

文章编号: 1005-5630(2023)01-0052-08

DOI: 10.3969/j.issn.1005-5630.2023.001.008

# 有序金纳米棒阵列的超分辨成像

张喜豪<sup>1,2</sup>, 张启明<sup>1,2</sup>

(1. 上海理工大学光子芯片研究院, 上海 200093;  
2. 上海理工大学光电信息与计算机工程学院, 上海 200093)

**摘要:** 显微成像技术受限于光学成像系统的衍射极限, 无法分辨亚波长尺度的结构。通过饱和散射抑制成像技术已经实现了单个纳米颗粒的超分辨成像, 但是涉及到纳米颗粒集合, 需要考虑纳米颗粒间的耦合作用。利用超越衍射极限的双光束方法, 可以在有序金纳米棒阵列上实现远场超分辨光学成像。本文设计了纳米棒长径比为2的5×5金纳米棒阵列, 通过矢量光场理论和热扩散理论计算了金纳米棒阵列在连续波激光下的热分布, 并模拟了双光束激光即脉冲激发光和连续波抑制光下的散射成像。仿真结果显示, 连续波激光能够有效抑制金纳米棒阵列对脉冲激光的散射, 双光束方法实现了80 nm横向特征尺寸的超分辨成像。

**关键词:** 金纳米棒阵列; 温度非线性; 超分辨成像  
**中图分类号:** O 436 **文献标志码:** A

## Super-resolution imaging for ordered gold nanorod arrays

ZHANG Xihao<sup>1,2</sup>, ZHANG Qiming<sup>1,2</sup>

(1. Institute of Photonic Chips, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China;  
2. School of Optical-Electrical and Computer Engineering,  
University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China)

**Abstract:** Microscopic techniques cannot resolve subwavelength scale structures due to the diffraction limit of optical imaging systems. Super-resolution imaging of single nanoparticles has been achieved by saturation scattering suppression imaging techniques, but when it comes to ensembles of nanoparticles, the coupling between nanoparticles needs to be considered. Far-field super-resolution optical imaging can be achieved on ordered gold nanorod arrays using a two-beam method beyond the diffraction limit. In this paper, a 5×5 gold nanorod array with an aspect ratio of 2 is designed, the thermal distribution of the gold nanorod array under continuous-wave laser is calculated by the vector light field theory and thermal diffusion theory, and the scattering imaging under dual-beam laser, i.e., pulsed excitation light and continuous-wave suppression light, is

收稿日期: 2022-03-30

基金项目: 国家重点研发计划(2021YFB2802000); 国家自然科学基金专项(61975123)

第一作者: 张喜豪(1995—), 男, 硕士研究生, 研究方向为超分辨光存储。E-mail: xh\_zhang1208@163.com

通信作者: 张启明(1983—), 男, 教授, 研究方向为光存储、超表面。E-mail: qimingzhang@usst.edu.cn

simulated. The simulation results show that the continuous-wave laser can effectively suppress the pulsed laser scattering of gold nanorod arrays, and the two-beam approach achieves super-resolution imaging with 80 nm resolution.

**Keywords:** gold nanorod arrays; temperature nonlinearity; super-resolution optical imaging

## 引 言

贵金属纳米颗粒由于其独特的局域表面等离子体共振 (SPR) 效应受到人们广泛的关注, 这种效应来自电磁辐射与金属表面自由电子的共振振荡, 能够极大地增强电磁场并局域在金属表面亚波长尺度。其应用范围包括化学和生物传感<sup>[1]</sup>、纳米催化<sup>[2]</sup>、光学诊断和光动力治疗<sup>[3]</sup>、光学成像<sup>[4]</sup>和信息存储<sup>[5]</sup>。特别是通过胶体化学<sup>[6]</sup>和纳米光刻技术<sup>[7]</sup>, 人们已经实现了对纳米颗粒尺寸和形态的控制。因此在可见光到红外频率范围内, 贵金属纳米颗粒可以选择性地增强对光的散射和吸收。

为了突破光学成像系统的衍射极限, 实现更高的空间分辨率即亚波长尺度的像素, STED 显微技术的概念在 1994 年由 Hell 提出<sup>[8]</sup>, 其基本原理是通过双光束激光共线照射的方式实现对自发辐射荧光的开关, 一束激光照射荧光分子使荧光分子处于激发态, 另一束甜甜圈形状的空心光能够使甜甜圈内处于激发态的荧光分子受激辐射回到基态, 不再发生自发辐射, 只有甜甜圈中心的荧光分子能自发辐射出荧光, 从而实现超越衍射极限的光学成像。但是过去的研究往往借助金纳米颗粒辅助增强荧光的非线性来实现更低的饱和功率和更高的分辨率<sup>[9]</sup>, 而忽略了金纳米颗粒自身的非线性效应。

近年来, 金纳米颗粒因其非线性等离子体饱和效应再次受到人们的广泛关注。有研究小组在共聚焦激光扫描显微镜中采集背向散射信号来研究单个等离子体纳米结构的光学特性, 从而发现了饱和散射<sup>[10]</sup>。当连续波 (CW) 激光激发时, 金纳米球的散射, 通常应该是线性的, 即与激发强度成正比。他们发现, 当金纳米球的激发强度增加时, 散射可能不会相应增加, 显示出显著的非线性响应。在低激发强度下, 散射强度线性取决于激发强度。在高激发强度 ( $10^5 \sim 10^6 \text{ W/cm}^2$ )

时, 散射饱和度, 即散射强度偏离线性趋势, 甚至随着激光强度的增加而减小。这种潜在的物理机制被认为是光热效应, 从 SPR 吸收开始, 其光子能量转化为热量, 由于吸收的后果是温度上升——金属介电常数与晶格温度的变化, 随后诱导纳米颗粒散射截面的减小, 并能够观测到强烈的非线性<sup>[11]</sup>。通过时间调制和解调提取等离子体饱和散射的非线性分量, 获得了比荧光饱和显微镜更高的分辨率<sup>[12]</sup>。此外, 研究表明, 深度饱和不仅影响激发波长, 而且影响等离子体带内的其他波长, 通过增加空间调制方式可以实现基于单个金纳米颗粒散射主动控制的全光学等离子体开关<sup>[13]</sup>。进一步地结合金纳米球的尺寸效应, 可实现细胞中多色超分辨成像<sup>[14]</sup>。

金纳米颗粒散射和吸收密切联系在一起, 最近的实验已经表明他们的非线性作用机制相同<sup>[15]</sup>。因此在金纳米颗粒等离子体共振带内的一束激光可以影响纳米颗粒对带内另一束激光的散射和吸收。利用金纳米颗粒的非线性饱和效应, 当一束激光照射金纳米颗粒时, 逐渐增加激光功率至饱和, 金纳米颗粒的散射截面和吸收截面减小, 对另一束激光能量的散射和吸收也会降低。

本文提出了一种对有序金纳米棒阵列实现超分辨成像的技术, 并利用矢量光场理论和热扩散理论对金纳米棒阵列的光场分布和热场分布进行仿真实验。进一步结合金纳米棒的介电常数温度依赖模型, 在金纳米棒阵列上进行散射成像仿真实验, 最终在 80 nm 的亚波长尺度上实现了对纳米结构的超分辨成像。与之前实验中散射抑制的超分辨成像<sup>[16]</sup>相比, 分辨率得到了进一步的提高。同时, 在金纳米棒阵列温度分布的研究中, 介电常数温度依赖模型的引入修正了以前关于连续波激光下纳米尺度热源的研究对金纳米颗粒温度分布的错误估计, 有利于金纳米颗粒在纳米催化、光动力治疗、信息存储和纳米光子器件等领域<sup>[17]</sup>的进一步发展。

# 1 模型建立

有序金纳米棒阵列的超分辨成像概念如图 1 所示。记录材料由基底和 5×5 的金纳米棒阵列构成，每个金纳米棒长径比为 60 nm/30 nm，同向排列且间隔为 100 nm。波长靠近金纳米棒纵向表面等离子体共振峰的抑制光，被调制甜甜圈形状，与在金纳米棒表面等离子体共振带内的激发表光共线照射金纳米棒阵列。由于等离子体非线性饱和吸收效应的作用，甜甜圈环形区域内的金纳米棒受到抑制光的影响，极大地降低了对激发光的散射，只有甜甜圈中心光强为零的区域内的金纳米棒的散射被显著增强，从而实现一个纳米结构的超分辨成像。通过逐点扫描，最终获得整个金纳米棒阵列的图像。

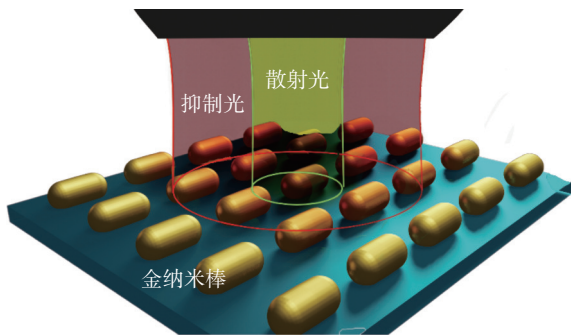


图 1 有序金纳米棒阵列的超分辨成像示意图

Fig. 1 Schematic of super-resolution imaging for ordered gold nanorod arrays

## 1.1 物镜焦点处光强分布

图 2(a)为物镜聚焦示意图。假定入射的平

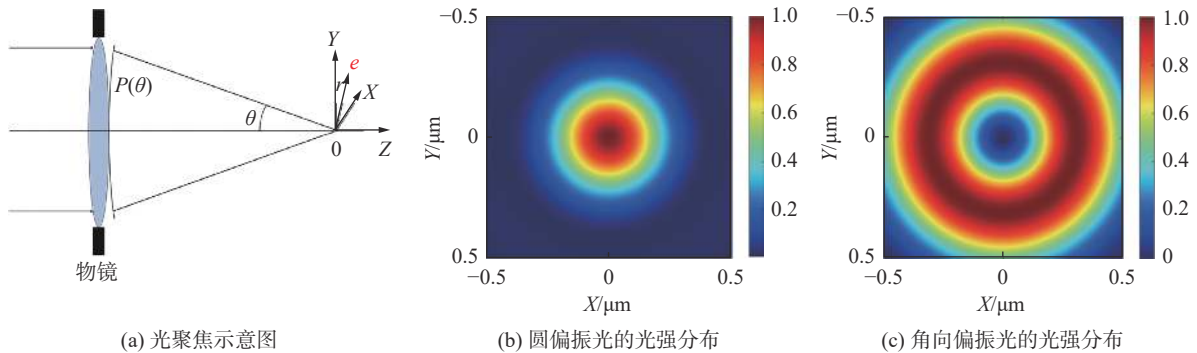


图 2 矢量光场理论仿真

Fig. 2 Theoretical simulation of vector light field

面波  $E_0$  是线偏振光，高数值孔径物镜焦点区域电场可表示为<sup>[18]</sup>

$$E(r_2, \psi, z_2) = \frac{\pi i}{\lambda} \{ [I_a + \cos(2\psi)I_c] \mathbf{i} + \sin(2\psi)I_c \mathbf{j} + 2i \cos\psi I_b \mathbf{k} \} \quad (1)$$

式中 3 个变量  $I_a$ ,  $I_b$ ,  $I_c$  定义为  $I_a = \int_0^\alpha P_\theta \sin\theta (1 + \cos\theta) J_0(kr_2 \sin\theta) \exp(-ikz_2 \cos\theta) d\theta$ ,  $I_b = \int_0^\alpha P_\theta \sin^2\theta J_1(kr_2 \sin\theta) \exp(-ikz_2 \cos\theta) d\theta$ ,  $I_c = \int_0^\alpha P_\theta \sin\theta (1 - \cos\theta) J_2(kr_2 \sin\theta) \exp(-ikz_2 \cos\theta) d\theta$ 。电场  $E(r_2, \psi, z_2)$  为柱坐标  $O-r\psi z$  中点  $e$  的电场表达式,  $\theta$  为光束与光轴的夹角,  $\alpha$  为物镜的半孔径角,  $\psi$  为方位角,  $P_\theta = \sqrt{\cos\theta}$  为物镜的切趾函数,  $k$  为真空中的波数。  $J_0(x)$ ,  $J_1(x)$  和  $J_2(x)$  是零阶、一阶和二阶的第一类贝塞尔函数。式(1)显示在高数值孔径物镜的焦点区域, 衍射场有 3 个分量, 分别在  $x$ 、 $y$ 、 $z$  方向。对于一个入射的平面波,  $\mathbf{B}$  与  $\mathbf{E}$  的关系是  $(\mathbf{k}/|\mathbf{k}|) \times \mathbf{E} = c\mathbf{B}/n$ , 其中  $c$  是真空中的光速,  $\mathbf{k}$  是波矢。以类似的方式可知, 物镜焦点区域附近的磁场表达式为

$$B(r_2, \psi, z_2) = \frac{\pi i n}{\lambda c} \{ \sin(2\psi)I_c \mathbf{i} + [I_0 - \cos(2\psi)I_c] \mathbf{j} + 2i \sin\psi I_b \mathbf{k} \} \quad (2)$$

基于上述理论, 当入射光为圆偏振光时, 在物镜焦点处的光强分布可以表示为<sup>[19]</sup>

$$I_1 = \frac{I_{x1} + I_{y1} + I_{z1}}{2} \quad (3)$$

其中  $I_{x1} = |I_a + \cos(2\psi)I_c + i \sin(2\psi)I_c|^2$ ,  $I_{y1} = |\sin(2\psi)I_c + i \sin(2\psi)I_c|^2$ ,  $I_{z1} = |2 \cos\psi I_b + 2i \sin\psi I_b|^2$  为  $x$ 、 $y$ 、 $z$  方向的 3 个分量。

当入射光为角向偏振光时, 入射光只有角向分量,  $I_b = \int_0^\alpha P_\theta \sin\theta J_1(kr_2 \sin\theta) \exp(-ikz_2 \cos\theta) d\theta$ ,  $I_a$  和  $I_b$  为零, 最终得到物镜焦点处的光强分布为

$$I_2 = I_{x2} + I_{y2} + I_{z2} \quad (4)$$

式中:  $I_{x2} = |-2i \sin\psi I_b|^2$ ;  $I_{y2} = |2i \cos\psi I_b|^2$ ;  $I_{z2} = 0$ 。

利用上述公式, 通过 MATLAB 软件仿真分别得到圆偏振光和角向偏振光在物镜焦点处的光强分布, 如图 2(b) 和 2(c) 所示。

## 1.2 金纳米颗粒的非线性效应和温度分布模型

在无损耗介质基底中单个金纳米球被高强度连续波激光照射, 入射光子的吸收会导致纳米颗粒加热, 并将热量传递到环境中, 从而达到动态平衡, 使温度处于稳定状态。由于金纳米颗粒的热导  $\kappa_m$  远大于基底的热导  $\kappa_h$ , 金纳米球内部温度可以等效为均匀的。通过能量守恒定律, 我们可以得到本文模型的连续波激光热扩散方程为

$$\begin{cases} T(r) = T_h + \frac{C_{\text{abs}}(\omega) I_{\text{inc}}}{4\pi\kappa_h a}, & r \leq a \\ T(r) = T_h + \frac{C_{\text{abs}}(\omega) I_{\text{inc}}}{4\pi\kappa_h r}, & r > a \end{cases} \quad (5)$$

式中:  $I_{\text{inc}}$  为入射光强;  $C_{\text{abs}}(\omega)$  为吸收截面;  $T_h$  是初始环境温度;  $T(r)$  是稳态时的温度分布;  $a$  为金纳米球的半径;  $r$  为到球心的距离。

研究表明, 金纳米颗粒在强连续波照射下, 温度的改变会导致纳米颗粒自身的介电常数发生变化, 从而影响纳米颗粒的吸收截面, 最终符合一种新的模型——介电常数温度依赖模型。因此连续波激光照射下金纳米球的热扩散方程改写为<sup>[20]</sup>

$$\begin{cases} \Delta T_{\text{NP}} = \frac{C_{\text{abs}}(\omega, \Delta T_{\text{NP}}) I_{\text{inc}}}{4\pi\kappa_h a}, & r \leq a \\ \Delta T(r) = \Delta T_{\text{NP}} \frac{a}{r}, & r > a \end{cases} \quad (6)$$

式中  $\Delta T_{\text{NP}}$  为式(5)的  $T(r) - T_h$ 。通过迭代, 我们可以得到实际的温度变化  $\Delta T_{\text{NP}}$ 。

为了计算简便, 金纳米球的吸收截面  $C_{\text{abs}}(\omega, \Delta T_{\text{NP}})$  可以通过米氏理论的帕德近似得到<sup>[21]</sup>

$$C_{\text{abs}} = \frac{6\pi}{k^2} [\text{Re}(a_1) - |a_1|^2] + \frac{10\pi}{k^2} [\text{Re}(a_2) - |a_2|^2] \quad (7)$$

$$\text{其中一阶系数 } a_1 = \frac{-i \frac{2}{3} \frac{\varepsilon_m - \varepsilon_h}{\varepsilon_m + 2\varepsilon_h} x^3}{1 - \frac{3}{5} \frac{\varepsilon_m - 2\varepsilon_h}{\varepsilon_m + 2\varepsilon_h} x^2 - i \frac{2}{3} \frac{\varepsilon_m - \varepsilon_h}{\varepsilon_m + 2\varepsilon_h} x^3},$$

二阶系数

$$a_2 = \frac{-\frac{i}{15} \frac{\varepsilon_m - \varepsilon_h}{2\varepsilon_m + 3\varepsilon_h} x^5}{1 + \frac{5}{7} \frac{\varepsilon_h}{2\varepsilon_m + 3\varepsilon_h} x^2 - \frac{5}{1323} \frac{\varepsilon_m^2 + 30\varepsilon_m\varepsilon_h - 45\varepsilon_h^2}{\varepsilon_h(\varepsilon_m + 2\varepsilon_h)} x^4 - \frac{i}{15} \frac{\varepsilon_h}{2\varepsilon_m + 3\varepsilon_h} x^5}$$

$x = \sqrt{\varepsilon_h} ka$  为尺寸参数。金纳米颗粒介电常数  $\varepsilon_m$  和基底介电常数  $\varepsilon_h$  都与温度变化  $\Delta T_{\text{NP}}$  相关, 即

$$\begin{cases} \varepsilon_m(\Delta T_{\text{NP}}) = \varepsilon_{m,0} + B_m \Delta T_{\text{NP}} = (\varepsilon_{m,0}' + i\varepsilon_{m,0}'') + \\ \quad (B_m' + iB_m'') \Delta T_{\text{NP}} \\ \varepsilon_h(\Delta T_{\text{NP}}) = \varepsilon_{h,0} + B_h \Delta T_{\text{NP}} = (\varepsilon_{h,0}' + i\varepsilon_{h,0}'') + \\ \quad (B_h' + iB_h'') \Delta T_{\text{NP}} \end{cases} \quad (8)$$

现在我们将模型拓展至金纳米棒。对于长径比  $D/d$  小于 4 的金纳米棒, 均匀温度近似仍然是有效的。因此本文中的金纳米棒始终被认为是点热源, 相应的热扩散模型即式(6)仍然适用于金纳米棒。这里我们引入  $R_{\text{eq}}$ , 即与金纳米棒体积  $V_{\text{NP}}$  相同的球体的半径, 和无量纲热容系数  $\beta$ , 得到<sup>[22]</sup>

$$\Delta T_{\text{NP}}^{\text{cw}} = \frac{C_{\text{abs}}(\omega, R_{\text{eq}}, \Delta T_{\text{NP}}^{\text{cw}}) I_{\text{inc}}}{4\pi\kappa_h R_{\text{eq}} \beta} \quad (9)$$

$$\Delta T^{\text{cw}}(r) = \frac{C_{\text{abs}}(\omega, R_{\text{eq}}, \Delta T^{\text{cw}}) I_{\text{inc}}}{4\pi\kappa_h} \frac{1}{r} \quad (10)$$

其中, 金纳米棒的  $\beta$  为  $1 + 0.96587 \ln^2(D/d)$ <sup>[22]</sup>。这里, 脉冲激光使用的吸收截面由连续波激光引起的金纳米棒的温度变化确定。通过循环迭代, 我们可以获得实际的  $\Delta T^{\text{cw}}$ 。

对于金纳米棒阵列的温度分布, 一个特定的纳米颗粒的温度变化  $\Delta T_j$  来源于两个部分<sup>[23]</sup>:

$$\Delta T_j = \Delta T_j^{\text{s}} + \Delta T_j^{\text{ext}} \quad (11)$$

$\Delta T_j^{\text{s}}$  是自身的贡献, 能通过式(9)计算得到。 $\Delta T_j^{\text{ext}}$  是该纳米颗粒周围其他粒子的热扩散引起的, 可以通过式(10)计算得到, 即

$$\Delta T_j^{\text{ext}} = \sum_{\substack{k=1 \\ k \neq j}}^N \frac{C_{\text{abs},k} I_{\text{inc},k}}{4\pi\kappa_h} \frac{1}{|\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_k|} \quad (12)$$

其中  $|\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_k|$  是两粒子间的相对距离。 $C_{\text{abs},k}$  是第



$k$  个粒子的吸收截面,  $I_{inc,k}$  是第  $k$  个粒子处的光强。因此考虑其他粒子热扩散的影响, 我们可以通过增加一层循环迭代, 对最终的  $\Delta T^{CW}$  进行修正。

当使用脉冲激光照射时, 时间尺度不涉及热晶格的作用, 无法影响金纳米颗粒的吸收截面, 因此我们可以简单地通过<sup>[14]</sup>

$$I_{sca}(\lambda_{pulse}) = C_{sca}(\Delta T_{NP}|_{CW}, \lambda_{CW})|_{\lambda=\lambda_{pulse}} \times I_{pulse} \quad (13)$$

获得脉冲激光的散射强度分布。其中金纳米颗粒的散射截面为<sup>[24]</sup>

$$C_{sca} = \frac{32\pi^4 [\epsilon_h(\Delta T_{NP})]^2}{\lambda^4} V_{NP}^2 \times \frac{[\epsilon_m'(\Delta T_{NP}) - 2\epsilon_h(\Delta T_{NP})]^2 + [\epsilon_m''(\Delta T_{NP})]^2}{[\epsilon_m'(\Delta T_{NP}) + 2\epsilon_h(\Delta T_{NP})]^2 + [\epsilon_m''(\Delta T_{NP})]^2} \quad (14)$$

## 2 仿真及分析

通过上述模型, 利用 MATLAB 软件可以进

行仿真实验。首先输入初始参数, 利用式(3)和式(4)分别生成矢量光场激发光  $I_1$  和抑制光  $I_2$ 。将抑制光  $I_2$  代入式(7)和式(9), 通过第一次循环迭代得到金纳米棒的温度  $\Delta T_j^s$  以及新的介电常数和热导。利用式(7)和式(12), 通过第二次循环迭代得到  $\Delta T_j^{ext}$ , 最终获得金纳米棒的稳态温度分布  $T_2$  和修正的介电常数  $\epsilon_m$ 、 $\epsilon_h$  和热导  $\kappa_h$ 。然后将初始介电常数、热导和修正的介电常数、热导分别代入式(9)和式(13), 最终得到未抑制和抑制时的散射强度分布。

具体仿真流程如图 3 所示。具体参数如表 1 所示。我们选择 520 nm 脉冲激光作为激发光, 539 nm 连续光作为抑制光。金纳米棒的长径比为 60 nm/30 nm, 相同体积对应的球体半径  $R_{eq}$  约为 20 nm。初始介电函数(两波长相差不大)和热导数均来自文献实验数据<sup>[25]</sup>。我们在  $1 \mu m \times 1 \mu m$  的仿真区域进行正方形网格划分, 精度为 1 nm, 并在特定位置标记金纳米棒的形状, 产生了间隔为 100 nm 的  $5 \times 5$  金纳米棒阵列。

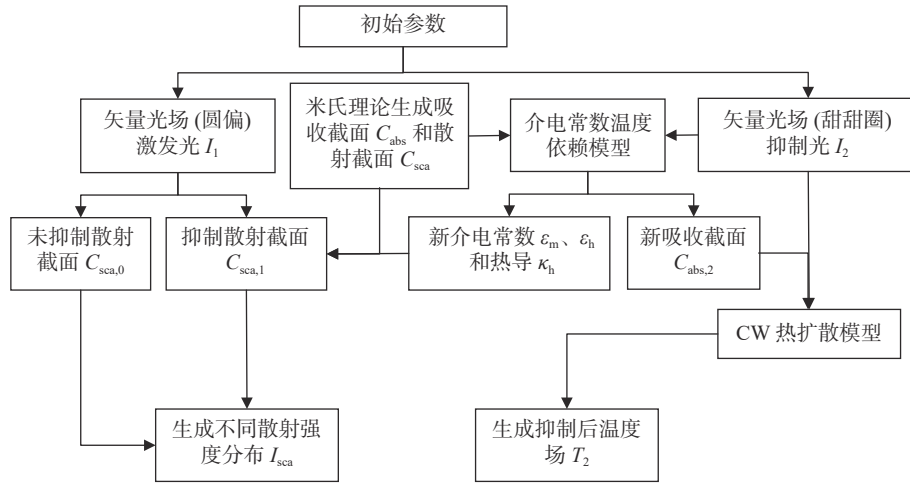


图 3 温度模型流程图

Fig. 3 Procedure of temperature model

表 1 初始参数

Tab. 1 Initial parameters

参数	金纳米颗粒	基底
热导 ( $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ )	$\kappa_m=317$	$\kappa_h=0.25$
初始介电常数	$\epsilon_{m,0} = -7.52 + 1.65i$	$\epsilon_{h,0} = 3.3$
热导数 ( $K^{-1}$ )	$B_m = (-0.7 + 1.7i) \times 10^{-3}$	$B_h = 10^{-4}$
物镜数值孔径	$NA=0.8$	
折射率	$n=1.4$	

### 2.1 金纳米棒的温度非线性和散射抑制

利用热扩散模型计算连续波激光单个金纳米棒的热场分布, 如图 4(a)和 4(b)所示。根据介电常数温度依赖模型, 我们分别计算介电常数随温度变化和无变化时单个金纳米棒的吸收截面和温度变化。如图 4(c)所示, 相对于介电常数温度无关模型, 随着入射光强的增加, 金纳米棒吸收能量引起自身温度升高, 由于介电常数受温度

影响发生改变, 这导致温度相关模型的吸收截面显著减小, 相应的温度变化远低于温度无关时的温度变化。因此在图 4(d)中, 当连续波激光与脉冲激光叠加在一起, 共线照射金纳米棒时, 连

续波激光可以显著改变金纳米棒的散射截面, 从而导致金纳米棒对脉冲激光的散射截面减小, 最终的散射强度远低于入射强度。

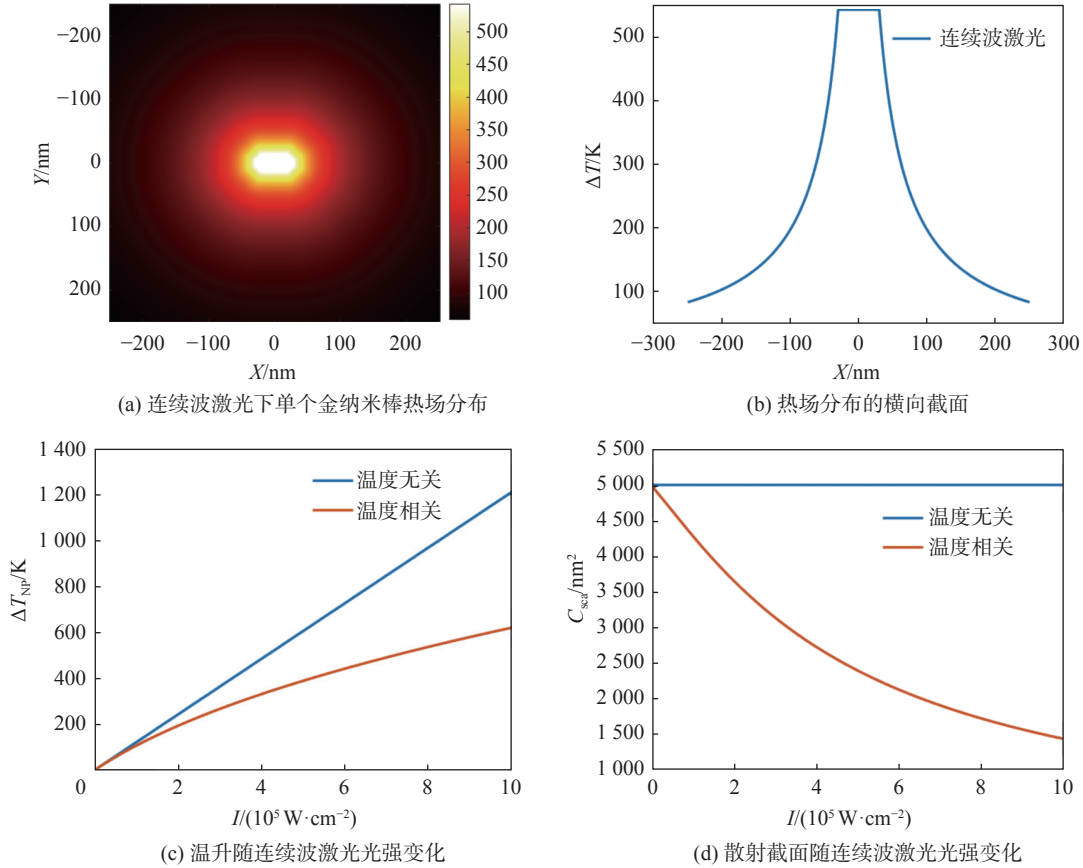


图 4 单个金纳米棒的热场分布和介电常数温度依赖模型

Fig. 4 Thermal distribution of single gold nanorod and dielectric constant temperature-dependent model

## 2.2 金纳米棒阵列的超分辨成像

如图 5(a)所示, 利用金纳米棒阵列的热扩散公式(11)和(12), 结合介电常数温度模型, 对每个金纳米棒的吸收截面进行修正, 我们可以计算连续波激光照射下金纳米棒阵列的热场分布。在图 5(b)中, 通过脉冲激光的矢量光场和吸收截面, 我们计算了未受抑制时单个脉冲激光下金纳米棒阵列的散射强度分布。结果显示, 在光斑区域内, 相邻粒子间散射强度较高, 无法实现纳米尺度的分辨。当连续波激光调制成甜甜圈形状, 与脉冲激光共线叠加时, 甜甜圈周围的金纳米棒的散射受到抑制, 只有甜甜圈中心的金纳米棒不受连续波激光的影响, 散射强度最高, 能够被清晰地分辨出来, 如图 5(c)所示。

图 5(d)对图 5(b)和 5(c)的散射分布剖面轮廓进行高斯曲线拟合, 得到对应抑制前和抑制后的金纳米棒阵列散射强度的半峰全宽, 分别为 334 nm 和 80 nm。因此, 我们实现了金纳米棒阵列的超分辨成像, 最终得到了接近金纳米棒尺寸的 80 nm 的横向特征尺寸。在实际应用中, 通过逐点扫描, 我们可以获得整个金纳米棒阵列的超分辨图像。

## 3 结 论

本文提出了一种对有序金纳米棒阵列进行超分辨成像的技术, 采用双光束激光共线照射金纳米棒阵列的方式, 最终获得了超越衍射极限的

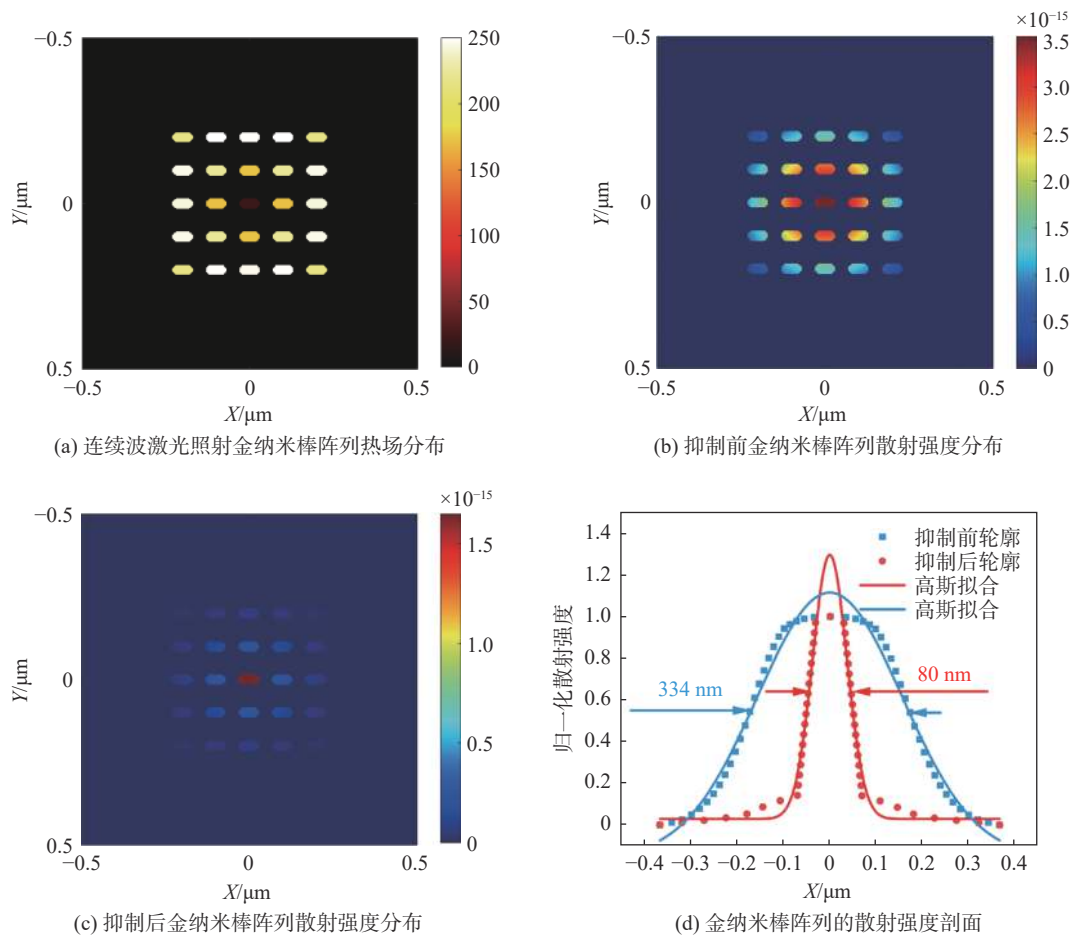


图 5 金纳米颗粒阵列热场分布

Fig. 5 Thermal field distribution of gold nanorod arrays

80 nm ( $\lambda/6.6$ ) 的横向特征尺寸。我们建立了矢量光场模型和金纳米颗粒在连续波激光下的热扩散模型, 并使用仿真软件对金纳米棒阵列进行光场和热场分析, 对比单个脉冲激光下金纳米棒阵列的散射强度分布。双光束成像方式能够有效减小散射光斑的大小, 使分辨率提高约 6 倍。未来的工作可以进一步考虑基底热导对温度的依赖性以及界面电导率的影响, 实现更加完善的理论模型。同时也可以对脉冲激光的持续时间和重复频率进行调制, 从而实现更高的分辨率。

#### 参考文献:

- [1] SAHA K, AGASTI S S, KIM C, et al. Gold nanoparticles in chemical and biological sensing[J]. *Chemical Reviews*, 2012, 112(5): 2739 – 2779.
- [2] YAO G Y, LIU Q L, ZHAO Z Y. Applications of

- localized surface plasmon resonance effect in photocatalysis[J]. *Progress in Chemistry*, 2019, 31(4): 516 – 535.
- [3] FRÖHLICH E, WAHL R. Nanoparticles: promising auxiliary agents for diagnosis and therapy of thyroid cancers[J]. *Cancers*, 2021, 13(16): 4063.
- [4] WILLETS K A, WILSON A J, SUNDARESAN V, et al. Super-resolution imaging and plasmonics[J]. *Chemical Reviews*, 2017, 117(11): 7538 – 7582.
- [5] ZIJLSTRA P, CHON J W M, GU M. Five-dimensional optical recording mediated by surface plasmons in gold nanorods[J]. *Nature*, 2009, 459(7245): 410 – 413.
- [6] ORTIZ-CASTILLO J E, GALLO-VILLANUEVA R C, MADOU M J, et al. Anisotropic gold nanoparticles: a survey of recent synthetic methodologies[J]. *Coordination Chemistry Reviews*, 2020, 425: 213489.
- [7] STOKES N, MCDONAGH A M, CORTIE M B. Preparation of nanoscale gold structures by nanolithography[J]. *Gold Bulletin*, 2007, 40(4): 310 –

- 320.
- [ 8 ] HELL S W, WICHMANN J. Breaking the diffraction resolution limit by stimulated emission: stimulated-emission-depletion fluorescence microscopy[J]. *Optics Letters*, 1994, 19(11): 780 – 782.
- [ 9 ] SONNEFRAUD Y, SINCLAIR H G, SIVAN Y, et al. Experimental proof of concept of nanoparticle-assisted STED[J]. *Nano Letters*, 2014, 14(8): 4449 – 4453.
- [10] CHU S W, WU H Y, HUANG Y T, et al. Saturation and reverse saturation of scattering in a single plasmonic nanoparticle[J]. *ACS Photonics*, 2014, 1(1): 32 – 37.
- [11] CHEN Y T, LEE P H, SHEN P T, et al. Study of nonlinear plasmonic scattering in metallic nanoparticles[J]. *ACS Photonics*, 2016, 3(8): 1432 – 1439.
- [12] NISHIDA K, DEKA G, SMITH N I, et al. Nonlinear scattering of near-infrared light for imaging plasmonic nanoparticles in deep tissue[J]. *ACS Photonics*, 2020, 7(8): 2139 – 2146.
- [13] WU H Y, HUANG Y T, SHEN P T, et al. Ultrasmall all-optical plasmonic switch and its application to superresolution imaging[J]. *Scientific Reports*, 2016, 6: 24293.
- [14] XU J, ZHANG T Y, YANG S Y, et al. Plasmonic nanoprobe for multiplexed fluorescence-free super-resolution imaging[J]. *Advanced Optical Materials*, 2018, 6(20): 1800432.
- [15] JAGADALE T C, MURALI D S, CHU S W. Nonlinear absorption and scattering of a single plasmonic nanostructure characterized by  $x$ -scan technique[J]. *Beilstein Journal of Nanotechnology*, 2019, 10: 2182 – 2191.
- [16] TANG Y L, YEN T H, NISHIDA K, et al. Mie-enhanced photothermal/thermo-optical nonlinearity and applications on all-optical switch and super-resolution imaging [Invited][J]. *Optical Materials Express*, 2021, 11(11): 3608 – 3626.
- [17] AMENDOLA V, PILOT R, FRASCONI M, et al. Surface plasmon resonance in gold nanoparticles: a review[J]. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 2017, 29(20): 203002.
- [18] GU M. Imaging with a high numerical-aperture objective[M]//Advanced Optical Imaging Theory. Berlin, Heidelberg: Springer, 2000: 143 – 176.
- [19] 肖昀, 张运海, 杨皓旻, 等. 大数值孔径物镜下角向偏振光聚焦特性研究 [J]. *激光与光电子学进展*, 2015, 52(3): 031801.
- [20] SIVAN Y, CHU S W. Nonlinear plasmonics at high temperatures[J]. *Nanophotonics*, 2017, 6(1): 317 – 328.
- [21] UN I W, SIVAN Y. Size-dependence of the photothermal response of a single metal nanosphere[J]. *Journal of Applied Physics*, 2019, 126(17): 173103.
- [22] BAFFOU G, QUIDANT R, DE ABAJO F J G. Nanoscale control of optical heating in complex plasmonic systems[J]. *ACS Nano*, 2010, 4(2): 709 – 716.
- [23] BAFFOU G, BERTO P, UREÑA E B, et al. Photoinduced heating of nanoparticle arrays[J]. *ACS Nano*, 2013, 7(8): 6478 – 6488.
- [24] MAYER K M, HAFNER J H. Localized surface plasmon resonance sensors[J]. *Chemical Reviews*, 2011, 111(6): 3828 – 3857.
- [25] SHEN P T, SIVAN Y, LIN C W, et al. Temperature- and roughness-dependent permittivity of annealed/unannealed gold films[J]. *Optics Express*, 2016, 24(17): 19254 – 19263.

(编辑: 张 磊)