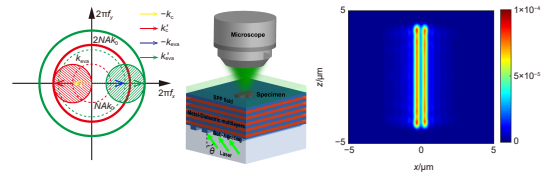


DOI: 10.12086/oe.2022.220056

基于光频双曲超材料的无标记远场超分辨显微成像

陈雪松¹, 杜文娟^{1*}, 楼志浪¹, 汤东亮²¹湘潭大学物理与光电工程学院, 湖南湘潭 411105;²湖南大学物理与微电子科学学院微纳光电器件及应用教育部重点实验室, 低维结构物理与器件湖南省重点实验室, 湖南长沙 410082

摘要: 超分辨光学显微成像技术具有非接触、无损伤等优点。现有超分辨成像手段大多依赖荧光染料, 限制其应用场合。近年来基于频谱平移原理的无标记远场显微成像手段被提出, 但其分辨率受限于波导材料折射率。利用双曲超材料 (hyperbolic metamaterials, HMM) 的空间频率带通滤波特性, 结合亚波长光栅, 激发大面积均匀高频体等离子激元 (bulk plasmon polariton, BPP) 照明场, 得益于照明的高波矢量, 物体的高频信息可以转移到传统成像系统的通带, 为远场图像提供亚波长空间信息。基于该方法, 采用 0.85 数值孔径标准物镜, 532 nm 波长下 $2.66k_0$ 横向波矢的 BPP 照明中心距为 100 nm 双缝结构成像, 横向分辨力提高至 $\lambda/5.32$ 。进一步提高 BPP 的横向波矢可使分辨力提升至 $\lambda/7.82$ 。该方法无需标记, 便于与传统显微镜集成, 为生物医学、芯片工业、材料科学等领域的应用提供了一种可视化的超分辨手段。

关键词: 表面等离子激元; 双曲超材料; 超分辨成像; 移频效应**中图分类号:** TP212.11**文献标志码:** A

陈雪松, 杜文娟, 楼志浪, 等. 基于光频双曲超材料的无标记远场超分辨显微成像 [J]. 光电工程, 2022, 49(11): 220056

Chen X S, Du W J, Lou Z L, et al. Label-free far-field subdiffraction imaging based on hyperbolic metamaterial[J]. *Opto-Electron Eng*, 2022, 49(11): 220056

Label-free far-field subdiffraction imaging based on hyperbolic metamaterial

Chen Xuesong¹, Du Wenjuan^{1*}, Lou Zhilang¹, Tang Dongliang²¹School of Physics and Optoelectronics, Xiangtan University, Xiangtan, Hunan 411105, China;²Key Laboratory for Micro/Nano Optoelectronic Devices of Ministry of Education and Hunan Provincial, Key Laboratory of Low-Dimensional Structural Physics and Devices, School of Physics and Electronics, Hunan University, Changsha, Hunan 410082, China

Abstract: Super-resolution optical microscopy is an important technology due to the non-contact and non-destructive advantages. Currently, most of the super-resolution imaging methods rely on fluorescent dyes, which limited their applications. The label-free far-field microscopy imaging method based on the frequency shift effect has been proposed and developed in recent years. However, its spatial resolution is limited by the refractive index of waveguide materials. Based on the characteristic of optical spatial spectrum band-pass filtering in hyperbolic

收稿日期: 2022-04-21; 收到修改稿日期: 2022-05-15

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (62105276, 61905073); 湖南省自然科学基金资助项目 (2020JJ5550)

*通信作者: 杜文娟, wenjuandu@xtu.edu.cn。

版权所有©2022 中国科学院光电技术研究所

metamaterials (HMM), a large-area uniform bulk plasmon polariton (BPP) field with high spatial frequency can be achieved by combining with nano-scale gratings. Due to the large wave vector of the BPP illumination, the high-frequency information of the object can be transferred to the passband in traditional imaging systems and participate in super-resolution imaging. Illuminated by a BPP field with $2.66 k_0$ at a wavelength of 532 nm, a double-slit structure with a 100 nm-wide center-to-center distance has been resolved with a 0.85 numerical aperture standard objective based on this method. The lateral resolution is improved to $\lambda/5.32$. By further improving the transverse wave vector of BPP, it can be improved to $\lambda/7.82$. This design is label-free and conveniently integrated with traditional microscopes, which provides a visual super-resolution imaging method for applications in biomedicine, on-chip industry, material science, and other fields.

Keywords: surface plasmons; hyperbolic metamaterials; super-resolution imaging; frequency shift effect

1 引言

传统光学显微镜的空间分辨率受限于衍射极限 $\lambda/(2NA)$ (λ 为波长, NA 为光学显微系统物镜数值孔径), 可见光范围内横向分辨率约为 200 nm~300 nm, 难以实现对百纳米甚至十纳米量级的微纳结构或细胞样本的清晰成像。如何提高空间分辨率至 100 nm 以下甚至分子尺度、实现高对比度的超分辨显微成像成为了光学显微成像技术的主要研究方向之一^[1-4]。超分辨成像方法分为近场成像方法和远场成像方法。其中近场成像方法以近场扫描光学显微镜 (near-field scanning optical microscope, NSOM)^[5] 最为典型, 其利用亚波长尺寸孔径在近场照明样品实现高频倏逝波的激发和探测, 从而突破衍射极限实现超衍射成像, 横向空间分辨率约为 50 nm~100 nm。然而近场激发照明的弊端在于探针位于样品表面百纳米范围内, 可探测的样品深度范围极为有限, 探针尖端易受损影响成像质量, 且扫描成像方式无法实现实时宽场成像^[6]。远场超分辨成像方法以荧光显微成像技术最为典型。近年来, 研究人员已经提出了一系列突破衍射极限分辨率限制的超分辨荧光显微成像技术。例如, 全内反射荧光显微成像 (total internal reflection fluorescent microscope, TIRFM)^[7-8]、共聚焦扫描显微成像 (confocal laser scanning microscope, CLSM)^[9-10]、受激辐射损耗显微镜 (stimulated emission depletion microscopy, STED)^[3,11-12]、单分子定位显微镜 (single-molecule localization microscopy, SMLM)^[2,13]、光敏定位显微术 (photoactivated localization microscopy, PALM)^[2,14]、随机光学重建显微术 (stochastic optical reconstruction microscopy, STORM)^[13]、结构光照明显微术 (structured illumination microscopy, SIM)^[15-16],

以及等离激元结构照明显微技术 (plasmonic structured illumination microscopy, PSIM)^[17-18] 等, 上述技术可将荧光显微技术的空间分辨率提高至纳米量级^[6]。然而超分辨荧光显微技术过分依赖于荧光染剂, 且荧光标记样本过程中存在耗时、灭活、染色不均、光漂白、短波长高强度激发光易损伤样本等多个问题, 制约了荧光显微技术的应用场合。更重要的是, 当样本为无法染色的微纳结构材料、集成芯片等非生物样品或排异的活体生物样品时, 超分辨荧光显微技术不再适用^[6]。CLSM 虽可以应用于以上样本, 但其扫描机制使得探测范围受限于聚焦区域, 不利于实时宽场成像^[6]。因此急需开展普适性更强、无需荧光标记、宽场型远场超分辨显微成像手段研究。

近年来, 频谱平移原理成像研究的兴起, 使得无荧光标记的远场超分辨显微成像成为可能。传统离轴照明显微成像方法如 SIM 成像^[15-16]、傅里叶叠层显微成像 (Fourier ptychography microscopy, FPM)^[19]、暗场显微成像等, 是利用传输波离轴照明方法使得成像光的高频分量进入成像系统收集范围内, 其空间分辨率受限于最大入射角度的取值, 无法将衍射极限以外的高频空间信息移动到远场成像系统的通带范围内, 造成结构的细节信息丢失。基于频谱平移原理实现超分辨成像的思路是利用高频倏逝波代替传输波照明样本, 由于倏逝波的横向空间波矢 k_x 远大于传输波的最大横向波矢 k_0 , 因此当其照明样品时, 成像系统截止频率以外更多的高频信息被搬移至成像系统通带内参与成像, 等效地拓展了成像系统通带从而显著提升显微成像分辨率, 实现对物体高频信息的收集。基于频移超分辨原理, 研究人员相继提出一系列倏逝波激发方法用于无荧光标记的远场超分辨显微成像技术中。

2013年, 刘旭教授团队利用通入激光的紧贴样品表面的一维纳米光纤激发倏逝波照明双狭缝样本, 实现中心间距为 225 nm 的双缝无标记超分辨成像^[20]。同年浙江大学刘旭教授团队再次提出利用棱镜的全内反射在棱镜表面激发倏逝波照明双狭缝样本^[21], 横向分辨率达到 $\lambda/2.5$ 。该种照明方式能够实现宽场显微成像要求, 但分辨率受限于棱镜介质材料限制, 较难实现横向分辨率进一步提升。2017年, 浙江大学杨青教授团队提出一种紧贴在 TiO_2 等高折射率波导表面的环形半导体纳米线作为照明光源, 通过激光照射环形纳米线实验实现了对中心距为 140 nm ($\sim\lambda/3.7$, $\lambda=520$ nm) 的双缝样本的超分辨放大成像, 横向分辨率约为传统显微镜横向分辨率极限的 1.9 倍^[22]。2021年, 西安电子科技大学王晓蕊教授团队提出了一种以微球折射、反射、散射出的倏逝波作为照明光源的超分辨远场成像系统, 实现了对线宽 180 nm、周期 300 nm 蓝光光盘线条的成像, 横向分辨率达到 $\lambda/1.68$ ^[23]。现有的以上三种方法都属于局域照明方式, 虽然提高了横向分辨率, 但是其产生的倏逝波激发效率有限, 空间频谱不够纯净, 受限于基底介质材料的折射率, 其横向分辨率提高能力有限。另外, 近些年随着光学超构表面的发展, 为亚波长尺度对光场的振幅、相位及偏振调控提供了有效的手段^[24-29]。利用超构透镜组实现超振荡聚焦为远场超分辨提供了一条崭新的途径。基于超振荡的显微器件设计被提出, 其能在远场实现任意小的焦斑分布, 但随着焦斑尺寸的减小, 焦斑能量明显降低, 同时伴随着高强度旁瓣的出现, 从而使视场角大幅减小^[28], 虽然可通过共聚焦显微镜利用点光源照明, 点探测器收集的方法进行补偿, 但这将导致其结构复杂、工作效率低等缺点。

表面等离子激元 (Surface plasmon, SP) 是指电磁波与金属自由电子耦合振荡, 从而形成束缚在金属表面的一种特殊的表面电磁波模式, 具有倏逝波的纵向指数衰减特性。在光频段, SP 能激发比自由空间光子更大的高频波矢共振, 其作为照明光时为无标记远场超衍射成像提供一种新思路。2004年, 中国科学院光电技术研究所罗先刚团队发现了纳米金属狭缝膜层中的“异常杨氏双缝干涉效应 (extraordinary Young's interferences, EYI)”, 即金属薄膜上干涉条纹的周期可以缩短到小于真空波长的四分之一, 首次从实验上证明了 SP 的短波长效应^[30-33], 并利用其实现超衍射成像光刻^[30-31, 34-36]。基于该原理, 2015年, 该团队实

现了在 365 nm 波长下, 单次曝光成像光刻分辨率突破 22 nm 节点, 为传统衍射极限的 $1/8$ ^[37]。相比 SP 光场仅局限在金属/介质界面的问题, 一种由交替堆叠的金属/介质薄膜组成的特殊结构材料展现出其独特优势。研究发现, 这种金属/介质多层膜结构不仅具有双曲色散特性^[38], 还具有特殊的光学性能, 其支持交替堆叠的金属/介质膜层之间的 SP 模式相互耦合在自由空间中表现为高频倏逝波的 BPP 模式, 在 HMM 中实现超衍射传输, 同时抑制在自由空间中为低频传输波模式电磁波成分^[39-42], 该特性广泛应用于光刻^[43-44] 和显微^[45-46] 成像中。

本文提出利用双曲色散超材料 (hyperbolic metamaterials, HMM) 的“低频阻断, 高频导通”的空间频率带通滤波特性^[39-40, 47], 加载亚波长光栅, 激发高频体等离子激元 (bulk plasmon polariton, BPP) 照明场。其横向波矢为 $2.66k_0$, 大于基底及波导材料所能提供的倏逝波波矢。当该 BPP 场照明双缝样本时, 横向分辨率达到 $\lambda/5.32$ 。通过进一步改进双曲色散超材料及激发光栅, 能够实现 $3.86k_0$ 的 BPP 场激发, 分辨率可提高至 $\lambda/7.82$ 。该方法将在生物医学、芯片工业、材料科学等领域具有潜在的应用。

2 激发高频 BPP 模式的光频双曲超材料结构设计

在显微成像的过程中, 照明物体激发出散射光, 其中携带有样本的高频空间结构信息。远场收集到的参与成像的散射光和物体空间结构信息之间的关系可利用埃德瓦尔反射球模型^[48] 近似解释, 其表达为物体散射射在照明波矢下的傅里叶空间频谱与一个低通函数的乘积, 其中低通函数为 1 的取值范围为 $|k_s| < NAk_0$, k_s 为散射光的横向波矢, $k_0=2\pi/\lambda$ 为物空间光波矢, NA 为物镜的数值孔径。传统照明光通过倾斜照明, 横向波矢 k_x 最大为 NAk_0 , 如图 1(a), 由图中黄色实线标示, 红色阴影区域范围为远场可探测到散射光 k_s 的取值范围, 远场可探测最大范围可到 $2NAk_0$, 但因为高阶傅里叶分量的丢失, 导致其远场成像分辨率受限于衍射极限。当采用倏逝波照明时, 由于其横向波矢 k_{eva} 大于 k_0 , 远场散射场所携带频谱中心搬移至蓝色实线处, 如图 1(b) 绿色阴影区域所示, 使得远场可探测最大空间频率扩展至绿色实线圆, 为 $k_{eva}+NAk_0$ 。此时倏逝波照明物体时成像系统截止频率以外更多的高频信息被平移至成像系统的通带内参与

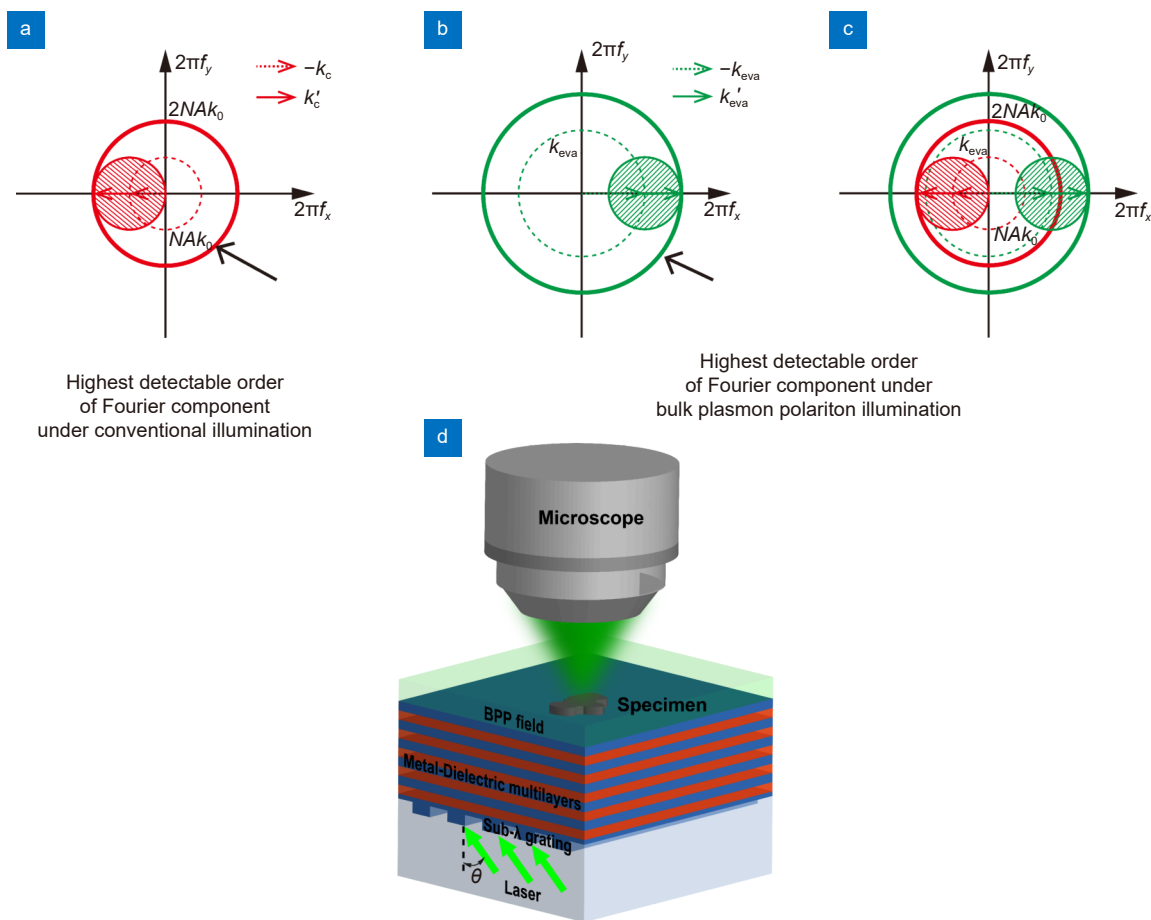


图 1 BPP 照明移频超分辨成像示意图。

- (a) 传统照明下傅里叶分量探测范围示意图，其中 k_c 与 k'_c 分别为传统显微成像中照明光与散射光的横向波矢；
- (b) BPP 照明下傅里叶分量探测范围示意图，其中 k_{eva} 与 k'_{eva} 分别为 BPP 照明下照明光与散射光的横向波矢；
- (c) 最高可探测傅里叶分量的扩展 (从红色实线到绿色实线)，频谱平移原理示意图；
- (d) BPP 照明显微成像示意图

Fig. 1 Schematic diagram of frequency shift super-resolution imaging under BPP illumination.

- (a) Schematic diagram of fourier component detection range under conventional illumination, k_c and k'_c are transverse wave vectors of illuminating and scattered light, respectively, under conventional illumination; (b) Schematic diagram of fourier component detection range under BPP illumination, k_{eva} and k'_{eva} are transverse wave vectors of illuminating and scattered light, respectively, under BPP illumination; (c) Extension of the highest detectable fourier component (from red solid line to green solid line), schematic diagram of frequency shift effect; (d) Schematic of BPP illumination

成像，使整个光学系统最大可探测空间频率拓展，从而克服衍射极限，显著提升显微远场成像分辨率。一般倏逝波激发方法中， k_{eva} 受限于波导或介质材料折射率，因此 BPP 提供了一种具有更高横向空间波矢的照明源。图 1(d) 为 BPP 照明样本成像示意图，其中 BPP 照明源由 Ag/SiO₂ 组成 HMM 结合亚波长光栅构成。特定角度下入射 TM 偏振波，照射亚波长光栅激发包含高频衍射波的多个衍射级次子波，通过 HMM 实现空间频谱滤波，滤除杂散级次，从而在出射面激发出大面积单一波矢的纯净 BPP 场，其照明物体可以将高频空间信息平移至远场探测成像系统的

通带中，从而提高成像分辨率。

BPP 激发结构设计如图 2(a) 所示，其中 HMM 由 10 层 20 nm 厚的 Ag 膜和 9 层 50 nm 厚的 SiO₂ 膜交替堆叠而成，亚波长光栅选取周期为 170 nm，厚度为 40 nm，占空比为 1:1 的 Ag 光栅。在 532 nm 波长下，Ag 和 SiO₂ 的介电常数分别为 $-10.18+0.83i$ 、 $2.13^{[49]}$ 。本节内容将利用严格耦合波分析方法 (rigorous coupled wave analysis, RCWA) 详细分析 BPP 激发结构的滤波特性。当一个 TM 偏振光照射金属-介质多层膜时，如图 2(b) 黑线所示，此时 OTF 呈现一个窗口为 $[-3.12k_0, -1.46k_0]$ 、 $[1.46k_0, 3.12k_0]$ 的空间频谱

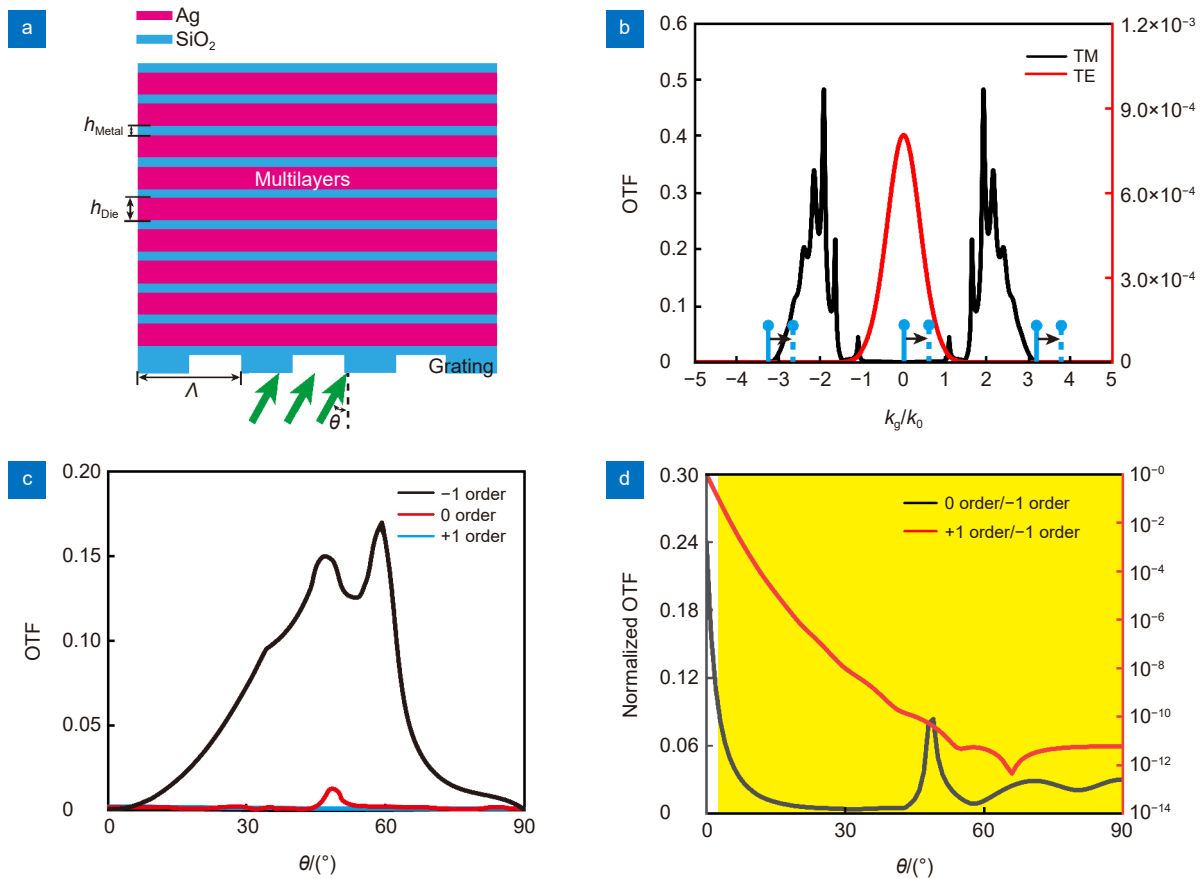


图 2 BPP 激发结构。

(a) BPP 激发结构示意图; (b) TM 与 TE 偏振下 Ag/SiO₂ 多层膜 OTF; (c) -1、0 与 +1 级次的 OTF; (d) 不同衍射级次的 OTF 比值

Fig. 2 BPP structure.

(a) Schematic of the BPP structure; (b) OTF of Ag/SiO₂ multilayers in TM and TE polarization; (c) OTF for -1, 0 and +1 orders; (d) The ratio of OTF for different diffraction orders

带通滤波通带，意味着满足该范围的高频波矢能够在 HMM 中传播，而 TE 偏振光入射时如图 2(b) 红线所示，此时整体透过率近似为 0。当加载亚波长纳米激发光栅后，在 TM 波照射下将激发多个级次衍射子波，其横向波矢可由光栅公式决定，表达为

$$k_{x,m} = k_{inc} + mk_g, \tag{1}$$

其中： m 为衍射子波级次，且

$$k_{inc} = n \sin \theta k_0, \tag{2}$$

$$k_g = \frac{\lambda}{d} k_0. \tag{3}$$

正入射时，-1、0、+1 级次横向波矢分别为 $-3.12k_0$ 、 $0k_0$ 、 $3.12k_0$ ，位于通带外，无法传播至出射界面；当增大入射角度时提供一个更大的横向波矢量 k_{inc} ，使得 -1 级次移入通带内，同时 0 级次和 +1 级次仍在通带外，从而滤出纯净的 -1 级次。图 2(c) 展

示了在不同角度入射下 -1、0、+1 级次的 OTF，可以看出在 0° 至 90° 范围内，-1 级次能够被选用耦合进 HMM，而其他级次相对受到抑制。 49° 时其他级次也被耦合进 HMM 中，如图 2(d)，这是源于 0 级次波矢约为 $1.1k_0$ ，在 HMM 的 OTF 中该波矢位置存在一个局域的 SP 模式，因此为保证 -1 级次波矢滤出纯净，选择可用入射角度为 3° 到 90° 。

针对已定的 HMM 结构，能够激发特定波矢 BPP 光场的光栅周期及入射角度选取不唯一，其设计规律通过对 OTF 的计算来发现。根据光栅公式，角度改变将影响 k_{inc} 的取值，而光栅周期直接决定 k_g 的大小。通过选取不同入射角度、光栅周期，共同实现特定波矢 BPP 的激发，其中图 3(a) 中黑色虚线区域为光频滤波通带，而在图 3(b)、3(c) 相同区域 OTF 大多取值接近 0。为保证滤出的 BPP 场的均匀，将在黑

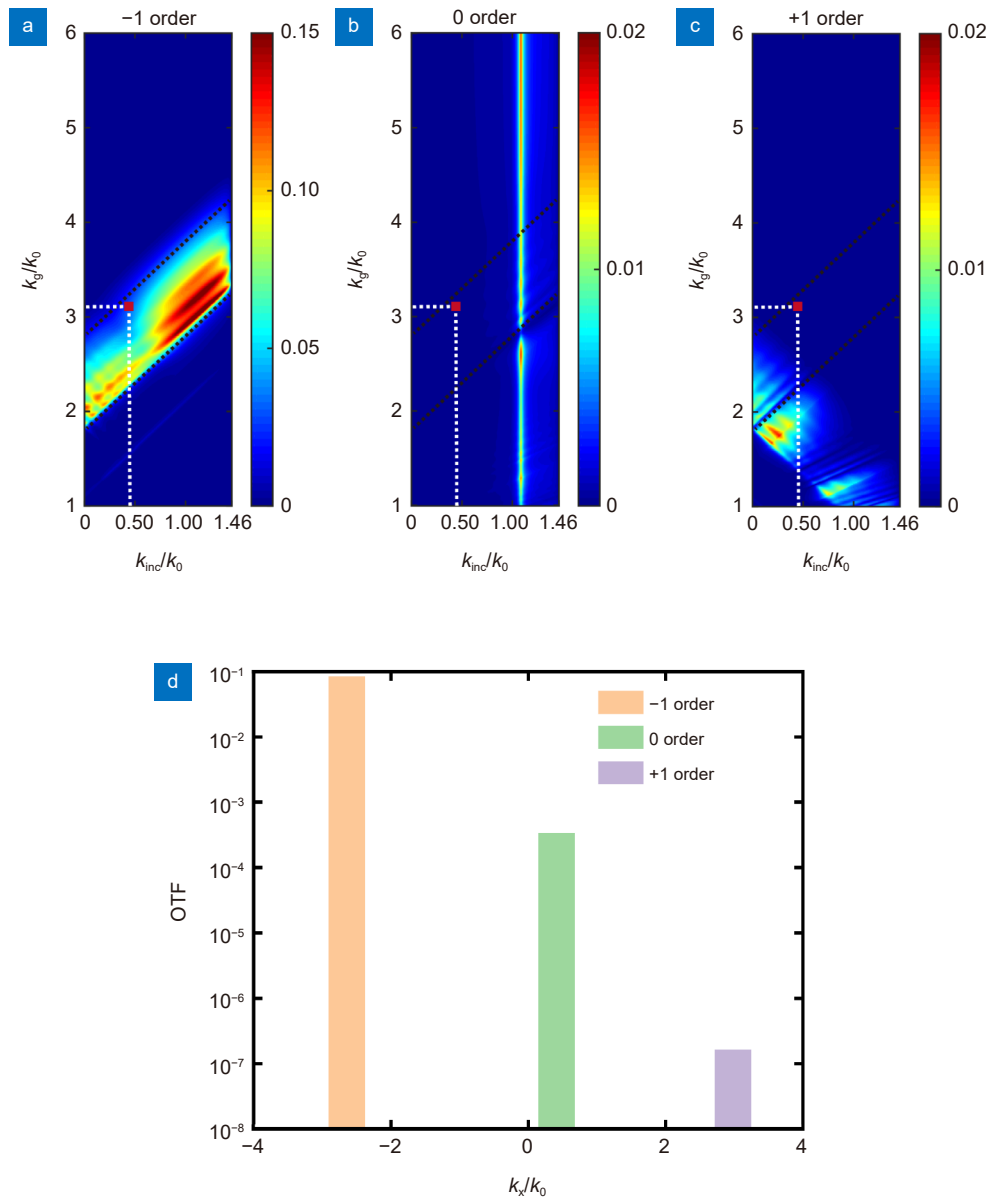


图 3 (a)~(c) 分别为针对不同激发光栅波矢 k_g 和照明光横向波矢 k_{inc} , -1 级次、0 级次以及+1 级次的 OTF; (d) 光栅周期为 170 nm, 入射角度为 18° , -1、0 与+1 级次的 OTF

Fig. 3 (a)~(c) The OTF of -1, 0, and +1 orders for for different k_{inc} and k_g , respectively; (d) The OTF of -1, 0, and +1 orders with 170 nm pitch grating at the incident angle of 18 degree

色虚线区域中选取同时满足-1 级次的 OTF 较高和 0、+1 级次较低的位置。以 $2.66k_0$ 的 BPP 为例, 如图 3(a)~(c) 中红点所示, 选取 $k_{inc}=0.46$, 对应入射角度为 18° , $k_g=3.12$, 对应光栅周期为 170 nm, 此时-1 级次分别是 0 级次与+1 级次的 10^2 和 10^5 倍(图 3(d)), 从而可得 HMM 实现了滤出-1 级次的衍射子波。

BPP 照明横向波矢与其纵向穿透深度 (L_p) 一一对应, 其对应关系可由穿透深度公式所得, 如下所示:

$$L_p = \frac{\lambda}{4\pi \sqrt{(k_{BPP}/k_0)^2 - 1}}. \quad (4)$$

因此, 激发 BPP 照明场后可通过测量穿透深度验证其波矢纯净度。在前文提到的结构设计下, 图 4(a) 中展示了入射角为 18° 、 46° 和 60° 时截面光强分布, 根据光栅公式得到滤出的-1 级次 BPP 横向波矢分别为 $2.66k_0$ 、 $2.08k_0$ 和 $1.86k_0$ 。取出射界面之后的归一化光强截图如图 4(b), 可知 BPP 场强在 HMM 出射界面沿着 z 轴方向呈指数衰减。由于 BPP 的穿透深度定义为光强衰减到初始强度的 $1/e$ 时的纵向距离, 测量图 4(b) 中三个角度的穿透深度分别为 17.2 nm、23.5 nm 和 26.9 nm, 这与三个角度对应横向波矢的穿

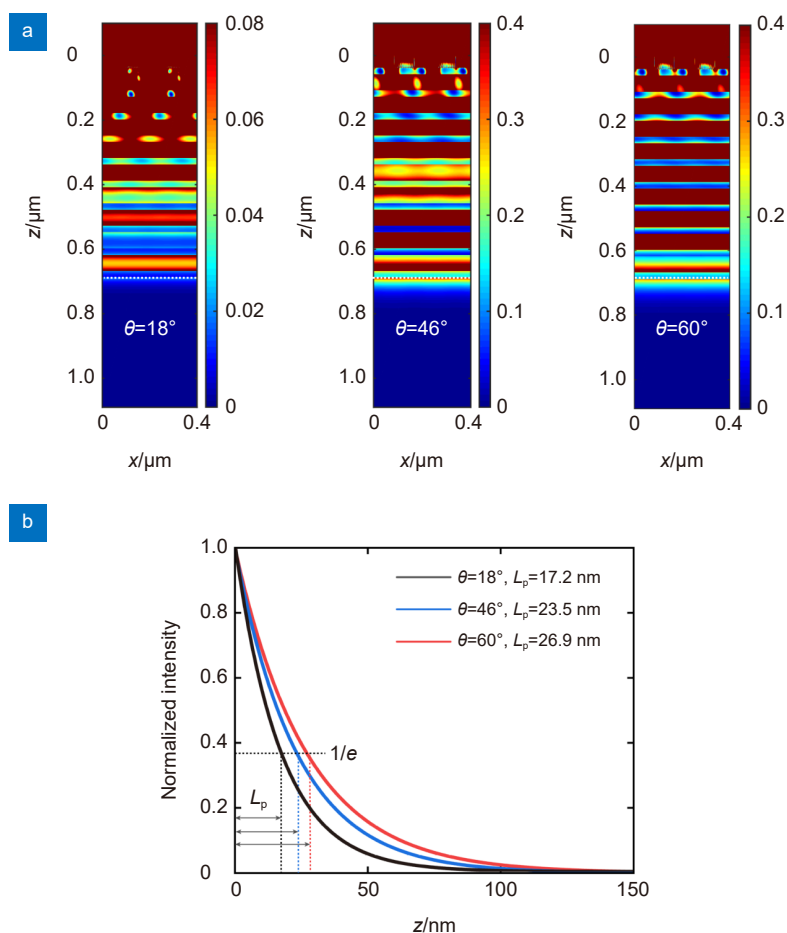


图 4 (a) 入射角为 18° 、 46° 和 60° 时截面光强分布, 其中虚线为出射界面;

(b) 在 18° 、 46° 和 60° 入射角度下 BPP 照明光强衰减曲线及穿透深度

Fig. 4 (a) The optical intensity distributions in the x - z plane when incidence angles are 18° , 46° and 60° , respectively; (b) The corresponding intensity decay curves away from the illumination surface in (a)

透深度恰好一致, 因此也说明上述三个角度, BPP 场中的空间频率纯净。

3 照明成像结果与分析

以双缝物体为例, 借助时域有限差分方法 (finite-difference time-domain, FDTD), 图 5 显示了一个 Cr 膜上的双缝结构在 BPP 照明下远场成像的建模过程与结果。双缝结构中心距为 100 nm, 单缝宽为 50 nm, 物镜 $NA=0.85$, 照明波长为 532 nm, 根据衍射极限可知在传统照明下物体无法被分辨。当采用如图 2(a) 的横向波矢为 $2.66k_0$ 的 BPP 照明时, 图 5(a) 展示了采用 FDTD 方法建立模型的截面场强分布, BPP 模式在双缝结构处受到调制, 向远场散射。导出 FDTD 方法模型中的远场散射光的场分布, 采用角谱衍射理论逆向计算远场成像如图 5(b), 可知此时在 BPP 照明下该双缝能够被分辨。本文还对远场散射光

场的频谱分布进行分析。如图 5(c) 和 5(d) 所示, 对于双缝结构的频谱, 传统照明下远场可探测的散射光频谱范围在以原点为中心, NA/λ 为半径的区域, 图 5(c) 中虚线圈所示。BPP 照明下远场散射光场分布频谱如图 5(d), 与双峰结构在中心为 $(k_{\text{BPP}}/2\pi, 0)$ 、半径为 NA/λ 范围内的频谱分布一致。该结果证实了频谱向 BPP 波矢方向平移了一个 k_{BPP} 的距离, 产生了移频效应。

在 $2.66k_0$ BPP 照明下, 还分析了对不同中心距双缝的成像效果。图 6 显示了中心距在 80 nm 至 120 nm 时双缝结构的成像对比度, 图 6(b) 显示了 90 nm 至 110 nm 中心距的双缝成像结果, 根据瑞利准则, 在 95 至 110 nm 范围内 BPP 都能分辨双缝结构, 说明针对 BPP 照明, 每个横向波矢对应了一个能最佳分辨的中心距分辨区间。

更高波矢的 BPP 可通过进一步改变 HMM 结构

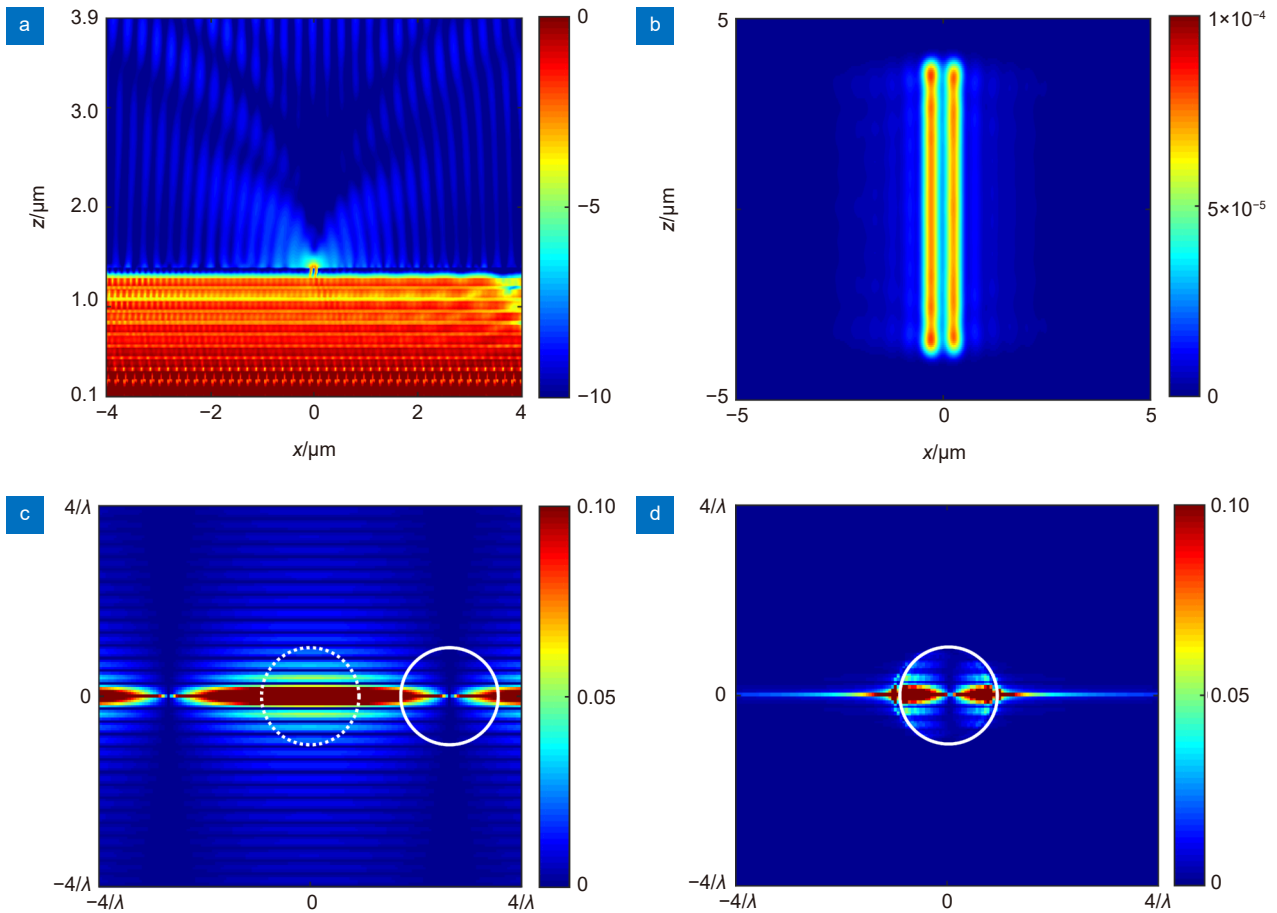


图 5 中心距 100 nm 双缝结构在 $2.66k_0$ BPP 照明下的远场成像仿真过程与结果。

- (a) 采用 FDTD 方法截面处监视器记录的 BPP 结构表面倏逝波被散射到远场的 x - z 截面光强分布;
- (b) 中心距 100 nm 双缝结构的远场成像光强分布; (c) 双缝结构的频谱; (d) 远场探测到的双缝结构散射光频谱

Fig. 5 Far-field imaging simulation processes and results for double-slit structure with center-to center distance of 100 nm under BPP illumination with $2.66k_0$.

- (a) The intensity distribution in the x - z plane in FDTD method; (b) Far-field imaging intensity for double-slit structure;
- (c) Spatial spectrum of double-slit structures; (d) Spatial spectrum of scattered light for double-slit structures in the far field

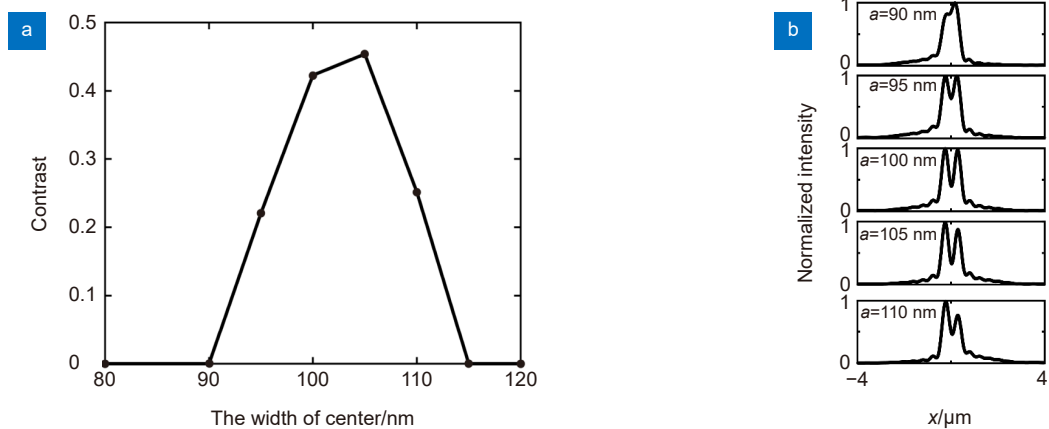


图 6 (a) BPP 照明下不同双缝中心距远场成像对比度; (b) 中心距 90 nm~110 nm 的双缝结构远场成像场强归一化

- Fig. 6 (a) The contrast of far-field imaging for double-slit structure with different center-to-center distances illuminated by BPP;
- (b) The normalized optical intensity for double-slit structure with different center-to-center distances in far-field imaging

及激发光栅结构参数。图 7 给出 $3.86k_0$ 的 BPP 照明双缝的结果。其中 HMM 结构为 8 对 Ag/SiO₂ 多层膜, 厚度为 27 nm/15 nm, 外加一层 27 nm Ag 膜。其 OTF 如图 7(a), 532 nm TM 波入射下滤波通带为 $[-4.65k_0, -2.15k_0]$ 和 $[2.15k_0, 4.65k_0]$ 。当加载周期为 187 nm 的激发光栅时, -1、0、+1 级次 OTF 如图 7(b) 所示, 可知在该光栅周期下改变照明角度滤出+1 级

次波矢。选取 44° 为入射角度时, +1 级次波矢为 $3.86k_0$ 。当照明中心距为 68 nm 双缝结构时, 成像场强如图 7(c), 证明该更高横向波矢的 BPP 照明能够显著提高远场成像分辨力。相比其它基于移频原理无标记显微成像技术, 如表 1 所示, 证明由 BPP 提供的更大的横向波矢 k_{BPP} 照明, 能够显著提高远场横向成像分辨力。

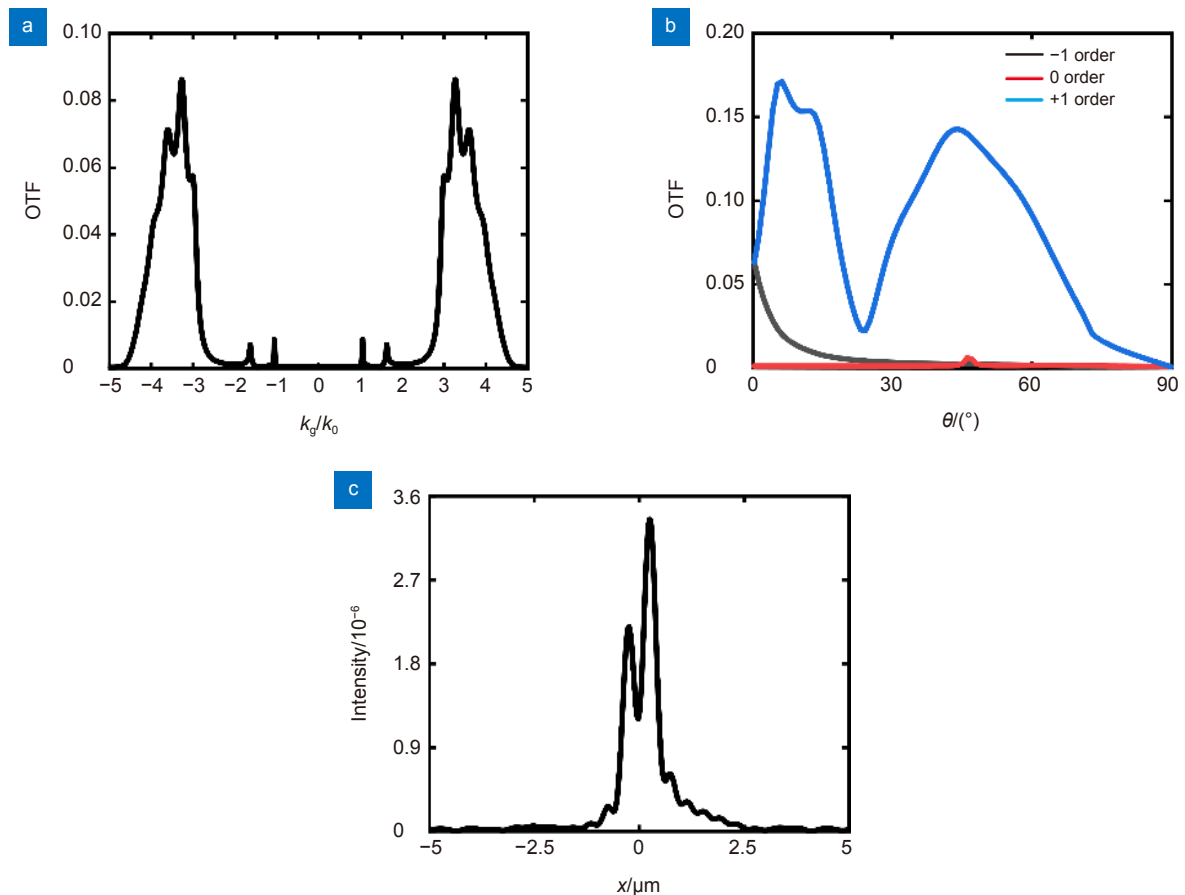


图 7 横向波矢 $3.86k_0$ 的 BPP 照明超分辨成像。

(a) TM 偏振入射 HMM 的 OTF; (b) -1、0 与 +1 级次的 OTF; (c) 中心距 68 nm 双缝结构的远场成像光强分布

Fig. 7 Super-resolution imaging under BPP illumination with transverse wave vector $3.86k_0$.

(a) OTF of Ag/SiO₂ multilayers in TM polarization; (b) OTF for -1, 0 and +1 orders; (c) Far-field imaging intensity for double-slit structure

表 1 已被报道基于移频原理的远场无标记超分辨显微成像技术主要参数

Table 1 Main parameters reported based on frequency shift principle label-free far-field subdiffraction imaging techniques

Work	Material	Resolution
<i>Appl. Phys. Lett.</i> 102 , 013104 (2013)	Micro-fiber	$\sim \lambda/3.56$ ($\lambda=800$ nm, $NA=0.8$)
<i>Opt Lett.</i> 38 (14), 2455 (2013)	TIR Prism	$\sim \lambda/2.5$ ($\lambda=600$ nm, $NA=0.8$)
<i>Phys Rev Lett.</i> 118 , 076101 (2017)	Fluorescent NW	$\sim \lambda/3.7$ ($\lambda=520$ nm, $NA=0.85$)
<i>Opt Lett.</i> 46 (6), 1265 (2021)	Microparticle	$\sim \lambda/1.68$ ($\lambda=505$ nm, $NA=0.9$)
BPP illumination	HMM	$\sim \lambda/7.82$ ($\lambda=532$ nm, $NA=0.85$)

4 结 论

本文首次提出利用基于 HMM 的 BPP 照明源的无标记远场超分辨显微成像方法。利用亚波长光栅激发衍射子波, 结合 HMM 的空间频谱带通滤波特性, 设计结构滤出-1 级次衍射子波, 能够实现 $2.66k_0$ 的 BPP 模式照明场, 照明双缝结构物体, 横向分辨力提升至 $\lambda/5.32$, 当改变结构滤出+1 级次实现横向波矢为 $3.86k_0$ 的 BPP 照明场激发, 可使横向分辨力进一步提升至 $\lambda/7.82$ 。通过采用特殊设计的纳米激发结构结合 HMM, 可激发多个方向的 BPP 照明场应用于二维超分辨显微成像。该方法具有无需标记、实时成像且便于与传统显微镜集成的优势, 其将在生物医学、芯片工业、材料科学等领域中具有潜在的应用。

参考文献

- [1] Leung B O, Chou K C. Review of super-resolution fluorescence microscopy for biology[J]. *Appl Spectrosc*, 2011, **65**(9): 967–980.
- [2] Betzig E, Patterson G H, Sougrat R, et al. Imaging intracellular fluorescent proteins at nanometer resolution[J]. *Science*, 2006, **313**(5793): 1642–1645.
- [3] Hell S W, Wichmann J. Breaking the diffraction resolution limit by stimulated emission: stimulated-emission-depletion fluorescence microscopy[J]. *Opt Lett*, 1994, **19**(11): 780–782.
- [4] Boneberg J, Leiderer P. Optical near-field imaging and nanostructuring by means of laser ablation[J]. *Opto-Electron Sci*, 2022, **1**(1): 210003.
- [5] Lewis A, Isaacson M, Harootunian A, et al. Development of a 500 Å spatial resolution light microscope: I. light is efficiently transmitted through $\lambda/16$ diameter apertures[J]. *Ultramicroscopy*, 1984, **13**(3): 227–231.
- [6] Liu X W. Label-free far-field super resolution microscopy based on illumination modulation[D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2017: 7–11.
刘小威. 基于照明调控的无标记远场超分辨显微成像[D]. 杭州: 浙江大学, 2017: 7–11.
- [7] Axelrod D, Thompson N L, Burghardt T P. Total internal reflection fluorescent microscopy[J]. *J Microsc*, 1983, **129**(1): 19–28.
- [8] Farinas J, Simanek V, Verkman A S. Cell volume measured by total internal reflection microfluorimetry: application to water and solute transport in cells transfected with water channel homologs[J]. *Biophys J*, 1995, **68**(4): 1613–1620.
- [9] Cox I J, Sheppard C J R. Scanning optical microscope incorporating a digital framestore and microcomputer[J]. *Appl Opt*, 1983, **22**(10): 1474–1478.
- [10] White J G, Amos W B, Fordham M. An evaluation of confocal versus conventional imaging of biological structures by fluorescence light microscopy[J]. *J Cell Biol*, 1987, **105**(1): 41–48.
- [11] Klar T A, Jakobs S, Dyba M, et al. Fluorescence microscopy with diffraction resolution barrier broken by stimulated emission [J]. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2000, **97**(15): 8206–8210.
- [12] Hell S W, Kroug M. Ground-state-depletion fluorescence microscopy: a concept for breaking the diffraction resolution limit[J]. *Appl Phys B*, 1995, **60**(5): 495–497.
- [13] Rust M J, Bates M, Zhuang X W. Sub-diffraction-limit imaging by stochastic optical reconstruction microscopy (STORM)[J]. *Nat Methods*, 2006, **3**(10): 793–796.
- [14] Betzig E. Proposed method for molecular optical imaging[J]. *Opt Lett*, 1995, **20**(3): 237–239.
- [15] Schermelleh L, Carlton P M, Haase S, et al. Subdiffraction multicolor imaging of the nuclear periphery with 3D structured illumination microscopy[J]. *Science*, 2008, **320**(5881): 1332–1336.
- [16] Gustafsson M G L. Surpassing the lateral resolution limit by a factor of two using structured illumination microscopy[J]. *J Microsc*, 2000, **198**(2): 82–87.
- [17] Wei F F, Liu Z W. Plasmonic structured illumination microscopy [J]. *Nano Lett*, 2010, **10**(7): 2531–2536.
- [18] Wei F F, Lu D L, Shen H, et al. Wide field super-resolution surface imaging through plasmonic structured illumination microscopy[J]. *Nano Lett*, 2014, **14**(8): 4634–4639.
- [19] Zheng G A, Horstmeyer R, Yang C. Wide-field, high-resolution fourier ptychographic microscopy[J]. *Nat Photonics*, 2013, **7**(9): 739–745.
- [20] Hao X, Liu X, Kuang C F, et al. Far-field super-resolution imaging using near-field illumination by micro-fiber[J]. *Appl Phys Lett*, 2013, **102**(1): 013104.
- [21] Hao X, Kuang C F, Li Y H, et al. Evanescent-wave-induced frequency shift for optical super resolution imaging[J]. *Opt Lett*, 2013, **38**(14): 2455–2458.
- [22] Liu X W, Kuang C F, Hao X, et al. Fluorescent nanowire ring illumination for wide-field far-field subdiffraction imaging[J]. *Phys Rev Lett*, 2017, **118**(7): 076101.
- [23] Ling J Z, Wang Y C, Liu X, et al. Resolution improvement of dark-field microscopy via microparticle near-field illumination[J]. *Opt Lett*, 2021, **46**(6): 1265–1268.
- [24] Song M W, Wang D, Kudyshev Z A, et al. Enabling optical steganography, data storage, and encryption with plasmonic colors[J]. *Laser Photon Rev*, 2021, **15**(3): 2000343.
- [25] Wang Y L, Fan Q B, Xu T. Design of high efficiency achromatic metalens with large operation bandwidth using bilayer architecture[J]. *Opto-Electron Adv*, 2021, **4**(1): 200008.
- [26] Zhu Y C, Chen X L, Yuan W Z, et al. A waveguide metasurface based quasi-far-field transverse-electric superlens[J]. *Opto-Electron Adv*, 2021, **4**(10): 210013.
- [27] Wang H T, Hao C L, Lin H, et al. Generation of super-resolved optical needle and multifocal array using graphene oxide metalenses[J]. *Opto-Electron Adv*, 2021, **4**(2): 200031.
- [28] Zhou Y, Liang G F, Wen Z Q, et al. Recent research progress in optical super-resolution planar meta-lenses[J]. *Opto-Electron Eng*, 2021, **48**(12): 210399.
周毅, 梁高峰, 温中泉, 等. 光学超分辨平面超构透镜研究进展[J]. *光电工程*, 2021, **48**(12): 210399.
- [29] Yue Z, Li J T, Li J, et al. Terahertz metasurface zone plates with arbitrary polarizations to a fixed polarization conversion[J]. *Opto-Electron Sci*, 2022, **1**(3): 210014.
- [30] Luo X G, Ishihara T. Surface plasmon resonant interference nanolithography technique[J]. *Appl Phys Lett*, 2004, **84**(23): 4780–4782.
- [31] Luo X G, Ishihara T. Subwavelength photolithography based on surface-plasmon polariton resonance[J]. *Opt Express*, 2004, **12**(14): 3055–3065.
- [32] Pu M B, Guo Y H, Li X, et al. Revisitation of extraordinary young's

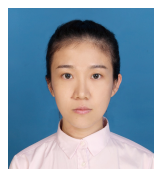
- interference: from catenary optical fields to spin-orbit interaction in metasurfaces[J]. *ACS Photonics*, 2018, **5**(8): 3198–3204.
- [33] Luo X G, Pu M B, Li X, et al. Young's double-slit interference enabled by surface plasmon polaritons: a review[J]. *J Phys D Appl Phys*, 2020, **53**(5): 053001.
- [34] Fang N, Lee H, Sun C, et al. Sub-diffraction-limited optical imaging with a silver superlens[J]. *Science*, 2005, **308**(5721): 534–537.
- [35] Wang C T, Zhao Z Y, Gao P, et al. Surface plasmon lithography beyond the diffraction limit[J]. *Chin Sci Bull*, 2016, **61**(6): 585–599.
- [36] Luo X G. Extraordinary Young's Interferences and Super-Diffraction Laser Lithography[M]//Sugioka K. *Handbook of Laser Micro- and Nano-Engineering*. Cham: Springer, 2020: 1–40.
- [37] Gao P, Yao N, Wang C T, et al. Enhancing aspect profile of half-pitch 32 nm and 22 nm lithography with plasmonic cavity lens[J]. *Appl Phys Lett*, 2015, **106**(9): 093110.
- [38] Beliaev L Y, Takayama O, Melentiev P N, et al. Photoluminescence control by hyperbolic metamaterials and metasurfaces: a review[J]. *Opto-Electron Adv*, 2021, **4**(8): 210031.
- [39] Schurig D, Smith D R. Spatial filtering using media with indefinite permittivity and permeability tensors[J]. *Appl Phys Lett*, 2003, **82**(14): 2215–2217.
- [40] Wood B, Pendry J B, Tsai D P. Directed subwavelength imaging using a layered metal-dielectric system[J]. *Phys Rev B*, 2006, **74**(11): 115116.
- [41] Wang C T, Gao P, Tao X, et al. Far field observation and theoretical analyses of light directional imaging in metamaterial with stacked metal-dielectric films[J]. *Appl Phys Lett*, 2013, **103**(3): 031911.
- [42] Guo Z, Zhao Z Y, Yan L S, et al. Moiré fringes characterization of surface plasmon transmission and filtering in multi metal-dielectric films[J]. *Appl Phys Lett*, 2014, **105**(14): 141107.
- [43] Liu Z W, Lee H, Xiong Y, et al. Far-field optical hyperlens magnifying sub-diffraction-limited objects[J]. *Science*, 2007, **315**(5819): 1686.
- [44] Liu H C, Kong W J, Liu K P, et al. Deep subwavelength interference lithography with tunable pattern period based on bulk plasmon polaritons[J]. *Opt Express*, 2017, **25**(17): 20511–20521.
- [45] Kong W J, Du W J, Liu K P, et al. Launching deep subwavelength bulk plasmon polaritons through hyperbolic metamaterials for surface imaging with a tuneable ultra-short illumination depth[J]. *Nanoscale*, 2016, **8**(38): 17030–17038.
- [46] Kong W, Du W J, Liu K P, et al. Surface imaging microscopy with tunable penetration depth as short as 20 nm by employing hyperbolic metamaterials[J]. *J Mater Chem C*, 2018, **6**(7): 1797–1805.
- [47] Du W J, Wang C T, Zhao Z Y, et al. Characteristic investigation of spatial spectrums filtering in metal-dielectric multilayer metamaterials[J]. *Opto-Electron Eng*, 2014, **41**(11): 89–94.
杜文娟, 王长涛, 赵泽宇, 等. 金属-介质多层膜超衍射材料频谱滤波特性[J]. *光电工程*, 2014, **41**(11): 89–94.
- [48] Born M, Wolf E. *Principles of Optics: Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light*[M]. 7th ed. Cambridge: Cambridge University, 1999.
- [49] Palik E D. *Handbook of Optical Constants of Solids. Volume III*[M]. San Diego: Academic Press, 1998: 356, 760.

作者简介



陈雪松 (1996-), 男, 硕士研究生, 研究方向为微纳光学成像。

E-mail: 1035406830@qq.com



【通信作者】杜文娟 (1989-), 女, 博士, 讲师, 主要从事微纳光学器件设计。

E-mail: wenjuandu@xtu.edu.cn

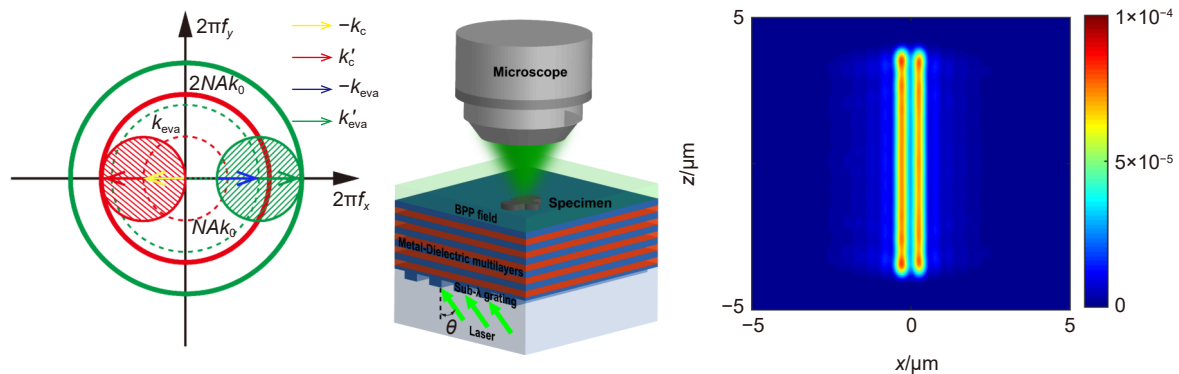


楼志浪 (1996-), 男, 硕士研究生, 研究方向为计算成像、显示投影。

E-mail: 201921001292@smail.xtu.edu.cn

Label-free far-field subdiffraction imaging based on hyperbolic metamaterial

Chen Xuesong¹, Du Wenjuan^{1*}, Lou Zhilang¹, Tang Dongliang²



Schematic diagram of frequency shift, BPP structure and far-field imaging results

Overview: The spatial resolution of traditional optical microscopy is limited by the diffraction limit $\lambda/(2NA)$ (λ is the wavelength, NA is the numerical aperture of the objective lens of system), and the lateral resolution is about 200 nm~300 nm, which makes it difficult to achieve clear imaging for micro-nano structures or cell samples. In this paper, a label-free far-field super-resolution imaging method based on hyperbolic metamaterial is proposed. Super-resolution optical microscopy is an important technology due to the non-contact and non-destructive advantages. Currently, most of the super-resolution imaging methods rely on the fluorescent dyes, which limited their applications. The label-free far-field microscopy imaging method based on the frequency shift effect has been proposed and developed in recent years. However, its spatial resolution is limited by the refractive index of waveguide materials. Based on the characteristic of optical spatial spectrum band-pass filtering in hyperbolic metamaterials (HMM), a large-area uniform bulk plasmon polariton (BPP) field with high spatial frequency can be achieved by combining with nano-scale gratings. Due to the large wave vector of the BPP illumination, the high-frequency information of the object can be transferred to the passband in traditional imaging systems and participate in super-resolution imaging. Illuminated by a BPP field with $2.66k_0$ at the wavelength of 532 nm, a double-slits structure with a 100 nm-wide center-to-center distance has been resolved with a 0.85 numerical aperture standard objective based on this method. The lateral resolution is improved to $\lambda/5.32$. By further improving the transverse wave vector of BPP, it can be improved to $\lambda/7.82$. This design is label-free and conveniently integrated with traditional microscopes, which provides a visual super-resolution imaging method for applications in biomedicine, on-chip industry, material science, and other fields.

Chen X S, Du W J, Lou Z L, et al. Label-free far-field subdiffraction imaging based on hyperbolic metamaterial[J]. *Opto-Electron Eng*, 2022, 49(11): 220056; DOI: [10.12086/oe.2022.220056](https://doi.org/10.12086/oe.2022.220056)

Foundation item: National Natural Science Foundation of China (62105276, 61905073), the Hunan Natural Science Foundation of China (2020JJ5550).

¹School of Physics and Optoelectronics, Xiangtan University, Xiangtan, Hunan 411105, China; ²Key Laboratory for Micro/Nano Optoelectronic Devices of Ministry of Education and Hunan Provincial, Key Laboratory of Low-Dimensional Structural Physics and Devices, School of Physics and Electronics, Hunan University, Changsha, Hunan 410082, China

* E-mail: wenjuandu@xtu.edu.cn