

# 利用相干控制优化香豆素 151 的双光子荧光

褚赛赛 王树峰 邓勇开 杨 宏 龚旗煌

(北京大学物理学院现代光学所人工微结构与介观物理国家重点实验室, 北京 100871)

**摘要** 利用反射式空间光调制器搭建了折叠式  $4f$  脉冲整形系统。基于遗传算法和该折叠式  $4f$  脉冲整形系统, 利用相干控制技术成功的优化了染料香豆素 151 的双光子荧光强度, 使该双光子荧光强度提高了 6%。结合理论模型, 对香豆素的双光子荧光的优化机理进行了讨论。

**关键词** 非线性光学; 相干控制; 脉冲整形; 双光子荧光

**中图分类号** O437 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS201131.s100206

## Optimizing the Two Photon Fluorescence of Coumarin 151 Using Coherent Control Technique

Chu Saisai Wang Shufeng Deng Yongkai Yang Hong Gong Qihuang

(State Key Laboratory for Microscopic Structure and Mesocopies, Modern Optics Institute, School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China)

**Abstract** A folded  $4f$  pulse shaping system utilizing reflective spatial light modulator is constructed. Based on genetic algorithm and this folded  $4f$  pulse shaping system, the two photon fluorescence's intensity of coumarin 151 is successfully optimized by 6% with coherent control technique. Referring to the former scientists' theory model, this experimental result is discussed.

**Key words** nonlinear optics; coherent control; pulse shaping; two photon fluorescence

**OCIS codes** 320.5540; 140.7090; 320.7150

## 1 引 言

脉冲整形技术从 20 世纪 80 年代已经开始发展起来, 在脉冲整形的基础上发展了相干控制技术<sup>[1~3]</sup>。这一自适应控制光与物质相互作用的技术在近年来得到了突飞猛进的发展。现在相干控制技术已经被用于物理、化学、生物研究中的各个领域, 包括控制分子解离、拉曼散射通道和光致各向异性的产物等<sup>[4~9]</sup>。这一研究领域虽然有着潜在的应用, 但现在大多集中于实验研究, 缺乏相关的理论指导。这是由于分子的哈密顿量的复杂性, 通过哈密顿量计算出需要的脉冲形状是可望而不可及的事情。遗传算法为解决这一问题提供了解决办法, 通过自搜索、自反馈、自优化的方法, 找到最优化的激光脉冲<sup>[10]</sup>。在这个领域常用的研究方法是优化不

同光谱的相对相位, 来改变激光脉冲时间上的分布。过去的相干控制中用到的脉冲整形系统大多集中于  $4f$  脉冲整形系统, 但存在占用空间大、系统繁琐等问题<sup>[6~8]</sup>。本文利用新的反射式空间光调制器, 构建了新的折叠式的  $4f$  脉冲整形系统, 并利用该方法研究了该相干控制在控制染料香豆素 151 的双光子荧光中的应用。

## 2 实验系统

实验系统如图 1 所示。钛宝石激光器 (Femtolasers 公司) 输出的中心频率 800 nm、频带宽度为 50 nm 的激光脉冲, 脉冲持续时间为 30 fs, 激光被分束镜 (BS) 分为两束, 其中一束用作参考光, 标定激光强度的起伏; 另一束用于脉冲整形。用

收稿日期: 2010-08-23; 收到修改稿日期: 2010-11-03

基金项目: 国家自然科学基金(10504001, 60878019, 10821062, 10934001, 60677002, 10828407)资助课题。

作者简介: 褚赛赛(1982—), 男, 博士研究生, 主要从事非线性光学方面的研究。E-mail: chusaisai@gmail.com

导师简介: 王树峰(1972—), 男, 副教授, 主要从事飞秒超快光谱方面的研究。E-mail: wangsf@pku.edu.cn

于脉冲整形的光入射到折叠的  $4f$  系统中。该  $4f$  系统是由一个光栅(1200 line/mm)、一个柱透镜、一个反射式二维空间光调制器(SLM)(日本,滨松公司)组成。激光入射到光栅上,不同颜色的光通过衍射在空间上水平分开,然后经过柱面透镜准直,准直后的光入射到反射式空间光调制器上,该空间光调制器同时起到相位调制和反射镜的作用。相位调制通过计算机对该空间光调制器中的不同的像素加不同的电压实现。经过相位调制的光谱被反射回来经过柱透镜后,在光栅上合束,合束后的光即为调制后的脉冲,调制后的脉冲聚焦到装有香豆素 151 的乙醇溶液的转动样品池(S)里。采用弱光条件,即使用的激光光强远远小于香豆素 151 的双光子激发达到饱和和所需的激光强度。香豆素 151 的吸收光谱如图 2 所示,可以通过吸收调制后的激光来实现其从基态到激发态的跃迁,然后发出荧光,即为该染料的双光子荧光。激光经过激发香豆素产生的双光子荧光经过收集透镜收集后耦合到光纤光谱仪(荷兰,爱万提斯公司)里面,经过计算机收集。

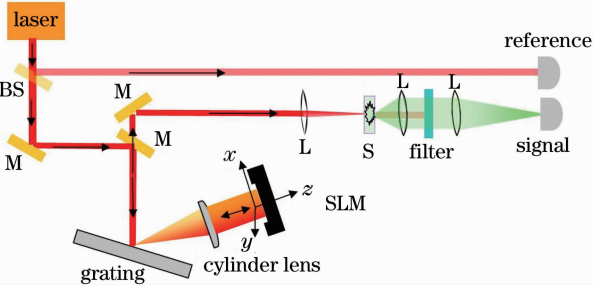


图 1 实验装置图

Fig. 1 Scheme of experimental setup

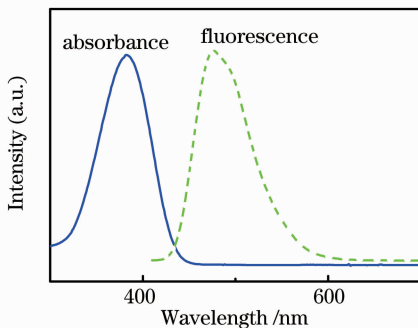


图 2 香豆素 151 的稳态吸收和稳态荧光光谱图

Fig. 2 Absorbance spectrum and fluorescence spectrum of coumarin 151 using coherent control technique

在激发香豆素 151 的双光子荧光的实验中,为了知道对不同的光谱成分如何加不同的相位调制幅度,采用遗传算法控制本实验<sup>[10]</sup>。具体为:开始时随机产生 50 个随机的相位分布,每个个体的相位分

布对应用来调制不同的光谱成分的相位值。这 50 个个体中的每个个体对应的相位信息分别用来调制光信号,得到对应的双光子荧光信号,并用该荧光信号的强度作为反馈信号,反馈信号的强弱表征着该个体相位信息的优劣。然后以这 50 个相位信息为种子,遵照优胜劣汰的思想,通过遗传和变异的方式产生新的相位信息,称为第二代。遗传和变异的思想如下所述。从这 50 个相位个体中,取出任意两个个体作为父代个体,把这两个相位个体进行交叉,得到两个新的相位个体,称为遗传。把遗传到的新的相位个体用于调制脉冲与样品的相互作用,得到两个新的双光子荧光信号。如果这两个新的双光子荧光信号大于前面两个父代个体对应的信号,则保留这两个新的相位个体,否则继续保留父代的两个相位个体。在遗传得到的 50 个个体相位中,改变每个个体相位中的相位片段。例如,把个体相位中的前半部分从  $180^\circ$  突变为  $90^\circ$ ,得到新的个体,称为变异。把变异后的相位用以调制脉冲与样品的作用,得到新的双光子荧光信号。如果这个信号强于父代个体的,则用这个新的相位个体代替父代相位。从上一代相位信息到下一代相位信息的演化中,优秀的基因片段(即相位分布中优秀的部分)被保留下来,不利的基因片段将被淘汰。这样,一代一代的循环下去,优秀的基因片段越来越多,从而调制得到的双光子荧光信号的强度越来越大,直到最后达到饱和,即得到最优的相位信息。

### 3 实验结果和讨论

实验的优化结果如图 3 所示,图中每个点代表了每代中的最优相位对应的双光子荧光信号的强度。从图中可以看到,随着优化过程的进行,双光子荧光信号强度得到了增加,双光子荧光信号从第一代的 0.0076(a. u.)被优化到第 25 代的 0.0805,提高了 6%,证明了该折叠式  $4f$  脉冲整形系统和遗传算法的有效性与可靠性。对于脉冲整形的优化的机理,根据 D. J. Tannor 等<sup>[11]</sup>的理论,超短脉冲把粒子从基态激发到激发态以后,在振动弛豫的过程中,再用脉冲的后半部分与之作用,可以改变处于激发态的粒子数。激光脉冲中的啁啾是指激光脉冲中不同的光谱成分在时间上有个分布,不同的光谱成分有先后顺序。调制后的脉冲持续时间一般在几个皮秒的时间内,通过相位调制可能产生一系列带有啁啾的子脉冲,脉冲序列中最合适的啁啾可以最有效地增强香豆素 151 的双光子荧光<sup>[9]</sup>。同时这个结果也

可以这样理解,根据 C. K. Chan 等<sup>[12]</sup>的理论,基态和激发态之间跃迁中涉及到的两个光子之间的干涉相消或干涉相长是影响激发强度的重要因素,这两个光子的干涉来源于这两个光子的相位关系。

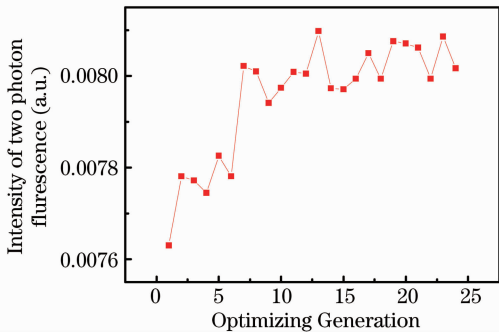


图 3 香豆素 151 的双光子荧光优化过程

Fig. 3 Optimizing two photon fluorescence processes of coumarin 151

## 4 结 论

本文讨论了新建立的折叠式的  $4f$  脉冲整形系统,该折叠式  $4f$  脉冲整形系统具有节约空间、易于调节等优点。利用基于飞秒脉冲整形的自适应相干控制技术,成功实现了通过对飞秒激光脉冲的光谱调制从而调制脉冲的啁啾,并用调制后的脉冲成功地优化了染料香豆素 151 的双光子荧光信号。

## 参 考 文 献

1 A. M. Weiner. Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators [J]. *Rev. Sci. Instrum.*, 2000, **71**(5): 1929~1960

- 2 Zhi Tingting, Gu Guanqing, Chen Lanrong *et al.*. Pulse shaping in power laser system [J]. *Acta Optica Sinica*, 1992, **12**(2): 153~157
- 支婷婷, 顾冠清, 陈兰荣 等. 高功率激光系统中的脉冲整形[J]. *光学学报*, 1992, **12**(2): 153~157
- 3 Chen Yuting, Zhang Shian, Sun Zhenrong *et al.*.  $4f$ -configure optical pulse shaping system pulse shaping misalignment [J]. *Acta Sinica Quantum Optica*, 2004, **10**(2): 73~76
- 陈瑜婷, 张诗按, 孙真荣 等.  $4f$  结构脉冲整形器失调对光场空间分布的影响[J]. *量子光学学报*, 2004, **10**(2): 73~76
- 4 Vadim V. Lozovoy, Marcos Dantus. Systematic control of nonlinear optical processes using optimally shaped femtosecond pulses [J]. *Chemphyschem*, 2005, **6**(10): 1970~2000
- 5 D. Meshulach, Y. Silberberg. Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse [J]. *Nature*, 1998, **396**(6708): 239~242
- 6 Shian Zhang, Hui Zhang, Zhenrong Sun *et al.*. Selective excitation of femtosecond coherent anti-Stokes Raman scattering in the mixture by phase-modulated pump and probe pulses [J]. *J. Chem. Phys.*, 2010, **132**(4): 044505
- 7 Peiqing Zhang, Yefeng Guan, Jianying Zhou *et al.*. Phase controlled beam combining with nonlinear frequency conversion [J]. *Opt. Express*, 2010, **18**(3): 2995~2999
- 8 W. S. Warren, H. Rabitz, M. Dahleh. Coherent control of quantum dynamics; the dream is alive [J]. *Science*, 1993, **259**(5101): 1581~1589
- 9 P. Nuernberger, G. Vogt, T. Brixner *et al.*. Femtosecond quantum control of molecular dynamics in the condensed phase [J]. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 2007, **9**(20): 2470~2497
- 10 B. J. Pearson, J. L. White, T. C. Weinacht *et al.*. Coherent control using adaptive learning algorithms [J]. *Phys. Rev. A*, 2001, **63**(6): 063412
- 11 D. J. Tannor, S. A. Rice. Control of selectivity of chemical reaction via control of wave packet evolution [J]. *J. Chem. Phys.*, 1985, **83**(10): 5013~5018
- 12 C. K. Chan, P. Brumer, M. Shapiro. Coherent radiative control of IBr photodissociation via simultaneous ( $w_1, w_3$ ) excitation [J]. *J. Chem. Phys.*, 1991, **94**(4): 2688~2696