

Applications of Femtosecond Pulse Shaping*

Funing Chen, Hua Zou

School of Science, Hohai University, Nanjing

Email: chenfuning_03@163.com

Received: May 29th, 2012; revised: Jun. 8th, 2012; accepted: Jun. 18th, 2012

Abstract: The femtosecond pulse shaping technology, which transforms the femtosecond pulse through temporal-spatial conversion to generate various kinds of wave form in need, has been widely applied in the areas including image processing in biomedicine, signalling, femtochemistry, etc. The applications of femtosecond pulse shaping technology in the areas of microscopic imaging, femtochemistry and communications are introduced. The improvement in the results of experiments with the femtosecond pulse shaping technology compared to the former experiments without the technology is found out.

Keywords: Femtosecond Pulse Shaping; Femtochemistry; Microscopic Imaging Technology

整形飞秒脉冲的应用*

陈甫宁, 邹 华

河海大学理学院, 南京

Email: chenfuning_03@163.com

收稿日期: 2012年5月29日; 修回日期: 2012年6月8日; 录用日期: 2012年6月18日

摘 要: 飞秒脉冲整形技术通过时空变换对飞秒脉冲进行处理, 以产生可满足需要的各种波形, 已经广泛应用在生物及医学成像、信号处理、飞秒化学等领域。介绍了整形飞秒脉冲在显微成像、飞秒化学和通信领域的应用, 对比了应用整形飞秒脉冲后的实验效果较之前的改进。

关键词: 飞秒脉冲整形技术; 飞秒化学; 显微成像技术

1. 引言

本飞秒激光是人类目前在实验室条件下所能获得的非常短的脉冲, 飞秒激光的出现使人类第一次在原子和电子的层面上观察到物质中分子和原子超快运动过程^[1,2]。脉冲整形技术对飞秒脉冲与物质飞秒动态控制等高端领域有着重要的意义, 是目前研究的重要内容。飞秒脉冲整形是通过时空变换技术将时域信息变换到空域, 在空域对脉冲进行处理, 之后再返回到时域以实现飞秒激光脉冲的整形、控制和测量, 可以得到不同时间分布的脉冲。时空变换整形技术是一

种简便易行, 有效且唯一实现时域整形的方法, 已成为认识飞秒动态世界的新工具^[3]。整形技术基本原理如下: 在时域中输入、输出脉冲分别表示为 $f(t)$ 、 $g(t)$, 滤波器的特性用脉冲响应 $h(t)$ 表示, 则输出脉冲 $g(t)$ 可表为 $g(t) = f(t) * h(t)$ 。在频域中输出脉冲可表为 $G(\omega) = F(\omega) * H(\omega)$, 其中 $G(\omega)$ 、 $F(\omega)$ 为 $g(t)$ 、 $f(t)$ 的傅里叶变换, $H(\omega)$ 为频率响应, 代表滤波器特性。通过改变 $H(\omega)$, 即可产生特定的输出波形。

自 Heritage 等人介绍飞秒脉冲整形这个领域以来, 已得到了迅速发展, 整形后的飞秒脉冲及其与物质的相互作用已是科学与技术的一个前沿学科, 具有深远的意义。在应用方面, 整形技术可产生各种所需

*资助信息: 中央高校业务经费(2009B27114)。

要的波形,应用在化学^[4,5]、信号处理和量子系统的连续控制^[6]、安全通讯^[7]、存储^[8]、医学和生物学成像^[9-11]和物理等方面。

原理示意图如图 1。一个高斯型脉冲经过脉冲整形装置后产生不同形状的脉冲,可以得到不同的实验结果。

2. 整形飞秒脉冲在显微成像领域的应用

2.1. 整形飞秒脉冲应用于双光子显微成像

多光子显微术是在共焦显微术的基础上提出来的。多光子显微术克服普通共焦显微术的不足,可实现更深的成像深度^[12],同时减小了光损伤^[13],增加了样品的使用寿命。

双光子激发是最简单的多光子激发过程。目前,以双光子技术为代表的多光子技术已经在生物及医学成像、三维信息存储、单分子探测、微加工等领域得到广泛应用,展示了广阔的发展前景。飞秒超短脉冲应用于多光子显微镜,使多光子显微镜的三维分辨率、侵入深度、散射效率、背景光、信噪比、控制等性能,均超越以往的激光显微镜^[14]。

应用整形飞秒脉冲的选择性激发双光子显微已经被证实^[10]。该方法应用飞秒脉冲整形技术选择性地激发一种类型的探测分子,而将其他分子留在基态。应用整形装置的多光子显微技术可以灵活地选择性激发探测分子,通过控制飞秒脉冲的空间位相来提高信号强度。选择性激发能够提高对比度,并且能够得到对化学环境敏感的(用荧光探针染色的)样品的函数图像。实验装置原理图见图 2。

通过电脑控制的空间光调制器进行相位调制,能够补偿样品的相位失真,一次,二次或更高阶的啁啾可以被补偿以达到最高效的激发。

2.2. CARS 显微成像技术的优化

本拉曼光谱作为分子振动检测工具,在生物学、化学、物理学以及材料科学等领域一直扮演着重要角色,但普通拉曼散射^[15]空间分辨率低、探测灵敏度差、信号强度很低,试验难度较大,难以得到理想的显微图像。相干反斯托克斯拉曼散射(CARS)成像具有去背景光噪声好,相干反斯托克斯强度大,方向性好等优点,因而可以代替普通拉曼散射作为显微成像信号。

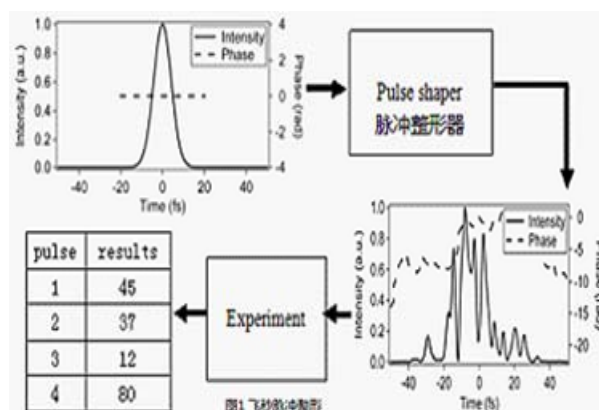


Figure 1. Femtosecond pulse shaping
图 1. 飞秒脉冲整形

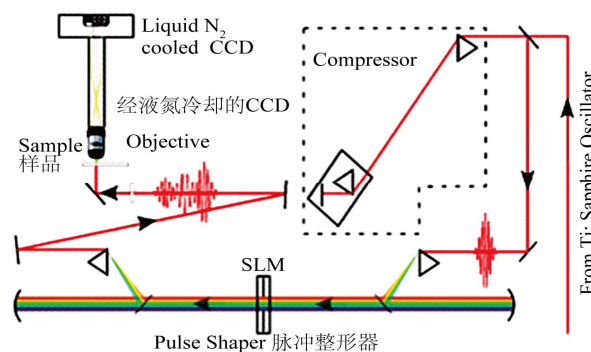


Figure 2. Schematic experimental setup for selective two-photon microscopy
图 2. 选择性双光子显微镜实验设备(原理图)

然而 CARS 本身也有一些缺陷,非共振四波混频(FWM)过程^[16]通常在反斯托克斯频率产生较强的背景噪声,会破坏谱线形状并损失图片对比度,并且激发光谱具有较宽的带宽而造成的相邻能级之间的干扰^[17]。所以对于 CARS 的研究领域而言,如何实现分子振动能级的精确激发,提高拉曼光谱的分辨率,非共振信号的去除以及相邻能级的选择激发变得尤为重要。

飞秒脉冲整形技术的应用很好的解决了这个问题^[9]。脉冲整形技术利用可编程的整形模板,可进行连续可变的位相控制,在特定算法程序控制下根据自适应度函数要求在设定空间内进行自动搜寻,从而找到满足条件的优化脉冲形状,最后得到想要的结果,并立即对整形装置进行反馈,在不知道系统的任何信息的情况下实现对分子振动能级的精确激发。

同时利用外差干涉方法除去非共振背景信号^[18],外差干涉方法利用共振和非共振部分的本质差异,即

共振是复数量，包含实部和虚部两部分，而非共振部分是实数量的特点，通过使用一个局域振荡场(LO)外差混合直接提取虚部信息实现抑制非共振背景噪声的目的。图 3 为实验装置图。

激光器产生的激光通过分光镜分为两束，分别作为泵浦光和斯托克斯光。其中一束通过产生局域振荡场的材料获得局域振荡场(LO)，局域振荡场作为外差干涉场与泵浦光和斯托克斯光同时共线送入一台显微镜系统，激发产生含有局域振荡场的 CARS 信号。通过有效提取不受非共振背景噪声影响的样品分子的共振部分的虚部响应，能够直接获得样品的 CARS 图像信息。PS 为脉冲整形装置，在此实验中为声光调制器，F 为可调谐的滤光片，OPA 为光参量放大器，DC 为双色镜，APD 为雪崩式光二极管。

实验装置能够从拉曼信号直接获得位相信息并且能够抑制非共振背景噪声，解决了 CARS 显微成像原有的缺点。

3. 整形飞秒脉冲在化学领域的应用

20 世纪 80 年代末，Zewail 利用超短激光成像技术，捕捉到一百万亿分之一秒瞬间处于化学反应中的原子间的化学键断裂和形成的过程，Zewail 创立的这种物理化学被称为“飞秒化学”^[19]。

激光问世之初便被视为控制化学反应的理想工具，即通过选择性的断裂或形成化学键来实现这一过程。但是在大多数的试验中，这种选择性被快速的分子内的能量再分配所削弱^[20]。飞秒脉冲整形技术的应用很好地解决了这个问题^[21]。

该过程以实验输出结果作为反馈，利用合适的进化算法对飞秒脉冲进行整形，同时以反馈结果为依据不断地提高脉冲质量，因此该系统可以自动搜寻最优整形方案以达到预期实验目的。图 4 为实验装置图。

在实验中飞秒整形脉冲已作为一种新的化学试剂参与化学反应^[4]，实验上实现了利用激光结合脉冲整形技术和闭合循环程序来控制化学反应，改变化学产物。整形脉冲的优化过程不需要样品以及实验环境的信息。

4. 整形飞秒脉冲在通讯领域的应用

CDMA(Code Division Multiple Access)又称码分

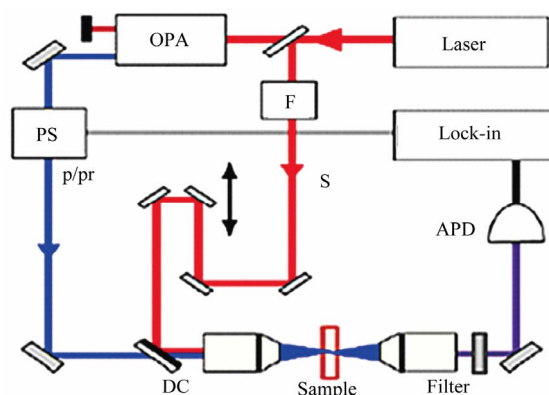


Figure 3. Experimental setup for phase-cycling CARS
图 3. 应用脉冲整形技术的 CARS 显微成像装置图

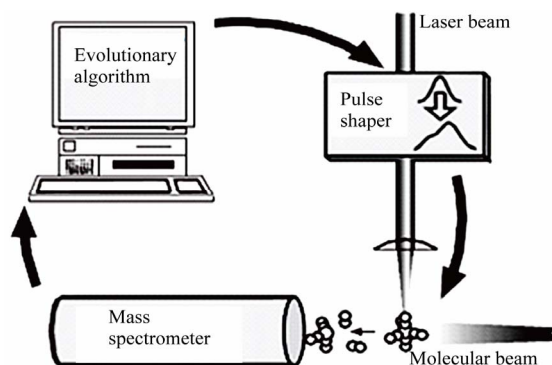


Figure 4. Schematic experimental setup
图 4. 实验装置原理图

多址，是在无线通讯上使用的技术。飞秒 CDMA 通讯测试平台整合了几个先进的子系统，包括用于编码-解码的低损耗光纤尾纤整形器、用于脉冲传输过程中色散补偿环节的色散补偿光纤等^[7]。应用于局域网的飞秒脉冲 CDMA 装置结构框图见图 5。

重点介绍用于编码-解码的脉冲整形装置。通过具有高分辨性、可编程性以及灵活性(可应用于不同代码长度)的飞秒脉冲整形装置来完成编码-解码操作。这里应用两个独立的脉冲整形装置在 1.55 微米的通讯波长工作，当两个整形装置相距 2.5-km(用光纤连接)时仍可进行编码-解码操作。

同时将整形装置做了尾纤(可与其他装置连接)处理，这样既增加了整个系统中脉冲整形装置之间连接的便利性，又可将它们分开作为单独的装置进行操作。实验中光纤与光纤间的插入损耗仅有 5.3 dB。整形装置见图 6。

在这个整形装置中，从光纤尾纤输入的平行光首先在光栅上衍射，随后不同的光谱分量通过消色差透

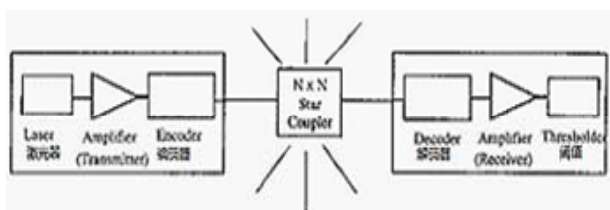


Figure 5. Block diagram of the femtosecond CDMA test bed
图 5. 飞秒 CDMA 测试平台框图

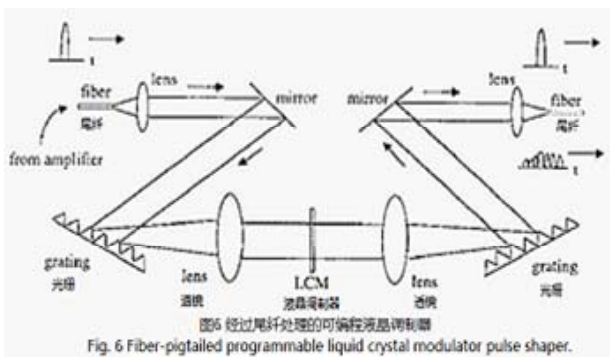


Figure 6. Fiber-pigtailed programmable liquid crystal modulator pulse shaper
图 6. 经过尾纤处理的可编程液晶调制器

镜汇聚。应用脉冲整形技术来编码 - 解码的飞秒 CDMA 系统能够消除光节拍噪声对通讯效果的影响。

6. 结语

飞秒激光已经广泛应用于各个领域，为了达到更好的实验效果普遍使用脉冲整形技术。可以预测脉冲整形技术必将成为未来激光器的标配。通过上述实验也能发现，整形飞秒脉冲通常与优化算法组合形成闭环程序，以达到最优的整形效果。

参考文献 (References)

[1] C. Daniel, J. Full, L. Gonzalez, C. Lupulescu, J. Manz, A. Merli, S. Vajda and L. Woste. Deciphering the reaction dynamics underlying optimal control laser fields. *Science*, 2003, 299(5606): 536-539.
 [2] R. J. Levis, G. M. Menkir and H. Rabitz. Selective bond dissociation and rearrangement with optimally tailored, strong-field laser pulses. *Science*, 2001, 292(5517): 709-713.
 [3] 邹华, 周常河. 飞秒脉冲时空变换整形技术[J]. 激光与光电

子学进展, 2005, 42(2): 2-6.
 [4] H. Rabitz. Shaped laser pulses as reagents. *Science*, 2003, 299(5606): 525-527.
 [5] R. N. Zare. Laser control of chemical reactions. *Science*, 1998, 279(5358): 1875-1879.
 [6] H. Rabitz, R. de Vivie-Riedle, M. Motzkus and K. Kompa. Whither the future of controlling quantum phenomena. *Science*, 2000, 288(5467): 824-828.
 [7] H. P. Sardesai, C.-C. Chang and A. M. Weiner. A femtosecond code-division multiple-access communication system test bed. *Journal of Lightwave Technology*, 1998, 16(11): 1953-1964.
 [8] Q. Liu, G. H. Cheng, Y. S. Wang, Z. Cheng, W. Zhao and G. F. Chen. Three-dimensional optical storage in fused silica using modulated femtosecond pulses. *Journal of Chinese Optics Letters*, 2004, 2: 292-294.
 [9] B. L. Li, W. S. Warren and M. C. Fischer. Phase-cycling coherent anti-Stokes Raman scattering using shaped femtosecond laser pulses. *Journal of the Optical Society of America*, 2010, 18(25): 25825-25832.
 [10] I. Pastirk, J. M. D. Cruz, K. A. Walowicz, V. V. Lozovoy and M. Dantus. Selective two-photon microscopy with shaped femtosecond pulses. *Journal of the Optical Society of America*, 2003, 11(14): 1695-1701.
 [11] E. M. Grumstrup, S.-H. Shim, M. A. Montgomery, N. H. Damerauer and M. T. Zanni. Facile collection of two-dimensional electronic spectra using femtosecond pulse-shaping technology. *Journal of the Optical Society of America*, 2007, 15(25): 16681-16689.
 [12] V. E. Centonze, J. G. White. Multiphoton excitation provides optical sections from deeper within scattering specimens than confocal imaging. *Journal of Biophysics*, 1998, 75(4): 2015-2024.
 [13] A. Periasamy, P. Skoglund, C. Noakes and R. Keller. An evaluation of two-photon excitation versus confocal and digital deconvolution fluorescence micros. *Microscopy Research and Technique*, 1999, 47(3): 172-181.
 [14] 杨云龙, 严佩敏, 陈艳. 多光子泵浦激光扫描显微镜[J]. 激光与光电子学进展, 2000, 6: 29-33.
 [15] G. Turrell, J. Corset. Raman microscopy development and applications. San Diego: Academic, 1996: 1-28.
 [16] J. X. Cheng, X. S. Xie. Coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy: Instrumentation, theory, and applications. *Journal of Physical Chemistry B*, 2004, 108(3): 827-840.
 [17] J. X. Cheng, A. Volkmer and X. S. Xie. Theoretical and experimental characterization of coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy. *Journal of the Optical Society of America B*, 2002, 19(6): 1363-1375.
 [18] E. O. Potma, C. L. Evans and X. S. Xie. Heterodyne coherent anti Stokes Raman scattering (CARS) imaging. *Journal of Optical Letters*, 2006, 31(2): 241-243.
 [19] B. Schwarzchild. Nobel prize goes to Zewail for developing femtochemistry. *Journal of Physics Today*, 1999, 52(12): 19-21.
 [20] W. S. Warren, H. Rabitz and M. Dahleh. Coherent control of quantum dynamics: The dream is alive. *Science*, 1993, 259(5101): 1581-1589.
 [21] A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle and G. Gerber. Control of chemical reactions by feedback-optimized phase-shaped femtosecond laser pulses. *Science*, 1998, 282(5390): 919-922.