepsilon^{\perp} < 0$, $\mathrm{Re}\,\varepsilon^{z} > 0$), the reststrahlen region B ($\mathrm{Re}\,\varepsilon^{\perp}$, $\mathrm{Re}\,\varepsilon^{z} < 0$), and the type-I hyperbolic region C ($\mathrm{Re}\,\varepsilon^{\perp} > 0$, $\mathrm{Re}\,\varepsilon^{z} < 0$)[101].

6 表面声子极化激元与表面等离子极化激元的比较

一般情况下, 表面声子极化激元与表面等离子极化激元的材料载体与工作波段不同, 前者为介质, 主要工作在中红外波段, 后者为金属, 主要工作在紫外、可见及近红外波段. 表面极化激元的寿命取决于极化激元的寿命情况, 极化激元的寿命又以元激发本身的寿命为上限. 因散射机理不同, 极性材料中的光学声子寿命较长, 达到约1—100 ps[67,102], 相邻原子质量差越大, 光学声子寿命越长, 而晶格类型对光学声子寿命的影响不大. 金属中的自由电荷寿命约为10 fs[103−105]. 在声子极化激元的Lorentz型介电函数方程(2)中, 阻尼常数γ在10^{12} s^{-1}量级, 金属中等离子极化激元的Drude型介电函数方程中的阻尼系数γ在10^{14} s^{-1}量级, 两者相差两个数量级. 作为估算, 表面声子极化激元模的寿命会比声子的寿命小约4—10倍[47], 但仍比表面等离子极化激元模的寿命长1—2个数量级[104]. 从这一点来看, 表面声子极化激元因低损耗而使得应用前景更为诱人.

如图8所示的色散关系, 表面声子极化激元的色散性强, 群速度较低, 使得其传播长度不会比表面等离子极化激元的大很多. 中等或重掺杂的半导体支持太赫兹表面等离子极化激元, 阻尼系数γ在10^{13} s^{-1}量级, 损耗低于金属中的, 但因等离子频率ω_{p}也小了约一个量级, 所以由$\omega_{\mathrm{p}}/\gamma$所标定的综合性能不一定优于金属的. 此外, 工作于太赫兹的二维电子气的面电导率方程(7)及二维狄拉克材料的面电导率方程(8)中的阻尼常数都在10^{11} s^{-1}量级, 自由电荷寿命比金属中的大, 约为500 fs[106]. 二维材料中电子自由化程度低, 自由电荷浓度小, 这不但使其能够工作于低频的太赫兹波段, 同时也使电子-声子与电子-电子等散射变弱, 从而具有高的迁移率. 单层石墨烯、双层石墨烯、硫化钼、黑磷及1 nm厚Au的表面等离子极化激元的光场束缚及波传播性质如图21所示, 它们是在温度300 K、面电荷浓度$n_{\mathrm{s}} \sim 10^{12}$ cm^{-2}、n-型掺杂、SiO_2 (介电函数2.25)基板等相同条件下进行对比的. 从图21给出的几种二维材料的表面等离子极化激元性质可知, 二维材料的高局域程度、低损耗性能主要体现在中红外波段, 相较起来, 在太赫兹波段的表现并不十分诱人. 人们可通过结合表面声子极化激元、表面等离子极化激元及二维表面等离子极化激元等的优点, 产生具有所需优异性能的混合型表面极化激元, 后面将举例介绍.

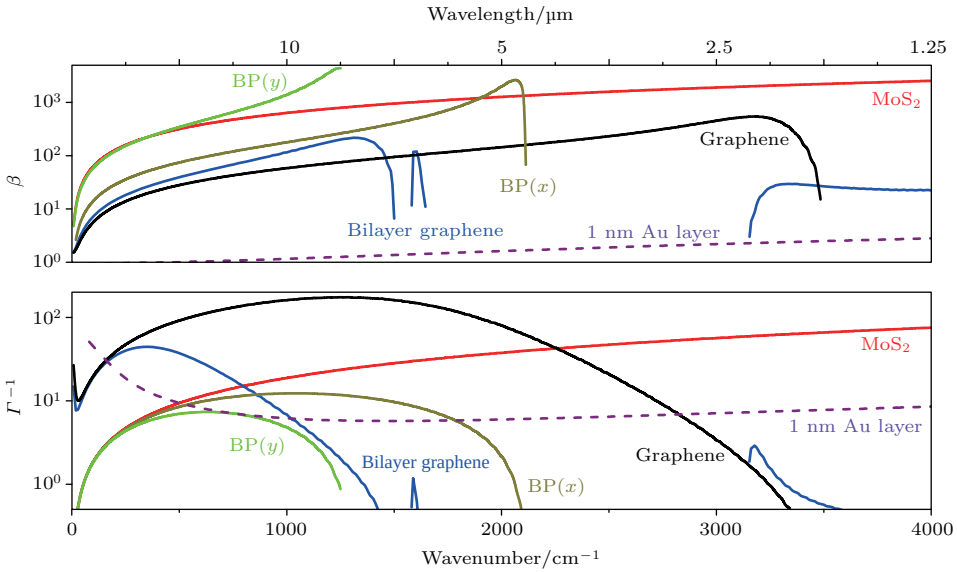


图 21 几种二维材料的表面等离子极化激元特性 [55]

Fig. 21. Calculated confinement factor β, which is obtained by normalizing the free-space wavelength to the confined wavelength, and figure of merit of propagation property Γ^{-1}, for various 2D materials such as graphene, bilayer graphene, black phosphorus (BP), and MoS_2. $\Gamma^{-1}/(2\pi)$ gives the number of cycles the 2D plasmon polariton can propagate before its amplitude decays by $1/e$. Result for Au monolayer is shown for comparison. BP exhibits highly anisotropic in-plane electronic dispersion, with effective masses along the two crystal axes differing by a factor of ~10. Both the high (x)- and low (y)-mass directions are displayed [55].

声子寿命依赖于内禀的声子-声子散射, 外在的缺陷、杂质以及表面粗糙等进一步降低其寿命, 因此高纯、高质的单晶体材料成为优选. 在低频的太赫兹波段, 声子寿命更长些, 工作于太赫兹波段的人工声子与超结构相联系, 作为缺陷本质的结构界面会带来额外的声子散射. 为降低这一损耗, 宜采用单晶畴结构, 因此铁电畴工程技术值得深入探索与研究, 使压电/磁超构材料成为低损耗人工声子极化激元实用化的材料载体, 并进一步开拓出新型太赫兹功能器件. 为提高表面等离子极化激元的性能, 人们也在不断地尝试抑制表面散射损耗的工艺及降低材料欧姆损耗的制备方法, 如金属撕膜工艺 (template removal) [107]、外延生长 (epitaxial growth) [41]、原子层沉积 (atomic layer deposition) [108] 及单晶 (single-crystalline) 合成 [109,110] 等.

7 混合型太赫兹表面极化激元

如前所述, 太赫兹波段的表面极化激元具有各自的优缺点, 如表面声子极化激元的损耗低但工作频段窄, 二维表面等离子极化激元具有可调性但传播不够远等, 若能构建它们的耦合模式, 则可结合各自的优点, 起到取长补短、相得益彰的效用.

7.1 表面声子-等离子极化激元

掺杂半导体中自由电荷与极性声子同时存在, 则声子与等离子有可能相互耦合. 这里我们举两个自由电荷与极性声子各自的载体相分离的例子. 图 22 所示为掺杂半导体或金属超构材料与压电超构材料组成的结构, 各自所支持的极性人工声子与等离子在近场范围内相互作用, 在界面处产生太赫兹混合型的表面声子-等离子极化激元, 它的带隙大小依赖于压电超构材料的厚度及二者间的耦合强度, 这一耦合强度决定于压电超构材料的机电耦合系数, 其值越大, 带隙越大 [50]. 图 23 显示了压电超构材料的结构重要性, 结构是形成宏观电极化, 并与太赫兹波相互耦合的基础. 结构可以具有周期性、非周期性或准周期性, 从而在太赫兹响应频谱上具有相应规律的分布, 这为太赫兹亚波长多波复用 (wavelength division multiplexing, WDM) 器件提供了物理基础与新途径. 基于压电超构材料的特殊功能以及亚波长结构性质, 这种表面声子- 等离子极化激元可以通过声波激发, 也可以通过电驱动产生, 从而为太赫兹亚波长器件提供了多样性与灵活性 [50].

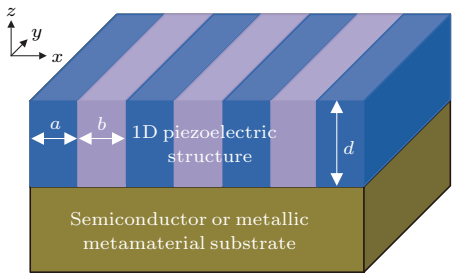


图 22 太赫兹表面人工声子-等离子极化激元结构示意图 [50]

Fig. 22. Schematic of a one-dimensional piezoelectric metamaterial film in contact with a semi-infinite semiconductor or metallic metamaterial substrate. The stripes periodically arranged along the x axis represent two components with different piezoelectric coefficients. a and b denote the widths of two components and d the thickness of the film [50].

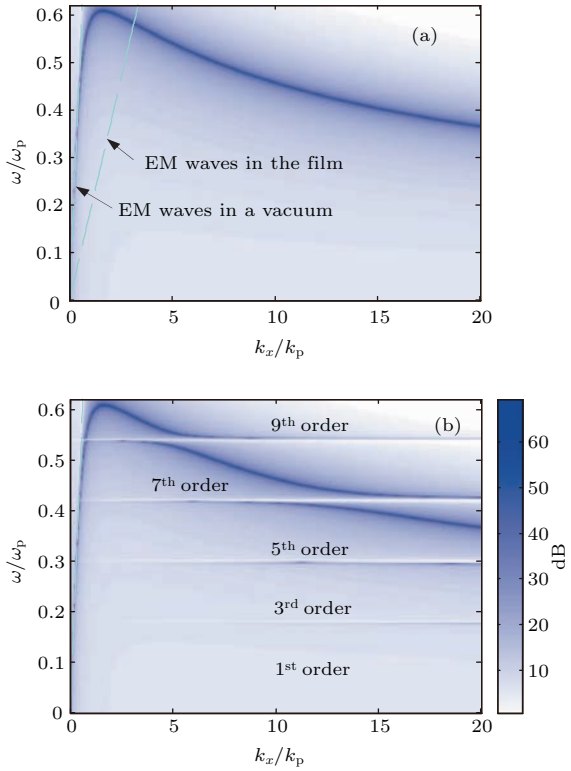


图 23 太赫兹 (a) 表面等离子极化激元与 (b) 表面人工声子-等离子极化激元的色散关系 [50]

Fig. 23. The dispersion curves of (a) surface plasmon polaritons for a similar layered system shown in Fig. 22, where the metamaterial film is replaced by a 200-nm-thick $LiNbO_3$ film textured with the c axis normal to the substrate, and (b) surface phonon-plasmon polaritons for the layered system shown in Fig. 22. Two components in Fig. 22 correspond to a textured 200-nm-thick $LiNbO_3$ of width of 20 nm with the $+c$ axis along the $+z$ direction and the $-c$ axis along the $+z$ direction. The labels denote the order numbers of transverse "phonon polaritons" woven into the surface plasmon polaritons [50].

相较于其他二维材料, 拓扑绝缘体的优势不仅表现在其支持太赫兹声子极化激元, 而且表现在制备工艺的简易性上, 它不像一般二维材料那样需要精确的层厚控制与转移技术, 作为其表面态的二维表面等离子极化激元存在于其表面/界面处. 图 20 所示的介电函数曲线中, Bi_2Se_3 在区域 A 与 C 表现出双曲特性, 其等频面如图 24 (a) 所示. 图 24 (b) 示意出声子极化激元与二维表面等离子极化激元分别被支持的空间区域位置, 后者存在于拓扑绝缘体的表面/界面. 在不掺杂情况下只出现声子极化激元模式, 如图 25 (a) 与图 25 (d) 所示. 图 25 (a)—图 25 (c) 是石墨烯/六角氮化硼/石墨烯结构的模式色散图, 这里作为对比使用. 六角氮化硼与拓扑绝缘体 Bi_2Se_3 都具有双曲性, 石墨烯/六角氮化硼/石墨烯结构与 Bi_2Se_3 表面/Bi_2Se_3/Bi_2Se_3 表面在结构特性上相似, 即各向异性的双曲材料被夹于两层狄拉克自由电荷层中, 只是前者工作在中红外波段, 后者工作于太赫兹波段. 有限厚的双曲材料层支持波导模式, 如图 25 (a) 与图 25 (d). 与图 20 相应, 图 25 (d) 中出现了明显的 3 段不同模式组. 双曲材料层的厚度越小, 波导模式数越少, 如图 25 (b) 与图 25 (c) 以及图 25 (e) 与图 25 (f) 之对比. 在掺杂情况下, 表面层出现表面等离子极化激元, 并与声子极化激元相

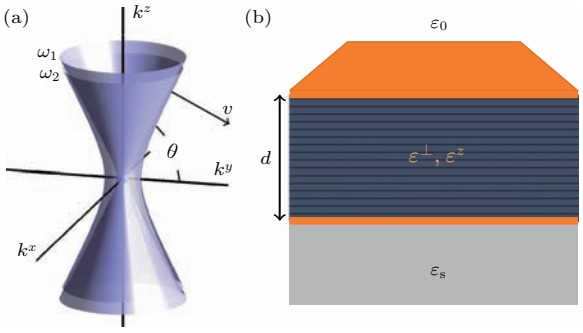


图 24 拓扑绝缘体的 (a) 双曲等频面及其 (b) 结构示意图 [101], (b) 中黄色层表示拓扑绝缘体表面态区域

Fig. 24. (a) Hyperboloidal isofrequency surfaces of hyperbolic phonon polaritons for two frequencies ω_1 and ω_2 ($\omega_2 > \omega_1$), the asymptote angle θ with respect to the k^x-k^y plane is shown; the group velocity $\boldsymbol{v}$ makes the same angle with respect to the k^z axis; (b) model geometry: a topological insulator slab of thickness d sandwiched between a substrate of permittivity ε_s and a superstrate of permittivity ε_0, the two thin (orange) layers represent the top and the bottom surfaces states [101].

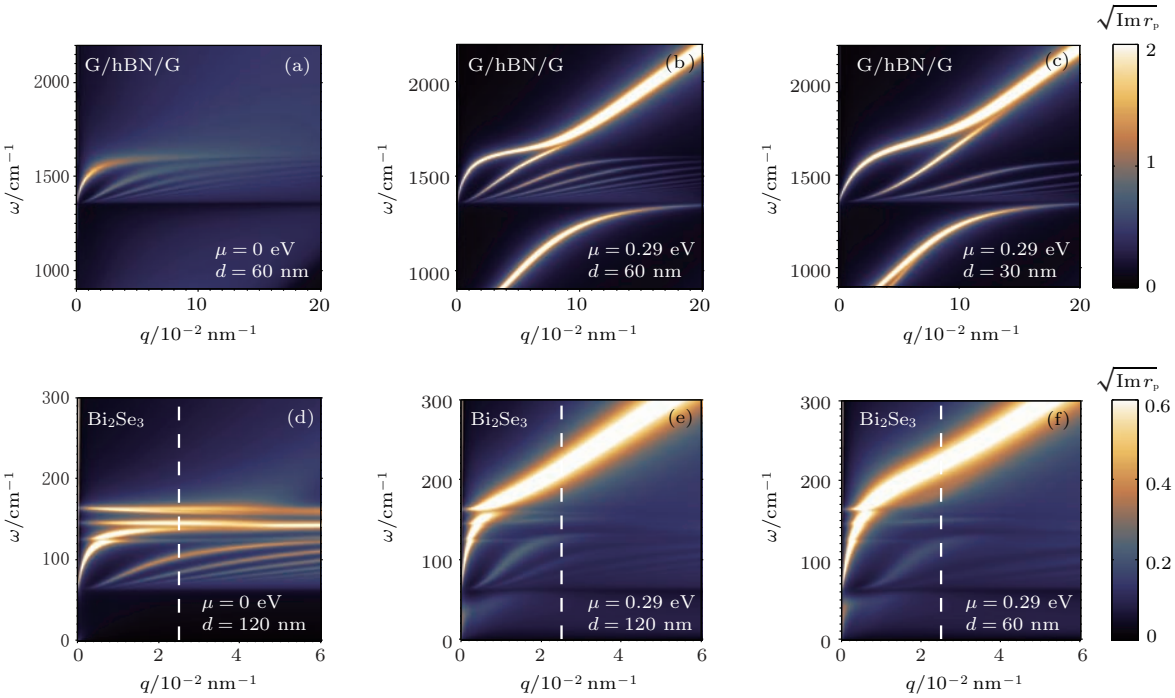


图 25 (a)—(c) 石墨烯 -六角氮化硼 -石墨烯异质结构在中红外波段, 以及 (d)—(f) 拓扑绝缘体 Bi_2Se_3 在太赫兹波段的表面声子 - 等离子极化激元的色散关系 [101]

Fig. 25. Collective mode dispersions of graphene-hBN-graphene (G/hBN/G) and Bi_2Se_3 slabs rendered using the false color maps of the imaginary part of reflectivity $\mathrm{Im}\,r_\mathrm{p}$ [101]. The parameters of the calculation for G/hBN/G are: (a) $d = 60$ nm, $\mu = 0$, (b) $d = 60$ nm, $\mu = 0.29$ eV, (c) $d = 30$ nm, $\mu = 0.29$ eV. The other parameters are $v = 1.00 \times 108$ cm/s, $\gamma_\mathrm{e} = 1.00$ THz, $\varepsilon_0 = 1$, and $\varepsilon_\mathrm{s} = 1.5$. The parameters of the calculation for Bi_2Se_3 are (d) $d = 120$ nm, $\mu = 0$, (e) $d = 120$ nm, $\mu = 0.29$ eV, (f) $d = 60$ nm, $\mu = 0.29$ eV. In these three plots, $v = 0.623 \times 108$ cm/s, $\gamma_\mathrm{e} = 1$ THz, $\varepsilon_0 = 1$, and $\varepsilon_\mathrm{s} = 10$. Equal doping of the top and bottom surface state is assumed. The vertical dashed lines correspond to experiments.

耦合, 形成表面声子-等离子极化激元, 图 25 (b) 与图 25 (c) 更容易看出其耦合细节. 二维表面等离子极化激元根据不同掺杂而具有可调性.

7.2 声学表面等离子极化激元

图 21 说明二维表面等离子极化激元在太赫兹波段的性能有待提升, 在二维材料附近引入金属层, 形成金属表面等离子极化激元与二维表面等离子极化激元相耦合的结构, 从而可以将场压缩在二者所夹的中间层中, 使局域性得到改善. 如图 26 (a) 所示的石墨烯/介质层/金属结构中, 石墨烯中的电荷浓度以及介质层厚度均可调控耦合模的色散性能, 介质层厚度越小, 耦合越强, 甚至使得色散曲线呈线性关系, 如图 26 (b) 中的黑色虚线所示. 基于这样的特征, 这种耦合模可被称为声学表面等离子极化激元 [106], 其特性可以通过与悬空石墨烯的二维表面等离子极化激元做对比而凸显出来. 根据图 27 所示的 2.52 THz 时的近场分布计算, 场被限制在 42 nm 厚度的六角氮化硼中, 且分布均匀. 这样, 在 z 方向上场被限制到 $\lambda_0/2800$ 的区域, 被约束的场强是悬空石墨烯情况下的 36 倍, 垂直于界面的空气侧的衰减长度 $\delta_\mathrm{d} = 0.26$ μm, 远小于悬空石墨烯情况下的 3.23 μm, 水平方向的传播波长 $\lambda_\mathrm{p} \approx 650$ nm, 从而限制因子 $\beta \approx 183$. 然而, 如此大的局域性基本上没有影响其低损耗特性, 声学表面等离子极化激元的寿命仍在 500 fs 量级 [106]. 若将图 26 (a) 结构中的石墨烯替换为二维电子气、拓扑绝缘体等其他二维材料, 其耦合效应类似.

8 结论与展望

太赫兹表面极化激元是克服衍射极限的太赫兹集成光子学器件的重要基础 [55], 如图 28 所示. 表面声子极化激元、二维表面等离子极化激元以及混合型表面极化激元等为太赫兹亚波长器件的研制提供了物理机理. 二维表面等离子极化激元因电荷浓度的改变而具有可调性; 表面声子极化激元的激发、二维材料的尺寸有限化, 以及层状结构设计

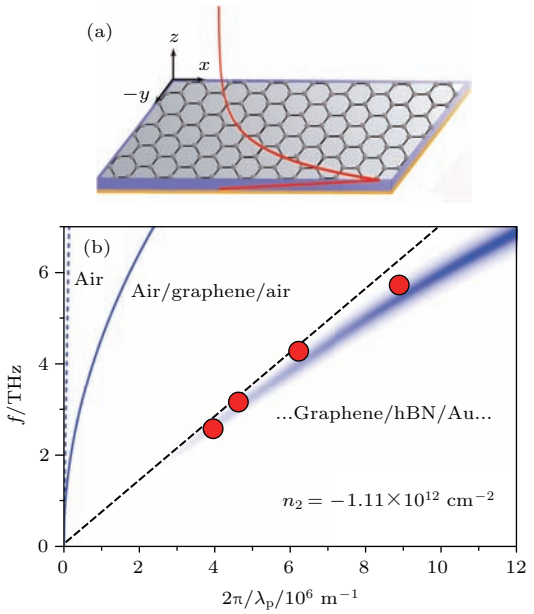


图 26 太赫兹声学表面等离子极化激元的 (a) 结构示意图 [111] 及 (b) 色散关系 [106]

Fig. 26. (a) The graphene-metal plasmonic waveguide: a dielectric spacer of permittivity ε is sandwiched between metal (bottom) and graphene (top); the guided mode propagates along the x direction and exponentially decays along the z direction; a bound field distribution is represented by the red curve [111]; (b) experimental and theoretical THz graphene plasmon dispersion relations; the red symbols display the experimental values; the error bars (standard deviation) are within the symbols size; the blue colour plot shows the calculated dispersion of graphene plasmons in an air/hBN/graphene/hBN/AuPd/SiO_2 heterostructure assuming the experimental carrier concentration and layer thicknesses; the thin blue solid line shows the calculated plasmon dispersion for free-standing graphene (air/G/air) of the same carrier concentration; the dashed black line displays the calculated plasmon dispersion, the dashed blue line indicates the light line in free space [106].

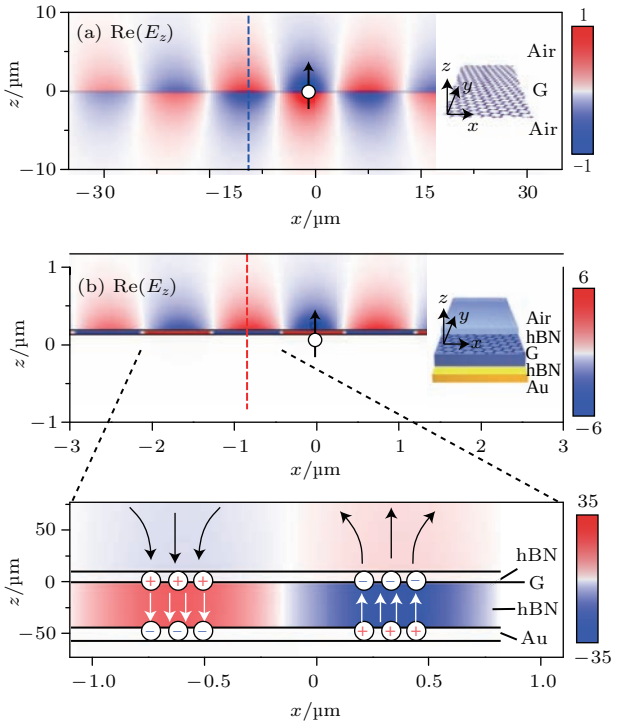


图 27 太赫兹 (a) 石墨烯与 (b) 声学表面等离子极化激元的场分布图 [106], 声学表面等离子极化激元的场被强烈地束缚于石墨烯与 Au 之间的六角氮化硼夹层中

Fig. 27. Near-field distribution of THz graphene plasmons: (a), (b) Numerical simulations of the near-field distribution of THz graphene plasmons excited by a point dipole source located above a free-standing graphene sheet (air/G/air) (a) and an air/hBN/G/hBN/AuPd/SiO_2 heterostructure (b) assuming the experimental layer thicknesses. The real part of the vertical field component, Re($E_z(x,z)$), at a frequency of 2.52 THz is shown for both cases. The + and − symbols in the zoomed-in image in (b) sketch the charge distribution in graphene and AuPd. Inset: in strong contrast, the field is concentrated inside the 42-nm-thick hBN layer between the metal and the graphene [106].

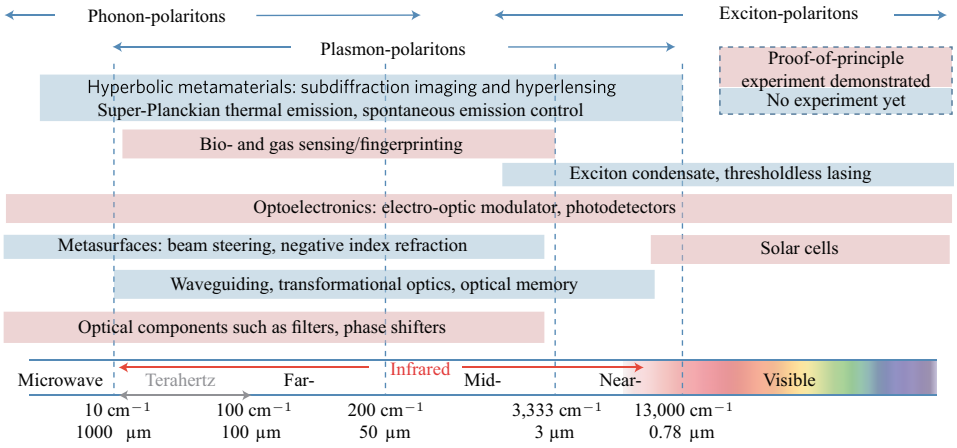


图 28 表面极化激元的可能应用 [55]

Fig. 28. Summary of the possible applications of surface polaritons [55].

可使电磁场的局域性变得更高; 在低损耗方面, 表面声子极化激元表现最佳, 然而太赫兹波段响应的天然材料十分有限. 基于压电/磁超构材料的太赫兹表面人工声子极化激元初现端倪[50], 其工作波段可以通过结构的周期大小进行调节, 其畴壁所带来的损耗特性有待进一步研究. 其他利用纳米尺度的周期性缺陷来引入太赫兹声子的方法[112−122]亦值得探索, 并相互借鉴. 混合型表面极化激元在性能调控方面更具灵活性, 可结合各类表面极化激元的优势, 如表面声子- 等离子极化激元可同时具备低损耗与可调性, 更有实际应用前景. 材料质量是确保上述物理机理发挥作用、性能得以最终实现的基石, 因此在大多数情况下需要优选纯度高、缺陷少、单晶的金属、极性介电材料、半导体材料以及二维材料等, 这方面可借鉴并结合纳米材料等领域的工艺与技术成果.

参考文献

[1] Tonouchi M 2007 *Nat. Photon.* **1** 97

[2] Ferguson B, Zhang X C 2002 *Nat. Mater.* **1** 26

[3] Soref R 2010 *Nat. Photon.* **4** 495

[4] Mittleman D 2003 *Sensing with Terahertz Radiation* (Berlin: Springer)

[5] Sakai K 2005 *Terahertz Optoelectronics* (Berlin: Springer)

[6] Lee Y S 2009 *Principles of Terahertz Science and Technology* (Berlin: Springer)

[7] Zhang X C, Xu J 2010 *Introduction to THz Wave Photonics* (Berlin: Springer)

[8] Dhillon S S, Vitiello M S, Linfield E H, et al. 2017 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50** 043001

[9] Fleischmann M, Hendra P J, McQuillan A J 1974 *Chem. Phys. Lett.* **26** 163

[10] Jeanmaire D L, van Duyne R P 1977 *J. Electroanal. Chem.* **84** 1

[11] Kneipp K, Wang Y, Kneipp H, Perelman L T, Itzkan I, Dasari R R, Feld M S 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 1667

[12] Nie S, Emory S R 1997 *Science* **275** 1101

[13] Li J F, Huang Y F, Ding Y, Yang Z L, Li S B, Zhou X S, Fan F R, Zhang W, Zhou Z Y, Wu D Y, Ren B, Wang Z L, Tian Z Q 2010 *Nature* **464** 392

[14] Zhang R, Zhang Y, Dong Z C, Jiang S, Zhang C, Chen L G, Zhang L, Liao Y, Aizpurua J, Luo Y, Yang J L, Hou, J G 2013 *Nature* **498** 82

[15] Gontijo I, Boroditsky M, Yablonovitch E, Keller S, Mishra U K, DenBaars S P 1999 *Phys. Rev. B* **60** 11564

[16] Okamoto K, NiKi I, Shvartser A, Narukawa Y, Mukai T, Scherer A 2004 *Nat. Mater.* **3** 601

[17] Pompa P P, Martiradonna L, Della Torre A, Della Sala F, Manna L, de Vittorio M, Calabi F, Cingolani R, Rinaldi R 2006 *Nat. Nanotech.* **1** 126

[18] Shimizu K T, Woo W K, Fisher B R, Eisler H J, Bawendi M G 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 117401

[19] Zhang X J, Wang P W, Zhang X Z, Xu J, Zhu Y Y, Yu D P 2009 *Nano Res.* **2** 47

[20] Zhang X J, Tang H, Huang J A, Luo L B, Zapien J A, Lee S T 2011 *Nano Lett.* **11** 4626

[21] Russell K J, Liu T L, Cui S, Hu E L 2012 *Nat. Photon.* **6** 459

[22] Jiang J J, Xu F, Xie Y B, Tang X M, Liu Z Y, Zhang X J, Zhu Y Y 2013 *Opt. Lett.* **38** 4570

[23] Wang Z, Dong Z G, Gu Y H, Chang Y H, Zhang L, Li L J, Zhao W J, Eda G, Zhang W J, Grinblat G, Maier S A, Yang J K W, Qiu C W, Wee A T S 2016 *Nat. Commun.* **7** 11283

[24] Genevet P, Tetienne J P, Gatzogiannis E, Blanchard R, Kats M A, Scully M O, Capasso F 2010 *Nano Lett.* **10** 4880

[25] Cai W, Vasudev A P, Brongersma M L 2011 *Science* **333** 1720

[26] Valev V K 2012 *Langmuir* **28** 15454

[27] Grosse N B, Heckmann J, Woggon U 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 136802

[28] Li G, Zhang S, Zengtgraf T 2017 *Nat. Rev. Mater.* **2** 17010

[29] Ebbesen T W, Lezec H J, Chaemi H F, Thio T, Wolff P A 1998 *Nature* **391** 667

[30] Andrew P, Barnes W L 2004 *Science* **306** 1002

[31] Atwater H A, Polman A 2010 *Nat. Mater.* **9** 205

[32] Aubry A, Lei D Y, Fernandez Dominguez A I, Sonnefraud Y, Maier S A, Pendry J B 2010 *Nano Lett.* **10** 2574

[33] Mooney J M, Silverman J 1985 *IEEE Trans. Electron. Dev.* **32** 33

[34] Clavero C 2014 *Nat. Photon.* **8** 95

[35] Sobhani A, Knight M W, Wang Y, Brown L V, Fang Z, Nordlander P, Halas N J 2013 *Nat. Commun.* **4** 1643

[36] Goykhman I, Desiatov B, Khurgin J B, Shappir J, Levy U 2011 *Nano Lett.* **11** 2219

[37] Zhang S, Genov D A, Wang Y, Liu M, Zhang X 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 047401

[38] Liu N, Langguth L, Weiss T, Kästel J, Fleischhauer M, Pfau T, Giessen H 2009 *Nat. Mater.* **8** 758

[39] Brongersma M L, Kik P G 2010 *Surface Plasmon Nanophotonics* (New York: Springer)

[40] Oulton R F, Sorger V J, Zentgraf T, Ma R M, Gladden C, Dai L, Bartal G, Zhang X 2009 *Nature* **461** 629

[41] Lu Y J, Kim J, Chen H Y, Wu C, Dabidian N, Sanders C E, Wang C Y, Lu M Y, Li B H, Qiu X, Chang W H, Chen L J, Shvets G, Shih C K, Gwo S 2012 *Science* **337** 450

[42] Fang N, Lee H, Sun C, Zhang X 2005 *Science* **308** 534

[43] Liu Z, Lee H, Xiong Y, Sun C, Zhang X 2007 *Science* **315** 1686

[44] Engheta N, Ziolkowski R W 2006 *Metamaterials: Physics and Engineering Explorations* (Hoboken, NJ: Wiley & Sons)

[45] Yu N F, Genevet P, Kats M A, Aieta F, Tetienne J P, Capasso F, Gaburro Z 2011 *Science* **334** 333

[46] Hillenbrand R, Taubner T, Keilmann F 2002 *Nature* **418** 159

[47] Caldwell J D, Glembocki O J, Sharac N, Giannini V, Bezares F J, Long J P, Owrutsky J C, Vurgaftman I, Tischler J G, Wheeler V D, Bassim N D, Shirey L M, Kasica R, Maier S A 2013 *Nano Lett.* **13** 3690

[48] Feurer T, Stoyanov N S, Ward D W, Vaughan J C, Statz E R, Nelson K A 2007 *Ann. Rev. Mater. Res.* **37** 317

[49] Hillenbrand R 2004 *Ultramicroscopy* **100** 421

[50] Zhang X J, Wu D M, Sun C, Zhang X 2007 *Phys. Rev. B* **76** 085318

[51] Huang K 1951 *Proc. Roy. Soc. A* **208** 352

[52] Hopfield J J 1958 *Phys. Rev.* **112** 1555

[53] Henry C H, Hopfield JJ 1965 *Phys. Rev. Lett.* **15** 964

[54] Barnes W L, Dereux A, Ebbesen T W 2003 *Nature* **424** 824

[55] Low T, Chaves A, Caldwell J D, Kumar A, Fang N X, Avouris P, Heinz T F, Guinea F, Martin Moreno L, Koppens F 2017 *Nature Mater.* **16** 182

[56] Kavokin A V, Shelykh I A, Malpuech G 2005 *Phys. Rev. B* **72** 233102

[57] Kaliteevski M, Iorsh I, Brand S, Abram R A, Chamberlain J M, Kavokin A V, Shelykh I A 2007 *Phys. Rev. B* **76** 165415

[58] Huang K 1950 *Report LT* **239** 1

[59] Huang K 1951 *Nature* **167** 779

[60] Born M, Huang K 1954 Dynamical Theory of Crystal Lattice (Oxford: Clarendon)

[61] Kittel C 1986 *Introduction to Solid State Physics* (6th Ed.) (New York: Wiley)

[62] Hook J R, Hall H E 1991 *Solid State Physics* (2nd Ed.) (New York: Wiley)

[63] Grosso G, Parravicini G P 2000 *Solid State Physics* (San Diego: Academic)

[64] Lyddane R H, Sachs R G, Teller E 1941 *Phys. Rev.* **59** 673

[65] Haraguchi M, Fukui M, Muto S 1990 *Phys. Rev. B* **41** 1254

[66] Moore W J, Holm R T 1996 *J. Appl. Phys.* **80** 6939

[67] Yu P Y, Cardona M 1999 *Fundamentals of Semiconductors: Physics and Materials Properties* (New York: Springer)

[68] Passerat de Silans T, Maurin I, Chaves de Souza Segundo P, Saltiel S, Gorza M P, Ducloy M, Bloch D, Meneses D, Echegut P 2009 *J. Phys. Condens. Matter* **21** 255902

[69] Cottam M G, Tilley D R 2004 *Introduction to Surface and Superlattice Excitations* (2nd Ed.) (Bristol: IOP)

[70] Auld B A 1973 *Acoustic Fields and Waves in Solids* (New York: Wiley)

[71] Niizeki N, Yamada T, Toyoda H 1967 *Jpn. J. Appl. Phys.* **6** 318

[72] Zhang X J, Lu Y Q, Zhu Y Y, Chen Y F, Zhu S N 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 3531

[73] Lu Y Q, Zhu Y Y, Chen Y F, Zhu S N, Ming N B, Feng Y J 1999 *Science* **284** 1822

[74] Zhu Y Y, Zhang X J, Lu Y Q, Chen Y F, Zhu S N, Ming N B 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 053903

[75] Zhang X J, Xuan X F, Lu Y Q, Zhu Y Y, Chen Y F, Zhu S N, Ming N B 2003 *Physics* **32** 745

[76] Zhang X J, Zhu R Q, Zhao J, Chen Y F, Zhu Y Y 2004 *Phys. Rev. B* **69** 085118

[77] Caldwell J D, Lindsay L, Giannini V, Vurgaftman I, Reinecke T L, Maier S A, Glembocki O J 2015 *Nanophotonics* **4** 44

[78] Hu X K, Ming Y, Zhang X J, Lu Y Q, Zhu Y Y 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 151109

[79] Williams C R, Andrews S R, Maier S A, Fernández Domínguez A I, Martín Moreno L, García Vidal F J 2008 *Nat. Photon.* **2** 175

[80] Pendry J B, Martín Moreno L, García Vidal F J 2004 *Science* **305** 847

[81] García Vidal F J, Martín Moreno L, Pendry J B 2005 *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* **7** S97

[82] Hibbins A P, Evans B R, Sambles J R 2005 *Science* **308** 670

[83] Maier S A, Andrews S R, Martín Moreno L, García Vidal F J 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 176805

[84] van Exter M, Grischkowsky D 1990 *Phys. Rev. B* **41** 12140

[85] Saxler J, Gómez Rivas J, Janke C, Pellemans H P M, Haring Bolivar P, Kurz H 2004 *Phys. Rev. B* **69** 155427

[86] Gómez Rivas J, Kuttge M, Haring Bolivar P, Kurz H, Sánchez Gil J A 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 256804

[87] Ashcroft N W, Mermin N D 1976 *Solid State Physics* (Philadelphia, PA: Saunders)

[88] Allen Jr S J, Tsui D C, Logan R A 1977 *Phys. Rev. Lett.* **38** 980

[89] Stern F 1967 *Phys. Rev. Lett.* **18** 546

[90] Nakayama M 1974 *J. Phys. Soc. Jpn.* **36** 393

[91] Basov D N, Fogler M M, García de Abajo F J 2016 *Science* **354** 195

[92] Castro Neto A H, Guinea F, Peres N M R, Novoselov K S, Geim A K 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 109

[93] Liu Y, Willis R F, Emtsev K V, Seyller T 2008 *Phys. Rev. B* **78** 201403

[94] Falkovsky L A 2008 *J. Phys.: Conf. Ser.* **129** 012004

[95] Wang W H, Apell P, Kinaret J 2011 *Phys. Rev. B* **84** 085423

[96] Nikitin A Y, Guinea F, García Vidal F J, Martín Moreno L 2011 *Phys. Rev. B* **84** 161407

[97] Zhu X L, Yan W, Asger Mortensen N, Xiao S S 2013 *Opt. Express* **21** 3486

[98] Zhang H J, Liu C X, Qi X L, Dai X, Fang Z, Zhang S C 2009 *Nat. Phys.* **5** 438

[99] Di Pietro P, Ortolani M, Limaj O, Di Gaspare A, Giliberti V, Giorgianni F, Brahlek M, Bansal N, Koirala N, Oh S, Calvani P, Lupi S 2013 *Nat. Nanotech.* **8** 556

[100] Poddubny A, Iorsh I, Belov P, Kivshar Y 2013 *Nat. Photon.* **7** 948

[101] Wu J S, Basov D N, Fogler M M 2015 *Phys. Rev. B* **92** 205430

[102] Bohren C F, Huffman D R 2004 *Absorption and Scattering of Light by Small Particles* (Weinheim: John Wiley & Sons)

[103] Scharte M, Porath R, Ohms T, Aeschlimann M, Krenn J R, Ditlbacher H, Aussenegg F R, Liebsch A 2001 *Appl. Phys. B* **73** 305

[104] Kreibig U, Vollmer M 2010 *Optical Properties of Metal Clusters* (Berlin: Springer)

[105] Bosman M, Ye E, Tan S F, Nijhuis C A, Yang J K W, Marty R, Mlayah A, Arbouet A, Girard C, Han M Y 2013 *Sci. Rep.* **3** 1312

[106] Alonso Gonzalez P, Nikitin A Y, Gao Y, Woessner A, Lundeberg M B, Principi A, Forcellini N, Yan W, Vélez S, Huber A J, Watanabe K, Taniguchi T, Casanova F, Hueso L E, Polini M, Hone J, Koppens F H L, Hillenbrand R 2017 *Nat. Nanotech.* **12** 31

[107] Nagpal P, Lindquist N C, Oh S H, Norris D J 2009 *Science* **325** 594

[108] Kariniemi M, Niinisto J, Hatanpaa T, Kemell M, Sajavaara T, Ritala M, Leskelä M 2011 *Chem. Mater.* **23** 2901

[109] Wang C Y, Chen H Y, Sun L Y, Chen W L, Chang Y M, Ahn H, Li X Q, Gwo S 2015 *Nat. Commun.* **6** 7734

[110] Liang H Z, Kim D J, Chung H S, Zhang J, Yu K N, Li S H, Li R X 2003 *Acta Phys. Chim. Sin.* **19** 150

[111] Gu X F, Lin I T, Liu J M 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 071103

[112] Sridhara S G, Carlsson F H C, Bergman J P, Janzen E 2001 *Appl. Phys. Lett.* **79** 3944

[113] Stahlbush R E, Fatemi M, Fedison J B, Arthur S D, Rowland L B, Wang S 2002 *J. Electron. Mater.* **31** 370

[114] Caldwell J D, Klein P B, Twigg M E, Stahlbush R E 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 103519

[115] Caldwell J D, Liu K X, Tadjer M J, Glembocki O J, Stahlbush R E, Hobart K D, Kub F 2007 *J. Electron. Mater.* **36** 318

[116] Caldwell J D, Stahlbush R E, Glembocki O J, Ancona M G, Hobart K D 2010 *J. Appl. Phys.* **108** 044503

[117] Caldwell J D, Stahlbush R E, Hobart K D, Glembocki O J, Liu K X 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 143519

[118] Galeckas A, Linnros J, Pirouz P 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 025502

[119] Ha S, Skowronski M, Sumakeris J J, Paisley M J, Das M K 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 175504

[120] Iwata H P, Lindefelt U, Oberg S, Briddon P R 2003 *Physica B* **340** 165

[121] Maximenko S I, Freitas J A, Klein P B, Shrivastava A, Sudarshan T S 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 092101

[122] Bergman J P, Lendenmann H, Nilsson P A, Lindefelt U, Skytt P 2001 *Mater. Sci. Forum* **353–356** 299

SPECIAL ISSUE—Diffraction limit of electromagnetic waves

Terahertz surface polaritons*

Zhang Xue-Jin† Lu Yan-Qing Chen Yan-Feng Zhu Yong-Yuan Zhu Shi-Ning

(*Collaborative Innovation Center of Advanced Microstructures, National Laboratory of Solid State Microstructures, College of Engineering and Applied Sciences, Nanjing University, Nanjing 210093, China*)

(Received 28 June 2017; revised manuscript received 13 July 2017)

Abstract

Enormous efforts have been made to manipulate the light-matter interactions, especially in sub-diffraction-limited space, leading to miniaturized and integrated photonic devices. In physics, an elementary excitation, called polariton, which is the quantum of the coupled photon and polar elementary excitation wave field, underlies the light-matter interaction. In the dispersion relation, polaritons behave as anti-crossing interacting resonance. Surface polaritons provide ultra-confinement of electromagnetic field at the interface, opening up possibilities for sub-diffraction-limited devices, and various field enhancement effects. In the electromagnetic spectra, terahertz (THz) regime was called THz gap before the 1990s, but has now been thrust into the limelight with great significance. This review is devoted to the emerging but rapidly developing field of sub-diffraction-limited THz photonics, with an emphasis on the materials and the physics of surface polaritons. A large breadth of different flavours of materials and surface polaritonic modes have been summarized. The former includes metallic, dielectric, semiconductor, two-dimensional (2D) materials, metamaterials, etc.; the latter covers surface phonon-, plasmon-, and hybrid polaritons. In the THz regime, 2D surface plasmon polariton and artificial surface phonon polaritons offer more attractive advantages in ability to obtain low-loss, tunable, ultracompact light-matter modes.

Keywords: terahertz, surface polaritons, two-dimensional materials, near-field optics

PACS: 87.50.U–, 71.36.+c, 61.48.Gh, 78.67.Pt **DOI:** 10.7498/aps.66.148705

* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2017YFA0303700) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11621091, 11374150, 11274159).

† Corresponding author. E-mail: xuejinzh@nju.edu.cn