

超分辨近场光学成像技术及其产业开发

吴世法

(大连理工大学物理系, 辽宁 大连 116023)

[摘要] 超分辨近场光学成像技术是当前国内外一个重要的高新技术前沿课题, 也将是我国 21 世纪初应该发展的一项高新技术产业。文中介绍了我国自 1991 年以来开拓研究的进展, 探讨了国际学术界及产业开发中当前存在的主要问题, 提出了各类超分辨扫描模式成像公式的简洁表达式, 并作了分析比较。为解决消除假像和从有形貌等混合图像中分离纯光学图像两大难题, 作者曾于 1993 年和 1996 年提出两项发明专利, 为发展我国的该产业解决了两大技术关键。

[关键词] 超衍射极限分辨; 近场光学; 成像技术; 超分辨光学显微镜

1 开拓历程和 PSTM 进展

1.1 开拓历程

1928 年辛格 (E. H. Synge) 和 1956 年奥·基夫 (A. O' keefe) 先后独自提出小孔径扫描近场光学显微镜 (A-SNOM) 的设想。1972 年阿什 (E. A. Ash) 等用 3 cm 微波演示上述设想, 获得 $\lambda/20$ 分辨的二维微波图像。此原理性的成功和 20 世纪 80 年代初 (电子) 扫描隧道显微镜 (STM) 的发明极大地促进了可见光超分辨光学成像技术研究^[1]。自 1984 年至今 15 年中, 已研究成功多种类型超分辨近场光学成像技术。波尔 (D. W. Pohl)^[2] 率先研究成功光频小孔径扫描近场光学显微成像技术。贝齐格 (E. Betzig) 研制成功第一台 A-SNOM 系统^[3]。威克拉玛辛 (Wickramasinghe)、曾豪森 (E. Zenhausern) 等^[4] 研究成功无孔径探测尖散射扫描近场光学显微镜 (S-SNOM)。90 年代初, 雷迪克 (R. C. Reddik)^[5]、维古罗克斯 (J. M. Vigoureux)、考乔恩 (D. Courjon)^[6]、大津元一 (M. Ohtsu)^[7] 和我国, 先后开发和研究了光子扫描隧道显微镜 (PSTM)。

1.2 国内 PSTM 进展

1991 年 10 月大连理工大学与北京电子显微镜实验室合作研究, 获得了我国第一幅 PSTM 超衍射极限分辨的透射光栅图像 (见图 1)^[8]。研制成功的我国第一台 PSTM 系统, 于 1993 年 6 月 6 日通过了专家鉴定小组的鉴定。该系统成功地获得了 10 多种样品超衍射极限分辨图像, 成像系统横向空间分辨优于 10 nm, 纵向分辨优于 1 nm^[9,10]。

1993 年发明专利^[11]可消除单光束 PSTM 中存在的假像。1998 年又研制成功消假像的 π -PSTM 系统。在倒置光学显微镜上设置 π 对称双光束全内反射照明的样品台, 用起伏较大的刻划复制光栅 (周期 833 nm, 幅 70 nm) 作样品, 检测了双光束 π 对称照明 π -PSTM 系统消假像的效果。图 2b、图 2c 分别为 π 方位和 0 方位单光束 PSTM 图像, 剖面线显示有明显假像 (竖线阴影为正假像, 点阴影为负假像)。图 2a 为双光束 π -PSTM 图像, 其剖面线 ($0+\pi$) 与样品 (sample) 剖面线相符 (便于观察人为错开示出), 没有明显假像。这与通过微扰加角谱传递理论进行的数值模拟研究结果相符, 消假像方法显示了明显的效果^[12]。

[收稿日期] 1999-07-20; **修回日期** 1999-11-24

[基金项目] 国家自然科学基金资助项目 (69677011)

[作者简介] 吴世法 (1928-), 男, 浙江东阳县人, 大连理工大学教授

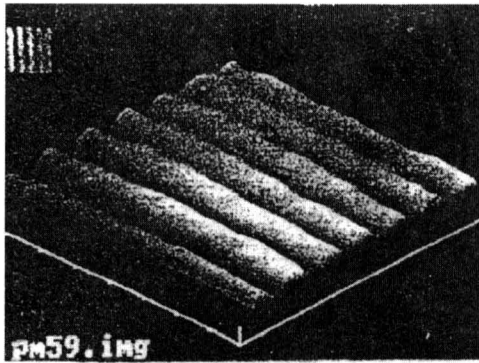


图 1 全息光栅 PSTM 图像

Fig.1 PSTM image of holography diffraction grating 1 kpl/mm (7 μm × 7 μm)

探测尖。因为只有隐失场形式的光子才能携带样品表面超分辨信息。近场内传输光形式的光子仍受衍射极限公式制约，不能携带超分辨信息^[14-16]。



a PSTM 图像 (640 nm × 640 nm)

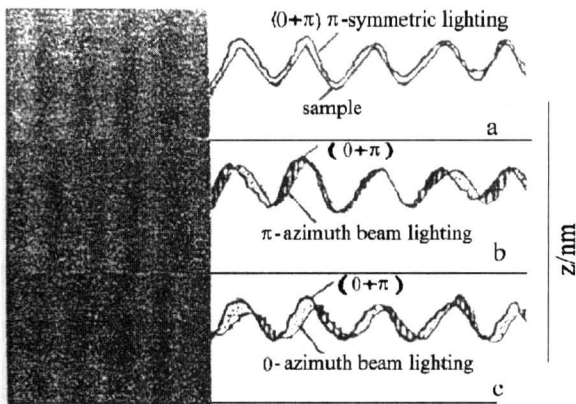
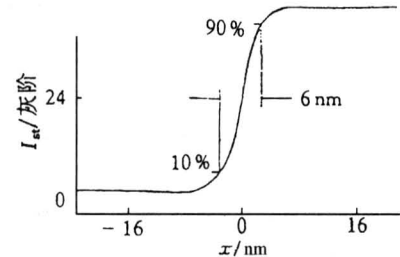
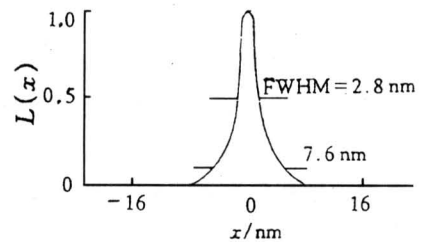


图 2 PSTM 消假像的实验结果 (左为 PSTM 图像, 右为剖面线比较)

Fig.2 The results of eliminating false image in PSTM



b 图 3a 中双箭所指区间内取 15 条剖面线平均得灰阶表示的场强 $I_{st}(x)$



c 线扩展函数 (LSF) $L(x)$

图 3 用台阶 PSTM 扩展图像处理线扩展函数

Fig.3 Processing LSF with step spread image of π-PSTM

1998 年，用树脂薄膜样品的陡峭边沿成像，在 PSTM 的台阶展宽图像中测定线扩展函数的半高宽，首次达到 2.8 nm，见图 3^[13]。

2 实现光学超分辨的关键

2.1 两个最关键条件

超分辨近场光学成像技术基本上可分为三类，其中又有透射式 (T) 和反射式 (R) 之分。即 A-SNOM (T)，A-SNOM (R)，S-SNOM (T)，S-SNOM (R) 和 PSTM (仅 T 式)。众多类型的超分辨近场光学成像技术都能获得超分辨图像，其中最关键的条件有二：样品表面必须存在隐失波场 (evanescent wave field) 和采用超衍射极限尺度的

2.2 产生隐失场方法和探测隐失场关键

在透射样品表面产生隐失场的最有效方法是采用全内反射照明 (入射角大于临界角)。这时在样品上表面产生的隐失光场强 $I(Z)$ 携带样品折射率 n_1 、入射角 θ_1 (与形貌有关) 和尖至样品间距 Z 信息，并与光偏振态有关。其近似的表达式为

$$I(Z) = K(n_1, \theta_1) \exp\left[-\frac{4\pi}{\lambda}(n_1^2 \sin^2 \theta_1 - 1)^{\frac{1}{2}} Z\right]. \tag{1}$$

式中: $K(n_1, \theta_1)$ 为常量, 与 n_1 、 θ_1 和光的偏振态有关。 $I(Z)$ 与 Z 的关系呈指数衰减。

在不透光的反射样品表面或透射样品在照明光束入射角小于临界角的条件下, 样品表层的散射也能在近场产生隐失光场。因为在样品表层散射点发射的散射光存在于 4π 立体角内, 其中一部分沿样品表面发射的(发射角 $\pi/2$) 和发射角为虚数的散射光(其振幅垂直于样品表面)均可在样品表面产生隐失场。产生隐失场的光效率与样品表层形貌(细结构)、介电常数(金属为复数)、反射率、散射率有关, 与入射角、偏振态也有关。因此, 它能携带超分辨的这些有关参量。靠这种样品表层散射产生的隐失场纯度很低, 即在样品近场同时存在、比隐失场强得多的传输光场。一般隐失场信号被淹没在传输光场信号中。幸好, 隐失光场强 $I(Z)$ 与 Z 有指数衰减关系, 而在近场传输光的场强与 Z 却变化很小。因此, 在非全内反射照明条件下的各种超分辨近场成像类型中均应设置探测尖的纵向共振抖动(dither)调制, 将混合光场中隐失光场信号通过锁相电路检测; 排除近似直流成分近场传输光强背景干扰。这是非 PSTM 型所有超分辨近场光学成像技术获得超分辨图像的另一个关键。凡采用这项技术的超分辨近场光学成像实验演示成功的研究者, 均已取得纳米分辨和好对比度的图像^[4], 而未采用这项技术者(包括剪切力控制的 A-SNOM 商品)均难获得对比度较好的超分辨图像。文献[17]结果说明了这一点, 抖动探测尖在入射角为零的透射玻璃粗糙表面已测到被淹没在传输光场中的隐失场(图 4a), 尖不抖动时, 在近场测到了隐失光与传输光的混合场(图 4b), 其隐失光场被淹没在传输光场中(前者约比后者小约二个数量级)。透射样品在 PSTM 中, 由于隐失光场的纯度很高(一般超过 90%), 不采用探测尖纵向抖动技术也能获得好的超分辨图像。

3 各种扫描成像模式图像的表达式

探测尖至样品间距在扫描成像过程中需要精确地依据扫描成像模式控制。成像模式基本有三种: 隐失场信息等强度扫描成像模式(CI), 探测尖等高度扫描成像模式(CH)和尖至样品等间距扫描成像模式(CZ)。此外还有一种尖抖动轻敲样品表面的轻敲扫描成像模式(Tapping Mode)。

在样品参数中, 除厚度 $Z_0(x, y)$ 、形貌图

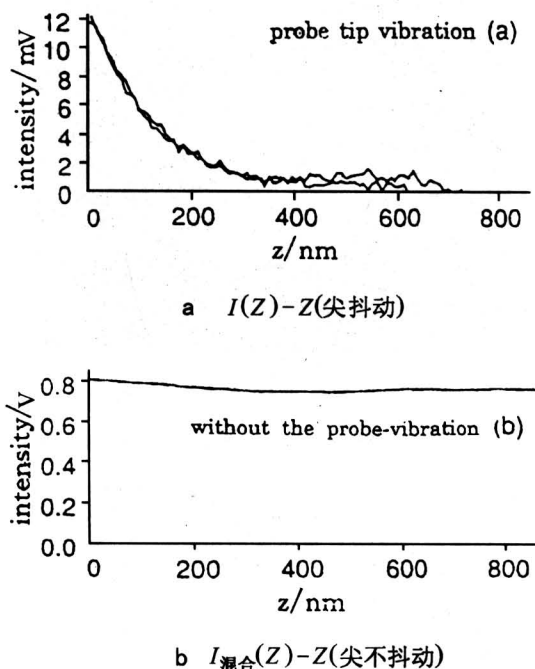


图4 样品表面近场散射探测值与 Z 关系

Fig.4 The detected scatter intensity in near-field on a glass rough versus Z ^[17]

像 $\Delta Z_0(x, y)$ 外, 光学参量有透过率 $t(x, y)$ 、折射率 $n_1(x, y)$ 和反射率 $r(x, y)$ 三项。此外, 还有照明光的入射角 θ_1 和尖至样品间距 Z , 初始照明光束强度 I_0 也是近场隐失光场强 I 的参量。其中尖高 $H = Z + Z_0$ 。下面场强分别按纯透射 I'_t 和纯反射 I'_r 进行分析。

$$I'_t = t \cdot I_0 \cdot f(n_1, Z, \theta_1),$$

$$t \cdot I_0 = I'_t(Z = 0); \quad (2)$$

$$\Delta I_t = \frac{\partial I_t}{\partial n_1} \Delta n_1 + \frac{\partial I_t}{\partial Z} \Delta Z + \frac{\partial I_t}{\partial \theta_1} \Delta \theta_1,$$

$$I_t = I'_t / t I_0 \text{ 为强度比}; \quad (3)$$

$$I'_r = I_0 \cdot f(r, Z, \theta_1), \quad r = r(\epsilon),$$

$$\epsilon \text{ 为介电常数, } I_r \text{ 表示 } I'_r / I_0;$$

$$\Delta I_r = \frac{\partial I_r}{\partial r} \Delta r + \frac{\partial I_r}{\partial Z} \Delta Z + \frac{\partial I_r}{\partial \theta_1} \Delta \theta_1. \quad (4)$$

在不对称(相对于探测尖轴线)单光束照明(或接收)条件下, 设样品表面倾斜(入射面内)导致入射角 θ_1 的变化值为 $\Delta \theta_1$, 则 $\frac{\partial I_t}{\partial \theta_1} \Delta \theta_1$ 和 $\frac{\partial I_r}{\partial \theta_1} \Delta \theta_1$ 将成为假像信息^[18,11]。如果设置 π 对称双光束照明样品, 同一像元 $+\Delta \theta_1(x, y)$ 与 $-\Delta \theta_1(x, y)$ 项贡献将可相消^[1,11,19], 因而式(3)、(4)对透射

样品和反射样品分别可表示如下：

$$\Delta I_t = \frac{\partial I_t}{\partial n_1} \Delta n_1 + \frac{\partial I_t}{\partial Z} \Delta Z, (\text{透射}); \quad (5)$$

$$\Delta I_r = \frac{\partial I_r}{\partial r} \Delta r + \frac{\partial I_r}{\partial Z} \Delta Z, (\text{反射}). \quad (6)$$

上述两式可分别表达为以下三种扫描模式。

1) 等强度比或等强度扫描模式 (CI), 即在 $\Delta I_t = 0$ 或 $\Delta I_r = 0$ 条件下:

$$\Delta t = \Delta I_t(Z=0)/I_0, I_0 = \text{常量}; \quad (7)$$

$$\Delta H_t(\Delta I_t = 0) = -\frac{\partial Z}{\partial n_1} \Delta n_1 + \Delta Z_0, \quad \text{等强度比}; \quad (8)$$

$$\Delta H_r(\Delta I_r = 0) = -\frac{\partial Z}{\partial r} \Delta r + \Delta Z_0. \quad (9)$$

2) 等高度扫描模式 (CH), 即在 $\Delta H = 0$, $\Delta Z = -\Delta Z_0$ 条件下:

$$\Delta I_t(\Delta H = 0) = \frac{\partial I_t}{\partial t} \Delta t + \frac{\partial I_t}{\partial n_1} \Delta n_1 - \frac{\partial I_t}{\partial Z} \Delta Z_0, \quad (10)$$

在样品透过率变化可以忽略、 $\Delta t(x, y) \approx 0$ 条件下, 上式为:

$$\Delta I_t(\Delta H = 0) = \frac{\partial I_t}{\partial n_1} \Delta n_1 - \frac{\partial I_t}{\partial Z} \Delta Z_0, \quad (10')$$

$$\Delta I_r(\Delta H = 0) = \frac{\partial I_r}{\partial r} \Delta r - \frac{\partial I_r}{\partial Z} \Delta Z_0. \quad (11)$$

3) 等间距扫描模式 (CZ), 即在 $Z=0$ 和 $Z=2A$ 条件下:

$$\Delta I_t(Z=0) = \frac{\partial I_t}{\partial t} \Delta t;$$

$$\Delta I_t(Z=2A) = \frac{\partial I_t}{\partial t} \Delta t + \frac{\partial I_t}{\partial n_1} \Delta n_1,$$

等振幅 A, 轻敲模式;

$$\Delta I_t(Z=2A) - \Delta I_t(Z=0) \approx \frac{\partial I_t}{\partial n_1} \Delta n_1; \quad (12)$$

$$\Delta I_r(Z \rightarrow 0) = \frac{\partial I_r}{\partial r} \Delta r. \quad (13)$$

上述各项偏导项不是常量, 在一定条件下均属单调函数。

各种扫描成像模式比较: 由式 (7) 至式 (11) 可知, 等强度扫描模式和等高度扫描模式的图像均是样品光学参数和形貌的混合图像, 除非采用特殊办法将他们分解 (如 PSTM 采用文献 [11] [18] 图像分解方法, 可以将样品折射率图像与形貌图像分解开), 否则图像解释将很困难。式 (12)、(13) 和式 (7) 显示, 等间距扫描模式 (CZ) 是获得样

品超分辨纯光学 (n_1, r, t) 图像的较好方法^[19]。但由于偏导项不是常量 (在一定条件下是单调函数), 图像反映光学参量是非线性的。作者专利: AFM/PSTM 图像分解方法^[19], 可获得近似线性的样品折射率 (n_1) 图像。

4 产业开发情况和两个关键技术问题

超分辨光学显微镜产业的前景是无庸置疑的, 它正是 21 世纪分子生物学、信息科学、新材料科学等重点学科及其产业发展中不可缺少的高新技术之一。迄今为止, 超分辨光学显微镜的产业发展, 曾经有过二次大投入。第一次, 1991 年 5 月美国专利局对第一代 PSTM 发明专利公布后, 法国斯帕拉 (Spiral) 公司以 500 万美元巨额费用获得独家开发 PSTM 产权, 1993 年该公司在完成样机研制并开始小批量生产后, 发现专利样机存在因样品表面起伏而引入假像, 得不到生物、医学、教学等方面市场的支持, 使该公司开发 PSTM 产业计划失利而破产。第二次产业开发已初步成功, 美国一家公司于 1995 年在世界市场首先推出 A-SNOM 商品, 每台售价 20 万美元。在世界市场上曾有 2~3 年兴旺发展, 并且相继还有数厂家推出 A-SNOM 商品, 年产值估计逾千万美元。但是, 这种透射式 A-SNOM (T) 成像对比度与分辨率均不及 S-SNOM 和 PSTM。近期, 发现 A-SNOM (T) 在原理上还存在着一些缺点, 对生物医学等透射样品不甚适用, 市场扩容受到重大影响。S-SNOM 在国际市场上当前尚无商品。

作者的专利产品 (第二代 PSTM) 更适用于生物样品, 性能比 A-SNOM 约好一个数量级。预计比 A-SNOM 有更大的市场。世界市场估计, 在 21 世纪初, 将达到每年亿美元产值。PSTM 超分辨光学显微镜产业开发与发展中存在的二个关键技术问题 (消除假像; 分离样品的光学图像与形貌图像) 在作者的发明专利中已经解决^[11,19]。它为发展我国这项高新技术产业已创造了重要的技术条件。

参考文献

- [1] 吴世法. 近代成像技术与图像处理 [M]. 北京: 国防工业出版社, 1997. 494
- [2] Pohl DW, Denk W, Lanz M. Optical stethoscopy image recording with resolution $\lambda/20$ [J]. Appl. phys. Lett., 1984, 44: 651~653

- [3] Betzig E, Harrotunian A, Lewis A. Near-field scanning Optical Microscopy [J]. *Biophys J.*, 1986, 49: 269~279
- [4] Zenhausern Y, Martin Y, Wickramasinghe. Scanning interferometric apertureless microscope [J]. *Science*; 1995, 269: 1083~1085
- [5] Reddick RC, Warmack RJ, Ferrel TL, et al. Photon scanning tunneling microscopy [J]. *Rev. Sci. Instrum.*, 1990, 61 (12): 3669~3677
- [6] Vigoureux JM, Girard C, Courjon D. Operation conditions of an optical STM [J]. *Optik*, 1990, 86 (3): 87~90
- [7] Ohtsu M. Progress of high-resolution PSTM due to a nanometric fiber probe [J]. *J. Lightwave Technol.*, 1995, 13 (7): 1200~1221
- [8] 吴世法, 姚骏恩, 简国树, 等. 光子扫描隧道显微镜的进展 [J]. *光学学报*, 1998, 18 (2): 191~198
- [9] 光子扫描隧道显微镜研制成功 [N]. *人民日报*, 1993-06-10 (1)
- [10] 姚骏恩, 吴世法, 高崧, 等. 一种纳米分辨率近场光学显微镜—光子扫描隧道显微镜 [J]. *电子显微学报*, 1997, 16 (3): 222~228
- [11] 吴世法. 光子隧道扫描图像分解方法 [P]. 中国专利: ZL93 1 04111.2, 1999-07-09
- [12] Wu Shifa, Jian Guoshu, Pan Shi. How to explain the image of PSTM [J]. *SPIE*, 1998, 3467: 34~39
- [13] Wu Shifa, Jian Goushu, Pan Shi. A measurement of LSF of PSTM imaging with the image of step spread [C]. 2nd Asia-Pacific Workshop on Near-Field Optics, Technical Digest: C-3, Beijing, China, Oct. 1999
- [14] Wu Shifa, Jian Guoshu, Pan Shi. A review of super-resolution of near-field optical imaging (Invited paper) [J]. *光子学报*, 1998, 27 (Z1): 52~54
- [15] Courjon D, Bainier C. Near-field microscopy and near-field optics [J]. *Rep. Prog. Phys.*, 1994, 57: 989~1028
- [16] 朱星. 近场光学与近场光学显微镜 [J]. *北京大学学报 (自然科学版)*, 1997, 33 (3): 394~407
- [17] Inouge Y, Kawata S. Near-field scanning optical microscope with a metallic probe tip [J]. *Optics Lett.*, 1994, 19 (3): 159~161
- [18] Wu Shifa. Photon scanning tunneling microscope, now and in the future [J]. *Scanning*, 1995, (17): 18~22
- [19] 吴世法. 原子力/光子扫描隧道显微镜图像分解方法 [P]. 中国发明专利: CN 1177738A, 1998-04-01

Super-resolution Near-field Optical Imaging and its Industrial Development

Wu Shifa

(*Department of Physics, Dalian University of Technology, Liaoning Dalian 116023, China*)

[**Abstract**] The super-resolution near-field optical imaging is an advanced project in the front of high engineering science and is an industry that should be developed early in the 21th century in China. In this paper, the historical events and PSTM developments in China are introduced. The imaging expressions of all kinds of the super-resolution near-field optical imaging systems are derived and compared with each others. In general, only with the mode of constant separation of tip-sample may obtain the pure optical image of sample, such as the image of refractive index, reflectivity or transmissivity of sample. The evanescent wave emitted from sample surface and the probe tip smaller than the diffraction limit are the two basic conditions of super-resolution in optical imaging. The other key to obtain the super-resolution is the modulated tip with vertical vibration in the mixture field of evanescent wave and propagating wave in near-field. For the transparent sample PSTM is the best to separate the pure optical image and topography of sampe. The author has applied for two invented patents on PSTM, which will be beneficial to the development of PSTM industry in China.

[**Key words**] super-resolution; near-field optics; imaging; surper resolution optical microscope