

# 中国科学技术大学 博士学位论文

论 文 题 目：光镊技术研究微粒碰撞聚集过程  
和分散体系的稳定性

研究生姓名：徐升华

专 业：光学

导 师 姓 名：楼立人教授、李银妹教授

完 成 时 间：2005 年 4 月

# 目录

摘要.....	I
ABSTRACT.....	III
<b>第一章 绪论</b> .....	1
1.1 光镊技术.....	1
1.2 分散体系领域的研究现状.....	2
1.3 本文研究工作的意义.....	3
1.4 本文主要内容简介.....	4
<b>第二章 光镊的原理及其在分散体系中的应用</b> .....	10
2.1 光镊的原理.....	10
2.1.1 光的动量.....	10
2.1.2 激光的力学效应.....	11
2.1.3 微粒的激光悬浮.....	11
2.1.4 单光束梯度力光镊原理.....	11
2.2 光镊在分散体系研究中的应用.....	13
2.2.1 关于粒子扩散的研究.....	14
2.2.2 流体动力学相互作用.....	15
2.2.3 静电相互作用.....	15
2.2.4 空缺相互作用和空间相互作用.....	16
<b>第三章 受限分散体系中粒子的扩散特性的研究</b> .....	22
3.1 布朗运动和粒子的扩散.....	22
3.2 液体边界面对粒子扩散运动的影响.....	23
3.2.1 单平面对粒子扩散运动的影响.....	24
3.2.2 双平面对粒子扩散运动的影响.....	26
3.3 受限制分散体系中粒子扩散性质的研究.....	27
3.3.1 实验装置.....	28
3.3.2 相关实验参数的测量.....	29
3.3.3 小球布朗运动的测量.....	30
3.4 双平面条件下粒子的扩散特性研究结果及讨论.....	31

3.4.1 实验结果.....	31
3.4.2 误差讨论.....	32
3.5 结论和展望.....	33
<b>第四章 利用光镊研究分散体系的稳定性.....</b>	<b>37</b>
4.1 粒子之间的相互作用和分散体系的稳定性.....	38
4.1.1 分散体系中的范德华力.....	39
4.1.2 双电层和粒子之间的排斥势能.....	40
4.1.3 DLVO理论和体系的稳定性.....	43
4.1.4 空间稳定理论和空缺稳定理论.....	46
4.2 稳定率的常用测量方法.....	47
4.3 利用光镊研究体系的稳定性.....	48
4.3.1 研究方法的物理原理.....	48
4.3.2 实验装置.....	49
4.3.3 实验方法和结果.....	50
4.3.4 光镊中两个粒子碰撞过程的研究.....	53
4.3.5 光镊中两个粒子碰撞聚集过程的模型.....	54
4.3.6 利用光镊测量分散体系的稳定率.....	57
4.3.7 光镊测量体系稳定率方法的改进.....	61
4.3.8 光镊对稳定率测量的影响.....	64
4.4 本章总结.....	65
<b>第五章 光镊中两个粒子碰撞频率的模拟计算.....</b>	<b>69</b>
5.1 计算模型.....	69
5.2 模拟计算方法.....	70
5.3 结果和讨论.....	73
<b>第六章 分散体系中粒子的稳定人工排布.....</b>	<b>76</b>
6.1 粒子稳定排布方法.....	76
6.2 粒子稳定人工排布的实现.....	77
6.3 应用前景.....	79
<b>第七章 利用几何光学计算光镊中两个粒子的轴向受力.....</b>	<b>81</b>

7.1 光镊的作用力理论.....	82
7.1.1 几何光学模型.....	82
7.1.2 波动光学模型.....	84
7.2 利用几何光学计算两个粒子的轴向受力.....	86
7.2.1 第一个粒子的轴向力计算.....	86
7.2.2 第二个粒子的轴向力计算.....	91
7.3 计算结果.....	94
7.3.1 光镊中两个小球的状态.....	94
7.3.2 光镊中两个小球的受力和稳定程度.....	97
7.4 讨论.....	99
<b>第八章 环形光对粒子的横向捕获力的计算.....</b>	<b>103</b>
8.1 光对粒子横向力的计算.....	103
8.1.1 计算方法.....	103
8.1.2 两种环形光的光场分布.....	107
8.2 计算结果.....	108
8.3 讨论.....	110
<b>第九章 论文的总结和展望.....</b>	<b>113</b>
<b>附录.....</b>	<b>117</b>
<b>博士期间发表文章目录.....</b>	<b>130</b>
<b>致谢.....</b>	<b>131</b>

## 摘要

分散体系是指一种或几种物质分散在另一种物质中的体系,它与我们的生活密切相关,因此对分散体系性质的研究具有重要的科学意义和应用价值。由于分散体系的性质归根结底是由体系中的微小粒子的性质所决定,因而研究体系中微小粒子的性质对分散体系领域研究的发展具有重要的意义。然而长期以来,由于缺乏有效的实验手段,对分散体系的实验研究大都是从宏观上来进行的。

光镊是利用光的力学效应来操控微小粒子的工具,由于它是以非接触的方式来操控微粒,因此对捕获的粒子影响很小,可以在保持被捕获粒子性质不变的情况下对粒子之间的相互作用和动力学过程进行研究。在光镊出现之后,很快就被成功地用于对分散体系领域,对体系中微小粒子的性质进行研究。

本文的工作就是将光镊应用于分散体系中,对分散体系的稳定性、分散体系中粒子受平面限制情况下的扩散特性等进行了深入的研究和详细的讨论。对这些研究过程中所出现的相关问题也进行了理论分析和模拟计算。

分散体系的稳定性历来受到人们的重视。从粒子层次考虑,分散体系的稳定程度是由体系中的粒子碰撞聚集过程所决定的,因此,要实现从粒子层次研究体系的稳定性,必须要对体系中粒子的碰撞聚集过程进行研究。基于光镊可以操控和定位粒子的特点,我们建立了从粒子层次研究微粒碰撞聚集过程的实验研究方法。该方法利用光镊来捕获两个粒子,使之局限在显微镜中可以观察到的区域发生碰撞,从而可以对它们的碰撞聚集过程进行跟踪研究。

通过对这一实验方法的实验结果进行分析,我们建立了光镊中两个粒子碰撞聚集过程的物理模型。这一物理模型给出了光镊中两个粒子的状态及其变化过程,以及两个粒子在不同状态下的碰撞行为,利用这一模型我们建立了光镊中两个粒子的碰撞聚集过程的唯象理论。在此基础上,我们利用分散体系的稳定率这一宏观参数与两粒子体系中粒子的结合几率之间的联系,首次建立了从微小粒子层次来测量体系的稳定率的方法。

光镊中两个粒子的碰撞频率是粒子在光镊中碰撞聚集过程的重要参量,在光镊中两个粒子碰撞聚集过程的模型的建立过程中,需要了解光镊中的粒子在不同阶段的碰撞频率的大小。在本文中,我们考虑了光镊对被捕获粒子的作用力和两个粒子间流体动力学相互作用的影响,对光镊中两个粒子的碰撞频率进行了模拟

计算。它加深了我们对光镊中两个粒子运动和受力情况的理解，为光镊中两个粒子碰撞聚集模型的建立提供了基础。

在分散体系中，粒子与界面之间的流体动力学相互作用是广泛存在的一种作用，它会影响粒子的布朗运动和扩散特性，同时也会影响到粒子之间的碰撞等过程。我们在本文中还对分散体系中粒子在受到两个平行界面限制情况下的扩散特性进行研究，并得到了和已有的流体动力学相互作用理论相一致的结果。

利用光镊的操控功能和粒子之间的结合力，我们还首次成功地实现了把粒子排布成具有设定空间结构的稳定聚集体。这部分工作将有可能在胶体晶体和生物学领域得到应用。

在从粒子层次研究分散体系稳定性的工作中，我们利用了光镊能捕获两个粒子这一特性，因此，光镊对两个粒子的作用力对分析光镊中的粒子运动和碰撞过程具有重要的意义。我们利用几何光学模型，首次对光镊中两个粒子的轴向受力进行了计算，给出了光镊捕获两个刚性小球时对两个小球的作用力与粒子在光镊中的轴向位置之间的关系。计算的结果为光镊捕获两个粒子这一特性的进一步应用提供了基础。

空心高斯光束和拉盖尔-高斯光束作为两种在光镊中常用的环形光束，相对于高斯光束，它们都能够有效地提高对粒子的轴向捕获力。本文利用几何光学模型对这两种环形光束的横向捕获力进行了理论计算，结果指出，它们的横向捕获力相对于高斯光束来说都有所降低。这一结果使得人们对环形光镊的作用力的认识更加完善，对这两种环形光束的应用具有一定的指导意义。

关键词：光镊、分散体系、碰撞聚集过程、稳定性

## Abstract

The dispersion, which has significant relation with our daily life, is a system that one or more materials dispersed in another material. To study the characters of dispersion is of great importance on both the theory and the applications. Because the characters of dispersions are closely related to the characters of small particles dispersed in dispersion, we can gain an insight into the macroscopic characters of dispersion by studying the behavior of individual small particles dispersed in dispersion. However, due to the lack of appropriate instruments, the experimental research of the dispersion was limited largely on the macroscopic characters for a long time.

Optical tweezers is an instrument to trap and manipulate small particles utilizing the radiation pressure of light. Since it manipulates particles without mechanical contact, it has very little influence on trapped particles. Due to this characteristic, it can be used to investigate the characters of trapped particles without interference. Therefore, optical tweezers was successfully applied in the investigation of the interactions of particles dispersed in dispersion, soon after its invention.

In this article, we use optical tweezers to study the stability of dispersion, and the diffusion of particles confined by planes, *etc.* Some problems related to these researches are also studied by theoretical analysis or computer simulation.

The stability is an important character of dispersion. Considering from the single particle level, the stability is determined by the collisions and aggregations of the small particles in dispersion. Utilizing the characteristic that the optical tweezers can control and manipulate particles, we establish a method to study the collisions and aggregations of small particles experimentally in this article. In this method, we use optical tweezers to trap two particles, and confine them in an area that can be observed by microscopy so that we can investigate the collision and aggregation behavior of two particles.

By analyzing the experimental results of above-mentioned method, we establish the model of the collision and aggregation kinetics of two particles in optical tweezers. This model shows that the two particles undergo two statuses in optical tweezers, and the collision kinetics is quite different in the two statuses. Using this model, we develop a phenomenological theory to describe the aggregation kinetics of the two

trapped particles. Based on these researches, we develop a method to measure the stability ratio of dispersion from particle level using optical tweezers. Using the connection of the stability ratio with the sticking probability of one collision of particles, and the phenomenological theory developed, we can get the stability ratio experimentally. This is the first time to study the stability of dispersion from individual particle level.

The collision frequency of the two particles in optical tweezers is an important parameter in the collision process of the two particles. In this article, we use computer simulation to study the collision frequency of two particles in optical tweezers. In the simulation, both the forces that optical tweezers exerts on particles and the hydrodynamics coupling of the two particles are considered. The simulation results definitely support our model of the collision kinetics of two particles in optical tweezers.

A particle's hydrodynamic coupling to interfaces is an interaction existed widely in dispersion. The hydrodynamic interactions can influence on the Brownian motion and diffusion of particles, which will affect the particles' collision kinetics. In this article, we investigate the diffusion of particles confined by two parallel plane interfaces. The experimental results are consistent with the theory on the hydrodynamic interactions of the particles with interfaces.

We have also successfully arranged micro-particles in dispersion utilizing optical tweezers forming steady patterns or clusters with given structure. The method will have applications in colloidal crystals and biology.

During the work of studying the stability of dispersion from particle level, we use optical tweezers to trap two particles. So it is important to understand the forces that optical tweezers exerts on the two particles. However, optical tweezers were mostly used to capture one particle in its applications, and there was no work on the forces on the two particles trapped by optical tweezers. In this article, we use computer to calculate the forces exerted on two particles trapped by optical tweezers theoretically for the first time, using the ray optics model. The calculation results establish the theoretical base for the applications of the character that optical tweezers can trap two particles.

As two commonly used ring beams to form optical tweezers, Laguerre-Gaussian and hollowed Gaussian beam both improve the axial trapping force comparing with Gaussian beam. We calculate the transverse trapping force of the two different ring



beams using ray optics model, and compare them with Gaussian mode beam in this article. The calculation results show that the transverse trapping forces of the ring beams are lower than Gaussian beam. The results give a full knowledge on the trapping force of ring beams, and will be good guidance for the applications of the ring beams.

Keywords: optical tweezers, dispersion, collision and aggregation process, stability

# 第一章 绪论

## §1.1 光镊技术

光与物质的相互作用不仅能产生热效应,光化学效应,还会产生力学效应。光照射到物体上,由于动量的传递,会使被照射物体受到力的作用。早在 1968 年,苏联光谱学家 Letokhov 就首先提出利用光的力学效应来限制原子的思想<sup>[1]</sup>。1969 年,A. Ashkin 等人则首次实现了利用激光的力学效应驱动微米粒子。此后 Ashkin 又发现微粒会在横向被吸入光束(微粒的折射率大于周围介质的折射率)。在这些研究工作的基础上,Ashkin 提出了利用光压操纵微粒的思想,并用两束相向照射的激光,实现了对水溶液中折射率比水大的小球的捕获<sup>[2]</sup>,建立了利用光压操纵微粒的工具。1986 年,A. Ashkin 等人又发现,当单独一束高会聚激光照射到微小粒子上时,光场和粒子的相互作用可以形成稳定的三维光学势阱,它可以吸引微粒并把它局限在焦点附近,利用这一原理操控微小粒子的装置就被形象地称为光镊(或光阱)<sup>[2-4]</sup>。由于光镊是用一束光形成的梯度力势阱来操控粒子的,因此光镊的正式名称为“单光束梯度力势阱”(single-beam optical gradient force trap)。

光镊的优势在于它可以在三维实现对粒子的稳定的、非接触性的捕获和操作<sup>[4]</sup>。光镊的这种非接触性的操控对粒子以及它周围的环境影响很小,这样,光镊就可以在不影响粒子本身性质和周围环境的情况下操控和观察粒子,并对粒子的性质进行研究。

光镊的这一优势使得它在生物<sup>[5-11]</sup>、胶体科学等领域<sup>[12-23]</sup>得到了广泛的应用,而光镊在这些领域的应用也对光镊本身提出了新的要求。因此,自光镊发明以来,光镊技术和设备一直在不断发展以适应这些要求,同时也拓展了光镊的应用范围,出现了以一定频率开关的闪频光镊<sup>[17,18]</sup>;可以限制粒子在激光束扫描轨迹上运动的扫描光镊<sup>[24]</sup>;可以同时独立操控两个或者多个粒子的双光镊<sup>[25]</sup>和多光镊;可以实现纳米精度位移测量和皮牛力监测的纳米光镊技术<sup>[26-28]</sup>;以及拉盖尔-高斯(LG)<sup>[29]</sup>光束形成的可以转动被捕获粒子<sup>[30]</sup>,并可以操控低折射率小球<sup>[31]</sup>和金属微粒<sup>[32]</sup>的光镊等等新的光镊技术。这些新的光镊技术的出现使得光镊可以应用

于更多的研究领域。

为了更清楚地认识光镊的性质,在光镊的光场与粒子间相互作用的理论计算方面,人们也开展了很多的研究工作。这些计算工作也为光镊技术的发展和應用提供了有益的指导。早在光镊发明之前,就已经有文献报道了使用几何光学模型(RO model)来研究激光束对粒子的作用的研究工作<sup>[33]</sup>,从一定程度上来说,最终光镊的出现也是由这些理论计算工作的结果所促成的。在光镊发明之后,光镊的理论计算工作也一直在继续,其中包括利用对比激光波长大很多的粒子适用的几何光学模型<sup>[34-36]</sup>,和对比波长小很多的粒子(瑞利粒子)适用的波动光学模型<sup>[37-39]</sup>来研究光镊对捕获粒子的作用力等。对于与激光波长相当的粒子,也可以用波动光学模型<sup>[40,41]</sup>来计算光镊的作用力,但是这种尺度的粒子对光场的散射比较复杂,在具体计算中,可以利用时域有限差分法(FDTD)<sup>[42]</sup>、有限元法(FEM)<sup>[43,44]</sup>、T矩阵法<sup>[45,46]</sup>等方法来求解。

## §1.2 分散体系领域的研究现状

分散体系是指一种或几种物质分散在另一种物质中的体系,一般人们把被分散的物质叫做分散相,而另一种物质叫做分散介质。一般来说,分散相颗粒直径在1-1000纳米的分散体系称为胶体分散体系,而分散相颗粒直径大于1000纳米的分散体系称为粗分散体系<sup>[47]</sup>。按照这样的划分,分散体系的含义实际上较胶体更广泛,胶体实际上是分散相粒子大小处在胶体大小范围内的分散体系<sup>[48]</sup>。

胶体分散体系是热力学上不稳定的,但是由于胶体颗粒的布朗运动,从而能保持一定的动力学稳定性<sup>[47]</sup>。对于许多重要的分散体系,如乳状液、悬浮液、泡沫等,其质点大小虽然不符合经典的胶体标准,但体系具有很大的界面,和憎液胶体一样属于热力学不稳定体系。因此,它们也属于胶体化学讨论的范围<sup>[48]</sup>。

胶体科学是研究分散体系各种行为的科学,它之所以能够形成一门独立的学科,一方面是由于胶体现象十分复杂,有其独特的规律性;更重要的一个原因在于,它与各类产业部门和人类的活动,都有着千丝万缕的联系<sup>[47]</sup>。

对分散体系的宏观规律,在理论和实验上已经有了比较深入的研究<sup>[49-55]</sup>,并且在理论上已经提出了一些微观模型,例如对布朗运动、涨落、扩散等动力学性质,散射等光学性质,双电层模型等电学性质,胶体粒子的相互作用和体系稳定

性都有一些较为深入的理论研究。

由于分散体系中分散相微粒的大小一般从纳米量级到微米量级,它们在分散介质(液体)中不停地做布朗运动,因而很难对这些微粒个体的运动行为进行直接的实验研究。在传统的实验方法中,一般都利用胶体的电动现象和胶体粒子的光散射对胶体性质进行研究,观测的是大量粒子的群体行为,因此很难为微观理论提供充分的实验依据。与传统的实验方法不同,由于光镊具有操控微小粒子的功能,光镊的出现使得直接从粒子层次对分散体系的各种性质进行实验研究成为可能,从而使人们可以更深入的理解分散体系各种宏观性质的内在规律。

利用光镊技术,可以精确地测量在液体中处于某一特定几何条件下粒子的扩散系数<sup>[19]</sup>,粒子与粒子之间<sup>[12]</sup>、粒子与表面之间<sup>[17,18]</sup>的流体动力学相互作用,粒子之间的静电相互作用<sup>[13,20]</sup>和空间<sup>[15]</sup>、空位相互作用<sup>[21-23]</sup>等。这些研究工作往往需要限制粒子之间或者粒子与其它界面之间的距离,如果不利用光镊,就很难实现对粒子位置的控制,从而难以开展研究。这种粒子层次的或微观的实验研究不仅可为理论提供重要的实验依据,而且很可能发现在一些特定情况下的特殊现象,为分散体系的各种理论的发展起到重要的推动作用。在第二章中,我们将对光镊在分散体系中的这些研究作系统的介绍。

从目前的研究现状来看,利用光镊在分散体系中进行的研究工作,大都为对粒子之间的相互作用的研究。然而在分散体系领域,除了粒子之间的相互作用外,粒子在分散介质中的运动学与动力学,粒子间的碰撞聚集过程以及由此而引起的稳定性问题等也都具有重要意义,但是相关的工作还不多见。鉴于此,本论文将围绕分散体系的稳定性问题,利用光镊从粒子层次对粒子的碰撞聚集过程以及体系的稳定性进行了研究。

### §1.3 本文研究工作的意义

胶体体系的稳定性是胶体最重要的性质之一,对它的研究具有重要的理论意义,历来受到人们的重视。有人甚至说:“胶体科学是在研讨胶体稳定性的过程中发展起来的”。<sup>[47]</sup>在一些工业应用中,如陶瓷制造,药品生产等,分散体系稳定程度往往是决定最终产品性能的重要因素,在污水治理和石油管道运输等应用领域中,分散体系的稳定程度同样非常重要,因此对分散体系稳定性的研究还具

有重要的应用价值。

通常情况下,对分散体系稳定性的研究都是利用光散射的方法测量大量粒子的聚集速率来进行的<sup>[49-53]</sup>。然而,分散体系的稳定程度如何,归根结底都是由分散体系中粒子的相互作用和碰撞聚集过程所决定的,因此研究粒子间的碰撞聚集过程是研究粒子稳定性的一种更为直接的方法,有利于对胶体的聚集现象和稳定性现象的微观机理的理解,对完善理论模型提供依据。本文的主要研究工作之一就是建立了利用光镊从粒子层次研究微粒碰撞聚集过程的实验研究方法,进而实现了从粒子层次研究分散体系中微粒的碰撞聚集过程和体系的稳定性。

在我们建立的利用光镊研究微粒碰撞聚集过程的实验方法中,光镊都被用来捕获两个粒子。在通常情况下,光镊在应用中都只用来捕获单个粒子,没有文献报道对光镊捕获两个粒子情况下粒子的受力和运动情况进行研究。这样,人们对光镊中两个粒子状态的认识不足,也限制了光镊捕获两个粒子这一特点的应用。在本文中,我们对光镊中两个粒子的受力、运动和碰撞聚集过程也进行了研究,这些研究工作不仅对我们利用光镊研究分散体系稳定性的工作起到了重要的作用,同时它也增进了人们对光镊的性质的认识,为光镊的进一步应用,特别是光镊捕获两个粒子这一性质的进一步应用提供了重要的理论指导。

粒子与界面之间的流体动力学相互作用是在分散体系中广泛存在的一种相互作用,在光镊中两个粒子的碰撞过程的研究中,就需要考虑粒子之间的流体动力学相互作用。我们对粒子与平面界面之间的流体动力学相互作用也利用光镊进行了实验研究。

我们还利用光镊实现了胶体粒子的稳定排布,如同扫描探针技术对原子进行排布那样,对胶体粒子的人工排布也具有重要的理论意义和实际应用价值。各种不同的环形光的横向受力也通过理论计算进行了比较,这一工作对环形光光镊的理论和应用的进一步发展都有一定的参考价值。

## §1.4 本文主要内容简介

本文主要围绕我们课题组所承担的“光镊技术及其在分散体系研究中的应用”这一课题进行研究。我们利用光镊技术,研究了分散体系中受限制粒子的扩散特性,实现了对分散体系中粒子的稳定人工排布,并从粒子层次研究了分散体

系的稳定性 ;对与研究工作相关的光镊中两个粒子的碰撞过程以及光镊对粒子的作用力等也进行了理论的研究和模拟计算。

由于本论文的工作涉及到光镊及其在分散体系中的应用 ,因此在介绍研究工作之前 ,我们首先在第二章中介绍了光镊的基本原理和光镊在分散体系领域中的应用现状。

第三章到第八章为我们的研究工作。在第三章中 ,我们对微小粒子的扩散特性受边界条件的影响进行了研究。这一章针对前人工作中的问题提出了解决方案 ,并在实验方法上进行了改进 ,研究了双平面对分散体系中粒子扩散的影响 ,并对实验的误差进行了讨论。

第四章的内容为本论文的重点之一 ,介绍了利用光镊从微小粒子层次研究分散体系稳定性的工作。在这一章中 ,我们首先对分散体系的稳定性作了简单介绍 ,然后再介绍从粒子层次对分散体系稳定性进行的研究工作。具体内容包括 :建立了研究粒子碰撞聚集过程的实验方法 ,对光镊中两个粒子碰撞聚集过程进行了理论分析和实现了从粒子层次对分散体系稳定率的测量。这是首次从粒子层次研究分散体系的稳定性和体系中粒子的碰撞聚集过程。

第五章将介绍光镊中两个粒子的碰撞频率的模拟计算工作 ,这部分工作与第四章研究内容直接相关 ,第四章中对光镊中两个粒子的碰撞聚集过程的理论分析以及实现从粒子层次测量稳定率的方法都要用到第五章中工作的结果。

第六章的工作内容为利用光镊实现分散体系中粒子的稳定人工排布。

第七章和第八章的内容是对光镊中粒子受力的理论计算。这两章的理论计算工作所研究的问题都与光镊的一些应用有密切联系 ,其中光镊中两个粒子纵向受力的理论计算工作就直接和第四章中的研究工作有关。在第七章中 ,我们首先介绍了光镊中粒子受力理论计算的研究背景 ,然后介绍我们所进行的光镊中两个粒子纵向受力的理论计算工作 ,并结合第四章内容进行分析。第八章将介绍不同的环形光对粒子的横向作用力的理论计算工作 ,并讨论了该工作中的应用意义。

最后的第九章是整篇论文的总结。

## 本章参考文献

1. C.Salomon, J.Dalibard, A.Aspect, H.Metcalf, and C.Cohen-Tannoudji, "Channeling atoms in a laser standing wave," *Phys.Rev.Lett.* **59**, 1659-1662 (1987)
2. A.Ashkin, "Acceleration and trapping of particles by radiation pressure," *Phys.Rev.Lett.* **24**, 156-159 (1970).
3. 李银妹, 《光镊原理、技术和应用》 中国科学技术大学出版社 1996.
4. A.Ashkin, J.M.Dziedzic, J.E.Bjorkholm, and S.Chu, "Observation of a single-beam gradient force optical trap for dielectric particles," *Opt.Lett.* **11**, 288-290 (1986).
5. A. Ashkin, J.M.Dziedzic, and T.Yamane, "Optical trapping and manipulation of single cells using infrared laser beams," *Nature* **330**, 769-771 (1987).
6. A.Ashkin, and J.M.Dziedzic, "Optical trapping and manipulation of viruses and bacteria," *Science* **235**, 1517-1520 (1987).
7. A.Ishijima, H.Kojima, T.Funatsu, M.Tokunaga, H.Higuchi, H.Tanaka, and T.Yanagida, "Simultaneous observation of individual ATPase and mechanical events by a single myosin molecule during interaction with actin," *Cell* **92**, 161-171 (1998).
8. M.D.Wang, "Manipulation of single molecules in biology," *Curr. Opin. Biotechno.* **10**, 81-86 (1999).
9. C. Bustamante, S. Smith, J. Liphardt, and D. Smith, "Single-Molecule Studies of DNA Mechanics," *Current Opinion in Structural Biology* **10**, 279-285 (2000).
10. K.Svoboda, C.F.Schmidt, B.J.Schnapp, and S.M.Block, "Direct observation of kinesin stepping by optical trapping interferometry," *Nature* **365**, 721-727 (1993).
11. C.Veigel, L.M.Coluccio, J.D.Jontes, J.C.Sparrow, R.A.Milligan, and J.E.Molloy, "The motor protein myosin-I produces its working stroke in two steps," *Nature* **396**, 530-533 (1999)
12. J.C.Crocker, "Measurement of the hydrodynamic corrections to the Brownian motion of two colloidal spheres," *J. Chem. Phys.* **106**, 2837-2840 (1997).
13. J.C.Crocker, and D.G.Grier, "Microscopic measurement of the pair interaction potential of charge-stabilized colloid," *Phys. Rev. Lett.* **73**, 352-355 (1994).
14. D.G.Grier, "Optical tweezers in colloid and interface science," *Curr. Opin. Colloid Interface Sci.* **2**, 264-270 (1997).
15. R.J.Owen, J.C.Crocker, R.Verma, and A.G.Yodh, "Measurement of long-range steric repulsions between microspheres due to an adsorbed polymer," *Phys. Rev. E.* **64**, art. No.11401 (2001).

16. Z.W.Sun, Y.M.Li, S.H.Xu, L.R.Lou, G.L.Dai, and X.Q.Dong, "A direct test on the possibility of an aggregate in dispersion being disrupted by shear flow," *J.Colloid Interface Sci.* **242**, 158-163 (2001).
17. B.H.Lin, J.Yu, and S.A.Rice, "Direct measurements of constrained Brownian motion of an isolated sphere between two walls," *Phys. Rev. E* **62**, 3909-3919 (2000).
18. B.H.Lin, J.Yu, and S.A.Rice, "Diffusion of an isolated colloid sphere confined between flat plates," *Colloids Surf. A* **174**, 121-131 (2000).
19. J.C.Crocker, and D.G.Grier, "Methods of digital video microscopy for colloidal studies," *J. Colloid Interface Sci.* **179**, 298-310 (1996).
20. J.C.Crocker, and D.G.Grier, "When like charges attract: The effects of geometrical confinement on long-range colloidal interactions," *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1897-1900 (1996).
21. A.D.Dinsmore, A.G.Yodh, and D.J.Pine, "Entropic control of particle motion using passive surface microstructures," *Nature* **383**, 239-242 (1996).
22. R.Verma, J.C.Crocker, T.C.Lubensky, and A.G.Yodh, "Entropic colloidal interactions in concentrated DNA solutions," *Phys. Rev. Lett.* **81**, 4004-4007 (1998).
23. J.C.Crocker, J.A.Matteo, A.D.Dinsmore, and A.G.Yodh, "Entropic attraction and repulsion in binary colloids probed with a line optical tweezers," *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4352-4355 (1999).
24. K.Sasaki, M.Koshio, H.Misawa, N.Kitamura, and H.Masuhara, "Pattern-formation and flow-control of fine particles by laser-scanning micromanipulation," *Opt. Lett.* **16**, 1463-1465 (1991).
25. E.Fallman, and O.Axner, "Design for fully steerable dual-trap optical tweezers," *Appl. Opt.* **36**, 2107-2113 (1997).
26. H.T.Chen, Y.M.Li, L.R.Lou, and H.W. Wang, "High precision measurements in an optical tweezers for studying single biomolecule motion," *Proceedings of SPIE*, **4536**, 75-81 (2002).
27. R.M.Simmons, J.T.Finer, S.Chu, and J.A.Spudich, "Quantitative Measurements of Force and Displacement Using an Optical Trap," *Biophys. J.* **70**, 1813-1822 (1996).
28. E.L.Florin, A.Pralle, E.H.K.Stelzer, and J.K.H.Hörber, "Photonic force microscope calibration by thermal noise analysis," *Appl. Phys. A* **66**, 75-78 (1998).
29. L.Allen, M.W.Beijersbergen, R.J.C.Spreeuw, and J.P.Woerdman, "Orbital angular momentum of light and the transformation of laguerre-gaussian laser modes," *Phys. Rev. A*, **45**, 8185-8189 (1992).
30. H.He, M.E Fries, N.R.Heckenberg, and H.Rubinsztein-Dunlop, "Direct observation of transfer of angular momentum to absorbtive particles from a laser with a phase singularity,"



- Phys.Rev.Lett. **75**, 826-829 (1995).
31. K.T.Gahagan, and G.A.Swartzlander,Jr, "Optical vortex trapping of particles," Opt. Lett. **21**, 827-829 (1996).
  32. A.T.O'Neil, and M.J.Padgett, "There-dimensional optical confinement of micron-sized metal particles and the decoupling of the spin and orbital angular momentum within an optical spanner," Opt.Comm. **185**, 139-143 (2000).
  33. G.Roosen, "La levitation optique de spheres," Can. J. Phys. **57**, 1260-1279 (1979)
  34. A.Ashkin, "Forces of a single-beam gradient trap on a dielectric sphere in the ray optics regime," Biophys. J. **61**, 569-582 (1992).
  35. R.Gussgard, T.Lindmo, and I.Brevik, "Calculation of the trapping force in a strongly focused laser beam," J. Opt. Soc. Am. B **9**, 1922-1930 (1992).
  36. E.Fallman, O.Axner, "Influence of a glass-water interface on the on-axis trapping of micrometer-sized spherical objects by optical tweezers," Appl. Opt. **42**, 3915-3926 (2003).
  37. Y.Harada, and T.Asakura, "Radiation forces on a dielectric sphere in the Rayleigh scattering regime," Opt. Comm. **124**, 529-541 (1996).
  38. K.Visscher, and G.J.Brakenhoff, "Theoretical study of optically induced forces on spherical particles in a single beam trap I: Rayleigh scatterers," Optik **89**, 174-180 (1992).
  39. X.C.Yao, Z.L.Li, H.L.Guo, B.Y.Cheng, and D.Z.Zhang, "Effects of spherical aberration on optical trapping forces for Rayleigh particles," Chin. Phys. Lett. **18**, 432-434 (2001).
  40. A.Rohrbach, and E.H.K.Stelzer, "Optical trapping of dielectric particles in arbitrary fields," J.Opt.Soc.Am.A **18**, 839-853 (2001)
  41. A.Rohrbach, and E.H.K.Stelzer, "Trapping forces, force constants, and potential depths for dielectric spheres in the presence of spherical aberrations," Appl. Opt. **41**, 2494-2507 (2002).
  42. 葛德彪, 闫玉波, 《电磁波时域有限差分方法》西安电子科技大学出版社 2002.
  43. (美)金建铭 著, 王建国 译《电磁场有限元方法》西安电子科技大学出版社 1998.
  44. D.A.White, "Numerical modeling of optical gradient traps using the vector finite element method," J. Comput. Phys. **159**,13-37 (2000).
  45. T.A.Nieminen, H.Rubinsztein-Dunlop, N.R.Heckenberg, and A.I.Bishop, "Numerical modeling of optical trapping," Comput. Phys. Comm. **142**, 468-471 (2001).
  46. T.A.Nieminen, H.Rubinsztein-Dunlop, N.R.Heckenberg, "Calculation and optical measurement of laser trapping forces on non-spherical particles," J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer **70**, 627-637 (2001).
  47. 王果庭, 《胶体稳定性》科学出版社 1990.

48. 周祖康, 顾惕人, 马季铭, 《胶体化学基础》 北京大学出版社 1987.
49. J.W.Lichtenbelt, H.J.M.Ras, and P.H.Wiersema, "Turbidity of coagulation lyophobic sols," J. Colloid Interface Sci. **46**, 522-527 (1974).
50. Z.W.Sun, and R.L.Qiao, "An experimental study of the influence of weak convection on perikinetic coagulation," J. Colloid Interface Sci. **223**, 126-132 (2000).
51. G.R.Zeichner, and W.R.Schowalter, "Effects of hydrodynamic and colloidal forces on the coagulation of dispersions," J. Colloid Interface Sci. **71**, 237-253 (1979).
52. M.B.Einarson, and J.C.Berg, "Electrosteric stabilization of colloidal latex dispersions," J. Colloid Interface Sci. **155**, 165-172 (1993).
53. R.Amal, J.R.Coury, J.A.Raper, W.P.Walsh, and T.D.Waite, "Structure and kinetics of aggregating colloidal hematite," Colloids Surf. **46**, 1-19 (1990).
54. W.B.Russel, D.A.Saville, and W.R.Schowalter, 《Colloidal Dispersions》 Cambridge: Cambridge University Press 1989.
55. (美) P.C.Hiemenz 著, 周祖康, 马季铭 译 《胶体与表面化学原理》 北京大学出版社 1986

## 第二章 光镊的原理及其在分散体系中的应用

由于本论文的工作是围绕光镊在分散体系中的应用开展的，因此在介绍我们的研究工作之前，首先介绍光镊的原理以及光镊在分散体系中的应用背景。

### §2.1 光镊的原理

光具有能量和动量。然而，由于普通光的动量微乎其微，几乎不能引起可觉察的宏观力学效应，因此在激光出现之前，人们经常利用光的能量，却很少利用光的动量。激光具有高亮度和优良的方向性，它的出现使得光的力学效应明显的显现出来。光镊技术<sup>[1-4]</sup>正是利用激光的力学效应而发展起来的一种操控微小粒子的技术。

#### §2.1.1 光的动量

提到光的动量，就要提到光压的概念，虽然它的提出可以追溯到开普勒和牛顿时代，但是其理论证明和实验测量则是很久以后才出现的。1873年 Maxwell 从光的波动性角度，根据电磁波理论论证了光压的存在（电磁波辐射压）并算出了垂直入射到部分反射吸收体表面的光束产生的光压——也就是动量的传递——为  $\frac{E}{c}(1+R)$ ，其中  $E$  为每秒垂直入射到  $1\text{m}^2$  上的能量， $c$  为光速， $R$  为光所照射物体的反射系数。

按照光的波粒二象性理论，光子具有动量。光子所携带的动量为：

$$P = h \cdot k = \frac{h}{\lambda} = \frac{E}{c} \quad (2.1)$$

其中， $h$  为普朗克常数， $k$  为光波数， $\lambda$  为光波长， $E = h\nu$  为光子的能量， $c$  为光速。

光压就是光子把它的动量传给吸收壁或反射壁的结果。设单色光正入射到壁上， $N$  个光子携带能量为  $E = Nh\nu$ ， $N$  个光子传给绝对吸收壁的动量为  $N\frac{h\nu}{c}$  或传给绝对反射壁的动量为  $2N\frac{h\nu}{c}$ 。一般情况下，被照物体的反射系数为  $R$ ，则  $N$

个光子传给物体的动量和根据电磁波理论得到的结果一致，为：

$$(1 - R)N \frac{h\nu}{c} + R2N \frac{h\nu}{c} = N \frac{h\nu}{c} (1 + R) = \frac{E}{c} (1 + R) \quad (2.2)$$

十九世纪末，俄国物理学家列别捷夫第一次从实验中测量了光压，此后，美国物理学家尼科尔、霍尔也分别独立地在实验室发现并测量了光压<sup>[5,6]</sup>。

### §2.1.2 激光的力学效应

激光是一种受激辐射相干光。激光束被聚焦后与物体相互作用时，能产生可观的力学效应。如功率为 10mw 的 He-Ne 激光器发射的光束若会聚到  $1 \mu m^2$ 。在光束中心可产生  $10^6$  达因/平方米的压力，它可使一个微米量级的电介质小球产生约  $10^3 g$  的加速度（g 为重力加速度）。因此激光的发明使得对光压的实验研究有了突破性的进展。

上世纪 70 年代初，人们开始对激光辐射压力进行了全面和深入的研究，特别是对原子在各种不同条件下所受辐射压力的性质和机制进行了理论探索和实验观测，从而发展了原子束的激光偏转<sup>[7]</sup>、激光冷却<sup>[8]</sup>、光子粘团<sup>[9]</sup>、原子喷泉等<sup>[10]</sup>实验技术。与此同时，另一类有关光压的研究也在进行着，这就是激光对于宏观微粒的辐射压力的研究（包括对宏观介质微粒的光悬浮、光捕获和光操纵等），这方面的研究最终导致了光镊的发明。

### §2.1.3 微粒的激光悬浮

光场中的微粒由于光压的作用，会受到一个沿光传播方向的推力。而光悬浮就是以光对微粒的推力为基础的。1970 年，A. Ashkin 首次报道了水溶液中，乳胶微球在水平方向传播的高斯激光束中的运动情况。微粒先被拉向光轴，然后沿光束传播方向加速，达到每秒数微米的速度。用两束等强度激光相向照射，控制它们的束腰位置，可以使微粒平衡在两束腰间，实现了粒子的光捕获<sup>[11]</sup>。后来他把激光的传播方向取为竖直向上，使光压与微粒本身的重力相平衡，从而用单束激光实现了光悬浮<sup>[12]</sup>。

### §2.1.4 单光束梯度力光镊原理

通常光对物体的作用力都是推力。然而对于光强有一定的梯度的情况，入

射的光还会对物体产生梯度力<sup>[1,13]</sup>，这样在一定条件下光可以对物体产生拉力，甚至是束缚力。

1986年 A.Ashkin<sup>[3]</sup>利用一束强聚焦激光对粒子产生的梯度力实现了三维的稳定捕获。当强会聚的激光束照射到透明微粒上时，激光束受到微粒的反射和折射作用，导致光束动量的改变。根据动量守恒原理，微粒的动量也发生相应的改变，即微粒会受到光场的作用力，它包括梯度力和散射力。其中散射力的方向与光的传播方向一致，它趋向于使小球沿光束传播方向运动；而梯度力则是指向光最亮处。这种强会聚的激光对粒子在光轴方向的作用力如图 2.1 所示。对处于焦点外的粒子，光线被折射后，其传播方向变得更平行于轴，从而增大了纵向动量，粒子受拉力。同样的分析，当粒子在焦点内时，将受到推力。在另外的二维方向，粒子偏离光轴时同样要受到指向光轴的作用力。

因此，对于强聚焦的激光光场来说，处于光焦点附近的微粒都受到一个趋向于焦点的力，光场中任何横向的（ $X-Y$  平面）偏离都会导致因横向上的梯度力而产生回复力，而任何纵向的（ $Z$  方向）偏离都会导致因纵向梯度力而产生回复力。故在光焦点附近的微粒将会受到该回复力而被稳定的束缚于焦点附近。这样，一束高度会聚的光束便构成了三维空间的一个势场或势阱，能量最低处在焦点附近，这就是单光束梯度力光镊。单光束梯度力光镊主要靠光场梯度力来实现稳定捕获微粒。

由此可见，“光镊”其实是比拟宏观机械镊子对光势阱效应的一种形象描绘。所以当我们在研究光镊自身的物理性质时往往采用“光阱”、“光梯度力阱”或“光学势阱”等物理术语。事实上，光镊操控粒子与机械镊子有很大不同，它是以非机械接触的方式来完成夹持和操纵物体的，因此它是一种无损伤的操作工

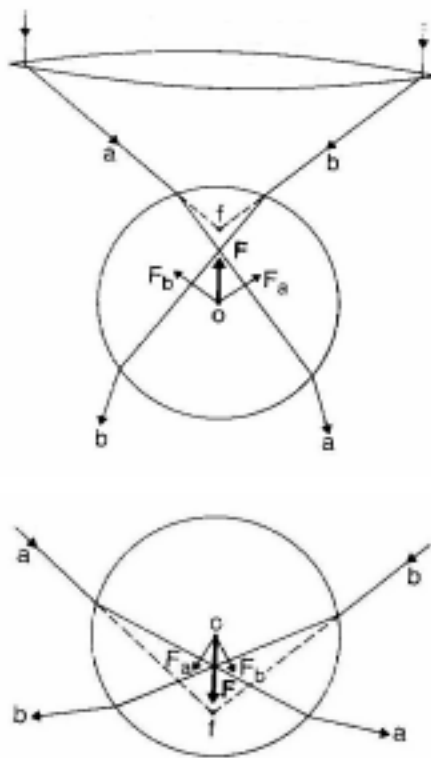


图 2.1.单光束梯度力光阱

具,不仅与机械镊子相比无明显的机械损伤,而且还可通过选用适当波长的激光,使形成的光镊对物质的热学或化学等效应也非常弱。由于它对被操控的粒子影响很小,因此可以在保持被捕获粒子性质不变的情况下,对其性质进行研究。也正因为这一特点,使得它在胶体科学等领域得到了广泛的应用。

## §2.2 光镊在分散体系研究中的应用

分散体系是相当广泛的一种物质体系。在人们的日常生活和生产活动中,人类都不断的与各种不同的分散体系打交道,因而该领域的研究具有着非常广泛的应用意义,对分散体系性质的研究一直是自然科学中一个活跃的研究领域。其中粒子的流体动力学相互作用、静电相互作用、空缺和空间相互作用等以及其对分散体系性质的影响都是非常重要的研究课题。

如同 1.2 节中所述,在光镊应用到胶体科学领域之前,对分散体系性质的研究已有很长的历史,这些研究大多是利用胶体的宏观性质来进行的<sup>[14-18]</sup>。然而关于胶体宏观性质的微观本质——分散相粒子间的微观相互作用及动力学过程,却由于粒子一直不断进行的随机热运动,而难以对它进行实验研究。此外,由于粒子之间的相互作用一般都很微弱,也给精确测量带来很大困难。在没有合适的手段从粒子层次进行研究的时候,很多关于粒子相互作用的工作都是从理论上建立模型来进行的<sup>[19,20]</sup>。然而该领域的进一步发展几乎决定性的依赖于对单个微粒相互作用过程的研究,因而找到合适的手段和方法就变得非常必要。光镊出现以后,很快就成为在粒子层次对胶体科学进行实验研究的重要工具。

光镊可以捕获和移动几十纳米到几十微米大小的粒子,它还可以作为力的探针,测量皮牛亚皮牛量级的力。对于很多分散体系来说,其中的粒子的大小恰好在这个范围,而粒子之间的微小作用力也可以使用光镊测量,因而光镊成为了研究分散体系性质的一个方便的工具。此外,由于光镊是利用高会聚激光束对粒子的力的作用来操控粒子的,所有机械部件和被操控的粒子之间的距离都比粒子本身的大小要大很多,因而这种操控是非接触的,对操控对象的周围环境影响很小,从而使得研究人员在不影响被操控粒子性质的情况下观察粒子,并研究粒子的性质或从粒子的层次研究各种体系宏观性质的微观机理。基于光镊技术的这些特点,它已经被日益广泛的使用在胶体悬浮液、大分子分散体系的性质的研究中

[21, 22], 特别是用来对分散体系的微观动力学过程和微粒间相互作用以及微粒与表面之间的相互作用等方面进行研究。

在研究中, 光镊操控、高分辨率成像以及数字图像分析一般是结合在一起的, 它们的结合形成了一种强大的实验技术。在该实验技术中, 光镊技术解决了对粒子的捕获、悬浮、操控或固定的关键技术, 而对实验结果的分析, 则是利用高分辨率成像和数字图像分析等手段。为了进行特定的研究, 常常还需要对光镊系统本身进行相应改进, 构成适合于特定实验研究的光镊系统。例如在光路中插入一个频率开关, 就可以形成以一定频率不断开关的闪频光镊, 它可以实现交替地捕获和释放粒子, 在光镊关闭的时间中, 粒子可以保持在热随机力和其它作用力的作用下的自由运动状态, 再利用数字显微摄像技术<sup>[23]</sup>就可以精确的测量其自由运动的轨迹, 对测量粒子的扩散以及一些相关的作用力来说, 这种光镊非常实用和方便。扫描光镊<sup>[24]</sup>、双光镊<sup>[25]</sup>和多光镊等技术的发展也使得光镊适合于更加复杂的研究, 扩展了光镊在分散体系中的应用范围。总之, 光镊技术可以限制粒子的运动, 从而可以使研究人员在严密控制的条件下精确观测单个粒子的动力学过程, 这对研究微粒的个体行为和彼此间的相互作用是非常必要的。

### §2.2.1 关于粒子扩散的研究

利用前面提到的以一定频率开关的光镊, 最容易测量的参数之一就是布朗运动粒子的扩散系数<sup>[23]</sup>。测量方法可以利用 Einstein-Smoluchowsky 方程:

$$\frac{1}{N} \sum_{i=1}^n |\mathbf{r}_i(t) - \mathbf{r}_i(0)|^2 = 2dDt \quad (2.3)$$

式中  $t$  表示粒子每步运动的时间,  $d$  表示粒子运动的维数,  $r_i(0)$  与  $r_i(t)$  分别为粒子在第  $i$  步运动的起始和最终位置。这样, 只要测量出  $r_i(t)$  和  $r_i(0)$ , 就可以用来计算扩散系数  $D$ 。利用这种方法不仅可以测量扩散系数, 更重要的是, 它可以用来测量在某一特定几何位置的扩散系数, 这在没有光镊作为操控手段的时候是无法实现的。这种在精确控制的条件下单个粒子扩散的研究可以作为更复杂的研究的基础, 并可以对胶体的一些基本过程给出新的见解。实际上, 后面提到的流体动力学相互作用对扩散的影响就是简单的单粒子扩散研究的一个自然延伸。

### §2.2.2 流体动力学相互作用

粒子的自由运动会因为与其它粒子或者表面的流体动力学相互作用而受到影响,即使在与表面或者其它粒子相距比较远的地方这种影响仍然可能很大。理论上给出,与附近的表面之间的流体动力学相互作用将会抑制粒子的扩散,而且不管是在纵向还是横向上都会有这样的抑制效应<sup>[26]</sup>。要从实验验证这一抑制效应,并测量该抑制效应和粒子与表面距离的关系,就必须能够测量粒子在空间给定位置处的扩散系数,光镊正是实现这一目标的有效手段。Bi nhua Li n 等人<sup>[27,28]</sup>利用上述的间断性光镊以及数字成像技术,研究了表面对粒子横向和纵向扩散的影响。他们用光镊控制粒子离表面的距离,并以 1Hz 的频率开关光镊,1 秒中光镊开关的时间均为 0.5 秒,在粒子自由运动的时间内,测量粒子在横向和纵向的扩散,从而分析得出粒子与表面距离一定的情况下表面对粒子扩散的影响,并给出了与理论定量上一致的结果。

Crocker<sup>[29]</sup>扩展了前面所提到的方法,采用了以一定频率开关的双光镊,用以捕获两个微米尺度粒子,并对它们在微米尺度距离下的流体动力学相互作用进行了研究。在这种情形下,粒子的扩散可以分成四个部分:两个小球的质心的扩散,也即它们整体的扩散,包括两小球连线方向和垂直两小球连线的方向的扩散两部分;还有两小球相对的扩散,也同样包括小球连线方向和垂直连线方向两部分。实验测量出来的这四个扩散系数和距离的关系与 Batchler 的预测<sup>[30]</sup>一致。Eric R. Dufresne 等研究人员还把体系变得更为复杂,除了两个小球之外,还增加了单表面的影响,他们使用双光镊捕获两个胶体小球,观察它们在单个表面附近时,小球之间的流体动力学相互作用行为<sup>[31]</sup>。结果显示即使在小球与表面的距离比小球的半径大一个量级的时候,表面仍然会影响小球之间的相互作用。

### §2.2.3 静电相互作用

分散在电解质溶液中,带很高表面电荷的粒子之间的静电相互作用一直是分散体系领域研究的热点问题。利用光镊可以直接对分散体系中粒子之间的静电相互作用进行实验研究,而且对相互作用势的测量已经达到能和静电相互作用的 DLVO 理论<sup>[19,20]</sup>做对比的精度,使得人们对理论以及相互作用过程进行更深入的探讨。



Crocker 和 Grier<sup>[23, 32, 33]</sup>使用光镊捕获然后释放两个分离的静电稳定的胶体粒子, 然后对这种存在静电相互作用的两个粒子的布朗运动轨迹进行分析计算<sup>[34]</sup>, 得出了粒子的相互作用势, 测量的空间精度为 50nm, 能量精度为 2 meV。一系列这样的测量定量地给出了与 DLVO 理论相一致的排斥作用<sup>[32, 33]</sup>, 其相互作用势能曲线的结果见图 2.2<sup>[33]</sup>。但是当同样的小球被限制在两个玻璃表面间的一个薄层之内时, 实验结果却显示了 DLVO 理论中所没有的长程吸引力部分<sup>[33]</sup>。

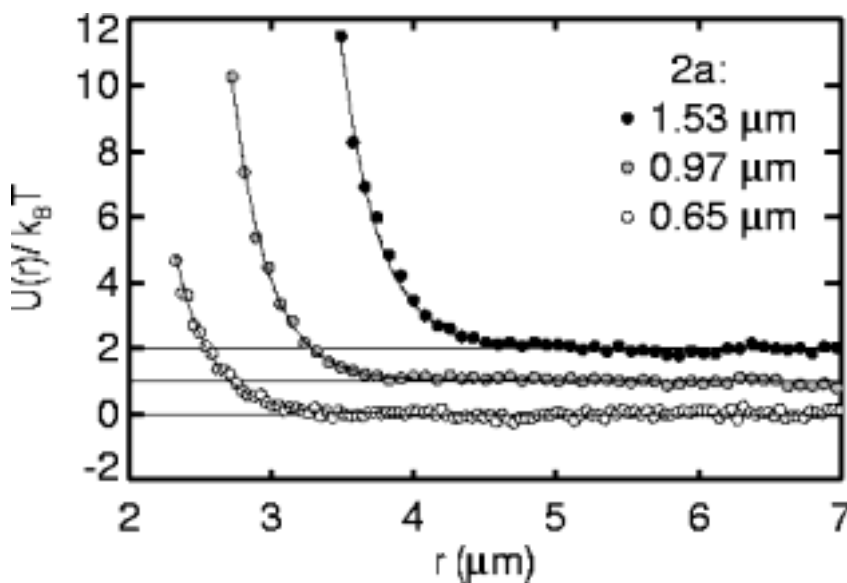


图 2.2：对三种不同直径的小球所测量的相互作用势能图，曲线为 DLVO 理论的拟合曲线，拟合参数为双电层厚度和表面有效电荷密度。<sup>[33]</sup>

这些结果已经使一些研究人员开始质疑长程静电势能的具体形式。这将会大大推动静电相互作用模型和理论的发展, 并增进人们对粒子之间的静电相互作用的认识。

#### §2.2.4 空缺相互作用 (depletion interaction) 和空间相互作用 (steric interaction)

在有其它的粒子或者大分子存在的胶体溶液中, 如果粒子或者大分子不吸附于胶体粒子表面, 其引起的效应称为空缺相互作用, 如果粒子或大分子吸附于粒子表面, 引起的效应则称为空间相互作用<sup>[35]</sup>。空缺相互作用和空间相互作用直接影响体系的稳定性, 因而具有重要的研究价值。这两种相互作用形式本身比较复杂

杂,光镊在这些领域的优势是它可以直接从粒子层次对这些复杂的相互作用进行研究。而这些研究结果也使得人们对该领域的认识更加深入。

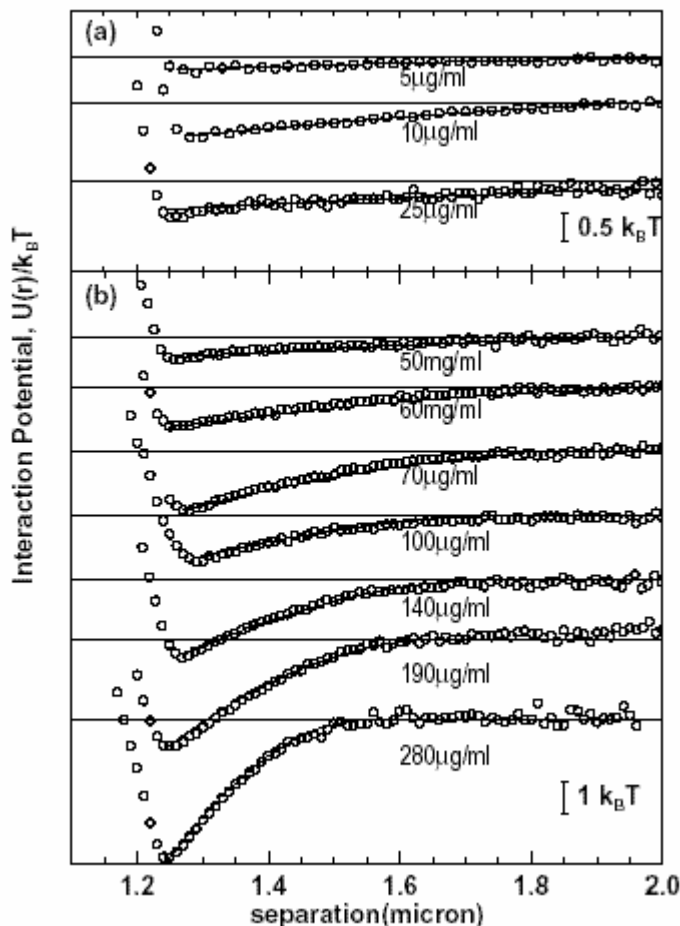


图 2.3 两个直径为 1.25 微米的硅胶小球的相互作用势能图。a 表示在大分子浓度低的情况，b 表示在大分子浓度比较高的情况。图中圆圈表示实验的数据，而实心的曲线表示理论的结果。<sup>[38]</sup>

1996 年, Di nsmore, Yodh, 和 Pi ne<sup>[36]</sup> 使用以一定频率开关的光镊测量了被许多大分子链所包围的胶体刚性小球之间的空缺相互作用, 给出了研究粒子与粒子之间空缺相互作用的新方法。其后, Ri tu Verma 利用线扫描光镊对非吸附性大分子溶液中的胶体小球之间的空缺相互作用进行了测量<sup>[37]</sup>, 在扫描光镊中, 粒子在光镊扫描的轨迹上可以自由运动, 而在其它方向上, 粒子被完全限制。他们用扫描光镊捕获两个粒子, 并对其运动进行分析, 得到了粒子之间相互作用势(见图 2.3)<sup>[37]</sup>, 结果可以用 A0 模型<sup>[38, 39]</sup> 解释。不久以后, J. C. Crocker 也利用线扫描的光镊, 对有其它粒子存在下的胶体粒子相互作用进行了研究。在他们的实验中, 胶体粒子被许多很小的粒子包围, 他们对这种体系中的胶体粒子之间的空缺相互作用<sup>[40]</sup> 进行了测量, 发现在小的粒子浓度比较低的情况下, 测量出的相互作

用力与 A0 模型<sup>[38, 39]</sup>给出的一致，但是当小的粒子浓度变大时，相互作用势能中出现了 A0 理论中所没有的排斥部分，如果小的粒子的浓度进一步增大，结果显示相互作用势能出现了摆动，即吸引和排斥交替出现，这是因为小的粒子会在胶体粒子周围形成包围层，而小的粒子浓度增大时，包围层的效果变得更加明显。

与空缺相互作用不同，如果粒子吸附大分子，也会引起相互作用的变化，称为空间相互作用。如果粒子表面被吸附层完全覆盖，其空间排斥作用将会使胶体体系变得稳定。R. J. Owen 使用线扫描光镊测量了粒子之间的空间排斥相互作用势<sup>[41]</sup>，它与粒子之间的距离的关系呈指数衰减规律，该研究还给出了衰减系数的值。

## 本章参考文献

1. 李银妹,《光镊原理、技术和应用》中国科学技术大学出版社 1996.
2. A.Ashkin, "Acceleration and trapping of particles by radiation pressure," *Phys.Rev.Lett.* **24**, 156-159 (1970).
3. A.Ashkin, J.M.Dziedzic, J.E.Bjorkholm, and S.Chu, "Observation of a single-beam gradient force optical trap for dielectric particles," *Opt.Lett.* **11**, 288-290 (1986).
4. A.Ashkin, "History of optical trapping and manipulation of small-neutral particle, atoms, and molecules," *IEEE J.Sel.Top. Quantum Elec.* **6**, 841-856 (2000).
5. 母国光, 战元龄,《光学》, 人民教育出版社 1978.
6. 雷仕湛, 应兴国,《光的世界》, 科学普及出版社 1980.
7. J.E. Bjorkholm, R.R. Freeman, and D.B. Pearson, "Efficient transverse deflection of neutral atomic beams using spontaneous resonance-radiation pressure," *Phys.Rev.A* **23**,491-497 (1981).
8. W.D. Phillips, J.V.Prodan, and H.J. Metcalf, "Laser cooling and electromagnetic trapping of neutral atoms," *J.Opt.Soc.Am.B* **2**, 1751-1767 (1985).
9. A. Aspect, J. Dalibard, A. Heidmann, C.Salomon, and C.Cohen-Tannoudji, "Cooling atoms with stimulated emission," *Phys.Rev.Lett.* **57**, 1688-1691 (1986).
10. M.A.Kasevich, E.Riis, S.Chu, and R.G.DeVoe, "rf Spectroscopy in an atomic fountain," *Phys.Rev.Lett.* **63**, 612-615 (1989).
11. A.Ashkin, "Acceleration and trapping of particles by radiation pressure," *Phys.Rev.Lett.* **24**, 156-159 (1970).
12. A.Ashkin, and J.M.Dziedzic, "Optical levitation of liquid drops by radiation pressure,"*Science* **187**, 1073-1075 (1975).
13. A.Ashkin, "Forces of a single-beam gradient laser trap on a dielectric sphere in the ray optics regime," *Biophys.J.* **55**, 569-581 (1992).
14. J.W.Lichtenbelt, H.J.M.Ras, and P.H.Wiersema, "Turbidity of coagulation lyophobic sols," *J. Colloid Interface Sci.* **46**, 522-527 (1974).
15. Z.W.Sun, and R.L.Qiao, "An experimental study of the influence of weak convection on perikinetic coagulation," *J. Colloid Interface Sci.* **223**, 126-132 (2000).
16. G.R.Zeichner, and W.R.Schowalter, "Effects of hydrodynamic and colloidal forces on the coagulation of dispersions," *J. Colloid Interface Sci.* **71**, 237-253 (1979).
17. M.B.Einarson, and J.C.Berg, "Electrosteric stabilization of colloidal latex dispersions," *J.*

- Colloid Interface Sci. **155**, 165-172 (1993).
18. R.Amal, J.R.Coury, J.A.Raper, W.P.Walsh, and T.D.Waite, "Structure and kinetics of aggregating colloidal hematite," *Colloids Surf.* **46**, 1-19 (1990).
  19. W.B.Russel, D.A.Saville, and W.R.Schowalter, 《Colloidal Dispersions》 Cambridge: Cambridge University Press 1989
  20. (美) P.C.Hiemenz 著, 周祖康, 马季铭 译 《胶体与表面化学原理》 北京大学出版社 1986.
  21. D.G.Grier, "Optical tweezers in colloid and interface science," *Curr. Opin. Colloid Interface Sci.* **2**, 264-270 (1997)
  22. 徐升华, 李银妹, 楼立人, "光镊--研究分散体系的新手段," 《激光与光电子学进展》, **40**, 28-33 (2003).
  23. J.C.Crocker, and D.G.Grier, "Methods of digital video microscopy for colloidal studies," *J. Colloid Interface Sci.* **179**, 298-310 (1996).
  24. K.Sasaki, M.Koshio, H.Misawa, N.Kitamura, and H.Masuhara, "Pattern-formation and flow-control of fine particles by laser-scanning micromanipulation," *Opt. Lett.* **16**, 1463-1465 (1991).
  25. E.Fallman, and O.Axner, "Design for fully steerable dual-trap optical tweezers," *Appl. Opt.* **36**, 2107-2113 (1997).
  26. J.Happel, and H.Brenner, 《Low Reynolds Number Hydrodynamics》 Dordrecht: Kluwer 1991.
  27. B.H.Lin, J.Yu, and S.A.Rice, "Direct measurements of constrained Brownian motion of an isolated sphere between two walls," *Phys. Rev. E* **62**, 3909-3919 (2000).
  28. B.H.Lin, J.Yu, and S.A.Rice, "Diffusion of an isolated colloid sphere confined between flat plates," *Colloids Surf. A* **174**, 121-131 (2000).
  29. J.C.Crocker, "Measurement of the hydrodynamic corrections to the Brownian motion of two colloidal spheres," *J. Chem. Phys.* **106**, 2837-2840 (1997).
  30. G.K.Batchelor, "Brownian diffusion of particles with hydrodynamic interaction," *J.Fluid Mech.* **74**, 1-29 (1976).
  31. E.R.Dufresne, T.M.Squires, M.P.Brenner, and D.G.Grier, "Hydrodynamic coupling of two Brownian spheres to a planar surface," *Phys.Rev.Lett.* **85**, 3317-3320 (2000).
  32. J.C.Crocker, and D.G.Grier, "Microscopic measurement of the pair interaction potential of charge-stabilized colloid," *Phys. Rev. Lett.* **73**, 352-355 (1994).
  33. J.C.Crocker, and D.G.Grier, "When like charges attract: The effects of geometrical confinement on long-range colloidal interactions," *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1897-1900 (1996).

34. H.Risken, 《The Fokker-Planck Equation》 Berlin: Springer-Verlag, 2nd edition 1989.
35. 郑忠, 李宁, 《分子力与胶体的稳定和聚沉》 高等教育出版社 1995.
36. A.D.Dinsmore, A.G.Yodh, and D.J.Pine, “Entropic control of particle motion using passive surface microstructures,” *Nature* **383**, 239-242 (1996).
37. R.Verma, J.C.Crocker, T.C.Lubensky, and A.G.Yodh, “Entropic colloidal interactions in concentrated DNA solutions,” *Phys. Rev. Lett.* **81**, 4004-4007 (1998).
38. D.Asakura, and F.Oosawa, “Interactions between particles suspended in solutions of macromolecules,” *J.Polym.Sci.* **33**, 183-192 (1958).
39. 王果庭, 《胶体稳定性》 科学出版社 1990.
40. J.C.Crocker, J.A.Matteo, A.D.Dinsmore, and A.G.Yodh, “Entropic attraction and repulsion in binary colloids probed with a line optical tweezers,” *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4352-4355 (1999).
41. R.J.Owen, J.C.Crocker, R.Verma, and A.G.Yodh, “Measurement of long-range steric repulsions between microspheres due to an adsorbed polymer,” *Phys.Rev.E* **64**, art. No.11401 (2001).

## 第三章 受限分散体系中粒子的扩散特性的研究

在分散体系中,粒子与粒子及容器壁等界面之间的流体动力学相互作用是广泛存在的一种作用,这一流体动力学相互作用直接影响到粒子的布朗运动和扩散特性,同时也会影响到粒子之间的碰撞等过程,因而分散体系的很多性质都会受到流体动力学相互作用的影响。

关于界面对粒子、粒子对粒子的流体动力学相互作用及其对粒子扩散的影响,都已经有了成熟的理论结果,Faxen 曾指出分散在液体中的微小粒子在平板表面附近的扩散不同于在无限空间中的自由扩散<sup>[1]</sup>,理论上给出,与附近的表面之间的流体动力学相互作用将会抑制粒子的扩散,而且不管是在纵向还是横向上都会有这样的抑制效应;Batchler 也从理论上给出<sup>[2]</sup>,对于两个粒子的体系,每个粒子的运动也都会受到另一个粒子的影响。但是在实验研究方面,却由于缺乏有效的实验研究手段,研究工作远远落后于理论研究。

如同第二章中所叙述的那样,利用光镊在分散体系中最直接的应用就是研究分散体系中粒子的布朗运动和扩散特性,而扩散特性又会受到包括流体动力学在内的各种相互作用的影响。因此,对一定的几何边界条件下或受到其它作用下的布朗运动以及相应的扩散特性进行研究,就可以得到粒子的受力情况。光镊可以精确地控制粒子的位置,从而为流体动力学相互作用的实验研究提供了有效的实验手段。Crocker<sup>[3]</sup>和 Binhua Lin<sup>[4,5]</sup>等人就利用光镊率先开展了对粒子与粒子、粒子与界面之间的流体动力学相互作用的实验研究。

在本章中,我们利用光镊对粒子与两个平行平面间的流体动力学相互作用和在这一作用下粒子的扩散特性进行了研究,这一工作改进了前人的研究工作,加深了人们对受限分散体系中粒子的扩散特性的认识。

### §3.1 布朗运动和粒子的扩散

由于液体分子的热运动,分散体系中悬浮的颗粒会作布朗运动。Einstein-Smoluchowsky 方程将粒子的布朗运动和扩散系数联系起来

$$\frac{1}{N} \sum_{i=1}^n |\mathbf{r}_i(t) - \mathbf{r}_i(0)|^2 = 2dDt \quad (3.1)$$

式中  $t$  表示粒子每步运动的时间,  $d$  表示粒子运动的维数,  $r_i(0)$  与  $r_i(t)$  分别为粒子在第  $i$  步运动的起始和最终位置。这样, 只要测量出  $r_i(t)$  和  $r_i(0)$ , 就可以用来计算扩散系数  $D$ 。

### §3.2 液体边界面对粒子扩散运动的影响

悬浮于液体中的微小粒子的布朗运动是它受到周围液体分子的随机碰撞的结果, 而布朗运动则是粒子扩散的根本原因。在理想情况下, 粒子处于在无限大的分散介质中, 此时粒子的运动只受周围分散介质的相关条件的影响, 如温度、粘滞系数等, 而不存在其它界面的影响。如果微粒是一个半径为  $a$  的硬球, 在粘滞系数为  $\eta$  的液体中运动时, 它所受到的粘滞阻力与其运动方向相反。如果在小球在液体中的运动没有滚动, 在低雷诺数的情况下, 它在分散体系中运动时所受到的粘滞阻力由 Stokes 定律给出<sup>[6,7]</sup>,

$$F_0 = -6\pi\eta av \dots\dots\dots(3.2)$$

其中  $v$  是小球的运动速度。

此时粒子的扩散系数由著名的 Stokes-Einstein 关系给出:

$$D_0 = \frac{k_B T}{6\pi\eta a} \dots\dots\dots(3.3)$$

其中  $k_B$  为 Boltzmann 常数,  $T$  为体系的绝对温度,  $a$  为分散相粒子的半径,  $\eta$  是温度为  $T$  时分散液的粘滞系数。

然而在很多情况下, 分散介质所在的空间大小相对于分散相粒子大小来说不能作为无限大的空间, 这时由于粒子周围有其它边界面的存在, 因而分散相粒子周围的流体对粒子的作用力将发生改变。此时, 粒子的布朗运动和扩散都将受到影响而发生相应的改变。

流体力学理论证明<sup>[8]</sup>, 分散体系的边界面, 例如盛放分散体系的样品池的底面等都会对粒子的扩散有很大的影响, 此时粒子的扩散运动是各向异性的。这时



粒子的扩散和受限的布朗运动就不能用 (3.1) 式表示。如果分散体系的界面都是水平 (xy 平面) 的, 那么 x 方向和 y 方向的扩散是相同的。这样, 可以对 (3.1) 式进行改写, 得到在一定时间间隔  $t$  内, 小球在 x、y、z 方向上的布朗运动所走的距离的统计平均与扩散系数的关系:

$$\langle |\Delta x|^2 \rangle = \langle |\Delta y|^2 \rangle = 2D_x t \dots\dots\dots(3.4)$$

$$\langle |\Delta z|^2 \rangle = 2D_z t \dots\dots\dots(3.5)$$

§3.2.1 单平面对粒子扩散运动的影响

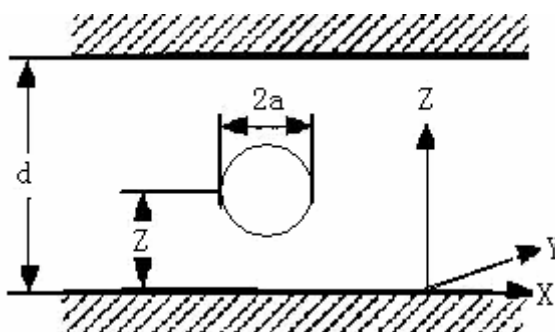


图 3.1 样品池中的样品粒子

分散相粒子受限于平行平面时, Stokes 力可以分解为垂直于样品池的底面方向上和平行方向上的作用力  $F_{\parallel}(F_x, F_y)$  和  $F_{\perp}(F_z)$ , 下标表示与样品池底面平行 (x、y 方向) 或垂直 (z 方向), 这些力与粒子和样品池底面之间的距离  $Z$  有关<sup>[9]</sup>。如图 3.1 所示, 样品池两个玻片之间的距离为  $d$  (液体充满整个样品池, 所以  $d$  也是液层的厚度), 样品粒子是半径为  $a$  的小球, 小球中心距离样品池下表面的距离为  $Z$ 。

当  $d \rightarrow \infty$  时, 小球只受到一个表面的作用。在低雷诺数的条件下, 根据 Stokes-Einstein 关系, 此时小球受到的流体力学作用力为:

$$\begin{bmatrix} F_x \\ F_y \\ F_z \end{bmatrix} = -6\pi a \eta \begin{bmatrix} \lambda_x & 0 & 0 \\ 0 & \lambda_y & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_z \end{bmatrix} \begin{bmatrix} v_x \\ v_y \\ v_z \end{bmatrix} \dots\dots\dots(3.6)$$

其中  $v_x, v_y, v_z$  为粒子相对周围流体的速度,  $\eta$  为液体的粘滞系数。对于粒子受到单平面的影响的情况, Faxen 给出了单平面存在时的修正系数  $\lambda_x, \lambda_y, \lambda_z$  的确

切值，它们与  $a$  和  $Z$  的相对大小有关，其中

$$\lambda_x = \lambda_y = \lambda_{//} = \left[ 1 - \frac{9}{16} \left(\frac{a}{Z}\right) + \frac{1}{8} \left(\frac{a}{Z}\right)^3 - \frac{45}{256} \left(\frac{a}{Z}\right)^4 - \frac{1}{16} \left(\frac{a}{Z}\right)^5 \right]^{-1} \dots\dots\dots(3.7)$$

$$\lambda_z = \lambda_{\perp} = \frac{4}{3} \sinh \alpha \sum_{n=1}^{\infty} \frac{n(n+1)}{(2n-1)(2n+3)} * \left[ \frac{2 \sinh(n-1)\alpha + (2n+1) \sinh \alpha}{4 \sinh^2(n+1/2)\alpha - (2n-1)^2 \sinh^2 2\alpha} \right] \dots\dots\dots(3.8)$$

其中  $\alpha = \cosh^{-1}(Z/a)$ 。

这样，粒子在分散体系中的扩散系数可以分解成：

$$D_{//} = \frac{D_0}{\lambda_{//}} = \frac{K_B T}{6 \pi \eta a \lambda_{//}} \dots\dots\dots(3.9)$$

$$D_{\perp} = \frac{D_0}{\lambda_{\perp}} = \frac{K_B T}{6 \pi \eta a \lambda_{\perp}} \dots\dots\dots(3.10)$$

根据 (3.9) 式和 (3.10) 式，有  $D_{//} / D_0 = \lambda_{//}$ 、 $D_{\perp} / D_0 = \lambda_{\perp}$ ，再根据 (3.7) 和 (3.8) 式就可以得到  $D_{//} / D_0$ 、 $D_{\perp} / D_0$  分别和粒子与界面距离之间的关系理论曲线，如图 3.2 所示。从图 3.2 中可以看出，当分散体系受到单平面限制时，粒子距离底面越远，粒子的扩散越接近理想的扩散；此外， $D_{//} / D_0 = \lambda_{//}$  和  $D_{\perp} / D_0 = \lambda_{\perp}$  两条曲线不重合，说明粒子在纵向上和横向上的扩散是不同的。

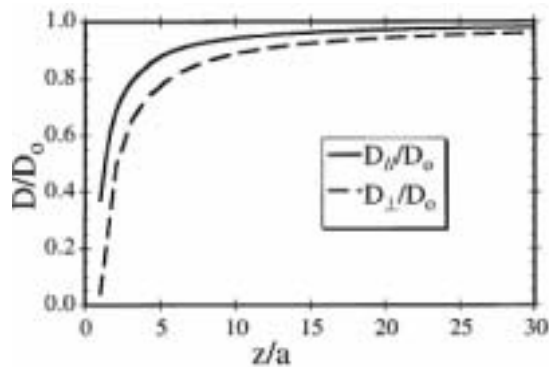


图 3.2 单平面情况下  $D / D_0 = \lambda$  的理论曲线图<sup>[4,5]</sup>

### §3.2.2 双平面对粒子扩散运动的影响

在图 3.1 中, 当样品池上下两个表面距离  $d$  不是远大于小球直径时, 小球的扩散运动就会同时受到样品池上下两个表面的影响。但是, 对于双平面情况下的扩散运动所受到的粘滞阻力, 除个别特殊情况以外 (如粒子恰好在两平面正中间时  $Z=d/2$ ) 都没有精确解。Faxen 给出了粘滞阻力的近似解<sup>[1]</sup> :

$$F = \frac{-i_x 6 \pi \eta a v}{1 - A(a/z) + B(a/z)^3 - C(a/z)^5 + \dots} \dots\dots\dots(3.11)$$

当粒子到底面的距离  $Z$  取不同值时,  $A$ 、 $B$  等系数的值也不同, 如  $Z=d/4$  时  $A=0.6526$ 、 $B=0.1475$ , 当  $Z=d/2$  时  $A=1.004$ 、 $B=0.418$ 。这些系数  $A$ 、 $B$ 、 $C$  不仅取决于粒子到底面的距离  $Z$ , 还与样品池厚度, 即样品池上下表面之间的距离  $d$  有关<sup>[1]</sup>。

事实上, 双平面对粒子扩散的影响可以进行更简单的处理<sup>[5]</sup>, 小球所受到的流体力学作用力可以近似表示为无限空间中小球受到的粘滞力  $F_0$  与两个表面各自的贡献之和, 可以表示成 :

$$F^{\text{II}} = F_0 \lambda^{\text{II}} = F_0 (\lambda^{\text{I}}_{\text{wall1}} - 1) + F_0 (\lambda^{\text{I}}_{\text{wall2}} - 1) + F_0 \dots\dots\dots(3.12)$$

其中上标 I 表示单平面, II 表示双平面, 下标 wall1 代表样品池下表面, wall2 代表上表面。由公式 3.12, 可以得到相应的双平面存在情况下粘滞力的修正系数 :

$$\lambda^{\text{II}} = \lambda^{\text{I}}_{\text{wall1}} + \lambda^{\text{I}}_{\text{wall2}} - 1 = \lambda^{\text{I}}(z) + \lambda^{\text{I}}(d-z) - 1 \dots\dots\dots(3.13)$$

把 (3.7) 式代入(3.13)式, 可以得到双平面情况下粘滞力平行分量的修正系数为 :

$$\lambda^{\text{II}} = \left[ 1 - \frac{9}{16} \left(\frac{a}{z}\right) + \frac{1}{8} \left(\frac{a}{z}\right)^3 - \frac{45}{256} \left(\frac{a}{z}\right)^4 - \frac{1}{16} \left(\frac{a}{z}\right)^5 \right]^{-1} + \left[ 1 - \frac{9}{16} \left(\frac{a}{d-z}\right) + \frac{1}{8} \left(\frac{a}{d-z}\right)^3 - \frac{45}{256} \left(\frac{a}{d-z}\right)^4 - \frac{1}{16} \left(\frac{a}{d-z}\right)^5 \right]^{-1} - 1 \dots\dots\dots(3.14)$$

此时小球的扩散系数也有相应的修正 :

$$D_{\parallel} = (\lambda^{\text{II}})^{-1} D_0 = (\lambda^{\text{II}})^{-1} \cdot \frac{k_B T}{6 \pi \eta a} \dots\dots\dots(3.15)$$

其中  $k_B$  是波尔兹曼常数,  $\eta$  是液体的粘滞系数,  $a$  是小球的半径。利用(3.14)式可以得到  $D_{//} / D_0 = \lambda_{//}^{\Pi}$  的曲线, 如图 3.4 所示, 其中双平面之间的距离为  $d=8\mu\text{m}$ , 小球的半径为  $a=0.5\mu\text{m}$ 。

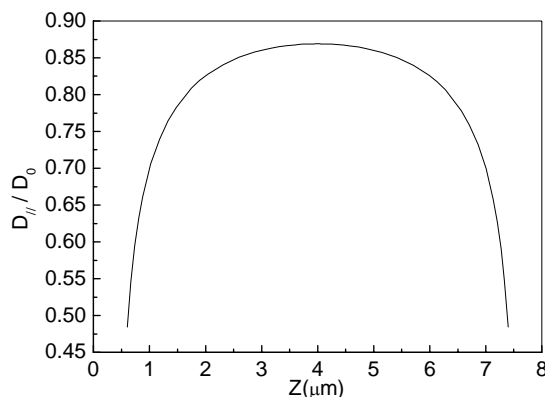


图 3.4 双平面限制下半径为  $0.5\mu\text{m}$  小球理论扩散曲线

### §3.3 受限分散体系中粒子扩散特性的研究

胶体粒子的受限扩散虽然可以利用光散射和光子相关光谱法来进行研究<sup>[10-13]</sup>, 但是这些方法无法确定胶体粒子的相对于边界面的位置, 粒子扩散系数与粒子到边界面的距离的依赖关系也就无法确定, 因而测量的结果只能是针对全体粒子的平均意义上的结果。引入光镊技术则可以解决这一问题, 在2000年, Binhua Lin利用以一定频率开关的闪频光镊, 直接测量了粒子扩散受边界条件的影响<sup>[4,5]</sup>。然而, 他们的研究工作仍然有如下值得改进的地方。

首先, 在 Binhua Lin 等人<sup>[4,5]</sup>的研究工作中, 使用的光镊为开关频率为一赫兹的闪频光镊, 在每一秒中, 有 0.5 秒内小球被光镊捕获, 另外 0.5 秒内光镊关闭, 小球进行自由运动。然而在我们的实验中常常发现, 用光镊捕获一个粒子一小段时间后, 如果突然撤去光镊, 粒子在这个被释放的瞬间总会向上漂移一定距离。这可能是光镊在捕获粒子的过程中, 由于光镊光照的原因而引起了液体的局部温度升高的结果, 而关于光镊的光照引起液体局部温度的变化, 也已经有文献作了比较详细的讨论<sup>[14]</sup>。因此不断的介入光镊会引起小球和周围液体温度的细微变化, 从而会给小球的扩散运动的测量带来误差。

其次, Binhua Lin 等人研究了小球恰好在两个平行平面正中间时的扩散情

况。然而，对两个平面间受限粒子的扩散问题，这只是个特殊情况。

第三，在 Binhua Lin 的研究工作中，小球的纵向位移是根据小球偏离显微镜成像焦平面时所成虚像大小的不同来确定的，事实上，这种方法只适用于小球在纵向上的移动范围较小的情况。虽然在他们的研究工作中，由于使用的光镊为以 1 赫兹的频率开关的，因此小球的纵向移动范围比较小。但是，如果要尽量减少光镊热效应的影响，就必须尽量减少光镊的作用时间，这种情况下，粒子的纵向移动范围可能比较大，因而用小球的成像大小来确定纵向位移的方法就不太合适了。

基于对这几点的考虑，在我们的实验中，光镊仅用来捕获粒子并对其进行定位，小球运动情况的测量则是在光镊关闭大约 2 秒钟后再开始的，这样可以让光镊产生的热尽量散去，充分减小光镊对小球扩散的影响，使实验结果更接近实际情况。我们并不仅仅研究小球在两个平行平面中间的情况，而是把问题推广到更为一般的情况，使分散体系充满二平行平面，研究了样品池厚度  $d$  不变时，样品小球距离样品池底面不同高度时的扩散情况，这种情况下单个悬浮微粒的扩散运动是一个基本而又典型的问题，不但具有重要的理论意义，而且也是很多实际问题抽象出来的典型模型。为了解决小球纵向位移标定的问题，我们采用了一种新的方法——图像相关运算法，它可以在比较大的范围内测量小球的纵向位移，这就为测量粒子在不同纵向高度时的扩散特性需要进行的数据采集和处理提供了方便。

### §3.3.1 实验装置

我们的实验装置如图 3.5 所示<sup>[15]</sup>。光镊光源为 He-Ne 激光器 (10mW, Coherent, USA)，输出的激光波长为 632.8nm，输出的激光束由扩束镜扩束后，经由耦合光路耦合进入倒置显微镜 (IX70, OLYMPUS, JAPAN)，再由 100 倍油浸物镜 (100 $\times$ , NA1.3, OLYMPUS, JAPAN) 强会聚后形成激光光阱。He-Ne 激光束通过中性衰减片组改变光强，以适应不同测量范围的需要。实验装置中用 CCD (CoolsnapCF mono camera, USA) 进行图像采集，而小球位移的测量则是利用分析软件对动态显微图像进行相关分析来实现。对样品的精确定位和操控是通过压电扫描平台 (P-517.3CL, PI, German) 来实现的，它的运动由计算机控制，在

水平方向 (X、Y 方向) 上的运动精度为 1nm, 在纵向 (Z 方向) 上的运动精度为 0.1nm。

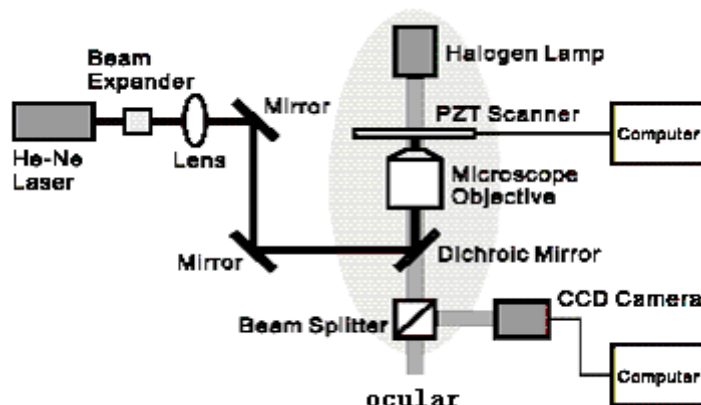


图 3.5 实验装置图

实验选用直径为  $1\mu\text{m}$  ( $0.993\pm 0.021\mu\text{m}$ , 美国 Duke Scientific 公司产品, 编号 4009A) 的聚苯乙烯小球, 并把它悬浮于蒸馏水中。为了测量单个小球的运动性质, 需要把分散体系配制得非常稀 (体积比约为 1/50), 以致在整个 CCD 视场里只有一个小球, 从而减小其它小球对该小球运动的干扰作用。

### §3.3.2 相关实验参数的测量

首先, 要对样品池上下两玻片之间的距离进行测量, 在我们的实验中, 分散体系液体总是充满样品池, 因此样品池上下玻片之间的距离也就等于样品液层的厚度。对上下玻片之间的距离的测量, 我们使用如下方法: 先用光镊捕获一个小球, 然后用压电平台以  $0.1\mu\text{m}$  的步距向上移动样品池, 由于光镊捕获粒子的位置不变, 因此粒子就相对于样品池向下运动, 如果小球没有碰到样品池下底面, 被捕获的小球在 CCD 上的成像状况不变化, 一旦样品池底面碰到小球, 就会给小球一个向上的作用力, 使小球相对于光阱有一微小的位移, 小球在 CCD 上的成像状况就会发生变化, 这样就找到了样品池的下表面位置, 用同样的方法可以找到样品池的上表面。根据压电平台的读数变化可以确定样品池上下表面之间的距离, 其测量误差小于  $0.5\mu\text{m}$ 。

其次, 由于实验研究的是小球在某一纵向位置的扩散规律, 因此还需要对小球的纵向位置进行测量。前面我们提到, Binhua Lin 是根据小球的成像大小来确

定小球的纵向位移的，这种方法只适用于小球在纵向上的移动范围较小的情况。而在我们的实验中，由于小球运动范围较大，纵向位移也较大，因此不能利用 Binhua Lin 的纵向位移测量方法。事实上，用 CCD 很容易观测到小球在横向上的两维的运动，而利用相关运算法，就可以相当精确的确定小球横向上的位置<sup>[16]</sup>，但对纵向上的观测就比较困难。为了解决这个问题，我们采用了一种新的方法，用 CCD 采集距离物镜焦平面不同距离时小球的一系列的像，用它们作为测量时的“标尺”，把实验中采集的小球自由布朗运动图像的每一帧与标尺图像进行相关运算，和标尺中哪个小球的相关性最大，那么它的纵向位移就和标尺中这个小球一样，这样就能够得出该帧图像相应的小球自由布朗运动在纵向上的位置。

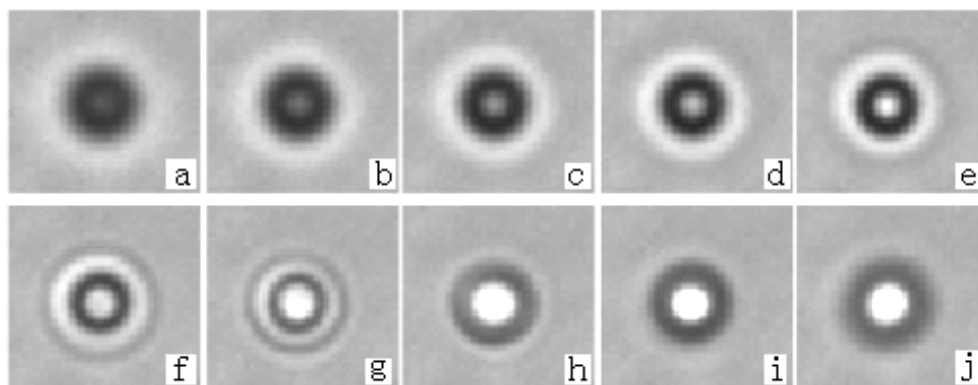


图 3.6 压电平台每上升  $0.5\mu\text{m}$  时记录的小球的像：小球随着压电平台相对于物镜焦平面自下向上运动，小球开始时在物镜焦平面的下方 (a-d)，然后基本在成像面上 (e)，最后在成像面之上 (f-j)。

在标定过程中，首先我们使一个小球粘底，然后在显微视场中找到一个粘在样品池下底面的小球，通过控制压电平台使小球相对物镜的焦平面作纵向移动，并且每隔  $0.1\mu\text{m}$  拍摄一幅图像，这样可以得到距离物镜焦平面不同距离时该小球的一系列的图像，把它们作为“标尺”的标准图像。图 3.6 就是一个  $1\mu\text{m}$  小球偏离物镜焦平面不同距离时的图像。其中相邻两幅图对应的小球纵向位置间隔为  $0.5\mu\text{m}$ ，图的排列次序按照压电平台相对于物镜焦平面自下向上运动的顺序。

### §3.3.3 小球布朗运动的测量

实验中用光镊捕获小球以后，通过压电平台操控样品池上下移动，使被光镊

捕获的小球相对样品池纵向移动。用这种方法将小球操纵到距离样品池下底面一定高度处，作为小球布朗运动的初始位置，然后关闭光镊，让小球做自由布朗运动。为了尽可能减小光镊对小球扩散运动的影响，在光镊关闭后 2 秒再开始跟踪测量小球的自由布朗运动，直到小球远离物镜焦平面时再停止测量。跟踪测量的时间，通常为 5 – 10 秒。在这样的时间长度内，小球自由布朗运动在纵向的位置变化范围较大，我们还需要采用 3.3.2 节的方法对每一帧图像中小球相对其初始位置的纵向位移进行测量，然后与小球的初始高度相结合得到小球距离样品池底面的最终高度，同时用相关运算法可以得到每一幅图像中小球的横向位移值。重复采集不同初始位置的大量小球的布朗运动一系列图像，进行上述相关处理。然后对起始纵向位置一定的小球布朗运动的横向步距，进行统计平均，并由 (3.4) 式得出该高度下的横向扩散系数。在我们的实验处理过程中，一定纵向位置的扩散是对该纵向位置上下 0.5 微米的范围内的粒子的布朗运动作平均来得到的。

## §3.4 双平面条件下粒子的扩散特性研究结果及讨论

### §3.4.1 实验结果

在我们的研究中，上下表面之间的距离，也即液层厚度为  $8\mu\text{m}$ ，图 3.7 是小球在离样品池底面约为  $4.4\mu\text{m}$  处的水平面上，沿  $x$  和  $y$  方向上布朗运动步长的平方平均值  $\langle |\Delta x|^2 \rangle$  和  $\langle |\Delta y|^2 \rangle$  与 (3.4) 式中的时间步长  $t$  的关系。根据(3.4)式，图中直线的斜率就是  $2D_{//}$  的值。

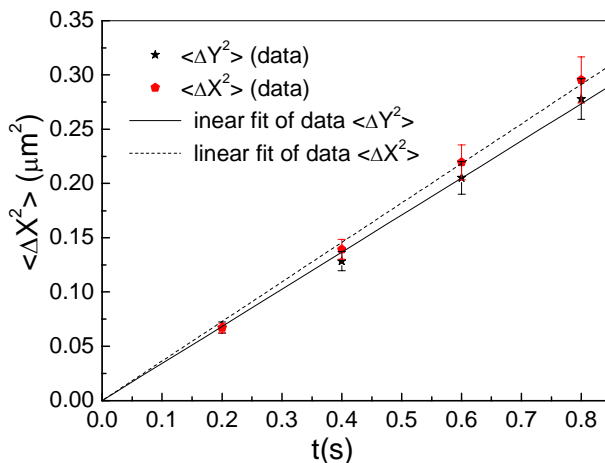


图 3.7 小球在平行平面方向上的布朗运动步长的平方平均值与时间  $t$  的关系。



图 3.8 给出了小球在水平方向上的一维扩散系数与粒子距下表面的距离之间的关系，其中的实线是根据(3.14)、(3.15)式得到的  $D_{//}/D_0 = (\lambda^{\Pi})_{//}^{-1}$  的理论曲线，数据点分别是小球在 X 和 Y 方向上的一维扩散的实验值  $D_x$ 、 $D_y$  和理想扩散系数  $D_0$  的比，其中，每一个纵向位置上的扩散系数的值都通过与图 3.7 中类似的拟合直线得到。从图 3.8 中可以看出，小球扩散系数与小球距离下表面的距离的关系的实验结果与理论基本符合。

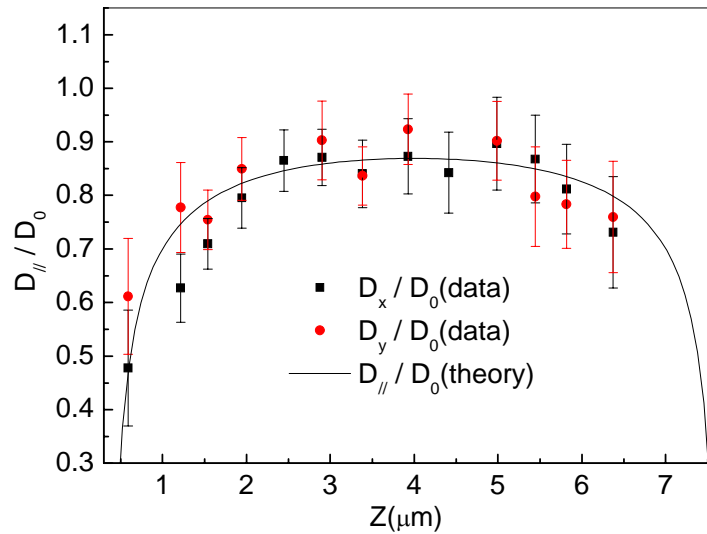


图 3.8 小球在水平方向上的一维扩散系数和粒子与下表面之间距离的关系，图中的实线是  $D_{//}/D_0 = (\lambda^{\Pi})_{//}^{-1}$  的理论曲线。

### §3.4.2 误差讨论

#### 1. 数据统计误差

从图 3.7 中看出，粒子的布朗运动的步长的平方平均值与步长时间  $t$  之间为很好的线形关系，但是两条曲线有一定的偏差，这是因为统计的数据量不足导致的统计误差，在图 3.8 中也有同样的情况。增加统计的数据量，X 方向和 Y 方向的实验结果将会更加一致，同时图 3.8 的统计误差也会减小。事实上，我们在同样系统条件下对“理想”情况下（即与其它界面的距离很远的情况下）的小球扩散系数也进行了测量，对粒子的布朗运动采集了 5000 帧图像，并用相关分析法

得到了它的扩散系数，与理论得到的扩散系数非常接近，这说明当数据的统计量达到 5000 帧时，对扩散系数的测量误差就可以有效地减小。

## 2. 环境温度变化的影响

由 Stocks-Einstein 公式可以看出，扩散系数  $D_0$  随着温度的升高，会逐渐增大，当温度变化  $\sim 0.7$  K 时，扩散系数的变化可以产生大约 0.4% 的误差<sup>[4]</sup>。在我们的实验过程中，环境温度我们都加以控制，在实验中又充分减小了光镊产生的热的影响<sup>[17]</sup>，因此温度变化产生的误差可忽略不计。

## 3. 图像采集工具以及数据分析方法带来的误差

CCD 照相机像素大小、灰度分辨能力会给测量精度带来直接的测量误差，在文献[18]中，对静止的直径为  $3.063\mu\text{m} \pm 0.027\mu\text{m}$  的聚苯乙烯小球，利用相关分析法对其位置进行了测量，1000 个数据点的结果如图 3.9 所示，其测量精度达到了纳米量级。因此数据分析的误差对我们的实验来说影响是非常小的。

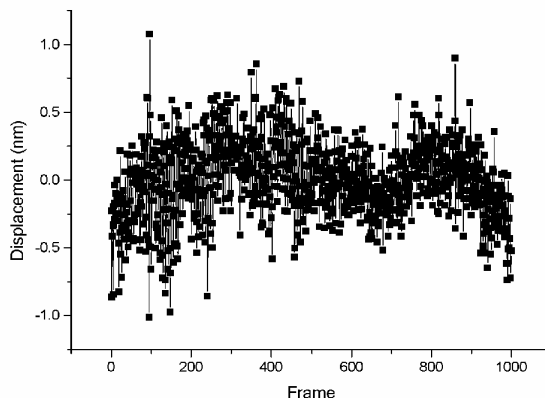


图 3.9 CCD 测量静止微米小球的位置

## §3.5 结论和展望

本章的工作对分散体系中的单个悬浮粒子的扩散特性受附近的平面的影响进行了研究，把前人的工作推广到较一般的情况，研究了一定厚度的样品池中，小球距离样品池底面任意距离时的扩散特性，给出了和理论预言一致的实验结果。在我们的实验中，光镊对小球的操控时间很短，从而减少了光镊的影响，使结果更接近于实际的运动情况。这样，我们的工作建立在 Binhua Lin 等人的工作基础上，对实验方法和数据处理都进行了改进，更深入地研究了受限粒子的扩散特性。

本章中所使用的研究方法可以用于复杂边界条件下单个粒子扩散行为的实验研究,如同第二章所叙述的那样,它还可以作为更复杂的测量的基础,比如测量在双平面限制下的两个分离粒子的扩散等,特别是对于无法用理论近似求解的复杂情形,这种测量方法就会更加显示出它的优越性。事实上,由于分散体系中的粒子都会不停的进行布朗运动,因此要更深入地研究分散体系中粒子的各种相互作用性质,在很多情况下都必须使用类似于本章的研究方法,对粒子在受到其它作用下的布朗运动和扩散进行研究。因此,该方法还是对分散体系中粒子的其它性质进行更深入研究的基础。如果利用该方法对光镊作用存在和不存在时的粒子运动特性进行研究,还可能从实验中得到光镊光场的影响,也为光镊特性的深入研究提供帮助。

## 本章参考文献

1. J. Happel, and H.Brenner, 《Low Reynolds Number Hydrodynamics》 Dordrecht: Kluwer 1991
2. G.K.Batchelor, “Brownian diffusion of particles with hydrodynamic interaction,” J.Fluid Mech. **74**, 1-29 (1976).
3. J.C.Crocker, “Measurement of the hydrodynamic corrections to the Brownian motion of two colloidal spheres,” J. Chem. Phys. **106**, 2837-2840 (1997).
4. B.H.Lin, J.Yu, and S.A.Rice, “Direct measurements of constrained Brownian motion of an isolated sphere between two walls,” Phys. Rev. E **62**, 3909-3919 (2000).
5. B.H.Lin, J.Yu, and S.A.Rice, “Diffusion of an isolated colloid sphere confined between flat plates,” Colloids Surf. A **174**, 121-131 (2000).
6. 庄礼贤, 尹协远, 马晖扬, 《流体力学》中国科学技术大学出版社 1991.
7. (美) P.C.Hiemenz 著, 周祖康, 马季铭 译《胶体与表面化学原理》北京大学出版社 1986.
8. 王致清, 《流体力学基础》高等教育出版社 1987.
9. L.P.Faucheux, and A.J.Libchaber, “Confined Brownian motion,” Phys.Rev.E **49**, 5158-5163 (1994).
10. K.H.Lan, N.Ostrowsky, and D.Sornette, “Brownian dynamics close to a wall studied by photon correlation spectroscopy from an evanescent wave,” Phys. Rev. Lett. **57**, 17-20 (1986).
11. M.I.M. Feitosa, and O.N.Mesquita, “Wall-drag effect on diffusion of colloidal particles near surfaces: a photon correlation study,” Phys. Rev. A **44**, 6677-6685 (1991).
12. L.Lobry, and N.Ostrowsky, “Diffusion of Brownian particles trapped between two walls: theory and dynamic-light-scattering measurements,” Phys. Rev. B **53**, 12050-12056 (1996).
13. M.Hosoda, K.Sakai, and K.Takagi, “Measurement of anisotropic Brownian motion near an interface by evanescent light-scattering spectroscopy,” Phys. Rev. E **58**, 6275-6280 (1998).
14. G.Leitz, E.Fällman, S.Tuck, and O.Axner, “Stress response in caenorhabditis elegans caused by optical tweezers: wavelength, power, and time dependence,” Biophys. J. **82**, 2224-2231 (2002).
15. H.T. Chen, Y.M.Li, L.R.Lou, and H.W. Wang, “High precision measurements in an optical tweezers for studying single biomolecule motion,” Proceedings of SPIE, **4536**, 75-81 (2002).
16. 陈洪涛 中国科学技术大学物理系 博士论文 2004 年 3 月.
17. 孙玉芬, 徐升华, 李银妹, 楼立人, “受限分散体系中粒子扩散特性的研究,” 力学学报 **36**,

739-743 (2004).

18. 陈洪涛, 李银妹, 楼立人, 孙黎, 张达, 龚璠, “光镊技术中的纳米位移探测及其测量误差讨论,” 中国激光 **31**, 729-734 (2004).

## 第四章 利用光镊研究分散体系的稳定性

在第三章中，我们介绍了光镊在分散体系运动规律的微观机制研究中的一个应用——研究分散相粒子在受到表面限制的情况下的扩散特性，然而该部分研究工作实际上并没有涉及到分散体系中分散相粒子个体间的相互作用和动力学本身的性质。在本章中，我们将介绍利用光镊对分散体系一个重要性质——稳定性的研究。而这部分工作也是本论文的重点之一。

如同第一章中所述，分散体系<sup>[1-4]</sup>是指一种或几种物质分散在另一种物质中的体系，由于分散相和分散介质这两相的存在，虽然胶体分散体系具有动力学稳定性，但是很多都是热力学不稳定的<sup>[4]</sup>，也就是说，只要时间充分，这类热力学不稳定的分散体系中的分散相粒子都会自发地聚集成较大的粒子<sup>[1]</sup>。但同样是热力学不稳定体系，不同的分散体系的稳定性仍然有很大不同。事实上，许多两相分散体系在很长时间内都看不到什么变化。但是如果对分散体系进行某些处理，就有可能使得本来很稳定的体系变得很不稳定，从而可以在短时间内让很多的分散相粒子结合。这种粒子的结合过程可以分成两种，如果两个（或两个以上）小粒子熔合成单个大粒子，从而导致总表面积变小的过程，一般称为聚析。而很多小粒子群聚在一起形成絮块，但不溶成新的粒子，此时虽然小的粒子相接触处的一些表面位置会发生连结，但表面积不减少，这个过程一般称为絮凝过程<sup>[1]</sup>。一般来说，对于分散相为固体而分散介质为液体的分散体系，小粒子聚集到一起的时候不会熔成新的粒子，这样的分散体系如果不稳定，就会产生絮凝过程。

稳定性是分散体系的一个重要性质，对它的研究历来受到人们的重视。有人甚至说：“胶体科学是在研讨胶体稳定性的过程中发展起来的”。<sup>[4]</sup>而分散体系又涉及到很多与人类生活密切相关的应用领域，例如石油管道运输、污水治理、生物、药品生产等，在这些应用中也都需要控制各种特定分散体系的稳定性，比如在污水处理中，就希望体系不稳定而让其中的杂质析出，而对于墨水和一些分散体系的口服液等，则希望体系尽可能稳定。因此，研究分散体系的稳定性有着非常重要的应用价值。传统的对分散体系的稳定性的实验研究大都是从宏观上通过测量很多粒子的群体行为及其时间演变来进行的，例如用浊度法和光散射的方法测定体系光学性质随时间的变化，从而可以得到分散体系中粒子聚集的快慢，并

进而得到分散体系的稳定性。

对于静电稳定的分散体系，稳定性在很大程度上与粒子间的静电相互作用有关，而 Zeta 电位是分散相粒子与粒子间静电相互作用强弱的量度<sup>[5]</sup>，因此也有利用 Zeta 电位来判断体系的稳定性的。一般认为当粒子的 Zeta 电位绝对值大于 20 mV（也有认为大于 30 mV 甚至 50 mV 的）时，粒子间排斥力足以克服吸引力，体系处于稳定状态。然而，这种对稳定性的判断并非十分准确，只能用于粗略地判断体系是否稳定；而且对于单纯的空间稳定性而非静电稳定性粒子体系来说，体系的稳定性并不是由粒子与粒子之间的静电相互作用所决定，因此 Zeta 电位根本无法对其稳定性作出判断。

从本质上来说，分散体系的性质归根结底是由其中的粒子以及分散介质的性质决定的，稳定性也不例外，因而从粒子层次的实验研究将有助于深入理解规律的内在本质。从粒子层次研究分散体系稳定性的主要困难是如何操控微小粒子，光镊的出现<sup>[6-9]</sup>使得这种研究成为可能。然而，从第二章中我们所介绍的光镊在分散体系中的应用研究现状可以看出，国外利用光镊在分散体系中的应用大都集中在单个粒子的性质或者粒子之间的相互作用性质上<sup>[10-18]</sup>，尚没有利用光镊直接从粒子层次来研究分散体系稳定性的工作。在本章中，我们将首先介绍所发展的一种从粒子层次研究分散体系中粒子碰撞动力学的实验研究方法，该方法利用光镊捕获两个粒子使其在光镊的控制下在一个人们可以跟踪观察的局域的空间中发生碰撞，观察并统计粒子碰撞后的结合几率；然后介绍对光镊中两个粒子的碰撞过程的理论分析，并在此基础上首次实现了从粒子层次对分散体系稳定性参数——稳定率的测量<sup>[19,20]</sup>。

在介绍我们的工作之前，有必要对分散体系的稳定性和粒子间相互作用的联系以及稳定率的定义和意义作一简要介绍。

## §4.1 粒子之间的相互作用和分散体系的稳定性

分散体系的稳定性归根结底是与粒子之间的相互作用直接相联系的。粒子间的相互作用力包括起吸引作用的范德华力，由粒子表面的双电层引起的起排斥作用的静电力，和与粒子表面吸附状态有关的相互作用等等，这些相互作用直接决定了两个粒子是否容易结合，从而也决定了分散体系的稳定性。

### §4.1.1 分散体系中的范德华力

范德华力是 1873 年范德华研究为何真实气体不符合理想气体定律时提出来的分子间相互作用力。事实上,这种力并不限于分子,包括原子在内的其它的微观粒子之间也存在这种力。这以后人们还发现,它除了在微观粒子间出现外,还在亚微观粒子(如胶粒)之间及宏观物体(如云母片)之间出现。微观粒子间的范德华力和宏观物体(包括亚微观粒子)间的范德华力与粒子间距离的关系均不相同。前者的作用力范围较短,与它们之间距离的七次方成反比,因此微观粒子间的范德华力又称为短程范德华力。而后者的作用力与它们之间距离的 2-4 次方成反比,在较长的距离下,仍存在明显的相互作用,因此,宏观粒子之间的范德华力又称为长程范德华力。无论长程范德华力还是短程范德华力,它们都是基于同一来源,由三种力构成:一是极性分子永久偶极矩之间的相互作用力——定向力,二是极性分子与非极性分子之间相互作用力——诱导力,三是非极性分子瞬间偶极矩之间的相互作用力——色散力。在不同的分子中,它们各自所占有的百分含量并不相同。但是除极性很强的一些分子(如水分子)外,一般的分子中色散力都占主要地位,而且它存在于任何分子之中。特别是对于宏观物体来说,色散力要比定向力和诱导力大得多。对于分散体系中的粒子之间的范德华力作用,同样主要是色散力。宏观物体是由许许多多的微观粒子所组成,宏观物体的色散能可以看作是组成它的微观粒子的色散能的总和。这一点已由 Hi emenz, P. C. 所证实<sup>[3]</sup>。这样就可以从理论上得到两个球形粒子之间的相互作用色散能为<sup>[4]</sup>:

$$U = -\frac{A}{6} \left[ \frac{2a_1a_2}{R^2 - (a_1 + a_2)^2} + \frac{2a_1a_2}{R^2 - (a_1 - a_2)^2} + \ln \frac{R^2 - (a_1 + a_2)^2}{R^2 - (a_1 - a_2)^2} \right] \quad (4.1)$$

其中  $A$  为 Hamaker 常数,它与粒子本身的性质有关, $a_1, a_2$  分别为两个球形粒子的半径, $R$  为两个粒子球心之间的距离。若两球半径大小相同,即  $a_1 = a_2 = a$ , 则公式可简化为<sup>[4]</sup>:

$$U = -\frac{A}{6} \left[ \frac{2a^2}{R^2 - 4a^2} + \frac{2a^2}{R^2} + \ln \left( 1 - \frac{4a^2}{R^2} \right) \right] \quad (4.2)$$

当  $2a \gg R - 2a$  时,即两个宏观大小粒子表面最短距离比粒子的直径小很多时,两个球形粒子的相互作用色散能可以简化为:



$$U = -\frac{Aa}{12D} \quad (4.3)$$

其中  $D=R-2a$  , 为两个粒子表面间的最短距离。

#### §4.1.2 双电层和粒子之间的排斥势能

当粒子分散在液体中时, 在粒子与液体的界面附近离子密度会发生变化。粒子的表面会吸附离子, 同时有相反符号的离子将会存在在粒子表面附近的液体中。事实上, 粒子与液体的界面附近的离子密度应当是连续变化的, 但是为了讨论的方便, 一般的处理方法都是在界面处把两相分开, 分开的两个相带有等量的反号电荷。界面的这两个带电部分称作双电层<sup>[1]</sup>。分散体系中的粒子带电并由此导致它的表面形成双电层结构, 这会直接或者间接地影响分散体系的许多重要性质, 体系的稳定性就直接受到双电层性质的影响, 此外, 双电层结构还会影响分散体系的聚沉行为, 聚沉物的结构以及体系的流变行为等。

要对球形粒子的双电层结构进行分析, 需先从更为简单的平板扩散双电层模型开始。Gouy-Chapman 理论是经典的双电层理论, 在该理论中, 为了对结构复杂的双电层作出简单的定量处理, 特作如下假设<sup>[3]</sup>:

- (1) 平板是一无限大、电荷分布均匀的平面;
- (2) 假设离子是点电荷并服从 Boltzmann 能量分布定律;
- (3) 正负离子电荷数相等, 整个体系呈电中性;
- (4) 溶剂对双电层的影响只通过介电常数来实现, 而扩散层内外的介电常数都相同。

当平板表面上带上电荷之后, 它必然吸引分散介质中的反号离子。而这一反号离子除了受这一静电吸引力外, 同时还受到热运动力的作用。当这两种力达到平衡之后, 一部分反号离子相对稳定地吸附在带电表面上, 另一部分则呈扩散状态分布在外。这样便形成了吸附层和扩散层以及由它们所组成的扩散双电层。任一种离子在平板表面附近的分布可以用 Boltzmann 分布定律来描述<sup>[3]</sup>:

$$n_i = n_0 \exp\left(-\frac{z_i e \varphi}{kT}\right) \quad (4.4)$$

其中  $n_i$  为距离平板表面  $x$  处单位体积中第  $i$  种离子数;  $n_0$  为溶液中单位体积

中第  $i$  种离子数； $z_i$  为  $i$  种离子的电价数， $\varphi$  为距离表面  $x$  处分散介质中的电位； $e$  为电子的电量； $k$  为 Boltzmann 常数， $T$  为绝对温度。

在电场为  $\varphi$  处的体积电荷密度  $\rho$  为：

$$\rho = \sum_i z_i e n_i = \sum_i z_i e n_0 \exp\left(-\frac{z_i e \varphi}{kT}\right) \quad (4.5)$$

而  $\rho$  与  $\varphi$  的关系可以用 Poisson 方程来描述。由于考虑的对象是无限大平板，因而有：

$$\frac{d^2 \varphi}{dx^2} = -\frac{\rho}{\varepsilon} = -\frac{1}{\varepsilon} \sum_i z_i e n_0 \exp\left(-\frac{z_i e \varphi}{kT}\right) \quad (4.6)$$

这就是 Poisson-Boltzmann 方程，简称 P-B 方程。在低电位情况下 ( $\frac{ze\varphi}{kT} \ll 1$  时)，对 (4.6) 式中的指数项进行泰勒展开，保留前两项，公式可简化为：

$$\frac{d^2 \varphi}{dx^2} = -\frac{1}{\varepsilon} \sum_i z_i e n_0 \left(1 - \frac{z_i e \varphi}{kT}\right) \quad (4.7)$$

由于整个体系必然呈电中性，从而有  $\sum_i z_i e n_0 = 0$ ，故 (4.7) 式可进一步简化为：

$$\frac{d^2 \varphi}{dx^2} = \frac{e^2 \varphi \sum_i z_i^2 n_0}{\varepsilon k T} = \kappa^2 \varphi \quad (4.8)$$

其中  $\kappa = \left(\frac{e^2 \sum_i z_i^2 n_0}{\varepsilon k T}\right)^{\frac{1}{2}}$  称为 Debye-Hückel 参数。其倒数  $\kappa^{-1}$  具有长度的量纲，

称为 Debye 长度，或称为扩散双电层的厚度。从这个公式可以看出，电解质的价数  $z_i$  越高，双电层厚度越小；电解质浓度  $n_0$  越大，双电层厚度也越小。双电层的厚度会直接影响到粒子之间的静电排斥势能，这一点在后面将会提到。

如果电解质为单一对称型电解质，即正负离子的价数相同，均为  $z$ ，则式 (4.6) 可以简化为：

$$\frac{d^2 \varphi}{dx^2} = \frac{2ze n_0}{\varepsilon} \sinh\left(\frac{ze\varphi}{kT}\right) \quad (4.9)$$

对于讨论的无限大平板情形，在平板表面上，即  $x=0$  时，有  $\varphi=\varphi_0$ ，而在无穷远处，即  $x=\infty$  时，有  $\varphi=0$ ， $\frac{d\varphi}{dx}=0$ ，在这一边界条件下，对 (4.9) 式积分可

以得到：

$$\tanh\left(\frac{ze\varphi}{4kT}\right) = \tanh\left(\frac{ze\varphi_0}{4kT}\right) \exp(-\kappa x) \quad (4.10)$$

其中  $\kappa$  就是前面提到的 Debye-Hückel 参数。

(4.10) 式还可以写成<sup>[3]</sup>：

$$\gamma = \gamma_0 \exp(-\kappa x) \quad (4.11)$$

其中

$$\left. \begin{aligned} \gamma &= \tanh\left(\frac{ze\varphi}{4kT}\right) = \frac{\exp(ze\varphi/2kT) - 1}{\exp(ze\varphi/2kT) + 1} \\ \gamma_0 &= \tanh\left(\frac{ze\varphi_0}{4kT}\right) = \frac{\exp(ze\varphi_0/2kT) - 1}{\exp(ze\varphi_0/2kT) + 1} \end{aligned} \right\} \quad (4.12)$$

在低电位即  $\frac{ze\varphi_0}{kT} \ll 1$  的情况下， $\tanh x \approx x$ 。此时 (4.11) 式可以简化为：

$$\varphi = \varphi_0 \exp(-\kappa x) \quad (4.13)$$

这就是 Debye-Hückel 近似式。可以看到电位  $\varphi$  随着表面距离  $x$  的增大而呈指数方式减少，当  $x = \kappa^{-1}$  时， $\varphi = \frac{\varphi_0}{e} = \frac{\varphi_0}{2.72}$ 。这意味着扩散双电层的厚度实际上是指电位为表面电位  $\varphi_0$  的  $\frac{1}{2.72}$  处与表面的距离。这就是扩散双电层厚度的意义。

经典的 Gouy-Chapman 理论很好的分析了粒子表面的扩散双电层的特性。但是该理论的一些假设与实际情况有比较大的出入。首先它把电解质离子视为点电荷，并不占有体积，因此在界面上并不形成具有厚度的吸附层。但事实上离子是有一定大小的，而且离子在水溶液中会发生水化，使它具有更大的水化离子半径。这样便在界面上形成大约以水化离子直径为厚度的吸附层。此外，该理论把离子看作仅受两种力，即静电作用力和热运动力的作用而形成扩散双电层。但实际上离子往往还会受到范德华力及剩余价键力等，因而出现物理吸附或者化学吸附。据此，Stern, O. 提出了一种模型，他认为某些水化或者部分水化离子由于发生特殊吸附而牢固地吸附在界面上形成固定层。这些特殊吸附离子的中心连线所形成的假想平面称为 Stern 面。这样，粒子表面，Stern 面及固定层外表面（称为剪切面）所对应的电位分别称为表面电位，Stern 电位以及 Zeta 电位（常用  $\zeta$

表示)。其中 Zeta 电位的值可以通过电渗实验等方法来测量, 由于它能体现粒子之间的静电作用力的大小, 因此也常用 Zeta 电位来研究和分析体系的稳定性, Zeta 电位的绝对值越大, 说明粒子之间的静电排斥作用越强, 那么体系也就越稳定。

在 Stern 模型中, 扩散层的结构与 Gouy-Chapman 模型的结构类似, 仅仅是以 Stern 面代替粒子表面。因此在 Stern 面外层, 双电层的性质也可以用 Gouy-Chapman 模型来处理。

如上所述, 胶体粒子表面附近的电位分布可用 P-B 方程描述。当两个胶粒相距较远, 它们的双电层并不发生重叠, 电位曲线不发生变形。而当它们靠近到双电层发生重叠时, 则电位曲线发生变形。此时, 重叠区内的电位提高, 相应的电荷密度增大, 从而将产生静电排斥力作用。两平面双电层重叠时产生的斥力位能  $U_R$  [3]:

$$U_R = \frac{64n_0kT\gamma_0^2}{\kappa} \exp(-\kappa D) \quad (4.14)$$

根据这一点可以推导出两个半径相同均为  $a$  的胶粒双电层重叠时的斥力位能为:

$$U_R = \frac{64\pi a n_0 k T \gamma_0^2}{\kappa^2} \exp(-\kappa D) \quad (4.15)$$

式中  $n_0$  为溶液中单位体积的离子数,  $\gamma_0$  由式 (4.12) 所定义;  $D$  为两胶粒表面最短距离。

#### §4.1.3 DLVO 理论和体系的稳定性

DLVO 理论是 1941 年由苏联学者 *дерягин* 和 *дандау* 及 1948 年由荷兰学者 Verwey 和 Overbeek 分别独立地创立起来的<sup>[1-4]</sup>。这一理论定量地确定吸引力位能  $U_A$  和排斥力位能  $U_R$ , 并认为胶体的稳定性是由  $U_A$  和  $U_R$  的相对大小来确定的。

吸引力位能占优势时, 则胶粒发生聚集, 整个体系发生絮凝; 当排斥力位能占优势而且足够大时, 胶体体系则维持相对的稳定状态。在 DLVO 理论中, 胶体的总位能是吸引力位能和排斥力位能的和:

$$U_T = U_A + U_R \quad (4.16)$$

式(4.3)和式(4.15)已经分别给出了吸引力位能和排斥力位能的大小,从而可以得到,两个粒子之间的总位能为:

$$U_T = -\frac{Aa}{12D} + \frac{64\pi a n_0 k T \gamma_0^2}{\kappa^2} \exp(-\kappa D) \quad (4.17)$$

典型的  $U_A, U_R, U_T$  与  $D$  之间的关系曲线如图 4.1 所示<sup>[3]</sup>。由于吸引力位能和排斥力位能与  $D$  的关系分别为  $U_A \propto \frac{1}{D}$ ,  $U_R \propto \exp(-\kappa D)$ , 因此吸引力位能曲线较为平缓而排斥力位能曲线比较陡。在较远距离往往吸引力位能占优势,而在中间距离则排斥力位能占优势。在一般情况下总位能曲线出现一最大值,这就构成了阻碍胶粒聚集的位垒。当胶粒距离极短时,由于胶粒间原子中的电子云相互重叠而产生强大的 Born 排斥力,使得位能曲线急剧上升。所以在总的位能曲线上出现两个极小值:第一极小和第二极小。当粒子的聚集发生在第一极小处,胶体发生永久性的聚沉,而在第二极小处,只发生临时聚沉,此时聚集的粒子很容易再分开。事实上,当  $\kappa$  值较小时往往并不出现第二极小。

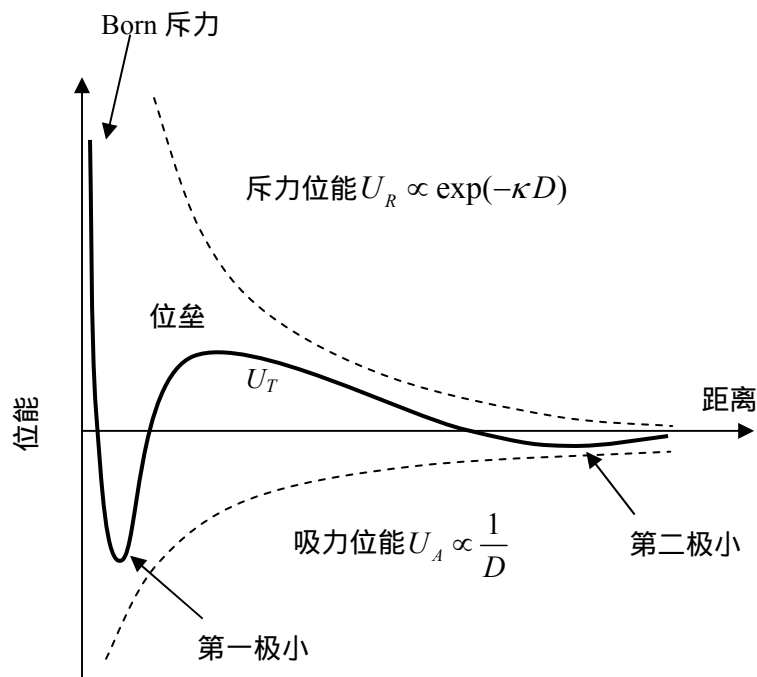


图 4.1 两胶粒的吸力位能, 斥力位能和总位能曲线

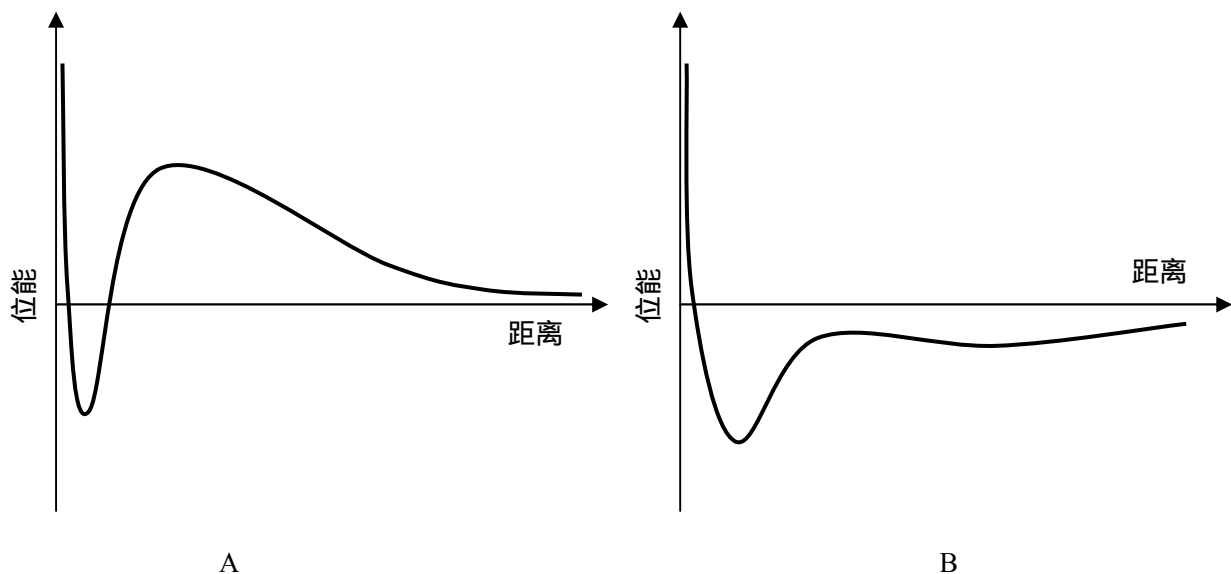


图 4.2 不同稳定程度下典型的相互作用势能曲线

A. 稳定的分散体系

B. 不稳定的快聚集的分散体系

这样，体系的稳定性直接与粒子之间的吸力位能和斥力位能相关，而体系的稳定程度如何，一般是用稳定率这个参数来衡量的。

在分散体系中，粒子由于相互碰撞而产生聚集将导致粒子数的减少，而体系的稳定程度与这种因为聚集而引起粒子数减少的快慢有关，对于稳定的分散体系，粒子能在很长时间内不发生聚集，粒子数减少的速度很慢，体系越不稳定，粒子聚集的速度越快。由于胶体聚集可以近似看作二级反应，粒子数减少的速率为<sup>[1]</sup>：

$$-\frac{dn}{dt} = kn^2 \quad (4.18)$$

其中  $n$  为在  $t$  时刻单位体积的粒子数， $k$  为粒子减少的速率常数。

对于表面电位等于 0 的情况，体系只存在吸引力，不存在排斥力。此时任意两胶粒的碰撞都发生聚集，这种情况称为快速聚沉，此时的速度常数一般用  $k_r$  表示。而当表面电位大于 0 时，则位垒有一定高度，只有能够克服位垒能量并进入第一极小的粒子，其碰撞才发生聚集，其余粒子的碰撞为弹性碰撞，这称为慢速聚沉，此时的速度常数用  $k_s$  表示。这里，粒子减少的速度常数增加了下标也可以防止和 Boltzmann 常数发生混淆。

衡量体系稳定程度的参数稳定率就被定义成快速聚沉速度常数  $k_r$  与慢速聚沉速度常数  $k_s$  的比：

$$W = \frac{k_r}{k_s} \quad (4.19)$$

利用粒子的扩散动力学理论可以得到快速聚沉的速度常数  $k_r$  的值：

$$k_r = \frac{8kT}{3\eta}$$

这表明它只与温度  $T$  和体系的粘滞系数  $\eta$  有关。而对于不同稳定性的体系， $k_s$  的值不同，因而稳定率也不同。对于快速聚沉的体系， $k_s=k_r$ ，此时有  $W=1$ 。而对于理想的完全稳定的体系， $k_s=0$ ， $W=\infty$ 。在其他情况下，分散体系的稳定率应介于 1 和  $\infty$  之间。

由以上叙述可以看到，粒子之间的吸引和排斥作用影响势能曲线，从而影响位垒的高度和体系的稳定性。稳定率作为衡量分散体系的稳定性的参数，会直接受到粒子之间的相互作用势的影响。如果把势垒的作用看成是絮凝过程的阻力项，就可以利用扩散理论得到不同的相互作用势能  $U_T$  下的  $k_s$  的值。Fuchs 的理论利用 DLVO 理论计算的  $U_A$  和  $U_R$  的公式得到了稳定率和相互作用势能的关系<sup>[1-4]</sup>：

$$W = 2a \int_{2a}^{\infty} \exp(U_T / kT) R^{-2} dR \quad (4.20)$$

其中  $a$  为粒子的半径， $R$  为两个球粒球心之间的距离。这样就可以把范德华力和静电排斥作用引起的总相互作用势能和稳定率联系起来，得到体系稳定性的整个图像。

#### §4.1.4 空间稳定理论和空缺稳定理论

除了静电相互作用会影响体系的稳定性之外。如果胶体溶液中有聚合物存在，聚合物与粒子表面的吸附情况也可以影响体系的稳定性。如果聚合物吸附于粒子表面上，所形成的稳定性称为空间稳定。如果聚合物不吸附于粒子表面，所形成的稳定性称为空缺稳定。这两种情况下导致的相互作用已经在第二章有所提及。

由于聚合物分子呈长链状，具有可绕曲性，而且许多分子具有活性基团，因此它们可以吸附于固体表面上。当两个带吸附层的胶粒相互靠拢时，由于吸附在粒子表面上的聚合物分子的相互作用就会产生“空间斥力位能”。这一相互作用位能与 DLVO 理论中的静电相互作用位能一样，也会影响体系的稳定性。有

关空间稳定的理论主要是有 Mackor 提出的“熵稳定理论”和 Fischer 提出的“渗透压斥力理论”<sup>[3]</sup>。但是目前为止还没有一种像静电相互作用中的 DLVO 那样的统一理论。

如果胶粒浸入到不被它吸附的聚合物的溶液中，则在两胶粒表面之间的空间（如果足够大的话）存在着许多自由聚合物分子。两个表面之间的空间就好像形成了一个微型的储存器。当两个胶粒相互靠拢时，就会将微型储存器中的聚合物和溶剂挤入溶液内部。在高浓度的聚合物溶液中，微型储存器内的聚合物分子数目很多，所以两个粒子很难将其中的聚合物全部挤出而形成“空缺区”，因而导致所谓的空缺稳定<sup>[3]</sup>。

这两种稳定理论和 DLVO 理论一起，构成了目前分散体系中完整的稳定性理论。

## §4.2 稳定率的常用测量方法

常用的稳定率的测量主要是利用光散射的方法，其中包括小角度光散射，浊度法和动态光散射法<sup>[21-27]</sup>等。

在浊度法测量中<sup>[21]</sup>，浊度  $\tau$  随时间  $t$  的变化可以用来测量粒子数的变化，有公式  $(1/\tau_0)(d\tau/dt)_{t \rightarrow 0} = A(1/N_0)(dN/dt)$ 。

其中  $N_0$  为体系中初始的粒子数密度， $\tau_0$  为初始的浊度， $N$  为体系的粒子数密度， $A$  为一常数。 $dN/dt$  为粒子数密度的变化率，忽略聚集的粒子团与单个粒子光散射的差异（特别是在  $t$  趋近 0 时），它正比于粒子的聚集速率  $k_s$ 。按照稳定率的定义，测量出  $t=0$  时快聚集的  $dN/dt$ ，和慢聚集的  $dN/dt$  的比值就是体系的稳定率。

在小角度光散射<sup>[22]</sup>的测量中，聚集率与散射光强的关系为

$$\frac{I(t, \theta)}{I(0, \theta)} = 1 + 2k_s N_0 t \quad (4.21)$$

这样也可以测量快聚集和慢聚集的聚集速率，稳定率同样可以通过实验测量的聚集速率得到。

动态光散射<sup>[23-27]</sup>又称光子相关光谱，它可以从散射强度波动中得到光强自相关函数，相关函数的平均衰减常数与平均扩散系数（ $D_{mean}$ ）直接相关，即由相



关函数的平均衰减常数可以得到  $D_{mean}$ 。根据 Stokes-Einstein 公式，颗粒平均水化直径  $d_{mean}$  反比于  $D_{mean}$ ，即

$$D_{mean} = \frac{kT}{3\pi\eta d_{mean}} \quad (4.22)$$

其中  $k$  为 Boltzmann 常数， $T$  为绝对温度， $\eta$  为粘度。

聚集速率与颗粒的平均水化直径  $d_{mean}$  的变化率之间的关系为：

$$d_{mean}'0 = \frac{1}{k_s \alpha N_0} \left( \frac{\partial d_{mean}}{\partial t} \right)_{t \rightarrow 0} \quad (4.23)$$

其中， $d_{mean}'0$  是最初的颗粒平均水化直径， $\alpha$  为光学因子。

这样，利用快聚集速率和测得的慢聚集速率的比值就可以得到体系的稳定率。

这些实验方法虽然不尽相同，但是测量原理都是一样的，也即通过测量体系中粒子聚集后对光散射性质的变化来测量粒子数的减少速度来得到粒子的聚集速率，从而得到体系的稳定率。这些实验方法的特点是通过测量体系中的粒子聚集引起的体系宏观性质（光学性质）随时间的变化来测量体系的稳定性的。然而从粒子层次上来说，体系的稳定性完全是由粒子之间的碰撞聚集行为来确定的。如果能够直接研究两个粒子的碰撞聚集行为，就可以从粒子层次来研究分散体系的稳定性，从而对体系的稳定性有一个更加基本的认识。

## §4.3 利用光镊研究体系的稳定性

### §4.3.1 研究方法的物理原理

稳定率的定义为快聚沉速度常数和慢聚沉速度常数的比值，快速聚沉速度常数的值可以由扩散动力学理论推导，而慢速聚沉的速度常数  $k_s$  是由公式(4.18)给出，它与整个体系中粒子数的减少速度有关，它是一个大量粒子统计平均的宏观的物理量。但是从粒子碰撞结合的角度来看，稳定率通常被认为等于粒子的总的碰撞次数  $n$  和其中引起粒子结合的碰撞次数  $n_c$  之间的比率<sup>[28-30]</sup>，用公式表示就是  $W=n/n_c$ 。稳定率的倒数则被称为结合几率或碰撞效率<sup>[28-30]</sup>，我们用  $p$  表示，它的物理意义就是两个粒子发生一次碰撞之后结合的几率。对于快速聚集来说，粒子之间的每次碰撞都会导致它们结合，结合几率为 100%，因此稳定率为 1。而

对于完全稳定的分散体系，粒子的碰撞则不会导致结合，因而结合几率为 0，稳定率为无穷大。

因此，与利用光散射方法研究分散体系的聚沉过程及稳定性相比，更为直接的方法就是通过研究粒子之间的碰撞聚集过程来研究体系的稳定性。然而，分散体系中有大量的粒子，在每一时刻都会有很多的粒子发生碰撞，由于粒子的运动是随机的，粒子之间的碰撞发生的时间和空间也是完全随机的，因此很难直接从显微镜中观察分散体系中大量的粒子之间的碰撞聚集过程。

基于光镊可以操控和定位粒子的特点，我们建立了从粒子层次研究微粒碰撞聚集过程的实验研究方法。该方法利用光镊来捕获两个粒子，使之局限在显微镜中可以观察到的区域发生碰撞，就可以跟踪它们的碰撞聚集过程，解决由于粒子碰撞是随机的而无法从显微镜中观察碰撞聚集过程这一困难。同时，光镊中的两个粒子是一个两粒子的碰撞聚集体系，它是粒子碰撞聚集的最小体系。通过利用光镊对这一简单粒子体系碰撞过程进行研究，并对许多个这样的两个粒子的碰撞聚集体系进行观察，再统计碰撞后粒子有多大的几率结合，就可以实现从粒子层次研究粒子的碰撞聚集过程的规律，并在此基础上发展从粒子层次测量体系稳定率的方法。

#### §4.3.2 实验装置

我们使用的实验装置如图 4.3，其中光镊的光源（5）为波长 780nm 的半导体激光器，激光进入显微镜系统被系统中的二色镜（7）所反射进入 100×显微物镜（4），经过该高数值孔径的物镜会聚后进入样品池（2）中形成可以捕获粒子的光镊。样品池放在自动平台（3）上，自动平台可带动其上的样品池移动，平台的 xy 方向的移动由计算机控制，由于光镊的捕获位置在水平方向上是固定的，因此样品池的移动就使得光镊捕获的粒子相对于样品池和样品池中的其它粒子运动，其中平台的可移动范围很大，因而可以很容易实现在样品池中捕获到很多对粒子使其发生碰撞。光镊的纵向捕获位置可以通过调节物镜的上下来调节。综合这两部分调节，可以实现光镊捕获的粒子相对于样品池的三维运动。光镊的引入不影响显微镜的成像，我们仍然可以通过目镜来观察样品池中的粒子。此外，我们还通过 CCD（9）将图像引入到录像机（11）和计算机（10）中，从而可以

实现对样品池中的粒子和光镊捕获的粒子进行实时的观测和记录。激光进入显微镜之前的光路中插入了一个电子快门(6),它可以用来打开或阻止激光进入样品池形成光镊,从而可以控制光镊的开和关以及光镊捕获粒子的时间。

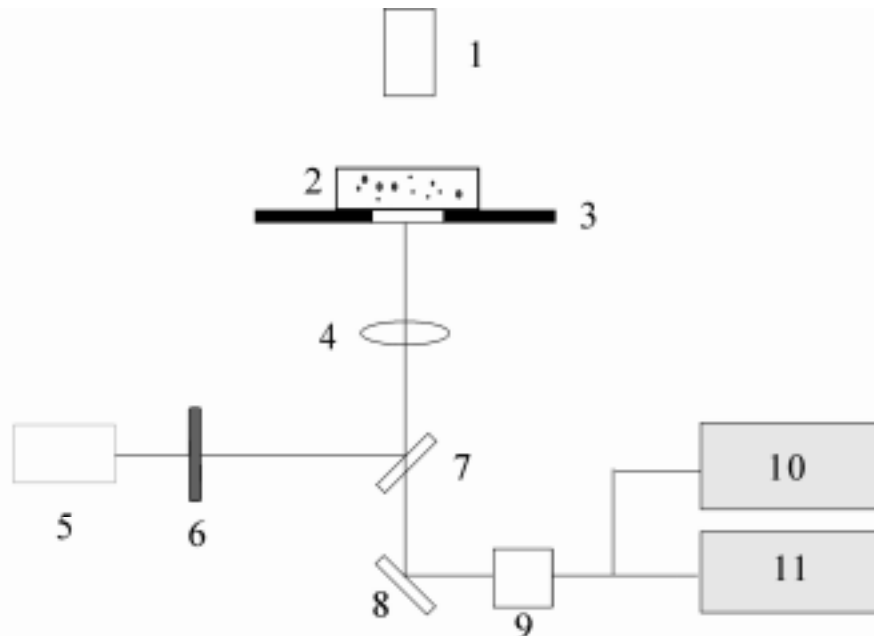


图 4.3 实验装置图

1.照明光源 2.样品池 3.自动平台 4. 100×显微物镜 5.光镊光源  
6.电子快门 7.二色镜 8.分光镜 9.CCD 10.计算机 11.录像机

### §4.3.3 实验方法和结果

如实验原理中所叙述,如果能够统计粒子间的碰撞和形成粒子聚集的碰撞的比率,那么利用公式  $W=n/n_c$  就可以得到体系的稳定率。一般说来,在许多利用光镊对分散体系的性质进行的研究中,单个光镊一般仅用来捕获一个粒子,但实际上,光镊可以捕获两个粒子,如果粒子在光镊中会发生碰撞,就可以用光镊捕获两个粒子,并将它们定位在可以观察的视场中,对它们的碰撞聚集过程进行跟踪,观察它们在光镊中碰撞之后是否发生聚集。

因此,我们在实验中,先用光镊捕获一个粒子,然后再捕获另外一个粒子,过一段时间后,再利用电子快门关闭光镊,观察两个粒子是否结合,然后再对大量的光镊中的两个粒子体系进行统计,就可以得到两个粒子结合的几率。实验中两个粒子的状态变化如图 4.4 所示。在实验中,所使用的样品为直径  $0.993 \pm 0.021 \mu\text{m}$  的聚苯乙烯小球(美国 Duke Scientific 公司产品,编号 4009A),

样品中还加入了 NaCl, 加入的 NaCl 浓度不同, 体系的稳定程度也不同。我们对 NaCl 浓度分别为 0.1 和 0.15mol/l 的该聚苯乙烯小球分散体系进行了实验, 样品中的聚苯乙烯小球的粒子数密度均为  $1 \times 10^8 \text{cm}^{-3}$ 。实验过程中, 温度保持在 20 度。在保证光镊能够稳定捕获两个粒子的前提下, 在实验中所使用的光镊的功率尽可能低, 以减少光镊可能带来的影响。

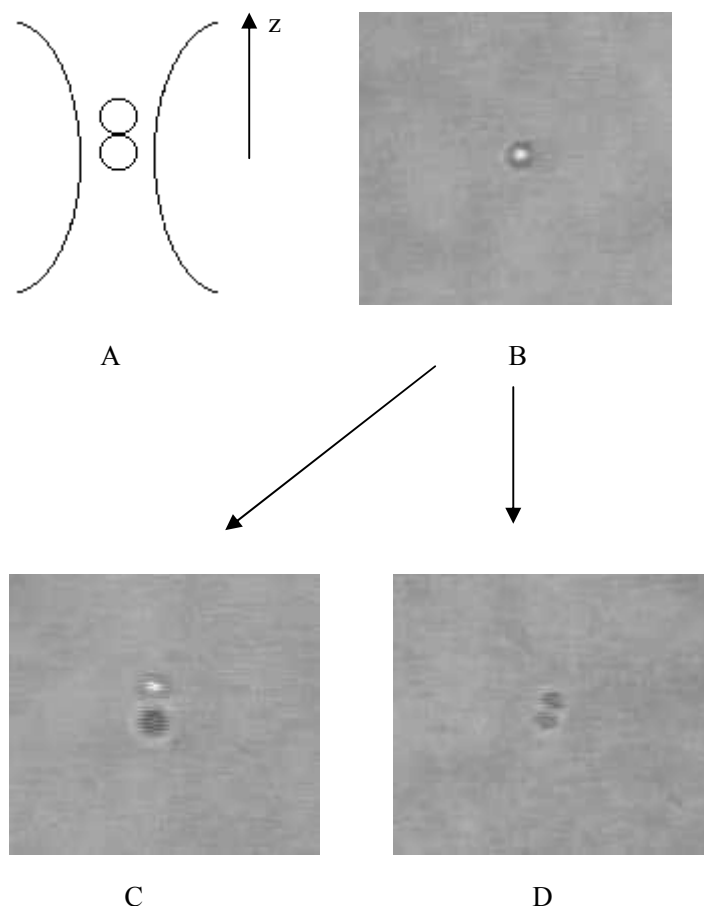


图 4.4 实验中两个粒子的状态

- A. 两个粒子在光镊中的方位示意图  $z$  方向为垂直水平面方向, 也是激光传播方向
- B. 显微镜中看到的光镊捕获了两个粒子的图像
- C. 光镊关闭后两个粒子分开的情况下的图像
- D. 光镊关闭后两个粒子结合的情况下的图像

当两个粒子被光镊捕获时, 它们是沿着轴向分布 (垂直水平面), 在光镊中的位置的示意图见图 4.4.A, 其中  $z$  为垂直水平面的方向, 同时也是光镊的激光传播的方向。从显微镜中看到的图像如图 4.4.B 所示, 它类似于光镊只捕获一个

粒子的图像，因而看不到两个粒子的运动情况，使得我们无法知道两个粒子在光镊中是否发生了碰撞，也不清楚它们什么时候发生碰撞。因此，这样直接利用光镊来进行实验并不能得到粒子间发生一次碰撞后的结合率  $p$ ，也不能得到它的倒数——稳定率  $W$ 。在上述的实验方法中，可以直接统计测量的物理量是光镊捕获两个粒子  $t$  时刻之后（从第二个粒子被光镊捕获开始算起）的结合几率，我们称之为累积结合几率，用  $P(t)$  表示。需要指出的是，由于在  $t$  这段时间中的碰撞并不一定是一次碰撞，因此  $P(t)$  并不一定与  $p$  相同。

然而，只要粒子在光镊中会发生碰撞，利用统计得到的  $P(t)$  的值，就有可能通过分析得到一次碰撞的结合几率  $p$ ，从而得到稳定率  $W$ 。因此，我们首先进行了初步的实验来统计得到  $P(t)$  的值。

在我们的实验中，对每一个样品都要做 10 组独立的实验，每组实验需要统计 100 对粒子的碰撞结果，得到该组 100 对粒子中有多少对结合，从而得到该组的累积结合几率  $P(t)$ ，最后再对 10 组独立的实验结果进行平均得到最后统计平均的  $P(t)$ 。对每一对粒子的实验方法，前面已经提及，就是先用光镊捕获一个粒子，然后再捕获另外一个粒子，从第二个粒子进入光镊开始计时，在一给定的时间  $t$  之后，用电子快门关闭光镊，观察两个粒子是否结合。

利用这一实验方法，我们对直径  $0.993 \pm 0.021 \mu\text{m}$  的聚苯乙烯小球（美国 Duke Scientific 公司产品，编号 4009A）分散体系，在 0.1M 和 0.15M 的 NaCl 浓度下分别测量了  $P(t=1\text{s})$  和  $P(t=2\text{s})$  的值。当 NaCl 浓度为 0.1M 时，得到的  $P(t=1\text{s})=27\%$ ， $P(t=2\text{s})=32\%$ ；当 NaCl 浓度为 0.15M 时， $P(t=1\text{s})=68\%$ ， $P(t=2\text{s})=76\%$ 。

从实验结果中，我们可以得到以下结论：

首先，10 组独立的实验所统计的累积结合几率的波动都在统计误差范围内，说明用我们的方法得到的结果是有统计意义的；

其次，测量的累积结合几率结果不为 0，说明光镊中两个粒子会发生碰撞并可以导致结合；

第三，在 4.1.3 节中我们提到，随着盐浓度的增大，体系将会变得不稳定，那么，稳定率会降低，结合率  $p$  会增大，从实验结果也可以看出，对于同样的时间  $t$ ，对盐浓度比较大的分散体系，测量得到的  $P(t)$  也会比较大，因此这说明累积结合几率  $P(t)$  与  $p$  随着盐浓度的变化趋势是一致的；

第四，对同样的盐浓度，随着  $t$  的增大， $P(t)$  也会增大，这说明累积结合几率  $P(t)$  是两个粒子多次碰撞的统计结果，而随着时间的增加，两个粒子发生碰撞的次数增大，从而导致  $P(t)$  增大。

这样，实验结果显示，两个粒子在光镊中会发生碰撞，因此就有可能从测量得到的  $P(t)$  中得到一次碰撞的结合几率  $p$ ，而  $P(t)$  和  $p$  随盐浓度的变化趋势一致，也说明  $P(t)$  和  $p$  有很直接的联系。然而，从第四点可以看到，累积结合几率是两个粒子多次碰撞的结果，因此要得到一次碰撞后的结合率  $p$ ，还需要对光镊中两个粒子的状态和其碰撞过程进行分析。

#### §4.3.4 光镊中两个粒子碰撞过程的研究

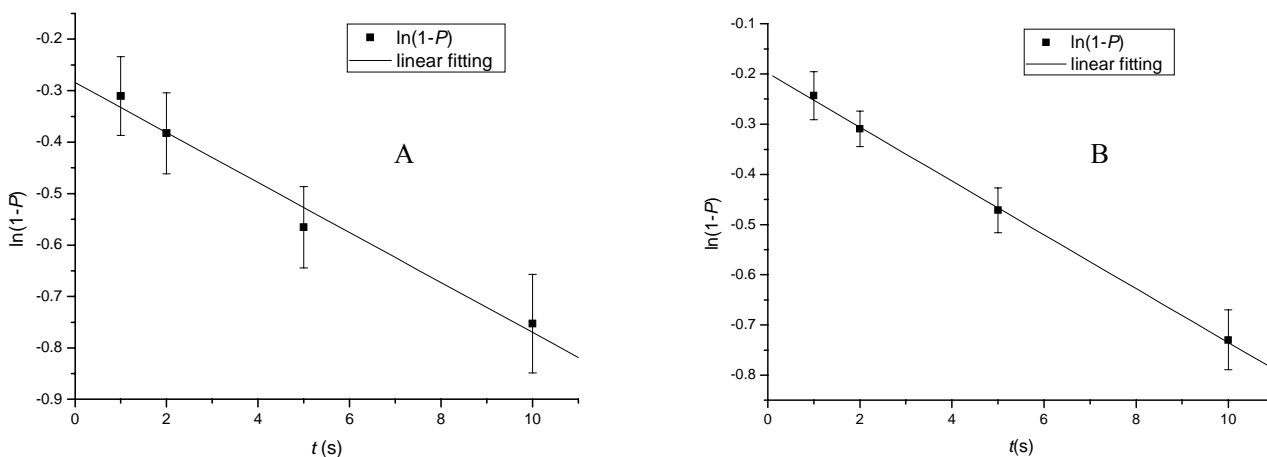


图 4.5 实验测量得到的  $\ln(1-P)$  与时间  $t$  的关系曲线，其中  $P$  为累积结合几率。

A. NaCl 浓度为 0.1mol/l，聚苯乙烯小球直径为  $0.993 \pm 0.021 \mu\text{m}$ 。

B. NaCl 浓度为 0.05mol/l，聚苯乙烯小球直径为  $0.49 \pm 0.03 \mu\text{m}$ 。

为了对光镊中两个粒子的状态和碰撞过程进行分析和研究，我们对不同的分散体系进行了实验<sup>[31]</sup>，测量了累计结合几率  $P(t)$  与光镊捕获时间  $t$  之间的关系。我们选取的两个不同的体系为：NaCl 浓度为 0.1mol/l，分散相为直径  $0.993 \pm 0.021 \mu\text{m}$  的聚苯乙烯小球（美国 Duke Scientific 公司产品，编号 4009A）的分散体系和 NaCl 浓度为 0.05mol/l，分散相为直径  $0.49 \pm 0.03 \mu\text{m}$  的聚苯乙烯小球（美国 Duke Scientific 公司产品，编号 3500A）的分散体系，两种体系中的粒子数密度均为  $1 \times 10^8 \text{cm}^{-3}$ 。体系中加入的 NaCl 如 DLVO 理论中所叙述的那样，将影响体系的稳定性，从而影响粒子间的结合几率  $p$ 。实验方法与 4.3.3 节中叙

述的相同，这样我们得到了两个粒子在光镊中不同时间之后的累计结合几率  $P(t)$ ，实验结果见图 4.5。从图中可以看到， $\ln(1-P(t))$ 与光镊捕获两个粒子的时间  $t$  呈线性关系。

为了理解这一实验结果，我们首先对光镊中两个粒子的碰撞过程进行了理论分析。由于  $p$  只与粒子之间的相互作用特性有关，因此在光镊中发生碰撞的过程中， $p$  是不变的。假定在  $t$  时刻光镊中两个粒子的碰撞频率为  $f(t)$ 。 $P(t)$  为累积结合几率，则  $1-P(t)$  为尚未结合的几率。尚未结合的粒子在单位时间内将发生  $f(t)$  次碰撞，因此它们结合的几率为  $pf(t)$ 。这将导致  $1-P(t)$  的减小，减小速率为  $(1-P(t))pf(t)$ 。则关于  $P(t)$  的微分方程为：

$$\frac{d(1-P(t))}{dt} = -(1-P(t))pf(t) \quad (4.24)$$

该微分方程的解为：

$$\ln(1-P(t)) = -\int_0^t pf(t)dt + C \quad (4.25)$$

由于在初始时刻 ( $t=0$  时刻)，两个粒子尚未发生碰撞，因而此时的  $P(t=0)=0$ 。结合此条件，可以得到式(4.25)中的常数  $C=0$ 。如果认为粒子在光镊中的碰撞频率是恒定的，不会随时间改变，那么就有  $f(t) = f_0$ ，这样式 (4.25) 可以写成  $\ln(1-P(t)) = -pf_0t$ ，也即  $\ln(1-P(t))$  与时间  $t$  呈线性关系，图 4.5 的实验结果证实了这一线性关系。但是按照公式  $\ln(1-P(t)) = -pf_0t$ ，在  $t=0$  时刻， $\ln(1-P(t))$  的值为 0，然而从图 4.5 中可以看出， $\ln(1-P(t))$  的直线并不过原点。这样，图 4.5 所示的实验结果意味着碰撞频率并不一直是恒定的，只是从某一时刻起，碰撞频率  $f(t)$  不随时间变化。也即在二粒子被捕获进光阱中以后的开始阶段，它们的碰撞动力学不同于以后时刻的情况，为此有必要对光阱捕获二个粒子的过程以及因此而造成的光镊中两个粒子的状态演变进行分析，建立光镊中两个粒子碰撞聚集过程的模型来解释图 4.5 中的实验结果。

#### §4.3.5 光镊中两个粒子碰撞聚集过程的模型

上一节中指出，光镊中两个粒子在被捕获的开始阶段和以后的阶段的碰撞动力学行为不同，这是由于光镊的作用而引起的。在第二个粒子刚被光镊捕获的

时候,由于光镊的作用力而有一个朝向光镊中的第一个粒子的定向速度,如果该定向速度和热运动平均速度在一个量级或者更大,那么它将使得粒子在碰撞过程中更容易越过 DLVO 理论中的势垒而结合,那么粒子的碰撞聚集情况就与实际情况不同。事实上,该定向速度比粒子的热运动速度小很多,因此粒子能否越过 DLVO 理论中的势垒而结合,基本上不受这个定向速度的影响。但这一定向速度会使两个粒子靠近,从而使得它们有一个比较高的碰撞频率。由于此时两个粒子之间的距离比它们在光镊中平衡位置处的距离要近,因此它们的位置将会有有一个弛豫过程,最终两个粒子将在光镊中各自的平衡位置附近作布朗运动。在这一弛豫过程中,两个粒子之间的碰撞频率将随着时间而发生变化,而在这弛豫过程之后,由于两个粒子的运动均在光镊中的平衡位置附近,因而它们的碰撞频率将是恒定的,设为  $f_0$ 。为了方便起见,我们把这个状态称为“松散状态”,而把两个粒子具有比较高的碰撞频率的状态称为“紧密状态”。

基于以上分析,可以近似的把进入光阱的两个未聚集的粒子的状态分为“紧密状态”和“松散状态”两个阶段,并且假定存在一个特征时间  $t_0$ ,当  $t > t_0$  时,  $f(t) = f_0$ ,两个粒子处在“松散状态”。这时,式(4.25)变为:

$$\ln(1 - P(t)) = -\int_0^{t_0} p(t) f dt - \int_{t_0}^t p f_0 dt = -\int_0^{t_0} p f(t) dt - p f_0 (t - t_0) = -p f_0 t + C \quad (4.26)$$

$$\text{其中 } C = p f_0 t_0 - \int_0^{t_0} p f(t) dt = p f_0 t_0 + \ln[1 - P(t_0)] \quad (4.27)$$

$$\text{并且有 } -\int_0^{t_0} p f dt = \ln[1 - P(t_0)] \quad (4.28)$$

通过方程(4.26)可以得到,  $\ln(1-P(t))$ 随时间变化的曲线在  $t > t_0$  将是一条直线,并且在纵轴上的截距为  $C$ 。

图 4.5 所示的实验结果表明,在一个明显小于 1 秒的时间以后,  $\ln(1-P(t))$ 随时间变化的关系为线性关系,意味着这一时间之后光阱中二个未结合的粒子的状态已经达到平衡情况下的“松散状态”,此时光镊中的两个粒子具有恒定的碰撞频率。由于图 4.5 中的两个图上的直线在纵轴上的截距  $C$  都不为 0,这说明在当两个粒子处在紧密状态时,它们一定发生了碰撞。考虑到两个粒子碰撞后,如果



没有聚集在一起, 它们的状态将是完全随机的, 作为一个合理的近似, 假定在紧密状态两个粒子发生一次碰撞后, 光镊引起的第二个粒子朝向第一个粒子的附加定向速度的效应就会立刻消失, 两个粒子立即进入松散状态, 也就是说, 两个粒子在紧密状态有且只有一次碰撞。

为了对紧密状态和松散状态的碰撞频率进行比较, 我们对光镊中两个粒子的碰撞频率进行了 Monte Carlo 模拟<sup>[32]</sup>, 模拟的结果给出, 光镊中两个粒子之间的碰撞频率随着它们的初始距离的增大而迅速下降(将在下一章中进行讨论), 因而两个粒子在紧密状态具有比松散状态高得多的碰撞频率。

利用这一模拟结果可以得到  $f_0 \ll 1/t_0$ 。虽然对每一对粒子来说, 紧密状态结束的时间不同, 但是由于在紧密状态结束时刻到  $t_0$  时刻两个粒子已经处于松散状态, 由于  $f_0 \ll 1/t_0$ , 因而这一段很短的时间内的碰撞对  $P(t_0)$  的贡献可以忽略。那么就可以得到  $P(t_0) \approx p$ 。

从另一个角度来看, 在两个粒子未发生碰撞之前, 粒子也会慢慢向松散状态弛豫, 对于光镊捕获系统这样一个过阻尼系统来说, 弛豫时间大约为  $10\text{ms}$ <sup>[31, 33]</sup> (考虑光镊的刚度为  $10^{-6}\text{N/m}$  的情况), 由于假定在紧密状态粒子会发生碰撞, 也就是说在弛豫时间结束之前, 粒子都已经进入了松散状态, 因此  $t_0$  要比弛豫时间短。而对图 4.5A 来说, 拟合的直线斜率  $pf_0$  是 0.046, 而通过浊度法测量得到的  $p$  大约为 0.2。这样得到的  $f_0$  为 0.23Hz。考虑到  $t_0 < 10\text{ms}$ , 同样有  $f_0 \ll 1/t_0$ , 通过这样的分析也可以得到  $P(t_0) \approx p$ 。

这样, 我们就建立了光镊中两个粒子碰撞聚集过程的物理模型, 即光镊中的粒子有两个不同的状态, 当两个粒子刚被光镊所捕获时, 光镊引起的定向速度使得两个粒子处于“紧密状态”, 在紧密状态发生一次碰撞之后, 两个粒子就立刻进入“松散状态”, 在松散状态, 两个粒子的碰撞频率是恒定的, 而且其碰撞频率要比在紧密状态小得多。该模型可以解释图 4.5 的实验结果, 说明了这一模型的合理性。这一模型给出了光镊中两个粒子的状态及其变化过程, 以及两个粒子在不同状态下的碰撞行为, 利用这一模型我们建立了光镊中两个粒子的碰撞聚集过程的唯象理论。要进一步论证所建立的模型和理论的合理性, 需要定量的实验依据。下一节我们将在所建立的理论的基础上, 发展利用光镊从粒子(或微观)

层次测量分散体系的稳定率的方法。通过这种微观方法的实验结果与宏观方法的比较，可以进一步论证所建立的近似模型的合理性。

#### §4.3.6 利用光镊测量分散体系的稳定率

在前面两节中，我们通过实验和理论分析，得到了光镊中两个粒子的碰撞聚集过程的模型。利用这一模型和以上的理论分析，就可以直接从实验测得的曲线来得到结合几率  $p$ 。由于  $f_0 \ll 1/t_0$ ，可以得到：

$$pf_0t_0 \ll p < |\ln(1-p)| \quad (4.29)$$

再利用上一节中的模型的推论  $P(t_0) \approx p$ ，方程 (4.27) 变为：

$$C = pf_0t_0 + \ln[1 - P(t_0)] \approx \ln(1-p) \quad (4.30)$$

将式 (4.30) 代入公式 (4.26)，可以得到累计结合几率  $P(t)$  与时间  $t$  的关系为：

$$\ln(1 - P(t)) = -pf_0t + \ln(1-p) \quad t > t_0 \quad (4.31)$$

利用这个公式就可以直接利用拟合曲线在纵轴上的截距来得到结合几率  $p$ 。对图 4.5A 中所使用的分散体系利用浊度法来测量得到的稳定率为  $5(\pm 0.2)$ ，而利用公式 (4.31) 得到  $p = 24.7\%$ 。这一结果和利用浊度法测量得到的结果一致，不仅说明了光镊中两个粒子的碰撞模型和以上的理论分析是正确的，而且还给出了利用光镊测量得到的累计结合几率得到体系稳定率的方法，建立了宏观现象和微观过程之间的联系。而这一理论也使得对光镊中两个粒子的运动和碰撞过程有了一个完整的认识，为分散体系的稳定性和粒子之间的碰撞规律的进一步研究提供了方便。

然而，利用这样的曲线拟合方法得到体系的稳定率需要大量的数据。一般来说，对每一条曲线，至少应该需要三个以上的累计结合几率的数据点来进行拟合，而对于每一个数据点，都是要进行大量的统计得到，因此，用曲线拟合的方法需要的工作量很大。

如果认为每个数据点的统计结果误差都比较小，那么利用公式 (4.31)，只

需要利用光镊测量两个不同时刻的累计结合几率  $P(t_1)$  和  $P(t_2)$  的值 ( $t > t_0$ ), 就可以得到  $p$  的值, 而不需要进行曲线的拟合, 这就大大增加了实验的可操作性。为方便起见, 可以利用  $P(t)$  和  $P(2t)$  得到  $p$ , 具体分析如下:

由  $\ln(1 - P(t)) = -pf_0t + \ln(1 - p)$  和  $\ln(1 - P(2t)) = -2pf_0t + \ln(1 - p)$  可以得到  $2 \ln[1 - P(t)] - \ln[1 - P(2t)] = \ln(1 - p)$

$$\text{从而有 } p = 1 - \frac{[1 - P(t)]^2}{1 - P(2t)} \quad (4.32)$$

在  $t$  不是很大的情况下, 公式 (4.32) 还可以继续简化。由公式 (4.31) 可以得到:

$$1 - P(t) = [1 - p]e^{-pf_0t} \quad (4.33)$$

当  $pf_0t \ll 1$  时, 对指数项进行泰勒展开可以得到:

$$1 - P(t) = [1 - p][1 - pf_0t] \quad (4.34)$$

这样就有

$$2P(t) - P(2t) = [1 - p][1 - 2pf_0t - 2 + 2pf_0t] + 1 = p \quad (4.35)$$

如果将该公式写成  $p = P(t) - [P(2t) - P(t)]$ , 就可以很清楚的看到其物理意义。 $P(t)$  中不仅有紧密状态中一次碰撞的  $p$ , 还有  $t$  时间内松散状态中发生的碰撞的贡献, 而  $P(2t) - P(t)$  就是第二个  $t$  时间内松散状态中的碰撞的贡献, 对  $P(t)$  做修正, 将其中多余的松散状态中的碰撞的贡献减掉就可以得到一次碰撞的结合几率  $p$  了。至此, 我们就可以使用该简化的公式利用光镊测量体系的稳定率。

测量稳定率的实验的装置如图 4.3, 实验所使用的样品为直径  $0.993 \pm 0.021 \mu\text{m}$  的聚苯乙烯小球 (美国 Duke Scientific 公司产品, 编号 4009A), 样品中加入了 NaCl 用以引起体系的稳定性的变化。我们对 NaCl 浓度分别为 0, 0.05, 0.1, 0.15, 0.2, 0.3 mol/l 的该聚苯乙烯小球分散体系进行了实验, 样品中的聚苯乙烯小球的粒子数密度均为  $1 \times 10^8 \text{cm}^{-3}$ 。实验过程中, 温度保持在 20 度。在保证光镊能够稳定捕获两个粒子的前提下, 在实验中所使用的光镊的功率尽可能低, 以减少光镊可能带来的影响。

实验过程和 4.3.3 节中初步实验的过程类似，对每一对粒子，先用光镊捕获一个粒子，然后再捕获另一个粒子，从第二个粒子进入光镊时开始计时，在时间  $t$  后，关闭电子快门从而关闭光镊将两个粒子释放，再对两个粒子进行跟踪观察它们是否聚集。对每一种 NaCl 浓度下的分散体系，都进行了 10 组的独立实验，每组实验要对 100 对粒子在光镊中碰撞后的结果进行统计，再对 10 组的累积结合几率进行平均得到统计平均的累积结合几率  $P(t)$ 。对每一种 NaCl 浓度下的分散体系，我们都要这样测量得到粒子在光镊中 1 秒和 2 秒后的累积结合几率  $P(t=1s)$  和  $P(t=2s)$  并利用公式 (4.35) 计算得到结合率  $p$ ，其倒数就是利用光镊从粒子层次测量得到的体系的稳定率  $W$ 。

为了验证该实验方法的可靠性，我们还与传统的测量方法浊度法测量的稳定率结果进行了对比，此外还测量了体系的 Zeta 电位，结果见表 4.1:

表 4.1. 不同 NaCl 浓度 ( $C_{NaCl}$ ) 下的结合率 ( $p$ )、稳定率 ( $W$ ) 和 zeta 电位的值。实验中温度为 20 度

$C_{NaCl}$ (mol/l)	0	0.05	0.10	0.15	0.20	0.3
$p$ (%)	0	10( $\pm 4$ )	22( $\pm 4$ )	60( $\pm 8$ )	~100	100
$p_{macro}$ (%)	0	11( $\pm 5$ )	20( $\pm 5$ )	55( $\pm 6$ )	90( $\pm 3$ )	100
$W$	$\sim \infty$	10( $\pm 4$ )	4.6( $\pm 0.8$ )	1.7( $\pm 0.2$ )	~1	1.00
$W_{macro}$ (%)	$\sim \infty$	9( $\pm 4$ )	5( $\pm 0.2$ )	1.8( $\pm 0.2$ )	1.10( $\pm 0.04$ )	1.00
Zeta potential (mV)	-54( $\pm 1$ )	-49( $\pm 1$ )	-36( $\pm 5$ )	-32( $\pm 3$ )	-21( $\pm 6$ )	-19( $\pm 4$ )

表格中没有下标的  $p$  和  $W$  是我们利用光镊测量的粒子之间的结合率和体系的稳定率，而有 macro 下标的  $p$  和  $W$  是指用浊度方法测量的结合率和体系的稳定率。

从该结果中可以看到，当 NaCl 浓度为 0 时，Zeta 电势的绝对值很高，如同第 4.1.2 节中所说明的那样，这表明粒子之间的静电排斥力很大，这种情况下粒子之间的相互作用势能曲线上的势垒很高，因而粒子之间的所有碰撞都不能让它们越过势垒而结合，粒子之间的结合率为 0，而体系的稳定率为无穷大，在这个

浓度下，我们的方法的测量结果和浊度法的测量结果完全一致。

当 NaCl 的浓度很高时 ( $C_{\text{NaCl}} \geq 0.3 \text{ mol/l}$ )，粒子之间的静电排斥能很小，导致相互作用能的势垒很低或者消失，此时粒子之间的每次碰撞都导致结合，粒子之间的结合率为 1，而体系的稳定率为 1。在这些浓度下，我们的测量结果和浊度法的测量结果也完全一致。

当  $C_{\text{NaCl}} = 0.05 \text{ mol/l}$  时，累计结合几率  $P$  随时间的变化很慢，测量得到的  $P(t=1\text{s}) = P(t=2\text{s}) = 10\%$ ，利用公式 (4.35) 得到的  $p = 10\%$ ，与浊度法测量的结果一致。

当  $C_{\text{NaCl}} = 0.10 \text{ mol/l}$  时，1 秒和 2 秒的累计结合几率  $P$  不同，利用光镊测量得到的  $P(t=1\text{s}) = 27\%$ ， $P(t=2\text{s}) = 32\%$ 。这样利用公式 (4.35) 得到的  $p = 22\%$ ，与浊度法测量的结果也很一致。

当  $C_{\text{NaCl}} = 0.15 \text{ mol/l}$  时，1 秒和 2 秒的累计结合几率  $P$  随时间的变化更快，利用光镊测量的  $P(t=1\text{s}) = 68\%$ ，而  $P(t=2\text{s}) = 76\%$ ，利用公式 (4.35) 得到的  $p = 60\%$ ，与浊度法测量得到的结果 55% 也相一致。

但是对于  $C_{\text{NaCl}} = 0.20 \text{ mol/l}$  的情况，实验测得的 1 秒和 2 秒的累计结合几率  $P$  都为 1。这样，利用公式 (4.35) 得到的  $p$  仍然为 1。但是事实上，利用浊度法测量得到的  $p$  为 90%。在这种情况下，利用光镊测量得到的  $p$  与实际结果就有了比较大的偏差，此时上述的用光镊方法测量  $p$  的方法就不太适用了。

这其中的原因主要有以下几点：

- 1) 由于此时的结合率  $p$  比较大，因此 (4.35) 式的前提条件  $pf_0t \ll 1$  就不能够满足，因此利用 (4.35) 式来进行修正的误差就会比较大，如果采用公式 (4.32)，就可以有效减小误差。
- 2) 实验测量的结果得到  $P(t=1\text{s}) \approx 1$ ，因而在事实上无法使用公式 (4.35) 和 (4.32) 对 1 秒和 2 秒的结果进行修正得到正确的  $p$  值。
- 3) 如果增大统计的粒子对数，原则上说是可以比较精确地测量出  $P(t=1\text{s})$  和  $P(t=2\text{s})$  之间的差别，并用 (4.32) 式进行修正求出  $p$  的值。然而在实际操作过程中，对  $p \approx 1$  的时候，要比较精确的统计得到  $P(t=1\text{s})$  和  $P(t=2\text{s})$  的值需要的大数据量使得测量方法变得很不现实。

因此，为了测量在  $p$  接近 1 的时候体系的稳定率，就需要对上述方法进行

改进。在这种情况下，关键的问题是 1 秒对于测量  $p$  来说时间太长了，如果能够测量更短的时间使得粒子在光镊中不要发生多次的碰撞，那么原则上说还是可以利用光镊测量这样的浓度下的结合几率。然而由于光镊捕获的时间需要人为控制，在实际操作中很难将光镊捕获的时间精确控制到很短。在下一节中，我们将通过进一步的理论分析来解决这一困难，将本节中利用光镊测量分散体系稳定率的方法进行改进。

对上述的测量方法进行总结可以发现，对于  $W > 1.8$  (或者  $p < 55\%$ ) 的体系，该实验方法是完全适用的，它可以给出与浊度法测量一致的结果。更重要的是，它是从粒子相互作用的层次，通过研究粒子的碰撞聚集过程来研究体系的稳定性的，而分散体系的稳定性直接取决于体系中粒子的碰撞聚集过程，因而本章中给出的方法与宏观的实验方法相比，更有助于对体系的稳定性的微观机理的认识。

与浊度法测量相比，由于浊度法的测量需要测量出快聚集情况下的粒子数变化率，再和相应的体系的粒子数变化率相比才能得到稳定率的值，因此为了测量某一个体系的稳定率，还必须要找到相应的快聚集体系。而我们的利用光镊测量稳定率的方法则不需要和相应的快聚集体系相比较，因而该方法就更为直接。

#### §4.3.7 光镊测量体系稳定率方法的改进

在上述的方法中，利用光镊来操控两个粒子使得它们在光镊中发生碰撞，可以统计得到一段时间后粒子多次碰撞的累计结合几率  $P$ ，利用两个不同时间之后的累计结合几率  $P(t)$  和  $P(2t)$ ，可以得到  $p$  的值，从而可以得到体系的稳定率。虽然这种稳定率的测量方法在很多情况下 ( $W > 1.8$  的情况) 是适用的，但是当  $p$  接近 1 的时候，用上一节中的测量方法就不能准确地得到  $p$  的值。但考虑到前面得到的推论  $P(t_0) \approx p$ ，如果能够测量  $P(t_0)$  的值，就可以直接得到  $p$  的值。

回到前面的理论分析当中来看，公式 (4.31)  $\ln(1 - P(t)) = -pf_0t + \ln(1 - p)$ ，的适用范围是  $t > t_0$ 。由第 4.3.5 节中所述，粒子在紧密状态的碰撞频率要远大于松散状态的碰撞频率，因而有  $f_0 \ll 1/t_0$ ，此外又有  $t_0 < 10\text{ms} \ll 1\text{s}$ ，因而可以取一个合适的时间  $t$ ，使得  $t_0 < t \ll 1$ 。此时有  $pf_0t \ll p < |\ln(1 - p)|$ ，因而公式 (4.31)

右边的第一项  $-pf_0t$  可以忽略, 从而得到  $P(t) \approx p$ , 其适用条件为  $t_0 < t \ll 1$ 。

也就是说, 为了减少光镊捕获两个粒子的时间内多次碰撞的影响, 就需要尽量减少两个粒子在光镊中的时间, 但时间要能够大于特征时间  $t_0$  以保证它们会发生碰撞, 这样, 只要能够操控两个粒子在光镊中的时间为上述一个合适的  $t$ , 就可以用累计结合几率来代替  $p$ 。

然而这在实际操作上有一定的困难。第二个粒子什么时候进入光镊, 即  $t=0$  时刻, 需要人为的判断, 而粒子在光镊中的时间  $t$  是要从这个时刻算起的。这样, 如果  $t$  越小, 那么时间  $t$  的相对误差就越大。而特征时间  $t_0$  实际上非常的短, 甚至要比判断  $t=0$  时刻所引起的误差还要小, 因此用这种方法来测量  $P(t)$  在实验上无法实现。

事实上,  $P(t) \approx p$  成立的条件为  $pf_0t \ll p < |\ln(1-p)|$ , 因此时间  $t$  并不需要非常接近  $t_0$ 。只要能保证  $t \ll 1/f_0$  就可以了。因此在实验中, 我们控制两个粒子在光镊中的时间为  $0.2 \pm 0.05$  秒, 这样既保证它们已经在紧密状态发生过一次碰撞, 又保证了两个粒子在松散状态的碰撞可以忽略, 从而可以使用  $P(t) \approx p$  来测量体系的稳定率。利用该公式得到的  $p$  我们称之为“短时间近似”得到的结合率。

在新一轮实验中, 我们使用的样品是从美国 Duke Scientific 公司新购买的直径  $0.993 \pm 0.021 \mu\text{m}$  的聚苯乙烯小球(美国 Duke Scientific 公司产品 编号 4009A), 样品中也加入了 NaCl 用以引起体系的稳定性的变化。我们对 NaCl 浓度分别为 0, 0.05, 0.1, 0.15, 0.2, 0.25, 0.3 mol/l 的该聚苯乙烯小球分散体系进行了实验, 样品中的聚苯乙烯小球的粒子数密度均为  $1 \times 10^8 \text{cm}^{-3}$ 。实验过程中, 温度保持在 25 度。在保证光镊能够稳定捕获两个粒子的前提下, 在实验中所使用的光镊的功率尽可能低, 以减少光镊可能带来的影响。

由于发现新购买的样品与原先使用的样品在性质上有一定的差异, 因此我们同样对该实验样品使用了传统的浊度法测量了其稳定率并用以和光镊测量的稳定率作对比。同时也重新测量了不同的体系中的 Zeta 电位。

利用短时间近似得到的稳定率和利用浊度法测量得到的稳定率的对比结果以及 Zeta 电位的结果见表 4.2。

表格 4.2 中, 带有 micro 下标的为“短时间近似”得到的  $p$  和  $W$ , 而带有 macro 下标的为利用浊度法测量得到的  $p$  和  $W$ 。

从表格 4.2 中可以看出，利用短时间近似得到的结合率  $p$  和稳定率  $W$  测量的结果在不同的盐浓度下都和浊度法测量得到的结果一致，即使在稳定率接近 1 的时候（0.25mol/l 的 NaCl 浓度），两种方法的结果也能保持一致。

表 4.2 不同 NaCl 浓度下的结合率，稳定率和 zeta 电位的值，实验中温度为 25 度

$C_{\text{NaCl}}$ (mol/l)	0	0.05	0.1	0.15	0.20	0.25	0.3
$p_{\text{micro}}$ (%)	0	2.3( $\pm 0.9$ )	11( $\pm 2$ )	32( $\pm 3$ )	63( $\pm 5$ )	93( $\pm 6$ )	100
$p_{\text{macro}}$ (%)	0	3( $\pm 2$ )	11( $\pm 3$ )	27( $\pm 4$ )	59( $\pm 6$ )	90( $\pm 4$ )	100
$W_{\text{micro}}$	$\sim \infty$	43 ( $\pm 17$ )	9.1( $\pm 1.7$ )	3.1( $\pm 0.3$ )	1.59( $\pm 0.13$ )	1.08( $\pm 0.07$ )	1.00
$W_{\text{macro}}$	$\sim \infty$	33 ( $\pm 22$ )	9.1( $\pm 2.5$ )	3.7( $\pm 0.5$ )	1.69( $\pm 0.17$ )	1.11( $\pm 0.05$ )	1.00
Zeta potential (mv)	-57( $\pm 2$ )	-55( $\pm 2$ )	-50( $\pm 2$ )	-38( $\pm 2$ )	-32( $\pm 4$ )	-29( $\pm 4$ )	-26( $\pm 4$ )

为了和第 4.3.6 节中的方法做对比，对于 0.1mol/l 和 0.15mol/l 的 NaCl 浓度我们还进行了第 4.3.6 节中所描述的用  $P(t=1s)$  和  $P(t=2s)$  修正得到  $p$  和  $W$  的实验，一些对比结果见表 4.3。

表 4.3. 1 秒和 2 秒的累积结合几率得到的  $p$  和短时间近似得到的  $p$  的对比

$C_{\text{NaCl}}$ (mol/l)	$p_{\text{micro}} \approx P(t \approx 0.2s)$	$P(t=1s)$	$P(t=2s)$	$p_{\text{micro}} \approx 2P(t=1s) - P(t=2s)$
0.1	11%	16%	20%	12%
0.15	32%	49%	67%	31%

从表格 4.3 中可以看出，对于第 4.3.6 节中的方法可以测量的体系，短时间近似得到的结果与 4.3.6 节中用 1 秒和 2 秒的累积结合几率得到的结果是一致的，也和浊度法测量结果一致。但是对于不能用 1 秒和 2 秒的累积结合几率得到稳定率的体系，短时间近似的结果仍然适用。从表格 4.2 中可以看出，这种改进的测量体系稳定率的方法可以测量所有不同稳定性程度的分散体系。与第 4.3.6 节中的方法相比，这种方法解决了对稳定率接近 1 的体系无法测量的问题，扩展了光镊测量分散体系稳定率的应用范围，此外，这种改进的方法还更为简单，对每一



个体系来说,这种方法只需要统计测量一个时间(大约 0.2 秒)的累积结合几率,而 4.3.6 节中的方法还需要测量两个不同时间(1 秒和 2 秒)的累积结合几率。

在前面给出的光镊中两个粒子的碰撞聚集过程的理论模型的基础之上,我们建立了利用光镊测量分散体系稳定率的方法,实验结果与宏观方法测量的结果一致,这也进一步论证了第 4.3.5 节中所建立的理论模型的合理性。

#### §4.3.8 光镊对稳定率测量的影响

在实验中,由于粒子是在光镊中发生碰撞,因此光镊就有可能对稳定率的测量产生影响。事实上,在实验中我们已经注意到尽量降低激光器的功率来减少光镊的影响。但是仍然有必要对该测量方法中光镊的影响作一些研究和分析。

在第 4.3.4 节中曾经提到,在第二个粒子刚被光镊捕获的时候,由于光镊的作用力而有一个朝向光镊中的第一个粒子的定向速度。这一定向速度引起的效应是它将使两个粒子靠近,从而使得它们有一个比较高的碰撞频率。但如果该定向速度和热运动平均速度在一个量级或者更大,那么它将使得粒子在碰撞过程中更容易越过 DLVO 理论中的势垒而结合,那么粒子的碰撞聚集情况就与实际情况不同。在第 4.3.4 节中我们还提到,光镊引起的定向速度比热运动速度要小很多。事实上,粒子的平均热运动动能与温度的关系为  $\frac{1}{2}mv^2 = \frac{3}{2}kT$ , 其中  $m, v, k, T$  分别为粒子质量,速度, Boltzmann 常数和温度。对于我们使用的体系,粒子的平均热运动速度可以通过计算得到,为 0.5cm/s,而粒子进入光镊的速度可以通过测量得到,为大约 0.03mm/s。这就说明,的确如同 4.3.4 节中所述,该定向速度比粒子的热运动速度小很多,因此它对粒子能否越过 DLVO 理论中的势垒而结合的影响很小。但即使如此,定向速度的大小也可能会影响实际的测量结果。

当两个粒子之间相互作用势的势垒和热运动动能相比比较大的时候,此时的结合几率比较小,此时光镊捕获粒子的定向速度影响也很小。我们通过实验发现,当激光器功率由 19mW 提高到 66mW 时,定向速度由 20um/s 提高到 55um/s,对 NaCl 浓度为 0.1mol/l 的情况, $P(t=1s)$ 的结果由 27(±4)%变化到 28(±4)%,基本没有变化。这说明当两个粒子之间相互作用势垒比较大,结合率  $p$  比较小时,光功率(和引起的定向速度)的增加对稳定率的测量影响很小。

当两个粒子之间的相互作用势垒比较小的时候,我们考察了光功率对短时

间近似的方法测量稳定率的影响。对 0.2mol/l 的 NaCl 浓度，用短时间近似测量得到的  $p_{\text{micro}} = 63(\pm 5)\%$ 。当激光器的功率从 19mw 增加到 66mw 时， $p_{\text{micro}}$  大约会增加 10%。因此，在结合几率比较大，稳定率接近于 1 的时候，此时两个粒子的相互作用势垒比较小，功率变化引起的定向速度的变化对测量结果将有一定的影响。

因此，为了尽量减少光镊引入而引起的影响，使得测量的结合率结果尽可能接近于完全由随机热运动引起的结合的情况，在实验当中，应当尽量降低光镊光源的功率以减少定向速度对测量结果的影响。而 4.3.6 节和 4.3.7 节的实验事实也表明，在光镊的功率比较低的情况下，光镊对测量结果的影响很小，利用本章提到的实验方法可以用光镊来从微观粒子层次上来研究体系的稳定性，并测量出体系的稳定率。

## §4.4 本章总结

在本章中，我们建立了从粒子层次研究微粒碰撞聚集过程的实验研究方法。该方法利用光镊来捕获两个粒子，使之局限在显微镜中可以观察到的区域发生碰撞，就可以跟踪它们的碰撞聚集过程，解决了由于粒子碰撞是随机的而无法从显微镜中观察碰撞聚集过程这一困难，从而实现了从粒子层次研究粒子的碰撞聚集过程的规律。

通过对这一实验方法的实验结果进行分析，我们建立了光镊中两个粒子碰撞聚集过程的物理模型：在光镊中的粒子有两个不同的状态，当两个粒子刚被光镊所捕获时，光镊引起的定向速度使得两个粒子处于“紧密状态”，在紧密状态发生一次碰撞之后，两个粒子就立刻进入“松散状态”，在松散状态，两个粒子的碰撞频率是恒定的，而且其碰撞频率要比在紧密状态小得多。

这一模型给出了光镊中两个粒子的状态及其变化过程，以及两个粒子在不同状态下的碰撞行为，利用这一模型我们建立了光镊中两个粒子的碰撞聚集过程的唯象理论。并在此基础上发展了利用光镊从粒子层次测量分散体系的稳定率的方法。

在所发展的测量方法中，我们考虑到体系的稳定率和体系中粒子的碰撞结合几率之间的联系，利用光镊捕获两个粒子，形成最简单的两粒子碰撞聚集体系，

直接观察粒子间的碰撞的统计结果,并对碰撞过程进行理论分析,从而得到粒子发生一次碰撞的结合率,实现了从微小粒子层次来测量体系的稳定率。这种方法通过直接从显微镜中观察粒子的碰撞聚集过程得到两个粒子单次碰撞的结合几率,因此比传统的测量体系稳定率的各种光散射方法更为直接,它使得人们对分散体系中微粒的碰撞聚集过程和体系的稳定性的微观机理有了更深入的认识。

通过对光镊中两个粒子碰撞聚集过程的理论模型的进一步分析,我们还对光镊测量稳定率的方法进行了改进,使之操作更为方便,并能够适用于更大的稳定率范围。

本章中对光镊中两个粒子碰撞过程的分析和理论模型的建立也为光镊的进一步的应用——特别是光镊捕获两个粒子的进一步应用提供了基础,从而可以促进光镊技术的发展和光镊在其它研究领域中的应用。

## 本章参考文献

1. (美) P.C.Hiemenz 著, 周祖康, 马季铭 译《胶体与表面化学原理》北京大学出版社 1986.
2. 周祖康, 顾惕人, 马季铭, 《胶体化学基础》北京大学出版社 1987.
3. 郑忠, 李宁, 《分子力与胶体的稳定和聚沉》 高等教育出版社 1995.
4. 王果庭, 《胶体稳定性》 科学出版社 1990.
5. R.J. Hunter, 《Zeta Potential in Colloid Science》 Academic Press Inc. (London), 1981.
6. 李银妹, 《光镊原理、技术和应用》 中国科学技术大学出版社 1996.
7. A.Ashkin, “Acceleration and trapping of particles by radiation pressure,” *Phys.Rev.Lett.* **24**, 156-159 (1970).
8. A.Ashkin, J.M.Dziedzic, J.E.Bjorkholm, and S.Chu, “Observation of a single-beam gradient force optical trap for dielectric particles,” *Opt.Lett.* **11**, 288-290 (1986).
9. A.Ashkin, “Forces of a single-beam gradient trap on a dielectric sphere in the ray optics regime,” *Biophys. J.* **61**, 569-582 (1992).
10. B.H.Lin, J.Yu, and S.A.Rice, “Direct measurements of constrained Brownian motion of an isolated sphere between two walls,” *Phys. Rev. E* **62**, 3909-3919 (2000).
11. B.H.Lin, J.Yu, and S.A.Rice, “Diffusion of an isolated colloid sphere confined between flat plates,” *Colloids Surf. A* **174**, 121-131 (2000).
12. J.C.Crocker, “Measurement of the hydrodynamic corrections to the Brownian motion of two colloidal spheres,” *J. Chem. Phys.* **106**, 2837-2840 (1997).
13. E.R.Dufresne, T.M.Squires, M.P.Brenner, and D.G.Grier, “Hydrodynamic coupling of two Brownian spheres to a planar surface,” *Phys.Rev.Lett.* **85**, 3317-3320 (2000).
14. J.C.Crocker, and D.G.Grier, “Microscopic measurement of the pair interaction potential of charge-stabilized colloid,” *Phys. Rev. Lett.* **73**, 352-355 (1994).
15. J.C.Crocker, and D.G.Grier, “When like charges attract: The effects of geometrical confinement on long-range colloidal interactions,” *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1897-1900 (1996).
16. A.D.Dinsmore, A.G.Yodh, and D.J.Pine, “Entropic control of particle motion using passive surface microstructures,” *Nature* **383**, 239-242 (1996).
17. R.Verma, J.C.Crocker, T.C.Lubensky, and A.G.Yodh, “Entropic colloidal interactions in concentrated DNA solutions,” *Phys. Rev. Lett.* **81**, 4004-4007 (1998).
18. D.G.Grier, “Optical tweezers in colloid and interface science,” *Curr. Opin. Colloid Interface Sci.* **2**, 264-270 (1997)
19. Z.W.Sun, S.H.Xu, G.L.Dai, Y.M.Li, L.R.Lou, Q.S.Liu, and R.Z.Zhu, “A microscopic approach to studying colloidal stability,” *J.Chem.Phys.* **119**, 2399-2405 (2003).

20. Z.W.Sun, S.H.Xu, J.Liu, Y.M.Li, L.R.Lou, and J.C.Xie, "Improved procedure on the microscopic approach to determine colloidal stability," Accepted to be published on J.Chem.Phys.
21. Z.W.Sun, and R.L.Qiao, "An experimental study of the influence of weak convection on perikinetic coagulation," J. Colloid Interface Sci. **223**,126-132 (2000).
22. J.J.Valle-Delgado, J.A.Molina-Bolivar, F.Galisteo-Gonzalez, and M.J.Galvez-Ruiz, "Study of the colloidal stability of an amphoteric latex," Colloid Polym. Sci. **281**, 708-715 (2003).
23. 金志琳, 侯万国, 戴国亮, 孙德军, 张春光, 孙祉伟, "电解质对 Mg-Al HTlc 溶胶聚集动力学行为的影响," 化学学报 **20**, 2025-2029 (2004).
24. M.Berka, and J.A.Rice, "Absolute aggregation rate constants in aggregation of kaolinite measured by simultaneous static and dynamic light scattering," Langmuir **20**, 6152-6157 (2004).
25. J.A.Molina-Bolivar, F.Galisteo-Gonzalez, and R.Hidalgo-Alvarez, "Cluster morphology of protein-coated polymer colloids," J. Colloid Interface Sci. **208**, 445-454 (1998).
26. A.Y.Kim, and J.C.Berg, "Fractal aggregation: scaling of fractal dimension with stability ratio," Langmuir **16**,2101-2104 (2000).
27. W.L.Yu, F.Bouyer, and M.Borkovec, "Polystyrene sulfate latex particles in the presence of Poly(vinylamine): absolute aggregation rate constants and charging behavior," J.Colloid Interface Sci. **241**, 392-399 (2001).
28. N.Fuchs, "Uber die Stabilitat und Aufladung der Aerosole," Z.Phys. **89**,736-743 (1934).
29. M.Y.Han, and H.K.Lee, "Collision efficiency factor in Brownian coagulation( $\alpha_{Br}$ ): calculation and experimental verification," Colloids Surf. A **202**, 23-31 (2002).
30. M.Mellema, J.H.J.van Opheusden, and T.van Vliet, "Relating colloidal particle interactions to gel structure using Brownian dynamics simulations and the Fuchs stability ratio," J.Chem.Phys. **111**, 6129-6135(1999).
31. S.H.Xu, L.R.Lou, Y.M.Li, and Z.W.Sun, "On the aggregation kinetics of two particles trapped in an optical tweezers," Colloids Surf. A **225**, 159-163 (2005).
32. S.H.Xu, Y.M.Li, L.R.Lou, and Z.W.Sun, "Computer simulation of the collision frequency of two particles in optical tweezers," Chin.Phys. **14**, 382-385 (2005).
33. J.Bechhoefer, and S.Wilson, "Faster, cheaper, safer optical tweezers for the undergraduate laboratory," Am.J.Phys. **70**, 393-400 (2002).

## 第五章 光镊中两个粒子碰撞频率的模拟计算

在第四章中关于两个粒子的碰撞聚集过程的理论分析中，粒子的碰撞频率是一个很重要的物理量。如第 4.3.5 节中所描述的那样，如果两个粒子之间的碰撞频率随着它们的初始距离的增大而迅速下降，那么这一结果意味着两个粒子在紧密状态具有比松散状态高得多的碰撞频率。这一结果对分析两个粒子在光镊中的运动和碰撞过程，并得到利用光镊测量稳定率的方法至关重要。在这一章中，我们将通过 Monte Carlo 模拟的方法对光镊中两个粒子的碰撞情况进行讨论。

### §5.1 计算模型

在我们的实验中，光镊控制两个小球，最为简单的模型就是将光镊的作用势看成一个三维无限深球势阱，两个粒子限制在这个无限深球势阱中进行布朗运动，文献[1]就在这样一个近似模型下模拟得到了两个粒子碰撞频率的结果，显示两个粒子的碰撞频率随着粒子之间起始距离的增大而迅速减小。这一粗略的近似模型给出的结果明确的支持我们提出的物理模型。

鉴于碰撞频率是碰撞聚集过程中的重要参数，有必要建立更严谨的模型，以便在此基础上进行模拟计算，得到更精确的定量结果。事实上，在一般情况下，在光镊捕获位置附近，光镊产生的势是一个弹性系数为  $K$  的简谐势，该弹性系数一般称为光镊的刚度<sup>[2]</sup>。此外，正如第二章和第三章中提到的，粒子和界面之间会存在流体动力学相互作用，当两个粒子靠近时，因为流体动力学相互作用的存在，也需要对粒子的运动进行修正。基于这两点，我们对文献[1]中的模型进行了改进。

在实际情况下，光镊中两个粒子的碰撞过程相当复杂，因此，在模拟过程中，仍然需要对光镊中两个粒子的碰撞过程的模型进行一些简化。如同胶体科学中常用的那样<sup>[3]</sup>，我们假定光镊中的两个粒子为刚性球，这样，两个粒子不会融合，粒子的碰撞也不会引起形变。由于光镊的存在，其中的粒子的布朗运动和自

由的布朗运动不同,除了热运动产生的随机力之外,光镊中的两个粒子在偏离光镊平衡位置的时候还受到光镊的作用力。对于光镊中只有一个粒子的情形,在光镊捕获位置附近,光镊产生的势是一个弹性系数为  $K$  的简谐势,然而对于我们实验中的系统,由于光镊中捕获了两个粒子,因此光镊的势能要复杂的多。如果两个粒子都处在同一个简谐势阱中,那么这两个粒子就会有进入同样的平衡点的趋势,这样两个粒子之间的碰撞频率就会很高,这与我们前面提到的实验结果是不符的。因此,我们假定两个粒子是处于两个不同的简谐势阱中,当它们在各自不同的平衡位置时,两个粒子是分开的。利用这一比较切合实际的光阱模型,再考虑两个粒子靠近时流体动力学相互作用引起的粘滞力修正,进行模拟计算就可以给出比文献[1]更符合实际的结果<sup>[4]</sup>。

## §5.2 模拟计算方法

在第四章我们提到,在实验当中,第二个粒子是处于第一个粒子的正上方。考虑到第 5.1 节给出的模型,两个粒子在各自的平衡位置时是分开的,两个粒子的平衡位置的坐标可以表示为  $(0,0,0)$  和  $(0,0,c)$ , 其中  $c > 2R$ ,  $R$  是粒子的半径。

这样,对于光镊中的两个粒子来说,其运动和受力的 Langevin 方程都可以写为以下形式:

$$m \frac{d^2 x_i}{dt^2} = -\alpha \frac{dx_i}{dt} - K_i (x_i - x_{0i}) + F_i(t); \quad i=1,2,3 \quad (5.1)$$

其中  $x$  表示粒子的位置,  $K$  为光镊的刚度,  $F(t)$  是由于热运动所引起的随机力,下标  $i$  表示三维中的第  $i$  维方向。  $m$  是粒子的质量,  $\alpha = 6\pi\eta R$ 。此处  $\eta$  是溶液的粘滞系数。  $x_{0i}$  为第  $i$  维方向上粒子的平衡位置。

方程 (5.1) 的右边三项分别为粒子受到的粘滞力,粒子偏离光镊中平衡位置后所受到的回复力,和热运动引起的随机力。

方程 (5.1) 可以写成下述的微分方程组:

$$\begin{cases} \frac{dx_i}{dt} = v_i; \\ \frac{dv_i}{dt} = -\gamma v_i - f_i(x_i - x_{0i}) + \Gamma_i(t); \end{cases} \quad i=1,2,3 \quad (5.2)$$

其中  $\gamma = \alpha / m, f_i = K_i / m, \Gamma_i(t) = F_i(t) / m$ 。

由于三个不同方向上的随机力是无关的，由随机力的性质，可以得到  $\Gamma(t)$  有以下性质：

$$\langle \Gamma_i(t) \Gamma_j(t') \rangle = 2\gamma(kT/m)\delta(t-t')\delta_{ij}. \quad (5.3)$$

与文献[1]相比，本章的模拟不仅改进了光阱的模型，还考虑了两个粒子之间的流体相互作用引起的粘滞力修正。对于两个球形粒子，由于它们之间存在流体动力学相互作用，因此两个粒子的扩散系数都需要进行修正。两个相同半径的粒子扩散系数的修正的表达式已由 Batchelor<sup>[6]</sup> 从理论上进行了分析，并由 Crocker<sup>[7]</sup> 从实验上进行了验证。两个粒子的扩散要分为四个部分，其中，两个粒子相对它们的质心的扩散系数的表达式分别为：

$$D_{RM}^{\parallel} = \frac{D_0}{2} \left[ 1 - \frac{3}{2r/R} + \frac{1}{(r/R)^3} - \frac{15}{4(r/R)^4} + O((r/R)^{-6}) \right] \quad (5.4)$$

$$D_{RM}^{\perp} = \frac{D_0}{2} \left[ 1 - \frac{3}{4r/R} - \frac{1}{2(r/R)^3} + O((r/R)^{-6}) \right] \quad (5.5)$$

其中  $r$  是两个粒子之间的中心距离， $D_0$  是单个粒子在不需要修正情况下的扩散系数。 $D_{RM}^{\parallel}$  是修正后的沿着两个粒子中心连线方向的扩散系数，而  $D_{RM}^{\perp}$  是修正后的垂直于两个粒子中心连线方向的扩散系数。下标  $RM$  表示这两个扩散系数项为相对于粒子质心的扩散。而修正的两个粒子质心的扩散系数为：

$$D_{CM}^{\parallel} = \frac{D_0}{2} \left[ 1 + \frac{3}{2r/R} - \frac{1}{(r/R)^3} - \frac{15}{4(r/R)^4} + O((r/R)^{-6}) \right] \quad (5.6)$$

$$D_{CM}^{\perp} = \frac{D_0}{2} \left[ 1 + \frac{3}{4r/R} + \frac{1}{2(r/R)^3} + O((r/R)^{-6}) \right] \quad (5.7)$$

其中  $D_{CM}^{\parallel}$  是沿着粒子中心连线方向的，而  $D_{CM}^{\perp}$  是表示垂直于粒子中心连线方向的扩散系数。

利用上述扩散系数的修正公式，以及粘滞系数和扩散系数间的关系  $D = \frac{k_B T}{6\pi\eta R}$ ，可以对粘滞系数  $\eta$  进行修正。让我们再回到公式(5.2)，在公式(5.2)

中，只有参数  $\gamma$  和粘滞系数  $\eta$  有关，而与  $\gamma$  有关的项有两项：粘滞力项  $-\gamma v$  和随



机力项  $\Gamma_i(t)$ 。当两个粒子比较近的时候，由于粒子间存在流体动力学相互作用，因此粘滞力项需要进行修正。然而，由于随机力是液体中的分子对粒子的总的作用力除去粘滞力后的随机力<sup>[5]</sup>，虽然它的性质表达式(5.3)式中有  $\gamma$  项，但它却只和分子无规热运动有关，而和流体动力学相互作用无关，因而并不需要进行修正。

这样，我们就可以利用公式(5.4)到(5.7)，对公式(5.2)中的粘滞力的项  $-\gamma v$  进行修正，公式(5.2)变为：

$$\begin{cases} \frac{dx_i}{dt} = v_i; \\ \frac{dv_i}{dt} = (-\gamma v_i)_{correct} - f_i(x_i - x_{0i}) + \Gamma_i(t); \end{cases} \quad i=1,2,3 \quad (5.8)$$

然后就可以用文献[5]中所提到的模拟方法对  $x$  和  $v$  进行模拟。由于随机力项  $\Gamma_i(t)$  满足公式(5.3)，因此在模拟的每一步  $\Delta t$  时间内，随机力项  $\Gamma_i(t)$  引起的速度变化可以表示为：

$$\sqrt{2\gamma(kT/m)\Delta t} w_i \quad (5.9)$$

其中  $\Delta t$  为模拟的时间步长， $w_i$  为相互独立的满足均值为 0，方差为 2 的正态分布的随机数。

这样，按照文献[5]中的模拟方法，每一步的位置和速度都可以从上一步的位置和速度来得到，如下面的公式所示：

$$\begin{cases} (x_i)_n = (x_i)_{n-1} + (v_i)_{n-1} \Delta t; \\ (v_i)_n = (v_i)_{n-1} + (-\gamma v_i)_{correct} \Delta t - f_i(x_i - x_{0i}) \Delta t + \sqrt{2\gamma(kT/m)\Delta t} w_i; \end{cases} \quad (5.10)$$

为了和我们的实验中所使用的粒子相一致，我们在模拟中所使用的粒子半径  $R$  为  $0.5\mu\text{m}$ 。两个粒子的中心距  $c$  我们设置为  $2R+0.1\mu\text{m}$ 。关于光镊的刚度，我们参考已有的文献<sup>[2]</sup>，在横向上( $x$  and  $y$ )所取的值是相同的，而在纵向( $z$ )刚度的值要比横向小得多。在本文模拟中，所使用的纵向刚度  $K_z$  为横向刚度  $K_{x,y}$  的十分之一，其具体数值是典型的光镊刚度的数值，分别为  $K_{x,y}=1\times 10^{-6}\text{N/m}$ ， $K_z=0.1\times 10^{-6}\text{N/m}$ 。

碰撞频率的模拟方法如下：设初始的两个粒子之间表面最近距离为  $d_0$ 。在模拟过程中，每经过一个时间步长  $\Delta t$ ，两个粒子的位置都通过公式 (5.10) 进行模拟计算。一旦两个粒子的中心距离小于或者等于  $2R$ ，那么我们就认为它们发生了一次碰撞。在模拟过程中所使用的时间步长  $\Delta t$  为  $1 \times 10^{-8}$  秒，每一次模拟粒子都需要运动  $1 \times 10^8$  步。通过以上模拟就可以得到粒子之间的碰撞频率。为了保证时间步长是合适的，我们还取时间步长为  $1 \times 10^{-9}$  秒进行了模拟，得到的结果和用  $1 \times 10^{-8}$  秒的时间步长模拟得到的结果是一致的，这就说明  $1 \times 10^{-8}$  秒的步长在模拟中是合适的。对每一个初始距离  $d_0$  我们都要进行上述的模拟 10 次以上，然后再对结果进行平均，就可以得到两个粒子在不同的初始距离  $d_0$  的情况下在光镊中的碰撞频率。

### §5.3 结果和讨论

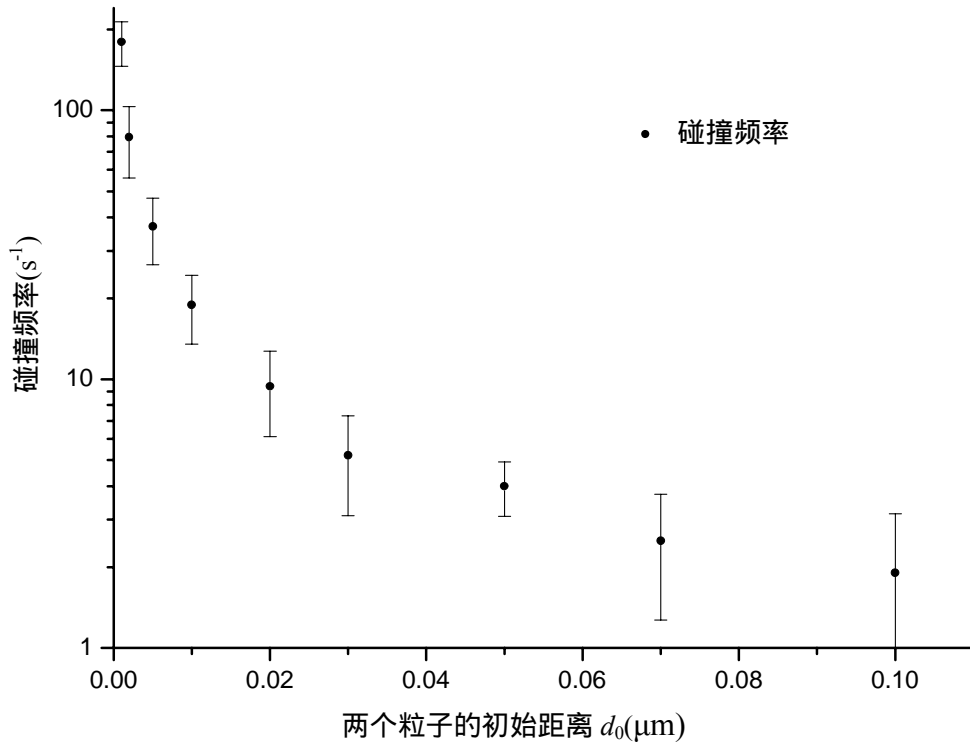


图 5.1 两个粒子的碰撞频率的模拟结果

图 5.1 为我们利用上述模型和方法对光镊中两个粒子的碰撞频率的模拟结果与它们起始距离之间的关系。从图中可以看出,当两个粒子之间的距离增大时,它们的碰撞频率迅速减小。这一结果表明粒子在紧密状态具有比在松散状态高得多的碰撞频率,这与我们在第四章中建立的理论模型一致,也为利用光镊测量体系稳定率的方法提供了依据。

通过上述模型进行的计算机模拟得到的粒子在松散状态下的碰撞频率为 1.9Hz,与文献[1]相比,这个值也更加接近于实验中得到的值,这也说明,本文所进行的改进更加接近于实验的真实情况。一个更为重要的改进是,由于把光镊看成了简谐势,引入了光镊的刚度参数,这一参数和光镊的功率有关,因而本文的模拟方法也可以用来研究光镊的功率可能产生的影响。在我们进行的模拟中,当  $K_{x,y}$  的值从  $0.1\text{pN}/\mu\text{m}$  变化到  $4\text{pN}/\mu\text{m}$  时,得到的两个粒子在松散状态下的碰撞频率基本不变,这说明在很大的范围内,光镊的功率对粒子在松散状态下的碰撞频率影响很小。

这样,我们改进了文献[1]中的计算模型,将光镊的作用势能看作简谐势,使得计算模型更加接近于真实情况,此外还考虑了光镊中两个粒子靠近时的流体动力学相互作用的影响,对粘滞阻力项进行了必要的修正,得到了碰撞频率和两个粒子之间初始距离的关系,并考察了光镊的功率对松散状态下两个粒子碰撞频率的影响。由于本章的模拟计算工作直接关系到光阱中粒子的运动学和动力学,因而该结果不仅对于第四章的研究工作有重要价值,还加深了人们对光镊中两个粒子的运动和碰撞过程的认识,有助于光镊捕获两个粒子的理论分析以及光镊捕获两个粒子这一特性在分散体系研究中的进一步应用。

## 本章参考文献

1. 孙祉伟, 朱如曾, 李银妹, 徐升华, 楼立人, “刚球粒子碰撞频率和距离关系的计算机模拟,” 物理化学学报 **19**, 1078-1080 (2003).
2. M.Capitano, G.Romano, R.Ballerini, M.Giuntini, D.Dunlap, and L.Finzi, “Calibration of optical tweezers with differential interference contrast signals,” Rev. Sci. Instrum.**73**, 1687-1696(2002).
3. M.Dijkstra, R.van Roji, and R.Evans, “Phase behavior and structure of binary hard-sphere mixtures,” Phys.Rev.Lett. **81**, 2268-2271 (1998).
4. S.H.Xu, Y.M.Li, L.R.Lou, and Z.W.Sun, “Computer simulation of the collision frequency of two particles in optical tweezers,” Chin.Phys. **14**, 382-385 (2005).
5. H.Risken, 《The Fokker-Planck Equation》 Berlin: Springer-Verlag, 1989.
6. G.K.Batchelor, “Brownian diffusion of particles with hydrodynamic interaction,” J.Fluid Mech. **74**, 1-29 (1976).
7. J.C.Crocker, “Measurement of the hydrodynamic corrections to the Brownian motion of two colloidal spheres,” J. Chem. Phys. **106**, 2837-2840 (1997).

## 第六章 分散体系中粒子的稳定人工排布

在原子尺度，扫描探针技术可以用来对原子进行操控和排布<sup>[1,2]</sup>。对纳米到微米量级的胶体粒子来说，由于它们也是许多研究领域，比如光子学、电磁学、和传感器等应用方面的一些材料的基石<sup>[3-6]</sup>，因此实现对它们的操控和排布同样具有重要的理论意义和实际应用价值。由于光镊可以实现对纳米到微米量级粒子的操控，因而人们已经尝试利用光镊的这一特性来排布粒子。例如，K.Sasaki 等人<sup>[7,8]</sup>利用扫描光镊将粒子约束在光阱扫描的轨迹上，形成了一定形状的图形；P.C.Mogensen 等<sup>[9]</sup>利用干涉效应在空间形成了一定分布的多个光阱，每个光阱捕获一个粒子也可以实现粒子的排布。然而这些方法能够排布粒子，是由于一直有光镊的力在起作用的结果，一旦光镊关闭，图形中的粒子将会由于布朗运动而最终分开，不能形成稳定的结构。

### §6.1 粒子稳定排布方法

要形成稳定的结构，除了有光镊这样合适的操控手段之外，还需要粒子之间有比较强的结合力，这样才可以保证图形中的粒子可以稳定的结合在一起。微粒的材质不同，结合力的性质可以各不相同。从第四章关于聚苯乙烯小球分散体系稳定性的研究中我们已经看到，在一定盐浓度的分散介质环境中，小球凭借它们间的作用力可以稳定地结合。这为实现粒子的稳定排布提供了良好的模型体系。利用光镊的操控功能和上述粒子间的结合力，我们首次成功的实现了把粒子排布成具有设定空间结构的稳定聚集体。从方便实际操作的角度考虑，还必须选择合适的实验条件。在第四章的研究工作中我们发现，盐浓度不同，粒子之间的结合力也不同。在盐浓度比较高的时候，不仅粒子之间容易结合，其结合的程度也比较大，但是盐浓度很高的时候，由于粒子之间很容易结合，很快就会有大量的粒子结合在一起并沉降在样品池的底面上，这对实现粒子的稳定排布将会有比较大的干扰。而盐浓度很低的时候，虽然不会有大量粒子与样品池底面结合干扰粒子的排布，但是让两个粒子稳定的结合在一起又变得困难起来。因此要实现粒子的稳定排布，就必须要选择合适盐浓度以调节粒子之间的相互作用的强度。

另外还需选择适当的粒子浓度,使粒子间随机的自发结合可以忽略,排布完全由光镊的操控决定。

在实验中,除了光镊的光源为 Nd:YVO<sub>4</sub> 的基模连续激光以外,我们所使用的光镊设备和图 4.3 类似。实验中所使用的样品为直径为  $2.013 \pm 0.025 \mu\text{m}$  的聚苯乙烯小球分散体系(Duke Scientific 公司产品)。通过实验的摸索,发现 0.5 mol/l 的 NaCl 浓度对进行排布粒子的实验非常合适,因此所进行的实验都在这个盐浓度下进行。具体的方法是利用光镊捕获和操作粒子,使它与底面或者其它粒子相接触并结合在一起,逐个操作粒子,就可以形成各种稳定的空间图形<sup>[10]</sup>。

## §6.2 粒子稳定人工排布的实现

如果利用光镊操控粒子,将它们一个一个的粘附到样品池的底面上,粒子和底面之间的作用力可以将粒子固定,从而可以形成底面上的二维的稳定的图形的排布。图 6.1 就是排布在样品池底面上的二维图像“LOT”(激光光镊的英文 Laser Optical Tweezers 的头三个字母)。

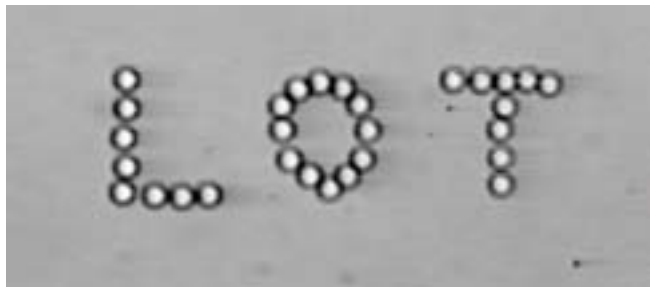


图 6.1 粒子粘附于样品池底面而形成的“LOT”字样。粒子和样品池底面的相互作用力使得该字样能够稳定存在。

事实上,二维的稳定图像也可以不粘附在样品池的底面上。图 6.2 就显示了一个由 24 个粒子组成的“ A ”的图样,这一图像的所在平面与样品池底面之间有一个角度。由于粒子与底面的距离不同,有些粒子是在显微镜的焦平面上的,而有些粒子是离焦的。因此虽然它们的大小都一样,但是在图中看到的粒子形状并不相同。事实上,在这 24 个粒子中,只有 A 的顶点是与底面粘附的,而其它的粒子仅与相邻的粒子粘附。对于距离 A 的顶点越远的粒子,其离底面的距离也越远。

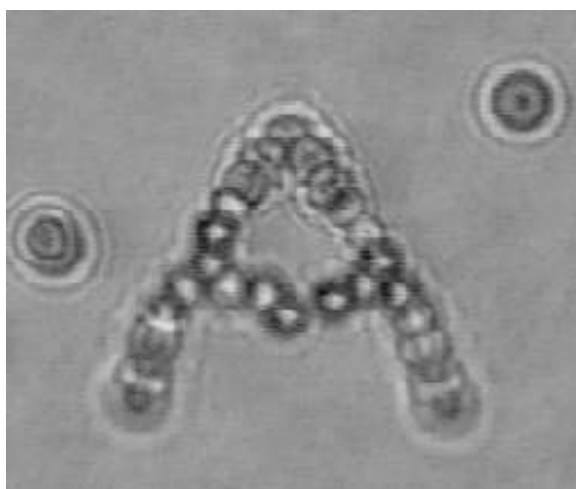


图 6.2. 24 个粒子形成的“A”字图样。其中只有“A”的顶点与样品池底面粘附，其余的粒子与相邻的粒子稳定结合。

利用上述方法还可以将粒子排布成稳定的空间三维图像。图 6.3A 就显示了利用 20 个聚苯乙烯小球形成的三维图形。其中最上面的 16 个小球形成了“X”图形，有另外的四个粒子形成了一个支撑柱，这样“X”图形大约距离样品池底面有 8 微米。图 6.3B 是该图形的侧视示意图。

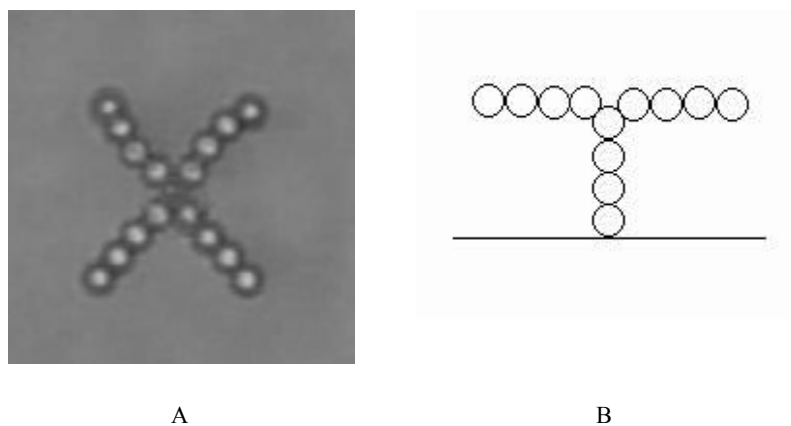


图 6.3 聚苯乙烯小球形成的三维图形

- A. 显微镜中观察到的 20 个  $2\mu\text{m}$  直径的聚苯乙烯小球形成的三维图形。（顶视图）
- B. 三维图形的侧视示意图。横线表示样品池的底面，竖直方向上的四个粒子形成了支撑“X”图形的支撑柱。

从以上三个例子可以看出，其它形式的图形也可以利用我们所使用的方法来实现稳定的排布。

### §6.3 应用前景

在本章中，我们利用光镊实现了对微米量级粒子的人工稳定排布。虽然在实验过程中，我们所使用的体系是加入了 NaCl 的聚苯乙烯分散体系这样一种模型体系，但事实上，本章提出的实验方法可以用在很多具有实际应用价值的体系中。例如一些研究人员利用胶体中粒子自组装让胶体粒子形成类似于晶体的结构，然而这种方法缺少人为的控制，而利用我们的粒子排布方法则可以通过人为的方式来减少胶体晶体结构中的缺陷，或者人为地增加一些缺陷，从而在胶体晶体的研究中发挥作用。如果将这一粒子排布的方法应用在生物细胞或者生物大分子中，也有可能对生物细胞和分子之间的作用和一些信息传导过程进行研究。



## 本章参考文献

1. 白春礼,《扫描隧道显微术及其应用》上海科学技术出版社 1992.
2. 白春礼,田芳,罗克,《扫描力显微术》科学出版社 2000.
3. J.P.Hoogenboom, D.L.J.Vossen, C.Faivre-Moskalenko, M.Dogerom, and A.van Blaaderren, "Patterning surfaces with colloidal particles using optical tweezers," *Appl.Phys.Lett.* **80**, 4828-4830 (2002).
4. Y.Lu, Y.D.Yin, and Y.N.Xia, "A self-assembly approach to the fabrication of patterned, two-dimensional arrays of microlenses of organic polymers," *Adv.Mater.* **13**, 34-37 (2001).
5. S.A.Maier, M.L.Brongersma, P.G.Kik, S.Meltzer, A.A.G.Requicha, and H.A.Atwater, "Plasmonics — a route to nanoscale optical devices," *Adv.Mater.* **13**, 1501-1505 (2001).
6. J.H.Holtz, and A.Asher, "Polymerized colloidal crystal hydrogel films as intelligent chemical sensing materials," *Nature* **389**, 829-832 (1997).
7. K.Sasaki, M.Koshioka, H.Misawa, N.Kitamura, and H.Masuhara, "Laser-scanning micromanipulation and spatial patterning of fine particles," *Jpn. J. Appl. Phys.* **30**, L907-L909 (1991).
8. K.Sasaki, M.Koshioka, H.Misawa, N.Kitamura, and H.Masuhara, "Pattern-formation and flow-control of fine particles by laser-scanning micromanipulation," *Opt.Lett.* **16**,1463-1465 (1991).
9. P.C.Mogensen, and J.Glückstad, "Dynamic array generation and pattern formation for optical tweezers," *Opt. Commu.* **175**, 75-81 (2000).
10. S.H.Xu, Y.M.Li, L.R.Lou, H.T.Chen, and Z.W.Sun, "Steady patterns of microparticles formed by optical tweezers," *Jpn.J.Appl.Phys.* **41**, 166-168 (2002).

## 第七章 利用几何光学计算光镊中两个粒子的轴向受力

单个光镊通常只用来捕获单个粒子，实际上，单个光镊也可以捕获两个或者多个的粒子。在大部分研究工作中，由于多个粒子进入光镊之后，人们很难对多个粒子进行观测和跟踪，而许多粒子在同一个光镊中时的距离很近，它们间的相互作用也会对研究粒子的性质带来影响。因此对光镊的实际应用来说，多个粒子进入光镊在大多数情况下都被视作是一种干扰，人们都尽可能让每个单光镊只捕获一个粒子。这就使得光镊捕获多个粒子的情形成了人们所没有兴趣关心的问题，因而也没有人关心光镊中两个粒子的受力情况。虽然从光镊问世以来，有很多的理论计算工作利用不同的理论模型来研究光镊对粒子的作用力，但是一直没有对光镊中两个粒子的受力情况的理论计算研究工作。

但是单光束梯度力势阱能捕获多个粒子，这一性质并不总是对研究工作的干扰，在第四章中利用光镊对分散体系的稳定性和分散相微粒碰撞聚集过程的实验研究中，我们恰恰利用了光镊具有能捕获两个粒子的这一特性<sup>[1,2]</sup>，让粒子局限在光镊的势阱中发生碰撞，并对粒子碰撞后的结合几率进行实验研究，使我们对光镊中两个粒子这一最基本的碰撞聚集体系的行为有了更深入的理解。第五章中我们也对光镊中两个粒子的碰撞频率进行了模拟计算，但是光镊在捕获两个粒子的情况下，两个粒子的受力情况是怎样的，这些问题仍然不清楚，而理论计算则是研究这一问题的最为直接的方法。

对光镊的作用力的理论计算研究中，计算模型一般有两种：几何光学模型（Ray Optics model），简称 RO 模型<sup>[3-8]</sup>；和波动光学模型，即电磁学模型（electromagnetic model），简称 EM 模型<sup>[9-18]</sup>。本章中我们将首先对这两种模型作一简要介绍。然后考虑到光镊中二个粒子是沿光束传播方向排布的，要计算它们在光场中受力的情况，几何光学模型远比 EM 模型简单易行，我们将采用几何光学模型来分析光阱中二个粒子所受的阱力。对明显比光波长大的粒子，RO 模型是很合用的近似，即使对大小接近波长的粒子计算结果也有参考价值。应用 RO 模型，由于光束作用在粒子上的力可以通过将所有光线产生的力进行积分而得到，这对于研究光镊中两个粒子的受力情况来说就比较方便，利用 RO 模型，

可以对每条光线在两个小球中的传输进行追迹,得到每条光线对两个小球的作用力,再进行积分就可以得到总的作用力。本章中的工作内容就是利用 RO 模型来计算光镊中两个粒子的轴向受力情况。

## §7.1 光镊的作用力理论

在介绍我们的工作之前,首先需要简单介绍光镊的作用力理论,以便对计算光镊中粒子受力的研究背景有一个比较完整的认识。

在第二章中我们已经简单地介绍了光镊的历史和光镊捕获粒子的原理。然而光镊的光与粒子的相互作用比较复杂,要得到光镊对粒子的作用力,还需要利用一定的模型并使用计算机进行理论计算。

### §7.1.1 几何光学模型

对于粒子半径比光的波长大很多的情况下,可以把入射光看成由许多光线组成的,而光镊对粒子的作用力可以看成所有光线的作用力的和。利用这样的模型进行的研究工作很早就已经开展。实际上,早在被称作单光束梯度力势阱的光镊出现之前,几何光学模型就已经用在一些微米大小的粒子的光捕获的分析<sup>[3]</sup>中了。当时的光捕获主要有利用两束激光来捕获粒子<sup>[19]</sup>和利用光的力学效应悬浮粒子使得其在光的力和重力静电力等外力的共同作用下被捕获<sup>[20]</sup>。在单光束梯度力势阱<sup>[21,22]</sup>出现之后,仍然有很多的关于光镊中粒子受力的理论计算工作采用这一模型<sup>[4-8]</sup>。

在 RO 模型中,一束光线入射到粒子上的折射和反射情况如图 7.1 所示,具有功率  $P$  的光线以入射角  $\theta$  入射到小球上时,将会发生部分反射和折射,折射角为  $r$ 。因此,散射光(包括反射光和球内部多次反射后的折射光)的功率分别为  $PR, PT^2, PT^2R, \dots, PT^2R^m, \dots$ 。其中  $R$  和  $T$  分别为光强的反射和透射系数;这些散射光与入射光方向的夹角分别为  $\pi+2\theta, \alpha, \alpha+\beta, \dots, \alpha+m\beta$ 。因此在入射光方向  $Z$  方向的单位时间内的动量变化可以表示为:

$$F_z = \frac{nP}{c} - \left[ \frac{nPR}{c} \cos(\pi + 2\theta) + \sum_{m=0}^{\infty} \frac{nP}{c} T^2 R^m \cos(\alpha + m\beta) \right] \quad (7.1)$$

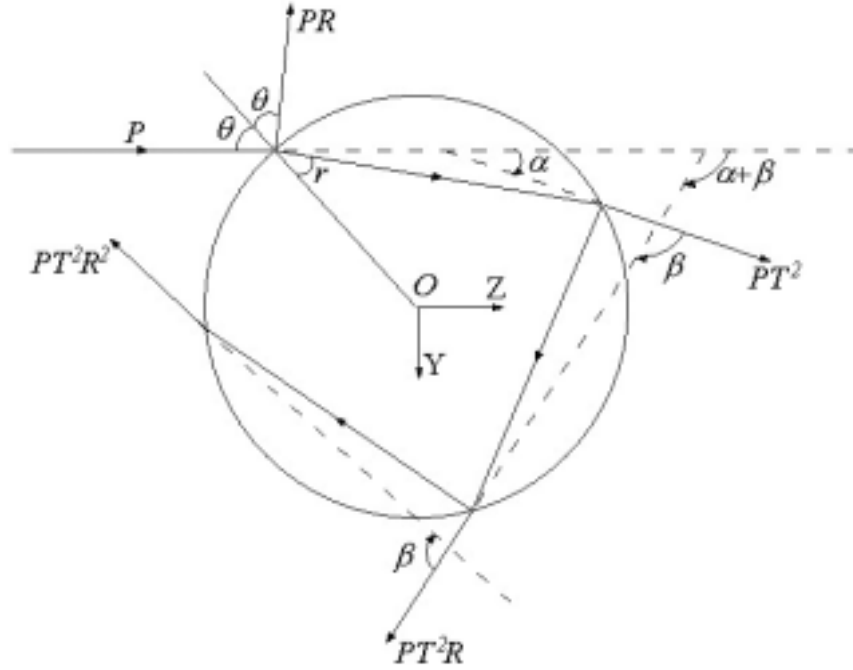


图 7.1 功率为  $P$  的入射光线入射到小球上的散射情况(参考文献 [4]), 其中反射光的功率为  $PR$ , 多次折射的光线功率为  $PT^2R^m$ 。

利用公式变换：

$$\begin{aligned}
 2R \cos \beta \sum_{m=0}^{\infty} R^m \cos(\alpha + m\beta) &= \sum_{m=0}^{\infty} R^{m+1} [\cos(\alpha + m\beta + \beta) + \cos(\alpha + m\beta - \beta)] \\
 &= \sum_{m=1}^{\infty} R^m \cos(\alpha + m\beta) + \sum_{m=0}^{\infty} R^{m+2} \cos(\alpha + m\beta) + R \cos(\alpha - \beta)
 \end{aligned} \tag{7.2}$$

可以得到

$$\begin{aligned}
 (1 + R^2 - 2R \cos \beta) \sum_{m=0}^{\infty} R^m \cos(\alpha + m\beta) \\
 &= \sum_{m=0}^{\infty} R^m \cos(\alpha + m\beta) + \sum_{m=0}^{\infty} R^{m+2} \cos(\alpha + m\beta) \\
 &\quad - \left[ \sum_{m=1}^{\infty} R^m \cos(\alpha + m\beta) + \sum_{m=0}^{\infty} R^{m+2} \cos(\alpha + m\beta) + R \cos(\alpha - \beta) \right] \\
 &= \cos \alpha - R \cos(\alpha - \beta)
 \end{aligned} \tag{7.3}$$

这样  $Z$  方向的受力可以写成：

$$F_z = \frac{nP}{c} \left[ 1 + \cos(2\theta) - \frac{T^2 [\cos \alpha - R \cos(\alpha - \beta)]}{1 + R^2 - 2R \cos \beta} \right] \tag{7.4}$$

由几何关系可以得到  $\alpha = 2\theta - 2r$ ,  $\beta = \pi - 2r$ 。

因而有：

$$F_z = \frac{nP}{c} \left[ 1 + \cos(2\theta) - \frac{T^2 [\cos(2\theta - 2r) + R \cos 2\theta]}{1 + R^2 + 2R \cos 2r} \right] \quad (7.5)$$

这部分受力和光线传播方向相同，一般叫做散射力，同理可以得到 Y 方向的受力为

$$F_y = \frac{nP}{c} \left[ R \sin(2\theta) - \frac{T^2 [\sin(2\theta - 2r) + R \sin 2\theta]}{1 + R^2 + 2R \cos 2r} \right] \quad (7.6)$$

这部分受力和光线传播方向垂直，一般叫做梯度力。

这样，单条光线入射到小球上对小球的作用力可以用上述的解析表达式来计算，而整个光束对小球的作用力可以通过计算每条光线对小球的作用力再求积分而得到。本章中主要的工作就是利用几何光学对一些与光镊在分散体系等研究领域的应用相关的粒子的受力计算，上述公式将会在本章的工作中用到。

### §7.1.2 波动光学模型

虽然几何光学的方法比较直接和简单，但是对于粒子与光波长差不多或者粒子远小于波长的情况下，利用几何光学来计算将会有比较大的误差，在这种情况下，可以利用波动光学理论<sup>[9-18]</sup>来进行计算。

在波动光学理论中，光束具有一定的电磁场分布，由于电磁场对带电粒子的作用力为  $\mathbf{f} = q(\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B})$ ，可以得到对一个具有偶极矩密度为  $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$  的体积元的电磁场作用力为<sup>[12, 13]</sup>：

$$\mathbf{f}(\mathbf{r}, t) = (\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) \cdot \nabla) \mathbf{E}_m(\mathbf{r}, t) + \frac{\partial \mathbf{P}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} \times \mathbf{B}_m(\mathbf{r}, t) \quad (7.7)$$

其中  $\mathbf{E}_m$  和  $\mathbf{B}_m$  为介质中的电场和磁场强度。偶极矩密度由  $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_m \alpha \mathbf{E}_m(\mathbf{r}, t)$  给出，其中  $\alpha$  为极化率，介质的介电常数为  $\varepsilon_m = n_m^2 \varepsilon_0$ 。利用恒等式  $(\mathbf{E} \cdot \nabla) \mathbf{E} = \nabla(\mathbf{E}^2/2) - \mathbf{E} \times (\nabla \times \mathbf{E})$  和麦克斯韦方程  $\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}$ ，可以将上式变为<sup>[12, 13]</sup>：

$$\mathbf{f}(\mathbf{r}, t) = \alpha \varepsilon_m \nabla(|\mathbf{E}_m(\mathbf{r}, t)|^2/2) + \alpha \varepsilon_m \frac{\partial}{\partial t} [\mathbf{E}_m(\mathbf{r}, t) \times \mathbf{B}_m(\mathbf{r}, t)] \quad (7.8)$$

玻印廷矢量  $\mathbf{S}(\mathbf{r}, t) = n_m \varepsilon_0 c^2 [\mathbf{E}_m(\mathbf{r}, t) \times \mathbf{B}_m(\mathbf{r}, t)]$  光传播方向的能量传播，它的

模的时间平均就是光强  $I(r)$  :

$$\begin{aligned} I(r) &= \langle |S(r, t)| \rangle_T = n_m \varepsilon_0 c^2 / 2 |\mathbf{E}_m(\mathbf{r}) \times \mathbf{B}_m(\mathbf{r})| \\ &= n_m \varepsilon_0 c / 2 |\mathbf{E}_m(\mathbf{r})|^2 \end{aligned} \quad (7.9)$$

动量密度  $\mathbf{m}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{S}(\mathbf{r}, t) / c^2 = n_m \varepsilon_0 [\mathbf{E}_m(\mathbf{r}, t) \times \mathbf{B}_m(\mathbf{r}, t)]$  , 将公式 (7.8) 中的第二项可以写成正比于  $\frac{\partial \mathbf{m}}{\partial t}$  的式子, 按照 Gordon 的文章<sup>[23]</sup>, 动量密度的变化可以看成两个过程之间的不同:

$$\Delta \mathbf{m}(\mathbf{r}) = \left[ \langle \mathbf{m}(\mathbf{r}, t_{after}) \rangle_T - \langle \mathbf{m}(\mathbf{r}, t_{before}) \rangle_T \right] \quad (7.10)$$

时间的下标表示散射出现之前和之后的过程。这样, 对公式 (7.8) 的两边作时间平均可以得到

$$\mathbf{f}(\mathbf{r}) = \frac{\alpha n_m}{2c} \nabla(I_m(\mathbf{r})) + \alpha n_m \frac{\Delta m(\mathbf{r})}{\Delta t} = \mathbf{f}_{grad}(\mathbf{r}) + \mathbf{f}_{sca}(\mathbf{r}) \quad (7.11)$$

其中第一项与光强的梯度有关, 称为梯度力, 而第二项表示的是由于散射引起的动量传递, 称为散射力。整个粒子的受力则可以对所有的小体积元的受力做积分而得到:

$$\mathbf{F}(\mathbf{r}) = \iiint_V \mathbf{f}(\mathbf{r}') dV' \quad (7.12)$$

一般情况下, 为了计算受力, 首先还要求解整个电磁场, 这项工作是比较复杂的。但是如果微粒的半径与波长相比很小 ( $a \sim \lambda/20$ ), 则可近似认为是瑞利粒子。在瑞利近似条件下, 电介质小球就可以看作是简单的感应偶极子。光束作用在小球上的辐射力就可以简单的表示出。散射力可表示为<sup>[9,10]</sup>

$$\mathbf{F}_{scat} = \frac{n_2}{c} C_{pr} I(\mathbf{r}) \quad (7.13)$$

其中,  $C_{pr}$  是辐射压力横截面, 在瑞利近似下<sup>[9]</sup>

$$C_{pr} = C_{scat} = \frac{8}{3} \pi (ka)^4 a^2 \left( \frac{n_{12}^2 - 1}{n_{12}^2 + 2} \right)^2 \quad (7.14)$$

这里,  $C_{scat}$  是散射截面,  $a$  是瑞利粒子半径,  $k$  是传播介质中的波数,  $n_{12}$  则是微粒相对于介质的折射率。

在瞬时场  $\mathbf{E}(\mathbf{r})$  作用下, 偶极子极化强度:

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = 4\pi n_2^2 \varepsilon_0 a^3 \left( \frac{n_{12}^2 - 1}{n_{12}^2 + 2} \right) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \quad (7.15)$$

瞬时梯度力

$$\mathbf{F}_{grad}(\mathbf{r}, t) = [\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) \cdot \nabla] \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \quad (7.16)$$

这样，梯度力

$$\mathbf{F}_{grad} = \langle \mathbf{F}_{grad}(\mathbf{r}, t) \rangle = \pi n_2^2 \varepsilon_0 a^3 \left( \frac{n_{12}^2 - 1}{n_{12}^2 + 2} \right) \nabla |\mathbf{E}(\mathbf{r})|^2 \quad (7.17)$$

如果粒子不能近似看成瑞利粒子，那么对光的散射场的计算，一般需要用到一些数值计算方法<sup>[24, 25]</sup>。目前，计算散射的理论方法有时域有限差分法<sup>[26]</sup>（FDTD）、有限元法<sup>[27, 28]</sup>（FEM）、T矩阵法<sup>[24, 25]</sup>等。

## §7.2 利用几何光学计算两个粒子的轴向受力

对于计算光镊中两个粒子的受力情况，考虑到两个粒子在光镊中的分布是沿着光传播的方向，因此本章中，我们只研究光镊中两个粒子的轴向受力情况。在两个粒子沿着光传播方向分布的情况下，光束要先通过第一个粒子（由于光传播方向向上，因此这个粒子在空间上是下面的粒子）之后才能进入第二个粒子（在空间上是上面的粒子），利用波动光学理论计算将比较复杂，因此本章中我们采用的是几何光学模型，利用这一模型可以对每条光线进行追迹，因而可以比较方便地计算光镊中两个粒子的受力情况。此外，通过光线追迹的办法还可以自然的考虑在使用油浸物镜情况下由于油的折射率和小球所处的水溶液的折射率不匹配所引起的球差效应<sup>[8]</sup>。

### §7.2.1 第一个粒子的轴向力计算

在 RO 模型中，光镊的力和激光的功率之间的关系可以表示为  $F = QnP/c$ ，其中  $n$  为粒子周围介质的折射率， $P$  为激光的功率， $c$  是真空中光速。 $Q$  是一个无量纲的量，一般称为光镊的捕获效率。

如同前面提到的那样，单条以入射角  $\theta$  入射到小球上的光线，经过小球的折射和反射之后，对小球的作用效率可以分为两个部分，一部分是与入射光平行的散射力，一部分是入射光方向垂直的，称为梯度力。结合公式  $F = QnP/c$  和公式 (7.5) 和 (7.6)，可以得到散射力效率  $Q_s$  和梯度力效率  $Q_g$  的大小与入射角  $\theta$

的关系为：

$$Q_s = 1 + R \cos(2\theta) - \frac{T^2[\cos(2\theta - 2r) + R \cos(2\theta)]}{1 + R^2 + 2R \cos(2r)} \quad (7.18)$$

$$Q_g = R \sin(2\theta) - \frac{T^2[\cos(2\theta - 2r) + R \sin(2\theta)]}{1 + R^2 + 2R \cos(2r)} \quad (7.19)$$

其中  $\theta$  为入射角， $r$  是折射角， $R$  和  $T$  分别为反射和透射的菲涅尔系数。图 7.1 就显示了单条光线入射到均匀折射率介质中的小球上之后的光线传播过程以及散射力梯度力的方向等。

虽然这两个式子中有四个参数，但是这些参数都是由  $\theta$  决定的，其中  $r$  和  $\theta$  的关系由折射率公式  $n \sin \theta = n_{bead} \sin r$  相联系，其中  $n_{bead}$  为小球的折射率。而  $R$  和  $T$  都只与  $\theta$  和  $r$  有关，对  $s$  偏振和  $p$  偏振的入射光来说， $R$  和  $T$  分别可以表示为<sup>[29, 30]</sup>：

$$\left. \begin{aligned} R_p &= \frac{\tan^2(\theta - r)}{\tan^2(\theta + r)} \\ R_s &= \frac{\sin^2(\theta - r)}{\sin^2(\theta + r)} \\ T_p &= \frac{\sin 2\theta \sin 2r}{\sin^2(\theta + r) \cos^2(\theta - r)} \\ T_s &= \frac{\sin 2\theta \sin 2r}{\sin^2(\theta + r)} \end{aligned} \right\} \quad (7.20)$$

这样，在同样的入射角下，如果偏振方向不同， $R$  和  $T$  也不同，这样  $Q_s$ ， $Q_g$  的结果也不同。对于某一条入射光线来说，为了得到最终的  $Q_s$  和  $Q_g$ ，需要对不同的偏振情况分别处理。在文献[5]中，对每条光线都将  $s$  偏振和  $p$  偏振方向进行平均，最后得到平均的  $R$  和  $T$  的值，再代入公式 (7.18) 和 (7.19) 中得到  $Q_s$  和  $Q_g$  的值，而文献[4]则是将入射光线分解成  $s$  光和  $p$  光后分别计算出这两个不同偏振情况下的  $Q_s$  和  $Q_g$  的值，然后再将两个偏振方向的值分别相加得到最终的  $Q_s$  和  $Q_g$  的值。事实上，前一种方法对计算受力并不是太合适。考虑公式 (7.18) 和 (7.19) 是从公式 (7.5) 和 (7.6) 得到的，而从 7.6.1 节中这两个公式的推导过程来看，实际上有一个前提是多次入射和反射的  $R$  和  $T$  是不变的，如同图 7.1 中所示，这样多次折射后的光线功率才可以表示为  $PT^2R^m$ ，从而可以得到散射力和梯度力的解析表达式 (7.5) 和 (7.6)。这样，如果入射光不是线偏振的  $s$



光或者  $p$  光，每次在界面上反射和折射后光线的偏振情况都会发生一定的变化，在这种情况下，如果按照文献[5]中的处理方法，对入射光的  $s$  偏振和  $p$  偏振的反射率和透射率取平均得到平均的  $R$  和  $T$  的话，那么在界面上发生下一次反射和折射时候的，由于光线的总的偏振状态和入射光相比已经发生了改变，因而此时平均的  $R$  和  $T$  就和入射光的平均  $R$  和  $T$  不再相同，这不符合推导公式 (7.5) 和 (7.6) 的前提，因而也就不能用公式 (7.18) 和 (7.19) 来计算  $Q_s$  和  $Q_g$  的值。因而，在我们的计算工作中，采取的是文献[4]中的处理方式，先将入射光分解成  $s$  光和  $p$  光，分别求出  $s$  光和  $p$  光的  $Q_s$  和  $Q_g$ ，然后再求和。

在常用的光镊中，一般都是用大的数值孔径的物镜，这样的物镜一般都是油浸的，这样在光线在进入样品池中的水（或其它溶液）溶液之前，都要先通过折射率匹配油和玻璃。如同文献[8]中对这一情况的处理那样，如果认为油和玻璃有相同的折射率  $n_g$ ，而水的折射率为  $n_w$ ，由于水的折射率比油的折射率要小，这种折射率的不同将会导致球差的产生。在计算使用的模型是 RO 模型的情况下，由于对每条光线都需要进行追迹，因而也可以直接将这种球差的影响考虑进去。

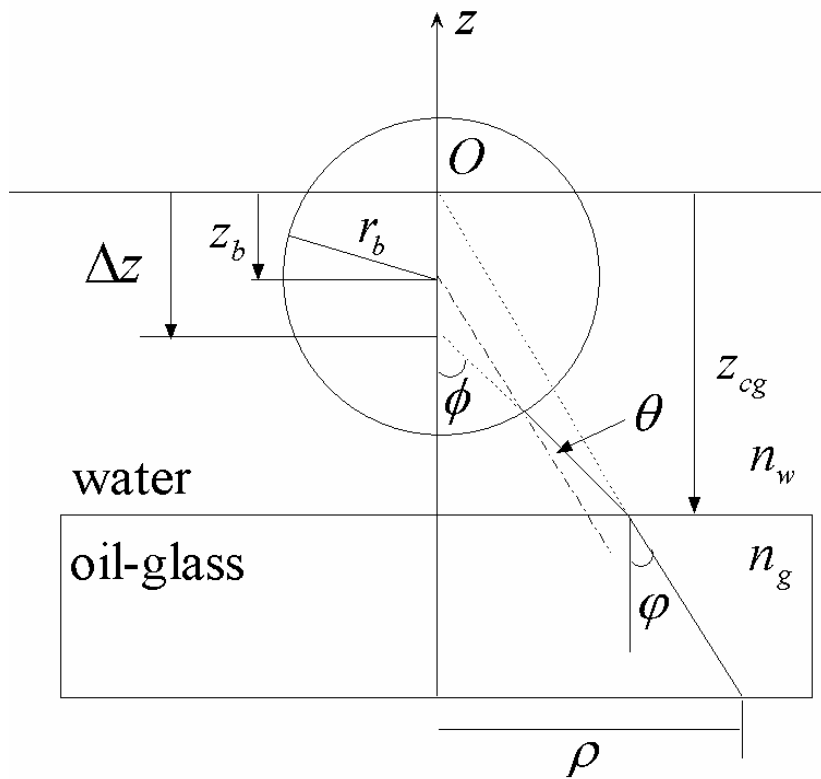


图 7.2 光线通过油和玻璃层进入溶液中并入射到小球上的示意图（参考文献[8]），图中标记的参数在计算过程中需要用到，并在文中给出了其意义。

为了对光镊中两个粒子的受力情况进行研究，我们先从简单的情况入手，只考虑光镊捕获一个粒子的情况，这种情况下，光线从油—玻璃层进入水中并入射到粒子上，这一情形可以用图 7.2 来描述。在图中， $z$  方向是光线传播的方向，它与水和玻璃的界面是垂直的。粒子的半径为  $r_b$ ，光线与光轴在一个平面上，它以  $\phi$  的入射角入射到玻璃和水的界面，在水中的折射角为  $\theta$ ，光线从物镜的出光孔出射的位置距离光轴（也即出光孔中心）的距离为  $\rho$ 。如果光线传播的介质的折射率是均一的  $n_g$ ，那么此时不存在球差，所有的光线都会会聚到一个理想的焦点  $O$  上，这个点在图 7.2 中作为整个坐标系的原点。水和玻璃的界面与原点  $O$  的距离为  $z_{cg}$ 。在油和玻璃介质中的入射光线经过玻璃和水的界面折射后的光线在没有小球存在的情况下会入射到  $z$  轴上，它和  $z$  轴的交点与原点  $O$  的距离设为  $\Delta z$ 。粒子中心和原点  $O$  的距离为  $z_b$ 。这些参数都在图 7.2 中标出。

这样，我们就可以对入射的光线进行分析得到光线的入射角。利用图中的几何关系，用正弦定理可以得到  $\frac{\sin(\theta)}{z_b - \Delta z} = \frac{\sin(\phi)}{r_b}$ ，因而有

$$\sin(\theta) = \frac{z_b - \Delta z}{r_b} \sin(\phi) \quad (7.21)$$

再由图 7.2 中的几何关系可以得到

$$\frac{z_{cg} - \Delta z}{z_{cg}} = \frac{\text{ctg } \phi}{\text{ctg } \theta} = \frac{\sin \phi \cos \theta}{\cos \phi \sin \theta} \quad (7.22)$$

由折射率公式可以得到：

$$\frac{\sin \theta}{\sin \phi} = \frac{n_w}{n_g} \quad (7.23)$$

引入油浸物镜的数值孔径  $NA = n_g \sin \phi_{\max}$ ，其中  $\phi_{\max}$  为最大孔径角，从而有  $\sin \phi_{\max} = \frac{NA}{n_g}$ 。对于数值孔径比较大的油浸物镜，一般认为物镜的出射光是

球面波前，物镜符合正弦条件（sine condition）<sup>[7,8]</sup>。此时有  $\sin \phi = \frac{\rho}{\rho_p} \sin \phi_{\max}$ ，

其中  $\rho_p$  为物镜出光孔的半径， $\rho$  为考虑的单条光线从物镜出射时与  $z$  轴的距离。

如果再引入相对参数  $\eta = \frac{\rho}{\rho_p}$ ，就可以得到  $\sin \phi = \eta \frac{NA}{n_g}$ ，再利用公式 (7.23)，

又可以得到  $\sin \phi = \eta \frac{NA}{n_w}$ 。公式 (7.22) 变为：

$$\frac{z_{cg} - \Delta z}{z_{cg}} = \frac{\sin \phi \cos \phi}{\sin \phi \cos \phi} = \frac{\sin \phi}{\sin \phi} \left( \frac{1 - \sin^2 \phi}{1 - \sin^2 \phi} \right)^{\frac{1}{2}} = \frac{n_w}{n_g} \left[ \frac{1 - \eta^2 \left( \frac{NA}{n_w} \right)^2}{1 - \eta^2 \left( \frac{NA}{n_g} \right)^2} \right]^{1/2} \quad (7.24)$$

这样， $\Delta z$  可以写为<sup>[8]</sup>：

$$\Delta z = z_{cg} \left\{ 1 - \frac{n_w}{n_g} \left[ \frac{1 - \eta^2 \left( \frac{NA}{n_w} \right)^2}{1 - \eta^2 \left( \frac{NA}{n_g} \right)^2} \right]^{1/2} \right\} \quad (7.25)$$

这样，利用  $\sin \phi = \eta \frac{NA}{n_w}$  和公式 (7.25) 给出的  $\Delta z$  的表达式，就可以带入

到公式 (7.21) 中得到入射角  $\theta$  的值。利用公式 (7.18) 和 (7.19) 就可以计算得到光镊中的粒子受力情况。

但是在计算过程中，除了入射角之外，还需要知道光束的光强分布，以便能够得到每一条光线对小球的作用力在整个光束中的贡献。激光束的在物镜出光孔处的光强分布可以看成是一个被物镜的出光孔截断的高斯分布，它可以用下式表示<sup>[8]</sup>：

$$I(\rho) = \begin{cases} I_0 \exp(-2\rho^2 / \omega_0^2) & \rho \leq \rho_p \\ 0 & \rho > \rho_p \end{cases} \quad (7.26)$$

其中  $I_0$  是光束中心的光强， $\omega_0$  是物镜出光孔处的束腰半径。这样可以利用上述的分析，在考虑玻璃和水的折射率不同引起的球差的情形下，对光镊中的粒子的受力情况进行计算。在后面的计算过程中，我们设定  $\omega_0$  的值与  $\rho_p$  相等，这对一般情况下的光镊是适用的，也被文献[8]所采用。

由于计算方法和文献[8]中所使用的方法类似，因此对于第一个粒子来说，计算得到的受力情况与文献[8]中给出的光镊捕获一个粒子的情况下的结果相

同,对于本章中所考虑的问题,我们着重感兴趣的是光镊中第二个粒子在轴向的受力情况。然而,以上的分析实际上只涉及到一个粒子,在光镊捕获两个粒子的情况下,有些进入第二个粒子的光线是从第一个粒子透射的光线。因此对于第二个粒子来说,需要作进一步分析。

### §7.2.2 第二个粒子的轴向力计算

对于入射的光线来说,有的光线不经过第一个小球而直接打在第二个小球上,这些光线对第二个小球的作用力的处理方法可以和上面分析的完全类似。还有些光线两个小球都不经过,这些光线对粒子的受力没有任何贡献。比较复杂的情况就是有些光线通过第一个小球后,有部分透射的光线会进入第二个小球从而对第二个小球产生力的作用。为了搞清楚这些光线入射到第二个小球上的情况,就必须要先对光线入射到第一个小球后的透射的光线的一些参数进行分析。

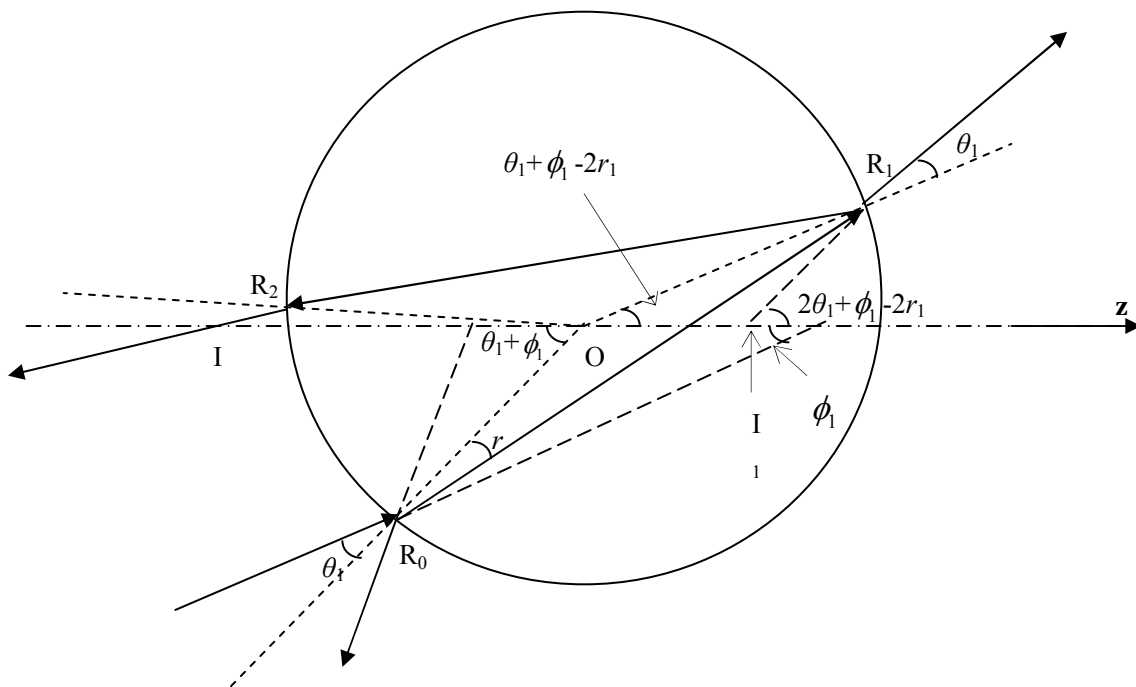


图 7.3 光线通过第一个小球的示意图,其中的出射光线可能会进入第二个小球,因此要计算这些出射光线的几何参数。一些相应的角度的大小已经在图中标记出来了。

光线进入第一个小球后折射和反射的情况如图 7.3 所示。入射光在小球表面的  $R_0$  点发生反射和折射,而在小球内部反射后的光线再从小球表面的  $R_1$ 、 $R_2$ 、...处再折射出小球。这些折射出的光线的延长线与  $z$  轴的交点分别为  $I_1$ 、 $I_2$ 、...

在图 7.3 中,  $O$  为小球的球心位置。一些相关的角度参数也直接在图 7.3 中标出, 其中入射角为  $\theta_1$ , 折射角为  $r_1$ , 入射光线与  $z$  轴的夹角为  $\phi_1$ , 其它的相关角度大小都可以用这些角来表示。

按照公式 (7.21), 只要知道入射到第二个小球上的光线与  $z$  轴的夹角  $\phi_2$  和  $z_b - \Delta z$  的值就可以得到入射到第二个小球上的光线的入射角, 而  $z_b - \Delta z$  的值从图 7.3 中来看就是入射到第二个小球上的光线的延长线与  $z$  轴的交点  $I_1$ 、 $I_2$ 、... 相对于第二个小球中心的位移量, 它等于  $I_1$ 、 $I_2$ 、... 相对于第一个小球的中心  $O$  的位移量再加上两个小球中心的距离。因此我们只需要通过入射到第一个小球上的光线的各参数来得到从第一个小球出射的各条光线与  $z$  轴的夹角, 以及这些光线的延长线与  $z$  轴的交点  $I_1$ 、 $I_2$ 、... 相对于第一个小球的中心  $O$  的位移量就可以了。

首先, 我们来考虑从第一个小球出射的光线与  $z$  轴的夹角, 其中有些角度的值已经在图 7.3 中标记出来了, 这些角度可以通过如下分析得到:

利用几何关系可以得到, 角度  $R_1OR_0$  的值为  $\pi - 2r_1$ , 因此角度  $R_1Oz$  为  $\theta_1 + \phi_1 - 2r_1$ , 角度  $OI_1R_1$  为  $\pi - (2\theta_1 + \phi_1 - 2r_1)$ , 因此  $I_1R_1$  这条出射的光线与  $z$  轴的夹角为  $2\theta_1 + \phi_1 - 2r_1$ 。

同样, 角度  $R_1OR_2$  也为  $\pi - 2r_1$ , 角度  $R_2O-z$  为  $\pi - (\theta_1 + \phi_1 - 2r_1 + (\pi - 2r_1))$ , 这样, 可以得到角度  $R_2I_2O$  为  $2\theta_1 + \phi_1 - 2r_1 - 2r_1$ , 因此  $R_2I_2$  这条光线与  $z$  轴的夹角为  $2\theta_1 + \phi_1 - 2r_1 - 2r_1 + \pi$ , 由于角度可以变化  $2\pi$ , 因此它还可以写成  $2\theta_1 + \phi_1 - 2r_1 - (\pi + 2r_1)$ 。

依次类推, 可以得到从  $R_{m+1}$  相出射的光线与  $z$  轴的夹角为  $2\theta_1 + \phi_1 - 2r_1 - m(\pi + 2r_1)$ 。

除了这些透射光线之外, 在  $R_0$  处还有一条反射光线, 它也有可能入射到第二个小球上, 用同样的分析可以得到它与  $z$  轴的夹角为  $\pi + \phi_1 + 2\theta_1$ 。

让我们再来考虑每条光线的延长线与  $z$  轴的交点  $I_1$ 、 $I_2$ 、... 相对于第一个小球的中心  $O$  的位移量:

在三角形  $OR_1I_1$  中, 角度  $OR_1I_1$  的值为  $\theta_1$ , 角度  $OI_1R_1$  为  $\pi - (2\theta_1 + \phi_1 - 2r_1)$ ,

由正弦定理可以得到  $OI_1$  的值为  $r_b \sin(\theta_1) / \sin(2\theta_1 + \phi_1 - 2r_1)$ 。

同样,在三角形  $OR_2I_2$  中,角度  $OR_2I_2$  为  $\pi - \theta_1$ ,角度  $R_2I_2O$  为  $2\theta_1 + \phi_1 - 2r_1 - 2r_1$ 。这样  $OI_2$  的值为  $r_b \sin(\pi - \theta_1) / \sin(2\theta_1 + \phi_1 - 2r_1 - 2r_1)$ ,考虑到  $I_2$  在  $z$  轴上位于  $O$  点下方,因此  $I_2$  的位置为  $r_b \sin(\theta_1) / \sin(2\theta_1 + \phi_1 - 2r_1 - (\pi + 2r_1))$ 。

依次类推,可以得到  $I_{m+1}$  相对于球心  $O$  的位移量为  $r_b \sin(\theta_1) / \sin(2\theta_1 + \phi_1 - 2r_1 - m(\pi + 2r_1))$ 。

同样,我们还需要考虑在  $R_0$  处的那条反射光线,它的延长线与  $z$  轴的交点位置相对于球心  $O$  的位移量为  $r_b \sin(\theta_1) / \sin(\pi + \phi_1 + 2\theta_1)$ 。

除了上述参数之外,在计算过程中还需要用到光强的参数。各出射的光强和入射光光强之间的关系比较容易得到,它和图 7.1 中的情况一样,如果入射到第一个小球上的光的光强为  $p$ ,那么在球的内部发生  $m$  次反射后再折射出小球的光线的光强为  $pT^2R^m$ 。在  $R_0$  处反射的光线的光强为  $pR$ 。

这样,我们得到了入射到第一个小球上的光线经过反射和折射后进入第二个小球的光线的强度和几何参数,利用几何参数,就可以利用公式(7.21)得到入射到第二个小球上的光线的入射角,并利用公式(7.18)和(7.19)得到这些光线对第二个小球的作用力<sup>[31]</sup>。

前面已经提到,第一个小球的受力情况与文献[8]中的相同。而对于第二个小球的受力情况,可以通过计算没有通过第一个小球而直接进入第二个小球的光线的作用力,和通过第一个小球折射反射后的光线进入到第二个小球的光线的作用力,并求矢量和,最后再对所有光线的作用力作积分而得到。由于本研究工作只考虑轴向的捕获力,因此  $Q_s$  和  $Q_g$  对整个受力的贡献为分别为  $Q_s \cos(\phi)$  和  $-Q_g \sin(\phi)$ 。

事实上,经过第一个粒子的光线经过第一个小球折射反射后的出射光线是有无穷多的,而有的光线会进入第二个小球,有些光线却不能进入第二个小球,因此无法像第 7.1.1 节中那样得到这些无穷多光线对第二个小球的作用力的解析表达式。只能通过计算机对这些光线进行求和得到,然而我们不可能对无穷多的光线都进行求和,因此在我们的计算中,对  $T^2R^m < 0.01$  的光线,我们都不对它

进行计算。也就是说，当  $T^2 R^m < 0.01$  的时候，出射光线的光强相对于入射光强已经很小，因而我们将这些光线对第二个小球的作用力的贡献在计算中忽略掉。

## §7.3 计算结果

### §7.3.1 光镊中两个小球的状态

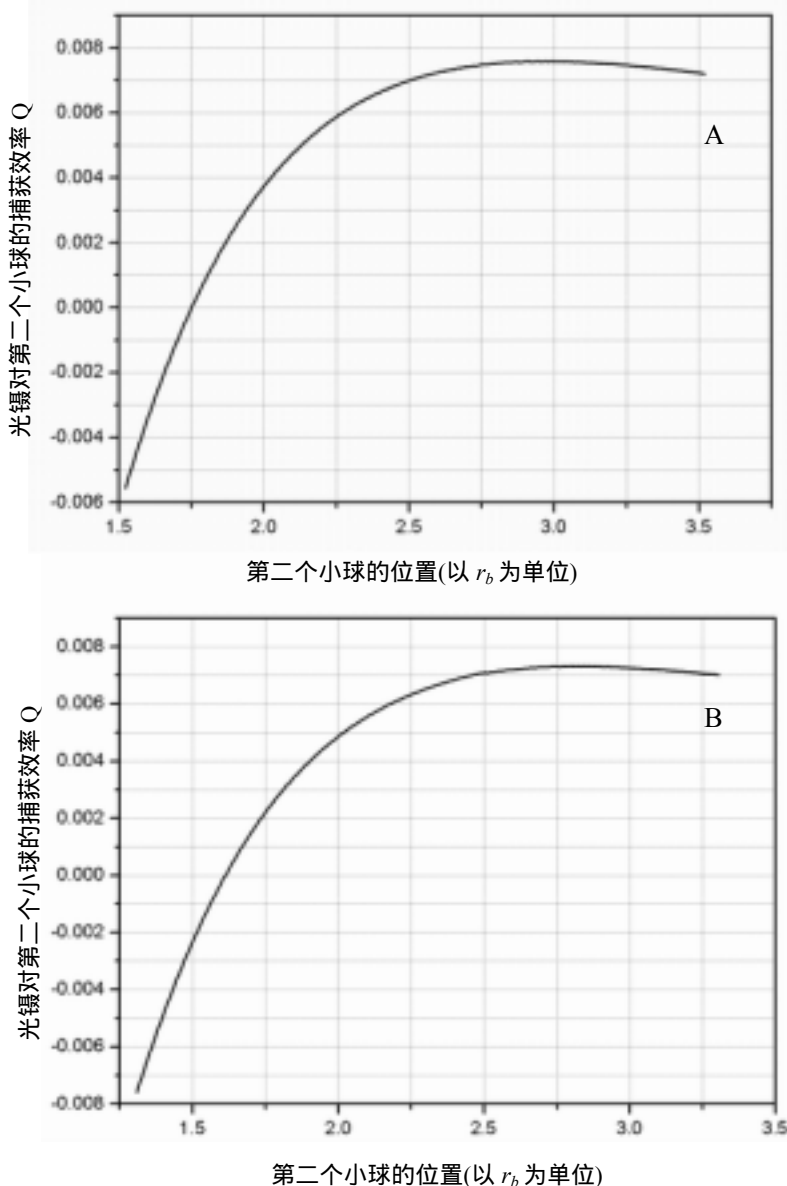


图 7.4 第一个小球处于平衡位置时，光镊对第二个小球的捕获效率曲线，其中曲线的最左端为第二个小球与在平衡位置的第一个小球相接触的情况。A.  $z_{cg} = -3r_b$  B.  $z_{cg} = -4r_b$

率我们设置为 1.55，水的折射率为 1.33，物镜匹配油的折射率为 1.516。物镜的

考虑光镊中的两个小球为刚球，它们之间不存在其它的相互作用，这样，在光线传播的轴向上，两个小球可能有两个不同的状态。一种情况是光线通过第一个小球后又形成一个光镊，使得当两个小球处于光镊中两个不同的平衡位置时，它们是分开的。另一种情况就是两个小球在光镊中是挤在一起，也就是说，它们被稳定捕获在一个共同的平衡位置。通过计算可以得到到底哪一种状态是真实情况下的状态。

在计算过程中，光镊系统的一些参数我们都设置为常用的参数。小球颗粒的折射

数值孔径  $NA$  为 1.25。

先假定光镊中两个粒子有分离的平衡位置,按照第 7.2.1 节中的分析和模拟方法,以图 7.2 中的  $O$  点为原点,可以先计算得到第一个小球的平衡位置。然后再利用第 7.2.2 节中的分析和图 7.3 得到光线经过在平衡位置的第一个小球之后对第二个小球的作用力曲线。

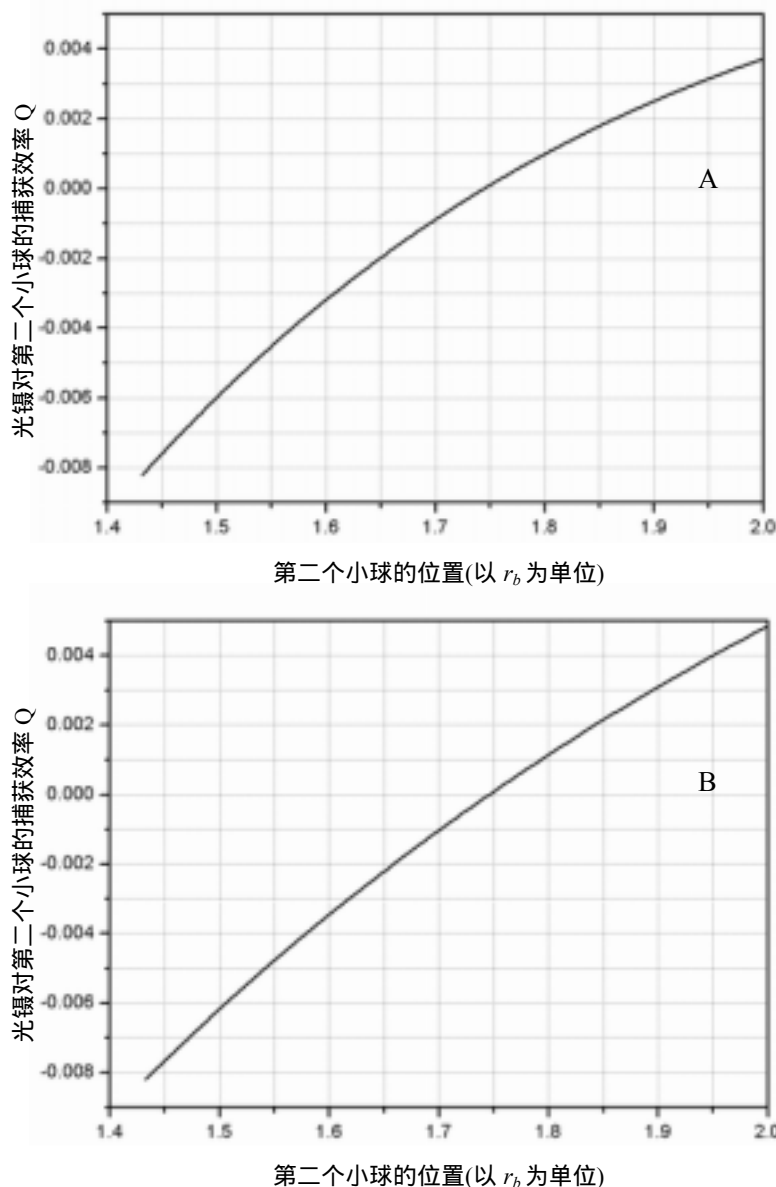


图 7.5 参数  $z_{cg} = -3r_b$  时,光镊对第二个小球的捕获效率曲线,其中曲线的最左端为第二个小球在两个小球共同的平衡位置上的情况。

- A. 第一个粒子在共同的平衡位置上不动的情形  
B. 第一个粒子一直紧贴着第二个粒子运动的情形

图 7.4 显示了这一假定下第二个粒子在不同位置下的受力情况。在图 7.4A 和 7.4B 中,参数  $z_{cg}$  的值分别为  $-3r_b$  和  $-4r_b$ ,其中  $r_b$  为小球的半径。计算得到的第一个粒子的平衡位置为  $-0.480r_b$  和  $-0.694r_b$ 。两幅图中曲线的最左端表示此时第二个小球已经和在平衡位置的第一个小球相接触,也即曲线最左端处第二个小球的中心位置分别为  $1.520r_b(-0.480r_b+2r_b)$  和  $1.306r_b(-0.694r_b+2r_b)$ 。从这两条曲线可以看出,第二个粒子受力为 0 的点不是一个稳定的平衡点。而且当第二个小球在接近处于平衡位置的第一个小球时,



光镊对它的作用力是负的，表明光镊的力是向下的，因此，它将会将第二个粒子拉向第一个粒子，并将挤压第一个粒子使其偏离平衡位置。因此两个刚性的粒子在光镊中有两个分离的平衡位置这一假设是不合适的。从图 7.4 中可以看到，当第二个粒子的位置分别低于  $1.750r_b$  和  $1.611r_b$  (也即不稳定平衡点，相应的两个小球之间的距离分别为  $2.230r_b$  和  $2.305r_b$ ) 时，光镊将会将它吸入并使其与第一个粒子接触。

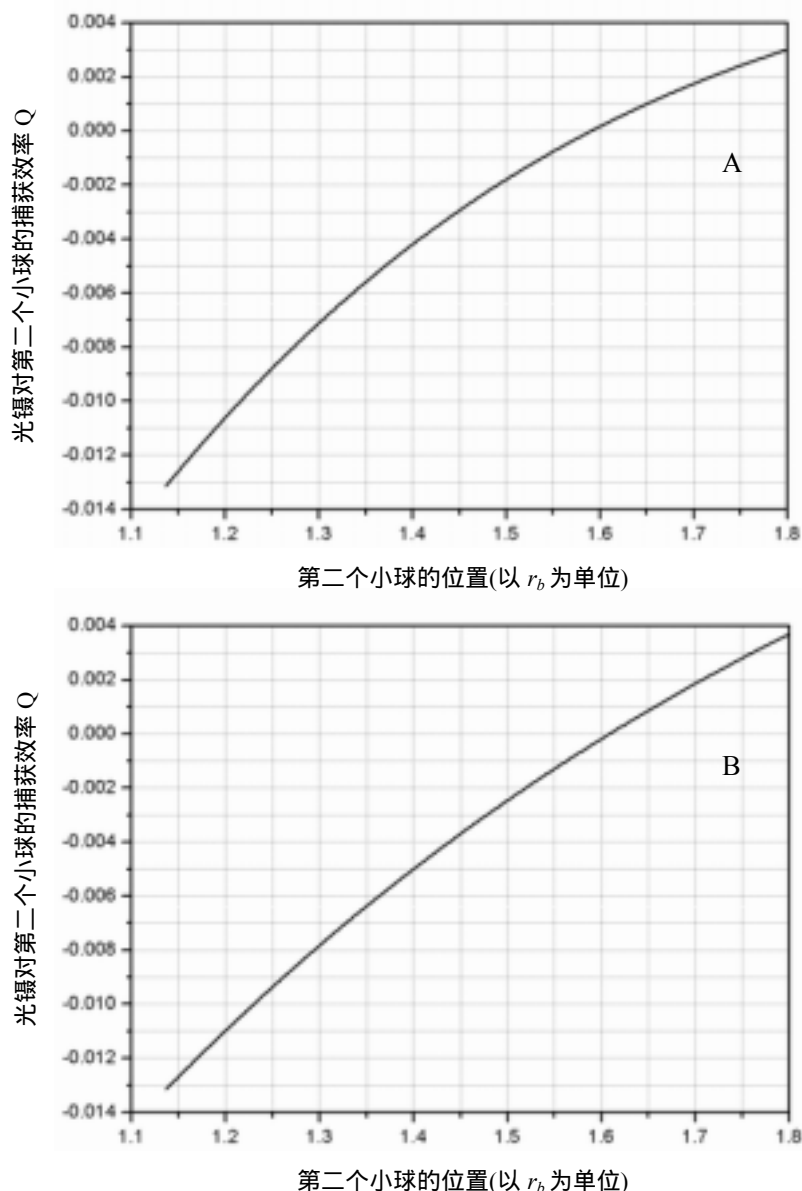


图 7.6 参数  $z_{cg} = -4r_b$  时，光镊对第二个小球的捕获效率曲线，其中曲线的最左端为第二个小球在两个小球共同的平衡位置上的情况。

- A. 第一个粒子在共同的平衡位置上不动的情形
- B. 第一个粒子一直紧贴着第二个粒子运动的情形

这样，光镊中的两个刚性球的位置就只能是另一种情况，即两个粒子处于一个共同的平衡位置中，在这个共同的平衡位置上，光镊对这两个小球的作用力大小相等，方向相反。通过计算机模拟可以得到这一共同的平衡位置，对  $z_{cg}$  为  $-3r_b$  的情况，计算得到此时第一个粒子的位置为  $z_{b1} = -0.570r_b$ ，而第二个粒子的位置为  $z_{b2} = 1.430r_b$ ，此时光镊对两个小球的作用力效率为 0.0082，方向相反；对  $z_{cg}$  为  $-4r_b$  的情况，计算得到此时的第一个粒子的位置为  $z_{b1} = 0.865r_b$  和  $z_{b2} = 1.135r_b$ 。

此时光镊对两个粒子的作用力效率分别为 0.0132，方向相反。

### §7.3.2 光镊中两个小球的受力和稳定程度

对于第一个粒子来说，当它处于平衡点下方的时候，光镊对它的作用力总是正的，因此，它很难从平衡点下方逃离光镊，而在它的上方，有第二个小球的存在，因此它也不可能先于第二个小球逃离光镊。而对第二个小球来说，情况就

有所不同，由于第一个小球的存在，它很难从下方逃逸，但是它从上方逃逸仍然是有可能的。为了考察光镊中两个粒子的这一体系的稳定程度，即它们是否可以稳定的被光镊捕获，就需要考察第二个小球从上方逃逸出光镊的难易程度。这样，分析第二个粒子位于它们共同的平衡位置上方时的受力情况是必要的。

然而，当第二个粒子在它们共同的平衡位置上方的时候，由于在共同的平衡位置上第一个粒子的受力也是正的，因此它也会有向上运动的趋势，又由于水中的粒子会做布朗运动，因此要确定第一个粒子的位置将是很困难的。如果考虑两

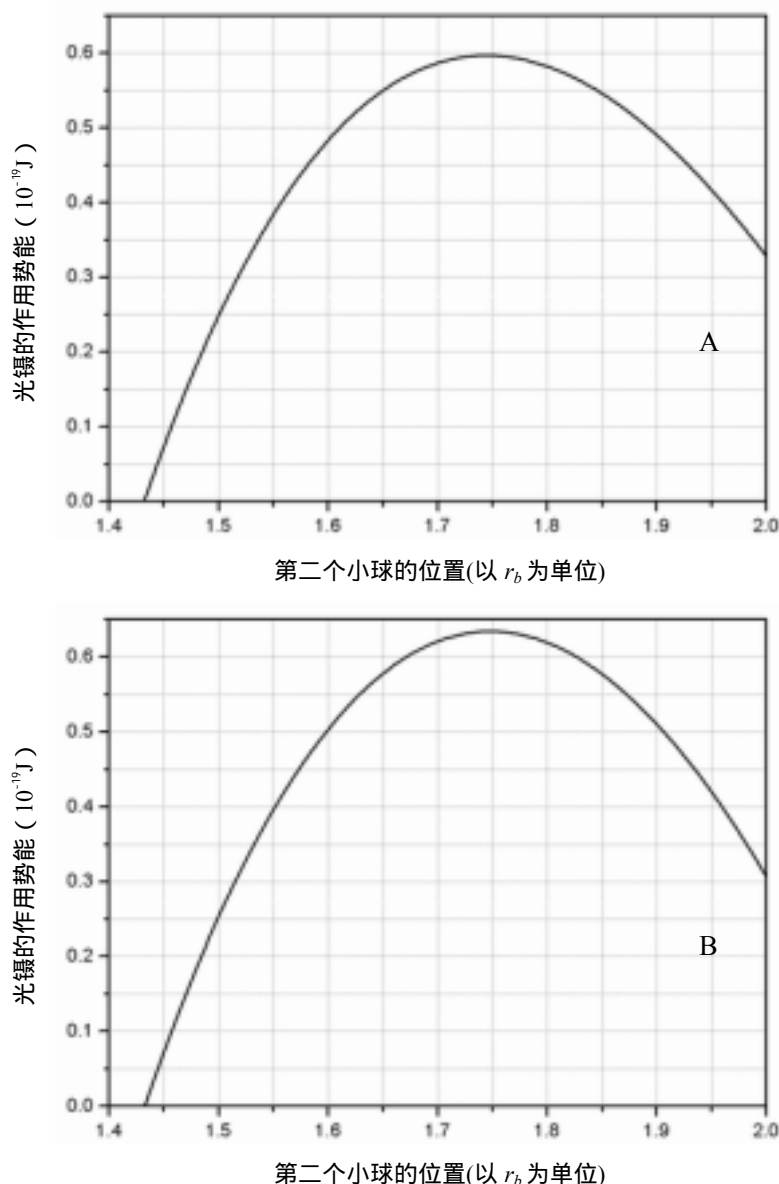
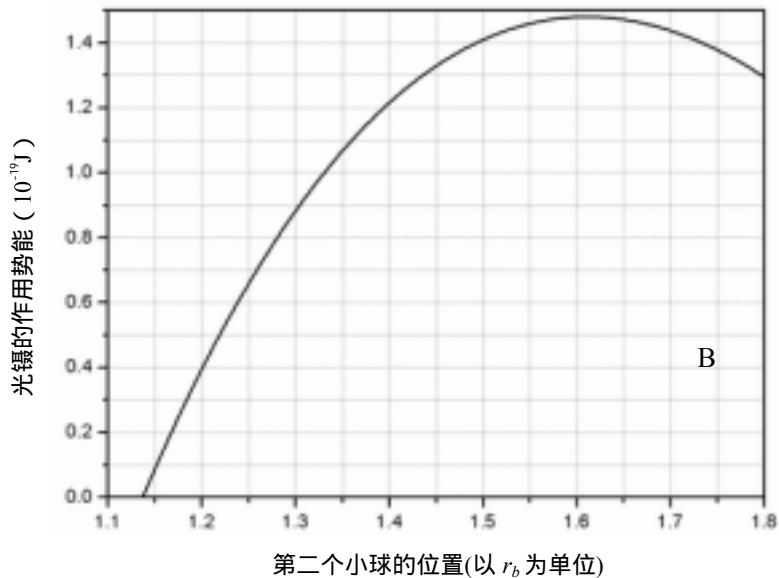
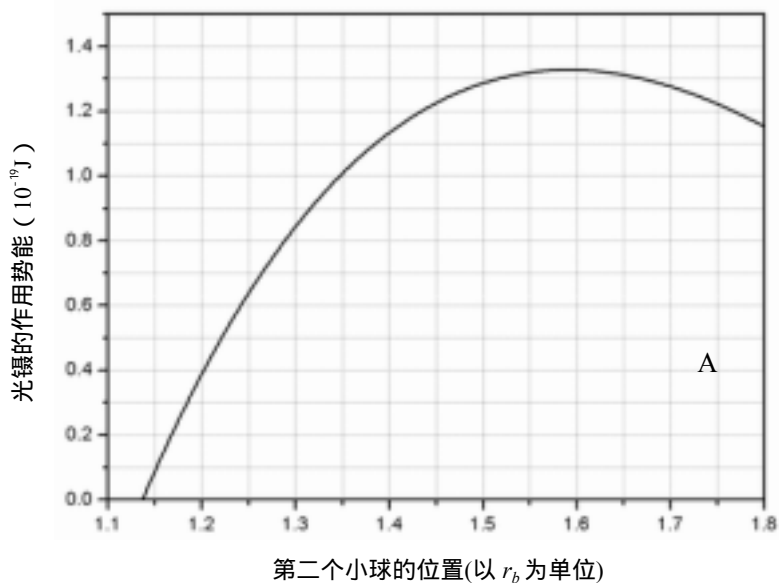


图 7.7 参数  $z_{cg} = -3r_b$  时，光镊对第二个小球的作用势能曲线，其中激光功率为 10mW，曲线最左端为第二个粒子处于两个粒子的共同平衡位置上的情况，此处的势能取为 0。图 A 和 B 的情况分别对应于图 6.5 的图 A 和 B。

个极限的情况下第二个粒子的受力也将会对光镊捕获两个粒子的稳定程度的分析有所帮助。第二个粒子在它们共同位置上方的时候，第一个粒子的位置的两个极限情况是：1) 第一个粒子处于它们的共同平衡位置上不动；2) 第一个粒子一直紧贴着第二个粒子运动。

图 7.5 和图 7.6 分别为  $z_{cg}$  为  $-3r_b$  和  $z_{cg}$  为  $-4r_b$  这两种情况下第二个粒子处于它们共同的平衡位置上方时光镊对它的捕获效率曲线。图 7.5A 和 7.6A 表示的是



第一个粒子的位置为第一个极限情况下的情形，此时第一个粒子在它们共同的平衡位置上不动。而图 7.5B 和图 7.6B 是第二个极限情况下的情形，此时第一个粒子一直紧贴着第二个粒子运动。在图 7.5 和图 7.6 中，曲线的最左端的位置表示第二个小球在两个小球共同的平衡位置上。

图 7.7 和 7.8 为激光功率为 10mW 时，第二个小球在光镊中的势能曲线，其中图 7.7 和图 7.5 分别对应，而图 7.8 和图 7.6 分别对应。在图 7.7 和图 7.8 中，由于曲线的最左端为两个小球共同的平

图 7.8 参数  $z_{cg} = -4r_b$  时，光镊对第二个小球的作用势能曲线，其中激光功率为 10mW，曲线最左端为第二个粒子处于两个粒子的共同平衡位置上的情况，此处的势能取为 0。图 A 和 B 的情况分别对应于图 6.6 的图 A 和 B。

衡位置,因此此处第二个小球的势能值取为 0。从这些图中可以看出,两种极限情况下第二个小球的受力情况是类似的。从图 7.7 和图 7.8 还可以看出,势垒的高度至少是  $0.6 \times 10^{-19} \text{J}$ ,它相当于  $15kT$  ( $T=300\text{K}$ )。这就是说,第二个粒子要从光镊中逃离至少要克服  $15kT$  的能垒,这说明当光镊光源的功率达到  $10\text{mW}$  时,第二个粒子被光镊的捕获是稳定的。对图 7.7 和图 7.8 进行对比还可以看出, $z_{cg}=-4r_b$  时的势垒高度要高于  $z_{cg}=-3r_b$  时的势垒高度。这说明,当激光束的理想焦点与玻璃和水的界面距离越远时,对两个粒子的捕获越为稳定。

## §7.4 讨论

在本章中,我们利用 RO 模型,通过计算机模拟得到了光镊中两个刚性粒子的轴向受力情况,由于对光线进行追迹来计算它的力学效应,因此玻璃和水的折射率不匹配引起的球差效应也在计算过程中进行了考虑。事实上,第一个粒子的受力情况与前人计算的结果一致,因此该工作主要研究的是第二个粒子的轴向受力情况。

计算的结果给出,光镊捕获两个刚性小球时,两个小球是被捕获在一个共同的平衡位置上,在这个平衡位置,两个小球相互接触,光镊对两个小球的作用力大小相等,方向相反。

计算的结果还给出,在光镊的光源功率为  $10\text{mW}$  的情况下,光镊捕获两个粒子是稳定的,而捕获粒子的稳定程度随着激光束理想焦点与玻璃和水的界面之间的距离增大而增大。

然而,在第五章中曾经提到,如果两个粒子在光镊中是有一个共同平衡位置的话,那么光镊中两个粒子的碰撞频率将会很高,这将与第四章中的实验结果不一致。在第五章中的对光镊中两个粒子的碰撞频率的模拟过程中,也假定两个粒子的平衡位置是分立的。

事实上,在第四章中的实验以及第五章中的模拟过程中,两个粒子之间还存在着 DLVO 理论所给出的相互作用力,这与本节中的计算中所采用的没有相互作用力的刚性球模型是不同的。由于两个粒子的静电相互作用势的存在,即使光镊要将两个粒子“挤压”到共同的平衡位置,也有可能因为两个粒子之间的 DLVO 排斥势能而使得它们在平衡位置是分开的。因此,本章的工作结果和第四

章的实验结果并不矛盾。

如果要得到第四章实验中的两个粒子在光镊中的受力情况，那么除了研究光镊对粒子的作用之外，还需要引入粒子之间包括静电作用在内的其它相互作用力，在本节的研究工作基础上的进一步工作将可以解决这一问题。

需要指出的是，RO 模型对粒子与波长差不多和粒子大小小于激光波长的情况下的计算结果误差比较大，采用 EM 的模型对光镊中的两个粒子的受力情况进行计算也将是具有一定物理意义的研究工作。

## 本章参考文献

1. Z.W.Sun, S.H.Xu, G.L.Dai, Y.M.Li, L.R.Lou, Q.S.Liu, and R.Z.Zhu, "A microscopic approach to studying colloidal stability," *J.Chem.Phys.* **119**, 2399-2405 (2003).
2. Z.W.Sun, S.H.Xu, J.Liu, Y.M.Li, L.R.Lou, and J.C.Xie, "Improved procedure on the microscopic approach to determine colloidal stability," Accepted to be published on *J.Chem.Phys.*
3. G.Roosen, "La levitation optique de spheres," *Can. J. Phys.* **57**, 1260-1279 (1979)
4. A.Ashkin, "Forces of a single-beam gradient trap on a dielectric sphere in the ray optics regime," *Biophys. J.* **61**, 569-582 (1992).
5. R.Gussgard, T.Lindmo, and I.Brevik, "Calculation of the trapping force in a strongly focused laser beam," *J. Opt. Soc. Am. B* **9**, 1922-1930 (1992).
6. W.H.Wright, G.J.Sonek, and M.W.Berns, "Parametric study of the forces on microspheres held by optical tweezers," *Appl.Opt.* **33**, 1735-1748 (1994).
7. M.Gu, P.C.Ke, and X.S.Gan, "Trapping force by a high numerical-aperture microscope objective obeying the sine condition," *Rev.Sci.Instrum.* **68**, 3666-3668 (1997).
8. E.Fallman, O.Axner, "Influence of a glass-water interface on the on-axis trapping of micrometer-sized spherical objects by optical tweezers," *Appl. Opt.* **42**, 3915-3926 (2003).
9. Y.Harada, and T.Asakura, "Radiation forces on a dielectric sphere in the Rayleigh scattering regime," *Opt. Comm.* **124**, 529-541 (1996).
10. K.Visscher, and G.J.Brakenhoff, "Theoretical study of optically induced forces on spherical particles in a single beam trap I: Rayleigh scatterers," *Optik* **89**, 174-180 (1992).
11. X.C.Yao, Z.L.Li, H.L.Guo, B.Y.Cheng, and D.Z.Zhang, "Effects of spherical aberration on optical trapping forces for Rayleigh particles," *Chin. Phys. Lett.* **18**, 432-434 (2001).
12. A.Rohrbach, and E.H.K.Stelzer, "Optical trapping of dielectric particles in arbitrary fields," *J.Opt.Soc.Am.A* **18**, 839-853 (2001)
13. A.Rohrbach, and E.H.K.Stelzer, "Trapping forces, force constants, and potential depths for dielectric spheres in the presence of spherical aberrations," *Appl. Opt.* **41**, 2494-2507 (2002).
14. T.Tlusty, A.Meller, and R.Bar-Ziv, "Optical gradient forces of strongly localized fields," *Phys.Rev.Lett.* **81**, 1738-1741 (1998).
15. Y.K.Nahmias, B.Z.Gao, and D.J.Odde, "Dimensionless parameters for the design of optical traps and laser guidance systems," *Appl.Opt.* **43**, 3999-4006 (2004).
16. J.P.Barton, D.R.Alexander, and S.A.Schaub, "Internal and near-surface electromagnetic fields for a spherical particle irradiated by a focused laser beam," *J.Appl.Phys.* **64**, 1632-1639

- (1988).
17. J.P.Barton, and D.R.Alexander, "Fifth-order corrected electromagnetic field components for a fundamental Gaussian beam," *J.Appl.Phys.* **66**, 2800-2802 (1989).
  18. J.P.Barton, D.R.Alexander, and S.A.Schaub, "Theoretical determination of net radiation force and torque for a spherical particle illuminated by a focused laser beam," *J.Appl.Phys.* **66**, 4594-4602 (1989).
  19. A.Ashkin, "Acceleration and trapping of particles by radiation pressure," *Phys.Rev.Lett.* **24**, 156-159 (1970).
  20. A.Ashkin, and J.M.Dziedzic, "Optical levitation of liquid drops by radiation pressure," *Science* **187**, 1073-1075 (1975).
  21. A.Ashkin, J.M.Dziedzic, J.E.Bjorkholm, and S.Chu, "Observation of a single-beam gradient force optical trap for dielectric particles," *Opt.Lett.* **11**, 288-290 (1986).
  22. 李银妹, 《光镊原理、技术和应用》中国科学技术大学出版社 1996.
  23. J.P.Gordon, "Radiation forces and momenta in dielectric media," *Phys.Rev.* **8**, 14-21 (1973).
  24. T.A.Nieminen, H.Rubinsztein-Dunlop, N.R.Heckenberg, and A.I.Bishop, "Numerical modeling of optical trapping," *Comput. Phys. Comm.* **142**, 468-471 (2001).
  25. T.A.Nieminen, H.Rubinsztein-Dunlop, N.R.Heckenberg, "Calculation and optical measurement of laser trapping forces on non-spherical particles," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **70**, 627-637 (2001).
  26. 葛德彪, 闫玉波, 《电磁波时域有限差分方法》西安电子科技大学出版社 2002.
  27. (美)金建铭 著, 王建国 译《电磁场有限元方法》西安电子科技大学出版社 1998.
  28. D.A.White, "Numerical modeling of optical gradient traps using the vector finite element method," *J. Comput. Phys.* **159**, 13-37 (2000).
  29. 赵凯华, 钟锡华, 《光学》北京大学出版社 1984.
  30. M.玻恩, E.沃尔夫, 《光学原理》科学出版社 1978.
  31. S.H.Xu, Y.M.Li, and L.R.Lou, "Axial optical trapping forces on two particles trapped simultaneously by optical tweezers," Accepted to be published on *Appl.Opt.*

## 第八章 环形光对粒子的横向捕获力的计算

在光镊捕获两个粒子的情况下，由于实验中，两个粒子沿轴向分布，而且粒子的逃逸也是从轴向逃逸，因此第七章中的计算工作只针对粒子的轴向受力。事实上，应用第七章中用到的 RO 模型，也可以对粒子的横向受力情况进行计算。

利用 RO 模型对不同情况的环形光的横向捕获效率进行对比是一个很有意义的工作。为了提高光镊的捕获效率，一种常见的方法就是采用环形的激光而不是高斯光来实现光捕获。环形光能提高光镊的捕获效率的原因就是激光的中心部分对散射力部分的贡献很大，而对梯度力部分的贡献相对较小，因此去除激光的中心部分可以有效地提高梯度力而减小散射力，从而提高捕获效率。常用的作为光镊的光源的环形光有将高斯光中心部分挡掉而形成的环形光<sup>[1-3]</sup>，为了方便起见，在下文中，我们称这种环形光为空心高斯光；还有一种就是拉盖尔-高斯(LG)光束<sup>[4-8]</sup>。对于空心高斯光束，实验和已有的计算工作都表明纵向捕获力相对于高斯光束得到了有效提高<sup>[1,2]</sup>；O'Neil 等人<sup>[8]</sup>也从实验上将纵向和横向捕获力和高斯光束进行了比较，他们同时还作了一些简单的计算来说明实验的结果。关于横向捕获力，很早就已有文献报道对高斯光束进行了计算，而对于空心环形光，也有一些计算的研究工作<sup>[3,9]</sup>，但是却一直没有对两种常用的环形光束的横向捕获力的系统的计算和比较的工作。在文献[8]中，虽然也有一些关于 LG 光束的简单计算，但是都是针对单条光线的作用力的计算用以说明实验结果，因此也不能给出整个光束对粒子的横向力的作用。由于这两种环形光都已经在光镊中成功地应用，因此进行捕获力的系统比较很有必要。基于研究的现状和对两种环形光横向受力的研究的意义，我们对该两种环形光的横向捕获效率进行了研究，并和高斯光束的横向捕获效率作了对比。

### §8.1 光对粒子横向力的计算

#### §8.1.1 计算方法

同样地，我们采用 RO 模型来进行计算，梯度力和散射力效率的值由第七章中的公式(7.18)和(7.19)给出，我们重新在这里写出：



$$Q_s = 1 + R \cos(2\theta) - \frac{T^2 [\cos(2\theta - 2r) + R \cos(2\theta)]}{1 + R^2 + 2R \cos(2r)} \quad (8.1)$$

$$Q_g = R \sin(2\theta) - \frac{T^2 [\cos(2\theta - 2r) + R \sin(2\theta)]}{1 + R^2 + 2R \cos(2r)} \quad (8.2)$$

其中  $\theta$  为入射角， $r$  是折射角， $R$  和  $T$  分别为反射和透射的菲涅尔系数。

与轴向捕获力的计算不同，计算横向捕获力时，小球并不在光轴上，因此计算更为复杂。按照 RO 模型，我们同样利用光线追迹，并考虑油和水的折射率不匹配引起的球差效应<sup>[10]</sup>。这样，一条光线入射到偏轴上的粒子的情况由图 8.1 给出，一些相关的参数也在图中表示出。

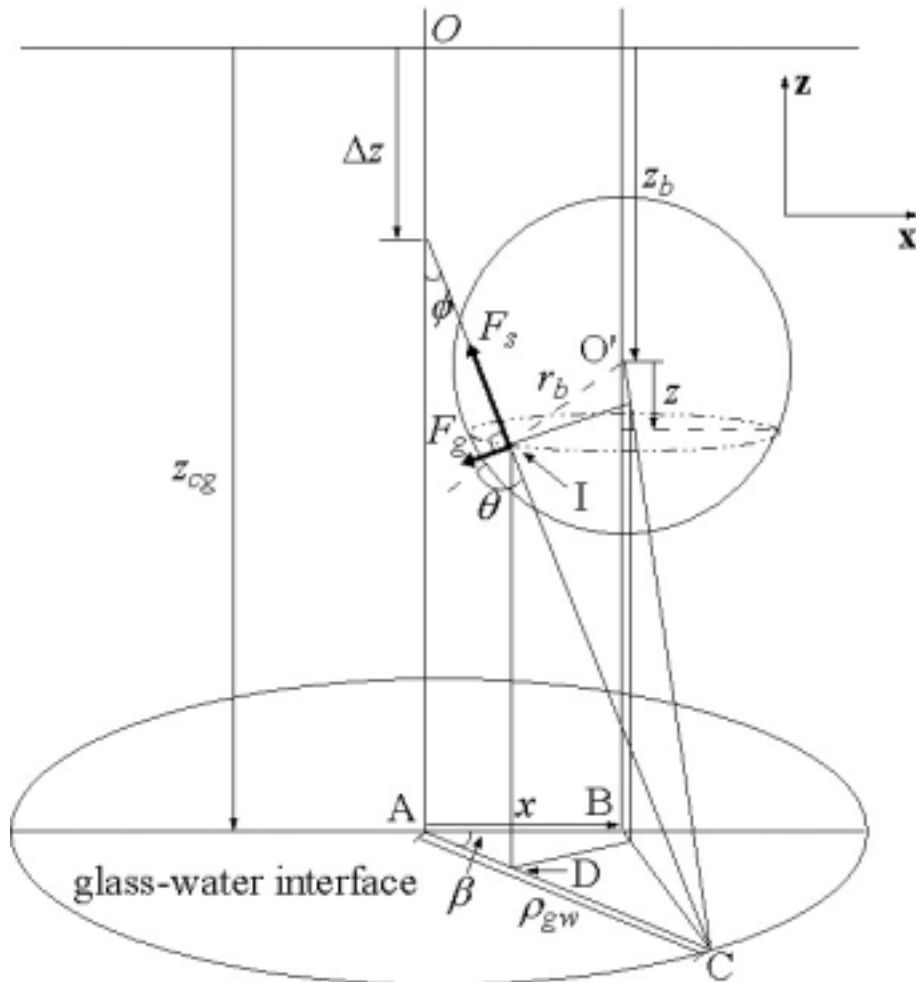


图 8.1 一条光线入射到偏轴的粒子的情况，一些相关的几何参数已经在图中表示出。

沿用第七章中一些参数的定义。油和玻璃有相同的折射率  $n_g$ ，而水的折射率为  $n_w$ 。z 方向是沿着光线传播的方向，它与水和玻璃的界面是垂直的，x 方向

为粒子偏离轴线的方向。粒子的半径为  $r_b$ ，球心为  $O'$ ，在玻璃和水的界面的投影为  $B$  点，小球偏离光轴的距离为  $x$ 。光线与光轴在一个平面上，它以  $\phi$  的入射角入射到玻璃和水的界面，在水中的折射角为  $\phi'$ ，光线从物镜的出光孔出射的位置距离光轴（也即出光孔中心）的距离为  $\rho$ ，它入射到玻璃和水的界面处的  $C$  点，它与光轴的距离为  $\rho_{gw}$ 。光线入射到小球上的  $I$  点， $I$  点在玻璃和水的界面的投影为  $D$ ， $I$  点和球心  $O'$  点在  $z$  轴方向的距离为  $z_0$ 。 $O$  点为油和玻璃介质中的光线的理想焦点，这个点在图 8.1 中作为整个坐标系的原点，它在油和玻璃的界面上的投影点为  $A$ 。水和玻璃的界面与原点  $O$  的距离为  $z_{cg}$ 。在油和玻璃介质中的入射光线经过玻璃和水的界面折射后的光线和  $z$  轴的交点与原点  $O$  的距离为  $\Delta z$ 。粒子中心  $O'$  和原点  $O$  在  $z$  轴方向上的距离为  $z_b$ 。与第七章中的情况不同，本章中考虑的是光镊对粒子的横向捕获力，这样，不同的角度入射到小球上的光线的横向作用力不同，因此这里需要引入的另外一个参数就是入射光线在玻璃和水的界面上的投影与  $x$  轴的夹角  $\beta$ 。

同样，一些相关的参数满足第七章中的一些公式。主要公式有：

$$\sin \phi = \eta \frac{NA}{n_w} \quad (8.3)$$

$$\Delta z = z_{cg} \left\{ 1 - \frac{n_w}{n_g} \left[ \frac{1 - \eta^2 \left( \frac{NA}{n_w} \right)^2}{1 - \eta^2 \left( \frac{NA}{n_g} \right)^2} \right]^{1/2} \right\} \quad (8.4)$$

其中  $\eta = \frac{\rho}{\rho_p}$ ， $\rho_p$  为物镜出光孔的半径。

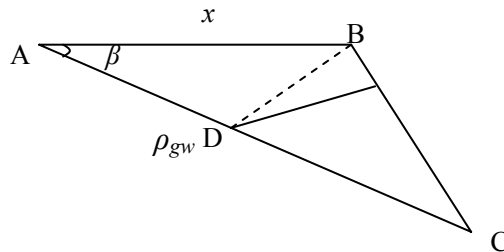


图 8.2 玻璃和水的界面上的三角形 ABC

考察玻璃和水的界面上的三角形 ABC，如图 8.2 所示，实线和一些相应参

数为图 8.1 中已经有的，虚线表示为了分析重新加入的线。

从图 8.1 中容易看出，AD 的长度为  $(\Delta z - z - z_b) \tan \phi$ ，在图 8.2 种用余弦定理可以得到：

$$BD^2 = [(\Delta z - z - z_b) \tan \phi]^2 + x^2 - 2x(\Delta z - z - z_b) \tan \phi \cos \beta \quad (8.5)$$

虽然在图 8.1 中为了图片的简洁而没有画出 BD 这条线，但是还是很容易可以从图 8.1 中看出 BD 就是入射光线与小球的交点处虚线表示的小圆的半径。

因而有：

$$z^2 + BD^2 = r_b^2 \quad (8.6)$$

将公式 (8.5) 代入 (8.6) 得到：

$$[(\Delta z - z - z_b) \tan \phi]^2 + x^2 - 2x(\Delta z - z - z_b) \tan \phi \cos \beta + z^2 = r_b^2 \quad (8.7)$$

写成  $z$  的一元二次方程的形式为：

$$(\tan^2 \phi + 1)z^2 + [2(z_b - \Delta z) \tan^2 \phi + 2x \tan \phi \cos \beta]z + [(z_b - \Delta z)^2 \tan^2 \phi + x^2 + 2x(z_b - \Delta z) \tan \phi \cos \beta - r_b^2] = 0 \quad (8.8)$$

从几何上说，光线入射到小球上有两个交点，因此  $z$  有两个解，但从物理上说，只能有一个交点，因此取  $z$  比较小的那个解，得到：

$$z = \frac{-\sqrt{[2(z_b - \Delta z) \tan^2 \phi + 2x \tan \phi \cos \beta]^2 - 4(\tan^2 \phi + 1)[(z_b - \Delta z)^2 \tan^2 \phi + x^2 + 2x(z_b - \Delta z) \tan \phi \cos \beta - r_b^2]}}{2(\tan^2 \phi + 1)} - \frac{[2(z_b - \Delta z) \tan^2 \phi + 2x \tan \phi \cos \beta]}{2(\tan^2 \phi + 1)} \quad (8.9)$$

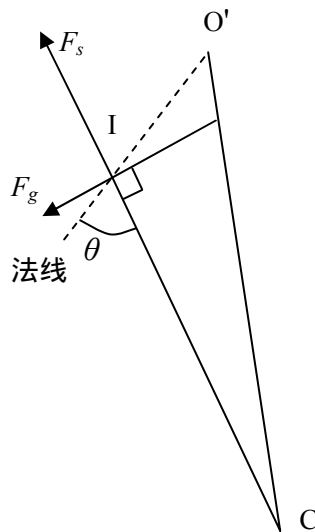


图 8.3 图 8.1 中的三角形 ICO' 的平面示意图，其中 IO' 为法线，CI 为入射光线， $\theta$  为入射角，散射力和梯度力的方向也在图中标出。

利用式 (8.9) 中得到的  $z$  的值就可以得到光线的入射角  $\theta$ 。让我们再来看另外一个三角形,三个顶点分别是球心  $O'$ ,光线在玻璃和水的界面上的折射点  $C$ ,以及光线与小球的交点  $I$ 。这个三角形可以用平面图 8.3 表示。

从图 8.1 中的几何关系可以得到  $IC=(z+z_b-z_{cg})/\cos\phi$ 。而  $IO'$  为球的半径,它的值为  $r_b$ 。  $CO'$  的计算需要知道另外两个直角边  $BC$  和  $BO'$  的长度,其中  $BO'$  的长度很容易从图 8.1 中看出来,它的值为  $z_b-z_{cg}$ 。  $BC$  的值可以从图 8.2 的三角形  $ABC$  中利用余弦定理得到,在三角形  $ABC$  中,角度  $A$  的值为  $\beta$ ,  $AB$  的长度为  $x$ ,而  $AC$  的长度可以从图 8.1 中的几何关系得到,为  $(\Delta z-z_{cg})\tan\phi$ 。这样就可以利用余弦定理可以得到  $BC$  的长度,再利用勾股定理就可以得到  $CO'$  的长度。那么,三角形  $ICO'$  的三条边的长度都已经得到,那么再在三角形  $ICO'$  中利用余弦定理就可以求得  $\theta$  的值。

这样就可以利用计算力的公式 (8.1) 和 (8.2) 来得到  $F_s$  和  $F_g$  的值。由于考虑的是粒子在  $x$  方向偏离光轴情况下的横向受力,因此,由于对称性,所有光线在  $y$  方向的力刚好相互抵消,这样,在计算过程中只需要把  $F_s$  和  $F_g$  对  $x$  方向作投影就可以得到该条光线对粒子横向受力的贡献,具体的计算方法是先将它们投影到玻璃和水的界面上,再作一次投影到  $x$  轴上。其中  $F_s$  和  $F_g$  的方向也已经在图 8.1 和 8.3 中标出,由于一些关键的几何关系已经在上面的分析中给出了,因此可以比较容易地利用几何关系得到投影值。

通过以上分析可以利用系统参数和光线的参数  $n_g, n_w, NA, z_b, z_{cg}, r_b, x, \beta$ , 和  $\eta$  等对单条光线对偏轴的小球的横向作用力进行计算,而总的横向作用力可以通过对所有光线的横向作用力的积分求和得到。

### §8.1.2 两种环形光的光场分布

在本章的研究工作中,主要是针对两种不同形式的环形光和高斯光的横向捕获效率做比较。对于高斯光的情况,由于它会被显微镜的出光孔所截断,因此在显微镜出光口出的光强分布为:

$$I(\rho) = \begin{cases} I_0 \exp(-2\rho^2 / \omega_0^2) & \rho \leq \rho_p \\ 0 & \rho > \rho_p \end{cases} \quad (8.10)$$

与第七章中的公式(7.26)相同。

对于空心高斯光束来说，只是把高斯光束的中心部分挡去，因此它的光强分布可以写成：

$$I(\rho) = \begin{cases} I_0 \exp(-2\rho^2 / \omega_0^2) & \rho_h \leq \rho \leq \rho_p \\ 0 & \rho > \rho_p \text{ or } \rho < \rho_h \end{cases} \quad (8.11)$$

其中  $I_0$  是高斯光中心光强， $\omega_0$  为物镜出光孔处的光束半径， $\rho_p$  是出光孔的半径， $\rho_h$  为被挡去部分的半径，也即空心部分的半径。

LG 光束在柱坐标系下的振幅分布为[]

$$u_{pl}(\rho, \varphi, z) = \frac{C}{(1 + z^2 / z_R^2)^{1/2}} \left( \frac{\rho\sqrt{2}}{\omega(z)} \right)^l L_p^l \left( \frac{2\rho^2}{\omega^2(z)} \right) \exp\left( \frac{-\rho^2}{\omega^2(z)} \right) \times \exp\left( \frac{-ik\rho^2 z}{2(z^2 + z_R^2)} \right) \exp(-il\varphi) \exp\left( i(2p + l + 1) \tan^{-1} \frac{z}{z_R} \right) \quad (8.12)$$

其中  $z_R$  是瑞利距离， $\omega(z)$  是光束半径， $L_p^l$  为拉盖尔多项式， $C$  为一常数。

这样可以得到出光孔处的光强分布为：

$$I(\rho) = \begin{cases} C_0 \left( \frac{\rho\sqrt{2}}{\omega_0} \right)^{2l} \left( L_p^l \left( \frac{2\rho^2}{\omega_0^2} \right) \right)^2 \exp\left( \frac{-2\rho^2}{\omega_0^2} \right) & \rho \leq \rho_p \\ 0 & \rho > \rho_p \end{cases} \quad (8.13)$$

其中， $\omega_0 = \omega(z_{ep})$  为物镜出光口处的光束半径，为物镜出光孔半径。 $C_0$  为一个与  $C$  有关的常数。在计算过程中，对空心高斯光，高斯光和 LG 光，我们都取光束的半径与物镜出光孔半径相同。

## §8.2 计算结果

由于对不同情况的光来说，粒子的捕获位置不同，因此在计算横向偏离捕获位置时的横向受力就必须要先计算得到不同的光镊捕获粒子的位置，然后再分别计算粒子横向偏离这一捕获位置的时候光镊对它的横向作用力。

在计算中所使用的一些光镊参数也是实验中常用的一些参数，其中，小球的折射率为 1.55，水的折射率为 1.33，物镜匹配油的折射率为 1.516。 $NA$  为 1.25。 $z_{cg}$  作为光束的理想焦点和玻璃与水的界面之间的距离，我们取一个典型的参数，为  $-3r_b$ ，其中  $r_b$  为小球的半径。

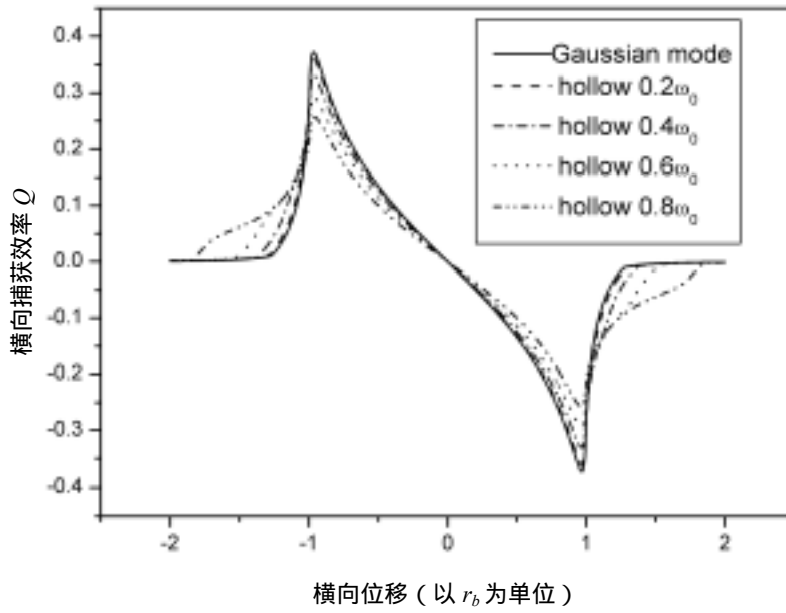


图 8.4 不同的空心大小的空心高斯光束和高斯光束的横向捕获效率的比较

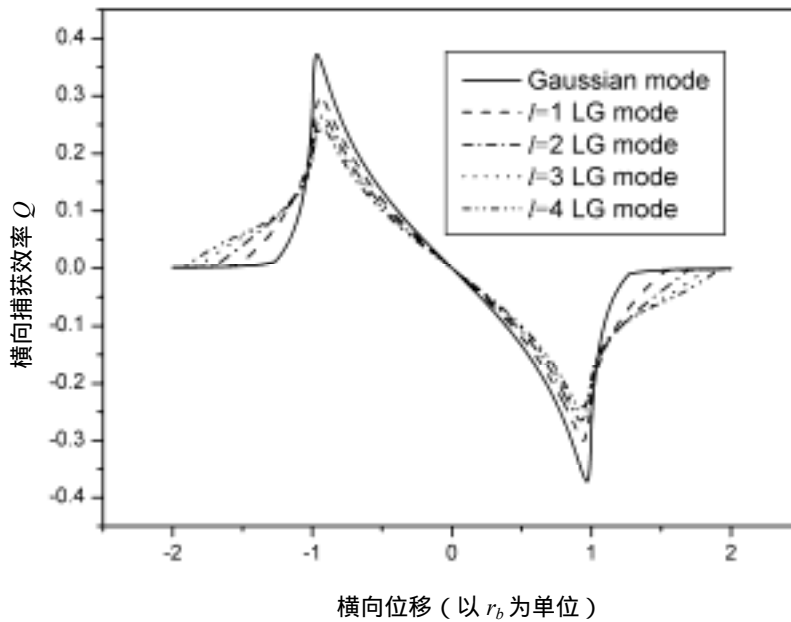


图 8.5 不同阶数的 LG 光束和高斯光束的横向捕获效率的比较

图 8.4 和图 8.5 就是通过计算机计算得到的空心高斯光 and LG 光对粒子的横向捕获效率和高斯光束对粒子的横向捕获效率的对比图。其中横向的偏移量是以光镊的捕获位置为参考点的。

图 8.4 中，高斯光的横向捕获效率用实线表示，空心高斯光在空心半径不

同情况下的横向捕获力也在图中用不同的虚线表示,在图中,空心的半径分别为 0.2, 0.4, 0.6 和  $0.8\omega_0$ 。图 8.5 中, 高斯光的横向捕获效率同样用实线表示, 实际上, 它和图 8.4 中的高斯光的横向捕获效率曲线是一样的。而不同阶数的拉盖尔高斯光束的横向捕获效率也在图中用不同的虚线表示。由于公式 (8.12) 中的  $p$  影响的是 LG 光的环的个数, 而对本章中的研究工作来说, 由于考虑环形的 LG 光, 因此取  $p=0$ , 这样, LG 光只有一个环。因此在图 8.5 中的 LG 光只是 1 的阶数不同。

从图 8.4 和 8.5 中可以看出, 当小球偏离平衡位置不太大的时候, LG 光和环形高斯光的横向捕获效率都要比高斯光低, 随着 LG 光束的阶数  $l$  的增大, 横向捕获效率会降低, 对环形高斯光也一样, 当空心部分半径增大时, 横向捕获效率也会降低; 而当小球偏离平衡位置比较远的时候, LG 光和环形高斯光的横向捕获效率就比高斯光要高了。然而一般来说, 人们对光镊的横向最大捕获力以及粒子偏离平衡位置不太远的时候的横向捕获力更感兴趣, 这是因为最大的横向捕获力就是粒子逃逸光镊所需要的力, 而粒子偏离平衡位置比较近的时候的横向捕获力则与光镊的刚度密切联系。由于光镊的刚度为力的变化率, 这样, 从图中来看, LG 光束和环形高斯光束的最大横向捕获力以及刚度都比高斯光束有所降低, 而且随着 LG 光束的阶数  $l$  和空心高斯光的空心部分的增大, 两种光束的最大横向捕获力和刚度都会降低。

### §8.3 讨论

在本章中, 我们对两种不同形式的环形光, 空心高斯光和拉盖尔高斯光形成的光镊的横向捕获效率进行了计算, 并和高斯光形成的光镊的横向捕获效率进行了对比。结果发现, 两种环形光束的横向最大捕获效率和刚度都比高斯光束要小。

环形光由于减小了中心光束的散射力, 从而可以提高纵向的捕获效率, 这一点已经在前人的工作中得到了证实, 这也是人们把环形光应用于光镊中的原因, 然而我们的计算结果给出, 不论是 LG 光束还是环形高斯光, 这两种常用的环形光束都会减小光镊的横向捕获效率。因此在这两种环形光的应用中, 都应该选取合适的空心大小或者阶数, 来保证足够的横向捕获力。特别是对于 LG 光束,

由于它具有轨道角动量,因此可以让被捕获的粒子旋转,而且随着  $l$  的阶数增大,它的角动量也会增大。在很多使用 LG 光束的研究中,都希望能够有比较大的角动量,在这些情况下仍然需要选取合适的阶数来保证它同时具有比较大的角动量和比较高的横向捕获效率。

总体来讲,本章的研究工作给出了空心高斯光束和 LG 光束的横向捕获效率,这一结果对这两种光束形成的光镊的一些应用有一定的指导意义,对光镊的理论和应用的进一步发展都有重要的参考价值。



## 本章参考文献

1. 尹良红, 李银妹, 楼立人, 张达, 陈洪涛, “空心新型光阱的实验研究,” 中国激光 **30**, 211-215 (2003).
2. 崔国强, 李银妹, 翁明琪, 楼立人, “环形光对光阱有效捕获力的提高,” 中国激光 **28**, 89-92 (2001).
3. M.Gu, D.Morrish, and P.C.Ke, “Enhancement of transverse trapping efficiency for a metallic particle using an obstructed laser beam,” Appl.Phys.Lett. **77**, 34-36 (2000).
4. L.Allen, M.W.Beijersbergen, R.J.C.Spreeuw, and J.P.Woerdman, “Orbital angular momentum of light and the transformation of laguerre-gaussian laser modes,” Phys. Rev. A, **45**, 8185-8189 (1992).
5. H.He, M.E Fries, N.R.Heckenberg, and H.Rubinsztein-Dunlop, “Direct observation of transfer of angular momentum to absorbtive particles from a laser with a phase singularity,” Phys.Rev.Lett. **75**, 826-829 (1995).
6. K.T.Gahagan, and G.A.Swartzlander,Jr, “Optical vortex trapping of particles,” Opt. Lett. **21**, 827-829 (1996).
7. A.T.O’Neil, and M.J.Padgett, “There-dimensional optical confinement of micron-sized metal particles and the decoupling of the spin and orbital angular momentum within an optical spanner,” Opt.Comm. **185**, 139-143 (2000).
8. A.T.O’Neil, and M.J.Padgett, “Axial and lateral trapping efficiency of Laguerre-Gaussian modes in inverted optical tweezers,” Opt. Commun. **193**, 45-50(2001).
9. A.Ashkin, “Forces of a single-beam gradient trap on a dielectric sphere in the ray optics regime,” Biophys. J. **61**, 569-582 (1992).
10. E.Fallman, O.Axner, “Influence of a glass-water interface on the on-axis trapping of micrometer-sized spherical objects by optical tweezers,” Appl. Opt. **42**, 3915-3926 (2003).

## 第九章 论文的总结和展望

本论文的主要工作是利用光镊技术研究分散体系稳定性，以及围绕该主题相关的理论和实验研究。在该研究工作中，我们首先建立了从粒子层次研究微粒碰撞聚集过程的实验研究方法，解决了由于粒子碰撞在空间和时间上都是随机的，而无法从显微镜中跟踪观察碰撞聚集过程这一困难，实现了从粒子层次对分散体系中粒子碰撞聚集过程的实验研究。然后我们通过对实验规律的分析 and 讨论，建立了两粒子体系碰撞聚集动力学的唯象理论，提出了光镊中两个粒子碰撞聚集过程可以分为“紧密状态”和“松散状态”这两个阶段的物理模型。我们在这一模型的基础上，利用分散体系的稳定率这一宏观参数与两粒子体系中粒子的结合几率之间的联系，首次建立了从微小粒子层次来测量体系的稳定率的方法。与传统的利用粒子的宏观聚集速率来测量体系稳定率的各种光散射方法不同，这种方法是通过观察粒子的碰撞结果得到粒子碰撞的结合率，它使得人们对分散体系中微粒的碰撞聚集过程和体系的稳定性的微观机理有了更深入的认识。

光镊中两个粒子的碰撞频率是粒子在光镊中碰撞聚集过程的重要参量，在光镊中两个粒子碰撞聚集过程的模型的建立过程中，需要了解光镊中的粒子在不同阶段的碰撞频率的大小。为此，我们对光镊中两个粒子的碰撞频率进行了模拟计算。在模拟计算过程中，不仅考虑了光镊对被捕获粒子的作用力，还考虑了两个粒子间流体动力学相互作用的影响。通过对光镊中两个粒子碰撞频率的模拟计算，得到两个粒子在“紧密状态”具有比“松散状态”大得多的碰撞频率。这部分工作加深了我们对光镊中两个粒子运动和受力情况的理解，为光镊中两个粒子碰撞聚集模型的建立提供了基础。

在分散体系中，粒子与界面之间的流体动力学相互作用是普遍存在的一种作用。在论文中，我们利用光镊对受到平面限制情况下粒子的布朗运动和扩散特性进行了实验研究，得到了粒子与平面界面之间的流体动力学相互作用对粒子扩散特性的影响，实验测量的结果与已有的理论相一致。

在分散体系聚集过程中，粒子的聚集是完全随机的，我们利用光镊控制粒子的聚集过程，首次实现了排布分散体系中的粒子形成稳定的具有给定结构的聚集体。这一方法将有可能在胶体晶体和生物学领域得到应用。

考虑到光阱对粒子的作用不可避免的会影响粒子的运动过程,因此,研究光镊对粒子的作用力也具有重要意义。对光镊中两个粒子的碰撞聚集过程中的重要参量——碰撞频率的模拟,就需要考虑光镊对两个粒子的作用力。我们利用几何光学模型,首次对光镊中两个粒子的轴向受力进行了计算,给出了光镊捕获两个刚性小球时对两个小球的作用力与粒子在光镊中的轴向位置之间的关系。该研究结果为光镊能捕获两个粒子这一特点的进一步应用提供了理论基础。

我们还对不同的环形光对粒子的横向捕获力进行了理论计算。通过对计算结果的比较,我们发现,环形光的横向捕获力要比实心高斯光小。这一工作对环形光形成的光镊的应用有一定的指导意义。

综上所述,本工作利用光镊技术对分散体系进行了理论和实验研究,工作充分利用了光镊的特点,从粒子层次研究了分散体系的一些重要性质,创立了崭新的利用光镊研究分散体系中粒子动力学过程的方法,为深入研究分散体系的性质提供了有效手段,相关的研究结果也增进了人们对光镊本身特性的认识。

利用光镊研究分散体系宏观规律的微观机制的工作,目前还在起步阶段,因此光镊在分散体系中的应用有广阔的前景。例如,人们已经注意到,除了盐的浓度会影响体系的稳定性之外,一些短链的有机共溶剂,如甲醇乙醇等也会影响体系的稳定性<sup>[1-4]</sup>,但是这类介质对稳定性影响的微观机制还不清楚。我们正着手利用光镊研究加入有机共溶剂后粒子表面的吸附状态引起的粒子扩散和体系粘度等的变化,以便深入了解有机共溶剂对体系稳定性的影响的微观机制。

聚集体的分形结构<sup>[5-8]</sup>也是人们非常关心的分散体系问题之一。不同稳定性程度体系中的粒子为什么会形成具有不同分形结构的聚集体,其微观机理仍然停留在理论分析的阶段。我们也期望光镊能够在聚集体分形结构的微观机理实验研究中发挥重要的作用。

利用光镊在粒子层次上进行的研究,能够发现一些在传统宏观实验研究中难以发现的现象,并对它们进行研究。例如,样品池壁附近粒子和池中的粒子聚集情况有一定的差别,如何来定量的描述这一差别,差别是因为粒子的扩散受到界面的影响所导致的,还是界面影响了粒子的表面电荷分布所引起的,这些都依赖于能够操控微小粒子的光镊技术从粒子层次才能够开展的研究工作。在同一分散

体系中,粒子的个体性质是否存在差异;非球形粒子的一些性质等工作同样也需要利用光镊技术从粒子的层次来进行研究。

总之,光镊可以直接操控分散体系中的粒子,可以方便地从粒子层次对分散体系的性质进行研究,这一特性使得光镊已经被成功地用来从粒子层次对分散体系中粒子之间的相互作用等性质进行研究。我们则利用光镊技术发展了一种新的实验研究方法,它可以从粒子层次研究分散体系中粒子的碰撞聚集等动力学过程。这些研究进展都表明了光镊技术在分散体系宏观性质的微观机制的研究中有广泛的应用前景,而光镊在分散体系中的进一步应用也必将推进胶体科学和光镊技术的发展。

## 本章参考文献

1. B.Vincent, "Dispersion stability in mixed solvent (aqueous/organic) media," *Adv. Colloid Interface Sci.* **42**, 279-302 (1992).
2. F.Galembeck, M.Braga, M.do C.V.M.da Silva, and A.H.Gardoso, "Latex coagulation induced by alcohol vapors: an unusual factor for colloidal instability," *Colloids Surf. A* **164**, 217-225 (2000).
3. T.Gu, and P.A.Galera-Gomez, "The effect of different alcohols and other polar organic additives on the cloud point of Triton X-100 in water," *Colloids Surf. A* **147**, 365-370 (1999).
4. M.Braga, M.do C.V.M.da Silva, A.H.Cardoso, and F.Galembeck, "Latex surface and bulk coagulation induced by solvent vapors," *J.Colloid Interface Sci.* **228**, 171-177 (2000).
5. G.Dobrescu, M.Crisan, M.Zaharescu, and N.I.Ionescu, "Fractal dimension determination of sol-gel powders using transmission electron microscopy images," *Mater. Chem. Phys.* **87**, 184-189 (2004).
6. L.S.Li, J.Jin, S.Yu, Y.Y.Zhao, C.X.Zhang, and T.J.Li, "Formation of branched fractal CdS patterns in oligomer LB monolayers: a study using transmission electron microscopy," *J.Phys.Chem.B* **102**, 5648-5652 (1998).
7. S.Y.Zhang, D.Y.Pan, and Z.Q.Wu, "In Situ plane-view and cross-sectional transmission electron microscopy of fractal formation in Au/a-Ge bilayer films," *Chin.Phys.Lett.* **19**, 828-831 (2002).
8. A.Y.Kim, and J.C.Berg, "Fractal aggregation: scaling of fractal dimension with stability ratio," *Langmuir* **16**, 2101-2104 (2000).

## 附录

论文中用到的一些程序：

(1) 第五章中计算光镊中两个粒子碰撞频率所用程序，为在 MatLab 中编写的函数。

```
function f=collision(t)
k=1.38*10^-23;
T=293;
yi ta=1.14*10^-3;
R=0.5*10^-6;
D=k*T/(6*pi*yi ta*R);
m=(4/3)*pi*(R^3)*1.05*10^3;
alfa=k*T/D;
gama=alfa/m;
Q=2*k*T*gama/m;
c=1.1*10^-6;
c2=1.002*10^-6;
% 一些计算中所需要用到的数值
a=0;
b=c2;
n=0;
l=1/t;
gangdu=0.1*10^-6;
gangdu2=1*10^-6;
velocity1=0;
velocity2=0;
y1=0;
y2=0;
z1=0;
z2=0;
vy1=0;
vy2=0;
vz1=0;
vz2=0;
velocity1=0;
velocity2=0;
%位置和速度等的初值
for j=1:l           %l 步循环
    x21=b-a;
```

```

y21=y2-y1;
z21=z2-z1;
r21=sqrt(x21^2+y21^2+z21^2);
cosa=x21/r21;
cosb=y21/r21;
cosc=z21/r21;
vxcenter=(veloci ty2+veloci ty1)/2;
vycenter=(vy1+vy2)/2;
vzcenter=(vz1+vz2)/2;
vx1relative=(veloci ty1-veloci ty2)/2;
vy1relative=(vy1-vy2)/2;
vz1relative=(vz1-vz2)/2;
vx2relative=(veloci ty2-veloci ty1)/2;
vy2relative=(vy2-vy1)/2;
vz2relative=(vz2-vz1)/2;
vrcenter=vxcenter*cosa+vycenter*cosb+vzcenter*cosc;
vccenter=sqrt(vxcenter^2+vycenter^2+vzcenter^2-vrcenter^2);
if vccenter==0
    cosacenter=0;
    cosbcenter=0;
    cosccenter=0;
else
    cosacenter=(vxcenter-vrcenter*cosa)/vccenter;
    cosbcenter=(vycenter-vrcenter*cosb)/vccenter;
    cosccenter=(vzcenter-vrcenter*cosc)/vccenter;
end

vof1r=vx1relative*cosa+vy1relative*cosb+vz1relative*cosc;
vof2r=vx2relative*cosa+vy2relative*cosb+vz2relative*cosc;
vof1c=sqrt(vx1relative^2+vy1relative^2+vz1relative^2-vof1r^2);
vof2c=sqrt(vx2relative^2+vy2relative^2+vz2relative^2-vof2r^2);

if vof1c==0
    cosac1=0;
    cosbc1=0;
    coscc1=0;
else
    cosac1=(vx1relative-vof1r*cosa)/vof1c;
    cosbc1=(vy1relative-vof1r*cosb)/vof1c;
    coscc1=(vz1relative-vof1r*cosc)/vof1c;
end

```

```

end
if vof2c==0
    cosac2=0;
    cosbc2=0;
    coscc2=0;
else
    cosac2=(vx2relative-vof2r*cosa)/vof2c;
    cosbc2=(vy2relative-vof2r*cosb)/vof2c;
    coscc2=(vz2relative-vof2r*cosc)/vof2c;
end
rou=r21/R;
Dprm=D*(1-3/(2*rou)+1/(rou^3)-15/(4*rou^4));
Dcrm=D*(1-3/(4*rou)-1/(2*rou^3));
Dpcm=D*(1+3/(2*rou)-1/(rou^3)-15/(4*rou^4));
Dccm=D*(1+3/(4*rou)+1/(2*rou^3));
%流体动力学相互作用的修正
arcenter=-((k*T)/(Dpcm*m))*vrcenter;
acccenter=-((k*T)/(Dccm*m))*vccenter;
ar1=-((k*T)/(Dprm*m))*vof1r;
ac1=-((k*T)/(Dcrm*m))*vof1c;
ar2=-((k*T)/(Dprm*m))*vof2r;
ac2=-((k*T)/(Dcrm*m))*vof2c;
a1x=(arcenter+ar1)*cosa+acccenter*cosacenter+ac1*cosac1;
a1y=(arcenter+ar1)*cosb+acccenter*cosbcenter+ac1*cosbc1;
a1z=(arcenter+ar1)*cosc+acccenter*cosccenter+ac1*coscc1;
a2x=(arcenter+ar2)*cosa+acccenter*cosacenter+ac2*cosac2;
a2y=(arcenter+ar2)*cosb+acccenter*cosbcenter+ac2*cosbc2;
a2z=(arcenter+ar2)*cosc+acccenter*cosccenter+ac2*coscc2;
u=rand(1);
v=rand(1);
temp1=a;
temp2=velocity1;
x=sqrt(-2*log(u))*cos(2*pi*v);
velocity1=temp2-gangdu*temp1*t/m+sqrt(Q*t)*x+t*a1x;
a=a+t*temp2;
u=rand(1);
v=rand(1);
temp1=y1;
temp2=vy1;
x=sqrt(-2*log(u))*cos(2*pi*v);

```



```

vy1=temp2-gangdu2*temp1*t/m+sqrt(Q*t)*x+t*a1y;
y1=y1+t*temp2;
u=rand(1);
v=rand(1);
temp1=z1;
temp2=vz1;
x=sqrt(-2*log(u))*cos(2*pi*v);
vz1=temp2-gangdu2*temp1*t/m+sqrt(Q*t)*x+t*a1z;
z1=z1+t*temp2;
u=rand(1);
v=rand(1);
temp1=b;
temp2=velocity2;
x=sqrt(-2*log(u))*cos(2*pi*v);
velocity2=temp2-gangdu*(temp1-c)*t/m+sqrt(Q*t)*x+t*a2x;
b=b+t*temp2;
u=rand(1);
v=rand(1);
temp1=y2;
temp2=vy2;
x=sqrt(-2*log(u))*cos(2*pi*v);
vy2=temp2-gangdu2*temp1*t/m+sqrt(Q*t)*x+t*a2y;
y2=y2+t*temp2;
u=rand(1);
v=rand(1);
temp1=z2;
temp2=vz2;
x=sqrt(-2*log(u))*cos(2*pi*v);
vz2=temp2-gangdu2*temp1*t/m+sqrt(Q*t)*x+t*a2z;
z2=z2+t*temp2; %粒子单步运动后的位置和速度
s=sqrt((a-b)^2+(y1-y2)^2+(z1-z2)^2);
if s<1*10^-6 %判断是否发生碰撞
    n=n+1;
    a=0;
    b=c2;
    velocity1=0;
    velocity2=0;
    y1=0;
    y2=0;
    z1=0;

```

```
z2=0;  
vy1=0;  
vy2=0;  
vz1=0;  
vz2=0;  
end  
end  
f=n;
```

(2) 光镊只捕获一个粒子情况下粒子在不同位置的轴向受力计算,用以得到光镊捕获一个粒子情况下粒子的平衡位置,在Mathematica中编写,这个程序在第七章和第八章都需要用到。

```

rb=1*10^-6;
zcg=-3*rb;          (*zcg的值,在文章中,这个值分别取了-3rb和-4rb进行了模拟*)
nw=1.33;
ng=1.516;
nb=1.55;
w0=0.5*10^-6;
alfa=Pi/4;
NA=1.25;
roup=w0;           (*设定参数*)
fenmu=NIntegrate[2*Pi*rou*Exp[-2*rou^2/w0^2],{rou,0,roup}];      (*入射光功率*)
Plot[Function[zb,j=5000;                                       (*作图*)
  fenzi=0;
  For[i=1,i<j,rou=i*roup/j;yita=rou/roup;
    fai=ArcSin[NA*yita/nw];
    deltaz=zcg*(1-(nw/ng)*Sqrt[(1-yita^2*NA^2/nw^2)/(1-yita^2*NA^2/ng^2)]);
    thita=-1 ArcSin[Sin[fai]*(zb-deltaz)/rb];
    r=ArcSin[Sin[thita]*nw/nb];
    Rp=(Tan[thita-r])^2/(Tan[thita+r])^2;
    Rc=(Sin[thita-r])^2/(Sin[thita+r])^2;
    Tp=Sin[2*thita]*Sin[2*r]/((Sin[thita+r])^2*(Cos[thita-r])^2);
    Tc=Sin[2*thita]*Sin[2*r]/(Sin[thita+r])^2;
    Qsp=1+Rp*Cos[2*thita]-(Tp^2*(Cos[2*thita-2*r]+Rp*Cos[2*thita]))/(1+Rp^2+2*Rp*Cos[2*r]);
    Qgp=Rp*Sin[2*thita]-(Tp^2*(Sin[2*thita-2*r]+Rp*Sin[2*thita]))/(1+Rp^2+2*Rp*Cos[2*r]);
    Qsc=1+Rc*Cos[2*thita]-(Tc^2*(Cos[2*thita-2*r]+Rc*Cos[2*thita]))/(1+Rc^2+2*Rc*Cos[2*r]);
    Qgc=Rc*Sin[2*thita]-(Tc^2*(Sin[2*thita-2*r]+Rc*Sin[2*thita]))/(1+Rc^2+2*Rc*Cos[2*r]);
    Qs=0.5*(Qsp+Qsc);
    Qg=0.5*(Qgp+Qgc);
    Qz=Qs*Cos[fai]-Qg*Sin[fai];
    Qz=Qz*2*Pi*rou*Exp[-2*rou^2/w0^2];
    If[yita^2*NA^2/nw^2<1&&Sin[fai]*(zb-deltaz)/rb<1&&Sin[fai]*(zb-deltaz)/rb>-1,fenzi=fenzi+Qz
    *roup/j];          (*如果光线进入粒子,则求和*)
  i++];
fenzi=fenzi/fenmu][a],{a,-5 rb,2 rb}]

```

(3) 第七章中对光镊捕获的第二个粒子的受力情况的计算程序, 第七章中光镊作用势能曲线为受力的积分。程序在Mathematica中编写。

```

rb=1*10^-6;
zcg=-3*rb; (*第七章中zcg的值, 对第七章的结果, 这个值分别
取了-3rb和-4rb, 分别进行了模拟*)

nw=1.33;
ng=1.516;
nb=1.55;
w0=0.5*10^-6;
roup=w0;
fenmu=NIntegrate[2*Pi*rou*Exp[-2*rou^2/w0^2],{rou,0,roup}]; (*入射光功率*)
zbequi=-0.5696172 rb; (*第一个粒子所处位置, 在第七章中计算第二个粒子
受力的情形, 这个值有两种不同的取值, 第一种为光
镊只捕获一个粒子时粒子的平衡位置, 第二种为第一
个粒子所处的两个粒子共同平衡位置*)

NA=1.25;
alfa=Pi/4; (*以上为设定参数*)
mmm=Array[f,1000]; (*设定空的数组, 在后面将其赋值为不同位置处第二
个粒子的受力*)

For[kkk=1, kkk<1001, a=(zbequi+2*rb)/rb+2*kkk/1000;
  f[kkk]=Function[zbtimes,
    zb2=zbtimes*rb;
    zb=zb2-2 rb; (*这个例子表示的是第一个粒子和第二个粒子一直紧
贴的情况, 对第一个粒子的位置重新赋值, 如果第一
个粒子处于原先的位置不变, 则不需要该语句*)

    j=5000;
    fenzi2=0;
    For[i=1, i<j, rou=i*roup/j; yita=rou/roup; If[yita^2*NA^2/nw^2<1, (*循环求和算作用力*)
      fai=ArcSin[NA*yita/nw];
      deltaz=zcg*(1-(nw/ng)*Sqrt[(1-yita^2*NA^2/nw^2)/(1-yita^2*NA^2/ng^2)]);
      If[Sin[fai]*(zb-deltaz)/rb>1||Sin[fai]*(zb-deltaz)/rb<-1, (*如果入射光线不进入第
一个粒子*)
        If[Sin[fai]*(zb2-deltaz)/rb<1&&Sin[fai]*(zb2-deltaz)/rb>-1, (*如果该入射光线进入
第二个粒子*)
          thita2=-1 ArcSin[Sin[fai]*(zb2-deltaz)/rb];
          r2=ArcSin[Sin[thita2]*nw/nb];
          Rp2=(Tan[thita2-r2])^2/(Tan[thita2+r2])^2;

```

$$\begin{aligned}
Rc2 &= (\sin[\text{thita2}-r2])^2 / (\sin[\text{thita2}+r2])^2; \\
Tp2 &= \sin[2*\text{thita2}] * \sin[2*r2] / ((\sin[\text{thita2}+r2])^2 * (\cos[\text{thita2}-r2])^2); \\
Tc2 &= \sin[2*\text{thita2}] * \sin[2*r2] / (\sin[\text{thita2}+r2])^2; \\
Qsp2 &= 1 + Rp2 * \cos[2*\text{thita2}] - (Tp2^2 * (\cos[2*\text{thita2}-2*r2] + Rp2 * \cos[2*\text{thita2}])) / (1 + Rp2^2 + 2*Rp2 * \cos[2*r2]); \\
Qgp2 &= Rp2 * \sin[2*\text{thita2}] - (Tp2^2 * (\sin[2*\text{thita2}-2*r2] + Rp2 * \sin[2*\text{thita2}])) / (1 + Rp2^2 + 2*Rp2 * \cos[2*r2]); \\
Qsc2 &= 1 + Rc2 * \cos[2*\text{thita2}] - (Tc2^2 * (\cos[2*\text{thita2}-2*r2] + Rc2 * \cos[2*\text{thita2}])) / (1 + Rc2^2 + 2*Rc2 * \cos[2*r2]); \\
Qgc2 &= Rc2 * \sin[2*\text{thita2}] - (Tc2^2 * (\sin[2*\text{thita2}-2*r2] + Rc2 * \sin[2*\text{thita2}])) / (1 + Rc2^2 + 2*Rc2 * \cos[2*r2]); \\
Qs2 &= 0.5 * (Qsp2 + Qsc2); \\
Qg2 &= 0.5 * (Qgp2 + Qgc2); \\
Qz2 &= Qs2 * \cos[\text{fai2}] - Qg2 * \sin[\text{fai2}]; \\
Qz2 &= Qz2 * 2 * \text{Pi} * \text{rou} * \text{Exp}[-2 * \text{rou}^2 / \text{w0}^2]; \\
\text{fenzi2} &= \text{fenzi2} + Qz2 * \text{roup} / j, \quad (*\text{计算作用力}*)
\end{aligned}$$

(\*如果入射光线进入第二个粒子\*)

$$\begin{aligned}
\text{thita} &= -1 \text{ ArcSin}[\sin[\text{fai}] * (\text{zb} - \text{deltaz}) / \text{rb}]; \\
r &= \text{ArcSin}[\sin[\text{thita}] * \text{nw} / \text{nb}]; \\
Rp &= (\tan[\text{thita}-r])^2 / (\tan[\text{thita}+r])^2; \\
Rc &= (\sin[\text{thita}-r])^2 / (\sin[\text{thita}+r])^2; \\
Tp &= \sin[2*\text{thita}] * \sin[2*r] / ((\sin[\text{thita}+r])^2 * (\cos[\text{thita}-r])^2); \\
Tc &= \sin[2*\text{thita}] * \sin[2*r] / (\sin[\text{thita}+r])^2;
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\text{fai2} &= \text{Pi} + \text{fai} + 2 * \text{thita}; \\
\text{fai2} &= \text{ArcCos}[\cos[\text{fai2}]];
\end{aligned}$$

(\*考虑反射光线\*)

$$\begin{aligned}
\text{If}[\text{fai2} < \text{Pi} / 2, \\
zz &= \text{rb} * \sin[\text{thita}] / \sin[\text{Pi} + \text{fai} + 2 * \text{thita}]; \text{deltaz2} = zz + \text{zb}; \\
\text{If}[\sin[\text{fai2}] * (\text{zb2} - \text{deltaz2}) / \text{rb} < 1 \&\& \sin[\text{fai2}] * (\text{zb2} - \text{deltaz2}) / \text{rb} > -1,
\end{aligned}$$

(\*如果反射光线进入第二个粒子\*)

$$\begin{aligned}
\text{thita2} &= -1 \text{ ArcSin}[\sin[\text{fai2}] * (\text{zb2} - \text{deltaz2}) / \text{rb}]; \\
r2 &= \text{ArcSin}[\sin[\text{thita2}] * \text{nw} / \text{nb}]; \\
Rp2 &= (\tan[\text{thita2}-r2])^2 / (\tan[\text{thita2}+r2])^2; \\
Rc2 &= (\sin[\text{thita2}-r2])^2 / (\sin[\text{thita2}+r2])^2; \\
Tp2 &= \sin[2*\text{thita2}] * \sin[2*r2] / ((\sin[\text{thita2}+r2])^2 * (\cos[\text{thita2}-r2])^2); \\
Tc2 &= \sin[2*\text{thita2}] * \sin[2*r2] / (\sin[\text{thita2}+r2])^2; \\
Qsp2 &= 1 + Rp2 * \cos[2*\text{thita2}] - (Tp2^2 * (\cos[2*\text{thita2}-2*r2] + Rp2 * \cos[2*\text{thita2}])) / (1 + Rp2^2 + 2*Rp2 * \cos[2*r2]); \\
Qgp2 &= Qsp2 * Rp; \\
Qgp2 &= Rp2 * \sin[2*\text{thita2}] - (Tp2^2 * (\sin[2*\text{thita2}-2*r2] + Rp2 * \sin[2*\text{thita2}])) / (1 + Rp2^2 + 2*Rp2 * \cos[2*r2]); \\
Qgp2 &= Qgp2 * Rp;
\end{aligned}$$

$$Q_{sc2} = 1 + R_{c2} * \cos[2 * \theta_{i2}] - (T_{c2}^2 * (\cos[2 * \theta_{i2} - 2 * r_2] + R_{c2} * \cos[2 * \theta_{i2}])) / (1 + R_{c2}^2 + 2 * R_{c2} * \cos[2 * r_2]);$$

$$Q_{sc2} = Q_{sc2} * R_c;$$

$$Q_{gc2} = R_{c2} * \sin[2 * \theta_{i2}] - (T_{c2}^2 * (\sin[2 * \theta_{i2} - 2 * r_2] + R_{c2} * \sin[2 * \theta_{i2}])) / (1 + R_{c2}^2 + 2 * R_{c2} * \cos[2 * r_2]);$$

$$Q_{gc2} = Q_{gc2} * R_c;$$

$$Q_s2 = 0.5 * (Q_{sp2} + Q_{sc2});$$

$$Q_g2 = 0.5 * (Q_{gp2} + Q_{gc2});$$

$$Q_z2 = Q_s2 * \cos[\theta_{i2}] - Q_g2 * \sin[\theta_{i2}];$$

$$Q_z2 = Q_z2 * 2 * \pi * \rho_u * \exp[-2 * \rho_u^2 / w_0^2];$$

$$f_{enzi2} = f_{enzi2} + Q_z2 * \rho_u / j];$$

$$cc = T_c^2;$$

$$pp = T_p^2;$$

For[ii=1, ii<20, (\*对折射光线进行求和，忽略折射光线功率很小的情况\*)

$$\theta_{i2} = \theta_{i1} + \theta_{i2} - r_2 + (ii-1) * (-\pi - 2r_2);$$

$$\theta_{i2} = \arccos[\cos[\theta_{i2}]];$$

If[\theta\_{i2} < \pi/2,

$$zz = r_b * \sin[\theta_{i2}] / \sin[2 * \theta_{i2} + \theta_{i2} - r_2 + (ii-1) * (-\pi - 2r_2)];$$

$$\Delta z_2 = zz + z_b;$$

If[\sin[\theta\_{i2}] \* (z\_b - \Delta z\_2) / r\_b < 1 && \sin[\theta\_{i2}] \* (z\_b - \Delta z\_2) / r\_b > -1,

(\*如果折射光线进入第二个粒子\*)

$$\theta_{t2} = -1 * \arcsin[\sin[\theta_{i2}] * (z_b - \Delta z_2) / r_b];$$

$$r_2 = \arcsin[\sin[\theta_{t2}] * n_w / n_b];$$

$$R_{p2} = (\tan[\theta_{t2} - r_2])^2 / (\tan[\theta_{t2} + r_2])^2;$$

$$R_{c2} = (\sin[\theta_{t2} - r_2])^2 / (\sin[\theta_{t2} + r_2])^2;$$

$$T_{p2} = \sin[2 * \theta_{t2}] * \sin[2 * r_2] / ((\sin[\theta_{t2} + r_2])^2 * (\cos[\theta_{t2} - r_2])^2);$$

$$T_{c2} = \sin[2 * \theta_{t2}] * \sin[2 * r_2] / (\sin[\theta_{t2} + r_2])^2;$$

$$Q_{sp2} = 1 + R_{p2} * \cos[2 * \theta_{t2}] - (T_{p2}^2 * (\cos[2 * \theta_{t2} - 2 * r_2] + R_{p2} * \cos[2 * \theta_{t2}])) / (1 + R_{p2}^2 + 2 * R_{p2} * \cos[2 * r_2]);$$

$$1 + R_{p2}^2 + 2 * R_{p2} * \cos[2 * r_2];$$

$$Q_{sp2} = Q_{sp2} * pp;$$

$$Q_{gp2} = R_{p2} * \sin[2 * \theta_{t2}] - (T_{p2}^2 * (\sin[2 * \theta_{t2} - 2 * r_2] + R_{p2} * \sin[2 * \theta_{t2}])) / (1 + R_{p2}^2 + 2 * R_{p2} * \cos[2 * r_2]);$$

$$1 + R_{p2}^2 + 2 * R_{p2} * \cos[2 * r_2];$$

$$Q_{gp2} = Q_{gp2} * pp;$$

$$Q_{sc2} = 1 + R_{c2} * \cos[2 * \theta_{t2}] - (T_{c2}^2 * (\cos[2 * \theta_{t2} - 2 * r_2] + R_{c2} * \cos[2 * \theta_{t2}])) / (1 + R_{c2}^2 + 2 * R_{c2} * \cos[2 * r_2]);$$

$$1 + R_{c2}^2 + 2 * R_{c2} * \cos[2 * r_2];$$

$$Q_{sc2} = Q_{sc2} * cc;$$

$$Q_{gc2} = R_{c2} * \sin[2 * \theta_{t2}] - (T_{c2}^2 * (\sin[2 * \theta_{t2} - 2 * r_2] + R_{c2} * \sin[2 * \theta_{t2}])) / (1 + R_{c2}^2 + 2 * R_{c2} * \cos[2 * r_2]);$$

$$1 + R_{c2}^2 + 2 * R_{c2} * \cos[2 * r_2];$$

$$Q_{gc2} = Q_{gc2} * cc;$$

$$Q_s2 = 0.5 * (Q_{sp2} + Q_{sc2});$$

```
Qg2=0.5*(Qgp2+Qgc2);
Qz2=Qs2*Cos[fai2]-Qg2*Sin[fai2];
Qz2=Qz2*2*Pi*rou*Exp[-2*rou^2/w0^2];

fenzi2=fenzi2+Qz2*roup/j]];

cc=cc*Rc;pp=pp*Rp;    (*下一个折射光线的功率变化*)
ii++]];
i++;
fenzi2=fenzi2/fenmu][a];
kkk++;                (*循环*)
Export["1.txt",mmm,"List"]    (*将结果输出*)
```

(4) 第八章中环形光对粒子的横向作用力的计算程序, 在 Mathematica 中编写。

```

rb=1*10^-6;
zcg=-3*rb;
nw=1.33;
ng=1.516;
nb=1.55;
w0=0.5*10^-3;
roup=w0;
zb2=-0.7796*10^-6; (*粒子的轴向捕获位置*)

fenmu=NIntegrate[2*Pi*rou*(2*rou^2/w0^2)^2*Exp[-2*rou^2/w0^2],{rou,0,roup}]; (*入射光功率,对空
心高斯光,拉盖尔-高
斯光,和实心高斯光,
积分形势和范围都不
同*)

mmm=Array[f,500]; (*设定空的数组,在后面将其赋值为不同位置处的横向受力*)
For[kkk=1,kkk<501,a=2*kkk/500;
  f[kkk]=Function[timeszb,j=500;
    fenzi=0;
    x=timeszb*rb; (*不同的横向偏移量*)
    For[i=1,i<j,rou=i*roup/j;yita=rou/roup;
      NA=1.25;

      fenzi2=0;jofbeita=500;
      For[ii=1,ii<jofbeita,beita=Pi*ii/jofbeita;

        If[yita^2*NA^2/nw^2<1,
          fai=ArcSin[NA*yita/nw];
          deltaz=zcg*(1-(nw/ng)*Sqrt[(1-yita^2*NA^2/nw^2)/(1-yita^2*NA^2/ng^2)]);
          If[(2*(zb2-deltaz)*Tan[fai]^2+2*x*Tan[fai]*Cos[beita])^2-4*(Tan[fai]^2+1)*((zb2-deltaz)^2
            *Tan[fai]^2+x^2+2*x*(zb2-deltaz)*Tan[fai]*Cos[beita]-rb^2)>0,
            (* 如果光线入射到小球上 *)
            zofsecond=(-Sqrt[(2*(zb2-deltaz)*Tan[fai]^2+2*x*Tan[fai]*Cos[beita])^2-4*(Tan[fai]^2+1
              )*((zb2-deltaz)^2*Tan[fai]^2+x^2+2*x*(zb2-deltaz)*Tan[fai]*Cos[beita]-rb^2)]-(2*(zb2-de
                ltaz)*Tan[fai]^2+2*x*Tan[fai]*Cos[beita]))/(2*Tan[fai]^2+2);
            (*第八章中图8.1上z的值*)
            rouofbottom=(deltaz-zcg)*Tan[fai];
            leftshubian=deltaz-zcg+zb2-deltaz+zofsecond;
            leftline=leftshubian/Cos[fai];

            rightshubian=deltaz-zcg+zb2-deltaz;
            righthengbian=Sqrt[rouofbottom^2+x^2-2*x*rouofbottom*Cos[beita]];

```



```

rightline=.Sqrt[rightshubian^2+righthengbian^2];
gama=ArcCos[righthengbian/rightline];
inputx=-Sin[fai]*Cos[beita];
inputy=Sin[fai]*Sin[beita];
inputz=Cos[fai];
thitain=-ArcCos[Abs[(rb^2+leftline^2-rightline^2)/(2*rb*leftline)]];
(*入射角*)
zjiao=ArcCos[(leftline^2+rightline^2-rb^2)/(2*leftline*rightline)];
verinline=leftline*Tan[zjiao];
cutofright=leftline/Cos[zjiao];
cut=rightline-cutofright;
sinverinline=-zofsecond-cut*Sin[gama];
verinputz=sinverinline/verinline;
verlineonxy=.Sqrt[verinline^2-sinverinline^2];
verinlinexy=verlineonxy*(deltaz-zcg+zb2-deltaz)/(deltaz-zcg+zb2-deltaz-cut*Sin[gama]);
verleft=(deltaz-zcg+zb2-deltaz+zofsecond)*Tan[fai]*(deltaz-zcg+zb2-deltaz)/(deltaz-zcg+z
b2-deltaz-cut*Sin[gama]);
jiao1=ArcCos[(verleft^2+verinlinexy^2-righthengbian^2)/(2*verleft*verinlinexy)];If[x>0,
jiaodu=jiao1-beita,jiaodu=jiao1+beita];
verinputx=-1 Cos[jiaodu]*verlineonxy/verinline;
(*计算散射力和梯度力方向向x方向的投影角*)
thita2=thitain;
r2=ArcSin[Sin[thita2]*nw/nb];
Rp2=(Tan[thita2-r2])^2/(Tan[thita2+r2])^2;
Rc2=(Sin[thita2-r2])^2/(Sin[thita2+r2])^2;
Tp2=Sin[2*thita2]*Sin[2*r2]/((Sin[thita2+r2])^2*(Cos[thita2-r2])^2);
Tc2=Sin[2*thita2]*Sin[2*r2]/(Sin[thita2+r2])^2;
Qsp2=1+Rp2*Cos[2*thita2]-(Tp2^2*(Cos[2*thita2-2*r2]+Rp2*Cos[2*thita2]))/(1+Rp2^2+
2*Rp2*Cos[2*r2]);
Qgp2=Rp2*Sin[2*thita2]-(Tp2^2*(Sin[2*thita2-2*r2]+Rp2*Sin[2*thita2]))/(1+Rp2^2+2*R
p2*Cos[2*r2]);
Qsc2=1+Rc2*Cos[2*thita2]-(Tc2^2*(Cos[2*thita2-2*r2]+Rc2*Cos[2*thita2]))/(1+Rc2^2+2
*Rc2*Cos[2*r2]);
Qgc2=Rc2*Sin[2*thita2]-(Tc2^2*(Sin[2*thita2-2*r2]+Rc2*Sin[2*thita2]))/(1+Rc2^2+2*R
c2*Cos[2*r2]);
Qs2=0.5*(Qsp2+Qsc2);
Qg2=0.5*(Qgp2+Qgc2);
Qx2=Qs2*inputx+Qg2*verinputx;
Qx2=Qx2*rou*(2*rou^2/w0^2)^2*Exp[-2*rou^2/w0^2];fenzi2=fenzi2+Qx2*Pi/jofbeita]]
;
ii++;
fenzi=fenzi+fenzi2*roup/j;
i++;
fenzi=fenzi/fenmu][a]; (*求和*)

```

```
kkk++];  
Export["1.txt",mmm,"List"]
```

(\*输出\*)

## 攻读学位期间发表的论文

发表论文：

1. **S.H.Xu**, Y.M.Li, L.R.Lou, H.T.Chen, and Z.W.Sun, “Steady patterns of microparticles formed by optical tweezers,” *Jpn.J.Appl.Phys.* **41**, 166-168 (2002).
2. **S.H.Xu**, Y.M.Li, L.R.Lou, and Z.W.Sun, “Computer simulation of the collision frequency of two particles in optical tweezers,” *Chin.Phys.* **14**, 382-385 (2005).
3. **S.H.Xu**, L.R.Lou, Y.M.Li, and Z.W.Sun, “On the aggregation kinetics of two particles trapped in an optical tweezers,” *Colloids Surf. A* **225**, 159-163 (2005).
4. **S.H.Xu**, Y.M.Li, and L.R.Lou, “Axial optical trapping forces on two particles trapped simultaneously by optical tweezers,” *Appl.Opt.* 已接收
5. Z.W.Sun, **S.H.Xu**, G.L.Dai, Y.M.Li, L.R.Lou, Q.S.Liu, and R.Z.Zhu, “A microscopic approach to studying colloidal stability,” *J.Chem.Phys.* **119**, 2399-2405 (2003).
6. Z.W.Sun, **S.H.Xu**, J.Liu, Y.M.Li, L.R.Lou, and J.C.Xie, “Improved procedure on the microscopic approach to determine colloidal stability,” *J.Chem.Phys.* 已接收
7. 孙玉芬,徐升华,李银妹,楼立人, “受限分散体系中粒子扩散特性的研究,” *力学学报* **36**, 739-743 (2004).
8. Z.W.Sun, Y.M.Li, **S.H.Xu**, L.R.Lou, G.L.Dai, and X.Q.Dong, “A direct test on the possibility of an aggregate in dispersion being disrupted by shear flow,” *J.Colloid Interface Sci.* **242**, 158-163 (2001).
9. 徐升华, 李银妹, 楼立人, “光镊--研究分散体系的新手段,” *激光与光电子学进展*, **40**, 28-33 (2003).
10. Z. Gong, H.T.Chen, **S.H.Xu**, Y.M.Li, and L.R.Lou, “Influence of the bandwidth of an acquisition system on the trap stiffness measurement,” *Proceedings of SPIE*

## 致谢

本论文的工作是在导师楼立人教授和李银妹教授的亲切关怀和悉心指导下完成的。在实验室的这些年中，导师们严肃的科学态度、严谨的治学精神，精益求精的工作作风，诲人不倦的师道品格深深地感染和激励着我。楼老师学识渊博，思想深邃，每次和楼老师讨论问题，我所获得的知识总能高于我的期望，让我能够在学习和研究上快速地进步。李老师严以律己、工作极其敬业，她总是教育我在工作上不能有任何的马虎，同时她对人的关怀无微不至，从她身上我也学到了很多为人处世的道理。在此，谨向两位导师表示崇高的敬意和衷心的感谢。

特别要感谢中国科学院力学研究所孙祉伟教授。是他将我带到我原本一窍不通的分散体系领域，让我能够在这一领域进行研究，完成我的毕业论文。孙老师思路开阔，在理论和实验上都有深厚的功底，他也让我学到了很多新的思考方式和研究方法。

在实验室的这五年来，师兄弟姐妹在研究上都给了我很多关心和帮助，而平常大家的随意交流和娱乐活动也让我充分感受到实验室融洽的氛围，这些都缓解了我的工作压力，让我能够轻松地进行研究。

感谢在分散体系小组和我一同工作过的张文静硕士、孟炳寰硕士和已经毕业的孙玉芬硕士。他们也承担了我的毕业论文中的部分重要的工作。感谢选键小组的同学对我们小组工作的配合，没有他们的配合，我的毕业论文的很多工作将无法完成。感谢王浩威老师，龚鏊博士，已经毕业的陈洪涛博士，王康俊硕士等同学，在我的研究过程中，他们都提了很多宝贵的建议。

感谢我的父母，他们给了我最最无私地关心、帮助和鼓励，没有他们，我不可能顺利完成我的工作。

感谢我的女友，我研究中遇到任何问题，她都能给予我勇气和力量，我工作中的酸甜苦辣，她都能和我一同品尝。

感谢那些所有我应该感谢但却无法在这里一一列出的人。

“天下无不散之筵席”，在我即将毕业之时，祝愿实验室永远充满生机，蓬勃发展，祝愿师长和同学们工作顺利，事事如意。希望在不久的将来，我能再为实验室贡献力量。

徐升华

二零零五年四月于中国科学技术大学