

飞秒光镊技术研究与应用进展

张聿全, 张硕硕, 闵长俊, 袁小聪*

深圳大学微纳光电子学研究院纳米光子学研究中心, 广东 深圳 518060

摘要 作为捕获与操纵微观粒子的重要手段, 光镊技术因其具有非接触和高精度操控等优势在物理、化学和生物医学等领域得到了广泛的研究及应用。飞秒激光超高的峰值功率能够有效激发被捕获物体的非线性光学响应, 同时超短的脉冲输出可以在光与物质相互作用的过程中产生更小的热效应, 从而在光学微操控中展现出特有的优势。本文综述了飞秒激光光镊的研究进展, 详细讨论了其中涉及的非线性效应和应用, 并对其发展前景进行了展望。

关键词 激光技术; 光镊; 飞秒激光; 非线性光学效应; 光学力

中图分类号 O436

文献标志码 A

doi: 10.3788/CJL202148.1918001

1 引言

光镊是一种利用光来捕获和操纵微观粒子的重要手段, 其技术核心在于光与物质颗粒之间通过动量传递所产生的力学效应, 并以此实现对微观物体的三维高精度操控^[1]。1986 年, 美国贝尔实验室的 Ashkin 等^[2]首次利用单个高度聚焦的激光光束实现了对水中介质微球的三维捕获, 这标志着光镊技术的诞生。不同于传统意义上的机械夹持, 光镊凭借光与物质之间相互作用所产生的微小作用力(通常约为 pN 量级)对样品进行捕获、移动和排列等空间位置的操控, 该过程具有非接触、低损伤和强穿透等优点^[3]。经过近 40 年的发展, 光镊技术已经在物理、化学和生物医学等领域得到了广泛的研究和应用^[4-7]。

2018 年, 光镊技术的发明人 Ashkin 因其在激光微操控方面的开创性工作获得了诺贝尔物理学奖。同年, Mourou 和 Strickland 也因发明啁啾脉冲放大(CPA)技术与 Ashkin 共享了这一奖项^[8], 该技术极大地推动了超强超快激光技术的革新, 开创了飞秒脉冲放大的新时代, 而且在国内外诸多大型激光装置中都得到了应用^[9-10]。传统的光镊技术多是基于连续激光与物质的相互作用实现对样品颗粒的捕获和操控, 其捕获功率一般介于毫瓦至瓦量级

之间, 通常不会引起样品本身和周围环境物理性质的改变。相比之下, 飞秒激光的超强峰值功率可以诱发烧蚀和双光子吸收等现象, 并使样品颗粒的基本物理参数(折射率、介电常数和极化率等)呈现非线性变化^[11-12], 这为光镊技术未来的发展提供了新的方向。同时, 飞秒激光的超短脉冲持续时间可以有效降低光与物质相互作用所产生的热效应^[13], 并且脉冲所具有的时间分辨特性可用于实现微观动力学过程的探测和研究^[14-15], 为光镊技术更加强大和多样化的功能及应用奠定了基础。

作为当前国际光学领域的一个前沿课题, 近年来对于飞秒光镊技术的研究较为广泛。在此基础上, 本文综述飞秒光镊技术的相关理论及最新研究成果, 简要概述飞秒光镊的基本原理, 重点介绍飞秒光镊的代表性应用和其中涉及的非线性光学效应, 最后展望飞秒光镊的发展趋势与发展前景。

2 飞秒光镊的基本原理

光是一种电磁波, 具有波粒二象性, 因此其不仅可以体现出一般电磁场所具有的频率和波长属性, 还可以表现出粒子所具有的能量与动量。当光照射到物体表面时, 由于反射和折射的作用会使光的初始动量发生改变, 根据动量守恒定律可知, 被照射物

收稿日期: 2021-06-15; **修回日期:** 2021-07-15; **录用日期:** 2021-08-05

基金项目: 国家自然科学基金(91750205, 61975129, 61935013, 61975128)、广东省领军人才项目(00201505)、广东省自然科学基金(2016A030312010, 2019TQ05X750)、深圳市孔雀计划(KQTD20170330110444030)、深圳市科创委项目(ZDSYS201703031605029, JCYJ20210324120403011, JCYJ20180507182035270)

通信作者: *E-mail: xcyuan@szu.edu.cn

体此时将会获得一个与光束动量改变大小相等且方向相反的动量,同时根据牛顿第二定律可知,物体会受到一个与自身在单位时间内动量变化量相等的作用力,即 $F = \Delta P / \Delta t$,其中 F 为作用力, ΔP 为动量变化量, Δt 为作用时间。在光与物质相互作用的过程中,这种力学效应是普遍存在的,但由于普通光源的能量密度较小,因此很难在宏观上感受到这种力的作用。直到 1960 年,激光器的发明才使这种力学效应得以在显微系统中表现出来,光镊对微小颗粒的非接触式操控就是通过光子的动量转移来实现的。

颗粒在光场中的受力可以简单区分为梯度力和散射力,其中梯度力正比于光场的强度梯度,其作用是将颗粒沿着梯度方向吸引至光强的最大位置,而散射力的作用是将颗粒沿着光的传播方向推离捕获区域^[16-18]。为了对颗粒形成稳定束缚,梯度力必须大于散射力,所以通常将入射光通过显微镜聚焦到很小的区域以提供足够的光强梯度。事实上,在光镊系统中,光场与微粒的相互作用是一个非常复杂的过程,以至于目前仍未建立一个统一的模型来分析不同尺度和不同属性的微观颗粒在宏观电磁场中的动力学特性。根据颗粒半径 a 与捕获波长 λ 的相对关系^[19],通常将粒子划分为米氏颗粒($a \gg \lambda$)、介观颗粒($a \sim \lambda$)以及瑞利颗粒($a \ll \lambda$)。针对上述三种颗粒,需要分别采用几何光学模型^[20]、电磁理论模型^[21]和瑞利散射模型^[22]进行受力分析。

颗粒捕获是一个相对缓慢的过程,因此颗粒在光场中的受力情况即是求解时间平均光学力的结果。不同于连续激光的持续作用,飞秒激光的脉冲持续时间极短,为此颗粒在相邻两个脉冲之间会因为布朗运动和重力等影响而偏离捕获中心,并且在下一个脉冲作用下被重新捕获^[23]。因此,在考虑飞秒激光捕获颗粒的过程中,通常将其简化为对连续光的抽样结果进行分析,并综合考虑光学力与布朗运动之间的关系以衡量飞秒光镊的捕获性能。在这方面,天津大学王清月课题组建立了用于飞秒光镊受力分析的抽样模型^[24-26],并通过一系列实验研究验证了飞秒光镊的可行性^[27-30]。在不考虑非线性效应的条件下,作用在颗粒上的时间平均光学力由入射光的平均功率决定,因此飞秒光镊的受力分析结果与传统光镊不会有质的区别。

飞秒激光的另一个显著特征是其本身具有超高的峰值功率,所以聚焦后的电场强度很容易达到 $10^{15} \sim 10^{18} \text{ V}^2/\text{m}^2$ 以上^[31]。在该电场强度下,多数非线性材料足以引起明显的非线性效应,导致材料

的基本物理参数发生变化。而光镊的受力情况恰好与样品及周围环境的物理性质有关,因此非线性效应所导致的参数改变将会引起受力情况发生变化,甚至出现完全不同于线性条件下的受力分布,从而建立非线性条件下新的受力平衡。通常,非线性效应需要考虑粒子与周围环境两部分的贡献,具体内容将在后文论述。

3 飞秒光镊的研究与应用进展

作为操控微观颗粒的一种有效工具,光镊能够直接操控的粒子尺寸范围从几十纳米到几十微米^[32],与当前微尺度科学研究拥有极高的契合度,因此在物理、化学和生物学等诸多前沿领域都得到了广泛的研究和应用。随着光镊技术研究的不断深入,飞秒光镊技术在科研人员的探索下逐渐展现出旺盛的生命力。与连续型光镊类似,飞秒光镊的研究也经历了由传统飞秒光镊到近场飞秒光镊的发展过程。与此同时,飞秒激光的超高峰值功率能够在光与样品相互作用的过程中激发产生各种非线性效应。非线性效应的引入使得光镊系统出现许多新奇的颗粒捕获与操控效果,因此基于非线性效应的飞秒光镊技术在最近几年得到关注。下文将针对以上三种飞秒光镊技术的研究与应用分别进行综述。

3.1 传统飞秒光镊的研究及应用

由于飞秒激光的脉冲持续时间极短,避免了因激光连续作用引起的热量积累,并且在脉冲之间可以对前期所产生的热量进行耗散,所以采用飞秒激光作为光镊系统的捕获光源能够减少对样品的热损伤,从而在保证生物活性的同时对样品进行空间位置的操控,非常适合生命科学领域的研究。

2005 年,天津大学 Mao 等^[27]采用自行搭建的飞秒光镊对人体的血红细胞进行了捕获实验,结果如图 1 所示,其中数字 1 和 2 分别用于指示目标细胞和参考细胞。目标细胞和参考细胞的相对位置变化表明细胞被稳定捕获,该实验结果显示了飞秒光镊对于捕获生物细胞的有效性,展示了飞秒光镊用于生物学研究的应用前景。2008 年,江苏大学 Zhou 等^[33]借助类似实验研究了不同激光功率下红细胞的捕获状态,发现当入射功率超过 2.8 mW 时,飞秒光镊不仅可以捕获细胞,还可以使其发生翻转,表明细胞的捕获状态可以通过功率进行调节。2014 年,哈尔滨工业大学 Li 等^[34]利用飞秒光镊在自制的微流体通道中实现了对枯草芽孢杆菌的操控和分选。将微流体通道(或芯片)与光镊系统结合可以大大减少所需要的样品通

量,非常适合低含量目标的操控,使其能够在单细胞水平对样品进行精确处理,并且为捕获后的样品提供

了一个集成、通用和高效的分析平台,成为现阶段光镊发展的一个重要方向^[35]。

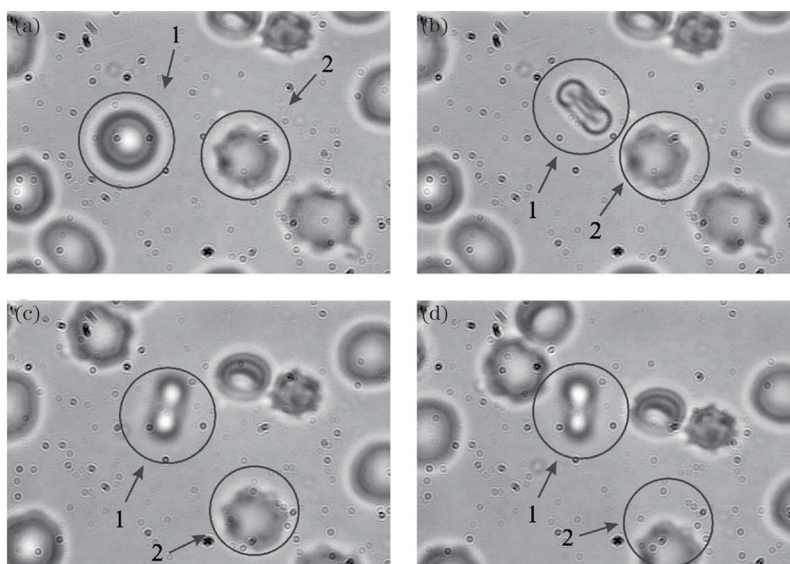


图 1 飞秒光镊所捕获的人体血红细胞^[27]。(a)未被捕获的目标细胞;(b)~(d)被捕获的目标细胞
Fig. 1 Human red blood cells captured by femtosecond optical tweezers^[27]. (a) Untrapped target cell; (b)~(d) trapped target cells

上述工作都是对细胞进行捕获或者移动,不会改变细胞的自身结构。然而,在细胞的生化分析中,上述工作对细胞的进一步处理,特别是裂解或是融合具有重要意义。细胞裂解是细胞分析的第一步,其能够打破细胞膜并将膜内物质释放出来用于表征和提纯^[36]。细胞融合则是细胞分化和胚胎形成的一个重要过程,目前被广泛用来研究和分析人体基因表达、免疫治疗以及组织生成^[37]。细胞融合一

般通过物理、化学或生物的处理方法进行介导^[38],这些方法虽然可以同时处理一定量的样品,但是缺少操控精度,很难实现特异性融合。利用光镊高精度操控的优点,以及飞秒激光的高峰值功率可以改变细胞膜的渗透性,促使细胞融合。2008年,香港中文大学 He 等^[39]利用飞秒光镊实现了两个人体癌细胞的融合,细胞融合效率在不添加任何促融剂的情况下可以达到35%~37%,融合过程如图2所示。

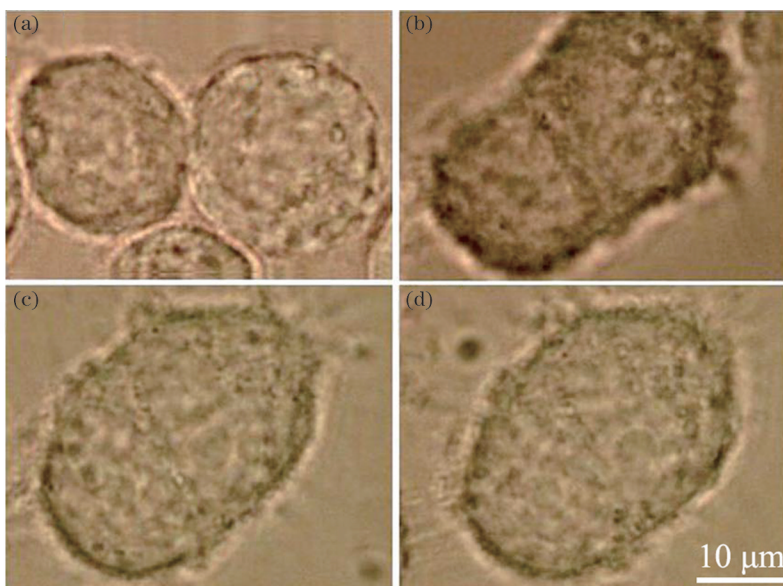


图 2 飞秒光镊所诱导的细胞融合过程及激光照射后不同时刻的细胞状态^[39]。(a) 10 s;(b) 1.5 h;(c) 3.0 h;(d) 4.0 h
Fig. 2 Cell fusion process induced by femtosecond optical tweezers and cell state at different time after laser exposure^[39]. (a) 10 s; (b) 1.5 h; (c) 3.0 h; (d) 4.0 h

从图 2 可以看到,经过短时间的飞秒激光曝光后,两个相邻细胞会因为细胞膜的渗透性增加而逐渐融合在一起,最终在曝光 4 h 后得到一个完整的杂交细胞,如图 2(d)所示。

飞秒光镊另一个重要的生物学应用是实现细胞转染,即将外源基因片段如 DNA 和 RNA 等引入活细胞中。外部基因进入细胞后,细胞内的遗传物质将会发生变化。作为一种新的基因治疗手段,细胞转染为治疗某些遗传疾病提供了可行方案^[40]。目前已有许多成熟的转染技术,但基本都是针对多个细胞同时需要转染的情况,不能用于细胞群中某一

特定细胞的靶向操作。近年来,飞秒激光介导的细胞膜穿孔技术为细胞转染提供了一种兼具细胞选择性、非接触性和无菌性的操作方法^[41]。2013 年,韩国研究人员利用近红外飞秒光镊系统实现了对单个人乳腺癌细胞(MCF-7)的转染^[42],细胞转染的完整过程如图 3 所示。首先通过聚焦的飞秒激光对细胞膜进行精确穿孔,然后借助光镊将质粒包裹的微粒插入细胞中,其中质粒携带外部遗传信息,最后将外源基因引入细胞中。该研究还分析了激光功率、照射时间和穿孔大小等因素对转染效率、细胞活性及愈合时间的影响,为细胞存活创造最佳条件。

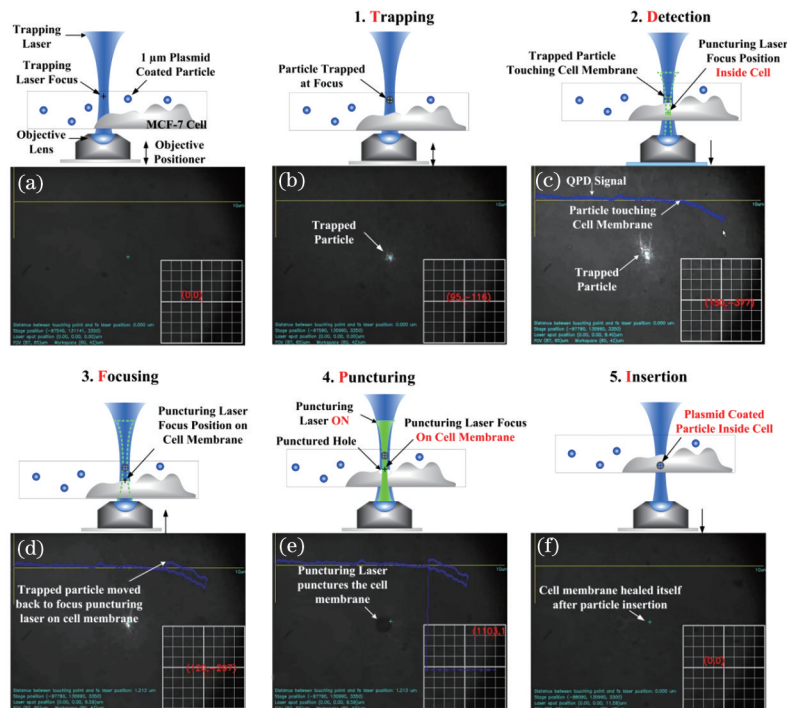


图 3 飞秒光镊转染细胞的全过程^[42]

Fig. 3 Full process of cell transfection with femtosecond optical tweezers^[42]

因为光镊系统通常是以光学显微系统为基础建立的,除了能够对生物细胞进行各种复杂的操控以外,还可以用于对活体细胞的荧光显微成像^[43-44]。另外,飞秒光镊还可以与其他表征手段相结合,比如表面增强拉曼散射光谱(SERS)技术或者针尖增强拉曼散射光谱(TERS)技术^[45-46],对捕获的细胞和细胞器等实现了原位的物性分析。同时,利用飞秒激光的时间分辨特性可以进行生物分子的超快动力学研究等^[14,47]。

3.2 近场飞秒光镊的研究及应用

无论是传统连续型光镊,还是传统飞秒光镊,都是通过具有高数值孔径的显微物镜对入射的连续光或飞秒脉冲进行聚焦,在远场焦点处形成一个三维的光学势阱,以此实现对微粒的捕获与操控。由于远场衍射极限的存在,势阱的空间尺寸通常在 200 nm 以

上,因此对于纳米级粒子(原子、分子和量子点等)的捕获效率较低^[17]。虽然增加功率可以增大纳米粒子的捕获概率,但是巨大的光强也会对捕获样品造成一定的损伤^[48]。为了减小捕获颗粒的有效尺寸,科研人员提出了近场光镊技术,该技术大大提高了纳米粒子的捕获效率,其中以表面等离子激元(SPP)光镊的应用最为广泛^[49-52]。然而,该技术仍不可避免地将捕获物体持续地暴露在高强度区域,从而对活细胞等光敏性样品带来热损伤。为了解决这一问题,将飞秒激光与近场光镊技术结合,利用脉冲间的温度耗散作用可以最大程度地减少热损伤。另外,基于特殊设计的金属等离子体纳米结构可以进一步将电磁能量局域到纳米尺度,从而达到突破衍射极限的目的^[53-57]。

2012 年, Roxworthy 等^[58]在基于蝶形金属纳

米天线阵列的 SPP 光镊系统中,采用飞秒激光作为输入光源来改善对颗粒的捕获效果,捕获原理如图 4 所示。与采用连续光作为输入光源的情况相比,光阱的捕获刚度提升了 2 倍,同时捕获颗粒的双光子荧光效应也得到了显著增强。2013 年,Shoji 等^[59]利用飞秒激光照射玻璃基底上的金纳米锥二聚体阵列,通过控制光源的开启及闭合实现了对

λ -DNA 分子的可逆捕获与释放,如图 5 所示。该技术还可用于控制其他生物分子,如核酸、蛋白质和多糖等,在生物传感器领域具有潜在的应用。2016 年,Kotsifaki 等^[60]设计了一种由镀金黑硅组成的纳米阵列,通过飞秒脉冲激发结构的表面等离子体共振效应实现了对聚苯乙烯微球的增强捕获,在共振波长下,系统的捕获效率 Q 高达 0.147 ± 0.044 。

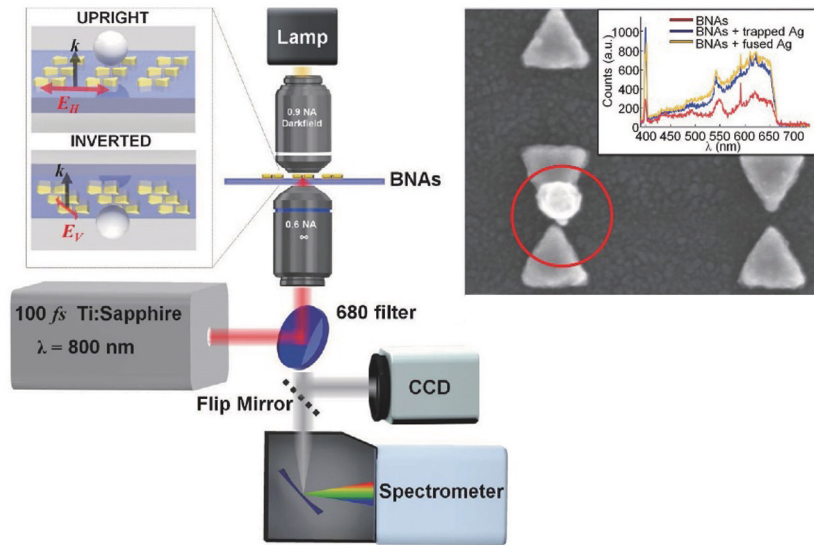


图 4 基于金属纳米天线阵列的飞秒光镊系统^[58]

Fig. 4 Femtosecond optical tweezers system based on metallic nanoantenna arrays^[58]

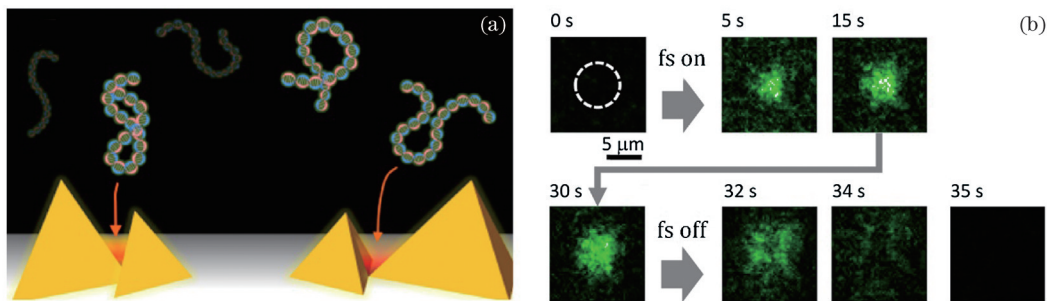


图 5 基于金纳米锥二聚体阵列的飞秒光镊系统的原理及实验结果^[59]。

(a)原理示意图;(b)由飞秒脉冲控制 DNA 分子的可逆捕获与释放过程

Fig. 5 Principle and experimental results of femtosecond optical tweezer system based on gold nanocone dimer array^[59] .

(a) Schematic principle; (b) reversible trapping and release process of DNA molecules controlled by femtosecond pulses

上述工作都是基于一些实验研究来验证近场飞秒光镊的可行性,然而相关的理论分析同样重要。2021 年,深圳大学 Zhang 等^[61]计算了量子点颗粒在聚焦飞秒激光照射的金属蝶形结构中的受力与势阱分布,结果如图 6 所示。从图 6 可以看到,激发产生的飞秒 SPP 被有效限制在由两个金属三角形纳米结构组成的间隙区域,由此产生的局域场梯度将样品颗粒吸引至结构尖端,并在间隙区域形成两个稳定的光学势阱,此外这两个光阱之间的距离和势阱深度也可以通过改变激发光

强来调节。

近场光镊在最近十年的发展迅速,其弥补了传统光镊无法对纳米颗粒进行精确操控的不足,能够操控的样品尺寸已经达到了单分子水平^[56]。以飞秒激光作为捕获光源的新型近场光镊技术目前相关的报道还较少,无论是作用机制,还是潜在应用研究,都还有巨大的发展空间。另外,多数近场光镊依赖于复杂的金属纳米结构,在一定程度上限制了近场飞秒光镊的发展以及系统灵活动态操控的能力,这一方面还有待于改进。

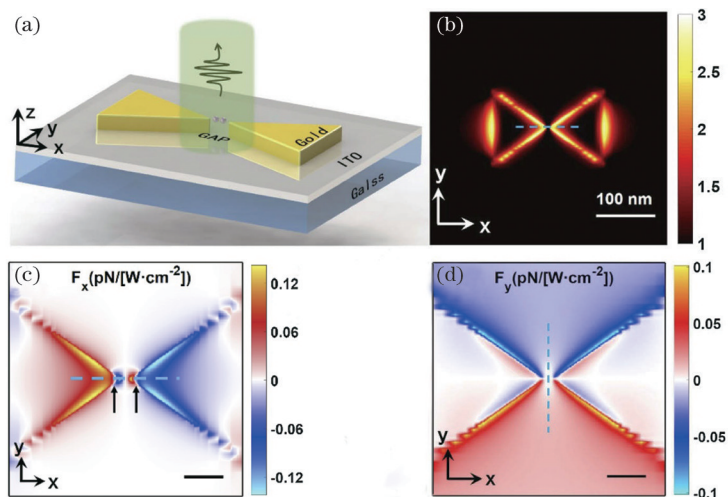


图 6 基于金属领结结构的飞秒光镊系统及其受力分析^[61]。(a)原理图;(b)局域电场分布;
(c)横向光力的 x 分量;(d)横向光力的 y 分量

Fig. 6 Femtosecond optical tweezers system based on metallic bowtie structure and its force analysis^[61]. (a) Schematic principle; (b) local electric field distribution; (c) x -component of transverse optical force; (d) y -component of transverse optical force

3.3 非线性飞秒光镊的研究及应用

虽然飞秒光镊系统已经在很多领域得到了应用,但是前期报道的对于大多数飞秒光镊的操控仍是基于光与物质的线性相互作用来实现的,这是因为在低平均功率下系统的非线性效应不明显,基本可以认为其是线性的。伴随着激光功率的增加,强激光脉冲与物质的相互作用能够激发多种显著的非线性效应,包括双光子荧光^[62]、二次谐波^[63]和光克尔效应^[64]等。其中光克尔效应能使物质的介电常数和极化率等参量发生非线性变化,从而打破线性条件下的受力平衡,并表现出不同于线性光镊的捕获效果。目前,对

于非线性飞秒光镊的研究主要是光克尔效应所引起的颗粒非线性极化,其他非线性效应在飞秒光镊中的实际应用还有待进一步的研究开发。相对于电介质颗粒,金属颗粒具有更强的非线性光学响应,为此其成为研究光与物质非线性相互作用的理想对象。

2010年,Jiang等^[65]首次报道了利用飞秒激光捕获金纳米颗粒的过程中所出现的“光阱劈裂”现象。他们发现,当入射功率超过某一阈值时,之前在连续激光入射的条件下形成的单个光阱会一分为二,并且同时捕获两个颗粒,而光阱劈裂的方向与入射光的偏振方向一致,如图7所示,其中箭头表示入

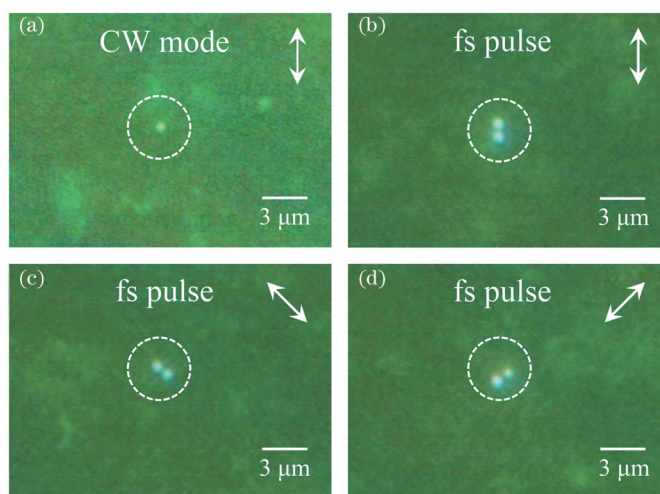


图 7 金纳米颗粒在连续波和飞秒激光脉冲入射下的不同捕获状态^[65]。(a)线偏振连续波入射下的捕获状态;
(b)~(d)具有不同偏振取向的飞秒激光脉冲入射下的捕获状态

Fig. 7 Different trapping states of gold nanoparticles under incidence of continuous-wave and femtosecond laser pulses^[65].
(a) Trapping state under incidence of continuous-wave with linear polarization; (b)~(d) trapping states under incidence of femtosecond laser pulses with different polarization directions

射光的偏振方向。进一步分析表明,由飞秒激光的高峰值功率引起的颗粒非线性极化效应是形成光阱劈裂的根本原因。该工作证明了克尔效应在飞秒光镊系统中的重要作用,开启了非线性光镊研究的大门。

2018 年,东南大学 Gong 等^[66]基于颗粒的线性和非线性极化效应建立了非线性纳米颗粒在飞秒聚焦光场中的受力模型,并且利用该模型分析了颗粒

的非线性折射率 n_2 对时间平均光学力的影响。结果表明,具有自聚焦效应的颗粒($n_2 > 0$)能够增强光阱的俘获能力和提高光阱的捕获刚度,而具有自散焦效应的颗粒($n_2 < 0$)会导致光阱发生横向劈裂使光阱失稳,如图 8 所示。该结果从颗粒自散焦的角度解释了光阱劈裂的原因,与已报道的实验观测结果相符,并为飞秒光镊捕获非线性纳米颗粒提供了理论支持。

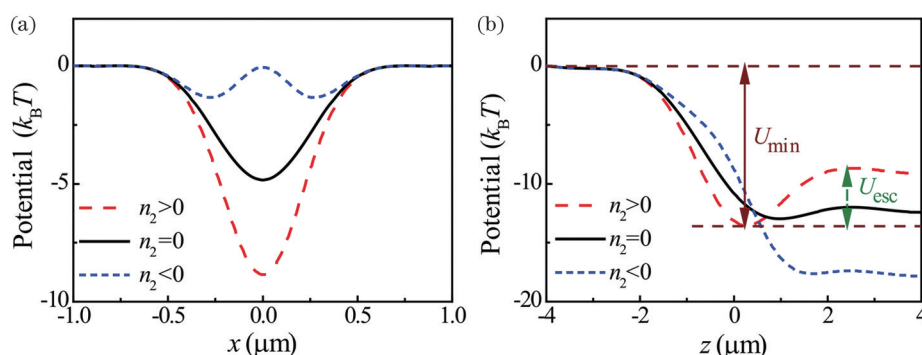


图 8 不同非线性折射率 n_2 的颗粒在不同方向下的势阱分布^[66]。(a)横向;(b)纵向

Fig. 8 Potential well distribution of particles with different nonlinear refractive index n_2 in different directions^[66].

(a) Horizontal; (b) longitudinal

同年,深圳大学 Zhang 等^[67]利用高阶柱矢量飞秒光束实现了对金纳米颗粒的多重俘获,捕获结果如图 9 所示。该工作通过对比颗粒在连续和飞秒激光聚焦场中的受力与光阱分布,从理论和实验上揭示并验证了线性与非线性条件下颗粒受力的不同物理机制。在非线性条件下,由电场纵向分量产生的

光学力将发挥主导作用并建立新的受力平衡,从而在纵向电场分布的位置形成多个势阱,达到同时捕获多个颗粒的效果。该工作结果表明,通过改变入射光的偏振方向和强度可以实现对捕获颗粒物理性质与空间位置的灵活调控,增加了光镊操作的自由度。

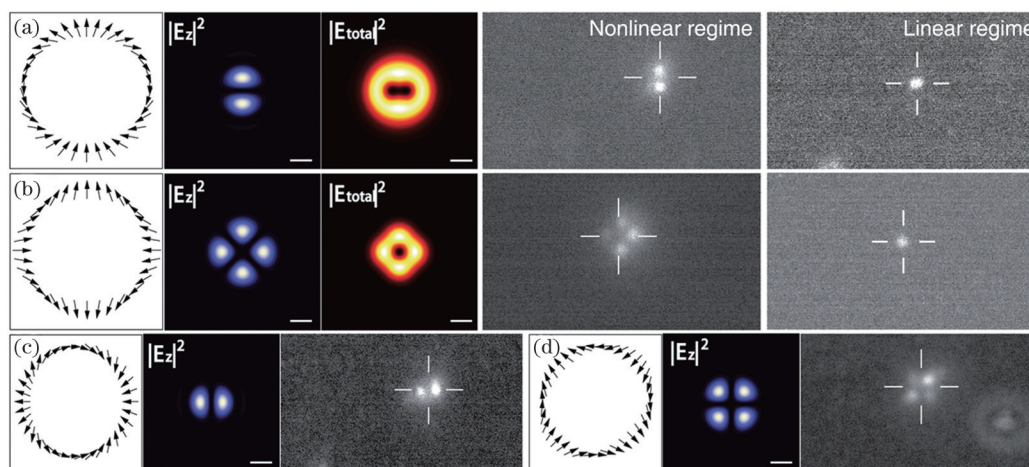


图 9 金纳米颗粒在不同入射偏振条件下的线性及非线性捕获效果^[67]。(a)金纳米颗粒在偏振阶数 $m=2$ 的飞秒柱矢量光束入射下的捕获效果;(b)金纳米颗粒在偏振阶数 $m=-1$ 的飞秒柱矢量光束入射下的捕获效果;(c)(d)旋转入射偏振方向的捕获效果

Fig. 9 Linear and nonlinear trapping of gold nanoparticles under various incident polarization conditions^[67]. (a) Trapping behavior of gold nanoparticles under incidence of femtosecond cylindrical vector beam with polarization order $m=2$; (b) trapping behavior of gold nanoparticles under incidence of femtosecond cylindrical vector beam with polarization order $m=-1$; (c)(d) capture effect of rotating direction of incident polarization

前期研究大多只关注颗粒自身的非线性效应,而周围环境的非线性效应在很大程度上被忽略了。2019 年,东南大学 Gong 等^[68]将浸没在非线性液体中的 Si₃N₄ 颗粒作为研究对象,理论分析了其在飞秒激光聚焦场中的三维光力分布。研究发现,在特定波长(波长为 420 nm)的激发下,颗粒能够被连续

地往光源方向拖拽而形成反向拉力,如图 10 所示。引起该现象的主要原因是环境液体存在双光子吸收而产生了负的辐射压力,该工作结果证明施加在颗粒上的时间平均光学力不但可以通过改变电磁场的空间分布与颗粒自身的物理性质来操控,也可以通过环境液体的非线性效应来主动调节。

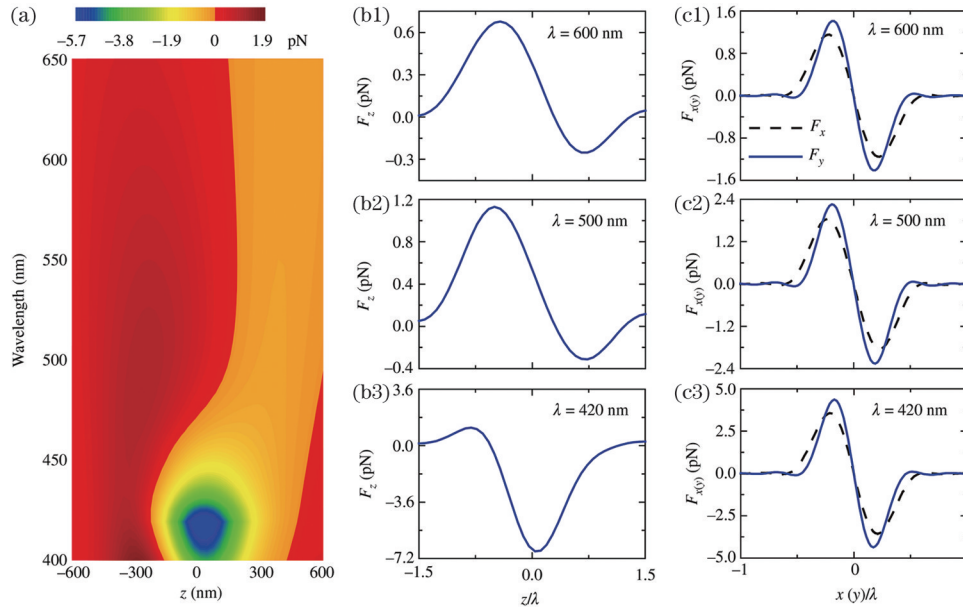


图 10 捕获波长对于非线性液体中 Si₃N₄ 颗粒受力的影响^[68]。(a) 400~650 nm 波长范围内的受力分布;(b1)~(b3) 在 420,500,600 nm 的飞秒激光脉冲照射下,施加在 Si₃N₄ 颗粒上的纵向光力;(c1)~(c3) 在 420,500,600 nm 的飞秒激光脉冲照射下,施加在 Si₃N₄ 颗粒上的横向光力

Fig. 10 Impact of trapping wavelength on force distribution for Si₃N₄ particles in nonlinear liquid^[68]. (a) Force distribution within wavelength range from 400 nm to 650 nm; (b1)–(b3) longitudinal optical forces exerted on particles under illumination of femtosecond laser pulses at 420, 500, and 600 nm; (c1)–(c3) transverse optical forces exerted on particles under illumination of femtosecond laser pulses at 420, 500, and 600 nm

2020 年,中国科学院 Huang 等^[69]证明聚焦的线偏振飞秒高斯光束在捕获金纳米颗粒的过程中具有非线性克尔效应,其可以诱导产生一种三维壳状的光阱结构,如图 11 所示。在光学梯度力、散射力和非线性捕获力的共同作用下,金纳米颗粒既可以被稳定地捕获在某些特殊的位置,也可以在三维壳内沿着某一路径的各捕获位置之间跳跃,该理论结果得到了进一步的实验验证。同时,理论结果表明捕获位置之间的距离可以通过改变入射功率和物镜的数值孔径(NA)来调节;在高数值孔径(NA = 1.4)聚焦的条件下,可以形成间距在 100 nm 以内的双光阱,其小于光学衍射极限。上述发现极大地扩展和加深了对光与物质非线性作用过程的理解,为基于非线性光镊系统的微观粒子动态操控的研究指明了思路。

除了光克尔效应能够导致物质的介电常数或折射率发生改变以外,热光效应同样可以实现类似效

果。2021 年,东南大学 Zhang 等^[70]从理论上分析了环境液体的热光非线性对飞秒光镊中颗粒捕获的影响。不同于传统光镊中捕获刚度与功率之间的线性关系,由于热光效应的存在,该光镊系统的捕获刚度随着功率的增加呈非线性增加,这一研究进一步完善了飞秒光镊的非线性捕获理论。

在飞秒光镊非线性受力的理论分析方面,国外研究人员也开展了许多相关工作。2020 年,Devi 等^[71]基于偶极子近似模型分析了聚苯乙烯颗粒在飞秒光镊系统中的非线性受力情况。计算结果表明,随着激光功率的增加,势阱的横向分布会越来越稳定,相反轴向势阱的稳定性则因为非线性的增强而降低,这一结论与之前的实验结果非常吻合。该工作结果同时证明了决定捕获效率的并不是轴向势阱的绝对深度,而是沿光束传播方向的势垒高度。偶极子近似模型只能用于颗粒尺寸远小于捕获波长的情况,对于其他尺寸的颗粒并不适用。2017 年,

Devi 等^[72] 根据广义的洛伦兹-米氏散射理论 (GLMT), 给出了能够分析任意尺寸的介质颗粒在飞秒激光捕获过程中非线性作用的普适模型, 并与偶极子近似模型进行比较。尽管两种模型的理论数值不一致, 但都给出了定性的预测结果, 在克尔非线性的影响下, 颗粒的轴向捕获会随着功率的增加而不稳定。2016 年, 该研究小组针对介质纳米颗粒在激光捕获中的非线性光学问题进行了更加一般性的讨论, 通过克尔效应来改变颗粒与周围介质的相对折射率, 施加在颗粒上的光学力可以是排斥力、吸引力或者完全不受力 (此时颗粒的有效折射率与周围

介质相同), 该工作还展示了如何利用光学非线性来捕获折射率小于周围介质的颗粒^[73]。2021 年, Bandyopadhyay 等^[74] 对比了非线性效应在连续波和飞秒激光介导的光捕获中的不同作用, 以往文献通常只考虑克尔效应, 而该工作提出的新理论模型包含了热光效应。在连续波和飞秒激光的两种情况下都存在热光效应, 因此热光非线性比克尔非线性更具有通用性。对于连续激光介导的光捕获, 克尔非线性几乎不影响光学力, 相比之下在飞秒激光介导的光捕获中, 热光非线性影响光学力。

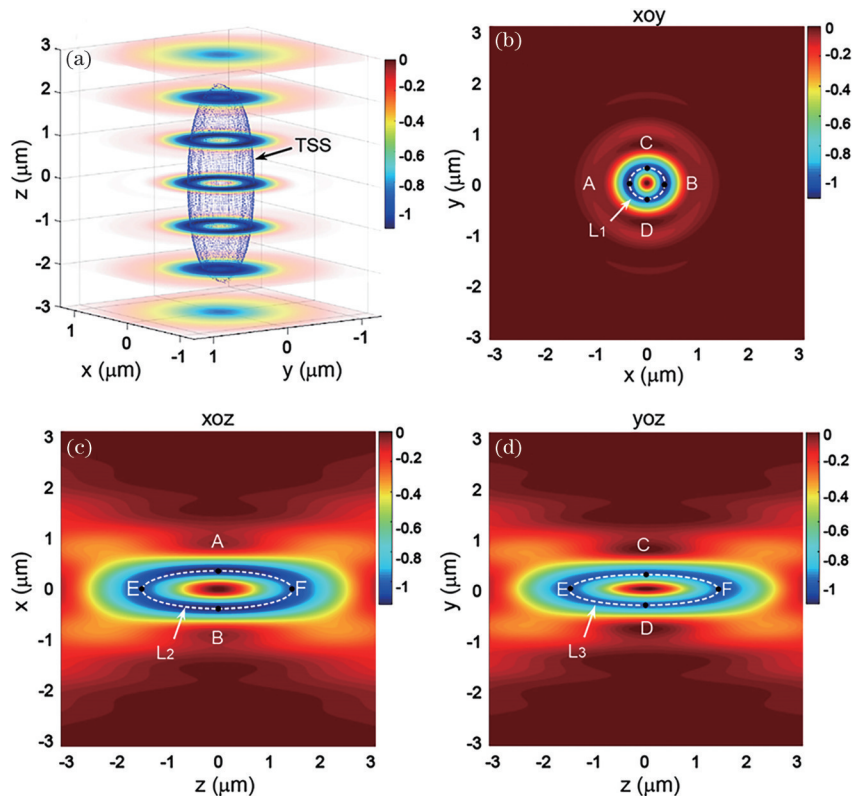


图 11 金纳米颗粒在线偏振飞秒高斯光束聚焦场中的势阱分布^[69]。(a) 聚焦区域的三维势阱分布; (b) xoy 平面内的二维势阱分布; (c) xoz 平面内的二维势阱分布; (d) yoz 平面内的二维势阱分布

Fig.11 Potential well distribution for gold nanoparticle in focused field of femtosecond Gaussian beam with linear polarization^[69]. (a) 3D potential well distribution in focal region; (b) 2D potential well distribution in xoy plane; (c) 2D potential well distribution in xoz plane; (d) 2D potential well distribution in yoz plane

4 总结与展望

在过去的近四十年里, 光镊技术历经了从远场到近场的操控、从微米到纳米的精度以及从连续到脉冲光源的多重快速发展。相比于连续型光镊, 飞秒光镊技术的脉冲持续时间极短, 因此可以显著降低光与物质相互作用所产生的热效应, 在物理、化学和生物医学等各领域展示了巨大的优势。同时, 飞秒激光超高的峰值功率为物质的非线性响应及调控

提供了基础。传统光镊技术通常只能实现对样品的空间位置操控, 而飞秒光镊利用脉冲激发的非线性效应不但可以操控样品的空间位置, 还可主动调控样品的光学参数, 为光镊技术开发多样化的功能及应用提供了新的思路。

光镊系统中样品的受力情况极大地依赖于聚焦光场的空间分布, 尤其是对于介电常数和极化率等参量对电场强度敏感的纳米结构, 可以通过有效的光场调控来促进不同条件下光与物质非线性作用的

动力学研究。偏振调制作为光场调控的一个重要手段,传统的线、圆和椭圆等偏振标量光场已经在飞秒光镊的研究中得到了充分的利用,而矢量光场作为一种偏振态呈空间非均匀分布的新型光束,在这一领域还未得到广泛关注。通过入射光场的偏振调制可以实现对样品捕获状态的灵活操控,这增加了飞秒光镊可以调控的自由度。实际上,除了偏振取向以外,椭圆率和旋向等偏振参量也可以用于调控样品的捕获状态,从而进一步提高光镊系统的灵活性。

在飞秒光镊的理论研究方面,现阶段关于飞秒光镊系统的受力分析还主要针对半径远小于波长的球形瑞利颗粒,对于具有复杂形状以及大尺寸的颗粒,其受力分析仍是一个挑战。其次,在颗粒非线性受力的理论模型中只包含了克尔效应和热光效应,其他诸如二次谐波和双光子吸收等可能存在的非线性过程尚未体现,因此对于颗粒非线性受力的分析目前缺乏更为严谨的理论基础,有待进一步研究。

此外,飞秒激光超窄的脉冲宽度赋予了飞秒光镊极高的时间分辨率。许多物理、化学以及生物微观过程不仅在空间上是纳米量级,在时间上也是超快的,飞秒光镊为研究这些微观现象的超快动力学过程提供了可能的技术手段。飞秒光镊与微纳结构加工以及片上检测技术等结合,还可以进一步拓展其应用空间,这也是未来发展的一个重要方向。

参 考 文 献

- [1] Gao D, Ding W, Nieto-Vesperinas M, et al. Optical manipulation from the microscale to the nanoscale: fundamentals, advances and prospects [J]. *Light, Science & Applications*, 2017, 6(9): e17039.
- [2] Ashkin A, Dziedzic J M, Bjorkholm J E, et al. Observation of a single-beam gradient force optical trap for dielectric particles[J]. *Optics Letters*, 1986, 11(5): 288-290.
- [3] Maragò O M, Jones P H, Gucciarci P G, et al. Optical trapping and manipulation of nanostructures [J]. *Nature Nanotechnology*, 2013, 8(11): 807-819.
- [4] Chu S, Bjorkholm J E, Ashkin A, et al. Experimental observation of optically trapped atoms [J]. *Physical Review Letters*, 1986, 57(3): 314-317.
- [5] Anderson M H, Ensher J R, Matthews M R, et al. Observation of Bose-Einstein condensation in a dilute atomic vapor[J]. *Science*, 1995, 269(5221): 198-201.
- [6] Ni W, Ba H, Lutich A A, et al. Enhancing single-nanoparticle surface-chemistry by plasmonic overheating in an optical trap [J]. *Nano Letters*, 2012, 12(9): 4647-4650.
- [7] Zhu R X, Avsievich T, Popov A, et al. Optical tweezers in studies of red blood cells [J]. *Cells*, 2020, 9(3): 545.
- [8] Asplund M C, Johnson J A, Patterson J E. The 2018 Nobel prize in physics: optical tweezers and chirped pulse amplification [J]. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 2019, 411(20): 5001-5005.
- [9] Danson C N, Haefner C, Bromage J, et al. Petawatt and exawatt class lasers worldwide [J]. *High Power Laser Science and Engineering*, 2019, 7: e54.
- [10] Zhao Q K, Cong Z H, Liu Z J, et al. Hundred microjoule femtosecond fiber chirped pulse amplification laser system [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, 48(7): 0701001.
赵其镨, 丛振华, 刘兆军, 等. 百微焦飞秒光纤啁啾脉冲放大激光系统 [J]. *中国激光*, 2021, 48(7): 0701001.
- [11] Faccio D, Rubino E, Lotti A, et al. Nonlinear light-matter interaction with femtosecond high-angle Bessel beams [J]. *Physical Review A*, 2012, 85(3): 033829.
- [12] Brown J M, Wright E M, Moloney J V, et al. On the relative roles of higher-order nonlinearity and ionization in ultrafast light-matter interactions [J]. *Optics Letters*, 2012, 37(10): 1604-1606.
- [13] Zergioti I, Karaiskou A, Papazoglou D G, et al. Femtosecond laser microprinting of biomaterials [J]. *Applied Physics Letters*, 2005, 86(16): 163902.
- [14] Brinks D, Hildner R, van Dijk E M H P, et al. Ultrafast dynamics of single molecules [J]. *Chemical Society Reviews*, 2014, 43(8): 2476-2491.
- [15] Cocker T L, Peller D, Yu P, et al. Tracking the ultrafast motion of a single molecule by femtosecond orbital imaging [J]. *Nature*, 2016, 539(7628): 263-267.
- [16] Albaladejo S, Marqués M I, Laroche M, et al. Scattering forces from the Curl of the spin angular momentum of a light field [J]. *Physical Review Letters*, 2009, 102(11): 113602.
- [17] Bradac C. Nanoscale optical trapping: a review [J]. *Advanced Optical Materials*, 2018, 6(12): 1800005.
- [18] Zhang Y N, Li M M, Yan S H, et al. Force and torque analysis of micro-sized particles in perfect optical vortex beams [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2021, 50(3): 0308002.
张亚楠, 李曼曼, 严绍辉, 等. 完美涡旋光中微米级粒子的受力与力矩特性分析 [J]. *光子学报*, 2021, 50(3): 0308002.
- [19] Bohren C F, Huffman D R. Absorption and

- scattering of light by small particles[M]. Hoboken: John Wiley & Sons, 1998.
- [20] Ashkin A. Forces of a single-beam gradient laser trap on a dielectric sphere in the ray optics regime[J]. Biophysical Journal, 1992, 61(2): 569-582.
- [21] Nieminen T A, Rubinsztein-Dunlop H, Heckenberg N R, et al. Numerical modelling of optical trapping[J]. Computer Physics Communications, 2001, 142(1/2/3): 468-471.
- [22] Harada Y, Asakura T. Radiation forces on a dielectric sphere in the Rayleigh scattering regime[J]. Optics Communications, 1996, 124(5/6): 529-541.
- [23] Li J, Xu J B. Analysis of force exerting to a micro-particle in the femtosecond laser optical field [J]. Jourmd of Shandong Normal University (Natural Science), 2009, 24(1): 49-51.
李杰, 徐建波. 微粒在飞秒激光光场中的受力特性分析[J]. 山东师范大学学报(自然科学版), 2009, 24(1): 49-51.
- [24] Xing Q R, Mao F L, Chai L, et al. Numerical modeling and theoretical analysis of femtosecond laser tweezers[J]. Optics & Laser Technology, 2004, 36(8): 635-639.
- [25] Mao F L, Xing Q R, Wang K, et al. Analysis of the lateral optical force applied by the femtosecond laser tweezers[J]. Acta Photonica Sinica, 2004, 33(5): 513-516.
毛方林, 邢岐荣, 王锴, 等. 飞秒激光光镊横向光学力的理论分析[J]. 光子学报, 2004, 33(5): 513-516.
- [26] Xing Q R, Mao F L, Chai L, et al. Computing of the axial optical force applied by the femtosecond laser trap[J]. Chinese Journal of Lasers, 2004, 31(4): 445-448.
邢岐荣, 毛方林, 柴路, 等. 飞秒激光光镊轴向力的计算与分析[J]. 中国激光, 2004, 31(4): 445-448.
- [27] Mao F L, Xing Q R, Wang K, et al. Optical trapping of red blood cells and two-photon excitation-based photodynamic study using a femtosecond laser [J]. Optics Communications, 2005, 256(4/5/6): 358-363.
- [28] Gong J X, Zhao X M, Xing Q R, et al. Femtosecond laser-induced cell fusion[J]. Applied Physics Letters, 2008, 92(9): 093901.
- [29] Wang K, Xing Q R, Mao F L, et al. Optical trapping of biological cells using a femtosecond laser tweezers[J]. Journal of Optoelectronics·laser, 2005, 16(12): 1480-1483.
王锴, 邢岐荣, 毛方林, 等. 利用飞秒激光光镊捕获生物细胞[J]. 光电子·激光, 2005, 16(12): 1480-1483.
- [30] Xing Q R, Mao F L, Li Y F, et al. Femtosecond laser cell manipulation and operation system [J]. Journal of Optoelectronics·laser, 2002, 13(1): 102-105.
邢岐荣, 毛方林, 栗岩锋, 等. 飞秒激光细胞操作与手术系统[J]. 光电子·激光, 2002, 13(1): 102-105.
- [31] Hnatovsky C, Shvedov V G, Shostka N, et al. Polarization-dependent ablation of silicon using tightly focused femtosecond laser vortex pulses [J]. Optics Letters, 2012, 37(2): 226-228.
- [32] Yang Y J, Ren Y X, Chen M Z, et al. Optical trapping with structured light: a review[J]. Advanced Photonics, 2021, 3(3): 034001.
- [33] Zhou M, Yang H F, Di J K, et al. Manipulation on human red blood cells with femtosecond optical tweezers[J]. Chinese Optics Letters, 2008, 6(12): 919-921.
- [34] Li Y, Guo Z Y, Qu S L. Living cell manipulation in a microfluidic device by femtosecond optical tweezers [J]. Optics and Lasers in Engineering, 2014, 55: 150-154.
- [35] Lin L, Chen Q H, Sun J S. Micro/nanofluidics-enabled single-cell biochemical analysis [J]. TrAC Trends in Analytical Chemistry, 2018, 99: 66-74.
- [36] Salonen A, Nikkilä J, Jalanka-Tuovinen J, et al. Comparative analysis of fecal DNA extraction methods with phylogenetic microarray: effective recovery of bacterial and archaeal DNA using mechanical cell lysis [J]. Journal of Microbiological Methods, 2010, 81(2): 127-134.
- [37] Trefzer U, Herberth G, Wohlan K, et al. Vaccination with hybrids of tumor and dendritic cells induces tumor-specific T-cell and clinical responses in melanoma stage III and IV patients [J]. International Journal of Cancer, 2004, 110(5): 730-740.
- [38] Podbilewicz B. Virus and cell fusion mechanisms [J]. Annual Review of Cell and Developmental Biology, 2014, 30: 111-139.
- [39] He H, Chan K T, Kong S K, et al. All-optical human cell fusion by a fiber femtosecond laser [J]. Applied Physics Letters, 2008, 93(16): 163901.
- [40] Nabel E G, Plautz G, Nabel G J. Site-specific gene expression *in vivo* by direct gene transfer into the arterial wall [J]. Science, 1990, 249(4974): 1285-1288.
- [41] Uchugonova A, König K, Bueckle R, et al. Targeted transfection of stem cells with sub-20 femtosecond laser pulses [J]. Optics Express, 2008, 16(13): 9357-9364.
- [42] Waleed M, Hwang S U, Kim J D, et al. Single-cell optoporation and transfection using femtosecond laser

- and optical tweezers[J]. *Biomedical Optics Express*, 2013, 4(9): 1533-1547.
- [43] Hoy C L, Durr N J, Chen P Y, et al. Miniaturized probe for femtosecond laser microsurgery and two-photon imaging[J]. *Optics Express*, 2008, 16(13): 9996-10005.
- [44] Benninger R K, Piston D W. Two-photon excitation microscopy for the study of living cells and tissues [J]. *Current Protocols in Cell Biology*, 2013, 59(1): 4-11.
- [45] Gruenke N L, Cardinal M F, McAnally M O, et al. Ultrafast and nonlinear surface-enhanced Raman spectroscopy[J]. *Chemical Society Reviews*, 2016, 45(8): 2263-2290.
- [46] Keller E L, Brandt N C, Cassabaum A A, et al. Ultrafast surface-enhanced Raman spectroscopy[J]. *The Analyst*, 2015, 140(15): 4922-4931.
- [47] Hall C R, Conyard J, Heisler I A, et al. Ultrafast dynamics in light-driven molecular rotary motors probed by femtosecond stimulated Raman spectroscopy[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2017, 139(21): 7408-7414.
- [48] Zhu C J, Song W Z, Qu M, et al. Thermal analysis and trapping properties of silicon-based optical nanotweezer structures[J]. *Acta Optica Sinica*, 2019, 39(3): 0324002.
朱晨俊, 宋五洲, 屈铭, 等. 硅基纳米光镊结构的热分析和捕获特性[J]. *光学学报*, 2019, 39(3): 0324002.
- [49] Quidant R, Girard C. Surface-plasmon-based optical manipulation[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2008, 2(1/2): 47-57.
- [50] Righini M, Volpe G, Girard C, et al. Surface plasmon optical tweezers: tunable optical manipulation in the femtonewton range[J]. *Physical Review Letters*, 2008, 100(18): 186804.
- [51] Tsuboi Y, Shoji T, Kitamura N, et al. Optical trapping of quantum dots based on gap-mode-excitation of localized surface plasmon [J]. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, 2010, 1(15): 2327-2333.
- [52] Dou X J, Min C J, Zhang Y Q, et al. Surface plasmon polaritons optical tweezers technology [J]. *Acta Optica Sinica*, 2016, 36(10): 1026004.
豆秀婕, 闵长俊, 张聿全, 等. 表面等离激元光镊技术[J]. *光学学报*, 2016, 36(10): 1026004.
- [53] Grigorenko A N, Roberts N W, Dickinson M R, et al. Nanometric optical tweezers based on nanostructured substrates [J]. *Nature Photonics*, 2008, 2(6): 365-370.
- [54] Roxworthy B J, Ko K D, Kumar A, et al. Application of plasmonic bowtie nanoantenna arrays for optical trapping, stacking, and sorting[J]. *Nano Letters*, 2012, 12(2): 796-801.
- [55] Miao X, Yan L, Wu Y, et al. High-sensitivity nanophotonic sensors with passive trapping of analyte molecules in hot spots [J]. *Light: Science & Applications*, 2021, 10(1): 5.
- [56] Zhan C, Wang G, Yi J, et al. Single-molecule plasmonic optical trapping[J]. *Matter*, 2020, 3(4): 1350-1360.
- [57] Wang G W, Guan Y C, Wang Y, et al. Recent progress in research and application of nano-manipulation technologies [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, 48(8): 0802018.
王根旺, 管延超, 王扬, 等. 纳米操作技术研究及应用进展[J]. *中国激光*, 2021, 48(8): 0802018.
- [58] Roxworthy B J, Toussaint K C. Femtosecond-pulsed plasmonic nanotweezers [J]. *Scientific Reports*, 2012, 2(1): 660.
- [59] Shoji T, Saitoh J, Kitamura N, et al. Permanent fixing or reversible trapping and release of DNA micropatterns on a gold nanostructure using continuous-wave or femtosecond-pulsed near-infrared laser light [J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2013, 135(17): 6643-6648.
- [60] Kotsifaki D G, Kandyla M, Lagoudakis P G. Plasmon enhanced optical tweezers with gold-coated black silicon[J]. *Scientific Reports*, 2016, 6: 26275.
- [61] Zhang W J, Zhang Y Q, Zhang S S, et al. Nonlinear modulation on optical trapping in a plasmonic bowtie structure[J]. *Optics Express*, 2021, 29(8): 11664-11673.
- [62] Agate B, Brown C T A, Sibbett W, et al. Femtosecond optical tweezers for *in situ* control of two-photon fluorescence[J]. *Optics Express*, 2004, 12(13): 3011-3017.
- [63] Butet J, Lovera A, Martin O J F. Detecting the trapping of small metal nanoparticles in the gap of nanoantennas with optical second harmonic generation [J]. *Optics Express*, 2013, 21(23): 28710-28718.
- [64] Quy H Q, Tuan D Q, Thanh T D, et al. Enhance of optical trapping efficiency by nonlinear optical tweezers [J]. *Optics Communications*, 2018, 427: 341-347.
- [65] Jiang Y Q, Narushima T, Okamoto H. Nonlinear optical effects in trapping nanoparticles with femtosecond pulses [J]. *Nature Physics*, 2010, 6(12): 1005-1009.
- [66] Gong L P, Gu B, Rui G H, et al. Optical forces of focused femtosecond laser pulses on nonlinear optical Rayleigh particles[J]. *Photonics Research*, 2018, 6

- (2): 138-143.
- [67] Zhang Y Q, Shen J F, Min C J, et al. Nonlinearity-induced multiplexed optical trapping and manipulation with femtosecond vector beams [J]. *Nano Letters*, 2018, 18(9): 5538-5543.
- [68] Gong L P, Zhang X H, Gu B, et al. Optical pulling forces on Rayleigh particles using ambient optical nonlinearity [J]. *Nanophotonics*, 2019, 8(6): 1117-1124.
- [69] Huang L, Qin Y Q, Jin Y F, et al. Spheroidal trap shell beyond diffraction limit induced by nonlinear effects in femtosecond laser trapping [J]. *Nanophotonics*, 2020, 9(14): 4315-4325.
- [70] Zhang X H, Gong L P, Rui G H, et al. Effect of the thermal-optical nonlinearity on optical trapping Rayleigh particles [J]. *Optics Communications*, 2021, 495: 127071.
- [71] Devi A, De A K. Generalized description of the nonlinear optical force in laser trapping of dielectric nanoparticles [J]. *Physical Review Research*, 2020, 2(4): 043378.
- [72] Devi A, De A K. Theoretical estimation of nonlinear optical force on dielectric spherical particles of arbitrary size under femtosecond pulsed excitation [J]. *Physical Review A*, 2017, 96(2): 023856.
- [73] Devi A, De A K. Theoretical investigation on nonlinear optical effects in laser trapping of dielectric nanoparticles with ultrafast pulsed excitation [J]. *Optics Express*, 2016, 24(19): 21485-21496.
- [74] Bandyopadhyay S N, Gaur T, Goswami D. Comparative study of the real-time optical trapping in the Rayleigh regime for continuous and femtosecond pulsed lasers [J]. *Optics & Laser Technology*, 2021, 136: 106770.

Research Progress of Femtosecond Optical Tweezers and Their Applications

Zhang Yuquan, Zhang Shuoshuo, Min Changjun, Yuan Xiaocong*

Nanophotonics Research Center, Shenzhen Key Laboratory of Micro-Scale Optical Information Technology & Institute of Microscale Optoelectronics, Shenzhen University, Shenzhen, Guangdong 518060, China

Abstract

Significance Since the seminal work of Arthur Ashkin in 1986, optical tweezers have been extensively researched and used in various fields, including physics, chemistry, and biomedicine. The radiation force induced by momentum exchange in light scattering and absorption is the fundamental mechanism of optical tweezers, allowing non-contact trapping and micro and nanoparticles manipulation. Continuous waves are primarily used in traditional optical trapping approaches for small particles. As an alternative, femtosecond laser pulses with high repetition rates have recently been applied to optical tweezers. The ultrashort pulse duration of femtosecond laser pulses produces minimal thermal effect during light-matter interactions, which lays the foundation for applications in biological sciences. Furthermore, the ultra-high peak power of femtosecond laser pulses excites the nonlinear response of trapped objects. In the presence of nonlinearity, some intrinsic properties of the sample (e. g., permittivity) will be changed, thereby breaking the force balance formed under a linear condition, and generating some novel phenomena with potential applications. To provide an overview and perspective on its developments, we review the research progress of femtosecond optical tweezers and discuss the nonlinear effects and applications in detail.

Progress Over the past decades, femtosecond optical tweezers have made significant progress and facilitated researches in various disciplines, particularly in the field of biological sciences. In 2005, Mao et al. reported the stable trapping of red blood cells with femtosecond optical tweezers (Fig. 1), demonstrating of practical applications of this technology in biological research. In 2008, Zhou et al. investigated the manipulation of red blood cells and their states under different laser powers using a similar experimental setup. In addition to the spatial manipulation of cells, femtosecond optical tweezers have been used in complex operations, such as cell fusion (Fig. 2) and cell transfection (Fig. 3). These applications of femtosecond optical tweezers are of great significance for the analysis of gene expression and immunotherapy.

However, conventional optical tweezers are limited by the far-field diffraction and therefore are inefficient for trapping nanoscale objects (e. g., atoms, molecules, and quantum dots). Although the stiffness of optical tweezers can be enhanced by increasing the incident power, the robust optical intensity damages the sample. To improve trap

precision, researchers have developed a new type of optical tweezers based on the principle of near-field optics. Among the different branches of near-field optics, surface plasmons hold the greatest potential for manipulation of objects at the nanoscale. In 2012, Roxworthy et al. reported enhanced particle trapping in a femtosecond plasmonic optical tweezers system (Fig. 4). The stiffness of the optical trap is enhanced by two times compared to the use of continuous-wave. In 2013, Shoji et al. demonstrated reversible trapping and release of λ -DNA molecules by switching femtosecond pulses in a plasmonic optical tweezers system (Fig. 5). In 2016, Kotsifaki et al. investigated the trapping efficiency of the femtosecond plasmonic optical tweezers based on gold-coated black silicon arrays. In 2021, Zhang et al. numerically calculated the force distribution for the quantum dots in a metallic bowtie structure illuminated by focused femtosecond laser pulses (Fig. 6).

The interaction of femtosecond laser pulses and materials can excite several significant nonlinear effects, such as two-photon absorption, second harmonics, and the Kerr effect. Among them, the Kerr effect can proactively modulate the physical properties of samples, thereby breaking the force balance established under linear conditions and exhibiting some novel phenomena distinct from linear optical traps. Nonlinear optical trapping is a new area of study in the field of femtosecond optical tweezers. Over the past decade, fruitful efforts to facilitate its development have been made, including both experimental and theoretical research. In 2010, Jiang et al. reported the phenomenon of "trap split" when trapping gold nanoparticles via femtosecond laser pulses (Fig. 7). In 2018, Gong et al. presented an analytical model for calculating the nonlinear optical force in femtosecond optical tweezers (Fig. 8); Zhang et al. achieved the multiplexed trapping of gold nanoparticles using femtosecond cylindrical vector beams (Fig. 9). In 2019, Gong et al. demonstrated the generation of optical pulling force by regulating the nonlinearity of surroundings (Fig. 10). In 2020, Huang et al. demonstrated that the Kerr effect of gold nanoparticles can induce a three-dimensional shell-like potential well (Fig. 11).

Conclusions and Prospects Compared with continuous optical tweezers, femtosecond optical tweezers can significantly reduce the thermal effect in light-matter interactions because of the ultrashort pulse duration and temperature dissipation between pulses. At the same time, the ultra-high peak power of femtosecond laser pulse provides the basis for the nonlinear modulation of optical traps. These features of femtosecond optical tweezers offer several distinct advantages in the manipulation of microscopic particles. However, the study of femtosecond optical tweezers are still in their early stages, particularly nonlinear optical trapping, which has received significant attention in recent years. There are still challenges to overcome in extending the capabilities and applicability of the technology. Even though we are confident that the uses of femtosecond optical tweezers will continue to expand in the near future, and more potential applications will be developed.

Key words laser technique; optical tweezers; femtosecond lasers; nonlinear optical effects; optical forces

OCIS codes 140.7010; 320.7090; 190.3970; 260.2110