

DOI: 10.19650/j.cnki.cjsi.J1905823

径向偏振光瞳滤波共焦拉曼光谱显微系统研制*

李书成,邱丽荣,王允,赵维谦

(北京理工大学光电学院 精密光电测试仪器及技术北京市重点实验室 北京 100081)

摘要:针对共焦拉曼系统空间分辨力提升的迫切需求,研制了一套径向偏振光瞳滤波共焦拉曼光谱显微系统(RPCRS)。该系统利用径向偏振光发生器(S波片)将激光器发出的线偏振光转换为径向偏振光;然后,利用光瞳滤波器对径向偏振光进行调制,从而压缩拉曼激发光斑;最后,利用共焦针孔消除焦点外位置的拉曼散射光,进一步提升共焦拉曼显微系统的空间分辨力。该系统具有较高的空间分辨力和横向灵敏度。以周期性刻线和标准台阶作为测试样品进行实验,实验结果表明,RPCRS的空间分辨力可以达到240 nm,横向灵敏度相比普通拉曼共焦系统提升了46.5%,测量标准不确定度为18.87 nm。该系统可用于高空间分辨共焦拉曼成像。

关键词: 径向偏振;光瞳滤波;共焦拉曼;空间分辨力

中图分类号: TH741 文献标识码: A 国家标准学科分类代码: 460.4030

Development of the radial-polarized pupil-filter confocal Raman microscope system

Li Shucheng, Qiu Lirong, Wang Yun, Zhao Weiqian

(Beijing Key Laboratory for Precision Optoelectronic Measurement Instrument and Technology,
School of Optics and Photonics, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China)

Abstract: To improve the spatial resolution of confocal Raman system, a radial-polarized pupil-filter confocal Raman microscope system (RPCRS) is developed. The radial polarized light generator (S-plate) is used to convert the linearly polarized light from the laser into radially polarized light. Then, a pupil filter is utilized to modulate the radially polarized light to realize the compression of the Raman excited spot. Finally, the spatial resolution of confocal Raman microscope system is improved by a pinhole to eliminate the Raman scattering light outside the focus. This system has high spatial resolution and lateral sensitivity. The periodic scribes and the standard steps are used as samples. Experimental results show that the spatial resolution of RPCRS can reach 240 nm, the lateral sensitivity is 46.5% higher than that of common confocal Raman microscope system, and the uncertainty of transverse measurement standard is 18.87 nm. This system can realize high spatial resolution imaging of confocal Raman microscope system.

Keywords: radial polarized; pupil filter; confocal Raman; spatial resolution

0 引言

共焦拉曼光谱显微系统(confocal Raman microscope system, CRS)将共焦显微技术和拉曼光谱技术进行了有机结合,凭借着其分子指纹的特性和层析探测的功能被广泛应用于物理化学、生物医学等前沿领域^[1-9]。然而,传统共焦拉曼技术采用线偏振照明方式,其空间分辨力始终无法突破衍射极限。实际应用中,常常需要更高的空间分辨

力^[10-12]。因此,如何提高共焦拉曼光谱显微系统的空间分辨力是如今拉曼光谱探测领域研究的热点和前沿问题。

为了改善共焦拉曼光谱显微系统的空间分辨力,很多学者对共焦拉曼光谱显微系统的光路进行改进,如使用光纤替代共焦针孔,实现空间分辨力的提升^[13],但是这种方法会增加光学结构的复杂性。结构光照明方法是一种比较常用的提高共焦拉曼光谱显微空间分辨力的手段,它可以通过对照明光束进行调制,得到光谱图像的高频细节信息。其中,有学者采用结构光线

收稿日期:2019-11-18 Received Date:2019-11-18

* 基金项目:国家重点研发计划课题(2018YFF01012001)、国家自然科学基金(51535002,61635003)项目资助

照明显微技术,使共焦拉曼显微系统空间分辨力逼近理论极限值^[14]。在结构光的基础上研究人员又提出扫描图形照明显微技术(scanning pattern illumination microscopy, SPIM),该技术对激发光的峰值强度进行时间调制,使系统分辨力与宽场显微镜相比提高了 2 倍^[15],但是这些方法依旧会让光路结构变得更为复杂,而且也无法实现照明光斑的压缩。

光谱增强的方法也可以通过提高拉曼光谱信号的信噪比,实现共焦拉曼显微系统的空间分辨力的提升。常见的光谱增强技术是表面增强拉曼光谱(surface enhanced Raman spectroscopy, SERS)技术、针尖增强拉曼光谱(tip enhanced Raman spectroscopy, TRES)技术和相干反斯托克斯拉曼光谱(coherent anti-Stokes Raman spectroscopy, CARS)技术。有学者将结构光照明技术与 SERS 技术相结合,使空间分辨力达到 120 nm^[16],但是这种方法既没有实现照明光斑的压缩,同时存在基底制备困难、可移植性差的问题。TERS 技术已经可以实现 2.3 nm 的空间分辨力^[17],在传统 TERS 技术基础之上引入非线性受激拉曼散射效应,空间分辨力还可以得到进一步提升^[18]。但是,TERS 技术不易保证针尖的稳定性与可控性,并且与共焦拉曼的结合能力较差,无法满足生物、材料科学等领域对样品内部信息光谱探测的需求。在 CARS 技术方面,有学者将托拉多型光瞳相位滤波器应用于 CARS 系统,将 CARS 系统的空间分辨力提高到 130 nm^[19]。然而,受 CARS 技术原理限制,其谱峰位置与形状可能会发生变化,导致解谱困难,难以实现定量测量。

基于以上现状,本文基于所提出的径向偏振光瞳滤波共焦显微原理^[20-21],研制了径向偏振光瞳滤波共焦拉曼光谱显微系统(radial-polarized pupil-filter confocal Raman microscope system, RPCRS)。该系统通过共焦显微系统、三维扫描系统、白光观测系统和光谱探测系统等功能模块实现了高空间分辨的共焦拉曼光谱成像。

1 成像原理

RPCRS 的成像原理如图 1 所示,绿色光束为激发光,粉红色光束为拉曼散射光。激光器发出的线偏振光扩束后经过径向偏振光发生器(radial polarization converter, RPC)后变为径向偏振光,后被光瞳滤波器(pupil filter, PF)调制。然后,经过 Notch Filter 反射进入物镜,并聚焦于被测样品表面,激发样品表面的拉曼散射光。拉曼散射光经过物镜后透过 Notch Filter,被会聚镜聚焦于共焦针孔,然后被光谱仪探测。二维扫描台带动样品进行横向扫描,从而实现对被测样品表面拉曼光谱的探测,并实现样品的拉曼光谱成像。

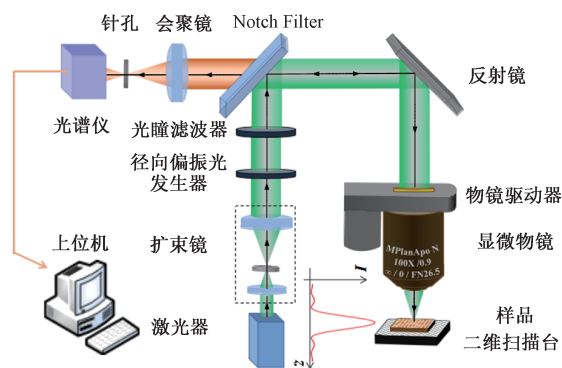


图 1 RPCRS 的成像原理

Fig.1 Schematic of RPCRS principle

根据非相干共焦三维成像原理,当被测样品为点物,且共焦针孔为理想针孔时,RPCRS 的三维响应函数为^[21]:

$$I_{\text{Raman}}(u, v) = \left(\left| \int_0^\alpha P(\theta) \cdot \cos^{\frac{1}{2}}\theta \cdot \sin\theta \cdot \cos\theta \cdot J_1\left(\frac{v\sin\theta}{\sin\alpha}\right) \cdot \exp\left(\frac{iucos\theta}{4\sin^2(\alpha/2)}\right) d\theta \right|^2 + \left| \int_0^\alpha P(\theta) \cdot \cos^{\frac{1}{2}}\theta \cdot \sin^2\theta \cdot J_0\left(\frac{v\sin\theta}{\sin\alpha}\right) \cdot \exp\left(\frac{iucos\theta}{4\sin^2(\alpha/2)}\right) d\theta \right|^2 \right) \times \left| \int_{\lambda_{2\min}}^{\lambda_{2\max}} \exp\left(-if_0 \frac{u}{\beta}\right) \int_0^\alpha \cos^{\frac{1}{2}}\theta \cdot \sin\theta \cdot J_0\left(\frac{v\sin\theta}{\beta\sin\alpha}\right) \cdot \exp\left(\frac{iucos\theta}{4\beta\sin^2(\alpha/2)}\right) d\theta d\lambda \right|^2 \otimes o(u, v) \quad (1)$$

式中: $o(x, y)$ 为拉曼光谱辐射强度; $P(\theta)$ 为光瞳滤波器的调制函数; α 是物镜的孔径角; β 为散射波长与入射波长比值,即 $\beta = \lambda_2/\lambda_1$; λ_1 为入射光波长; λ_2 为拉曼散射光波长; $\lambda_{2\min}$ 为拉曼散射光的最小波长; $\lambda_{2\max}$ 为拉曼散射光的最大波长; u 为归一化轴向坐标; v 为归一化横向坐标,表示为:

$$\begin{cases} v = \frac{2\pi}{\lambda} r \sin\alpha \\ u = \frac{8\pi}{\lambda} z \sin^2(\alpha/2) \end{cases} \quad (2)$$

2 成像系统参数优化

2.1 光瞳滤波器优化

本系统选择 N 区圆对称光瞳滤波器,其结构如图 2 所示。

对于光瞳滤波器,光斑尺寸 G 、斯托克斯比 S 和旁瓣强度 M 是用来表示其分辨能力的主要参数。其中,光斑尺寸 G 为经过光瞳滤波器后衍射光斑第 1 个最小值位置与原系统衍射光斑第 1 个最小值位置的比值, G 越小,光斑压缩效果越明显。斯托克斯比 S 为经过光瞳滤波器后

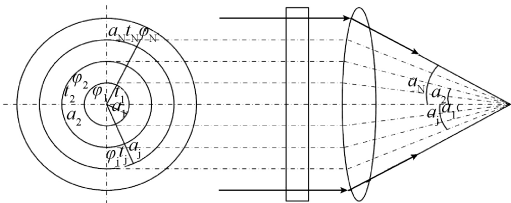


图 2 N 区圆对称光瞳滤波器

Fig.2 N-area circular symmetry diaphragm filter

衍射光斑主瓣最大强度与原系统衍射光斑主瓣最大强度的比值, S 越大, 光斑能量损失越少。旁瓣 M 为经过光瞳滤波器后旁瓣最大值与主瓣最大值之比, M 越小, 光板能量越集中^[22]。对光瞳滤波器进行优化的时候, 需要在降低 G 的同时, 尽可能的提高 S , 并且降低 M 。本文基于遗传算法, 对光瞳滤波器结构参数进行优化。

当入射波长为 532 nm, 物镜 $NA = 0.9$ 时, 综合考虑光瞳滤波器的性能和光能利用率, 基于遗传算法进行优化, 可以得到归一化结构如表 1 所示的五区光瞳滤波器。

表 1 五区光瞳滤波器归一化参数

Table 1 Normalized parameters of five zone pupil filters

参数	归一化值	参数	归一化值
a_1	0.091	φ_1	0
a_2	0.391	φ_2	π
a_3	0.592	φ_3	0
a_4	0.768	φ_4	π
		φ_5	0

为了验证 RPCRS 对空间分辨力的改善, 将其横向相应曲线与普通线偏振共焦拉曼光谱显微成像系统 (linearly polarized confocal Raman spectroscopy microscope system, LCRS) 横向响应曲线^[23-24]进行对比。令 $u = 0$, RPCRS 和 LCRS 的横向响应曲线对比如图 3 所示。

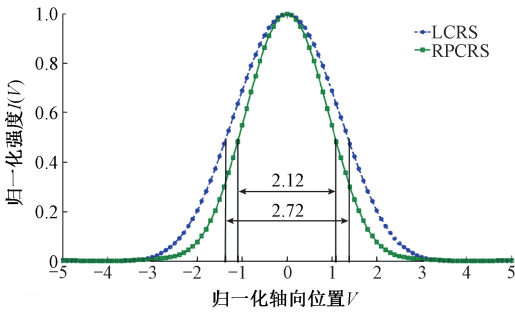


图 3 RPCRS 和 LCRS 的横向响应曲线对比

Fig.3 Lateral normalized intensity response curves of RPCRS and LCRS

通常情况下, 系统横向相应曲线的半高宽可以用于表征系统的空间分辨力。从图 3 可以看出, RPCRS 横向

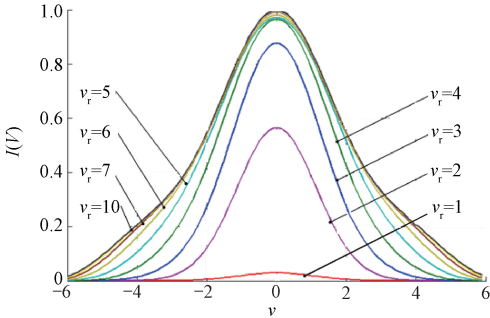
响应的归一化半高宽为 2.12, 而 LCRS 的为 2.72。通过计算可以得到, 当波长 $\lambda = 532$ nm, 物镜的 $NA = 0.9$ 时, RPCRS 的理论空间分辨力可达 199 nm, 而 LCR 空间分辨力为 259 nm, RPCRS 比 LCRS 横向提高了 23.2%。可以看出 RPCRS 提高了共焦拉曼系统的空间分辨力。

2.2 最佳针孔尺寸优化

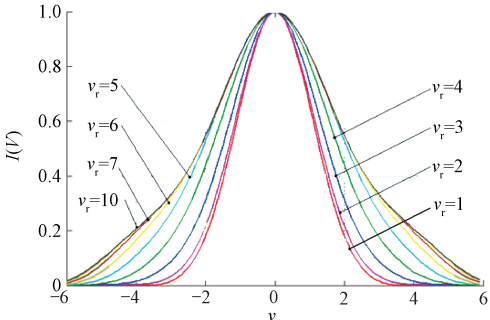
假设被测样品为点物, 针孔尺寸为 v_r , 根据式 (1) 可以得到此时的 RPCRS 的三维响应函数为:

$$I(v, u) = \int_0^v \left(\left| \sum_{i=1}^5 \int_{\alpha_{i-1}}^{\alpha_i} e^{i\varphi_i} \cos^{1/2} \theta \sin \theta \cos \theta \cdot J_1 \left(\frac{v \sin \theta}{\sin \alpha} \right) \exp \left(\frac{-iu \sin^2(\theta/2)}{2 \sin^2(\alpha/2)} \right) d\theta \right|^2 + \left| \sum_{i=1}^5 \int_{\alpha_{i-1}}^{\alpha_i} e^{i\varphi_i} \cos^{1/2} \theta \sin^2 \theta \cdot J_0 \left(\frac{v \sin \theta}{\sin \alpha} \right) \exp \left(\frac{-iu \sin^2(\theta/2)}{2 \sin^2(\alpha/2)} \right) d\theta \right|^2 \cdot \left| \int_{\lambda_{\min}}^{\lambda_{\max}} \exp \left(-\frac{iu}{4\eta \sin^2(\alpha/2)} \right) \int_0^\alpha P(\theta) \cdot J_0 \left(\frac{v \sin \theta}{1.03 \sin \alpha} \right) \exp \left(\frac{iu \sin^2(\theta/2)}{2.06 \sin^2(\alpha/2)} \right) \sin \theta d\theta d\lambda \right|^2 D(v_r) dv_r \right) \quad (3)$$

当 v_r 取不同数值时, 可以得到如图 4 所示的共焦拉曼光谱成像系统的横向相应曲线。



(a) 不同针孔下未归一化横向相应曲线
(a) Unnormalized confocal Raman lateral response curves at different pinhole sizes



(b) 不同针孔下归一化横向相应曲线
(b) Normalized confocal Raman lateral response curves at different pinhole sizes

图 4 不同针孔尺寸下的共焦拉曼横向响应曲线
Fig.4 Confocal Raman lateral response curves at different pinhole sizes

由图4可知,共焦拉曼光谱成像系统的横向相应峰值强度和半高宽也均随着针孔归一化半径 v_r 的增加而增加,且增加趋势也不相同。

在此基础上,可以得到如图5所示的归一化针孔尺寸与共焦显微系统的横向响应曲线峰值强度和半高宽的关系曲线。

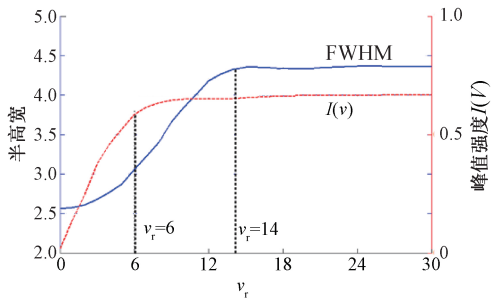


图5 针孔归一化半径与共焦拉曼轴向响应曲线峰值强度和半高宽关系

Fig.5 The relation between pinhole normalized radius and confocal Raman axial response curve peak intensity or full width-height

由图5可知,当 $v_r < 6$ 时,横向响应的半高宽处于一个较低的数值,峰值强度处于快速增加阶段;当 $6 \leq v_r \leq 14$ 时,峰值强度开始趋于稳定,且半高宽开始增加;当 $v_r > 14$ 时,半高宽达到稳定的最大值。因此,为了取得尽量小的显微横向响应半高宽和尽量大的峰值强度,共焦拉曼系统的针孔归一化半径应为: $6 \leq v_r \leq 14$ 。

3 光谱显微系统构建

根据图1所示的原理,设计并研制了如图6所示的径向偏振光瞳滤波共焦拉曼光谱显微系统。该系统由共焦显微模块、三维扫描模块、白光观测模块和光谱探测模块组成。

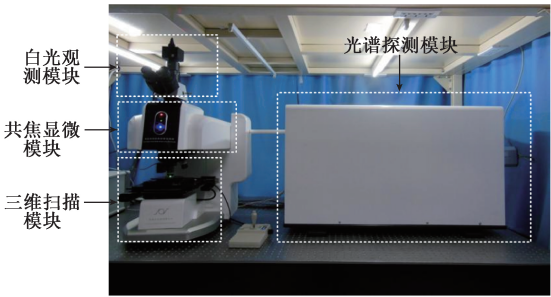


图6 RPCRS 实物

Fig.6 Setup of RPCRS

共焦显微模块由激光器、扩束镜、径向偏振光发生器、光瞳滤波器、显微物镜及其他光学元件组成,其中,激光器选用波长为532 nm 固体激光器,并以S波片作为径向偏振光发生器,显微物镜的数值孔径为0.9,放大倍率

100倍。根据第2节的参数优化,光瞳滤波器的物理尺寸为: $d_1 = 0.373 \text{ mm}$, $d_2 = 1.603 \text{ mm}$, $d_3 = 2.427 \text{ mm}$, $d_4 = 3.149 \text{ mm}$, $d = 10 \text{ mm}$, d_1 、 d_2 、 d_3 、 d_4 、 d 分别为第1~4区的直径和总直径;共焦针孔的实际尺寸为50 μm 。通过共焦显微模块可以实现照明光斑的压缩及共焦光谱的收集。

三维扫描模块由二维扫描台、物镜驱动器、轴向升降台和二维载物台组成,其中,二维扫描台选用分辨力为0.4 nm,线性度为0.03%,重复性为5 nm,扫描范围为200 $\mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$,偏航角度为 $\pm 10 \mu\text{rad}$ 的PI公司P-542.2CD扫描台,物镜驱动器选用分辨力为0.75 nm,线性度为0.03%,重复性为5 nm,行程为240 μm 的PI公司P-542.2CD。通过二维载物台和轴向升降台可以实现样品位置的粗定位,之后通过物镜驱动器对样品进行高精度定焦;二维载物台用于实现样品表面光谱的二维采集。

白光观测模块由目视系统、科勒照明系统及其他光学元件组成。通过白光观测模块,可以观测成像位置,并与光谱探测结果相对应。

光谱探测模块由单色仪和CCD组成,其中,单色仪选用焦距为800 mm的Czerny-Turner结构单色仪,CCD选用像素尺寸为15 $\mu\text{m} \times 15 \mu\text{m}$ 、像素点数2 000 $\times$ 256的Andor公司的iDus 416。通过光谱探测模块可以实现各点拉曼光谱的采集。

4 成像性能测试及不确定度分析

4.1 空间分辨力测试

本文使用如图7所示的电子束刻线样品进行测试。样品基底为Si,样品图形材料为PMMA。样品形貌由奥林巴斯显微镜观察获得,如图7(a)所示,图7(b)为80~1 000 nm不同周期线宽图形,图7(c)为线宽样品的设计图。

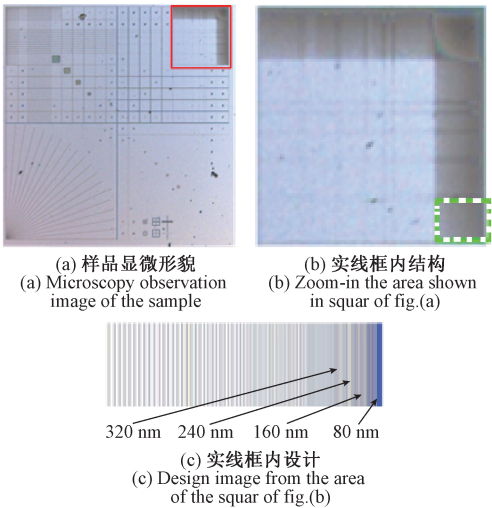


图7 被测样品

Fig.7 Tested sample

本文以单晶硅在 520.7 cm^{-1} 位置处的拉曼一阶峰位作为成像的目标峰为,使用 240 nm 周期间隔的刻线进行测试,横向扫描间隔为 15 nm ,扫描像素尺寸为 64×8 ,CCD 曝光时间 0.5 s 。分别使用 RPCRS 与 LCRS 进行测试,其测试结果如图 8 所示。

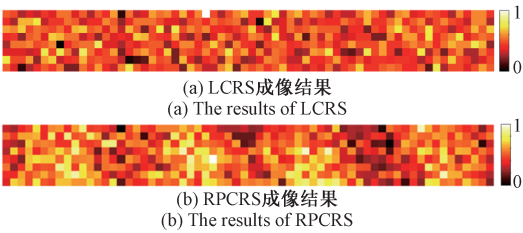


图 8 空间分辨力测试结果
Fig.8 Test results of spatial resolution

图 8(a)所示为线偏振光照明下的普通共焦拉曼光谱图像,图 8(b)所示为径向偏振光瞳滤波照明下的共焦拉曼光谱图像。通过图 8 可以发现,LCRS 无法分辨 240 nm 的周期刻线,而 RPCRS 可以分辨 240 nm 的周期刻线,能看到明显的高低起伏形状,可见 RPCRS 的空间分辨力相比于 LCRS 有了明显改善,优于 240 nm 。

4.2 横向灵敏率测试

以 3100 型原子力显微镜 (atomic force microscope, AFM) 配套的标准台阶 TGXYZ02 型标准台阶作为被测样品进行测试。横向扫描间隔为 200 nm ,像素点为 64×64 ,CCD 曝光时间为 0.5 s 。分别使用 LCRS 和 RPCRS 进行测试,测试结果如图 9 所示。

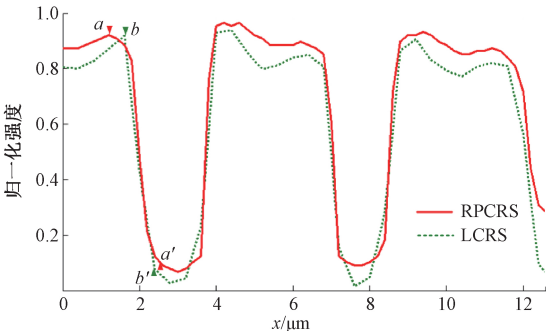
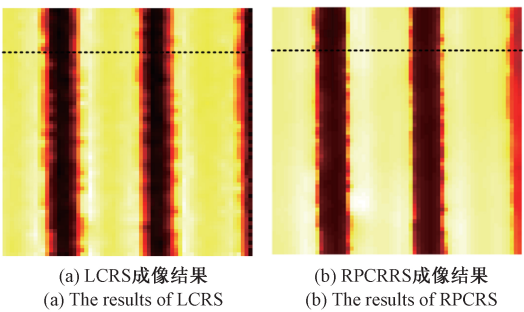
图 9(a) 和 (b) 所示分别为 LCRS 和 RPCRS 在 520.7 cm^{-1} 峰位强度所成的光谱图,图 9(c) 所示为图 9(a) 和 (b) 中黑线标注位置的轮廓曲线,其中, a 和 a' 连线为 RPCRS 所测得的台阶边沿,其横向宽度为 750 nm ; b 和 b' 连线为 LCRS 所测得的台阶边沿,其横向宽度为 $1\,039\text{ nm}$ 。使用原子力显微镜测试得到的台阶边沿宽度 418 nm 。因此,相比于 LCRS, RPCRS 具有更好的台阶边沿响应,与原子力显微镜测试结果更为接近。

若以台阶边沿宽度的测量结果与原子力显微镜测量结果的差值表征系统的横向灵敏度,则 RPCRS 相比于 LCRS,其横向灵敏度提升了 46.5% 。

4.3 横向测量不确定度

依旧以标准台阶 TGXYZ02 型标准台阶为被测样品,利用周期测试结果来表征 RPCRS 的横向测量不确定度。该样品的周期为 $5\text{ }\mu\text{m}$,一次扫描后,对样品的周期进行 10 次测试,测试结果如表 2 所示。

周期测试的 A 类标准不确定度由测量的重复性引起,其数值可以通过贝塞尔公式进行计算,即:



(c) LCRS和RPCRS的实验结果对比
(c) The results comparison of LCRS and RPCRS
图 9 横向灵敏度测试结果
Fig.9 Test results of lateral sensitivity

$$u_A = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}{n - 1}} \tag{4}$$

表 2 周期测试结果
Table 2 Test results of periodic measurement

次数	周期/ μm
1	4.931
2	5.069
3	4.931
4	4.949
5	4.967
6	4.983
7	4.949
8	4.994
9	4.914
10	5.086
平均	4.977

根据表 2 的测试结果,可以得到 $u_A = 18.42\text{ nm}$ 。

周期测试的 B 类标准不确定度由扫描台的扫描运动误差引起,假设扫描台的扫描误差服从均匀分布,则在扫描台的扫描范围 $lx-y$ 内, B 类标准不确定度为:

$$u_B = (r + \tan\theta \cdot l_{x-y}) / \sqrt{3} \tag{5}$$

其中, r 为扫描台的重复性; θ 为扫描台的偏航角度。

本系统采用的是 P-542.2CD 二维扫描台, 其重复性 $r=5\text{ nm}$, 偏航角度 $\theta=\pm 10\text{ }\mu\text{rad}$, 扫描范围为 $200\text{ }\mu\text{m}$, 因此可以得到 $u_B=4.1\text{ nm}$ 。

RPCRS 的横向测量合成标准不确定度 u_D 由 A 类标准不确定度 u_A 和 B 类标准不确定度 u_B 共同决定, 即:

$$u_D = \sqrt{u_A^2 + u_B^2} \quad (6)$$

因此, 以 TGXYZ02 样品的周期测试结果表征横向测量标准不确定度时, 可以得到 $u_D=18.87\text{ nm}$ 。

5 结 论

本文基于径向偏振光瞳滤波技术和共焦拉曼成像技术, 研制了一套径向偏振光瞳滤波共焦拉曼光谱显微系统。该系统利用径向偏振光发生器将激光器发出的线偏振光转换为径向偏振光, 并通过光瞳滤波器对径向偏振光进行调制, 实现拉曼激发光斑的压缩; 同时, 利用共焦针孔消除焦点外位置的拉曼散射光, 提升共焦拉曼光谱显微系统的空间分辨力。以周期性刻线和标准台阶作为测试样品, 实验结果表明, RPCRS 的空间分辨力可以达到 240 nm , 横向测量标准不确定度为 18.87 nm , 横向灵敏度相比普通拉曼共焦系统提升了 46.5% 。

然而, 相比于 TERS 技术等提高空间分辨力的手段, 径向偏振光瞳滤波共焦拉曼光谱显微系统虽然存在着很多优势, 但是在提升空间分辨力和横向灵敏度方面还存在着一定的不足。对此, 可以进一步结合图像复原技术, 对扫描得到的高分辨共焦拉曼图像进行进一步复原, 从而获得超分辨的共焦拉曼光谱显微成像效果。

参考文献

- [1] ZRIMSEK A B, CHIANG N, MATTEI M, et al. Single-molecule chemistry with surface-and tip-enhanced raman spectroscopy[J]. Chemical Reviews, 2017, 117(11): 7583-7613.
- [2] STRAUSS V, MARSH K, KOWAL M D, et al. A simple route to porous graphene from carbon nanodots for supercapacitor applications[J]. Advanced Materials, 2018, 30(8): 1704449.
- [3] WU J, LIN M, CONG X, et al. Raman spectroscopy of graphene-based materials and its applications in related devices[J]. Chemical Society Reviews, 2018, 47(5): 1822-1873.
- [4] DONG J, ZHANG X, BRIEGA-MARTOS V, et al. In situ Raman spectroscopic evidence for oxygen reduction reaction intermediates at platinum single-crystal surfaces[J]. Nature Energy, 2019, 4(1): 60-67.
- [5] ORRINGER D A, PANDIAN B, NIKNAFS Y S, et al.

Rapid intraoperative histology of unprocessed surgical specimens via fibre-laser-based stimulated Raman scattering microscopy [J]. Nature Biomedical Engineering, 2017, 1(2): 0027.

- [6] KOKER T, TANG N, TIAN C, et al. Cellular imaging by targeted assembly of hot-spot SERS and photoacoustic nanoprobe using split-fluorescent protein scaffolds[J]. Nature Communications, 2018, 9(1): 607.
- [7] MATTANA S, MATTARELLI M, URBANELLI L, et al. Non-contact mechanical and chemical analysis of single living cells by microspectroscopic techniques[J]. Light-Science & Applications, 2018: e17139; DOI: 10.1038/lsa.2017.139.
- [8] 万福, 杨曼琳, 贺鹏, 等. 变压器油中气体拉曼光谱检测及信号处理方法[J]. 仪器仪表学报, 2016, 37(11): 2482-2488.
WAN F, YANG M L, HE P, et al. Raman spectroscopy detection and signal processing method for the gases in transformer oil [J]. Chinese Journal of Scientific Instrument, 2016, 37(11): 2482-2488.
- [9] 王拓, 戴连奎. 重整汽油在线拉曼分析系统开发与工业应用[J]. 仪器仪表学报, 2015, 36(6): 1201-1206.
WANG T, DAI L K. Development and industrial application of online Raman analysis system for catalytic reforming gasoline [J]. Chinese Journal of Scientific Instrument, 2015, 36(6): 1201-1206.
- [10] ANDO J, PALONPON A F, SODEOKA M, et al. High-speed Raman imaging of cellular processes[J]. Current opinion in chemical biology, 2016, 33: 16-24.
- [11] LIU P, CHEN X, YE H, et al. Resolving molecular structures with high-resolution tip-enhanced Raman scattering images[J]. ACS Nano, 2019, 13(8): 9342-9351.
- [12] WANG Y F, CAO ZH Y, YANG Q, et al. Optical methods for studying local electrochemical reactions with spatial resolution: A critical review [J]. Analytica Chimica Acta, 2019, 1074: 1-15.
- [13] ROIDER C, RITSCH-MARTE M, JESACHER A. High-resolution confocal Raman microscopy using pixel reassignment [J]. Optics Letters, 2016, 41(16): 3825-3828.
- [14] WATANABE K, PALONPON A F, SMITH N I, et al. Structured line illumination Raman microscopy [J]. Nature Communications, 2015, 6: 10095.
- [15] LU J, MIN W, CONCHELLO J A, et al. Super-resolution laser scanning microscopy through spatiotemporal modulation [J]. Nano Letters, 2009, 9(11): 3883-3889.

- [16] CHEN H, WANG S, ZHANG Y, et al. Structured illumination for wide-field Raman imaging of cell membranes [J]. Optics Communications, 2017, 402: 221-225.
- [17] MILEKHIN A, RAHAMAN M, RODYAKINA E E, et al. Giant gap-plasmon tip-enhanced Raman scattering of MoS₂ monolayers on au nanocluster arrays [J]. Nanoscale, 2017;10. 1039.C7NR06640F.
- [18] ZHANG R, ZHANG Y, DONG Z C, et al. Chemical mapping of a single molecule by plasmon-enhanced Raman scattering[J]. Nature, 2013, 498:82-86.
- [19] KIM H, BRYANT G W, STRANICK S J. Superresolution four-wave mixing microscopy[J]. Optics Express, 2012, 20(6):6042-6051.
- [20] TANG F, WANG Y, QIU L, et al. Super-resolution radially polarized-light pupil-filtering confocal sensing technology [J]. Applied Optics, 2014, 53 (31): 7407-7414.
- [21] LI SH CH, QIU L R, WANG Y, et al. Super-resolution radially polarized pupil-filtering confocal Raman spectroscopy technology [J]. Measurement Science and Technology, 2019,31(3):1-12.
- [22] 王凌. 智能化优化算法及其应用[M].北京:清华大学出版社,2004.
WANG L. Intelligent optimization algorithm and application [M]. Beijing: Tsinghua University Press, 2004.
- [23] HELL S, STELZER E H K. Properties of a 4Pi confocal fluorescence microscope [J]. Journal of the Optical

Society of America a Optics & Image Science, 1992, 9(12):2159-2166.

- [24] RICHARDS B, WOLF E. Electromagnetic diffraction in optical systems. II. Structure of the image field in an aplanatic system[J]. Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences, 1959, 253(1274):358-379.

作者简介



李书成, 2014 年于北京理工大学获得学士学位, 现为北京理工大学博士研究生, 主要研究方向为光学测量仪器设计与研发。

E-mail: scl_i_bit@163.com

Li Shucheng received his B.Sc. degree from Beijing Institute of Technology in 2014.

He is currently a Ph. D. candidate at Beijing Institute of Technology. His main research interests include design and development of optical measuring.



赵维谦(通信作者), 分别在 1993 年和 2003 年于哈尔滨工业大学获得硕士学位和博士学位, 现为北京理工大学教授, 主要研究方向为差动共焦理论和精密光学检测。

E-mail: zwq669@126.com

Zhao Weiqian (Corresponding author) received his M. Sc. degree and Ph. D. degree both from Harbin Institute of Technology in 1993 and 2003, respectively. He is currently a professor at Beijing Institute of Technology. His main research interests include differential confocal theory and precise optical testing technique.