

紧聚焦条件下相干反斯托克斯拉曼散射信号场的矢量分析

李亚晖 梁闰富 邱俊鹏 林子扬 屈军乐 刘立新 尹君 牛憨笨

Vector analysis of the coherent anti-Stokes Raman scattering signals generated under the tightly focused condition

Li Ya-Hui Liang Run-Fu Qiu Jun-Peng Lin Zi-Yang Qu Jun-Le Liu Li-Xin Yin Jun Niu Han-Ben

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 63, 233301 (2014) DOI: 10.7498/aps.63.233301

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.233301>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphys.ac.cn/CN/volumn/home.shtml>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[相干瑞利散射海水水下温度测量技术的理论研究](#)

任秀云, 田兆硕, 杨敏, 孙兰君, 付石友

2014, 63(8): 083302. 全文: [PDF \(285KB\)](#)

[多色宽带相干反斯托克斯拉曼散射过程的理论与实验研究](#)

尹君, 余锋, 侯国辉, 梁闰富, 田宇亮, 林子扬, 牛憨笨

2014, 63(7): 073301. 全文: [PDF \(790KB\)](#)

[基于格林函数法研究金属线栅在太赫兹波段的散射特性](#)

张会云, 刘蒙, 尹贻恒, 吴志心, 申端龙, 张玉萍

2013, 62(19): 194207. 全文: [PDF \(343KB\)](#)

[\(R\)-1,3 丁二醇的手性不对称性: 微分键极化率的研究](#)

沈红霞, 吴国祯, 王培杰

2013, 62(15): 153301. 全文: [PDF \(717KB\)](#)

紧聚焦条件下相干反斯托克斯拉曼散射信号场的 矢量分析*

李亚晖¹⁾²⁾³⁾ 梁闰富¹⁾²⁾ 邱俊鹏¹⁾²⁾ 林子扬¹⁾²⁾ 屈军乐¹⁾²⁾
刘立新^{3)†} 尹君^{1)2)‡} 牛憨笨¹⁾²⁾

1) (深圳大学光电工程学院, 深圳 518060)

2) (光电子器件与系统(教育部/广东省)重点实验室, 深圳 518060)

3) (西安电子科技大学物理与光电工程学院, 西安 710071)

(2014年6月20日收到; 2014年7月26日收到修改稿)

在相干反斯托克斯拉曼散射 (coherent anti-Stokes Raman scattering, CARS) 显微镜中, 共线传输的紧聚焦高斯光束激发具有不同形状和尺寸的待测样品所产生的 CARS 信号场的空间分布决定了整体系统的结构特点. 建立了紧聚焦条件下球形样品产生 CARS 信号场的理论模型. 利用矢量波动方程分析了紧聚焦条件下线偏振的高斯光束的光场强度和相位分布. 利用格林函数求解该模型中 CARS 信号场的矢量波动方程, 模拟计算得到了不同直径球形样品的远场 CARS 信号场的空间分布. 理论分析和模拟计算结果表明, 对于小体积的球形样品, 前向和背向传输的 CARS 信号场强度接近, 因此采用大数值孔径物镜背向探测方式即可获得高对比度图像. 对于大体积球形样品, CARS 信号场的强度大幅增强, 且发射方向主要集中在前向的一定立体角内. 因此, 采用小数值孔径物镜即可有效收集前向传输的 CARS 信号.

关键词: 相干反斯托克斯拉曼散射, 矢量波动方程, 格林函数, 紧聚焦条件

PACS: 33.20.Fb, 42.65.Dr, 78.47.jh, 82.53.Kp

DOI: 10.7498/aps.63.233301

1 引言

作为对物质组成成分和结构进行非侵入成像的有效手段, 红外吸收^[1]和自发拉曼散射^[2,3]显微技术得到了广泛的应用. 但空间分辨率低、探测灵敏度差、所需激发光功率高和数据采集时间长等问题限制了其在活体组织和活细胞研究中的应用. 1982年, 美国海军实验室的 Duncan等^[4]通过将两台染料激光器输出的连续激光聚焦在待测样品中, 激发产生相干反斯托克斯拉曼散射 (coherent anti-Stokes Raman scattering, CARS) 光谱信号实

现了 CARS 显微技术. 这种技术避免了荧光显微技术中外源性标记对生物分子自身性质的影响, 以及荧光标记的光致漂白和光毒性等问题, 具有高的时间和空间分辨率、高的探测灵敏度以及固有的三维层析成像能力, 在生物学、医药学、生命科学、物理学、化学和材料科学等诸多领域中得到了广泛的应用^[5,6].

CARS 过程是一个四波混频的三阶非线性光学过程, 其能级如图 1 所示^[7,8]. 图 1 中实线 g 和 e 表示无入射光场时分子中实际存在的基态和激发态. 分子系统实际存在振动频率为 Ω_v 的振动激发态 $|\psi_i\rangle$ 和振动基态 $|\psi_0\rangle$, 其本征能量分别为 ψ_i 和

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2012CB825802)、国家重大科学仪器设备开发专项 (批准号: 2012YQ150092)、国家自然科学基金重点项目 (批准号: 61235012)、国家自然科学基金青年科学基金 (批准号: 11204226) 和陕西省自然科学基金基础研究计划 (批准号: 2014JM8324) 资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: lxliu@xidian.edu.cn

‡ 通讯作者. E-mail: yinjun666@163.com

ψ_0 . 在 CARS 过程中, 三束中心频率分别为 ω_P , ω_S 和 $\omega_{P'}$ 的抽运光 E_P 、斯托克斯光 E_S 和探测光 $E_{P'}$ 入射到待测样品中. 在样品中的焦点处入射光场满足相位匹配条件的前提下, 当 E_P 和 E_S 之间的频差与具有拉曼活性的分子的振动频率 Ω_ν 一致时, $\Omega_\nu = \omega_P - \omega_S$, 物质分子的固有振动得到共振增强. 此时利用 $E_{P'}$ 探测这一共振增强的分子振动从而产生频率为 $\omega_{aS} = \omega_P - \omega_S + \omega_{P'}$ 的相干反斯托克斯拉曼散射信号 (E_{aS}). 利用探测得到的 CARS 光谱信号, 我们能够在无须引入外源标记的条件下快速分析待测样品的分子组成和结构, 获取不同分子在样品中的空间分布信息, 以及分子之间相互作用的功能信息.

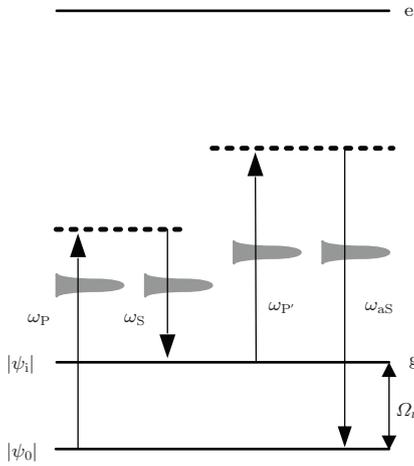


图 1 CARS 过程分子系统能级示意图

通常在 CARS 显微技术中, 紧聚焦的激发光场激发具有不同形状和几何尺寸的待测样品, 所产生的 CARS 信号场的空间分布不同, 这一特点决定了 CARS 显微镜系统的结构特点. 为分析紧聚焦光场与物质相互作用所产生的 CARS 信号的空间分布, 本文首先基于常用的共线耦合、紧聚焦 CARS 显微镜系统建立了紧聚焦条件下的入射激发光与物质相互作用产生 CARS 信号的模型. 接着, 利用矢量波动方程模拟分析了线偏振的高斯光束经大数值孔径 (numerical aperture, NA) 物镜聚焦后的光场强度和相位的分布. 在此基础上, 利用格林函数求解矢量波动方程, 数值模拟分析了共线耦合的紧聚焦激发光与不同直径球形样品相互作用产生的 CARS 信号场的空间分布特性. 通过理论分析和数值模拟, 可为更好地理解在紧聚焦条件下 CARS 信号场的产生及其强度的空间分布特性, 以及 CARS

显微镜的结构设计和进一步的系统优化提供理论依据.

2 理论分析

为分析 CARS 信号场的空间分布, 我们首先建立了共线耦合紧聚焦条件下入射激发光激发球形样品产生 CARS 信号的理论模型, 如图 2 所示. 在传统的 CARS 显微镜系统中, 入射的激发光共线耦合进显微镜系统, 经二向色镜 D 反射后通过物镜 OL 紧聚焦激发样品台上的样品 S 产生 CARS 信号, 沿着或逆着激发光传输方向传输的 CARS 信号经滤光片 F 后分别由探测器接收, 从而分别实现前向探测 CARS (forward-detection CARS, F-CARS) 和背向探测 CARS (epi-detection CARS, E-CARS) 技术, 如图 2 (a) 所示. 假设时间和空间重叠的抽运光场和斯托克斯光场都是沿 x 轴方向偏振、沿 $+z$ 轴方向传输的基本高斯光束, 那么它们作为共线耦合进显微镜的激发光 E^{inc} 在不同角度上的电场强度可以表示为 [9]

$$E_j^{inc}(\theta) = E_{0j} \exp(-f^2 \sin^2 \theta / \omega_0^2), \quad (1)$$

其中, 下标 $j = P, S$, 分别表示入射的抽运光场和斯托克斯光场; θ 为光线经聚焦后与 z 轴所成的夹角; E_{0j} 为中心光线的电场强度; f 为物镜的焦距; ω_0 为高斯光束的束腰半径.

首先, 我们使用柱坐标系计算样品中的聚焦光场. 对于如图 2 (b) 所示的样品中任意一点 $\mathbf{r}(\rho, \varphi, z)$ 处, 紧聚焦光场可表示为 [10]

$$E_j(\rho, \varphi, z) = -\frac{ik_j f}{2} e^{-ik_f z} \begin{bmatrix} I_0 + I_2 \cos(2\varphi) \\ I_2 \sin(2\varphi) \\ -2iI_1 \cos \varphi \end{bmatrix}, \quad (2)$$

其中, $k_j = 2n\pi/\lambda_j$, 为波矢的量值, n 为透镜与样品之间的折射率, λ_j 为激发光波长; α 为物镜半光圈与像边缘所成的角; 矩阵元素分别表示激发光场在 x, y 和 z 方向的分量, 其中 I_0, I_1 和 I_2 可分别表示为

$$I_0 = \int_0^\alpha E_j^{inc} \cos^{1/2} \theta \sin \theta (1 + \cos \theta) J_0(k\rho \sin \theta) \times e^{ikz \cos \theta} d\theta, \quad (3a)$$

$$I_1 = \int_0^\alpha E_j^{inc} \cos^{1/2} \theta \sin^2 \theta J_1(k\rho \sin \theta)$$

$$\times e^{ikz \cos \theta} d\theta, \quad (3b)$$

$$I_2 = \int_0^\alpha E_j^{\text{inc}} \cos^{1/2} \theta \sin \theta (1 - \cos \theta) J_2(k\rho \sin \theta) \times e^{ikz \cos \theta} d\theta. \quad (3c)$$

假定紧聚焦系统中物镜的NA为1.4, 则入射激发光场的强度在 y, z 方向上的分量 E_y 和 E_z 远小于 x 方向上的分量 E_x , 且在聚焦光场中心 $E_y = E_z = 0$ ^[11]. 因此, 紧聚焦系统中入射激发光在 y, z 方向上的分量对CARS信号的产生贡献很小, 所以在分析激发光与样品相互作用产生的CARS信号时, 我们只考虑 x 方向的电场分量, 即 $\mathbf{E} \approx \mathbf{E}_x$.

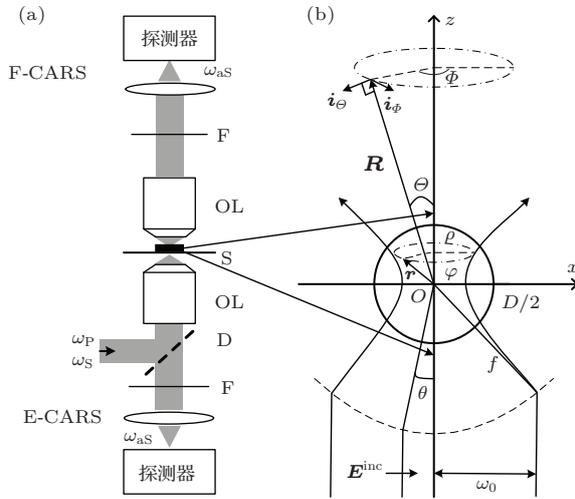


图2 (a) 前向和后向探测的共线CARS显微镜结构示意图; (b) 紧聚焦入射高斯光束激发球形样品产生CARS信号的模型

在CARS显微技术中, 激发光激发具有拉曼活性的不同形状和尺寸的待测样品所产生的CARS信号场及其传输特性可以由求解矢量波动方程来确定. 这里我们将求解紧聚焦在样品中 $\mathbf{r}(r, \rho, \varphi)$ 位置处的光场激发直径为 D 的球形样品所产生的CARS信号场在球坐标系中任意一点 $\mathbf{R}(R, \Theta, \Phi)$ 的强度分布, 如图2(b)所示. 样品的三阶非线性极化强度和空间中CARS信号场可分别表示为

$$\mathbf{P}^{\text{NL}}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_{\text{aS}}t) + \text{c.c.}, \quad (4)$$

$$\mathbf{E}_{\text{aS}}(\mathbf{R}, t) = \mathbf{E}_{\text{aS}}(\mathbf{R}) \exp(-i\omega_{\text{aS}}t) + \text{c.c.} \quad (5)$$

将方程(4)和(5)代入矢量波动方程, 即可得到在慢变振幅近似条件下的CARS信号场的波动方程为

$$\nabla^2 \mathbf{E}_{\text{aS}}(\mathbf{R}) + k_{\text{aS}}^2 \mathbf{E}_{\text{aS}}(\mathbf{R}) = -\frac{4\pi\omega_{\text{aS}}^2}{c^2} \left(\hat{\mathbf{I}} + \frac{\nabla\nabla}{k_{\text{aS}}^2} \right) \cdot \mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r}), \quad (6)$$

其中, $k_{\text{aS}} = n\omega_{\text{aS}}/c$, n 为信号场在介质中的折射率, c 为真空中光速; $\hat{\mathbf{I}}$ 为 3×3 的单位矩阵.

为求解(6)式, 我们引入格林函数, CARS信号场矢量波动方程的格林函数是一个点源波动方程的解. 当求解获得了点源的波动方程, 就能通过线性叠加原理求得整个样品在空间中产生的CARS信号的解, 这是由波动方程的线性性质和发散源是点源的线性叠加的性质决定的^[12]. CARS信号场的格林函数表示为^[13]

$$G(\mathbf{R} - \mathbf{r}) = \exp(ik_{\text{aS}}|\mathbf{R} - \mathbf{r}|)/4\pi|\mathbf{R} - \mathbf{r}|. \quad (7)$$

通过对样品体积积分可得到(6)式的解为

$$\mathbf{E}_{\text{aS}}(\mathbf{R}) = \frac{4\pi\omega_{\text{aS}}^2}{c^2} \int_V dV G(\mathbf{R} - \mathbf{r}) \times \left(\hat{\mathbf{I}} + \frac{\nabla\nabla}{k_{\text{aS}}^2} \right) \cdot \mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r}). \quad (8)$$

使用公式 $\nabla(Gf) = f\nabla G + G\nabla f$ 和 $\nabla \cdot (G\mathbf{F}) = G\nabla \cdot \mathbf{F} + (\nabla G) \cdot \mathbf{F}$ 变换得^[14]

$$\begin{aligned} & \int_V dV G(\mathbf{R} - \mathbf{r}) \nabla f(\mathbf{r}) \\ &= - \int_V dV [\nabla G(\mathbf{R} - \mathbf{r})] f(\mathbf{r}), \\ & \int_V dV [\nabla G(\mathbf{R} - \mathbf{r})] \nabla \cdot \mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r}) \\ &= - \int_V dV \mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r}) \cdot \nabla \nabla G(\mathbf{R} - \mathbf{r}). \end{aligned}$$

这样(8)式可改写为

$$\mathbf{E}_{\text{aS}}(\mathbf{R}) = \frac{4\pi\omega_{\text{aS}}^2}{c^2} \int_V dV \left(\hat{\mathbf{I}} + \frac{\nabla\nabla}{k_{\text{aS}}^2} \right) \times G(\mathbf{R} - \mathbf{r}) \cdot \mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r}). \quad (9)$$

在远场 $|\mathbf{R}| \gg |\mathbf{r}|$ 条件下, $|\mathbf{R} - \mathbf{r}|$ 可以近似表示为 $|\mathbf{R}| - \mathbf{R} \cdot \mathbf{r}/|\mathbf{R}|$, 并将(7)式代入(9)式, 计算可得空间中 $\mathbf{R}(R, \Theta, \Phi)$ 位置处的CARS信号场强度为

$$\begin{aligned} & \mathbf{E}_{\text{aS}}(\mathbf{R}) \\ &= \frac{\omega_{\text{aS}}^2}{c^2} \frac{\exp(ik_{\text{aS}}|\mathbf{R}|)}{|\mathbf{R}|} \int_V dV \left(\hat{\mathbf{I}} + \frac{\nabla\nabla}{k_{\text{aS}}^2} \right) \\ & \times \exp(-ik_{\text{aS}}\mathbf{n}_{\mathbf{R}} \cdot \mathbf{r}) \cdot \mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r}) \\ &= \frac{\omega_{\text{aS}}^2}{c^2} \frac{\exp(ik_{\text{aS}}|\mathbf{R}|)}{|\mathbf{R}|} \int_V dV \exp(-ik_{\text{aS}}\mathbf{n}_{\mathbf{R}} \cdot \mathbf{r}) \\ & \cdot \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ \cos \Theta \cos \Phi & \cos \Theta \sin \Phi & -\sin \Theta \\ -\sin \Phi & \cos \Phi & 0 \end{bmatrix} \end{aligned}$$

$$\times \begin{bmatrix} \mathbf{P}_x^{(3)}(\mathbf{r}) \\ \mathbf{P}_y^{(3)}(\mathbf{r}) \\ \mathbf{P}_z^{(3)}(\mathbf{r}) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \hat{\mathbf{i}}_R \\ \hat{\mathbf{i}}_\Theta \\ \hat{\mathbf{i}}_\Phi \end{bmatrix}, \quad (10)$$

其中, \mathbf{n}_R 为探测方向的单位矢量; $\hat{\mathbf{i}}_R$, $\hat{\mathbf{i}}_\Theta$ 和 $\hat{\mathbf{i}}_\Phi$ 分别为球坐标 R , Θ , Φ 轴方向的单位矢量; $P_x^{(3)}(\mathbf{r})$, $P_y^{(3)}(\mathbf{r})$ 和 $P_z^{(3)}(\mathbf{r})$ 分别表示三阶极化强度 $\mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r})$ 在 x , y 和 z 方向的分量. 可见 CARS 信号场是一个横向场, 在 $\hat{\mathbf{i}}_R$ 方向没有分量.

根据紧聚焦场的理论分析可知聚焦后的抽运光场和斯托克斯光场也都是沿 x 方向偏振的, 则极化强度 $\mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r})$ 可表示为^[13]

$$\mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r}) = 3\chi_{1111}^3(\omega_{aS}, \mathbf{r}) \mathbf{E}_P^2(\mathbf{r}) \mathbf{E}_S^*(\mathbf{r}) \hat{\mathbf{i}}_x, \quad (11)$$

其中 $\chi_{1111}^3(\omega_{aS})$ 为三阶极化系数张量的分量. 不考虑单光子共振, 且使用近红外激发光脉冲避免双光子共振, 那么

$$\chi_{1111}^3(\omega_{aS}) = \chi^{(3)NR} + \sum_R \left[\frac{A_R}{\omega_R - (\omega_P - \omega_S) - i\Gamma_R} \right], \quad (12)$$

其中, 下标 R 代表拉曼跃迁; A_R , ω_R 和 Γ_R 分别代表强度, 频率和半宽; $\chi^{(3)NR}$ 为非共振部分的贡献, 是一个实数. 将 (11), (12) 式代入 (10) 式即可得到直径为 D 的球形样品 CARS 信号场空间分布的矢量场表达式:

$$\begin{aligned} & \mathbf{E}_{aS}(R, \Theta, \Phi) \\ &= 3\chi_{1111}^{(3)}(\omega_{aS}) \frac{\omega_{aS}^2}{c^2} \frac{\exp(ik_{aS} |\mathbf{R}|)}{|\mathbf{R}|} \int_0^{2\pi} d\phi \\ & \times \int_0^{D/2} \rho d\rho \int_{-\sqrt{(D/2)^2 - \rho^2}}^{\sqrt{(D/2)^2 - \rho^2}} dz \\ & \times \exp \left[-ik_{aS}(\rho \cos(\phi) \sin(\Theta) \cos(\Phi) \right. \\ & \left. + \rho \sin(\phi) \sin(\Theta) \sin(\Phi) + z \cos(\Theta)) \right] \\ & \times \begin{bmatrix} 0 \\ \cos(\Phi) \cos(\Theta) \\ -\sin(\Phi) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \hat{\mathbf{i}}_R \\ \hat{\mathbf{i}}_\Theta \\ \hat{\mathbf{i}}_\Phi \end{bmatrix}. \end{aligned} \quad (13)$$

3 模拟结果与讨论

在以上所描述的 CARS 显微系统模型中, 我们通过求解矢量波动方程模拟计算了不同直径球形样品的 CARS 信号场强度的空间分布. 在模拟计算过程中, 我们假设入射的抽运光场和斯托克斯

光场波长分别为 $\lambda_P = 750 \text{ nm}$, $\lambda_S = 830 \text{ nm}$, 其束腰 ω_0 刚好充满物镜, 即 $\omega_0 = f \sin \alpha$. 模型系统中使用 NA 为 1.4 的消色差物镜实现激发光束的紧聚焦, 物镜和样品之间的介质折射率 $n = 1.5$. 共线耦合进显微镜系统的抽运光场和斯托克斯光场经物镜紧聚焦后, 在焦点附近的强度分布如图 3 所示. 在 $z = 0$ 处的横向强度剖面和在 $x = y = 0$ 处的纵向剖面可以看到, 高斯光束经紧聚焦后光斑强度曲线的半高全宽 (full width half maximum) 分别为 0.4λ 和 1.0λ . 可见经大 NA 物镜紧聚焦的高斯光束的光斑很小, 对样品的激发量很少, 所以由样品折射率引起的光谱色散导致的波矢失配量极小, 可以在计算 CARS 信号时忽略由折射率色散引起的相位失配, 即 $n(\omega_P) = n(\omega_S) = n(\omega_{aS})$, $k_{aS} - (2k_P - k_S) = 0$ ^[15].

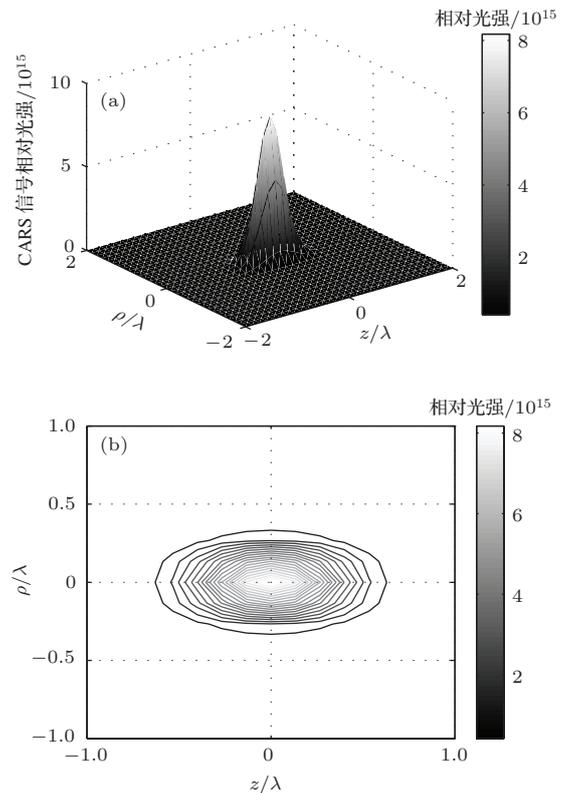


图 3 xz 面上焦点附近的光强分布及等高线分布 (a) 光强分布; (b) 等高线分布

高斯光束经大 NA 物镜紧聚焦后, 以焦点为原点的轴向光强变化和相移的数值模拟结果如图 4 所示. 可见紧聚焦的光场在焦点附近 $z = \pm\lambda$ 范围内, 有一个 $-\pi$ 的相移, 这就是 Gouy 相移^[16]. Gouy 相移对于 CARS 信号的影响体现在相位失

配, 在作用长度 L 内, CARS 的相位失配量为

$$\Delta kL = |\mathbf{k}_{aS} - [2(\mathbf{k}_P + \mathbf{k}_{Pg}) - (\mathbf{k}_S + \mathbf{k}_{Sg})]|L,$$

其中 $\mathbf{k}_{Pg} = -\pi/(2\lambda_P)$, $\mathbf{k}_{Sg} = -\pi/(2\lambda_S)$, 分别是由 Gouy 相移引起的, 相应于抽运光场和斯托克斯光场的波矢, 沿 $+z$ 轴方向. 根据相位匹配条件, $\Delta kL \ll \pi$, 可得到最大相干长度为 $2\lambda_S\lambda_P/(2\lambda_S - \lambda_P)$, 这和激发光在 z 轴方向上可激发的样品长度是相当的, 所以 Gouy 相移的存在对

于产生的 CARS 信号场的影响并不大.

假定探测方位的距离一定, 即 R 为常数, 那么在 (13) 式中就可以通过对球形样品的体积分获得一定探测距离上的不同角方位 (θ, ϕ) 处的 CARS 信号场强度的空间分布. 数值模拟得到直径不同的球形样品 CARS 信号场的空间分布如图 5 所示. 球形样品位于坐标系原点处. 图 5 中括号内的数值是沿 $+z$ 和 $-z$ 轴方向上的相对信号强度比.

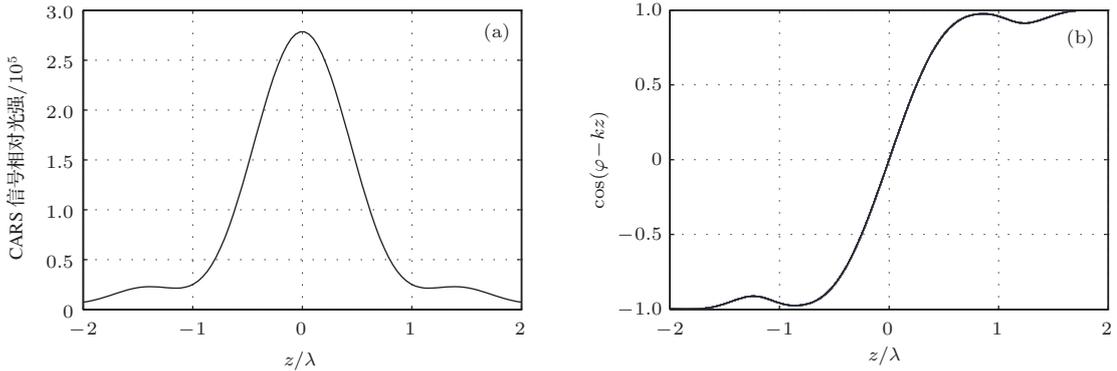


图 4 聚焦光场的轴向光强变化和相移 (a) 轴向光强变化; (b) 相移

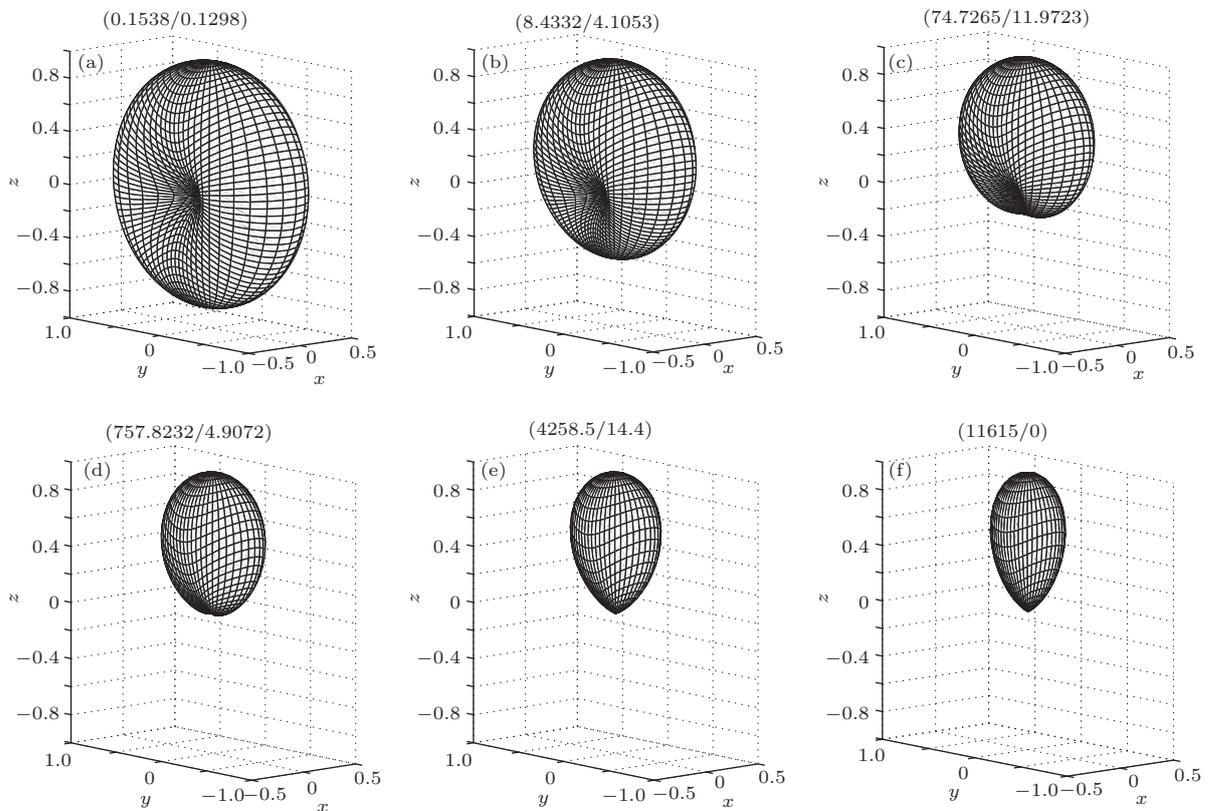


图 5 直径 D 不同的球形样品的远场 CARS 信号场强度分布 (a) $D = 0.1\lambda_P$; (b) $D = 0.2\lambda_P$; (c) $D = 0.3\lambda_P$; (d) $D = 0.5\lambda_P$; (e) $D = \lambda_P$; (f) $D = 3\lambda_P$;

由不同直径的球形样品的 CARS 信号场强度空间分布的数值模拟结果可以看到, 激发不同直径的球形样品产生的前向传播的 CARS 信号场的强度比后向传播的大. 对于直径小于 $0.1\lambda_P$ 的球形样品, 入射激发光场与样品的作用长度很短, 任意方向的 \mathbf{k}_{aS} 都满足相位匹配条件, 前、后向 CARS 信号场的强度都很小且几乎相等, 采用前向和后向探测方式都是可行的. 但是, 由于 CARS 信号场的发散角较大, 需使用大 NA 收集物镜收集 CARS 信号. 而且由于瑞利散射和其他非共振背景较小, 因此为获得不透明待测样品的精细结构的高对比度图像, 通常可采用背向探测方式. 随着球形样品直径的增加, 前、后向传输的 CARS 信号场的强度均大幅增加, 且后向信号强度远小于前向信号强度, 同时前向 CARS 信号场的发散角逐渐减小. 当球形样品的直径为 $3\lambda_P$ 时, CARS 信号场主要集中在前向的一个很小的锥角内, 具有很好的方向性. 所以, 对于几何尺寸较大的球形样品来说, 前向探测方式中采用小 NA 的物镜即可有效收集 CARS 信号.

4 结 论

在 CARS 显微镜系统中, 至少两束激发光共线耦合进显微镜系统, 通过大 NA 的物镜紧聚焦在待测样品中, 激发具有不同形状和尺寸的待测样品所产生的 CARS 信号场的空间分布特点决定了系统整体结构. 为分析紧聚焦条件下 CARS 信号场的空间分布, 本文首先建立了紧聚焦条件下球形样品产生 CARS 信号场的理论模型. 利用矢量波动方程分析了线偏振的高斯光束经 $NA = 1.4$ 的物镜紧聚焦后, 焦点位置处的光场强度和相位分布. 在焦点位置处, 由样品折射率引起的光谱色散导致的波矢失配量和 Gouy 相移引起的相位失配量都很小, 两者对 CARS 信号的产生和强度分布均可忽略. 利用格林函数求解该模型中 CARS 信号场的矢量波动方程得到 CARS 信号场的矢量表达式, 并通过矢量表达式对一定探测距离处的不同直径的球形样品的 CARS 信号场的空间分布进行了数值模拟. 理论分析和模拟计算结果说明, 对于小直径的球形样品,

前向和背向传输的 CARS 信号场强度接近, 因此采用大 NA 物镜背向探测方式收集信号即可获得高对比度图像. 对于大体积透明球形样品, CARS 信号场的强度大幅增强, 且发射方向主要集中在前向的一定立体角内. 因此, 采用小 NA 物镜即可有效收集前向传输的 CARS 信号. 理论分析和模拟计算的结果为更好地理解在紧聚焦条件下 CARS 信号场的产生及其强度的空间分布特性, 以及 CARS 显微镜的结构设计和进一步的系统优化提供了理论基础和指导.

参考文献

- [1] Humecki H J 1995 *Practical Spectroscopy* (Vol. 19) (New York: Marcel Dekker, Inc) pp95–105
- [2] Turrell G, Corset J 1996 *Raman Microscopy Development and Applications* (San Diego: Academic Press) pp1–28
- [3] Wang M, Tian Y, Zhang J M, Guo C F, Zhang X Z, Liu Q 2014 *Chin. Phys. B* **23** 087803
- [4] Duncan M D, Reijntjes J, Manuccia T J 1974 *Opt. Lett.* **25** 387
- [5] Yin J, Yu F, Hou G H, Liang R F, Tian Y L, Lin Z Y, Niu H B 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 073301 (in Chinese) [尹君, 余锋, 侯国辉, 梁闰富, 田宇亮, 林子扬, 牛憨笨 2014 物理学报 **63** 073301]
- [6] Yin J, Lin Z J, Qu J L, Yu L Y, Liu X, Wan H, Niu H B 2009 *Chin. J. Lasers* **36** 2477 (in Chinese) [尹君, 林子扬, 屈军乐, 于凌尧, 刘星, 万辉, 牛憨笨 2009 中国激光 **36** 2477]
- [7] Shen Y R 1984 *The Principles of Nonlinear Optics* (New York: John Wiley and Sons Inc.) pp141–184
- [8] Robert W B 2010 *Nonlinear Optics* (New York: Academic Press) pp499–500
- [9] Youngworth K S, Brown T G 2000 *Opt. Express* **7** 77
- [10] Richards B, Wolf E 1959 *Proc. R. Soc. A* **253** 358
- [11] Novotny L, Hecht B 2006 *Principles of Nano-Optics* (New York: Cambridge University Press) pp53–61
- [12] Chew W C 1990 *Waves and Fields in Inhomogeneous Media* (New York: Van Nostrand Reinhold) pp33–36
- [13] Novotny L 1997 *J. Opt. Soc. Am. A* **14** 105
- [14] Ye P X 2007 *Nonlinear Optical Physics* (Beijing: Peking University Press) pp20–42 (in Chinese) [叶佩弦 2007 非线性光学物理 (北京: 北京大学出版社) 第 20—42 页]
- [15] Bjorklund G C 1975 *IEEE J. Quant. Electron* **11** 287
- [16] Teets R E 1986 *Appl. Opt.* **25** 855

Vector analysis of the coherent anti-Stokes Raman scattering signals generated under the tightly focused condition*

Li Ya-Hui¹⁾²⁾³⁾ Liang Run-Fu¹⁾²⁾ Qiu Jun-Peng¹⁾²⁾ Lin Zi-Yang¹⁾²⁾ Qu Jun-Le¹⁾²⁾
Liu Li-Xin^{3)†} Yin Jun^{1)2)‡} Niu Han-Ben¹⁾²⁾

1) (College of Optoelectronic Engineering, Shenzhen University, Shenzhen 518060, China)

2) (Key Laboratory of Optoelectronic Devices and Systems of Ministry of Education and Guangdong Province, Shenzhen 518060, China)

3) (School of Physics and Optoelectronic Engineering, Xidian University, Xi'an 710071, China)

(Received 20 June 2014; revised manuscript received 26 July 2014)

Abstract

In a coherent anti-Stokes Raman scattering (CARS) microscope, when samples with different shapes and dimensions are excited by collinearly introduced and tightly focused Gaussian beams, the microscopic structure will be determined by the spatial distributions of generated CARS signals. Therefore, we build a theoretical model for CARS signals from spherical sample under the tightly focused condition. The intensity and phase distributions of tightly focused linear polarization Gaussian beams are analyzed with vector wave equations. The vector wave equation of CARS signals is derived from Green's function. The far-field CARS radiation patterns of spherical scatters with different diameters are simulatively calculated. Theoretical analysis and simulative calculation results show that the intensities of forward and backward CARS signals from the small spherical sampler are similar. The images with high contrast can be obtained by backward detection method from an objective with a high numerical aperture. For big spherical samplers, intensities of CARS signals are greatly increased. The emission direction is mainly concentrated in a spatial angle. The forward CARS signals can be effectively collected by an objective with low numerical aperture.

Keywords: coherent anti-Stokes Raman scattering, vector wave equation, Green's function, tightly focused conditions

PACS: 33.20.Fb, 42.65.Dr, 78.47.jh, 82.53.Kp

DOI: 10.7498/aps.63.233301

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2012CB825802), the Special Funds of the Major Scientific Instruments Equipment Development of China (Grant No. 2012YQ150092), the Key Program of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61235012), the Young Scientists Fund of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11204226), and the Natural Science Basic Research Plan in Shaanxi Province of China (Grant No. 2014JM8324).

† Corresponding author. E-mail: lxliu@xidian.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: yinjun666@163.com