

纳米分辨相干反斯托克斯拉曼散射显微成像

张赛文 陈丹妮 刘双龙 刘伟 牛憨笨

Nanometer resolution coherent anti-Stokes Raman scattering microscopic imaging

Zhang Sai-Wen Chen Dan-Ni Liu Shuang-Long Liu Wei Niu Han-Ben

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 223301 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.223301

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.223301>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I22>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

分子环境变化对振动退相时间影响的实验研究

Experimental study on vibration dephasing time varying with molecular surroundings

物理学报.2015, 64(14): 143301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.143301>

相干瑞利散射海水水下温度测量技术的理论研究

Theoretical study on measuring underwater temperature based on coherent Rayleigh scattering

物理学报.2014, 63(8): 083302 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.083302>

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

Theoretical and experimental study on the multi-color broadband coherent anti-Stokes Raman scattering processes

物理学报.2014, 63(7): 073301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.073301>

(R)-13 丁二醇的手性不对称性: 微分键极化率的研究

The chiral asymmetry of R-(-)-13-butanediol as revealed by its Raman differential bond polarizabilities

物理学报.2013, 62(15): 153301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.153301>

咪唑分子拉曼激发虚态的相关研究

The study of nonresonant Raman excited virtual state of carbazole molecule

物理学报.2011, 60(12): 123301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.60.123301>

纳米分辨相干反斯托克斯拉曼散射显微成像*

张赛文 陈丹妮[†] 刘双龙 刘伟 牛憨笨[‡]

(光电子器件与系统(教育部/广东省)重点实验室, 深圳大学光电工程学院, 深圳生物医学工程重点实验室, 深圳 518060)

(2015年5月15日收到; 2015年8月1日收到修改稿)

采用附加探测光声子耗尽法来实现超衍射极限相干反斯托克斯拉曼散射显微成像. 此方法引入一束环形分布的附加探测光来消耗点扩展函数周边的相干声子, 实现点扩展函数的改造, 从而达到超越衍射极限的空间分辨率. 为了获得更高的空间分辨率和更佳的相位匹配条件, 通常需采用高数值孔径物镜对抽运光、斯托克斯光和探测光进行聚焦, 此时标量衍射理论不再成立. 基于矢量衍射理论, 分析了线偏振光、圆偏振光先后经过螺旋相位片和高数值孔径物镜后的光强分布, 结果表明: 圆偏振光在高数值孔径物镜后焦平面的光强分布呈中心对称状, 较线偏振环形光更适合作为附加探测光. 此外, 采用全量子理论分析了附加探测光声子耗尽法. 结果表明: 当附加探测光与探测光强度比为80时, 成像系统的横向空间分辨率可以达到45 nm; 继续提高附加探测光强度, 空间分辨将进一步提高.

关键词: 圆偏振光, 纳米分辨率, 相干反斯托克斯拉曼散射, 矢量分析

PACS: 33.20.Fb, 42.65.Dr, 78.47.jh, 42.65.-k

DOI: 10.7498/aps.64.223301

1 引言

相干反斯托克斯拉曼散射(coherent anti-Stocks Raman scattering, CARS)是一种基于分子固有振动、转动谱的非线性光学成像方法, 因此具有良好的化学特异性以及高灵敏度和三维层析能力^[1,2], 广泛应用于生物学领域中对蛋白质、核酸和脂类分子的成像^[3,4]. CARS显微技术基于三阶非线性效应, 其空间分辨率较普通光学显微虽然有所改善, 但是仍然受到光学衍射极限的限制.

目前国际上已经提出了实现CARS超分辨的若干方法, 但主要还是停留在理论阶段, 尚未有分辨率小于100 nm的成像实验. 这些理论方法大致可以分为三种: 第一种是通过引入一束环形光, 使点扩展函数边缘的分子的振动能级实现粒子数反转, 当与探测光作用时, 点扩展函数周边将不再有

信号产生, 信号只会产生在点扩展函数中心从而使点扩展函数减小^[5,6]; 第二种是在点扩展函数周边引入局域振荡场, 通过干涉的方法使点扩展函数减小从而提高空间分辨率^[7]; 第三种是采用结构照明来提高空间分辨率, 但需要指出的是, 虽然它在实验上获得了约120 nm的横向空间分辨率^[8], 但空间分辨率大于100 nm, 因此不属于真正意义上的纳米分辨成像方法. 此外, 上述三种方法都是基于分子某一振动频率的超分辨成像方法, 因此不能准确地识别分子.

我们提出一种基于分子宽带振动谱的时间分辨CARS的超分辨方法, 称为附加探测光声子耗尽(additional probe beam induced phonon depletion, APIPD)^[9,10]. 该方法的原理是: 当抽运光、斯托克斯光与物质相互作用产生相干声子后, 立刻引入一束环形光作为附加探测光, 与艾里斑周边的相干声子作用, 产生无用的CARS信号; 另一路波长不同

* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2012CB825802, 2015CB352005)、国家自然科学基金(批准号: 61335001, 61178080, 61235012, 11004136)、国家重大科学仪器设备开发专项(批准号: 2012YQ15009203)、深圳市科技计划项目(批准号: JCYJ20120613173049560, GJHS20120621155433884)和国家留学基金资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: dannyc007@gmail.com

[‡] 通信作者. E-mail: hbniu@szu.edu.cn

的高斯型探测光延迟达到, 并与艾里斑中心的相干声子作用, 产生有用的 CARS 信号, 选择适当的滤光片可使无用 CARS 信号与有用 CARS 信号分离; 有用的 CARS 信号仅产生于艾里斑的中心区域, 从而实现点扩展函数的改造, 获得小于衍射极限限制的艾里斑; 扫描这个艾里斑, 就可以获得一幅衍射极限限制的 CARS 显微图像. 此外, 如果采用飞秒激光脉冲抽运光子晶体光纤产生的超连续谱光源同时作为抽运光与斯托克斯光, 只要两路探测光的波长差足够大, 就可以产生两组波长范围没有交叉的宽带时间分辨 CARS 信号, 通过选择适当的滤光片可将其完全分离, AIPDP 超分辨方法结合超连续谱光源^[11], 可以在突破衍射极限限制的同时, 获取分子完整的 CARS 谱信息^[12,13], 能够更好地识别分子, 更准确地定位分子^[14,15]. CARS 过程基于三阶非线性效应, 需要采用高数值孔径的物镜实现聚焦, 采用高数值孔径的物镜不仅可获得更高的空间分辨率, 也使 CARS 过程的相位匹配条件更宽松, 而在这种条件下, 对于光场强度的分析必须使用矢量计算, 而标量衍射理论计算结果不再适用. 本文基于矢量计算对 AIPDP 进行了分析: 首先利用矢量波动方程, 模拟分析了线偏振光经过高数值孔径后的光场强度分布, 以及圆偏振光经过螺旋相位片和高数值孔径物镜的光场强度分布. 当光与物质相互作用时, 基于全量子理论分析了时间分辨 CARS 过程, 理论验证了圆偏振光作为 AIPDP 附加探测光实现超分辨 CARS 成像的可行性.

2 原理

首先考虑抽运、斯托克斯光与探测光作用产生 CARS 信号的过程. 三阶非线性极化强度的张量形式可表示为^[16]

$$P_{Ci}(r) = \sum_{j,k,l} 6\chi_{ijkl}^{(3)}(r) E_{Lj}(r) E_{Pk}(r) E_{Sl}^*(r), \quad (1)$$

其中, $\chi_{ijkl}^{(3)}(r)$ ($i, j, k, l = 1, 2, 3$) 是样品的三阶极化率张量的分量; $P_{Ci}(r)$, $E_{Lj}(r)$, $E_{Pk}(r)$, $E_{Sl}(r)$ ($i, j, k, l = 1, 2, 3$) 分别表示 CARS 信号频率处的极化强度、抽运光场、探测光场与斯托克斯光场分量. 为了简化(1)式, 消除某些极化率张量元素, 让抽运、斯托克斯光与探测光都为线偏振光入射, 且光矢量振动方程相同.

在高数值孔径物镜聚焦的条件下, 傍轴近似条件不再成立, 需采用矢量分析计算光经过高数值孔径后在焦点附近的光场强度分布. 忽略所有像差,

假设物镜满足正弦条件

$$r = f \sin \theta, \quad (2)$$

式中, r 是入射光线离光轴的距离; f 是物镜的焦距; θ 是入射光线经过物镜后与光轴的夹角, $0 \leq \theta \leq \theta_{\max}$, 其中, θ_{\max} 由物镜的数值孔径决定, $\theta_{\max} = \arcsin(NA/n)$. 假设入射的抽运光、斯托克斯光和探测光都为高斯光束, 并表示为^[2]

$$\begin{aligned} E_i(r) &= E0_i \exp\left(-\frac{r^2}{\omega_0^2}\right) \\ &= E0_i \exp\left(-\frac{f^2 \sin^2 \theta}{\omega_0^2}\right), \end{aligned} \quad (3)$$

其中, $i = \text{pump, Stokes, probe, AIPDP}$, $E_i(r)$ 分别代表抽运光、斯托克斯光、探测光和附加探测光光场强度; $E0_i$ 是高斯光束的中心强度; ω_0 是高斯光束的束腰半径. 根据矢量衍射理论, 从一般的德拜积分可以得到在焦点附近的光场分布^[17]

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(r_2, \varphi_2, z_2) &= iC \iint_{\Omega} \sin \theta \mathbf{A}_1(\theta, \varphi) \cdot \mathbf{A}_2(\theta, \varphi) \cdot \begin{bmatrix} p_x \\ p_y \\ p_z \end{bmatrix} \\ &\cdot e^{ikn(z_2 \cos \theta + r_2 \sin \theta \cos(\varphi - \varphi_2))} d\theta d\varphi, \end{aligned} \quad (4)$$

(4) 式中的坐标采用柱坐标系, 原点在光学系统的焦点, z 轴沿光的传播方向, 如图 1 所示. $\mathbf{E}(r_2, \varphi_2, z_2)$ 表示在 (r_2, φ_2, z_2) 点的电场矢量; C 为归一化常数, $\mathbf{A}_1(\theta, \varphi)$ 是入射光的光场函数, 即为(2)式; $\mathbf{A}_2(\theta, \varphi)$ 是与成像透镜结构有关的 3×3 的矩阵, 可以表示为^[18]

$$\mathbf{A}_2(\theta, \varphi) = a(\theta) \cdot \mathbf{V}(\theta, \varphi), \quad (5)$$

其中, $a(\theta)$ 为切趾函数, $\mathbf{V}(\theta, \varphi)$ 是物场到像场的偏振转换矩阵, 对于消球差透镜, 假设光束在透镜前面能量守恒, 则有

$$a(\theta) = \sqrt{\cos \theta}, \quad (6)$$

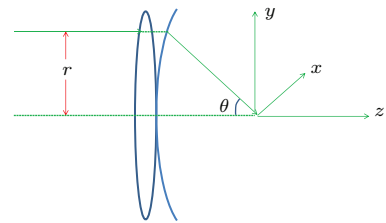


图 1 透镜聚焦激光束示意图

Fig. 1. Diagram of a laser beam focused by an objective.

$$\mathbf{V}(\theta, \varphi) = \begin{bmatrix} 1 + (\cos \theta - 1) \cos^2 \varphi & (\cos \theta - 1) \cos \varphi \sin \varphi & -\sin \theta \cos \varphi \\ (\cos \theta - 1) \cos \varphi \sin \varphi & 1 + (\cos \theta - 1) \sin^2 \varphi & -\sin \theta \sin \varphi \\ \sin \theta \cos \varphi & \sin \theta \sin \varphi & \cos \theta \end{bmatrix}; \quad (7)$$

$[p_x; p_y; p_z]$ 表示入射光偏振方向的单位矢量, 线偏振光沿 x 方向时为 $[1; 0; 0]$.

假定在紧聚焦条件下, 物镜数值孔径 $NA = 1.4$, 经过模拟计算分析, 线偏振光入射可以仍当作线偏振光处理, x 方向分量 E_x 远大于 y, z 方向上的分量 E_y 和 E_z , 如图 2 所示. 这时三阶非线性极化率张量相当于标量, 只有一个元素 $\chi_{1111}^{(3)}$, 相应的三阶非线性极化强度公式变化为

$$P_{Cx} = 6\chi_{1111}^{(3)} E_{Lx}(r) E_{Px}(r) E_{Sx}^*(r). \quad (8)$$

为了获得环形光, 需要在透镜前面加一个螺旋相位片, 使入射光在不同的方向角引入一个 0 到 2π 相位延迟. 因此方程 (4) 相应变为

$$\mathbf{E}(r_2, \varphi_2, z_2)$$

$$= iC \iint_{\Omega} \sin \theta \mathbf{A}_1(\theta, \varphi) \cdot \mathbf{A}_2(\theta, \varphi) \cdot \begin{bmatrix} p_x \\ p_y \\ p_z \end{bmatrix} \cdot e^{i\Delta\alpha(\theta, \varphi)} \cdot e^{ikn(z_2 \cos \theta + r_2 \sin \theta \cos(\varphi - \varphi_2))} \cdot d\theta d\varphi. \quad (9)$$

其中, $\Delta\alpha(\theta, \varphi)$ 是相位延迟参数, 对于上述螺旋相位片, 该参数可以表示为 $\Delta\alpha(\theta, \varphi) = \varphi$. 若输入光仍为线偏振光, 则线偏振光经过螺旋相位片再经过高数值孔径后的聚焦场分布如图 3 所示, y 方向分量 E_y 相对较小, 可以忽略, 但 x 与 z 方向分量 E_x 与 E_z 最大值大小相近, 且 z 方向分量在中心光强最强, 会使点扩展函数中心的声子减少, 不利于有

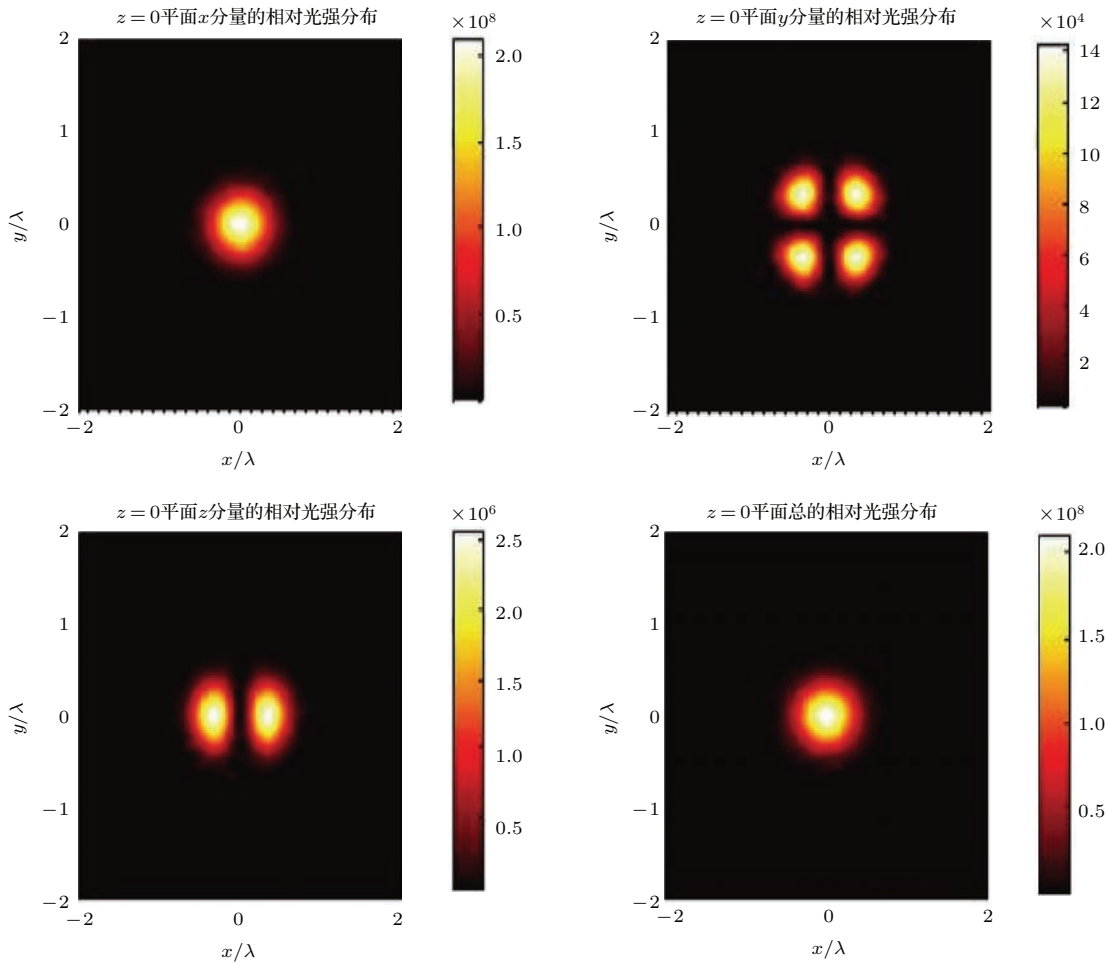


图 2 (网刊彩色) 线偏振光经过高数值孔径透镜的光场分布

Fig. 2. (color online) Intensity distribution of a linear polarized light focused by a high NA objective.

用的CARS信号产生, 不适合做APIPD附加探测光. 与受激辐射耗尽光类似, 我们采用圆偏振光(线偏振光经过1/4波片可以变成圆偏振光), 偏振单位矢量 $[p_x; p_y; p_z]$ 为 $[1; i; 0]/\sqrt{2}$ (右旋)或者 $[i; 1; 0]/\sqrt{2}$ (左旋)作为附加探测光时, 在焦平面的光强分布如图4所示. 从图4可以看出, z 方向 $|\mathbf{E}_z|^2$ 分量远小于 x 方向的分量 $|\mathbf{E}_x|^2$ 和 y 方向分量 $|\mathbf{E}_y|^2$, 并且 x 方向的分量 $|\mathbf{E}_x|^2$ 和 y 方向分量 $|\mathbf{E}_y|^2$ 近似为环形光分布, 强度近似相等. 这时三阶非线性极化强度公式为

$$P_{Cx} = 6(\chi_{1111}^{(3)} E_{Lx} E_{Sx}^* E_{Px} + \chi_{1112}^{(3)} E_{Lx} E_{Sx}^* E_{Py}), \quad (10)$$

$$P_{Cy} = 6(\chi_{2111}^{(3)} E_{Lx} E_{Sx}^* E_{Px} + \chi_{2112}^{(3)} E_{Lx} E_{Sx}^* E_{Py}), \quad (11)$$

对于各向同性媒质, $\chi^{(3)}$ 包含奇数个重复下标的元

素为0, 所以 $\chi_{1112}^{(3)}$ 和 $\chi_{2111}^{(3)}$ 为0, 而 $\chi_{2112}^{(3)}$ 相对 $\chi_{1111}^{(3)}$ 很小, 可以忽略. 所以

$$P_{Cx} = 6\chi_{1111}^{(3)} E_{Lx} E_{Sx}^* E_{Px}. \quad (12)$$

所在圆偏振光起作用的项只有沿 x 方向的分量.

$$\begin{aligned} I_{cars} \propto P_x^2 &= (6\chi_{1111}^{(3)} E_{Lx} E_{Sx}^* E_{Px})^2 \\ &= 36(\chi_{1111}^{(3)})^2 E_{Lx}^2 E_{Sx}^2 E_{Px}^2 \\ &= 36(\chi_{1111}^{(3)})^2 I_L I_S \left(\frac{1}{2} I_P\right). \end{aligned} \quad (13)$$

由于CRAS是三阶非线性过程, 经过高数值孔径聚焦, 满足相位匹配, 所以把圆偏振光经螺旋相位片后光场分布当作只有沿 x 方向偏振的环形光, 而忽略 y 方向偏振的环形光, 输入的圆偏振光有效光强只利用了一半.

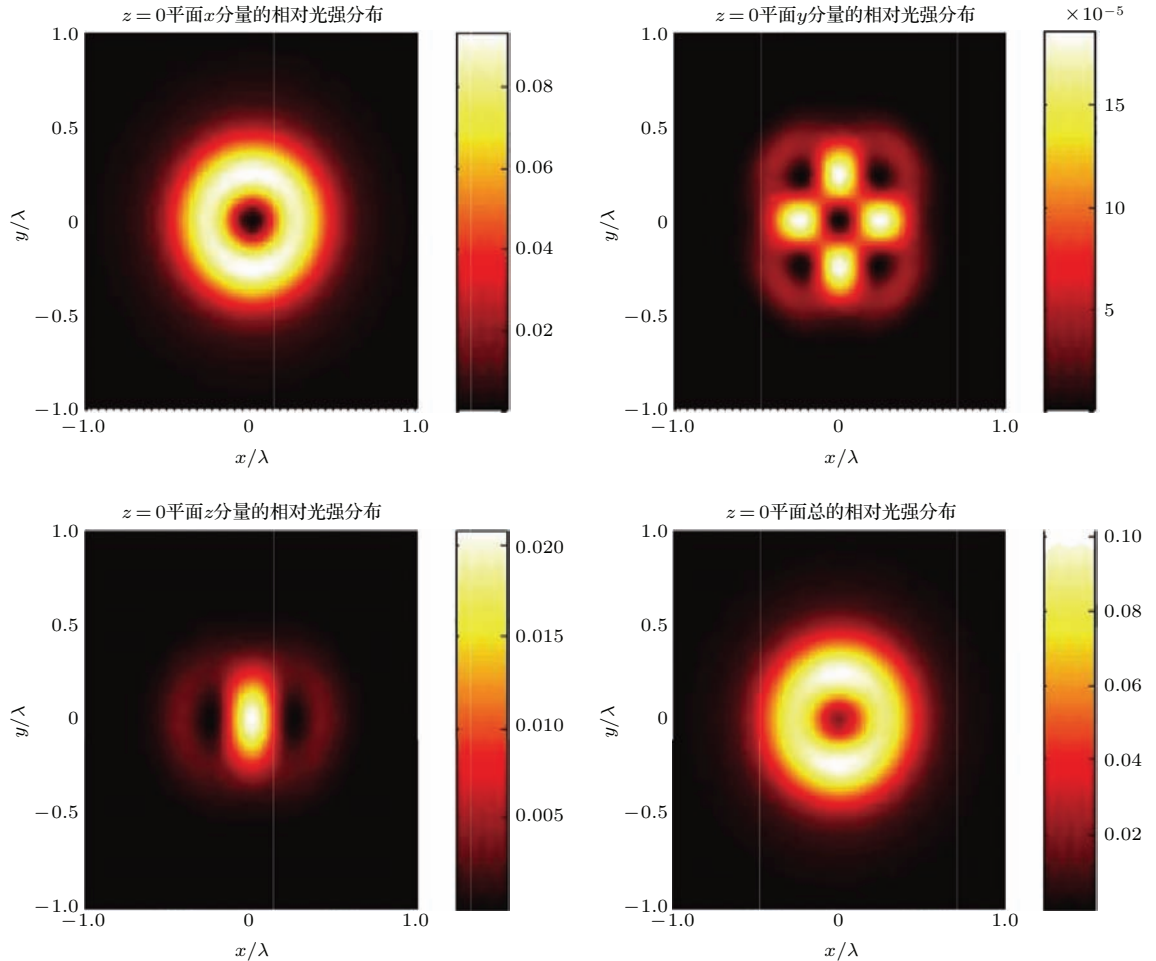


图3 (网刊彩色) 线偏振光经过螺旋相位片再经过高数值孔径物镜后的光场分布

Fig. 3. (color online) Intensity distribution of a linear polarized light passing through a spiral phase plate and focused by a high NA objective.

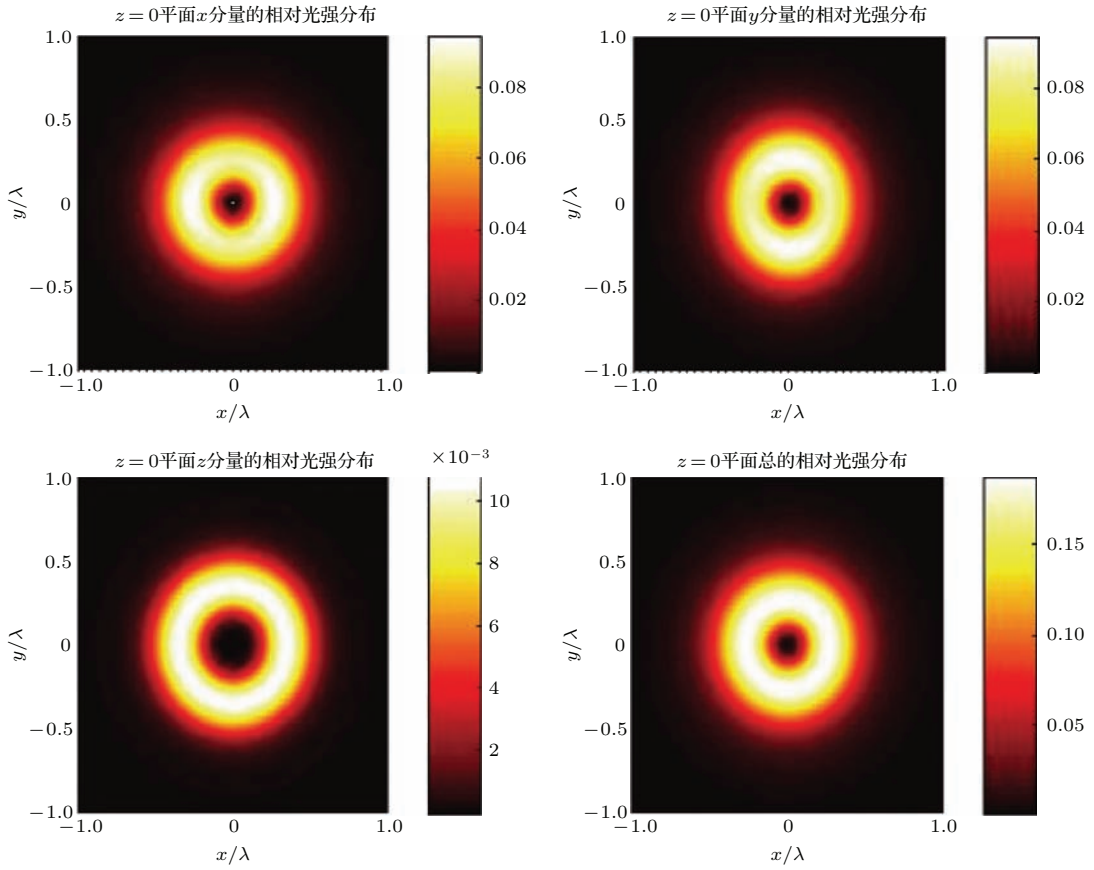


图4 (网刊彩色) 圆偏振光过螺旋相位片再经过高数值孔径物镜后光场强度分布

Fig. 4. (color online) Intensity distribution of a circular polarized light passing through a spiral phase plate and focused by a high NA objective.

用全量子理论处理 CARS 过程, 基于费米黄金准则, 当抽运光和斯托克斯光与物质相互作用时产生的声子变化表示如下^[9,19]:

$$\frac{dn_v}{dl} = N \frac{\pi e^4 \omega_L \omega_S}{2 \varepsilon_0^2 \hbar^2 V^2 \mu_P^2 \mu_S^2} \frac{\mu_S}{c} |\alpha_R|^2 n_L^* [n_S^* + 1] \times \delta(\omega_S - \omega_L + \omega_v), \quad (14)$$

其中, 体积 V 包含 N 个分子; l 为 CARS 过程相互作用长度; α_R 为拉曼跃迁极化率; ω_L 和 ω_S 分别是抽运光和斯托克斯光的频率; e 是原电荷; ε_0 是真空中介电常数; c 是真空中光速; \hbar 为约化普朗克常数; δ 为狄拉克函数; μ_L 和 μ_S 为折射率; dn_v 表示相干声子的变化. n_L^* , n_S^* 表示在某时刻抽运光和斯托克斯光光子数. 原子终态的均匀展宽, 使 δ 函数转换成 Lorentzian 线型. 其中, $\omega_S = \omega_L - \omega_v$,

$$\delta(\omega_S - \omega_L + \omega_v) \rightarrow \frac{\Gamma/\pi}{(\omega_S - \omega_L + \omega_v)^2 + \Gamma^2} = \frac{1}{\pi\Gamma}, \quad (15)$$

Γ 表示相位弛豫, $\Gamma = 1/T_2$. 由于在 CARS 过程中, 抽运光和斯托克斯光光功率非常高, 它相对

于相干声子的变化非常小, 所以 n_L , n_S 近似不变, $n_S^* + 1 \approx n_S$. 由光强与光子数的关系可以得到

$$I_j = (\hbar\omega_j c / \mu_j V) n_j \quad (j = L, S, P, Pr). \quad (16)$$

从 (14) 式, 我们可以得到

$$n_v = \frac{I_S \mu_S V}{\hbar\omega_S c} I_L g l. \quad (17)$$

为了实现超分辨成像, 采用环形附加探测光使焦点位置周边的声子耗尽, 而只留下中心声子与探测光作用产生有用的 CARS 信号. 因此, 得到 APIPD 的点扩展函数为^[9]

$$h(r) = \begin{cases} h^*(r), & \frac{I_S(r) \mu_S V}{\hbar\omega_{PC}} I_L(r) g l \\ & \geq \frac{I_P(r) \mu_P V}{\hbar\omega_{PC}} \cdot \frac{N}{A} \cdot \frac{\partial \sigma}{\partial \Omega}, \\ 0, & \text{其他,} \end{cases} \quad (18)$$

其中,

$$h^*(r) = I_{P2} \cdot \left[\frac{I_S(r) \mu_S V}{\hbar\omega_{PC}} I_L(r) g l - \frac{I_P(r) \mu_P V}{\hbar\omega_{PC}} \cdot \frac{N}{A} \cdot \frac{\partial \sigma}{\partial \Omega} \right]; \quad (19)$$

A 是体积 V 的横截面积; N 是分子数; l 是相互作用长度.

3 模拟仿真与讨论

在 APIPD 显微系统中, 采用的参数设置为数值孔径 $NA = 1.4$, 折射率 $n = 1.518$, 入射的高斯光束束腰半径 $\omega_0 = 5 \text{ mm}$, 入射的抽运光与探测光波长 $\lambda_L = \lambda_P = 820 \text{ nm}$, 斯托克斯光波长 $\lambda_S = 932 \text{ nm}$, 附加探测光波长 $\lambda_{Pr} = 750 \text{ nm}$. 图 5 (a) 为抽运光、斯托克斯光、探测光与附加探测光在焦平面径向光强分布. 在全量子理论处理 CARS 过程中, 定义 I_{dep} 作为使声子全部耗尽的探测光峰值光强, 即在这一光强下, 由抽运光与斯托克斯光产生的声子被耗尽. 据此, 能够得到

$$\frac{I_S^{\text{max}} \mu_S V}{\hbar \omega_S c} I_L^{\text{max}} g l = \frac{I_{\text{dep}} \mu_{P(r)}}{\hbar \omega_{P(r)} c} N_0 l \frac{\partial \sigma}{\partial \Omega}, \quad (20)$$

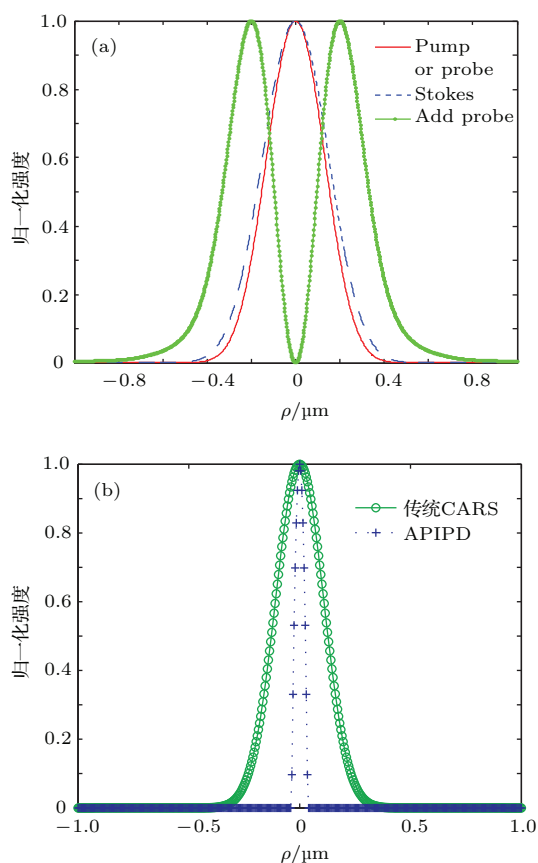


图 5 (网刊彩色) (a) 抽运光、斯托克斯光、探测光和附加探测光在焦平面的径向归一化光强度; (b) APIPD 点扩展函数与传统 CARS 点扩展函数对比

Fig. 5. (color online) (a) Radial normalized intensity of pump, Stokes, probe, additional probe light at the focus plane; (b) comparison of the point spread function of APIPD with the traditional system.

增益系数 $g \approx N_0 \times 10^{-31} \text{ cm/W}$, 微分散射截面 $\partial \sigma / \partial \Omega \approx 10^{-24} \text{ cm}^2$, 所以 $I_{\text{dep}} \approx I_S^{\text{max}} I_L^{\text{max}} \times 10^{-7}$. 假设入射光功率 $P_L = 10 \text{ } \mu\text{W}$, $P_S = 10 \text{ } \mu\text{W}$, 重复频率为 80 MHz , 脉冲宽度为 100 fs . 相应强度 $I_L = 10^9 \text{ W/cm}^2$ 和 $I_S = 10^9 \text{ W/cm}^2$, 计算得到耗尽强度 $I_{\text{dep}} = 10^{11} \text{ W/cm}^2$, 耗尽功率 $P_{\text{dep}} = 10^{-3} \text{ W}$. 定义 $K = I_{P(r)}^{\text{max}} / I_{\text{dep}}$, $I_{P(r)}^{\text{max}}$ 为附加探测光最大光强值, 当 $K = 80$ 时, 圆偏振光有效光强只利用了一半, 改造后的点扩展函数半高全宽 $\Delta r = 45 \text{ nm}$, 如图 5 (b) 所示, 与传统 CARS 显微成像相比, APIPD 的分辨率提高了近五倍.

4 结 论

APIPD 纳米分辨 CARS 显微成像方法采用了抽运光、斯托克斯光、探测光以及环形附加探测光来实现超光学衍射极限的空间分辨. CARS 过程中采用的高数值孔径物镜在紧聚焦情形下需要采用矢量理论来处理, 因此我们通过矢量衍射理论方法求解了线偏振光和圆偏振光分别经过高数值孔径物镜后在焦平面上的光场强度分布. 结果表明: x 方向线偏振光经过高数值孔径后的光强在 x 方向远大于 y 和 z 方向的光强, 所以仍然可以当作只有沿 x 方向的线偏振光, 即 $E = E_x$; 圆偏振光经过螺旋相位片再经过高数值孔径物镜后的光强分布, x 和 y 方向分量近似相等, 呈环形状, 而 z 方向的分量很小可以忽略. 该矢量衍射理论分析和模拟计算的结果可以更好地理解紧聚焦条件下 CARS 信号场的产生及其强度的空间分布特性. 然后, 根据光强分布得出相应光子数, 利用全量子理论分析了 CARS 过程, 得到了 APIPD 的点扩展函数, 并在合理参数下进行了模拟. 结果表明: 当附加探测光与探测光强度比为 80 时, APIPD 可以实现 45 nm 的横向空间分辨; 继续提高附加探测光强度, 空间分辨将进一步提高. 此外, 如果用具有良好时谱特性的超连续谱光源作为抽运光与斯托克斯光, 可以获得样品分子的宽带 CARS 光谱, 实现分子的精确定位与识别.

参考文献

- [1] Evans C L, Xie X S 2008 *Annu. Rev. Anal. Chem.* **1** 883
- [2] Cheng J X, Xie X S 2004 *J. Phys. Chem. B* **108** 827
- [3] Cheng J X, Jia Y K, Zheng G, Xie X S 2002 *Biophys. J.* **83** 502
- [4] Nan X, Potma E O, Xie X S 2006 *Biophys. J.* **91** 728

- [5] Beeker W P, Lee C J, Boller K, Groß P, Cleff C, Fallnich C, Offerhaus H L, Herek J L 2010 *Phys. Rev. A* **81** 012507
- [6] Beeker W P, Groß P, Lee C J, Cleff C, Offerhaus H L, Fallnich C, Herek J L, Boller K 2009 *Opt. Express* **17** 22632
- [7] Nikolaenko A, Krishnamachari V V, Potma E O 2009 *Phys. Rev. A* **79** 013823
- [8] Hajek K M, Littleton B, Turk D, McIntyre T J, Halina R D 2010 *Opt. Express* **18** 19263
- [9] Liu W, Niu H B 2011 *Phys. Rev. A* **83** 023830
- [10] Liu W, Liu S L, Chen D N, Niu H B 2014 *Chin. Phys. B* **23** 104202
- [11] Liu S L, Chen D N, Liu W, Niu H B 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 184210 (in Chinese) [刘双龙, 陈丹妮, 刘伟, 牛憨笨 2013 物理学报 **62** 184210]
- [12] Yin J, Yu L Y, Liu X, Wan H, Lin Z Y, Niu H B 2011 *Chin. Phys. B* **20** 014206
- [13] 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]
- [14] Parekh S H, Lee Y J, Aamer K A, Cicerone M T 2010 *Biophys. J.* **99** 2695
- [15] Paulsen H N, Hilligse K M, Thøgersen J, Keiding S R, Larsen J J 2003 *Opt. Lett.* **28** 1123
- [16] Krishnamachari V V, Potma E O 2007 *J. Opt. Soc. Am. A* **24** 1138
- [17] Richards B, Wolf E 1959 *Proc. R. Soc. Lond. A* **253** 358
- [18] Hao X, Kuang C, Wang T, Liu X 2010 *J. Opt.* **12** 115707
- [19] Liu W, Chen D N, Liu S L, Niu H B 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 164202 (in Chinese) [刘伟, 陈丹妮, 刘双龙, 牛憨笨 2013 物理学报 **62** 164202]

Nanometer resolution coherent anti-Stokes Raman scattering microscopic imaging*

Zhang Sai-Wen Chen Dan-Ni[†] Liu Shuang-Long Liu Wei Niu Han-Ben[‡]

(Key Laboratory of Optoelectronics Devices and Systems of Ministry of Education and Guangdong Province, College of Opto-Electronics Engineering, Shenzhen Key Laboratory of Biomedicine Engineering, Shenzhen University, Shenzhen 518060, China)

(Received 15 May 2015; revised manuscript received 1 August 2015)

Abstract

Coherent anti-Stokes Raman scattering (CARS) microscopy can break through the optical diffraction limit by applying the additional probe beam induced phonon depletion (APIPD). Using this method, we can obtain a spatial resolution beyond the optical diffraction limit by introducing a doughnut additional probe beam to deplete phonons at the periphery of the focal spot. To achieve higher spatial resolution and better phase matching conditions, it is necessary to use high numerical aperture objectives, whereas scalar diffraction theory is no longer valid. According to the full vector diffraction theory, we calculate the intensity distributions at the focal plane when the linearly and circularly polarized lights pass through a spiral phase plate and an objective with high numerical aperture successively. The result shows that the circular polarization can generate the perfectly doughnut-shaped focal spot, which is more suitable for the additional beam than the linear polarization induced beam. Furthermore, we analyze the APIPD induced CARS process with the full quantum theory. Simulations indicate that a spatial resolution as high as 45 nm could be realized when the ratio between the intensities of additional probe and probe is 80. And the spatial resolution turns higher with increasing the power of additional probe.

Keywords: circular polarized light, nanometer resolution, coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy, vector analysis

PACS: 33.20.Fb, 42.65.Dr, 78.47.jh, 42.65.-k

DOI: [10.7498/aps.64.223301](https://doi.org/10.7498/aps.64.223301)

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant Nos. 2012CB825802, 2015CB352005), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61335001, 61178080, 61235012, 11004136), the Special Funds of the Major Scientific Instruments Equipment Development of China (Grant No. 2012YQ15009203), the Science and Technology Planning Project of Shenzhen, China (Grant Nos. JCYJ20120613173049560, GJHS20120621155433884), and China Scholarship Council.

[†] Corresponding author. E-mail: dannyc007@gmail.com

[‡] Corresponding author. E-mail: hbniu@szu.edu.cn