

中国科学技术大学
UNIVERSITY OF SCIENCE AND TECHNOLOGY OF CHINA

博士学位论文



论文题目 光镊的理论模型及纳米颗粒的操纵

作者姓名 周 金 华

学科专业 光 学

导师姓名 郭光灿 教授 李银妹 教授

完成时间 二 〇 一 〇 年 四 月

中国科学技术大学
博士学位论文



光镊的理论模型及纳米
颗粒的操纵

作者姓名: 周金华
学科专业: 光学
导师姓名: 郭光灿 教授 李银妹 教授
完成时间: 二〇一〇年四月二十日

University of Science and Technology of China
A dissertation for doctor's degree



**Theoretical Model of Optical Tweezers
and Manipulation of Nanoparticles**

Author: Jinhua Zhou

Speciality: Optics

Supervisor: Prof. Guangcan Guo Prof. Yinmei Li

Finished time: April 20th, 2010

中国科学技术大学学位论文原创性声明

本人声明所提交的学位论文,是本人在导师指导下进行研究工作所取得的成果。除已特别加以标注和致谢的地方外,论文中不包含任何他人已经发表或撰写过的研究成果。与我一同工作的同志对本研究所做的贡献均已在论文中作了明确的说明。

作者签名: 周金华

签字日期: 2010.5.29

中国科学技术大学学位论文授权使用声明

作为申请学位的条件之一,学位论文著作权拥有者授权中国科学技术大学拥有学位论文的部分使用权,即:学校有权按有关规定向国家有关部门或机构送交论文的复印件和电子版,允许论文被查阅和借阅,可以将学位论文编入有关数据库进行检索,可以采用影印、缩印或扫描等复制手段保存、汇编学位论文。本人提交的电子文档的内容和纸质论文的内容相一致。

保密的学位论文在解密后也遵守此规定。

公开 保密 (____年)

作者签名: 周金华

导师签名: 张

签字日期: 2010.5.29

签字日期: 2010.5.29

摘要

在微/纳尺度上操纵颗粒和测量微小力学量，能帮助我们了解DNA弹性和蛋白折叠等生物大分子的力学信息，从单颗粒层次上研究流体动力学作用，以及研究微/纳尺度上组装和传动微型机器。在众多的微/纳操纵技术中，光镊技术具有纳米级位移和飞牛量级测量精度的独特优势，广泛应用于单分子、胶体和纳米科学等领域。

在各种应用中，最常用光镊的方式为基于高数值孔径物镜的单光束梯度力阱，实现远场操纵微粒。为了更好的理解和运用光镊技术，理论研究光阱对微粒的俘获机理和光阱参数对光阱力的影响，对于完善光镊理论模型，提升现有光镊性能并付诸于实际应用具有重要的意义。当微粒尺度小到纳米尺度，光阱难以束缚它。光镊操纵纳米颗粒不仅是对光镊设备性能的挑战，而且在纳米流变学、纳米组装、胶体体系和表面增强拉曼散射信号上有着重要应用。

本论文主要研究了矢量光线追迹的RO模型和矢量衍射-矩量法的EM模型，利用矢量衍射理论，分析了在光阱中纳米颗粒的辐射力与光镊参数的关系，并从实验上探索三维操纵纳米颗粒。在低信噪比情形下，我们研究了自相关函数标定颗粒的光阱刚度，它适用于标定纳米颗粒的光阱刚度。

关于RO模型的理论研究中，本论文应用矢量光线追迹方法，统一分析三维方向上光阱力，简化了RO模型的计算。结合空间矢量和矩阵的计算方法，它能有效地分析偏振光束对颗粒的光阱力，弥补传统RO模型的不足。在此基础上，我们分析了玻璃-水界面球差引起的矢量光线追迹，利用坐标旋转的方法，实现对任意形状颗粒的光阱力及应力张量和力矩的计算。对于长杆状颗粒，球差并不随俘获深度增大时降低光阱对它的轴向俘获力，不规则颗粒在光阱作用的力矩下，自动调整到颗粒长轴与光轴平行的方位，这一方法拓展了传统RO模型的适应范围。

有关光镊的EM模型的理论研究中，本论文提出了矢量衍射-矩量法的EM模型。这一模型分成聚焦光束的场分布、电磁散射后总场的分布和计算辐射力三个独立的部分。这一模型在改变参数时，能减少计算工作量，例如改变入射激光光束截面和物镜数值孔径等参数，无需计算反映微粒特性的矩阵元。通过模拟计算，

得出在光阱中无法稳定俘获较大尺度的高折射率颗粒的结论。基于这一理论计算平台中，通过 Rayleigh 近似我们直接计算了纳米颗粒的辐射力，并研究纳米颗粒的辐射力与各参数的关系，得出在短波长、高数值孔径物镜和最佳光束分布时光阱俘获纳米颗粒的力最大。通过这些理论模拟，为我们三维操纵纳米颗粒的实验提供理论依据。

根据前述辐射力的理论分析，本论文提出暗场照明光镊，实现实时观察三维主动操纵纳米颗粒。根据观察的需要，我们采用横向激光暗场照明，实现宽视场、实时和长时间观察纳米颗粒，并动态观察三维操纵纳米颗粒过程。由于观察和操纵纳米颗粒在俘获深度的相互限制，我们引入机械筒长失配的球差补偿，在较大俘获深度上的增强光阱力，实现在光学显微镜下清晰观察三维操纵直径 70nm 的颗粒。

由于纳米颗粒的光阱力很弱，容易受到外界噪声的影响，它的刚度测量上需要尽可能降低这方面的影响。我们研究了自相关函数测量纳米颗粒的光阱刚度，作为方法的验证，在滤波和引入外界噪声等方面比较了功率谱法和自相关函数标定刚度的差异，具体分析导致了差异的原因。刚度标定的方法在光镊应用中非常重要，如何实现原位和实时标定刚度，不仅能简化实验过程，还能准确反映测量中瞬时的力学信息。

本论文从理论上较系统地研究 RO 模型和 EM 模型，建立一套在微/纳米尺度上计算光阱力的方法。理论方法的建立有助于我们更好地理解微粒在光阱中的行为，指导实验设计和分析实验中遇到的问题。实验研究中我们提出暗场照明光镊并实现纳米粒子的俘获，分析了自相关函数标定刚度与实验各因素的关系。这些研究将拓展光镊应用于纳米领域。

关键词：光镊；几何光学模型；电磁模型；纳米颗粒；暗场；自相关函数

ABSTRACT

Manipulation of particle on the micro/nano scale conveys the information of mechanical characteristics of signal molecules, such as researches on DNA elasticity, protein folding etc. The manipulation also facilitates the investigations of hydrodynamic interaction at the single particle level and assembling micro/nano machine. Among many technologies of manipulation, optical tweezers as a non-contact trap way have unique advantages: nanometer resolution on displacement and femtonewton resolution on force. This technology is widely applied in single molecules, colloid and nanotechnology fields.

In various applications, optical tweezers, a single-beam gradient force trap, are based on a high numerical aperture objective and used to manipulate particle in far field. To apply optical tweezers better, theoretical investigation between parameters and forces is significant in comprehending mechanism of trap and improving optical tweezers model. From theoretical analyses, we can improve the performance of optical tweezers, which is very important in application. When the particle is reduced to nano-size, optical trap can hardly hold it. Manipulating nanoparticle is not only a challenge for optical tweezers but also has important applications in nanorheology, nano-assembling, colloid and surface-enhanced Raman scattering.

In this thesis, we applied a vectorial ray-tracing method in ray-optics (RO) model and combined the vectorial diffraction (VD) and moment of method (MOM) in electromagnetic (EM) model for calculating forces. Using VD theory, we analyzed the relations between the radiation forces on nanoparticles and parameters of optical trap. Under the theoretical guidance, we explored experimentally manipulating nanoparticles in three dimensions. Meanwhile, we demonstrated that the stiffness of nanoparticles can be calibrated by a method using autocorrelation function (ACF) for system with low signal-noise ratio.

With our presented vectorial ray-tracing method, the analysis of optical forces in three dimensions are unified, it simplifies the calculation in RO model. The ray-tracing is implemented by spatial vectors and rotation matrixes. It is appropriate to calculate optical forces from focused polarized beam, and avoids the defects in traditional RO model. Based on vectorial ray-tracing and rotating coordinate system, the forces of arbitrary shape particle can be calculated in the case of sphere aberration in a glass-water interface. The optical forces, tensor and torque of spheroid particles have been simulated. For a rod particle, the axial optical force decreases little with trap depth increasing. The irregular particle in an optical trap will adjust itself to align its long axis parallel to optical axis. The vectorial ray-tracing extends traditional RO model in applications.

Our EM model of VDMOM is divided into three parts of calculation: field

distribution of focused beam, total field after electromagnetic scattering and radiation forces. When some parameters, such as beam profile and objective numerical aperture (NA), are changed, this model avoids repetitive calculation of matrix elements, which originates from characteristics of particle. Our simulation results demonstrated that an optical trap can't hold a micro-sized particle with high refractive index in the axial direction. When particle size is reduced to nano-size, the trap can hold nanoparticle stably. With Rayleigh approximation, we have investigated the relation between radiation forces on nanoparticles and parameters of the optical trap. To obtain maximum force, the parameters should be selected at short wavelength, high NA, optimal beam profile. This simulation results will help us to manipulating nanoparticles in three dimensions in the following experiments.

To observe nanoparticles in a conventional microscope and manipulate them, we presented a dark-field-illumination optical tweezers, in which the direction of a lateral illumination laser was perpendicular to the optical axis of the microscope. The manipulation of nanoparticles can be monitored in wide field, real time and long time. Due to the mutual constraint of trap depth between observation and optical trap, the mismatch tube length was introduced to compensate the spherical aberration in the glass-water interface. This method enhanced the trapping forces at a large depth, and facilitated us to clearly observe the manipulation process of 70-nm particle in three dimensions.

Since the trapping forces are weak, the trapped nanoparticle will be affected by circumstance noises. To decrease this influence, we presented ACF for the calibration of stiffness. For testing its validity, we compared the differences between power spectrum method and ACF in the cases of filter and introduced noises, and detailed the reasons on their differences. Calibrating stiffness is very important in applications. How to calibrate stiffness in situ and in real time not only simplifies the process of experiments but also help us to accurately measure the temporary information on force.

In this thesis, the RO and EM models have been investigated systematically. Calculating optical forces in the micro-/nano-scale has been detailed. The researches on theoretical methods are the foundations of understanding the particle's behaviors in an optical trap and designing our experiments. In our experiments, the nanoparticles have been manipulated in three dimensions, and this process can be observed in wide field. The calibrating stiffness of ACF was analyzed in detail. Those researches will extend the applications of optical tweezers in nanotechnology field.

Keywords: Optical Tweezers; Ray-Optics Model; Electromagnetic Model; Nanoparticle; Dark field; Autocorrelation Functi

第1章 绪论	1
1.1 光镊技术简介.....	2
1.2 研究光阱的理论模型的意义.....	3
1.3 研究光学微操纵纳米颗粒的意义.....	6
1.3.1 纳米流变学.....	6
1.3.2 胶体稳定性.....	7
1.3.3 纳米组装.....	7
1.3.4 金属纳米颗粒的操纵.....	9
1.3.5 量子点的俘获.....	10
1.4 本文的总体构想.....	11
第2章 几何光学模型中的矢量光线追迹方法	13
2.1 传统 RO 模型的缺点.....	13
2.2 单根光线入射微球的光阱力分析.....	14
2.3 矢量光线追迹方法.....	16
2.3.1 单根入射光线的追迹分析.....	16
2.3.2 光线的 s 和 p 分量.....	18
2.4 模拟结果与讨论.....	19
2.4.1 无偏振光束的俘获力.....	19
2.4.2 偏振光束的俘获力.....	21
2.5 小结.....	23
第3章 非球形微粒的几何光学模型	25
3.1 光线入射界面上的作用力.....	25
3.2 光阱中类球体微粒的光阱力.....	27
3.3 类球体的光阱力.....	31
3.3.1 球差对光阱力的影响.....	31

3.3.2 变形比对光阱力的影响.....	33
3.3.3 光束的偏振特性对光阱力的影响.....	36
3.4 类球体的应力张量	37
3.5 类球体的力矩	38
3.6 小结	40
第4章 矢量衍射-矩量法的电磁模型	41
4.1 光镊的 EM 模型研究现状	41
4.1.1 GLMT.....	42
4.1.2 T 矩阵	43
4.1.3 FDTD.....	44
4.2 辐射力	44
4.3 矢量衍射—矩量法模型	47
4.3.1 矢量衍射积分.....	49
4.3.2 矩量法.....	51
4.3.3 共轭梯度-快速傅立叶	55
4.3.4 散射截面.....	57
4.3.5 矩量法的数值误差	58
4.3.6 辐射力.....	60
4.4 模拟结果及讨论.....	61
4.4.1 介电微球的辐射力.....	62
4.4.2 高折射率微球的辐射力	63
4.5 小结	64
第5章 纳米颗粒的辐射力	65
5.1 介电纳米颗粒的辐射力	66
5.2 球差对辐射力的影响	67
5.3 数值孔径和波长对辐射力的影响	68
5.4 光束截面分布对辐射力的影响	69
5.4.1 高斯光束和空心高斯光束的比较	69

5.4.2 界面球差对最佳光束截面的影响	71
5.5 RAYLEIGH 近似下的金属颗粒的辐射力	73
5.6 颗粒在光阱中的稳定性.....	74
5.7 小结	76
第 6 章 纳米颗粒的三维操纵	77
6.1 暗场显微镜	77
6.2 实验方案	78
6.3 暗视野中的光学微操纵	79
6.3.1 单颗粒的光散射	79
6.3.2 纳米颗粒的俘获	80
6.4 球差补偿后纳米颗粒的三维操纵	81
6.4.1 球差补偿	82
6.4.2 临界俘获功率	83
6.4.3 暗场中三维操纵纳米颗粒	85
6.5 多纳米颗粒俘获.....	87
6.6 小结	88
第 7 章 自相关函数法标定纳米颗粒的光阱刚度	89
7.1 标定光阱刚度的方法	89
7.2 颗粒的受限布朗运动.....	90
7.3 实验系统	93
7.4 实验结果及分析.....	94
7.4.1 自相关函数	95
7.4.2 功率谱	96
7.4.3 滤波对测量刚度的影响.....	97
7.4.4 Wiener-Khinchin 定理	99
7.4.5 采样频率对测量的影响.....	100
7.4.6 纳米颗粒的刚度	101
7.5 小结	104

总结与展望	105
参考文献	106
博士期间发表的论文	119
附录 英文缩写索引	120
致谢	121

第1章 绪论

在生命科学领域中的许多问题需要从单分子层次上去寻求答案,分散体系中粒子的动力学过程根源于颗粒之间和颗粒与溶液环境的相互作用,微型的机器则需要微/纳尺度上组装和传动,在许多研究中都我们需要从微/纳米尺度上去深入探索。因而有必要发展各种微操纵技术,实现在微/纳尺度上操纵和测量颗粒,探索各种现象的微观机制。

目前的微操纵技术有微针^[1]、AFM^[2]、声学阱^[3]、磁镊^[4]、电泳^[5-6]、介电泳^[7]和光镊^[1,8-9]等,虽然不能同时达到高精度和高通量,但这些技术各有独特的应用优势。例如微针,操纵简单方便,但由于负压的存在,会对细胞有一定机械损伤;AFM作为高精度扫描成像工具外还可以应用为微操纵工具,利用悬臂上连接相应的蛋白等,可以测量蛋白间的相互作用力,力的量程可以达到纳牛级,但力的测量精度不如光镊灵敏^[10]。因此根据研究的对象,我们需要选取合适的微操纵工具,或者发展各种技术相结合的新技术^[11]。

光镊具有无接触操纵和无机械损伤的特点,能在液相中对微粒进行三维操纵和进行微小力的测量,对力的测量精度上能达到飞牛量级,在细胞生物学、胶体和纳米材料等领域上有着重要的应用。通过光镊直接操纵微米级颗粒,我们能直接测量微粒间的相互作用^[12]、扩散系数^[13]和微粒的折射率^[14],分选单条软染色体^[15]和研究细胞形变^[16]等,操纵微粒作为手柄能在单分子层次上研究DNA弹性^[17]、蛋白质折叠^[8]和分子马达的力学特性^[1],还能微观探测溶液的流变性^[18]。除此之外,直接操纵纳米颗粒在纳米材料和生命科学等领域内也有着重要的应用,如纳米器件的组装^[19]和金属纳米颗粒的表面增强拉曼效应^[20]等。由于纳米颗粒高度的局域化,对所探测体系的空间结构影响很小,操纵纳米颗粒有望在纳米流变学^[21]方面有重要作用。

光子除了携带线动量外还有角动量,光经过双折射率微粒后光子角动量的变化能传递给微粒产生转动^[22],因此利用旋转我们可以微观测量力矩^[23],利用光致旋转效果而实现微传动装置。测量光阱中微粒的转动,我们可以区分光子的轨道角动量和自旋角动量^[24]。光镊的出现,在各个领域取得了令人瞩目的成果。

随着应用需求的不断发展,光镊技术与各种不同技术相互结合,在不同领域得到新的应用,如将全息术的引入光阱中产生阵列光阱技术,能实现颗粒的阵列

排布^[25]和特定的空间构象^[26-27], 可用于模拟光子/胶体晶体和颗粒的分选等; 结合共焦拉曼技术^[28], 可实现对单个特定细胞/聚合物的光谱测量; 利用单分子荧光技术^[29], 可以观察单个 RNA 聚合酶在光镊固定的 DNA 链上的扩散行为。随着光镊技术的发展, 不断融入新的技术, 如光纤^[30]和近场技术^[31]等, 拓展新的应用。

1.1 光镊技术简介

自Ashkin于1986年首次提出了单光束梯度力阱——光镊以来, 光镊以非常简单的形式, 将光具有的力学效应充分地演示了出来, 其实质是一束强会聚的激光, 作用在折射率大于介质的透明微粒上, 微粒改变了光的传播方向, 即改变了光子的线动量, 使微粒在一定时间内获得了动量, 则受到光给它力的作用。光子由于折射传递给微粒的为梯度力, 力的方向始终指向光束聚焦中心; 光子由于反射传递给微粒的散射力, 方向始终指向光线传播方向。横向上梯度力束缚微粒处于光束中心, 轴向梯度力和散射力在偏离中心的某一位置上相互平衡, 光阱便在三维空间上稳定俘获微粒, 这是采用光子动量的解释, 更为一般的解释应考虑微粒对所处非均匀电场的极化反应。

光镊作为一种应用的工具, 其核心部分包括俘获光源、配备高数值孔径物镜的显微镜、平台和探测器^[32]。通过一些光学/机械元件将这些部分有机结合起来, 配合控制和分析软件, 就能达到一般应用的目标。根据不同的应用对象, 俘获光源所选取的激光波长不同。一般来说避免对生物样品的损伤, 激光尽可能选取近红外激光, 常用的有功率较高的1064nm的固体激光器, 还有功率较低的近红外波长的半导体激光器。对于光镊应用于胶体体系, 则激光波长的选择并没有什么限制。为了聚焦光斑最小, 激光的模式最好为TEM₀₀单横模。单物镜聚焦激光束形成光阱, 则物镜的数值孔径一般要超过1.0以上, 为油浸/水浸物镜。探测器一般用相机记录颗粒的空间二维位置, 还可以用四象限探测器探测微粒在光阱中位置。一般来说, CCD相机记录速度慢, 即使采用高速CMOS相机, 帧频也只能达到1kHz^[33]左右, 对于研究光阱中颗粒的布朗运动带宽不足。采用四象限探测器可以达到5MHz^[34]左右的带宽, 很方便研究颗粒布朗运动的高频部分。

微粒在光阱中受到的力需要标定。通过双物镜聚焦光束的方式, 根据光通量的变化可以利用四象限探测器直接标定光阱力^[35]。但基于高数值孔径单物镜聚

焦光束形成的光镊不能直接标定力的大小。微粒在光阱中受到简谐力作用,作受限布朗运动,颗粒偏离光阱中心位移 x 受到光阱力 F 作用,其线性系数为光阱刚度 κ ,即满足 $F=-\kappa\Delta x$ 。在实际应用中,标定了 κ 和 Δx 即可得到光阱力大小。常用的刚度标定方法有流体力学法、功率谱法、热运动法和周期驱动力法^[36-38]。位移的标定一般采用图像处理的方法,利用俘获微粒的图像在一系列图像中作相关运算,或者利用颗粒图像的重心定位。位移标定一般能达到亚像素水平(纳米尺度),力的精度能达到飞牛量级。

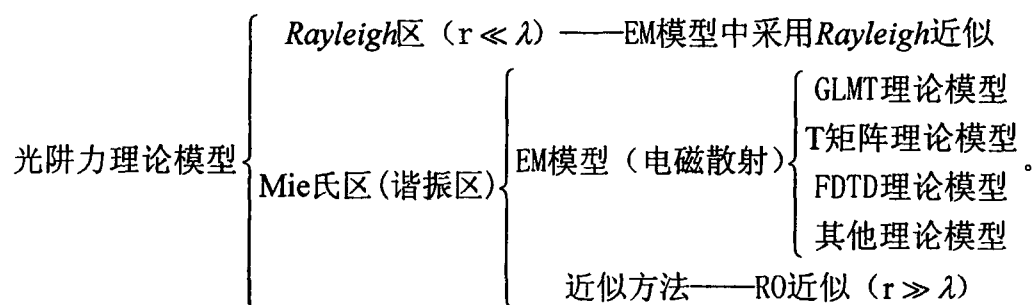
在光镊的实际应用中,需要实时测量力学量的一些信息,我们对光阱刚度和位移尽可能做到原位和快速标定^[39]。由于各种噪声影响标定力的精度,如何提高标定精度^[40]和方便实时探测力谱,对测量单分子的力学量非常重要。液相中颗粒的瞬时运动反应了短时间尺度上流体力学记忆效果,提高探测系统的带宽^[34],能为深入研究颗粒的布朗运动规律提供可能。对于光阱中的纳米颗粒而言,光阱力很弱,容易受到外界噪声的影响,探测颗粒的运动需要提高采集信号的信噪比,此外还需要辅以可视化技术。因此,各种应用的需求促使光镊技术本身需要不断发展。

1.2 研究光阱的理论模型的意义

各种各样的光镊的出现,我们需要在应用中更好的理解和运用光镊,其单光束梯度力阱是最基本的问题。理论研究单光束梯度力阱可以使我们更清楚地了解光镊对微粒的俘获机理和光阱力的影响因素,如金属纳米颗粒的光学俘获^[41]、双折射率微粒在光阱中的力矩^[23]、LG 光束对微粒的俘获特性^[42]和光阱中微粒的谐振特性^[43]等。对于优化光镊设备,提升现有光镊性能完善光镊理论,也具有非常重要的意义,同时也有助于揭示隐藏在实验现象背后的物理规律。

光阱是由强聚焦的激光与微粒的相互作用达到三维稳定俘获而形成的势阱,微粒受到的光阱力的理论模型一般采用几何光学 (Geometric-optics, GO; Ray-optics, RO) 近似模型和电磁 (Electromagnetic, EM) 模型。在电磁模型中,严格的电磁理论解析求解适于球形颗粒,对于非球形颗粒,往往需要采用数值求解的方式,因此电磁模型中存在许多求解方法。当颗粒小到一定程度,颗粒对光场的扰动很小可以忽略,通过 Rayleigh 近似可以计算力。根据微粒半径 r 和入射激光波长 λ , 当 $r \ll \lambda$ 时,光阱力分析采用 Rayleigh 近似的电磁模型;其他颗粒

尺寸上都处于 Mie 氏区，即谐振区，光阱力分析需要采用 EM 模型；当 $r \gg \lambda$ ，光阱力分析可采用 RO 近似模型替代 EM 模型，其中它们的界限划分并不是那么绝对。因此我们归纳为：



我们对光阱力模型的划分是基于光镊操纵颗粒的尺度在几十纳米到几十微米，在几十微米的小球上入射光束也会产生回音壁模的谐振^[44-45]，因此将这一尺度归为谐振区，这和电磁散射在颗粒尺度上的三个区域^[46]（Rayleigh 区，Mie 氏区和光学区）的划分和 Nahmias^[47]对光阱力模型的划分类似。其他文献^[32, 48]对光阱力模型划分一般分为 RO 模型($r \gg \lambda$)、Rayleigh 近似模型($r \ll \lambda$)和 EM 模型(Mie 氏区，两者之间)，但这一划分并不能阐明各种理论模型之间的关系。

对于 RO 模型，通过追迹每一份光线与微粒的相互作用的动量改变量，便可得到整个微粒的受力情况。由于模型简单，RO 模型广泛应用于光阱力的理论分析之中。它的不足之处在于偏离光轴的微粒，光线追迹的空间角度分析比较复杂^[49]，受力方向往往通过特定空间位置判断，计算光阱力比较繁琐。此外，光束的偏振特性造成在不同方向上光阱力大小不同^[50]，采用 RO 模型分析这类情况显得很复杂，并且对任意形状微粒的受力分析也存在困难。因此在 RO 模型中有必要发展新的分析方法^[51]，简化对光线追迹，拓展 RO 模型适应于不同情形的光学俘获，如油水界面俘获^[52]、环形光阱^[53]、椭球颗粒的俘获^[54]和微粒表面的应力分布^[55]等。

光镊模型中 EM 模型为最为严格的理论模型，对所有尺度颗粒都能精确分析。EM 模型必定包含三个部分：1 激光束的电磁表述；2 微粒对电磁场的散射求解；3 电磁场对微粒的辐射力的计算。其中对前面两个部分的不同计算方法就形成了各种各样的 EM 模型，如广义洛仑兹米氏散射理论（Generalized Lorentz-Mie Theory, GLMT）^[56]、T 矩阵方法^[57]、时域有限差分方法（FDTD）^[58]、有限元(FEM)方法^[59]和角谱方法^[60]等。对辐射力的计算上根据前面模型的不同，

不外乎采用远场计算的电磁张量形式^[61]和近场的偶极子^[60]表示。

EM 模型中电磁散射是最核心的部分, 最简单情形为平面波对球形颗粒散射, 我们比较容易得到它的解析解^[46]。若为高斯激光束对微粒的散射, 我们可通过分解为球谐函数求解^[61]。对于解析形式求解而言, 各种模型对微粒尺度没有限制。由于对光束聚焦缺乏精确描述, 早期的 GLMT 方法^[56]计算的颗粒尺度 $<1\mu\text{m}$ 与实验结果符合较好。在实际光学俘获中, 还受到许多因素影响, 如强会聚激光束需要采用五阶 Davis 序列^[62]近似展开, 玻璃-水界面的折射率失配对聚焦光束的影响^[63]等。尽管采用矢量球谐函数表述^[64]和 T 矩阵方法^[57]能求解非球形颗粒对高斯光束的散射, 但这种解析求解系数的方式远不如数值求解方便。电磁散射的数值求解方法都可以用于光镊的 EM 模型中, 如 FDTD 和 FEM 等, 数值求解电磁散射受到计算机存储空间和计算方法的限制, 目前采用数值求解电磁散射的微粒尺度并不能很大, 最大到几微米。

当光阱中的颗粒尺度小到纳米尺度, 光阱很难束缚住颗粒。而俘获纳米颗粒有着非常重要的应用, 如研究胶体团簇的形成^[65]、纳米器件组装^[19]和纳米自组装^[66]等, 因此我们有必要研究纳米颗粒在光阱中的受力行为。对于纳米颗粒, 颗粒尺度远小于光波长, 颗粒对光电场的散射可以忽略, 因此理论分析纳米颗粒的辐射力比微米/亚微米颗粒要简单。根据 Rayleigh 近似, 纳米颗粒近似为一个偶极子, 在非均匀的电磁场受到梯度力作用, 根据散射截面还受到电磁场对它的散射力^[67]作用。由于颗粒很小, 其重力和浮力都可忽略不计, 纳米颗粒受到溶液分子它的碰撞, 导致它的布朗运动很剧烈, 稳定俘获纳米颗粒的条件不仅仅要满足梯度力平衡散射力, 根据势阱中颗粒所服从的玻尔兹曼分布, 颗粒的势能要远大于热涨落的能量 $k_B T$ ^[9, 67], 因而稳定俘获纳米颗粒所需要的激光功率很大。

由于光阱对纳米颗粒的梯度力很弱, 不断有研究探索新的俘获方式, 如驻波方式提高纳米颗粒的俘获力^[68]、金属探针局域增强电磁场俘获纳米颗粒^[69-70]和倏逝波照明俘获纳米颗粒^[31]等。有研究表明近场稳定俘获纳米颗粒所需的激光功率比远场光学俘获低两个数量级^[71]。尽管近场俘获纳米颗粒所需的低功率有减小热效应和消融的影响, 但操纵控制的方式远不如远场俘获方便, 因而探索在聚焦光束中如何稳定控制纳米颗粒在实际应用中非常重要。

在光阱中微粒的力是激光与微粒之间相互作用的结果, 这种相互作用与激光

波长、强度分布、聚焦角度有关，还与微粒的大小、形状、相对折射率、吸收率和聚焦物镜的数值孔径等一系列因素存在关系。虽然单光束梯度力阱的各种理论模型有力的支持了许多实验现象，不断发展的需求促使我们有必要研究光镊的理论模型，以便简化分析，更适用于实际应用情形，同时利用理论模型促使我们设计更合适的光镊参数，提高设备性能。

1.3 研究光学微操纵纳米颗粒的意义

前面介绍了光镊能操纵纳米颗粒。虽然操纵纳米颗粒的难度要远大于操纵微米颗粒^[72]，但操纵纳米颗粒在纳米流变学、纳米颗粒相互作用、纳米组装和表面等离子体共振等方面将有着重要应用。下面就对这几个方面已有的和可能的应用作一个简要的介绍。

1.3.1 纳米流变学

流变学 (Rheology) 是研究物质在外力作用下发生形变和流动的科学^[73]。高分子聚合物的流变性体现在具有粘弹性，即高聚物同时具有粘性和弹性，不需要高聚物的直接微观结构观察，利用高聚物熔体的粘度可以区分分子链是否存在缠结^[74]。测定高分子溶液的粘度来获得高分子的分子量、构象和链间相互作用的相关信息，一直是最简便和常用的方法。常用研究流变学的仪器和方法有流变仪、动态光散射和扩散波方法，但这些方法均为系综平均，难以测量不同微区的差异和界面的差异，并且价格昂贵。

与宏观研究相对的是微观研究流体的流变性，即微流变学 (Microrheology)^[21, 75-76]。已发展起来的微流变学方法有示踪颗粒追踪法、光镊、磁镊和 AFM 等技术追踪探测颗粒在待测流体中的布朗运动的均方位移，反演流体的复粘弹性模量。微流变技术采用局域探针，适用范围广，即使低粘性和低弹性都可以；需要的样品量少，这对需要不断纯化的生物样品很重要；适合探测不同微区的差异和界面行为，即实现流变学显微术^[77]。通过结合敏感的视频追踪和荧光分子，能研究流体在界面的运动和在薄膜中测量各向异性的扩散系数和材料的微结构的导向性。微流变学在细胞生物学和生物物理学增加了新层次的力学信息，这种技术能探测活细胞的空间和时间变化的快速生理响应^[21]。

虽然光镊技术不能同时追踪大量颗粒的布朗运动，作为一种研究微流变的方法^[75-76]，可以实现对高频（达到 1MHz）响应测量，并且位移精度高，数据量少，

在线可处理。一般为了观察的方便，光镊研究流体的流变性都采用微米/亚微米的探针颗粒。引入探针颗粒会局域修改微观结构，或者与材料本身粘在一起，妨碍颗粒的长时间和大尺度的位移。探针颗粒越小对微观结构扰动越小，如将标记荧光的纳米颗粒注入细胞内，对探针颗粒的运动轨迹做追踪可进行纳米尺度的流变学研究——纳米流变学(Nanorheology)^[78]。若光阱俘获纳米颗粒作为探针，同样可以将光镊的应用从微流变学拓展应用到纳米流变学中。

胶体和悬浮液的流动情况比纯液体的流体要复杂，其粘度不仅受到分散介质本身性质的影响，还受到颗粒性质包括几何形状、大小、分散性和溶剂化程度影响等^[73]。若从微观上操纵定位纳米颗粒，便有可能研究各种因素对胶体性质的影响，如微观研究纳米载药系统的流变性。

1.3.2 胶体稳定性

当胶体从分散态过渡到聚集态时，胶体所有的性质都会发生显著的变化。通常用稳定比来描述胶体的稳定程度，胶体的稳定度表征了胶体体系的性质。纳米颗粒本身的性质对其胶体的稳定性也有重要的作用，如粒径大小，尺寸分布，表面性质等。目前利用光镊从颗粒层次上研究颗粒相互作用^[12]和胶体体系稳定性已取得了一些的进展^[79-80]，本实验室徐升华博士在利用光镊诱导颗粒碰撞，统计聚集率表征胶体体系的稳定性方面做了大量工作。由于现有光镊系统俘获和观察纳米颗粒的局限性，目前只能用微米小球来模拟胶体体系，面对更小的纳米颗粒，若能克服光镊系统如何控制和全视场观察纳米颗粒并对颗粒追踪的技术瓶颈，有望将这一方法从微米尺度延续到纳米尺度上。

1.3.3 纳米组装

半导体纳米线作为微型化的电子元件和光学设备受到广泛关注。尽管化学合成纳米线的技术已经很成熟，但不能产生特定结构和沿特定方向生长。由于缺少组装纳米线成为复杂结构的高空间和角向精度，在生物医学和微电子应用中受到限制。Pauzauskie 等人^[19]利用光镊将半导体纳米线粘到样品池表面，控制光镊平移的方向，将它们组装成所需要的结构，如图 1.1 所示。他们通过光镊操纵纳米线，实现了纳米线融合到纳米带，组装纳米线成为纳米带，以及纳米线插入细胞和观察纳米线波导的照明。

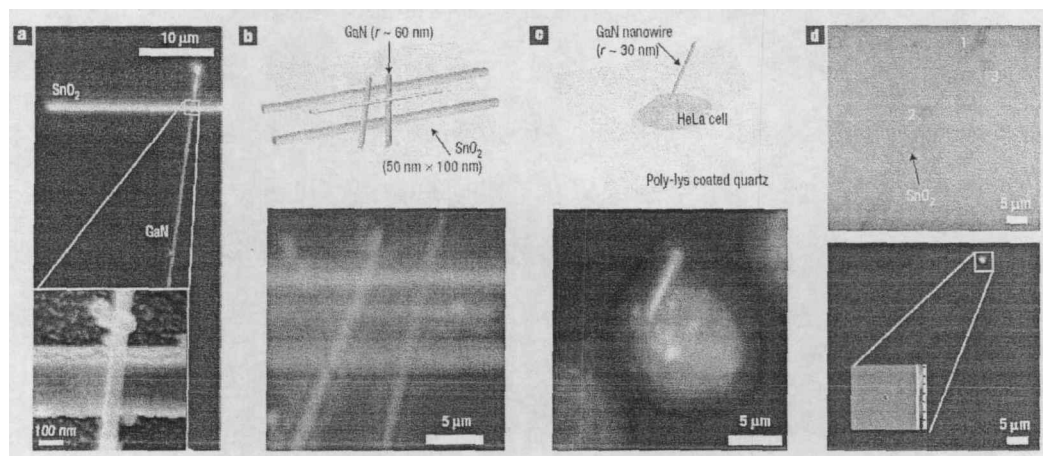


图 1.1 利用光镊演示纳米线连接和组装。a, GaN 纳米线被激光融合到 SnO_2 纳米带上的暗场像，插图扫描电子显微镜下的像；b, 三维组装 GaN 纳米线和 SnO_2 纳米带的示意图（顶）和暗场像（底）；c, 通过光学俘获将 GaN 纳米线插入 Hele 细胞的示意图（顶）和暗场像（底）；d, 标记黄绿色荧光分子的聚苯乙烯小球的明场像（顶）和暗场像（底）。由于波导照明的倏逝波传递给距离最近的颗粒 1 发出荧光^[19]。

控制微观物体的旋转对微机械和生物技术有非常重要的应用，传统的光驱动微转子的方法有圆偏振光束对双折射微粒的俘获，还有用螺旋位相的光束俘获微粒等，Khan 等人^[81]利用线偏振光束直接操纵无机纳米棒实现转动，纳米转子的速度可以通过控制纳米棒的大小和形状(成束)来调节，这样提供了一种完全和精确控制速度的纳米转子的方法，见图 1.2。

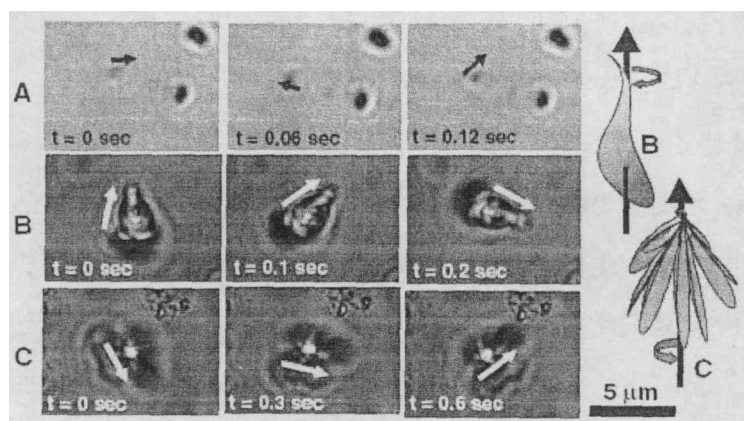


图 1.2 不同大小和形状的 Al_2O_3 转子的时间序列图。每帧的箭头表示转子的方向。A 和 B 的转子是单个，C 为一束纳米棒构成^[81]。

除了操纵 GaN 纳米线和纳米转子外，还有报道光镊操纵单壁碳纳米管^[82]和氧化铜纳米棒^[83]。由于单壁碳纳米管无法在显微镜明场中观察，将单壁碳纳米

管用荧光探针分子标记,在荧光显微镜观察光阱俘获单壁碳纳米管。利用柱透镜将光阱转换为线光镊,利用线光镊可以横向稳定俘获氧化铜纳米棒进行纳米组装。因此,利用光镊操纵纳米棒/纳米线等有望能组装各种纳米器件。

胶体晶体的纳米颗粒组装的整体特性吸引了许多研究者兴趣,其结构的特性可以类比到分子结构上。胶粒间相互作用与热激发能具有相同量级,使得其构象容易受到稳定、浓度和 pH 值等条件影响而改变,他们灵活和易碎的组装结构和伴随的特性使得在微米/纳米尺度上构造出来显得困难。在众多方法中,自组装是最有希望构造这种胶体结构的方法,但不能构造任意结构。而光学组装的方法,有可能构造出我们所期望的结构,如调节俘获光束功率,实现可逆控制金纳米颗粒组装^[66],通过光学组装,可以研究聚合物纳米颗粒组装过程的动力学过程^[84]。这些纳米颗粒在光学显微镜中无法直接观察,因此对纳米颗粒标记观察荧光^[65, 84]。若用微米级颗粒替代纳米颗粒构成的胶体晶体,则用光镊研究胶体晶体就很方便,如研究点缺陷对胶体晶体的影响^[85]等。因此,发展纳米尺度上操纵和全视场的观察方式,对于光镊研究纳米尺度的胶粒的组装很有意义。

1.3.4 金属纳米颗粒的操纵

金属纳米颗粒容易与蛋白相结合作为标记,由等离子共振激发的光比荧光分子的发光更亮^[86],还容易与 DNA 相结合抑制细菌的生长^[87]。由于表面等离子共振局域增强场,可以用于增强探测拉曼信号^[88]。此外金属颗粒由的表面具有很好的催化效果,能有效的成为化学反应的场所,精确操纵定位金属纳米颗粒技术可创建纳米阵列产生全新的光子学应用。

微米级金属颗粒的典型特性是对光有很高的反射率,梯度力不能平衡散射力,颗粒便逃逸光阱中心。近年来已有一些不断改进的光镊技术尝试对金属微粒俘获的报道^[89-90]。对于纳米金属颗粒而言,其粒径大小与光能入射金属表面的趋肤深度相当,其介电常数为复数。直接通过近红外光强聚焦可实现二维/三维俘获^[91-92]金属纳米颗粒,也可利用径向偏振光^[93]和涡旋光束^[94]俘获金属纳米颗粒。在强会聚激光束中金属纳米颗粒的稳定俘获与颗粒尺度和激光波长等有关^[41],在实验中已有报道^[95]光阱能三维俘获达到 256nm 的金颗粒。由于金属纳米颗粒与光场作用时,在合适的入射波长上产生表面等离子体共振效应,利用谐振效应三维稳定俘获金纳米棒^[96-97]比远离谐振所需要的功率要低,并且能将纳米棒长轴

定位到电场方向。俘获激光的波长远离金属纳米颗粒的表面等离子体共振区域时，也能稳定俘获金纳米颗粒^[98]和各种长短轴比的纳米棒^[99]。光学操纵金属纳米颗粒的实例^[88]见图 1.3。

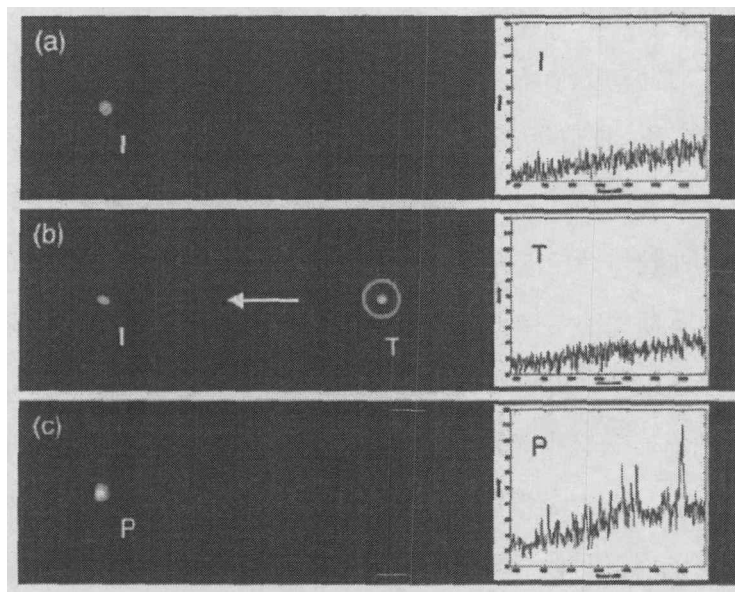


图 1.3 俘获和固定银纳米颗粒的暗场像。(a) 单个固定颗粒 I 的 SERS 谱，没有信号；(b) 一个光学俘获的颗粒 T 朝固定颗粒移动，没有 SERS 谱；(c) 当达到近场接触，颗粒对 P 表现出强烈的增强的 SERS 信号^[88]。

一般认为光阱中的金属纳米颗粒由于高极化率导致高的俘获效率，但不能忽视的是光的吸收会带来显著的热效应，如金纳米颗粒在远离谐振的情形下非光阱束缚^[98]，导致局域温度急剧升高，显然这种情形下的金属颗粒不适于作为手柄操纵生物大分子。如何在低功率下稳定操纵金属纳米颗粒在实际应用中显得比较重要。如果能任意操纵金属颗粒，就可以排布所设计的金属纳米结构。

1.3.5 量子点的俘获

半导体量子点 (QD) 是一种纳米晶体，具有高亮度、高的光学稳定性、宽吸收和窄发射光谱的特点，发射的波长依赖量子点的尺寸，在生物和量子信息中有着重要作用。操纵单个量子点对光镊而言是一个挑战，根据高斯光束的分析^[67]，所需激光功率很高，高激光功率对样品不可避免的存在热效应，反过来影响颗粒的稳定俘获。Pan 等人^[100]利用皮秒脉冲激光在水溶液中实现二维俘获量子点，并预言连续激光构成的光镊俘获量子点需要在 20W 左右。但由于量子点的高极化率，实际所需的激光功率远小于前述预言值，Jauffred 等人^[101]利用连续

的 1064nm 的激光在 525mW (实际到底样品的激光功率~20%) 三维稳定俘获了水溶性量子点, 并利用量子点的闪烁证实了俘获的就是单个量子点。

尽管已经实现了光镊操纵单个量子点, 但在观察上, 判断量子点的俘获并不如俘获其他纳米颗粒方便。量子点的典型尺度在几个纳米, 其散射光极弱, 无法利用探测散射光的方式区分是否在光阱中存在量子点。前述文献采用的探测方法为探测双光子吸收导致的荧光辐射。

1.4 本文的总体构想

近年来, 我们实验室围绕生物学 (细胞和单分子层次上)、分散体系和偶氮囊泡上进行了一些合作研究。围绕这些工作, 目前我们的光镊设备在生物大分子研究上的光阱力不够。除了需要购置大功率激光器外, 对现有条件下提升光镊对微粒的光阱力成为我们面临的问题, 在这一方面需要我们对光阱力的理论分析指导我们选取合适的参数搭建光镊设备, 在应用中能更好的指导实验和分析。

由于光镊操纵纳米尺度上颗粒不仅能应用于在流变学、纳米组装和胶体体系稳定性上, 而且对光镊设备性能而言是一个挑战。操纵纳米颗粒还可以用于生物大分子的手柄, 手柄颗粒越小, 能减小堵力影响^[102], 还能减小流体力学阻力, 能更快的揭示隐藏在信号中的布朗运动平均效果。纳米颗粒的光学俘获同样离不开理论指导, 为了避免高功率激光带来的热效应, 研究如何在低功率下稳定俘获纳米颗粒, 以及稳定俘获纳米颗粒受到哪些因素影响等。在俘获纳米颗粒的实验中, 需要从方法学上研究如何观察和测量它们的刚度等。

为此, 我的博士论文主体大致分成两个部分。从第二章到第四章为第一部分, 主要研究光镊的理论模型, 包括 RO 模型和 EM 模型, 建立理论分析的计算平台。第二章主要内容为在 RO 模型中提出矢量光线追迹方法, 利用空间矢量和矩阵的计算方法, 能有效地分析偏振光束对颗粒的光阱力, 弥补传统计算方法的不足。在第三章中, 利用矢量光线追迹在 RO 模型中计算类球体的光阱力、应力张量和力矩, 这一方法拓展了传统 RO 模型的适应范围。第四章主要内容为提出矢量衍射-矩量法的 EM 模型。这一模型能有效结合光镊的各种参数从电磁场方面模拟光阱对颗粒的辐射力, 包含高折射率颗粒的俘获和界面球差的影响。在这一基础上, 采用 Rayleigh 近似我们便得到纳米颗粒的辐射力, 因此这一章是第五章的理论基础。

第五章到第七章为第二部分，主要研究纳米颗粒的辐射力，以及在实验上如何观察、操纵和测量它。第五章主要讨论研究光镊的各个参数与辐射力之间的关系。根据第五章的理论分析，第六章主要从实验上介绍如何观察三维操纵介电纳米颗粒。由于光阱对纳米颗粒的力很弱，容易受到外界噪声的影响，在刚度测量上选取的方法尽可能降低这方面的影响，因此在第七章中提出自相关函数测量光阱刚度。由于暗场照明光镊系统只是一个探索性的研究，没有整合高精度的四象限探测器，第七章的实验是在现有的纳米光镊系统上实现的，主要目的在于验证方法学。

第2章 几何光学模型中的矢量光线追迹方法

光镊的理论模型包含几何光学 (RO) 模型^[49, 103-104]和电磁 (EM) 模型^[56, 105-106]。RO 模型适用于微粒直径远大于入射激光波长的情形, 颗粒直径一般满足 $D_{\text{bead}} > 10\lambda_0$ (λ_0 激光的真空波长)。RO 模型作为一种近似方法, 它不能反映高数值孔径物镜对光束聚焦的衍射效应, 也不能反映电磁场与微粒相互作用的谐振现象, 尤其是俘获金属颗粒中存在的电磁相互作用。但与 EM 模型相比, RO 模型理论计算简单, 即使对大小接近波长的微粒的计算结果对实验也具有参考价值。因此在光镊的理论模型中, RO 模型广泛应用于计算光阱力大小, 利用 RO 模型, Roosen 和 Slanksy^[103]研究了光束发散特性对光学悬浮的影响, 结合高斯光束标量理论, Gussgard 等人^[104]计算了强聚焦光束对微粒的俘获力。不考虑光的波动性, Ashkin^[49]研究了光阱里微球在横向、轴向和任意位移后的受力, 并详细给出了入射光学在空间不同方位的追迹方式。从那以后, 许多研究工作^[16, 50, 107-111]都是采用这种传统的空间立体几何的光学追迹方式, 通过这种理论分析方法合理的解释了各种实验现象。在 RO 模型发展过程中, 高数值孔径物镜下的正切条件并不适合, 需要用正弦条件所取代^[107], 在油浸物镜下还需要考虑由于玻璃-水界面引起的球差影响^[108-109]。利用 RO 模型还可分析倏逝波照明下微粒的光阱力^[112]和细胞多层的结构的光阱力分析^[113]。

基于传统的 RO 模型, 我们实验室徐升华博士^[53, 110, 114]曾计算球差影响下光阱中两个微球单独所受到的光阱力。在光阱力的作用下, 小球相互挤压平衡, 为实验设计光镊诱导颗粒碰撞提供了理论依据。同时他指出空心光束光阱的轴向俘获效率要比普通高斯光束的俘获效率高, 但横向俘获效率会降低, 也就是空心光阱的轴向稳定性要高。龚鋈博士^[36, 111]模拟过光阱中微球的横向位移引起它的轴向偏移, 使得光阱中微球不能达到最大横向位移处并沿轴向逃逸, 并在实验上得到验证。利用 RO 模型分析光阱中微粒的受力, 能很好的指导实验设计和理解实验现象。

这一章围绕 RO 模型, 我们^[115]主要研究矢量光线追迹达到统一分析颗粒在任意位置的光阱力, 并能计算偏振光束对微粒的力。

2.1 传统 RO 模型的缺点

尽管目前利用几何光学模型研究光镊取得一系列成果, 但传统的空间立体几

何追迹光线存在三个方面的缺点。首先,空间光线追迹方法复杂。空间角度和梯度力方向均与空间角度有关,由于空间角度与微球位置的关系不同,具有横向位移的光学追迹方法不同于轴向位移的情形,所以横向和轴向俘获力需要单独分析。对于有效入射光线的分析,微球位于横向位置比位于轴向位置的条件判断要复杂。其次,在分析偏振光束作用微球的光阱力时,不能采用旋转对称性。根据空间几何关系,当光束被物镜聚焦时,单根光线的偏振方向在变化,因此作用在微粒上的 s 和 p 光分量与微球位置有关。对于一束偏振光束,Im 等人^[50]曾经报道过在对称性上轴向俘获力的计算不同于横向俘获力,如偏振光对微粒的轴线俘获效率只需要分析四分之一象限即可,而对于横向俘获效率则需要分析二分之一象限。虽然采用空间立体几何的方法能分析偏振光束和非偏振光束的分量,但它只适用于坐标轴上的分析,难以分析偏振光束对微粒在离轴上的俘获效率。最后,基于传统光线追迹的方法能解决梯度力大小,但在广泛接受的公式中,梯度力结果呈现负值,方向的判断是利用物理图像确定下来,也就意味传统 RO 模型中梯度力方向容易产生混淆的结果。

为了利用 RO 模型处理复杂问题时简化光阱力计算,我们提出基于空间解析几何的矢量光线追迹方法。在以往的研究中,也曾有矢量光线的追迹的报道,如 Bareil 等人^[116]在 RO 模型中曾经分析球形颗粒表面受到应力张量,他们采用随机偏振的理论模拟与血红细胞的应力变形实验相符合^[55, 117]。但由于光线追迹的方法根据旋转对称,仅能分析在某一个平面上的张量分布,这并不适合分析复杂情形,尤其是聚焦偏振光束。虽然 Shima 等人^[54]利用光线矢量分析了椭球颗粒在轴向的阱力,但并没有给出三维方向上力的统一分析。因此本章主要讨论矢量光线追迹在 RO 模型中三维光阱力的统一分析,不仅包含横向光阱力和纵向光阱力表示,还包含光束偏振的影响等,并将这一方法与玻璃—水界面折射率失配引起的球差的情形考虑在内,提出统一的分析任意形状微粒的光阱力的矢量光线追迹方法。这一方法有助于更好地运用 RO 模型模拟光镊实验中遇到的问题。

2.2 单根光线入射微球的光阱力分析

在计算光阱力之前,对于单根光线入射到微粒上,需要弄清楚在笛卡尔坐标系下力的方向。对于一根特定光线入射从媒质入射到微粒表面上,会发生多次折射和反射,设入射角度为 θ , 折射角度为 γ 。其中 $n_m \sin \theta = n_r \sin \gamma$, n_m 为媒质的折射

率, n_r 为小球的折射率。由系统动量守恒可知, 微粒受到光阱力的散射力 F_s 沿光线传播 z 方向, 而梯度力沿 F_g 方向, 垂直入射光线由圆心指向朝外的方向, 见图 1。单根光线对微粒的散射力为公式 (2.1) 表示, 公式 (2.2) 表示梯度力。

$$F_z = F_{\text{scat}} = \frac{n_m P}{c} \left\{ 1 + R \cos(2\theta) - \frac{T^2 [\cos(2\theta - 2\gamma) + R \cos(2\theta)]}{1 + R^2 + 2R \cos(2\gamma)} \right\}, \quad (2.1)$$

$$F_y = -F_{\text{grad}} = \frac{n_m P}{c} \left\{ R \sin(2\theta) - \frac{T^2 [\sin(2\theta - 2\gamma) + R \sin(2\theta)]}{1 + R^2 + 2R \cos(2\gamma)} \right\}. \quad (2.2)$$

需要指出的是, 在公式 (2.2) 中 F_g 与 Ashkin 表示梯度力表达式中相差一负号^[49], 这一点在以往的文献中都忽略掉, 依赖对物理图像的理解判断力的方向, 而在我们后面的分析中需要涉及到。为了更好的理解正负号的意义, 具体讨论下入射光线的坐标系。角度取逆时针为正, 根据图 1 可知, 入射角度 $\theta > 0$, 则光线自身坐标系 yz 满足右手定则。梯度力的正方向在 y 上, 则与 F_g 方向相反。由此可见, 以前文献给出的梯度力公式, 实质都是以入射光线指向微球中心的方向为正方向, 与给出的图 2.1 的 F_g 方向恰好相反。在采用矢量光线追迹分析方法中, 我们明确采取如图 2.1 所示的 F_g 为正方向, 即以入射光线建立坐标系, 不同光线的入射角度满足 $\theta > 0$ 。

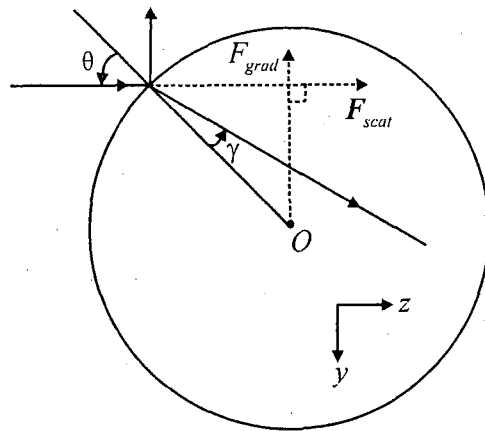


图 2.1 单根光线对小球作用力示意图。

由公式(2.1)和(2.2)可知, 力与功率成正比, 将所有光线的散射力和梯度力进行矢量叠加, 即得出微粒在强会聚光束中的总力。俘获效率 $Q = Fc/n_m P$, P 为通过物镜出瞳处激光的总功率。一般入射光束强度都不是均匀分布, 可考虑光强在物镜后瞳为高斯分布。 R 和 T 为能流的 Fresnel 反射和透射系数, 则 R 和 T 与光

线的 p 和 s 分量有关^[118]。若某一光线的 s 分量功率比为 f_s ，则 p 分量为 $f_p=1-f_s$ 。对于圆偏振光束和自然光而言， f_s 和 f_p 相同，而对于线偏振光束则与光线偏振方向和入射面法线方向有关。通过累积所有光线的 s 和 p 分离就能算出俘获效率 Q 。

2.3 矢量光线追迹方法

根据力的公式，对于任意给定的光线，入射角和力的大小也就确定了。利用空间矢量，不同方位的聚焦光线能够采用统一的方式追迹，并且那些参数都能用矢量关系表示。对于聚焦的偏振光束，我们可以通过旋转矩阵的方式表示出偏振的方向分量。

2.3.1 单根入射光线的追迹分析

在不同入射处的光线进入物镜后瞳的偏转方向不同，对于具体单根光线在坐标系中追迹如图 2.2 所示。以物镜聚焦焦点 O 为坐标原点，物镜光轴为 z 轴建立笛卡尔坐标系 S 。物镜的入瞳为 O_0 所在的平面， R_{obj} 代表了物镜后瞳半径， f_{obj} 为物镜的焦距。原点的坐标系 S 下，微球处于 $P(x_0, y_0, z_0)$ 点，微球半径为 r_{bead} 。对单根平行 z 轴入射物镜入瞳处 (α, β) 的光线，通过物镜后方向的改变用单位矢量 \mathbf{n}_1 表示。偏转的入射光线与 z 轴的夹角为 α ，则最大夹角满足的关系为 $n_m \sin \alpha_{max} = NA$ ，其中 NA 为物镜的数值孔径。由于物镜满足正弦定理^[107]， $\sin \alpha = r/f_{obj}$ 。

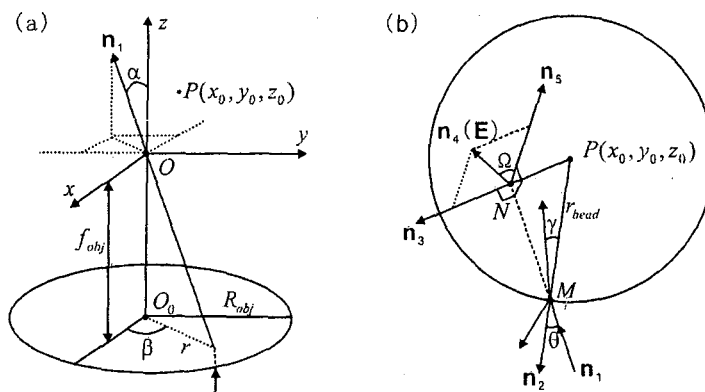


图 2.2 空间矢量追迹单根光线。(a) 单根入射光线通过物镜聚焦后在空间坐标系中方向。单位矢量 \mathbf{n}_1 表示单根光线聚焦后的方向，点 P 、 O 和 O_0 分别为微球中心、物镜焦点和物镜入瞳中心。(b) 计算光阱力的相关矢量。入射点为 M ，单位矢量 \mathbf{n}_2 表示朝外的法线方向。单位矢量 \mathbf{n}_3 、 \mathbf{n}_4 和 \mathbf{n}_5 分别表示梯度力、光线偏振方向和入射面的法线方向。矢量 \mathbf{n}_1 、 \mathbf{n}_2 和 \mathbf{n}_3 都处于入射面内。

为了计算光阱力，以下几步是必须的。第一步判断有效入射光线和找到单根光线与微球的入射点。在坐标系 S 中，表示入射光线（见图 2.2(a)）的单位矢量

$$\mathbf{n}_1 = (n_{1x}, n_{1y}, n_{1z}) = (-\sin\alpha\cos\beta, -\sin\alpha\sin\beta, \cos\alpha). \quad (2.3)$$

入射点为 M （见图 2.2(b)）。点 M 的坐标可以通过利用参数 t 代表光线的直线方程(2.4)代表微球的球方程(2.5)求解。求解参数 t 有两个根，他们表示入射光线与

$$\frac{x}{n_{1x}} = \frac{y}{n_{1y}} = \frac{z}{n_{1z}} = t, \quad (2.4)$$

$$(x - x_0)^2 + (y - y_0)^2 + (z - z_0)^2 = r_{bead}^2, \quad (2.5)$$

微球有两个焦点，入射点 M 应该为沿光线传播方向的第一个焦点，也就是在坐标系 S 中点 M 的 z 坐标值较小的为入射点，即对应于 t 的值为较小的那个根 t_{min} ，它表示为

$$t_{min} = n_{1x}x_0 + n_{1y}y_0 + n_{1z}z_0 - \sqrt{D}, \quad (2.6)$$

其中，

$$D = (n_{1x}x_0 + n_{1y}y_0 + n_{1z}z_0)^2 - x_0^2 - y_0^2 - z_0^2 + r_{bead}^2. \quad (2.7)$$

所以入射点 M 为 $(n_{1x}t_{min}, n_{1y}t_{min}, n_{1z}t_{min})$ 。当 $D > 0$ ，满足这一条件的所有光线均是有效入射到微球上，对光阱力有贡献。

第二步就是计算单根光线的入射角。在图 2.2(b)中，点微球中心 P 到入射点 M 之间的距离为半径，外法线方向

$$\mathbf{n}_2 = (n_{2x}, n_{2y}, n_{2z}) = (n_{1x}t_{min} - x_0, n_{1y}t_{min} - y_0, n_{1z}t_{min} - z_0) / r_{bead}. \quad (2.8)$$

那么单根入射光线的入射角可以通过 $\mathbf{n}_1 \cdot \mathbf{n}_2 = \cos(\pi - \theta)$ 求解出来。

第三步是确定梯度力的方向。根据图 2.1，梯度力方向垂直于入射光线的传播方向，并且由点 P 朝外。正如图 2.2(b)所示，在入射面内选取单位矢量 \mathbf{n}_3 垂直 \mathbf{n}_1 ，因此 \mathbf{n}_3 表示梯度力的方向。假定点 N 在 $(n_{1x}t, n_{1y}t, n_{1z}t)$ 上，并且 P 点到 N 点距离为 H ，则

$$H = \sqrt{(n_{1x}t - x_0)^2 + (n_{1y}t - y_0)^2 + (n_{1z}t - z_0)^2}. \quad (2.9)$$

则单位矢量 \mathbf{n}_3 为

$$\mathbf{n}_3 = (n_{3x}, n_{3y}, n_{3z}) = (n_{1x}t_{min} - x_0, n_{1y}t_{min} - y_0, n_{1z}t_{min} - z_0) / H. \quad (2.10)$$

由于 $\mathbf{n}_1 \cdot \mathbf{n}_3 = 0$,

$$t = n_{1x}x_0 + n_{1y}y_0 + n_{1z}z_0. \quad (2.11)$$

最后, 矢量 \mathbf{n}_3 能够通过参数 t 代入方程 (2.9)、(2.10) 和 (2.11) 求出。

最后为计算力。从前述分析可知, 图 2.2(b) 中的矢量 \mathbf{n}_3 表示了梯度力方向。由于散射力沿着光线传播方向(图 2.1), 图 2.2 中的矢量 \mathbf{n}_1 表示了散射力的方向。任意单根光线的作用力可以通过公式(2.1)和(2.2)表示出来, 则俘获效率 Q 表示为

$$(Q_x, Q_y, Q_z) = Q_{scat} \mathbf{n}_1 + Q_{grad} \mathbf{n}_3. \quad (2.12)$$

其中俘获效率 Q_{scat} 和 Q_{grad} 与 s 分量和 p 分量的共同贡献有关, 在下一小节分析。最终, 所有光线的作用力求和即可得到总的光阱力。

2.3.2 光线的 s 和 p 分量

在光镊系统中, 入射物镜后瞳的激光光束一般为偏振光束, 但为了分析问题的方便, 许多 RO 模型具体模拟时都采用圆偏振^[49]和非偏振光束^[111]的处理, 即 s 分量和 p 分量的功率所占比例为 $f_s = f_p = 0.5$ 。

然而对于线偏振光束, 不同入射光线的 f_s 和 f_p 与许多因素有关, 包括入射点位置, 光束偏振态和光线在物镜入射处的入射点。对于物镜后瞳处电场矢量为 \mathbf{E}^0 的线偏振光束 (偏振方向与 x 轴夹角为 φ), 在任意位置 (r, β) 入射的光线, 见图 2.2(a), 光线通过物镜偏转后, 在坐标系 S 中是单位矢量 \mathbf{E} , 见图 2.2(b)。单根光线的偏振态的变化可以通过公式(2.13)表示,

$$\mathbf{E} = \text{Rot}^{-1} \cdot \text{Lens} \cdot \text{Rot} \cdot \mathbf{E}^0, \quad (2.13)$$

其中,

$$\mathbf{E}^0 = \begin{pmatrix} \cos \varphi \\ \sin \varphi \\ 0 \end{pmatrix}, \quad (2.14)$$

$$\text{Rot} = \begin{pmatrix} \cos \beta & \sin \beta & 0 \\ -\sin \beta & \cos \beta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}, \quad (2.15)$$

$$\text{Lens} = \begin{pmatrix} \cos \alpha & 0 & -\sin \alpha \\ 0 & 1 & 0 \\ \sin \alpha & 0 & \cos \alpha \end{pmatrix}. \quad (2.16)$$

具体分析如下：首先将通过矩阵 Rot 固定 z 轴旋转 S 系到 S' 系，使光线入射面与 S' 系中 $x'-z$ 面重合。其次，在 S' 坐标系下的电场的三维分量可由矩阵 $Lens$ 投影到坐标轴上，最后再通过矩阵 Rot 的逆 Rot^{-1} 旋转坐标系 S' 回到原来的坐标系 S 下，即得到此入射角下的偏振光的极化方向 \mathbf{n}_4 。

由于入射面由矢量 \mathbf{n}_1 和 \mathbf{n}_3 组成，入射面的法线为单位矢量 \mathbf{n}_5 ，它们满足 $\mathbf{n}_5 = \mathbf{n}_1 \times \mathbf{n}_3$ ，见图 2.2(b)。电场矢量 $\mathbf{E}(\mathbf{n}_4)$ 由垂直入射面的分量 s 和平行入射面的分量 p 组成。将矢量 \mathbf{n}_4 投影到 \mathbf{n}_5 ，投影大小即 s 分量所占的比例。假定 \mathbf{n}_4 和 \mathbf{n}_5 夹角为 Ω ， $\cos\Omega = \mathbf{n}_4 \cdot \mathbf{n}_5$ 。由于投影得到的 s 和 p 分量的比例为振幅比例，它的平方就是我们所需要的功率比，即 $f_s = \cos^2 \Omega$ 和 $f_p = \sin^2 \Omega$ 。因此，散射力和梯度力的俘获效率分别为方程(2.17)和(2.18)：

$$Q_{scat} = f_s Q_{scat,s} + f_p Q_{scat,p} \quad (2.17)$$

$$Q_{grad} = f_s Q_{grad,s} + f_p Q_{grad,p} \quad (2.18)$$

俘获效率 Q 的分量代入公式(2.12)中，即可得到光阱力计算的统一公式，包括了任意位置和任意偏振光束的分析。

2.4 模拟结果与讨论

当微粒横向和轴向偏离光阱中心时，根据前述矢量分析，我们可以采用统一的计算力的方式，并且也能考虑到偏振态对光阱力的影响。为了证实上述光线追迹方法的有效性，下面计算和讨论聚焦偏振和无偏振光束对微粒的光阱力。在下面两个例子中，在物镜入瞳处高斯光束的强度分布用 $I(r) = I_0 \exp(-2r^2 / \omega_0^2)$ 表示，其中 ω_0 表示束腰(或者为物镜入瞳处的光斑大小)。在以下的计算中， $n_m = 1.33$ ， $n_r = 1.59$ ， $NA = 1.25$ ， $r_{bead} = 3 \mu\text{m}$ ， $R_{obj} = 3 \text{mm}$ 。

2.4.1 无偏振光束的俘获力

在这一小节将讨论无偏振光束在物镜入瞳分布状态对光阱力的影响，并根据这些力，分析微球具有横向位移时轴向俘获的稳定性。对于无偏振光束， $f_s = f_p = 0.5$ ，充满状态用 $\xi = \omega_0 / R_{obj}$ 表示。

图 2.3 表示了不同光束分布状态的俘获力。当微球横向偏离光阱中心时，它会受到横向俘获力 (Q_r ，图 2.3(a)) 和轴向俘获力 (Q_z ，图 2.3(b))。 Q_r 为负值，表示微球有横向移动到中心的趋势。我们注意到图 2.3(b)中 $Q_z > 0$ ，表示微球受到

沿+z方向的推力。当微球轴向偏离聚焦中心位移 ρ 时，见图2.3(c)，它受到轴向俘获力 Q_z 与 $Q_z=0$ 存在交点，在偏离交点时受到的力为回复力，这种情况下表示了微球在轴向能被稳定的俘获。并且轴向稳定俘获位置随着 ξ 增大而减小。对于半充满状态 $\xi=0.5$ ，在+z方向上的 $|Q_z|_{max}$ 是最小的（图2.3(c)），横向上的俘获力 $|Q_{tr}|_{max}$ 是最大的（图2.3(a)）。但是对于过充满状态 $\xi=100$ ，结果恰好相反。在 $\xi=1$ 时的横向和轴向俘获力处于三种状态的中间。从光束的三种充满状态和微球具有轴向位移的 Q_z 上看，过充满状态的聚焦光束的俘获稳定性最好，但由于光束被物镜孔径切趾导致激光功率减弱，一般认为 $\xi=1$ 是光镊合适的设计参数。

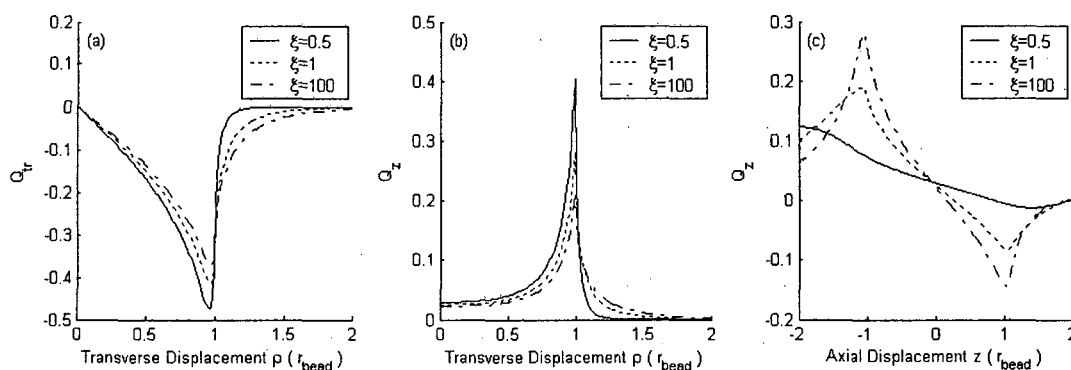


图2.3 在不同充满状态下，随横向(a-b)和轴向位移(c)的光阱力变化。(a)横向力，(b)轴向力，(c)轴向力。

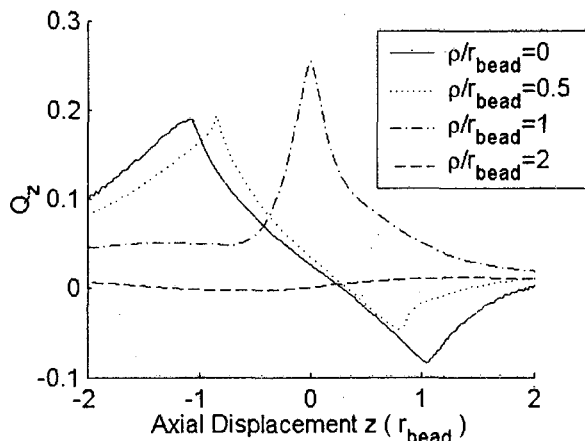


图2.4 微球平行轴向运动时的轴向力与横向偏离光阱中心位移的关系。

在图2.3(b)中，随着横向位移增大至 $\rho/r_{bead} \sim 1$ ，微球受到的轴向推力迅速增大，那么推力会影响俘获的轴向稳定性。为了进一步证实横向位移对轴向稳定性的影响，当 $\xi=1$ 和微球从光阱中心有不同横向偏离 ρ 时，我们计算了沿轴向分布的 Q_z 。正如图2.4所示，沿+z方向，随着横向位移的增大，微球受到 $|Q_z|_{max}$ 在降

低, 并且轴向平衡位置($Q_z=0$)也发生细微的变化, 所以轴向稳定性变差。对于横向位移在 r_{bead} 或者超越 r_{bead} , 由于轴向不平衡, 微球不能被光阱稳定俘获, 尤其是对于横向位移超越 r_{bead} , 那里存在很大的推力将微球推出光阱中心。很显然, 当微球的横向位移接近时 r_{bead} , 原本被俘获的微球从光阱中逃逸出来。由图 2.3(a) 可知, 尽管最大横向俘获力仅仅出现在 $\sim r_{bead}$ 附近, 但是根据图 2.4, 它是不能由斯托克斯拖拽力测量出。

为了阐明光线追迹方法的有效性, 我们利用传统光线追迹分别计算了微球有横向和轴向位移时的光阱力, 结果与图 2.3(a)和(c)相同。由于以前借助对称性分析, 很少注意到微球横向偏离后受到轴向力(图 2.3(b))的情况。对于微球沿坐标轴运动时, 它的光阱力可以根据对称性获得, 但在微球横向偏离光轴后, 无法借助对称性分析微球在沿轴向受到的光阱力(图 2.4), 这一情形恰好衡量了离轴后微球的稳定性。为了实现这一分析, 复杂的三角关系, 包含力的方向和入射角度等分析^[11]。此外, 在微球横向偏离时, 判断有效光线需要借助复杂的空间立体几何关系^[53]。然而, 利用矢量光线追迹方法, 入射角和力的方向可以用矢量表示, 利用公式(2.7) 容易判断有效光线, 所有计算光阱力只需要改变光阱中微球的空间位置。从图 2.4 可知, 当微球横向偏离光阱的距离达到微球半径时, 由于轴向力一直都大于零, 即微球不能稳定俘获。也就是尽管微球横向偏离过大, 受到的横向力能将微球拉回光阱中心, 但由于轴向的不稳定性使得它早已逃逸光阱区域。

2.4.2 偏振光束的俘获力

在这一小节中, 我们讨论圆偏振和线偏振光束在正交方向上的光阱力的分布, 并进一步分析方向上对微粒的轴向偏离的影响。在 RO 模型中, 过去很少有文献计算和讨论光束偏振影响光阱力的分布, 主要因为在传统的光线追迹中分析空间角度过于复杂。基于矢量光线的追迹, 由于 s 和 p 分量采用矢量关系表示, 我们很容易计算线偏振光束的光阱力。

当微球有横向位移时, 图 2.5 给出了在 $\xi=1$ 时圆偏振($\varphi=\pi/4$)和线偏振光束($\varphi=\pi/4$, x 方向偏振)的光阱力。在图 2.5(a)中, 微球具有 x 方向位移时, 线偏振光束的 $|Q_r|$ 比微球具有 y 方向相同位移时的值要大。由于圆偏振光束为称性, Q_r 在两个方向上大小相同, 并且这个值介于线偏振光束在相互垂直方向上的光阱力

之间。具有横向位移的微球在光阱中不仅仅受到横向俘获力，同时还受到轴向俘获力 ($Q_z > 0$, 推力)。正如图 2.5(b)所示, 对线偏振光束而言, 微球 x 方向偏离受到的推力要比 y 方向偏离受到的力要大。对于圆偏振光束, 微球横向偏离受到的推力介于线偏振的两种情形之间。在图 2.5(a)中在相互正交方向上线偏振光束的 Q_{tr} 的平均值与圆偏振光束的值一样, 在图 2.5(b)中的 Q_z 上也是如此。在任意角度的 φ 的线偏振光束与圆偏振光束之间, 在不同方向的光阱力上也存在正交分解的关系。

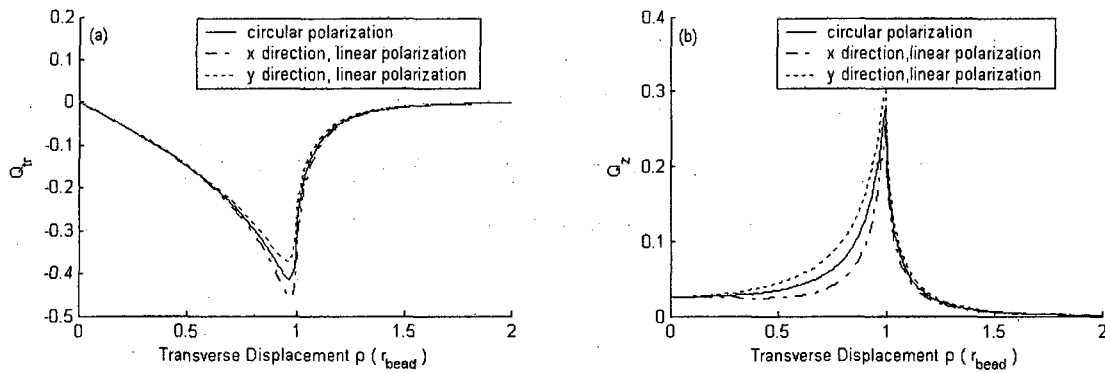


图 2.5 圆偏振和线偏振光束对横向偏离光阱中心微粒的(a)横向和(b)轴向光阱力。

在图 2.5(a)中, 对线偏振光束而言, 在 x 方向位移的 $|Q_{tr}|_{max}$ 比在 y 方向上位移的要大, 这一结论与 $\text{Im}^{[50]}$ 基于修正的传统光线追迹方法所得结果一致。在他们实验中, 通过斯托克斯粘滞阻力测量的最大横向俘获力, 确实在偏振方向上的值大于垂直偏振方向上结果。然而, 相同横向位移对应的俘获力的差异是否就能合理解释这一实验结果呢?

从上一小节的分析结果来看, 当微球有横向位移时, 由于推力的作用, 微球并不能达到 $-r_{bead}$ 处。在图 2.5(b)的三种情况中, 微球在有较大横向位移后会受到不同大小的推力。由于轴向平衡 ($Q_z=0$), 这种推力会导致微球稳定俘获点出现轴向偏离, 并进一步影响微球所能到达的最大横向位移。图 2.6 表示 $\xi=1$ 时, 微球随着横向位移变化的平衡点的轴向偏离变化, 沿 z 方向上我们计算的步长为 $0.008r_{bead}$ 。当 $\rho > 0.1r_{bead}$, 轴向上稳定俘获点轴向偏离变化很明显, 并且微球在三种情况下的最大轴向偏离都远大于初始的偏离值。随着微球的横向偏离距离增大, 轴向偏离的迅速变化将影响俘获的稳定性, 那么微球横向移动有一个最大限制。对于圆偏振光束而言, 最大能达到的横向位移 $\rho_{max} = 0.7r_{bead}$, 对于线偏振光束, 在 x 方向上 $\rho_{max,x} = 0.8r_{bead}$, 在 y 方向上 $\rho_{max,y} = 0.64r_{bead}$ 。在图 2.5(a)中, 当 $\rho =$

$0.8r_{bead}$, 三种情况的俘获力差别并不明显, 但是当微球在三种情况的最大横向位移处 ρ_{max} , 所对应的横向俘获力的差异是非常显著的。因此对于线偏振光束而言, 由于微球横向偏离后受到轴向稳定性限制, 导致不同方向上所能达到的最大横向位移不同, 这才是对微球的横向最大俘获力测量差异的根源。

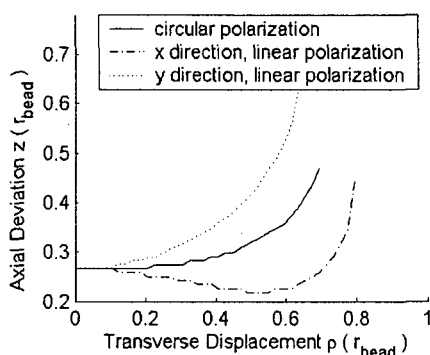


图 2.6 不同横向位移时微球的轴向偏离。

在光镊应用中, 光阱刚度是一个很重要的参数, 它描述了光阱中微球受到的光阱力与位移的线性关系。那么偏振光束对刚度影响是什么样呢? 根据图 2.5, 当 $\rho < 0.3r_{bead}$, 俘获力与位移的关系近似线性。根据图 2.6 的结果, 当 $\rho < 0.1r_{bead}$, 三种情况下的轴向偏移几乎一致并且没有明显的变化, 因此在这一横向偏移区间, 三种情形下的刚度没有明显的差异。这一结论与 Rohrbach^[106]利用 EM 模型计算大微球所得结果是一致的。对于圆偏振光束, 当 $\rho < 0.2r_{bead}$, 轴向偏移量没有明显变化。对于线偏振光束, 微球在相互垂直方向上的横向偏移 $\rho < 0.1r_{bead}$ 时, 轴向偏移是相同的, 而当 $\rho > 0.1r_{bead}$, 它们有着明显的差异。因此, 圆偏振光束形成的光阱的力与位移满足的线性区要比线偏振光束形成的要大。在许多应用中, 我们期望光阱力要比较大, 也就是期望刚度和线性区大一些, 因此在相同条件下, 圆偏振光束更适合构建光镊。

为了进一步阐明矢量光线追迹方法对聚焦偏振光束的有效性, 我们比较无偏振和圆偏振光束对微球在横向位移和轴向位移的光阱力, 所有结果一致, 因此基于空间矢量的光线追迹方法适合分析偏振光束。采用这种方法, 无须分析偏振光束的对称性, 不仅如此, 横向和轴向俘获力只需要改变微球的位置即可计算出。对于我们模拟的结果, 光束偏振特性不仅导致俘获力存在差异, 还在最大横向位移上存在差异, 而后者往往在以前被忽略掉了。

2.5 小结

在 RO 模型中为了简化复杂情形下光阱力的计算,我们提出了基于矢量表示的光线追迹方法。借助空间矢量的关系,入射角、力的方向和有效光线可以统一用矢量表示。对于偏振光束,我们可以借助矩阵的方法分析光线通过物镜后的偏振方向,并通过矢量关系可以获得 s 和 p 分量的比例。因此矢量光线追迹方法适合统一计算不同情形的光阱力。

为了证实矢量光线追迹方法的有效性和优越性,我们具体计算和讨论了无偏振和偏振光束的光阱力。激光不同充满状态影响力的大小,当微球偏离光轴越远,轴向推力影响着轴向的不平衡,理论上最大的光阱力大小并不能在实验上测出。对于线偏振光束,微球在正交方向上的光阱力不一样。由于轴向偏离的影响,影响最大横向力的测量。对于三维计算各种情况下的光阱力,传统光线追迹需要单独和复杂的分析,而矢量光线追迹对所有情况是统一的。因此在 RO 模型中,矢量光线追迹对于分析复杂条件的光阱力。

运用矢量光线追迹的方法研究真实的物理体系时需要考虑油浸物镜中玻片-水界面的球差的影响。对于界面球差的存在,不仅改变了光线的传播方向,同时还意味着偏振光束在不同入射角具有不同的透射率,使得偏振方向会有所改变,同时也会产生入射激光的总功率会有所损耗,因此矢量光线追迹方法可进一步拓展运用到玻璃-水界面引起球差的体系中。

第3章 非球形微粒的几何光学模型

通过第二章分析,球形微粒在光阱中受到的力可以统一地利用矢量光线追迹表示出来,这种方法很方便地模拟微粒在任意位置的受到的力,并且可以模拟光束偏振态对球形微粒的光阱力及轴向平衡点的影响。在实际问题中,高数值孔径物镜由于玻璃-水界面引起的球差会改变光束的偏转方向^[109],不再聚焦到理想的焦点,微粒受到的阱力随着距离玻片底面的高度增加而急剧减弱。界面上的微粒受到光阱作用^[52],光线追迹会由于界面的存在变得复杂。往往实验中的微粒不是规则的球形,如血红细胞是双凹的饼形。因此,在实际问题的分析中,不同条件下对不规则微粒的光阱力模拟显得非常重要。

目前已有一些文献讨论过类球体微粒在光阱中的受力,主要集中在EM模型中,用矢量球谐函数展开高斯光束分析类球体受到的光阱力^[119],并整合为计算工具予以公布^[120],进一步可以展开任意光束分析类球体的光阱力^[64]。在RO模型中,很早也分析椭球光阱力的报道^[54],利用矢量光线计算了无球差的聚焦光束对微粒的作用力,并指出长轴与光轴平行的取向最为稳定。最近有报道利用光线追迹的商业软件^[51],实现对任意形状的微粒的光阱力模拟。

光阱力的大小是所有光线对微粒作用的总体现,单纯研究光阱力的大小并不能反应微粒上单位面积上受力的大小——应力张量,而这一个物理量在许多研究中都显得很重要。如在物理规律的基础研究中,对于光学俘获重新引起了Minkowski动量和Abraham动量之争^[121],光阱力的RO模型支持了Minkowski动量。对于细胞受到一定应力分布时,会引起细胞变形^[16],通过变形同时也可测量它的弹性模型等^[55]。在RO模型中,研究应力分布最简单模型就是采用平板模型,还有就是采用二维圆形模型,而这些简化模型中,一般都只考虑前后两个面的折射/反射。实际的细胞变形中,微粒形状变化后应力分布也会发生变化,而形变后的微粒由于受到的力矩引起微粒重新定位,因此有必要研究复杂情形下非球形微粒在光阱中的应力张量及力矩。

本章是延续第二章的矢量光线追迹模型,将这种方法运用到非球形微粒分析光阱力、应力张量和力矩。我们以三个半轴不一样的类球体微粒为例阐述我们的分析方法。

3.1 光线入射界面上的作用力

光线从一种媒质进入另一种媒质,光子的频率不发生改变,但由于媒质折射率不同,光子动量会发生改变,光子动量的改变量便引起媒质界面处受到作用力。很早 Ashkin 给出了单根光线对单个球形微粒的作用力^[49],在这一章,由于所讨论的是光阱中的类球体微粒,每次光线折射和反射的入射角都会发生变化,而且每次的入射面有可能不重合,因而有必要先弄明白光线入射界面时,光线对界面的作用力大小和方向,以便分析类球体受力。

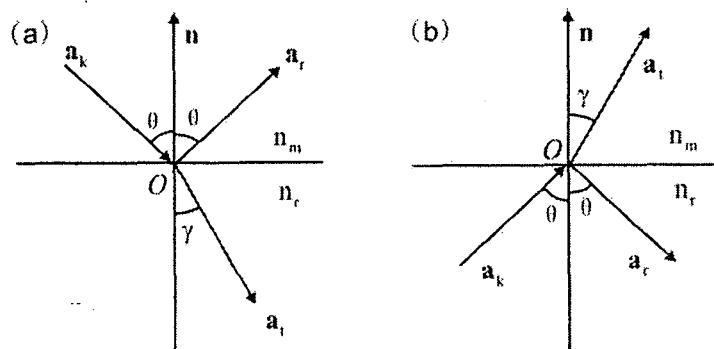


图 3.1 界面上光线的折射和投射,单位矢量 \mathbf{a}_k 、 \mathbf{a}_r 、 \mathbf{a}_t 和 \mathbf{n} 分别代表入射光线、反射光线、折射光线和界面外法线的方向, $n_m < n_r$ 。

一般来说,微粒的折射率 n_r 高于媒质的折射率 n_m ,因此在界面入射的光线存在两种情况,一种是光从光疏介质进入光密介质,另一种为光从光密介质进入光疏介质,见图 3.1。对于任何一种情况,界面上受到光线的作用力为^[116]

$$\mathbf{F} = \frac{\Delta \mathbf{P}}{\Delta t} = \frac{\mathbf{P}_k - (\mathbf{P}_r + \mathbf{P}_t)}{\Delta t}, \quad (3.1)$$

其中 P_k 、 P_r 和 P_t 分别为入射动量、反射动量和透射动量(对应折射光线)。对于光从光疏介质进入光密介质(图 3.1(a)),界面受到的力为

$$\mathbf{F} = \frac{n_m P}{c} [\mathbf{a}_k - (nT\mathbf{a}_t + R\mathbf{a}_r)] = \frac{n_m P}{c} [nT \cos \gamma - \cos \theta (1 + R)] \mathbf{n}, \quad (3.2)$$

其中 R 和 T 为能流的 Fresnel 反射和透射系数, P 为功率, $n = n_r/n_m$ 。对于光从光密介质进入光疏介质(图 3.1(b)),则

$$\mathbf{F} = \frac{n_m P}{c} [\mathbf{a}_k - (nT\mathbf{a}_t + R\mathbf{a}_r)] = \frac{n_m P}{c} [n \cos \theta (1 + R) - T \cos \gamma] \mathbf{n}. \quad (3.3)$$

从公式(3.2)和(3.3)可知,界面上受到斜入射的光线作用,力是沿垂直界面的方向,而平行界面的方向上不受到力的作用。在两种情况中,我们取光密介质指向光疏介质的方向 \mathbf{n} 为界面的外法线方向。

根据 Snell 定理^[118],当图 3.1(a)中入射角 $\theta=0$,无论是 s 和 p 光,反射率为

$$R = \left(\frac{n-1}{n+1}\right)^2. \quad (3.4)$$

由公式(3.2)和(3.4)在光线从光疏介质进入光密介质零度入射界面时的力为

$$\mathbf{F} = \frac{n_m P}{c} [nT - (1+R)] \mathbf{n} = \frac{n_m P}{c} \frac{2(n-1)}{n+1} \mathbf{n}, \quad (3.5)$$

其中 $n = n_r/n_m > 1$, 因此光阱力的方向垂直界面的外法线方向。同理光线从光密介质进入光疏介质时零度入射界面, 界面受到的光阱力的方向仍然是朝外法线方向(图 3.1(b))。假如在入射光场中放置折射率高于媒质的薄膜介质平板, 则两个表面受到方向相反的拉力, 足够大的光阱力便能在垂直薄膜表面方向上拉伸薄膜变厚。对于光阱中软的细胞, 尽管在稳定平衡点时细胞受到的光阱力为零, 但在沿光轴方向的两个细胞表面会受到的很大的相反方向的作用力, 这样力在相反方向拉伸细胞, 使得细胞发生变形, Guck 等人采用平板模型估算出单光阱就能使细胞发生形变^[16], 并在实验上得到很好的验证。为了简化分析, 我们采用无量纲因子 $Q = Fc/n_m P$ 表示受力, 则单位面积上受到的力——应力张量可表示为 $\sigma = F/A$, 其中 A 为面积。

3.2 光阱中类球体微粒的光阱力

在球差影响下, 追迹单根光线与类球体相互作用如图 3.2 所示, 以物镜聚焦点 O 为坐标原点, 物镜光轴为 z 轴建立笛卡尔坐标系 S_0 。类球体中心位于空间任意位置 $P(x_0, y_0, z_0)$ 处, 三维主轴分别平行坐标轴。光线从物镜中心 O_0 所在平面上 (r, β) 处入射, 由于玻璃(n_g)和水(n_w)折射率失配引起球差, 在离玻璃底面高度为 z_{cg} 处, 原本入射到 O 点的光线 n_1 发生偏转与 z 轴交于 $G(0, 0, \Delta z)$ 点(见图 3.2(a))。对于高数值孔径物镜满足正弦定理, 通过物镜焦点处的光线与 z 轴夹角为 α_1 , $\sin \alpha_1 = r/f_{obj}$, 其中 $f_{obj} = n_g R_{obj}/NA$ 。由于球差影响偏转后实际与 z 轴夹角为 α_2 , 其满足 $n_g \sin \alpha_1 = n_w \sin \alpha_2$ 。因此 $\Delta z = z_{cg} + |z_{cg}| \tan \alpha_1 / \tan \alpha_2$, 描述光线传播方向的单位矢量

$$\mathbf{n}_1 = (n_{1x}, n_{1y}, n_{1z}) = (-\sin \alpha_2 \cos \beta_0, -\sin \alpha_2 \sin \beta_0, \cos \alpha_2). \quad (3.6)$$

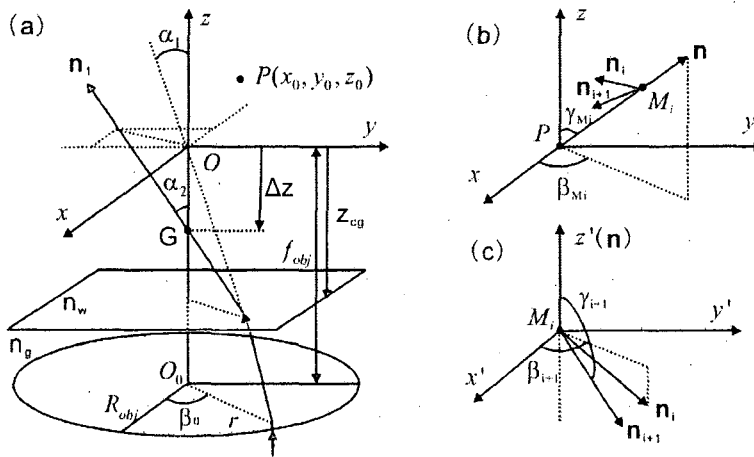


图 3.2 对类球体微粒的矢量光线追迹。 P 点为类球体的中心位置， M_i 点为光线第 i 次经过类球体的交点。(a) 在球差影响下单根入射光线的空间矢量方向 \mathbf{n}_1 ；(b) 光线第 i 次 ($i > 1$) 入射到类球体界面上时外法线矢量 \mathbf{n} 、入射光线 \mathbf{n}_i 和折射光线 \mathbf{n}_{i+1} 矢量的空间方位关系；(c) 旋转(b)到以法线矢量方向 \mathbf{n} 为 z' 轴的新坐标系下。

为了计算类球体所受的光阱力，以下几步分析是必须的。首先得弄清楚光线在类球体上的多次折射和反射点的位置。当光线 \mathbf{n}_1 入射到任意空间位置 P 点的类球体，为了分析的方便，将坐标系 S_0 平移到 P 点为原点的坐标系 S ，在新坐标系下光线折射进入类球体，第一次折射的光线作为第二次入射的光线，之后每次反射的光线作为下一次入射光线。由于坐标平移不改变代表光线方向的单位矢量，设第 i 次入射光线的单位矢量为 $\mathbf{n}_i(n_{ix}, n_{iy}, n_{iz})$ ，并经过定点 $M_i(x_i, y_i, z_i)$ ，满足方程(3.7)，

$$\frac{x^2}{a^2} + \frac{y^2}{b^2} + \frac{z^2}{c^2} = 1, \tag{3.7A}$$

$$\frac{x - x_i}{n_{ix}} = \frac{y - y_i}{n_{iy}} = \frac{z - z_i}{n_{iz}} = t. \tag{3.7B}$$

通过上述方程求解，

$$A = a^2 b^2 c^2 \left(\frac{n_{ix}^2}{a^2} + \frac{n_{iy}^2}{b^2} + \frac{n_{iz}^2}{c^2} \right), \tag{3.8A}$$

$$B = 2a^2 b^2 c^2 \left(\frac{n_{ix} x_i}{a^2} + \frac{n_{iy} y_i}{b^2} + \frac{n_{iz} z_i}{c^2} \right), \tag{3.8B}$$

$$C = a^2 b^2 c^2 \left(\frac{x_i^2}{a^2} + \frac{y_i^2}{b^2} + \frac{z_i^2}{c^2} - 1 \right), \tag{3.8C}$$

$$t = \frac{-B \pm \sqrt{B^2 - 4AC}}{2A} \quad (3.8D)$$

光线与类球体新的交点 $M_{i+1}(x_i+n_{ix}t, y_i+n_{iy}t, z_i+n_{iz}t)$ 。有效光线的判断可由公式(3.8D)确定。对于光线与类球体第一次相交于 M 点(见图 3.2(b)), 光线必过定点 G 点, 此时光线为 \mathbf{n}_i , 代入坐标系 S 下 G 点的坐标(坐标中心平移到微粒中心)即可得到第一次交点 M 的坐标。由于之后每次的交点都在类球体上, 则公式(3.8C)中 $C=0$, 每次新的入射点对应于 $t=-B/A$ 。

第二步需要确定光线矢量和入射面的空间方位。在类球体上的入射点 M_i ($i>1$), 见图 3.2 (b), 它所对应的外接平面的法线方向可由公式(3.7A)的导数可得

$$\mathbf{n} = \left(\frac{2x}{a^2}, \frac{2y}{b^2}, \frac{2z}{c^2} \right) \Big|_{M_i} \quad (3.9)$$

它的空间方位角为 $(\beta_{M_i}, \gamma_{M_i})$ 。由入射光线单位矢量 \mathbf{n}_i 和法线 \mathbf{n} 共同构成入射面, 折射和反射光线(图中没有画出)均在这一平面内。由于折射和反射光线在空间方位发生了变化, 在 S 坐标系下分析显得复杂, 因此可以通过坐标旋转的方式使得以法线 \mathbf{n} 与新坐标系 S' 下 z' 轴重叠, 见图 3.2(c), 这样方便分析单位矢量在坐标系中的方位角。以下分析以折射光线为例, 将坐标系 S 选择到 S' 系中, 先绕 z 轴旋转角度 β_{M_i} , 再绕 y 轴旋转 γ_{M_i} , 分别表示为

$$Rot_z(\beta_{M_i}) = \begin{pmatrix} \cos \beta_{M_i} & \sin \beta_{M_i} & 0 \\ -\sin \beta_{M_i} & \cos \beta_{M_i} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (3.10A)$$

$$Rot_y(\gamma_{M_i}) = \begin{pmatrix} \cos \gamma_{M_i} & 0 & -\sin \gamma_{M_i} \\ 0 & 1 & 0 \\ \sin \gamma_{M_i} & 0 & \cos \gamma_{M_i} \end{pmatrix} \quad (3.10B)$$

在坐标系 S' 中, 入射光线单位矢量为 $Rot_y \cdot Rot_z \cdot \mathbf{n}_i$, 左上角撇号表示向量的转置。在 S' 系中, 入射光线、折射光线在 $x'y'$ 面的投影与 x' 轴夹角都为 β_{i+1} 。根据图 3.1 由 Snell 定理可以得出折射光线与外法线 (z' 轴) 夹角 γ_{i+1} 。则 S 系下折射光线矢量可表示为

$$\mathbf{n}'_{i+1} = Rot_z^{-1}(\beta_{M_i}) Rot_y^{-1}(\gamma_{M_i}) (\sin \gamma_{i+1} \cos \beta_{i+1}, \sin \gamma_{i+1} \sin \beta_{i+1}, \cos \gamma_{i+1})' \quad (3.11)$$

反射光线的方位角确定后也能得到 S 坐标系中的矢量表示。对于反射光线，同样也处于入射面内，在坐标旋转到 S' 中时，由入射光线矢量同样确定了 β_{i+1} ，根据 Snell 定理也可得出反射光线与 z' 轴夹角需要 γ_{i+1} ，因此反射光线矢量也就确定了。

第三步确定每份光线的 s 和 p 分量。根据第二章的分析可知，在不考虑偏振的影响下，一般取 $f_s = f_p = 0.5$ 。对于线偏振光束入射到物镜入瞳处，偏振方向与 x 轴夹角为 φ ，其任意单根光线 (r, β_0) 入射进入物镜后，光束在传播过程中偏振方向会发生改变，首先体现在玻璃-水界面上 s 和 p 光的折射率和透射率不同，其次光线入射到微粒上和从微粒中折射出射都会引起偏振方向的改变。有关界面引起偏振方向的改变可以参考文献^[122]，在这里仅给出相应的结果。光线入射到微粒上的电场 \mathbf{E} 与初始偏振方向的单位矢量 \mathbf{E}^0 之间满足

$$\mathbf{E} = \text{Rot}_z^{-1}(\beta_0) \cdot \text{Lens} \cdot I \cdot \text{Rot}_z(\beta_0) \cdot \mathbf{E}^0, \quad (3.12)$$

其中， $\mathbf{E}^0 = (\cos \varphi, \sin \varphi, 0)$ ，

$$\text{Lens} = \begin{pmatrix} \cos \alpha_2 & 0 & -\sin \alpha_2 \\ 0 & 1 & 0 \\ \sin \alpha_2 & 0 & \cos \alpha_2 \end{pmatrix}, \quad (3.13A)$$

$$I = \begin{pmatrix} \tau_p & 0 & 0 \\ 0 & \tau_s & 0 \\ 0 & 0 & \tau_p \end{pmatrix}. \quad (3.13B)$$

在公式(3.13B)中振幅透射率 $\tau_p = \frac{2 \sin \alpha_2 \cos \alpha_1}{\sin(\alpha_1 + \alpha_2) \cos(\alpha_1 - \alpha_2)}$ ， $\tau_s = \frac{2 \sin \alpha_2 \cos \alpha_1}{\sin(\alpha_1 + \alpha_2)}$ 。

由于反射损耗，经过界面透射后光线偏振方向的单位矢量为 $\mathbf{n}_p = \mathbf{E} / |\mathbf{E}|$ 。由于法线矢量和入射光线矢量构成了入射平面，入射面的法线 $\mathbf{n}_{inci} = \mathbf{n} \times \mathbf{n}_i$ ，偏振方向和入射面法线方向的夹角为 Ω ，并满足 $\cos \Omega = \mathbf{n}_p \cdot \mathbf{n}_{inci}$ ，那么光线第一次入射到类球体上， s 分量的功率分量比例为 $f_s = \cos^2 \Omega$ ， p 方向 $f_p = 1 - f_s$ 。第一次折射后的光线根据振幅透射率确定新的偏振方向。由于每次入射面并不重叠，因此光线偏振的 s 和 p 分量都不一样，但计算的基本思路是一致的。

最后确定光线功率的损耗。对于界面的能流的透射， $T_p = \frac{n_w \cos \alpha_2}{n_g \cos \alpha_2} |\tau_p|^2$ ，

$T_s = \frac{n_w \cos \alpha_2}{n_g \cos \alpha_2} |\tau_s|^2$ 。当光线入射到微粒上时, 光线由于不断的反射和折射, 在

每一次计算中都需要考虑功率的变化。根据 3.1 分析的光阱力计算方法, 便可得到光阱力的大小。根据光线每次折射/透射的作用点, 光阱力与微小面积的比值即可得到应力张量。

当类球体对称轴与光轴重叠时, 由于应力对称分布, 不会对微粒产生净力矩。当类球体对称轴与光轴存在夹角时, 此时作用在微粒上的力矩使得微粒发生旋转, 直到转到合适的位置后使得力矩为零。在这种情况下光阱力的分析可以借助旋转矩阵的方式使得类球体的主轴与光轴重叠, 这样就可以借助前述的分析计算光阱力, 并对不同作用点的光阱力计算出力矩, 再对光阱力和力矩通过矩阵反演的方式回到原坐标系中分析。

3.3 类球体的光阱力

取 $\xi = \omega_0 / R_{obj}$ 表示光束的充满物镜的状态, 以下计算中 $\xi=1$, 物镜数值孔径 1.25, 微粒的折射率 1.59, 水的折射率 1.33, 玻璃折射率为 1.51。以球形微粒半径 $r_{bead}=3\mu\text{m}$ 作为参考值, 取变形比 $\varepsilon_x=a/r_{bead}$, $\varepsilon_y=b/r_{bead}$ 和 $\varepsilon_z=c/r_{bead}$ 。不特别指明, 物镜焦点离玻片底面高度 $z_{cg}=-10\mu\text{m}$, $\varepsilon_x=\varepsilon_y=\varepsilon_z=1$ 。

3.3.1 球差对光阱力的影响

由于高数值孔径物镜在玻片-水界面折射率不匹配, 在离玻片底面不同高度上引起的球差会有所差别, 即光线经过高数值孔径物镜聚焦时, 光线进入界面后发生偏折, 使得原本聚焦到物镜焦点的光线聚焦到不同轴向位置(从电磁场上对应于轴向拉长了聚焦光斑)。对于微粒离玻片底面不同高度处, 由于球差影响所受的光阱力见图 3.3, 微粒沿 $-z$ 方向偏移中心时, 微粒受到的最大轴向光阱力 $|Q_z|_{max,-z}$ 随着 $|z_{cg}|$ 增大而增大, 轴向平衡位置也随着 $|Q_z|_{max}$ 的变化而不同。当微粒朝 $+z$ 方向远离光阱中心时, 没有球差的光阱对微粒的 $|Q_z|_{max,+z}$ 是最大的, 而对于球差影响的光阱, 离底 $|z_{cg}|$ 越远, $|Q_z|_{max,+z}$ 在不断变小, 即光阱所对应的势阱越难束缚微粒。同时随着 $|z_{cg}|$ 增大, 球差的存在使横向最大光阱力降低, 即无球差时横向的最大光阱力最大(图 3.3 中没有画出)。因此, 界面引起的球差影响了光阱俘获球形微粒的稳定性, 光阱存在一定的俘获深度, 超越临界距离, 光阱就

不能稳定俘获微粒。

在实验中 Ke 等人^[123]很早就注意到球差影响光阱力大小，他们利用 EM 模型解释了这一现象，利用 RO 模型同样也能简单明了地解释了这一现象^[108-109]。随着离玻片底面高度增大，光阱俘获微粒的轴向稳定性降低，而实际实验中往往需要离底有一定高度，因此不断有研究^[124-127]提出球差补偿提高光阱力，延长俘获深度，拓展光镊的应用。一般来说，我们不期望球差降低光阱力，但在简单光镊系统中采用高数值孔径物镜，因此难以避免玻片-水界面的球差，为了实现远离玻片处（较大俘获深度）增强光阱力，我们采用与光路共轭距失配的物镜实现球差补偿，实现在特定俘获深度上增大光阱力，见第六章。

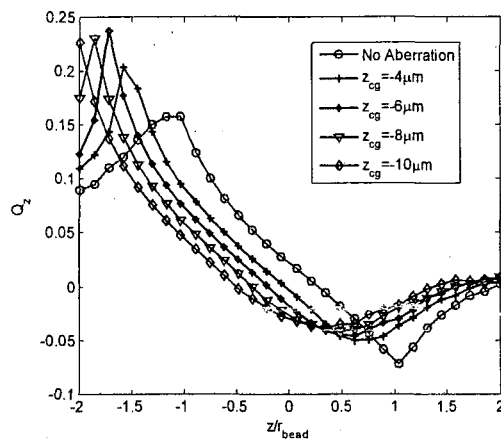


图 3.3 球差影响下球形微粒受到的光阱力。

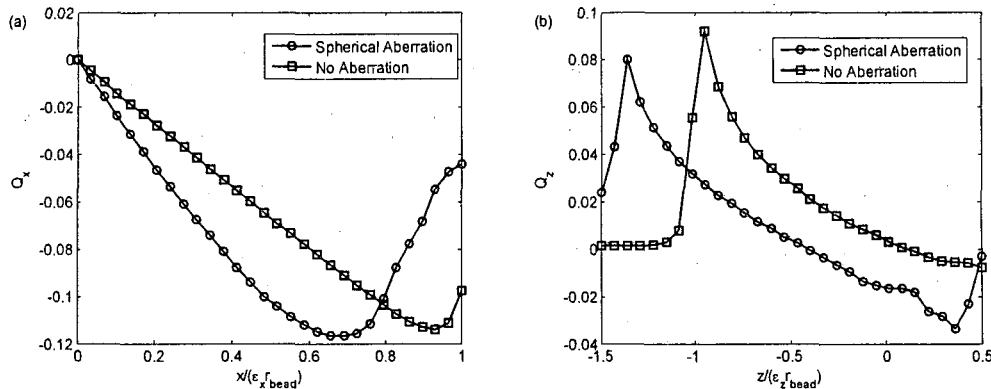


图 3.4 光阱对长杆状微粒的横向(a)和纵向(b)的光阱力。

界面球差降低了轴向光阱力和俘获的稳定性，除了不利的一面之外，它们是否存在有利的一面吗？由于球差的影响，聚焦光斑拉长，那么对于长杆状微粒的稳定俘获也许会产生积极影响。下面我们以纵横比达到 8:1 长杆状的类球体微粒

为例, $\varepsilon_x = \varepsilon_y = 1/6$, $\varepsilon_z = 4/3$, 微粒受到光阱的光阱力见图 3.4。比较球差和没有球差对光阱力的影响, 从图 3.4(a)中可以看出, 球差影响下的横向光阱力更大, 并且随横向偏移的变化率也要大。而对于轴向光阱力(图 3.4(b)), 球差影响下的光阱对长杆状微粒的 $|Q_z|_{\max, z}$ 比无球差光阱的情形时大, 因此球差情形下的光阱俘获微粒更稳定, 这样, 球差对光阱也能有着有利的影响。出现这一状况的原因在于球差使得光线聚焦区域拉长, 由于长杆状微粒的长轴与光轴重叠, 散焦的光线仍然都通过微粒发生折射和反射, 比起球形微粒, 有效光线增多, 光阱力增强。此外还与入射角度也有关系, 从 3.1 分析中可以看出, 垂直入射界面的光阱力最大, 那么斜入射时与法线角度越小, 光阱力也会越大。球差引起聚焦光线出现散焦, 散焦的光线比无球差聚焦的光线入射到长杆状微粒上侧面的入射角要小, 因此光阱中的微粒受到的光阱力在有球差时反而增大了。由此可见, 对于光阱中的非球形微粒而言, 球差会导致一些意想不到的效果。

3.3.2 变形比对光阱力的影响

从上一节可知, 在光阱俘获球形微粒时球差降低了光阱力, 而在俘获长杆状微粒时, 球差反而增强了光阱力, 可见微粒形状影响光阱力大小。我们以球形微粒为参考($\varepsilon_x = \varepsilon_y = \varepsilon_z = 1$), 比较微粒在不同方向上的变形比对光阱力的影响。

图 3.5 表示微粒沿 x 方向变形在 x 方向偏离光阱中心时受到的光阱力。当变形比为 $\varepsilon_x = 0.33$ 时, 微粒在偏离平衡位置时受到横向推力 ($Q_x > 0$) 反而加速离开光阱中心, 在远离光阱中心有平衡位置, 在此处由于轴向也受到推力作用 ($Q_z > 0$, 图中未画出), 其实为不稳定俘获点, 因此微粒不能被光阱稳定束缚。而当 $\varepsilon_x = 0.5$ 时, 沿 x 方向的光阱力为回复力, 能稳定束缚微粒在光阱中心。这种情形下横向最大光阱力 $|Q_x|_{\max, x}$ 与球形微粒受到的最大光阱力差不多, 同时光阱力随位移的线性变化 $f = -kx$ 中的 k 比其他情形都大, 则这种情况下光阱刚度最大。当微粒变形比 $\varepsilon_x = 2/\varepsilon_x = 3$ 时, 最大光阱力随着变形增大在降低, 同时刚度也在降低。可见光阱中的微粒沿垂直光轴的某一方向变形膨胀时, 在这个方向上会降低光阱力和光阱刚度, 适当收缩变形时会增大光阱力和光阱刚度, 但过度收缩则被光阱在横向上推开。

图 3.6 表示了沿 x 方向变形在 z 方向偏离光阱中心时受到的光阱力。当变形比 $\varepsilon_x = 0.33$ 时, 在轴向上与 $Q_z = 0$ 没有交点, 即不能被俘获, 其余几种变形比的微

粒都能被光阱稳定俘获。与图 3.5 类似，当 $\epsilon_x=0.5$ 时，比球形微粒 ($\epsilon_x=1$) 在光阱中的轴向刚度都大，即俘获最稳定。随着变形比增大，轴向刚度在降低，但变化不是很明显。由图 3.5 和 3.6 可知，光阱中变形膨胀的微粒主要影响变形方向上的光阱力和刚度，适当收缩变形会增强光阱力和光阱刚度，但过度收缩变形会导致光阱不能稳定俘获微粒。

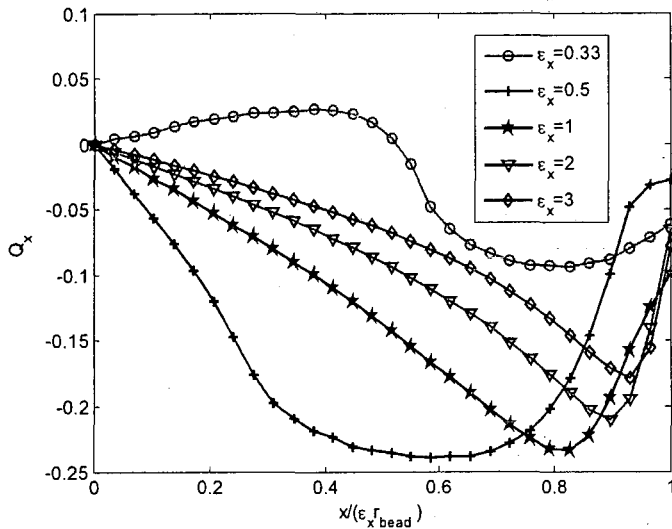


图 3.5 沿横向 x 方向变形的微粒受到的光阱力。

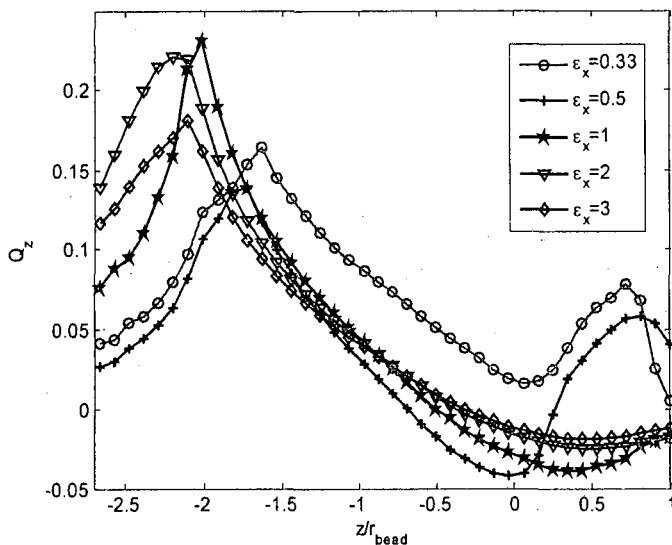


图 3.6 横向变形的微粒沿轴向受到的光阱力。

在 3.3.1 中讨论过纵横比达到 8:1 的微粒能在光阱中俘获，这种长杆状微粒的变形收缩比图 3.6 中 $\epsilon_x=0.33$ (纵横比 3:1) 要高，但后者不能被稳定俘获。他们的差别在于对称性不一样，前者在垂直光轴平面是圆形，而后者是椭圆形。在 y

方向上, 微粒沿 x 方向变形也会影响光阱力大小, 图中没有具体给出。

微粒沿 x 方向变形会导致光阱力和光阱刚度变化, 那么沿 z 方向变形会是什么样呢? 图 3.7 为沿轴向变形的微粒沿 x 方向上受到的光阱力分布。从图中可以看出, $\varepsilon_z < 1$ 时, 最大横向光阱力 $|Q_x|_{max}$ 和光阱刚度 k 随着 ε_z 增大而不断增大, 但当 $\varepsilon_z > 1$ 时, $|Q_x|_{max}$ 随着 ε_z 增大不再一直增大, 而是当 ε_z 增大到一定程度上最大光阱力和刚度反而降低, 例如 $\varepsilon_z = 2$ 情形下的最大光阱力和刚度比 $\varepsilon_z = 1$ 要大, 而 $\varepsilon_z = 3$ 情形下反而比 $\varepsilon_z = 1$ 要小。由此可见, 沿轴向膨胀变形时, 在一定膨胀范围内可以增强横向最大光阱力和光阱刚度, 但膨胀过大, 光阱力和刚度反而降低, 也就是长杆状微粒并不是越长越好。尽管 Shima 等人^[54]指出光阱中球形微粒沿轴向膨胀变形比沿横向膨胀变形的稳定性好, 但没有考虑到球差的影响, 得出随着变形比增大时光阱的横向势能会一直降低, 从我们前述分析中(图 3.7)可以看出, 这一结论不适应于有球差的光阱。

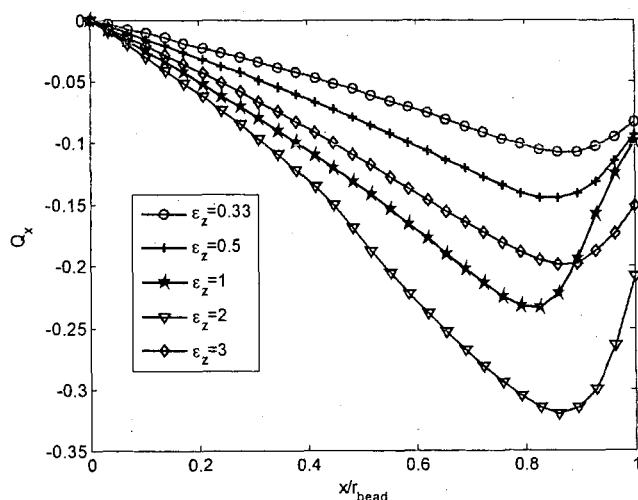


图 3.7 轴向变形的微粒沿 x 方向受到的光阱力。

前面讨论的是沿轴向变形的微粒沿横向受到光阱力的情形, 微粒在轴向上受力的变化见图 3.8。当 $\varepsilon_z = 0.33$ 和 $\varepsilon_z = 0.5$ 时, 虽然微粒在轴向上能被俘获 (存在 $Q_z = 0$), 但光阱对应的势能 (曲线与 $Q_z = 0$ 围成的封闭面积) 较小, 随着 ε_z 增大, 光阱的势能增强, 微粒被俘获越稳定。对比图 3.8 和图 3.4(b), ε_z 增大到一定程度, 虽然微粒能被俘获, 但势能会减弱, 因此光阱中微粒的纵横比过大, 对微粒的稳定俘获会有影响。

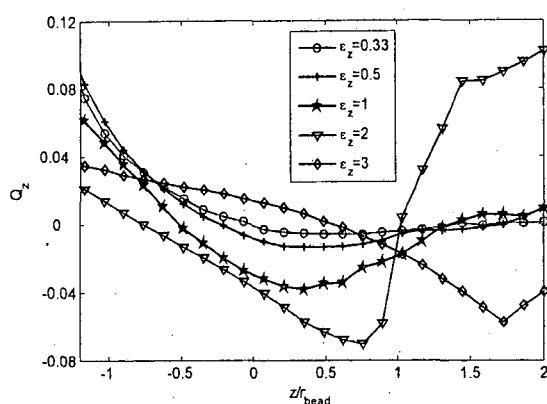


图 3.8 轴向变形的微粒沿轴向受到的光阱力。

3.3.3 光束的偏振特性对光阱力的影响

微粒沿不同方向上的光阱力会受到光束的偏振特性的影响,对于不考虑球差的 RO 模型,第二章解释了在不同方向上测量横向最大光阱力产生差异的原因,并给出了圆偏振态下的光阱线性区要大于线偏振情形。在这里,我们以 $\epsilon_x=1$, $\epsilon_y=2$ 和 $\epsilon_z=3$ 的微粒为例,在不同偏振态的光阱中微粒受到的光阱力见图 3.9。从 3.9(a) 图中可以得知,横向上受到的最大横向光阱力 $|Q_{tr}|_{max}$ 沿变形的方向上 ($|Q_y|$) 要大于未变形的方向上 ($|Q_x|$) 的最大光阱力。对于 $|Q_x|$, 沿 x 方向偏振的光阱要大于随机偏振态(同圆偏振态一样, $f_s=f_p=0.5$) 的光阱, 并且差异较为明显, 而在横向上变形的方向上的 $|Q_y|$, 反而是随机偏振态光阱的光阱力要强, 偏振态对光阱力的差异不明显。

从图 3.9(b)可知, 微粒横向偏离光轴后, 同时还受到轴向的推力。在 x 方向上, 轴向推力随着横向偏离距离增大而减小, 在 y 方向上轴向推力是随着偏离距离增大而增大, 根据 2.4.1 的分析, 显然沿 x 方向(未变形的方向)具有更好的轴向稳定性, 微粒能偏离得更远。对于沿 x 方向偏振的光束, 微粒沿 x 方向偏离中心受到的推力要比随机偏振情形下的光阱力要明显的小一些, 即轴向偏离显得更小, 那么此时横向偏离能达到的距离会更远, 由 3.9(a)图可知, 所能测得的最大逃逸力会比随机偏振光束的要大。而对于微粒沿 y 方向偏离中心时, 光束的偏振态对轴向推力的影响要小, 并且相互之间差异也不明显。

此外, 沿 x 方向偏振和随机偏振光束的光阱对于轴向偏离时, 两者的 Q_z 在稳定俘获点 ($Q_z=0$) 之后变化趋势基本一致, 见图 3.9(c)。由此可见, 对于变形微粒的光阱力, 沿未变形的方向上, 光束偏振态导致的光阱力差异最明显, 这一

差异源自变形后微粒的不规则特性。

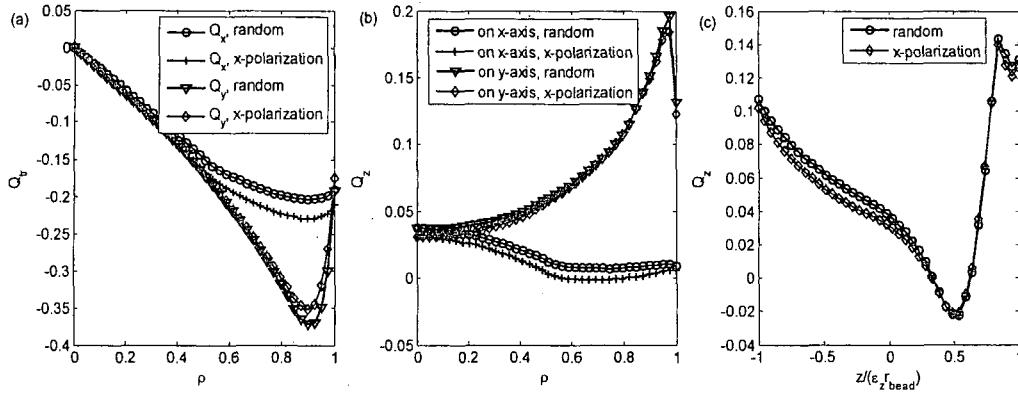


图 3.9 在随机偏振光束和沿 x 方向偏振的光束的光阱中微粒的光阱力。归一化横向位移 $\rho=r/(\epsilon_z r_{bead})$ ，下标 i 为 x 或者 y 。(a)微粒横向偏离光阱中心受到的横向光阱力；(b)微粒横向偏离光阱中心受到的轴向光阱力；(c)微粒轴向偏离后受到的轴向光阱力。

3.4 类球体的应力张量

每份光线通过微粒时发生无数次折射和反射，每次反射和折射都会施加给微粒力的作用，并且每次折射和反射点不同，很多份光线同时作用在微粒上，微粒的不同方位受到的作用力大小不同，为了表征这一区别，我们采用应力张量——单位面积上受力大小。由 3.1 可知，光阱力垂直微粒的表面，即只需要将光阱力大小与所对应的作用面积相比，即得到应力张量。为了便于记录光线的每次入射点，采样球坐标中的方位角 (θ, γ) 将微粒表面分割成很多份。对于球形微粒，由于形状对称分布，面元大小可以采样 $r_{bead}^2 d\theta d\gamma$ 。对于类球体的每一面元，分割大小不一，将实际面元投影到球坐标系中，假设实际面元法线与单位矢量 $(\sin\gamma\cos\theta, \sin\gamma\sin\theta, \cos\gamma)$ 所成夹角为 β ，此时面元到微粒中心距离为 r' ，则面元 $dA=r'^2 d\theta d\gamma / \cos\beta$ 表示。根据 3.1，应力张量 $\sigma=dF/dA=dQn_m P/(cdA)$ ， dQ 为作用在面元上的无量纲光阱力， P 为功率，以下计算中取 $P=10mW$ ，不考虑光束的偏振特性。

图 3.10 为球形微粒 ($\epsilon_x=\epsilon_y=\epsilon_z=1$) 和类球体微粒 ($\epsilon_x=1, \epsilon_y=2, \epsilon_z=3$) 的应力张量分布。对于球形微粒，应力张量 σ 的最大值出现在 $\gamma=165^\circ$ 附近，若是较软的微粒，如血红细胞，那么在球差影响下这一位置最容易发生形变。在 $100\sim 160^\circ$ 之间的 σ 很小，说明光线多次反射和折射经过这一区域的机会很少，即发生形变的

可能性小。由于微粒球对称，微粒上所有 θ 在相同 γ 处的应力张量都一样。对于球形微粒，应力张量的分布集中在前表面较宽的范围($0^\circ \sim 90^\circ$)和后表面很窄的区域($160^\circ \sim 180^\circ$)。

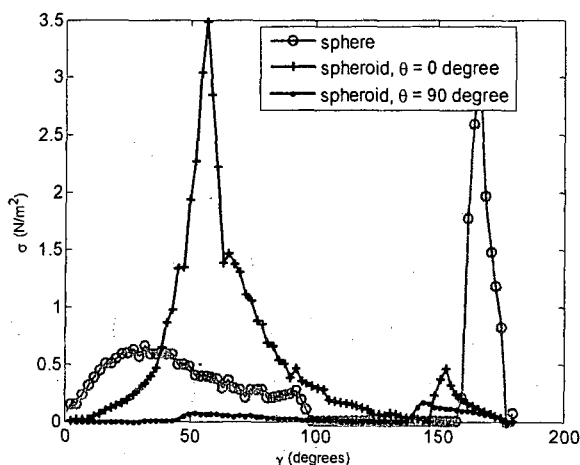


图 3.10 类球体和微球的应力张量。

当微粒发生形变成为类球体，由于类球体并不绕 z 轴旋转对称，则在不同方位角 θ 所对应的应力张量曲线不同。从图中 $\theta=0^\circ$ 可以看出， σ 最大值在 $\gamma=55^\circ$ 附近。这一方位为光线入射到微粒的前表面，即微粒在此处受到应力作用下最容易变形。对于 $\theta=90^\circ$ 的应力张量， σ 最大值在 90° 之后，并且远比 $\theta=0^\circ$ 的最大应力张量小。由于类球体在 x 和 y 方向变形不一样，在其他 θ 角的应力张量分布也不一样。从图 3.10 可知，微粒变形最小的方位（沿 x 轴， $\theta=0^\circ$ ），受到的应力张量越大，而变形较大的方位，受到的应力张量会小很多。因此光阱给微粒的应力有将微粒不断沿横向膨胀的趋势。

3.5 类球体的力矩

光线入射到微粒上，经过多次反射和折射后，对微粒表面不同位置有力的作用，这个力的分布就是前面讨论的应力张量，这个力还对微粒产生力矩，使微粒发生旋转。由于微粒表面不同位置受到的力不一样，总力矩 $T = \sum_i \mathbf{r}_i \times \mathbf{F}_i$ ，其中下标 i 表示面元编号。当类球体对称轴与光轴存在夹角时（见图 3.11），力矩的计算方法见 3.2，利用矩阵旋转坐标，将对称轴与三维坐标轴重叠。以下计算中取 $P=10mW$ ，不考虑光束的偏振特性。

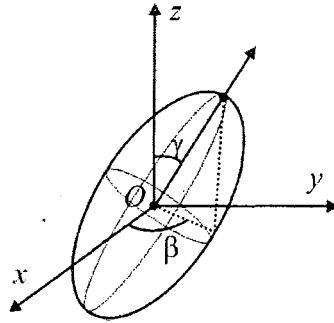


图 3.11 空间任意方位角放置的类球体。

光阱中的类球体 $\beta=0$ 时，在与 z 方向不同夹角 γ 处，所受到的力矩见表3-1。当类球体放置在 $\epsilon_x=1, \epsilon_y=2$ 和 $\epsilon_z=3$, $0<\gamma<\pi/2$, 类球体上的力矩只有 T_y 分量，并且都小于0。这表明类球体的长轴偏离光轴后，受到力矩使得微粒恢复到原来位置。当 $\gamma>\pi/2$, 力矩使得微粒加速偏离这一角度，直到 $\gamma=\pi$ 才平衡，这一位置同 $\gamma=0$ 为完全相同的状态。当微粒放置位置 $\gamma=\pi/2$, 虽然力矩为0, 但 γ 稍微左右偏离一点, 力矩的效果使得微粒都加速偏离这一位置, 因此长轴沿横向放置不是平衡位置。将微粒的初始位置放置 $\epsilon_x=3, \epsilon_y=2$ 和 $\epsilon_z=1$, 尽管 $\gamma=0$ 和 $\gamma=\pi$ 的位置力矩为0, 但偏离后力矩使得微粒加速偏离这一位置, 最终使得微粒稳定在 $\gamma=\pi/2$, 即微粒的长轴朝光轴的方向。

表 3.1 $\beta=0$ 的不同空间方位类球体的力矩

$\epsilon_x=1, \epsilon_y=2, \epsilon_z=3$		$\epsilon_x=3, \epsilon_y=2, \epsilon_z=1$	
γ	$T_y(N \cdot \mu m)$	γ	$T_y(N \cdot \mu m)$
0	0	0	0
$\pi/6$	-1.14	$\pi/6$	0.53
$\pi/3$	-0.53	$\pi/3$	1.14
$\pi/2$	0	$\pi/2$	0
$2\pi/3$	0.53	$2\pi/3$	-1.14
$5\pi/6$	1.14	$5\pi/6$	-0.53

当微粒处于 $\gamma=0$ 和不同 β 角时，光阱不会对微粒的力矩为0，即在垂直光轴的平面上，力矩不会将微粒定位到特定方向。若微粒放置为表3.1的第一种情形，长轴偏离光轴($\pi/6, \pi/3$)，光阱对它的力矩为 $T_x=0.26 N \cdot \mu m$, $T_y=-0.46 N \cdot \mu m$ 。这个力矩同样使得微粒回到初始放置的位置。因此非球形微粒进入光阱中，光阱对微粒的力矩使得微粒自动调整长轴方向与光轴方向一致。

3.6 小结

这一章我们主要阐述了光阱中非球形微粒的光线追迹方法,通过界面的光线折射和反射,导出力的表达形式,通过矢量光线追迹和旋转坐标系的变换,实现了在 RO 模型中对非球形微粒的光阱力、应力张量和力矩的计算。以类球体光阱力为例,解释了球差有利于俘获长杆状微粒,并讨论了不同变形比和偏振特性对光阱力的影响。通过对类球体的应力张量和力矩的讨论,给出了形状会影响应力张量的分布,力矩会使得微粒自动调整长轴与光轴一致,这些结果与实验中观察到的结果是一致的。

在这一章我们提出的 RO 模型分析方法,可以进一步用于分析微粒处于界面的光阱力和轴对称偏振光束对微粒的光阱力。当然 RO 模型只是一种近似方法,对于在波长量级的微粒,光阱力的模拟只能采样 EM 模型。

第4章 矢量衍射-矩量法的电磁模型

在几何光学(RO)模型中,一般将聚焦光斑认为点,这样利用光线的动量改变可以模拟光线对微粒的作用力。然而光束被强聚焦时,即使达到衍射极限的光斑,也不会是一个理想的几何点。虽然RO模型中有将高斯光斑和光线相结合的报道^[104],对光阱力也能预测出与实验接近的结果,目前主要用于光纤光镊的RO模型中^[128],但基于光线方向改变代表动量改变的方式,会陷于在无外力作用下,光线会自动弯曲的矛盾中^[49]。当聚焦光斑尺度远小于粒径时,RO模型中就是将光斑抽象成点的近似考虑;当聚焦光斑尺度与粒径可比拟时,RO模型中认为聚焦光斑为点的考虑就显得不合适,RO模型也就不能应用于这类情形。此外,在RO模型中无法描述聚焦偏振光束对光斑的空间分布的影响,不能计算介质微粒与场的谐振时辐射力。因此,RO模型只能作为一种近似方法。为了更好地了解光与物质的相互作用,需要了解并掌握光镊的电磁(EM)模型,这一模型原则上都适应于所有粒径的颗粒。

在EM模型中,存在许多算法,每一种算法都有它相应的优势。这些算法之中,将计算辐射力(在RO模型中称光阱力,在EM模型中一般称之为辐射力)的过程分成三个部分,首先是聚焦光束的场分布描述;其次是场与物质相互作用后总场的分布;最后由总场分布得到辐射力和力矩等。在接下来的内容里,我们首先回顾下EM模型的各种算法,分析由场到力的计算,为了建立一个适应范围较广的理论计算平台,我们提出结合矢量衍射和矩量法计算辐射力的EM模型。

4.1 光镊的EM模型研究现状

在EM模型中各种算法的不同主要集中在对入射光束的描述和电磁散射的计算方法上,这些方法可以组合成不同的方法。对于由总场计算辐射力,一般独立于各种电磁计算方法之外,是各种方法中比较相似的部分。

在电磁理论中聚焦的入射光束可以用各种形式展开,如用 k (k 为任意整数)阶Davis序列^[129]、频率域内角谱^[60]和矢量球谐函数^[130-131]等展开,也可通过矢量衍射理论模拟^[132]入射场,在简化和近似下也可直接用高斯光束的表达形式^[67]。对于高斯光束的电磁场与物质相互作用,采用电磁散射的计算方法有解析形式表达结合数值计算和数值求解两类方法。解析形式表达的方法一般将入射电磁场展开,有广义Lorenz-Mie散射理论(GLMT)^[56,61]和T矩阵法^[133-134](也称EBCM

方法)。数值求解方法有限差分法 (FDTD)^[58,135]、离散偶极子方法^[48,136](DDA)、有限元法 (FEM)^[59]等方法。根据电磁散射得到的总场分布, 可以用 Lorentz 力^[137-138]、电磁动量^[139]和电磁张量^[140]等将力和力矩表示出来。

目前常用的方法有 GLMT、T 矩阵和 FDTD, 下面就分别分布介绍下这些方法目前的研究现状。

4.1.1 GLMT

有关球的电磁散射问题, Lorenz、Mie 和 Debye 作了名垂后世的工作。他们处理平面波对均匀非磁性球形微粒的电磁散射问题在经典论文中被称为 Lorenz-Mie 理论 (LMT)。随着实际应用的发展, 电磁散射涉及的问题变得复杂, 如激光光束对微粒散射等等, 此时 GLMT 在各种波束对微粒散射的问题中得到广泛应用。

GLMT 可采用标量势^[61]或矢量球谐函数^[131]对亥姆赫兹方程求解, 球坐标系下标量势的解可用贝塞尔函数和连带勒让德多项式展开表示。对入射光场同时在球坐标系下进行展开, 通过 Bromwich 公式 (场与势的微分关系) 和边界条件, 便可确定各展开系数, 则最终确定散射场。矢量球谐函数是对入射光束采用矢量势函数的亥姆赫兹方程的解函数展开, 同样也需要确定展开系数。辐射力根据电磁张量表述为展开系数的表达形式, 因此 GLMT 最关键之处在于求解展开系数。

Ren 等人^[56]用 GLMT 计算了聚焦光束对微粒的纵向辐射力, 由于展开系数计算收敛要求, 要求微粒尺度小于光波波长。Polaert 等人^[62]改进了光束展开表示, 使得 GLMT 计算辐射力不再受到微粒尺度的限制。他们还计算了多层介质的辐射力和力矩, 并分析了力矩谐振和吸收谐振现象^[141]。Pobre 等人^[142]用 GLMT 分析了非线性微粒在光阱中的辐射力, 指出由于 Kerr 效应, 能导致辐射力方向的变化。Zemánek 等人^[143]分析了驻波形成的光阱和单光阱对俘获微粒的区别, 驻波光阱对微粒的辐射力要比单光阱情形下大一到两个数量级, 并且在单光阱中折射率不满足俘获的微粒, 有可能在驻波光阱总能稳定俘获。由于微粒处于离轴和同轴上的光束展开形式不同, Lock^[144-145]分析了这两种情形下具有球差系统的 GLMT, 对于采样五阶 Davis 序列展开高斯光束, 限制聚焦光束角度不能大于 45° 。Nieminen 等人开发了基于 Matlab 的 GLMT 和 T 矩阵源程序作为光阱的辐射力计算工具^[146], 适用于球形和非球形微粒, Stilgoe 等人^[147]基于辐射力

计算工具的 GLMT 分析了光阱中微粒受力谐振与折射率和微粒尺度的依赖关系。Xu 等人^[64]利用矢量球谐函数展开任意形状的光束,分析了类球体微粒的辐射力。为了增强辐射力, Jannasch 等人^[148]模拟在微粒上包覆一层其他材料,得出光阱刚度能增强 10 倍以上。

GLMT 促进了光镊理论的发展,为实验现象分析提供了有力的手段,尤其是分析谐振等现象,它是目前广为采用的方法。

4.1.2 T 矩阵

T 矩阵法可认为是 Mie 散射理论在任意光束照明下对任意颗粒 Mie 散射计算方法的延伸^[133],它的基本特性是 T 矩阵只依赖散射颗粒的几何和物理特性,即颗粒大小,入射光波长,相对折射率,与实验室参考系的方位等。对于相同的颗粒,在不同的光束散射下, T 矩阵计算只需要一次即可,而 GLMT 和 FDTD 等电磁散射方法则需要重复计算。

在 T 矩阵中一般用矢量球谐函数展开聚焦光束,聚焦光束对微粒的散射的散射场也用矢量球谐函数展开。由于 Maxwell 方程为线性方程,散射场和入射场的展开系数之间一定满足线性变换关系,这一线性变换关系可以由矩阵——T 矩阵 (Transition matrix, T-matrix)^[149]表示。T 矩阵是散射场与入射场展开系数的连接纽带,对于不同展开系数的变换矩阵元可以通过拓展边界条件方法 (Extended Boundary Condition Method, EBCM) 获得^[136]。在 EBCM 中,在微粒表面用一系列虚拟的等效电流替代散射体,通过电场积分方程近似可得到等效电流的表达形式,确定 T 矩阵元。通过入射场的展开系数和 T 矩阵,最终获得散射场的展开系数,也就确定了电磁散射的总场。通过这些展开系数,便可确定电磁散射的消光截面和散射截面,根据消光截面和散射截面便可得到辐射力。

在 T 矩阵中,只要微粒特性不变,用等效电流代表的散射体也就不变,则与展开系数有关的矩阵元不会发生变化,在辐射力的计算中,入射场变化时电磁散射的计算不需要重复计算 T 矩阵。因此 T 矩阵方法核心问题是将代表微粒形状和折射率等特性的矩阵元表示出来。在辐射力的计算中,它简化了计算量,而且这一方法原则上适用于任意光束和任意形状的微粒,但在实际应用中,入射光束的展开表示还是比较复杂,也就是不同光束的矢量球谐函数的展开是计算中的难点。利用 T 矩阵法, Nieminen 计算类球体和圆柱体微粒在平面波光阱中的辐

射力^[133]，并发展了一套可用于 GLMT 和 T 矩阵的辐射力计算程序^[146]。通过 T 矩阵，Simpson 等人计算了全息光镊中微粒间的相互作用力^[134]，分析了高斯光束中类球体的辐射力^[140]。

4.1.3 FDTD

时域有限差分 (Finite Difference Time Domain, FDTD) 方法是数值模拟中一种常用的方法。经过四十多年的发展，FDTD 方法已具备非常强大的解决各种复杂问题的能力。FDTD 方法直接从依赖于时间变量的麦克斯韦旋度方程出发，无需任何导出方程，是一种简单、直观的时域方法。

FDTD 方法用于光镊研究实际是要解决一个电磁散射问题。无论是 GLMT 还是 T 矩阵，其理论都比较复杂，而 FDTD 方法在原理上很简单。另数值的模拟方法比解析形式的理论模拟适用范围广，如不受微粒特性的限制。利用 FDTD 模拟辐射力，需要对麦克斯韦旋度方程转换为有限差分格式，即相邻位置的场量进行简单运算即可表达所需要表示的物理量。对微粒所处空间需要进行网格离散化，各个网格格点的场量均为未知。在模拟散射问题时，由于所取空间有限，根据入射光场参数需要在外添加吸收层，即采用完全匹配层 (Perfectly Matched Layer, PML)，使得有限区域能够模拟开域问题。在离散的空间网格中引入入射场，场量通过差分公式在有限网格上不断迭代演化，最终达到稳定，便可得出时域上稳定的电磁场分布。具体有时域有限差分方法见葛德彪和闫玉波有关这方面的书^[150]。按最终电磁场分布，可以通过 Lorentz 力或者电磁张量计算辐射力。

利用二维 FDTD，Gauthier^[58]分析了微粒在光阱中的辐射力。Mansuripur 等人^[135]借助 FDTD 分析了光束对楔形介电体的辐射力，指出在介质中在液相中时，由于界面的突变，界面受到的力不能简单采用有效电场与界面极化电荷的乘积。Zakharian 等人^[151]分析了光阱中微粒的辐射力，并模拟出电磁场在微粒中传播过程。并针对 Lorentz 力的表述形式，他们分析了介电界面突变时三种电荷的表述形式，得到采用真空带隙表示电荷的辐射力模拟结果与实验结果更相近^[137]。对于光纤光镊，Liu 等人^[152]分析横向和轴向的辐射力，通过理论模拟，给出了轴向俘获微粒的范围。对于光镊俘获金属颗粒，Qin 等人^[41]利用三维 FDTD 给出了金属颗粒在不同光束光阱中的辐射力，光镊不能俘获尺寸很大的金属颗粒。

4.2 辐射力

在 EM 模型中，最终都是根据总场得到辐射力。在不同计算方法中选取辐射力的表达形式有差别，计算辐射力的具体形式一般根据总场而定，例如最终总场为远场，采样电磁张量或者散射截面方式比较合适；若为近场，可以用电磁动量或者 Lorentz 力表示比较方便。辐射力有电荷或偶极子形式的 Lorentz 力^[138]、电磁动量的改变^[60]和电磁应力张量^[153]等形式。为了便于后面力的分析，本小节从 Lorentz 力出发，下面介绍各种辐射力之间的关系。

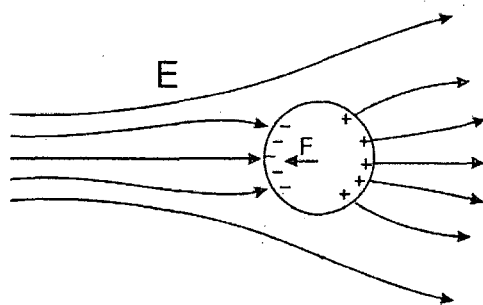


图 4.1 静电场中介电微粒的受力示意图。

图 4.1 表示了介电微粒在非均匀的静电场中的受力情况。在非均匀电场中，介电微粒被极化，极化导致在微粒在沿电场方向上两侧出现极化电荷，而电荷的分布与场有关，电荷在场的的作用下，对微粒有力的作用，因此微粒在静电场中有移动到场最强位置的趋势。一般研究的情形为时变电磁场对微粒的辐射力，电场 \mathbf{E} 和磁场 \mathbf{B} 均为时空变化的物理量，对于在电磁场中一点电荷 q ，其受到 Lorentz 力为

$$\mathbf{F} = q\mathbf{E} + q\mathbf{v} \times \mathbf{B} \quad (4.1)$$

对于一个电荷密度为 ρ 的体元，Lorentz 力公式中后一项后改写为下面表达形式，

$$\rho\mathbf{v} \times \mathbf{B} = \rho \frac{d\mathbf{r}}{dt} \times \mathbf{B} = \frac{d\mathbf{P}}{dt} \times \mathbf{B} = \dot{\mathbf{P}} \times \mathbf{B}, \quad (4.2)$$

其中 \mathbf{P} 为单位体积的电偶极矩强度矢量。对于介电小球而言，公式 (4.1) 第一项可以改写成为与电偶极矩有关的表示。由于

$$\rho = -\nabla \cdot \mathbf{P}, \quad (4.3)$$

则从电荷观点出发得出单位体积 Lorentz 力的力密度 \mathbf{f}^c 表达形式为

$$\mathbf{f}^c = -(\nabla \cdot \mathbf{P})\mathbf{E} + \dot{\mathbf{P}} \times \mathbf{B}. \quad (4.4)$$

对于一个介电小球，公式 (4.1) 还可以存在另一种形式，即从偶极子观点

出发, 单位体积内有很多电荷 q_i , 则单位体积受到的 Lorentz 力密度为

$$\mathbf{f}^d = \sum_i q_i \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \sum_i q_i \mathbf{v}_i \times \mathbf{B}(\mathbf{r}, t). \quad (4.5)$$

对 $\mathbf{E}(\mathbf{r}_i, t)$ 在 \mathbf{r} 处展开取一级近似, 则

$$\begin{aligned} \mathbf{f}^d &= \sum_i q_i \left[\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + (\mathbf{r}_i \cdot \nabla) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \right] + \sum_i q_i \frac{d\mathbf{r}_i}{dt} \times \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) \\ &= \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \sum_i q_i + \left(\left(\sum_i q_i \mathbf{r}_i \right) \cdot \nabla \right) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \frac{d \sum_i q_i \mathbf{r}_i}{dt} \times \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) \\ &= (\mathbf{P} \cdot \nabla) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \frac{d\mathbf{P}}{dt} \times \mathbf{B}(\mathbf{r}, t). \end{aligned} \quad (4.6)$$

其中运用了电中性条件, 即

$$\mathbf{f}^d = (\mathbf{P} \cdot \nabla) \mathbf{E} + \dot{\mathbf{P}} \times \mathbf{B}. \quad (4.7)$$

公式 (4.4) 和公式 (4.7) 均为 Lorentz 力的力密度基本表达形式。Barnett 和 Loudon^[138] 具体在不同情形下分析了两种力密度, 指出在宏观和微观尺度上两者是等价的, 在介观尺度上存在界面时处理上有差异, 由偶极子导出的一系列结果需要考虑到体效应, 同时还需要考虑界面出现极化电荷的效应, 否则两者不等价。

变化的电磁场对微粒的作用力另一种观点为电磁应力张量表达形式, 为了简化推导, 假定微粒周围为真空环境。由 Lorentz 力得到^[153]

$$\mathbf{f} + \frac{\partial \mathbf{g}}{\partial t} = -\nabla \cdot \tilde{\mathbf{T}}, \quad (4.8)$$

其中电磁动量密度 $\mathbf{g} = \mathbf{E} \times \mathbf{B}$,

$$\tilde{\mathbf{T}} = -\epsilon_0 \mathbf{E} \mathbf{E} - \mu_0 \mathbf{H} \mathbf{H} + \frac{1}{2} \tilde{\mathbf{I}} (\epsilon_0 E^2 + \mu_0 H^2). \quad (4.9)$$

$\tilde{\mathbf{T}}$ 被称之为电磁场的动量流密度张量, 或称为电磁场应力张量。在体积 V 内积分为,

$$\int_V \mathbf{f} dv + \frac{d}{dt} \int_V \mathbf{g} dv = - \int_V \nabla \cdot \tilde{\mathbf{T}} dv = - \oint_S ds \cdot \tilde{\mathbf{T}}. \quad (4.10)$$

对进入区域 V 的电磁动量作时间平均^[105, 154-155], 则 $\langle \frac{d}{dt} \int_V \mathbf{g} dv \rangle = 0$, 即处于电磁场中微粒受到的力为

$$\mathbf{F} = \langle \int_V \mathbf{f} dv \rangle = - \oint_S ds \cdot \langle \tilde{\mathbf{T}} \rangle. \quad (4.11)$$

这一公式在辐射力的计算中得到广泛应用, 尤其适合解析形式表达的结果, 分析

远场的辐射力很方便。

在公式(4.11)中,在远处 r 用入射场 $\mathbf{E}^i(\mathbf{H}^i)$ 和散射场 $\mathbf{E}^s(\mathbf{H}^s)$ 替换总场 $\mathbf{E}(\mathbf{H})$,积分可得

$$\begin{aligned} \mathbf{F} = & -\frac{\varepsilon_0 r^2}{4} \operatorname{Re} \int_{4\pi} d\hat{\mathbf{r}} \{ |\mathbf{E}^i|^2 + |\mathbf{E}^s|^2 + \mathbf{E}^i \cdot (\mathbf{E}^s)^* + \mathbf{E}^s \cdot (\mathbf{E}^i)^* \\ & -\frac{\mu_0 r^2}{4} \operatorname{Re} \int_{4\pi} d\hat{\mathbf{r}} \{ |\mathbf{H}^i|^2 + |\mathbf{H}^s|^2 + \mathbf{H}^i \cdot (\mathbf{H}^s)^* + \mathbf{H}^s \cdot (\mathbf{H}^i)^* \}. \end{aligned} \quad (4.12)$$

其中 $\hat{\mathbf{r}}$ 为单位矢量。由于入射场与 r 无关, $|\mathbf{E}^i|^2$ 和 $|\mathbf{H}^i|^2$ 对力没有贡献。由于消光截面和散射截面为^[149]

$$C_{ext} = \frac{4\pi r^2}{k_0 |\mathbf{E}^i|^2} \operatorname{Im}[\mathbf{E}^s \cdot \mathbf{E}^i], \quad (4.13a)$$

$$C_{sca} = \frac{r^2}{|\mathbf{E}^i|^2} \int_{4\pi} d\hat{\mathbf{r}} |\mathbf{E}^s|^2, \quad (4.13b)$$

远场的电磁场之间满足平面波的关系,因此

$$\mathbf{F} = \frac{\hat{\mathbf{n}}^i}{c} C_{ext} I^i - \frac{1}{c} I^i \int_{4\pi} d\hat{\mathbf{r}} \frac{dC_{sca}}{d\Omega}. \quad (4.14)$$

其中 I^i 为入射场的光强, $\hat{\mathbf{n}}^i$ 为入射场的传播方向。在数值计算中,往往更关注最原始最简单的力的表达形式。而解析形式中利用消光截面和散射截面计算力会更方便。除了上述的几种辐射力表示形式外,还有报道利用动量的变化直接表达辐射力^[139]。

处于电磁场中介电微粒受力无论采用 Lorentz 力何种形式描述,其实质都是一种平均效果,即变化的电磁场对微粒的时间周期上力的平均。虽然理论上各种公式满足自洽,但实际上有关数值计算中,在边界上场的处理还存在一些不明确的地方^[137],会导致数值差异,但不会影响对力的趋势预测。

4.3 矢量衍射—矩量法模型

前面回顾了各种电磁散射的计算方法和辐射力的各种形式,在前述各种光镊理论模型中,离不开对入射激光光束的描述。除数值求解的电磁散射方式之外(如 FDTD),选用不同的电磁散射方法,随之也就选定了入射光束的描述形式。解

析形式很难统一分析任意形状和复杂条件下的电磁散射。数值求解方法中 FDTD 适应于各向异性和任意形状微粒,利用时域迭代,避免求解大系统的线性方程组,不足之处在于所需计算的空域要大于微粒尺度,对于大颗粒计算耗时很长,并且对于不同入射波和颗粒不同位置,都需要重新计算。对于 FDTD 前述不足的地方,恰好是 DDA 方法的优势。并且在计算相对折射率较低(<1.4)的大尺度颗粒时,DDA 方法计算速度比 FDTD 更快^[156],相同格点数时精度更高。作为与 DDA 同源的计算方法,矩量法(MOM)也具有 DDA 相同优势,并且求解出来的结果直接就是各处分布的电场,MOM 和 DDA 的区别见 4.3.2。MOM 无需像 FDTD 在微粒位置变化时重新迭代运算,只需要迭代求解矩阵方程。在相同网格数下,MOM 比 FDTD 精度要高,但所耗内存大很多^[157],目前发展起来的共轭梯度法—快速傅立叶变化(CG-FFT)在求解迭代中避免了大量矩阵运算,提高了 MOM 的运算速度,减小了内存的消耗^[158]。

为了实现适应范围较广的辐射力计算平台,考虑到各种光束的不同和在传播中受到各种因素的制约,我们提出矢量衍射—矩量法模型(VDMOM)。利用矢量衍射理论描述入射光束,用矩量法求解电磁散射的总场,通过 Lorentz 力计算辐射力,同时也可利用 Rayleigh 近似分析纳米颗粒的力/力矩,具体流程见图 4.2。

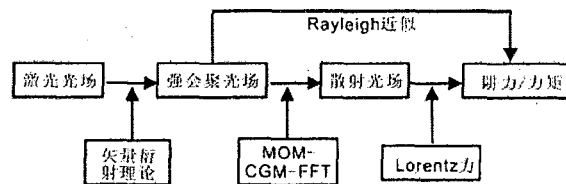


图 4.2 理论模拟框图。

选用矢量衍射理论描述光束,这与选用的电磁散射计算方法—矩量法可以相互独立,对于不同光束的描述,只影响矢量衍射积分中的表达形式,对于任何入射激光束和光束参数变化时,都不影响矩量法中矩阵元的计算。在矩量法中矩阵元只与颗粒形态和性质有关(如粒径、折射率和形态等),这些参数不变时,矩阵元都一样。矩阵元与微粒的空间位置无关,为一次计算,这与 T 矩阵法类似,但适用范围更广。

通常来说,在不同文献中有关坐标和含时因子的选取会不同的表达形式,在这一章中统一为右手坐标系,含时因子为 $\exp(-i\omega t)$ (光学文献和书籍中多用这个形式,而电磁散射中很多没有负号,将两种方法联用,需要统一形式)。

4.3.1 矢量衍射积分

矢量衍射积分适合分析各种光束强聚焦的电磁场分布,如涡旋光束^[42]、轴对称偏振光束^[159]和暗中空光束^[160]等。不同入射光束在积分表达形式上有点差异,在原理上都一样,都源自 Wolf 和 Richards 在 1959 年的论文^[161-162],核心思想就是利用平面波角谱方式,借助修正的 Huygens-Fresnel 原理,将本应是球面波的次波用矢量平面波次波替换。这一方法作为广为熟悉的 Debye 标量衍射积分的普适化延伸,也称之为矢量 Debye 积分^[163],为了表述的方便,都称之为矢量衍射积分。

一般高数值孔径物镜为油浸或水浸物镜,物镜在设计时都是针对玻片表面消像差,但观察样品一般都不会在玻片表面(倒置显微镜为样品池底面),会有一定的观察深度。对于高数值孔径物镜,工作距对应着可以观察的样品深度,如数值孔径达到 1.25 的物镜,最大能达到观察深度不超过 100 μm 。在偏离玻片表面的位置观察样品,由于玻片和水界面的折射率失配出现球差,会影响观察的清晰程度,实际增大点扩散函数的大小,即降低分辨率。在光镊设计中,一般都基于高数值孔径物镜强聚焦光束形成光阱,此时界面导致的球差不仅仅影响着成像的分辨率,同时也影响光束聚焦的场分布,制约了光阱的俘获深度。

有关球差对聚焦光束的影响,Török 等人系统分析了界面球差对平面电磁波聚焦的影响,推导出相应的修正的矢量衍射积分公式^[122, 164]。随着探测深度增大或者折射率失配程度的增大,球差导致衍射中点扩散函数分布大小增大,发生焦点轴向漂移,并影响场分布^[165-166],因此在辐射力模拟中需要考虑到球差对光阱的影响。

一束激光光束入射到高数值孔径物镜或透镜上,如图 4.3 所示。 O_0 所在平面为物镜后瞳处光束的入射面,物镜后瞳半径为 R , α 为物镜理想聚焦光束的最大半孔径角,以物镜理想焦点 O 为中心建立坐标系。在玻璃(折射率为 n_1)和水(n_2)界面折射率失配, d 为界面与显微观察面的距离。在油浸物镜中,一般选取物镜油和玻璃折射率一致,光线在玻璃和水界面上发生折射,由入射角 θ_1 折射到 θ_2 。对于空间任意点 P ,电场分量可以表示为对于在聚焦焦点附近任意点 P ,坐标分量 $(x_p, y_p, z_p) = r_p(\sin\theta_p \cos\varphi_p, \sin\theta_p \sin\varphi_p, \cos\theta_p)$, 电场分量表达式为

$$\tau_s = \frac{2 \sin \theta_2 \cos \theta_1}{\sin(\theta_1 + \theta_2)}. \quad (4.17f)$$

在上述表达式中, 波数 $k_0 = k_1/n_1 = k_2/n_2 = 2\pi/\lambda_0$ 。

本章主要建立辐射力模型的计算平台, 不在此一一介绍各种光束的积分形式, 我们选取高斯光束和暗中空光束的形式为例介绍球差影响下的矢量衍射积分。公式(4.16)中 $I_0(\theta)$ 表示入射光束在物镜后瞳处的振幅因子。考虑线偏振的高斯光束和空心高斯光束在物镜后瞳处偏离光轴 r_0 的电场分量分布为^[167-168]

$$E_x = A \left(\frac{r_0^2}{\omega_0^2} \right)^n \exp\left(-\frac{r_0^2}{\omega_0^2}\right), \quad n=0, 1, 2, \dots, \quad (4.18)$$

n 为光束阶数, ω_0 为束腰半径, A 为和功率相关的常数, 物镜后瞳处光强峰值强度半径 $r_{E,\max} = \sqrt{n}\omega_0$ 。高数值孔径物镜满足正弦定理^[107], 即 $f \sin \theta = r_0$ 。取 $\gamma = \omega_0/R$ 表示光束在物镜后瞳的分布, 则

$$I_0(\theta) = A \left(\frac{\sin^2 \theta}{\gamma^2 \sin^2 \alpha} \right)^n \exp\left(-\frac{\sin^2 \theta}{\gamma^2 \sin^2 \alpha}\right). \quad (4.19)$$

将公式(4.16)到(4.19)代入公式(4.15)中便得出物镜焦点附近光电场分布。不同的 n 值表示了不同的高斯/空心光束, 也就是在入射物镜后瞳处有不同的光电场分布, 便可得出不同空心高斯光束在聚焦区域的光电场分布。

4.3.2 矩量法

入射的电磁场被微粒散射, 作为散射问题的标准练习就是推导出一个体积分方程, 任意处的场包括入射场和总场。这个方程离散化并导出的结果有几个时髦的名称^[136]: 矩量法(Method of Moments, MOM)、离散偶极子方法(Discrete Dipole Approximation, DDA)、耦合偶极子方法(Coupled Dipole Method, CDM)和体积分方程方法(Volume Integral Equation Method, VIEM)。实际前述提及的各种名称所对应的方法中并无很大区别, 他们都是将散射体分割成很多体元, 每个体元中的场都是常量, 可称为偶极子, 利用点匹配技术可以求解场。在 DDA/CDM 中, 作为偶极子的核心更多的是强调物理单元, 而 MOM/VIEM 中则考虑他们作为抽象的数学工具, 它们最大的区别在于对自相互作用项的处理上^[169]。有关 DDA 的表达方式参考 Draine 的文献^[170]和 Yurkin 等人的综述^[169]。在这里, 我们

主要推导这个积分方程，完成 MOM 的主要计算方法的流程。

虽然有一些书籍和文献中已报道过这个积分方程，但推导过程借助复杂的矢量运算，为了便于理解积分方程和统一入射场相位因子，我们借助所熟悉的电磁波公式推导积分方程。先假定微粒在真空环境中，Maxwell 方程为^[153]

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\partial \mathbf{B} / \partial t, \quad (4.19a)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J} + \partial \mathbf{D} / \partial t, \quad (4.19b)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho, \quad (4.19c)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0. \quad (4.19d)$$

其中， $\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E}$ ， $\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}$ 。由磁场的梯度可以定义矢势 $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}$ ，则 $\nabla \cdot \nabla \times \mathbf{A} = 0$ ，即 $\nabla \times (\mathbf{E} + \partial \mathbf{A} / \partial t) = 0$ 。即括号内表示为无旋场，可以用标势 φ 表示，

$$\mathbf{E} = -\nabla \varphi - \partial \mathbf{A} / \partial t, \quad (4.20)$$

将矢势定义式和公式 (4.20) 代入公式 (4.19b) 和 (4.19c) 中，并利用矢量运算

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{A}) = \nabla (\nabla \cdot \mathbf{A}) - \nabla^2 \mathbf{A}, \quad (4.21)$$

和洛伦兹规范， $\nabla \cdot \mathbf{A} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial \varphi}{\partial t} = 0$ ，可得矢势和标势满足

$$\nabla^2 \mathbf{A} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t^2} = -\mu_0 \mathbf{J}, \quad (4.22a)$$

$$\nabla^2 \varphi - \frac{1}{c^2} \frac{\partial \varphi}{\partial t^2} = -\frac{\rho}{\epsilon_0}. \quad (4.22b)$$

标势的达朗贝尔方程解为，

$$\varphi(\mathbf{r}, t) = \int \frac{\rho(\mathbf{r}', t - r/c)}{4\pi\epsilon_0 r} dV'. \quad (4.23)$$

其中 $r = |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$ ，矢势方程与标势方程具有相同形式，即解为

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \frac{\mu_0}{4\pi} \int \frac{\mathbf{J}(\mathbf{r}', t - r/c)}{r} dV'. \quad (4.24)$$

电磁场传播的相位变化因子为 $e^{i(k_0 r - \omega t)}$ ， $k_0 = \omega/c$ ，则

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}) = \frac{\mu_0}{4\pi} \int_{V'} \frac{\mathbf{J}(\mathbf{r}') e^{i k_0 |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} dV'. \quad (4.25)$$

$G_0(\mathbf{r}|\mathbf{r}') = \frac{e^{ik_0|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}}{4\pi|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}$ 为自由空间的标量 Green 函数, 并且满足标量波动方程^[46]。

将洛仑兹规范条件两边取梯度, 则

$$\nabla(\nabla \cdot \mathbf{A} - \frac{1}{c^2} i\omega\varphi) = 0. \quad (4.26)$$

根据公式 (4.20),

$$\mathbf{E} = -\nabla\varphi + i\omega\mathbf{A} = i\omega(1 + \frac{1}{k_0^2} \nabla\nabla \cdot)\mathbf{A}. \quad (4.27)$$

则由公式 (4.25) 可以得

$$\mathbf{E} = i\omega\mu_0 \int_{V'} (1 + \frac{1}{k_0^2} \nabla\nabla \cdot)\mathbf{J}(\mathbf{r}')G_0(\mathbf{r}|\mathbf{r}')dV'. \quad (4.28)$$

在电解质内, 介电常数为 ϵ , 电导率为 σ , 则产生的电流为极化电流和传导电流之和, 即

$$\mathbf{J} = \mathbf{J}_p + \mathbf{J}_f = \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} + \sigma\mathbf{E} = -i\omega\epsilon_0(\chi_e + \frac{i\sigma}{\omega\epsilon_0})\mathbf{E}, \quad (4.29)$$

其中 $\chi_e = \epsilon_r - 1$, 若介质存在吸收, 则 ϵ_r 存在虚部。取 $\chi = \chi_e + i\sigma/\omega\epsilon_0$, 电磁波照射到电解质物质上, 即由极化电流和传导电流产生的散射场为

$$\mathbf{E}^s = i\omega\mu_0 \int_{V'} -i\omega\epsilon_0\chi\mathbf{E}(1 + \frac{1}{k_0^2} \nabla\nabla \cdot)G_0(\mathbf{r}|\mathbf{r}')dV' = k_0^2 \int_{V'} \chi\mathbf{E}\bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}|\mathbf{r}')dV', \quad (4.30)$$

其中, $\bar{\mathbf{G}} = (\bar{\mathbf{I}} + \frac{1}{k_0^2} \nabla\nabla \cdot)G_0(\mathbf{r}|\mathbf{r}')$ 为并矢格林函数^[46], $\bar{\mathbf{I}}$ 为单位并矢, \mathbf{E} 为总场。

由于 $\mathbf{E} = \mathbf{E}^i + \mathbf{E}^s$, 则入射场 \mathbf{E}^i 与未知总场 \mathbf{E} 之间满足一个积分方程, 为^[157-158],

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}^i(\mathbf{r}) + k_0^2 \int_{V'} \bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \cdot \chi(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}')dV', \quad (4.31)$$

对于一个无导电性的各向异性的介电微球而言,

$$\epsilon_r = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & \epsilon_{xz} \\ \epsilon_{yx} & \epsilon_{yy} & \epsilon_{yz} \\ \epsilon_{zx} & \epsilon_{zy} & \epsilon_{zz} \end{pmatrix}, \quad (4.32)$$

则三维空间上 $\chi = \chi_e = \epsilon_r(\mathbf{r}') - \bar{\mathbf{I}}$ 。根据磁场还可以建立磁场满足的积分方程^[157]

$$\mathbf{H}^i = \mathbf{H} - \frac{1}{i\omega} \int_{V'} (\chi\nabla \times \mathbf{H}) \times \nabla G_0 dV'. \quad (4.33)$$

对电场积分方程的推导还可以直接从矢量 Helmholtz 方程出发^[149, 171]。对方程 (4.31) 和 (4.32) 离散化求解内场, 即为 MOM。前述矢量衍射理论用来计算入射电场, 以下选用电场积分方程求解电磁散射问题。

方程 (4.30) 中将积分项内的电场用原有的电流项表述, 借助构造格林函数使得在 $\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}'$ 能顺利积分出来在奇异点的积分, 通过积分方程求解偶极子分布, 这样处理积分方程的方法称之为 DDA, 而 MOM 主要求解的是内场, 这也是 MOM 和 DDA 的主要差别^[171]。

在方程 (4.31) 中, 总场的 E_x 、 E_y 和 E_z 是未知的, 而仅仅知道入射场的三个分量, 则需要三个离散化的耦合解积分方程。对于一个不规则的物体, 散射目标离散化见图 4.4 所示。设 X、Y 和 Z 方向的离散化空间边长分别为 L_x 、 L_y 和 L_z , 三维方向离散为 N_x 、 N_y 和 N_z 段, 则每段长为 $\Delta x = L_x/N_x$, $\Delta y = L_y/N_y$ 和 $\Delta z = L_z/N_z$ 。三维目标可由许多小立方体构成, 在每个小立方体中介电常数张量的分量视为常数。

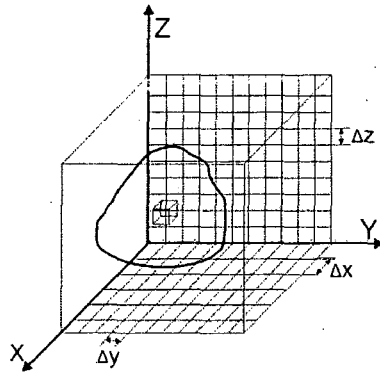


图 4.4 散射目标的离散化示意图。

采用分域脉冲函数 P_n , Ω_n 为其划分的子域, 将子域 Ω_n 用 E_x 、 E_y 、 E_z 展开, 将区域进行网格 ($M=N_x \times N_y \times N_z$) 离散化^[172]

$$P_n(x', y', z') = \begin{cases} 1 & (x', y', z') \in \Omega_n \\ 0 & (x', y', z') \notin \Omega_n \end{cases}, \quad (4.34)$$

$$\mathbf{E}(x', y', z') = \sum_{n=1}^M \mathbf{E}_n(x', y', z') P_n(x', y', z'), \quad (4.35)$$

采用点匹配法, 即引入 $\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_m)$ 为权函数, 与电场积分方程作内积, 将积分方程化为 $3M$ 个方程, 如下^[158]

$$E_{\mu}^i(x_k, y_m, z_n) = E_{\mu}(x_k, y_m, z_n) - \sum_{k'=1}^{N_x} \sum_{m'=1}^{N_y} \sum_{n'=1}^{N_z} \sum_{\nu} g_{\mu\nu}(k-k', m-m', n-n') \times \sum_{\xi} \chi_{\nu\xi}(x_{k'}, y_{m'}, z_{n'}) E_{\xi}(x_{k'}, y_{m'}, z_{n'}) \quad (4.36)$$

其中 ν, μ 为 x, y 和 z , $M(k, m, n)$ 代表场点网格编号, 同理, $M'(k', m', n')$ 为源点的网格编号。对于 $g_{\mu\nu}(k-k', m-m', n-n')$, 不同方向上的偏导数为

$$g_{xy} = g_{yx} = \int_{x_{M'}-\Delta x/2}^{x_{M'}+\Delta x/2} \int_{y_{M'}-\Delta y/2}^{y_{M'}+\Delta y/2} \int_{z_{M'}-\Delta z/2}^{z_{M'}+\Delta z/2} \frac{\partial^2 G_0}{\partial x \partial y} dx' dy' dz' \quad (4.36)$$

当 $M'=M$ 时, $g_{xy} = g_{yx} = 0$, 同理有 $g_{xz} = g_{zx}$ 和 $g_{yz} = g_{zy}$, 并且与 g_{xy} 有类似形式。

对特定方向的二阶导数为 $g_{xx} = I_1 + I_2$, 其中

$$I_1 = k_0^2 \int_{x_{M'}-\Delta x/2}^{x_{M'}+\Delta x/2} \int_{y_{M'}-\Delta y/2}^{y_{M'}+\Delta y/2} \int_{z_{M'}-\Delta z/2}^{z_{M'}+\Delta z/2} G_0(r_M, r') dx' dy' dz' \quad (4.37a)$$

$$I_2 = \int_{x_{M'}-\Delta x/2}^{x_{M'}+\Delta x/2} \int_{y_{M'}-\Delta y/2}^{y_{M'}+\Delta y/2} \int_{z_{M'}-\Delta z/2}^{z_{M'}+\Delta z/2} \frac{\partial^2 G_0}{\partial x^2} dx' dy' dz' \quad (4.37b)$$

g_{yy} 和 g_{zz} 也与 g_{xx} 形式相似。当 $M'=M$ 时, 由于被积函数奇异, I_1 采用小立方体等体积的球体积近似数值求解,

$$I_1 = (e^{jk_0 r_0} - 1) - jk_0 r_0 e^{jk_0 r_0} \quad (4.38)$$

其中 $r_0 = \sqrt[3]{\Delta x \Delta y \Delta z / 4\pi}$ 。

对于一重积分到三重积分, 在达到相同积分精度前提下, 采用牛顿积分和辛普森积分较慢, 而采用 n 阶的 Gauss-Legendre 积分, 提高积分速度^[173]。将离散化方程 (4.36) 可整理为矩阵方程 $Ax=B$ 形式, B 为入射场, x 为待求总场。如果散射介质尺寸不大, 离散格点不多时, 此方程可采用 gauss 消元法实现, 在 Matlab 中即为左除就可以完成。如果矩阵元素太多, 内存消耗太多, 即使将数据存储到硬盘上, 也很耗硬盘空间, 那么高斯消元法实现求解就显得不太现实。

4.3.3 共轭梯度-快速傅立叶

矩阵方程三维离散后数据量很大, 可以采用共轭梯度法 (CGM) 进行迭代计算, 由于矩阵满足 Toeplitz 形式, 矩阵与向量的乘积可以用快速傅立叶变换 (FFT) 降低计算时间^[158, 174]。

CGM 实际上为一种迭代法, 对于 $Ax=B$ 矩阵方程, 将其矩阵方程转换为自

伴正定矩阵构成的方程，其解为求其对应泛函的极值，其收敛速度比较快。其迭代步骤为^[174]：

- 1、给定待求 \mathbf{x} 的初始值 \mathbf{x}_1 ，则 $\mathbf{r}_1 = \mathbf{B} - \mathbf{A}\mathbf{x}_1$ ， $\mathbf{p}_1 = \mathbf{A}_a \mathbf{r}_1 / \langle \mathbf{A}_a \mathbf{r}_1, \mathbf{A}_a \mathbf{r}_1 \rangle$ ；
- 2、第 n 次迭代时， $\mathbf{x}_{n+1} = \mathbf{x}_n + \alpha_n \mathbf{p}_n$ ， $\mathbf{r}_{n+1} = \mathbf{r}_n - \alpha_n \mathbf{A} \mathbf{p}_n$ ， $\mathbf{p}_{n+1} = \beta_{n+1} \mathbf{A}_a \mathbf{r}_{n+1} + \mathbf{p}_n$ ，其中
 $\alpha_n = 1 / \langle \mathbf{A} \mathbf{p}_n, \mathbf{A} \mathbf{p}_n \rangle$ ， $\beta_{n+1} = 1 / \langle \mathbf{A}_a \mathbf{r}_{n+1}, \mathbf{A}_a \mathbf{r}_{n+1} \rangle$ ；
- 3、相对误差为 $er = \langle \mathbf{A} \mathbf{x}_n - \mathbf{B}, \mathbf{A} \mathbf{x}_n - \mathbf{B} \rangle / \langle \mathbf{B}, \mathbf{B} \rangle$ ， $n=1, 2, \dots$ ， \mathbf{A}_a 为矩阵 \mathbf{A} 的共轭转置。利用循环迭代直到误差小于给定数值，停止迭代计算。

每次迭代中涉及矩阵与向量的乘积，在实际运算中很占时间，由于矩阵 $\mathbf{A} \mathbf{p}_n$ 、 $\mathbf{A}_a \mathbf{r}_n$ 运算可以用前面表达式计算，故无需将具体 \mathbf{A} 计算出来。

下面介绍利用傅立叶变换 (FFT) 提高矩阵运算的速度，减少数据量^[174]。

一维卷积对应的 FFT 变换为： $b_m = \sum_{n=0}^{N-1} j_n a_{m-n}$ ， $m=0, 1, 2, \dots, N-1$ 。系数矩阵构成了

特普利茨 (Toeplitz) 矩阵，所出现的不同元素都包含在第一行和第一列中，共 $2N-1$ 个。如果元素序列 $\{a_n\}$ 以 N 为周期，即 $a_{n+N} = a_n$ ， $n=0, 1, \dots, N-1$ ，则称为圆卷积，否则为线卷积。任何长度为 N 的线卷积均都可构造序列长度为 $2N-1$ 的圆卷积。则 $b = FFT_N^{-1} [FFT_N \{j\} FFT_N \{a\}]$ ， j 为延长的序列。根据方程 (4.36) 可得第 n 次的矩阵与向量乘积 $A p_n$ 的分量表达式^[158]

$$A p_\mu(x_k, y_m, z_n) = p_\mu(x_k, y_m, z_n) - \sum_{k'=1}^{N_x} \sum_{m'=1}^{N_y} \sum_{n'=1}^{N_z} g_{\mu\nu}(k-k', m-m', n-n') S_\nu(k', m', n'), \quad (4.39a)$$

$$S_\nu(k', m', n') = \sum_{\xi} \chi_{\nu\xi}(x_{k'}, y_{m'}, z_{n'}) p_\xi(x_{k'}, y_{m'}, z_{n'}), \quad (4.39b)$$

μ, ν 和 ξ 分别代表 x, y, z 方向，下标 n 已经省略。同理，对于第 n 次的矩阵与向量乘积 $A_a r_n$ ，可得

$$A_a r_\mu(x_k, y_m, z_n) = r_\mu(x_k, y_m, z_n) - \sum_{\nu} \chi_{\nu\mu}^*(x_k, y_m, z_n) \cdot \sum_{\xi} Q_{\xi\nu}^*(x_k, y_m, z_n), \quad (4.40a)$$

$$Q_{\xi\nu}(x_k, y_m, z_n) = \sum_{k'=1}^{N_x} \sum_{m'=1}^{N_y} \sum_{n'=1}^{N_z} g_{\xi\nu}(k-k', m-m', n-n') r_\xi^*(x_{k'}, y_{m'}, z_{n'}). \quad (4.40b)$$

可见由源点 $M'(k', m', n')$ 到场点 $M(k, m, n)$ 的各种计算，可拓展矩阵为 $n_1 \times n_2 \times n_3$ ，

其中 $n_1 \geq 2N_x - 1$ ， $n_2 \geq 2N_y - 1$ ， $n_3 \geq 2N_z - 1$ ，可利用三维圆卷积的傅立叶变换为

$$A p_\mu = p_\mu(x_k, y_k, z_k) - FFT^{-1} \left[\sum_{\nu} FFT(T_{\mu\nu}) FFT(S'_\nu) \right]_{k', m', n'}, \quad (4.41a)$$

$$A_a r_\mu = r_\mu(x_k, y_k, z_k) - \left\{ \sum_v \chi_{v\mu}(x_k, y_k, z_k) \cdot FFT^{-1} \left[\sum_\xi FFT(T_{\xi v}) FFT(O_\mu^*) \right]_{k', m', n'} \right\}, \quad (4.41b)$$

$$O_\mu(k, m, n) = \begin{cases} r_\mu(k, m, n), & 1 \leq k \leq N_x, 1 \leq m \leq N_y, 1 \leq n \leq N_z \\ 0, & 1 \leq k \leq n_1, 1 \leq m \leq n_2, 1 \leq n \leq n_3 \end{cases}, \quad (4.41c)$$

$$T_{\mu\nu}(k'+1, m'+1, n'+1) = g_{\mu\nu}(k, m, n),$$

$$-N_x+1 \leq k \leq N_x-1, -N_y+1 \leq m \leq N_y-1, -N_z+1 \leq n \leq N_z-1$$

$$= 0, \quad \text{others.} \quad (4.41d)$$

对于公式 (4.41d) 中 $k' = k (k \geq 0)$, $k' = k + n_1 (k < 0)$, 和 $m' = m (m \geq 0)$, $m' = m + n_2 (m < 0)$, $n' = n (n \geq 0)$, $n' = n + n_3 (n < 0)$ 。对于 S'_ν 为 S_ν 根据 O_μ 方法拓展的矩阵。采用上述方法, 利用 FFT 方法可以节省计算时间, 同时拓展的 $T_{\mu\nu}$ 为三维 Toeplitz 矩阵, 因此只需要存储第一列数据, 从而有效的减少计算机的内存。

4.3.4 散射截面

由电磁散射的矩阵方程可以计算出计算空间任意点的散射场 $\mathbf{E}^s(\mathbf{r})$, 考虑散射远场近似为球面波, 在离散射体远场位置 $\mathbf{r} (r, \theta, \phi)$ 探测散射波, 测量得到的信号即对应于微分散射截面^[46, 158] (电磁散射中用双站雷达散射截面 RCS 表示, 用平面波入射)

$$\frac{dC_{sca}}{d\Omega} = \lim_{r \rightarrow \infty} 4\pi r^2 \frac{|\mathbf{E}^s|^2}{|\mathbf{E}^i|^2} = \frac{\pi(|N_\phi|^2 + |N_\theta|^2)}{|\mathbf{E}^i|^2}, \quad (4.42)$$

其中,

$$N_\theta(\theta, \phi) = \cos \theta \cos \phi S_x(\theta, \phi) + \cos \theta \sin \phi S_y(\theta, \phi) - \sin \theta S_z(\theta, \phi), \quad (4.43a)$$

$$N_\phi(\theta, \phi) = -\sin \phi S_x(\theta, \phi) + \cos \phi S_y(\theta, \phi), \quad (4.43b)$$

$$S_\mu(\theta, \phi) = \frac{k_0^2 \Delta v}{2\pi} \sum_{k, m, n} \sum_v \chi_{\mu\nu}(x_k, x_m, x_n) E_\nu(x_k, x_m, x_n) \zeta(k, m, n, \theta, \phi), \quad (4.43c)$$

$$\zeta(k, m, n, \theta, \phi) = \exp[ik_0(x_k \sin \theta \cos \phi + y_m \sin \theta \sin \phi + z_n \cos \theta)]. \quad (4.43d)$$

在这里 (x_k, y_m, z_n) 为第 kmn 个小立方体中心点坐标, $\Delta v = \Delta x \Delta y \Delta z$ 表示小立方体

的体积。

在本章提出的辐射力的计算平台中，由于采用矢量衍射理论计算入射场（高斯或中空型高斯，也可修改为其他光束）为有限区域，并且受到玻璃-水界面的衍射影响，入射场的远场难以用解析形式表示出来，因此它并不适合计算微粒对强聚焦的高斯光束的散射的散射截面。在设计理论计算平台程序时，主要作为程序验证的方法和数值计算误差的估计。作为潜在应用，散射截面可以用于分析金属颗粒/微结构对平面波的电磁散射特性。

4.3.5 矩量法的数值误差

前述 MOM 计算公式中，将 k_0 （真空）换成 k_l （媒质），相对折射率为颗粒与媒质的折射率之比，替换参数后的 MOM 就可以表示在媒质中传播的电磁波被微粒散射的情形。一般用无量纲数 $k_l a$ 表示计算尺度，单位振幅的平面波照射到微粒上，取 $ka=3$ ， $\epsilon_r=4$ ，计算空间取 $0.8 \times 0.8 \times 0.8$ ，半径 $a=0.3$ ，它们的单位依赖波数的单位，格点数为 $40 \times 40 \times 40$ ，Mie 散射^[46]和 MOM 的 RCS 结果见图 4.5。在有限的格点数将包围球形的空间离散化，MOM 的结果与 Mie 散射在 E 面和 H 面的结果比较接近，它们在 E 面 RCS 的总的相对误差为~7.4%，在 H 面的 RCS 总的相对误差为~7.7%。

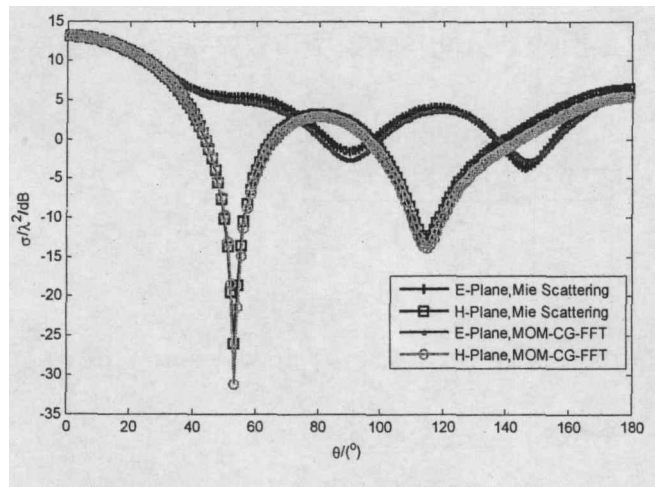


图 4.5 MOM-CG-FFT 和 Mie 散射的 RCS。

在上述相同参数下，分别比较各个格点内场的分量。在球坐标系下，MOM 和 Mie 散射分别计算沿 z 方向第 10、20 和 30 个横截面上格点的 E_r 分量见图 4.6， E_θ 分量见图 4.7， E_ϕ 分量见图 4.8。从图中可以看出，MOM 与 Mie 散射的结果总体符合得比较好。由于离散化边界的存在，MOM 计算在部分格点出现较大误差，

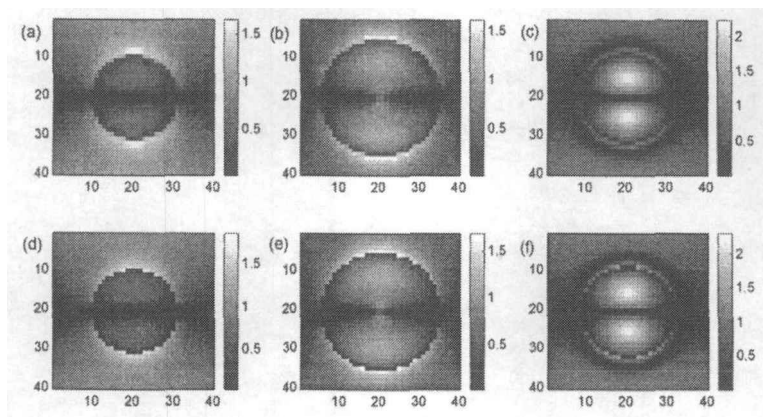


图 4.6 MOM-CG-FFT (a-c) 和 Mie 散射 (d-f) 的 E_r 。其中 (a) 和 (d) 为第 10 个截面；(b) 和 (e) 为第 20 个截面；(c) 和 (f) 为第 30 个截面。

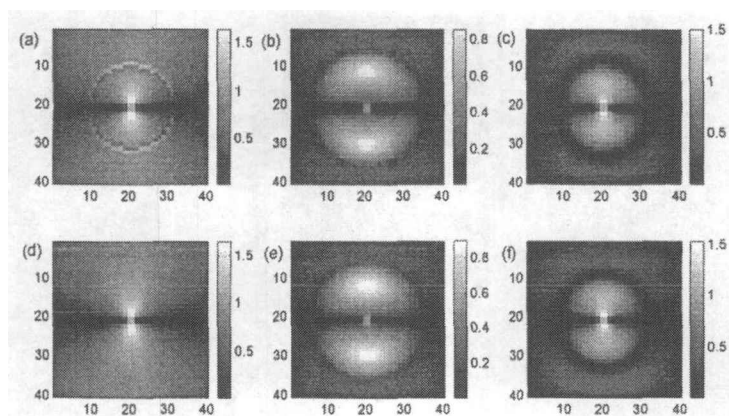


图 4.7 MOM-CG-FFT (a-c) 和 Mie 散射 (d-f) 的 E_θ 。其中 (a) 和 (d) 为第 10 个截面；(b) 和 (e) 为第 20 个截面；(c) 和 (f) 为第 30 个截面。

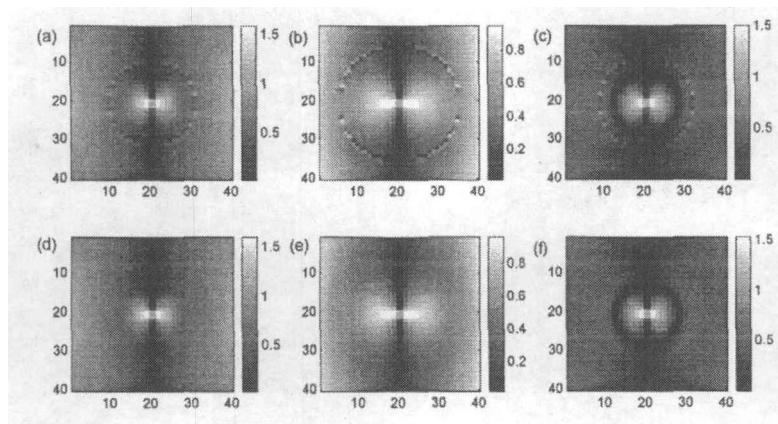


图 4.8 MOM-CG-FFT (a-c) 和 Mie 散射 (d-f) 的 E_ϕ 。其中 (a) 和 (d) 为第 10 个截面；(b) 和 (e) 为第 20 个截面；(c) 和 (f) 为第 30 个截面。

例如图 4.7 和图 4.8 中(a-c)出现圆的图案。在 E_θ 和 E_ϕ 分量上, 理论上本应连续变化的场, 而MOM方法在离散化微粒后在边缘出现不连续, 导致这一现象的原因在于利用立方体堆积成的球形在边界上与球形边界存在差距。

它们在各个格点上分量的相对误差可以用 $\text{error}=(|E^{\text{MOM}}|-|E^{\text{Mic}}|)/(|E^{\text{Mic}}|)$ 表示, 对于上述截面上内场的相对误差, 如 E_r 分量见图 4.9, 可见部分格点上的相对误差比较大。但少数格点上较大误差并不影响整体的散射特性, 对统计所有计算格点上的相对误差, E_r 分量为 0.7%, E_θ 分量为 1.08%, E_ϕ 分量为 1.01%。若对于介电常数较小的介电微粒, 误差会更小。增多计算网格数目, 同样也可以减小误差, 但边缘上的误差源自离散网格对球的近似表达, 通过增多网格数目只能降低边缘误差的权重。

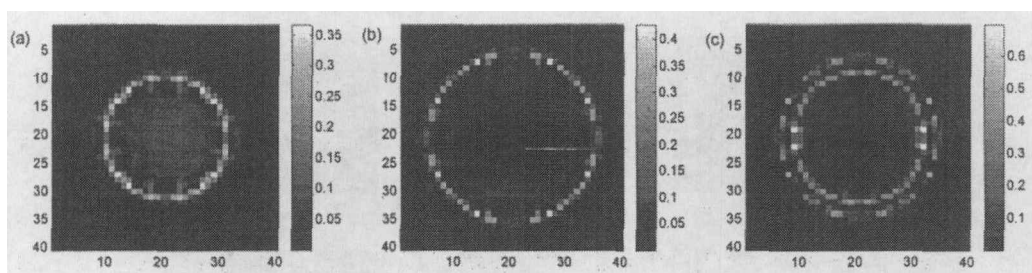


图 4.9 MOM-CG-FFT 和 Mie 散射的 E_r 分量相对误差。其中 (a) 为第 10 个截面; (b) 为第 20 个截面; (c) 为第 30 个截面。

4.3.6 辐射力

根据矢量衍射理论得到聚焦中心附近的入射电场, 通过 MOM 获得微粒对入射电场散射的总场。一般来说, 根据入射电场和总场可以由消光截面和散射截面得到辐射力, 但从高数值孔径物镜聚焦光束得到微区电场的分布获得远场比较困难。根据电磁张量围绕微粒表面可得到总的辐射力, 而我们选用的计算方法只涉及到电场。根据 Lorentz 力公式 (4.4) 和 (4.7), 同样也涉及到磁场。在我们的数值计算中, 将微粒分割称为许多小体元, 每一份体元内的电场是均匀的, 因此每份体元可以作为偶极子处理, 若通过一些数学变换将磁场的影响包含到已知的物理量上去, 那么辐射力就比较容易表示出来。

电磁场中的偶极子在外场 E^{ext} 作用下会受到 Lorentz 力, 同时偶极子自身也激发电磁场 E^{scat} , 小体元 Δv 的单位体积的电偶极矩与电场满足^[60, 105, 169]

$$\mathbf{P} = \epsilon_m \bar{\alpha} E^{\text{ext}} / \Delta v, \quad (4.44)$$

其中媒质极化率 $\varepsilon_m = n_m^2 \varepsilon_0$ ，Clausius-Mossotti 因子 $\tilde{\alpha} = \tilde{\mathbf{I}} \Delta v 3(m^2 - 1)/(m^2 + 2)$ 为极化率张量， m 为微粒与媒质的相对折射率。首先我们从 Lorentz 力公式 (4.7) 出发，结合

$$(\mathbf{E} \cdot \nabla \mathbf{E}) = \nabla(\mathbf{E}^2/2) - \mathbf{E} \times (\nabla \times \mathbf{E}), \quad (4.44)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \quad (4.45)$$

便可推导出

$$\mathbf{f} = \frac{\varepsilon_m \tilde{\alpha} \nabla |\mathbf{E}^{\text{ext}}|^2}{2\Delta v} + \left(\frac{\varepsilon_m \tilde{\alpha}}{\Delta v}\right) \frac{\partial}{\partial t} (\mathbf{E}^{\text{ext}} \times \mathbf{B}^{\text{ext}}). \quad (4.46)$$

其中电磁动量密度 $\mathbf{g} = \mathbf{E} \times \mathbf{B}$ ，对时间平均为零^[105, 154-155]。由公式 (4.46) 可得

$$f^i = (1/2\Delta v) \text{Re}[P_j \partial^i (E_j^{\text{ext}})^*], \quad (4.47)$$

其中坐标分量 $i=x, y, z$ ，电磁场用复振幅表示。力密度可化简为

$$\mathbf{f} = \varepsilon_m \tilde{\alpha} \nabla |\mathbf{E}^{\text{ext}}|^2 / 4\Delta v. \quad (4.48)$$

值得注意的是，分母因子为 4。其中由于散射影响导致极化率张量元 α 出现迟滞项，将公式 (4.47) 或者公式 (4.48) 中的极化率张量元 α 替换为^[105, 169-170, 175]

$$\alpha' = \alpha / [1 - (2/3)ik_m^3 \alpha], \quad (4.49)$$

其中 k_m 为媒质中的波数。这样，离散化的偶极子受到的辐射力便可以用公式 (4.47) 或 (4.48) 计算。

如果将积分方程离散化为偶极子模型，可以直接将散射结果代入前述公式计算辐射力，而我们利用 MOM 计算所得的结果为体元所在区域的内场，也就是总场，即 $\mathbf{E} = \mathbf{E}^{\text{ext}} + \mathbf{E}^{\text{self}}$ 。对于电偶极矩强度矢量，可从内场得到

$$\mathbf{P} = \varepsilon_m \tilde{\chi}_e \mathbf{E} = \varepsilon_m \tilde{\alpha}' \mathbf{E}^{\text{ext}} / \Delta v, \quad (4.50)$$

则电磁散射后对特定某一偶极子的外场即可由上式可得。在我们的计算平台里，可以通过内场获得外场，再通过公式 (4.47) 计算辐射力。

4.4 模拟结果及讨论

结合矢量衍射和 MOM，计算了介电微球的三维辐射力，阐明该计算平台的正确性。我们进一步模拟强会聚光束对高折射率微粒和金属微粒的辐射力，具体

分析这两种颗粒在光阱中的受力行为。

在以下计算中，微粒都处于水溶液中， $n_m=1.33$ ，物镜后瞳 $R=3\text{mm}$ ，物镜的数值孔径 $NA=1.25$ ，激光功率为 100mW ，光束的偏振方向沿 x 轴。没有特殊说明时，光束为恰好充满 $\gamma=1$ ，光束为 $n=0$ 的高斯光束，波长为 $1.064\mu\text{m}$ 。在考虑界面球差时， $n_g=1.33$ ，俘获深度 d 表示以理想聚焦点为原点建立坐标系中的坐标值。

4.4.1 介电微球的辐射力

为了验证我们建立的计算平台的正确性，在强会聚激光束中不考虑高数值孔径物镜在界面折射率失配引起的球差，聚焦光束对 $r_{\text{bead}}=0.5\mu\text{m}$ 的聚苯乙烯(PS)小球的三维辐射力见图 4.10。在计算中取 PS 小球的折射率 $n_p=1.59$ ，计算区域为 $1.1\mu\text{m}\times 1.1\mu\text{m}\times 1.1\mu\text{m}$ ，区域中心与小球中心重合，步长 20nm 。从图 (a) 可以得知，当颗粒横向偏离光束中心时（沿 x 或者 y 方向，统一用 ρ 表示横向偏离位移），小球会受到一个回复力将其拉回到光束中心。小球还会受到轴向的推力 $F_z>0$ ，见图(b)，小球沿 z 方向移动到轴向平衡位置，并随着 ρ 增大时， F_z 会迅速增大，将导致小球的轴向平衡位置会不同。对于沿 z 方向偏离中心位置时，见图(c)，小球受到的力 $F_z=0$ 所对应的轴向平衡点位置 $z_0>0$ 。由于散射力的作用，沿 $+z$ 最大回复力 $|F_z|_{\text{max},+z}$ 小于 $-z$ 方向的 $|F_z|_{\text{max},-z}$ 。这些特征均与第二章中 RO 模型的结论一致。从三维辐射力的分布表明，PS 小球能被光阱稳定束缚。

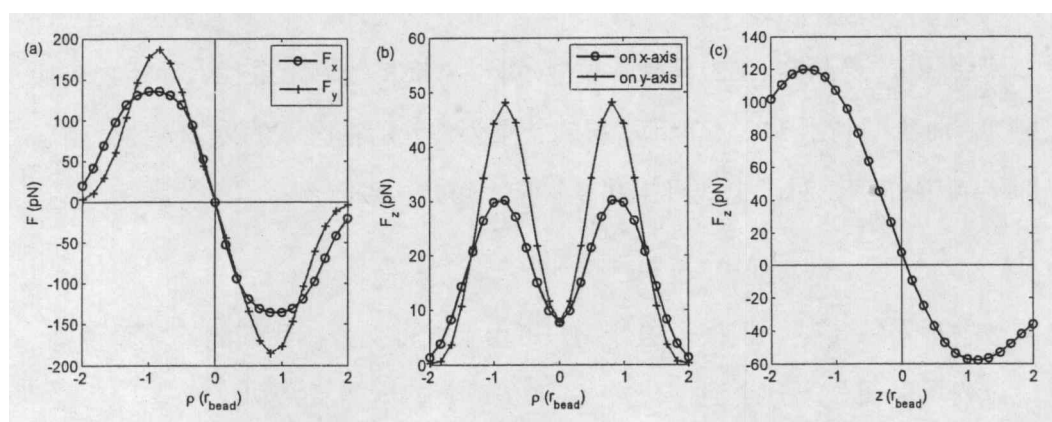


图 4.10 强会聚光束对 $r_{\text{bead}}=0.5\mu\text{m}$ 的 PS 小球的三维辐射力。 ρ 为横向偏离光束中心的位移。

(a)和(b): $z=0$; (c): $x=0$ 和 $y=0$ 。

在图 4.10(a)中，沿偏振方向的最大辐射力 $|F_x|_{\text{max}}$ 要小于垂直偏振方向的 $|F_y|_{\text{max}}$ ，这与光镊的其他 EM 模型的结论保持一致^[63]。在图(b)中 $F_z>0$ ，根据第二

章的分析,也就表示了实验测量的最大横向力将小于理论最大值,这在实验上已经有过报道^[111,176]。由于 PS 小球沿偏振方向偏离光束中心的 F_z 要小于沿垂直偏振方向偏离时的 F_z ,说明微粒横向偏离中心导致的轴向平衡点的偏离量(相对 $z=0$),在沿偏振方向上的结果要小于沿垂直偏振方向上。图(b)的结果表明横向测量的实验结果有可能会大于垂直偏振方向,在实际测量中还需要考虑球差对它的影响,在这里我们不作进一步的讨论。

通过对 PS 小球的三维辐射力的分析,理论模拟的趋势与实际实验现象符合,也与其他 EM 模型的结论一致。

4.4.2 高折射率微球的辐射力

一般认为强会聚光束能操纵透明的介电微粒,那么高斯光束能否稳定俘获如金刚石和二氧化钛等高折射率的微粒呢?高折射率颗粒在聚焦光束中受到的散射力增大,稳定俘获它至少要满足轴向梯度力能抵消散射力。尽管 Sun 等人^[177]报道过聚焦线偏振光束能驱动非规制的金刚石颗粒旋转,但俘获的位置处于空气-水界面,并非在溶液中实现真正的三维俘获。通过相对传播的双聚焦光束,光镊能俘获微米级的二氧化钛颗粒^[178]。在这一小节中我们主要分析高折射率颗粒在光阱中的辐射力,研究在何种情况下能稳定俘获。

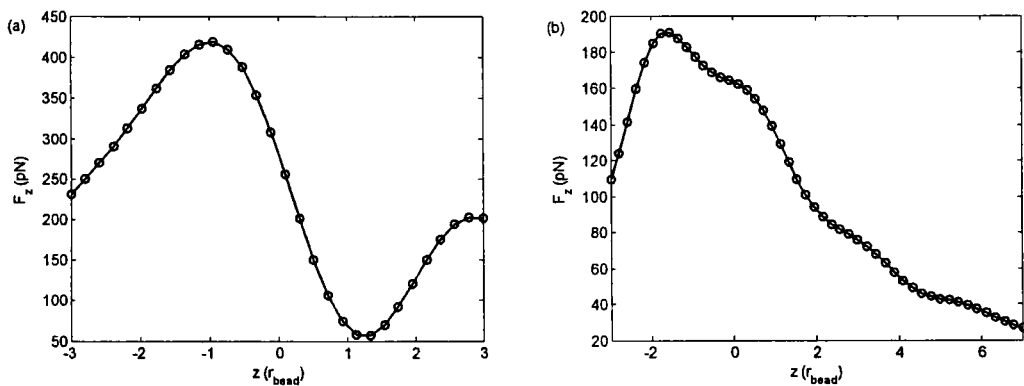


图 4.11 金刚石颗粒在光阱中的轴向辐射力。 $r_{bead}=0.5\mu\text{m}$, (a)无球差; (b)界面球差, $d=-10\mu\text{m}$ 。

光阱能否稳定俘获颗粒,首先从轴向辐射力上判断。图 4.11 为 $r_{bead}=0.5\mu\text{m}$ 的金刚石颗粒的轴向辐射力,金刚石颗粒的折射率^[147,177] $n_p=2.4$ 。计算网格区域为 $1.1\mu\text{m}\times 1.1\mu\text{m}\times 1.1\mu\text{m}$,步长 20nm。在单光束梯度力阱中,不考虑高数值物镜在玻璃-水界面球差的影响,轴向辐射力见图(a)。在图(a)中,最大辐射力和最小辐射力都大于 0,表明这种情况下轴向辐射力无法稳定俘获金刚石颗粒。若考

虑界面球差的影响, 见图(b), 取俘获深度 $d=-10\mu\text{m}$, 在给定的区域内, 轴向辐射力出现最大值, 最大值要比不考虑界面球差时的辐射力小很多, 最小的轴向辐射力在 $z=7r_{\text{bead}}$ 的位置, 仍有 $F_z>0$ 。若继续延伸 $z=30r_{\text{bead}}$ 处(图中未画出), 仍未出现 $F_z=0$ 的位置。表明这种情形下, 高斯光束在轴向不能稳定俘获金刚石颗粒。

若减小金刚石颗粒的尺寸, 不同半径的颗粒在光阱中受到的轴向辐射力见图 4.12。计算区域取为颗粒直径的 1.1 倍大小, 网格数目为 $55\times 55\times 55$, $d=-5\mu\text{m}$ 。对于 $r_{\text{bead}}=150\text{nm}$ 的颗粒, 见图(a), $F_z>0$, 波长为 780nm 和 1064nm 的激光光阱不能束缚这一尺度的颗粒。当颗粒减小到 $r_{\text{bead}}=100\text{nm}$ 时, 激光波长为 780nm 的激光光阱 $F_z>0$, 它仍不能束缚住颗粒, 而 1064nm 的激光光阱对颗粒的辐射力出现了 $F_z=0$ 的交点, 并且颗粒偏离这一点受到的力, 满足将它拉回到平衡点的趋势, 从力的角度来说这一现象为稳定俘获。当颗粒尺度继续减小到 $r_{\text{bead}}=50\text{nm}$ 时, 轴向辐射力上出现稳定的平衡点, 即两种激光波长的光阱都能束缚住这一次尺度的颗粒。因此对高折射率颗粒, 单光束梯度力阱适合俘获纳米级颗粒。

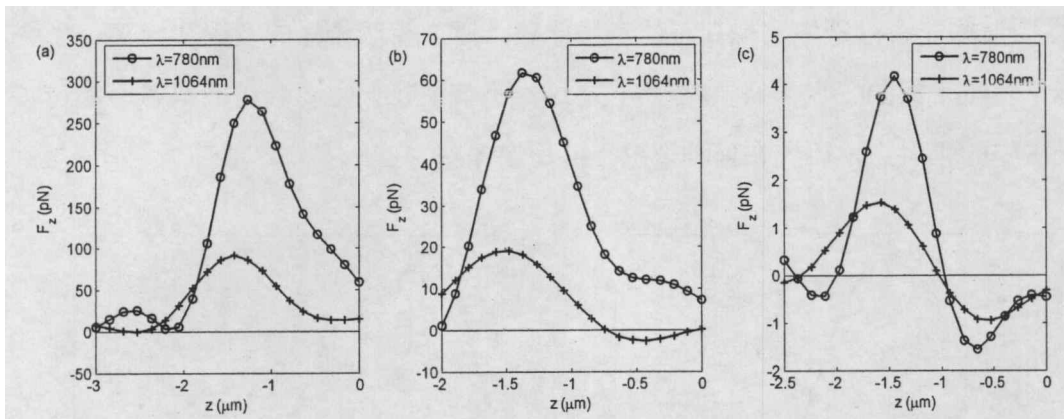


图 4.12 半径为 150nm(a), 100nm(b), 50nm(c)的金刚石颗粒在光阱中受到的轴向辐射力。

$d=-5\mu\text{m}$, 格点数为 $55\times 55\times 55$, 区域为直径的 1.1 倍。

4.5 小结

在这一章中我们提出矢量衍射-矩量法的电磁模型, 建立光阱的辐射力的电磁计算平台。通过对高折射率颗粒的辐射力的模拟, 得出微米级的金刚石颗粒不能直接被单光束梯度力阱中俘获, 当颗粒尺度减小时, 光阱就能稳定俘获它。通过改变描述光束的形式, 这一计算平台能适合各种聚焦光束对微粒散射特性的研究, 如平面波、高斯光束、LG 光束、轴对称偏振光束等, 还适合各向异性的微粒等。

第5章 纳米颗粒的辐射力

目前光镊应用于生物^[179-182]和胶体^[80, 183]等领域取得了显著的成果,它直接操纵的对象多在微米/亚微米尺度上,在纳米尺度上操纵颗粒一般采用手柄操纵的方式。光镊直接稳定俘获纳米颗粒,在纳米领域有着非常重要的应用,如获得单个纳米颗粒的 Raman 光谱^[184]和操纵金属纳米颗粒实现表面增强 Raman 光谱^[88];研究纳米颗粒的团簇形式^[65]、纳米器件组装^[19]和自组装^[66];实现纳米马达^[81]和测量纳米颗粒粒径^[185]。俘获纳米颗粒还作为空间位置的探针,即为光子力显微镜^[186],能在溶液中扫描探测很软的物体,颗粒越小,空间精度越高,同时也作为力的探针时,力的探测精度也很高^[187]。

光阱中纳米颗粒受到的辐射力包括梯度力和散射力作用,同时还受到溶液中颗粒的布朗运动影响,稳定俘获纳米颗粒的条件为轴向辐射力能克服颗粒布朗运动的影响。光学俘获纳米颗粒的方法有近场^[31, 69-70]和远场^[9, 184, 188]方式。虽然近场俘获采用近场探针照明^[69]和倏逝波照明^[31, 70]能有效的俘获纳米颗粒,但控制俘获的纳米颗粒不如远场俘获方便。在远场俘获的光镊中,由高数值孔径物镜强聚焦的激光光束直接俘获纳米颗粒,作用在纳米颗粒上的俘获力比 Mie 颗粒要弱很多,因此所需激光的功率一般比较高。较高的激光功率容易产生热效应,引起溶液温度升高不利于颗粒被稳定俘获,甚至有可能消融颗粒^[9]。在光镊中研究如何增大光阱对介电纳米颗粒的梯度力,提高光阱的俘获效率,即采用较低功率激光直接稳定操控纳米颗粒,对光镊实际应用于纳米组装和胶体等领域有着非常重要的意义。

相对于微米和亚微米颗粒,研究介电纳米颗粒辐射力的理论较为简单。由于颗粒小,电磁散射弱,在 Rayleigh 近似下,介电纳米颗粒相当于偶极子,因此我们直接利用入射场可计算辐射力,目前已有一些文献报道。Harada^[67]和 Zemánek^[189]在傍轴条件下研究了高斯光束对纳米颗粒的辐射力,并讨论颗粒被稳定俘获的条件。Chuamet^[175]分析了在电磁场中颗粒所受的辐射力的一般公式,并指明了不同计算方法的关系^[154]。Yao^[190]分析了利用平面波分析了玻璃-水界面球差对纳米颗粒俘获的影响,Zhao^[168]在傍轴条件下研究强聚焦的空心高斯光束对不同折射率的微粒的辐射力,Wang^[191]报道了光束的空间相干长度对纳米颗粒稳定俘获的影响。

对于金属纳米颗粒,在尺度为几十纳米时,由于电磁散射强烈,一般不能忽略电磁散射的影响,需要通过电磁散射计算辐射力,但在尺度小至几纳米时,可以根据Rayleigh近似计算辐射力。操纵金属纳米颗粒一直是研究热点,有关金属纳米颗粒的理论计算也是研究者一直关注的问题。如Qin等人^[41]通过FDTD给出金属纳米颗粒俘获的粒径上限,但实验中所俘获金属纳米颗粒的尺度远大于理论值^[95], Saija等人由热效应给出了相应的理论解释^[192]。

尽管有关纳米颗粒的俘获中,众多研究者从不同角度出发给予了很详细的研究,但一直缺乏将光镊设备参数与俘获力之间作一个系统研究。为了便于我们在以后实验中选取合适参数操纵纳米颗粒,因此本章采用矢量衍射理论研究高斯光束和空心高斯光束强聚焦后对纳米颗粒的辐射力,避免光束经过高数值孔径物镜强会聚不满足傍轴条件的束缚。主要包括入射激光波长、数值孔径和物镜后瞳截面的入射光场分布对光阱俘获介电和金属纳米颗粒的辐射力的影响。并分析颗粒在光阱所受的力与光镊各参数的关系,以便选择合适的参数增强俘获纳米颗粒所受的光阱力,这一章的理论基础分析见第四章。

在这一部分模拟中,没有特别指明时,纳米颗粒为聚苯乙烯(PS)小球,相对折射率 $m=1.59/1.33 \approx 1.2$,物镜后瞳半径 $R=3\text{mm}$,激光功率为 100mW ,球形颗粒半径为 35nm ,光束偏振沿 x 方向,束腰与物镜后瞳半径之比 $\gamma = \omega_0 / R_{\text{obj}}$ 。

5.1 介电纳米颗粒的辐射力

处于非均匀电场中的纳米介电颗粒受到电场的极化,极化诱导的偶极矩在非均匀电场中受到力的作用,它们的相互作用体现为纳米颗粒受到的辐射力。计算通过高数值孔径物镜强聚焦的光束对纳米颗粒产生辐射力,它包含两个方面,一方面是光束在聚焦区域的电场计算,另一方面是纳米颗粒的辐射力计算。物镜对入射激光的透射率总是小于 1,并且不同光斑大小的透射率还有差别^[193],这与具体物镜有关。最终物镜的出瞳处的激光功率应为透射率、有效功率比(物镜孔径对光束的截断)和总功率的乘积。为了使研究的问题具有普适性,此后计算采用的物镜透射率均为 1。

在不考虑界面球差影响下,纳米颗粒在三维坐标轴上受到不同光束的辐射力如图 5.1 所示。根据第四章公式(4.18),当 $n=0$ 时,中心电场最强,对应为高斯光束—— TEM_{00} 模。当 n 不等于 0 时,空心高斯光束在物镜后瞳截面的电场呈现

中心强度为 0 的暗中心环形分布，并且随 n 增大时，电场峰值强度半径 $r_{E,max}$ 在增大。不同的 n 值的光束对纳米颗粒的辐射力都有个共同规律，横向平行于偏振方向的最大梯度力要小于垂直偏振方向的最大梯度力，纵向上散射力和梯度力的最大合力比横向 x 、 y 方向的最大梯度力要小很多，即垂直偏振方向的横向刚度最大，纵向刚度最小。就辐射力的空间作用范围而言，横向梯度力的区域要比纵向梯度力的范围小很多。产生这些差别的本质原因在于，光束被高数值孔径物镜强聚焦后在焦点附近的电场强度在沿 x 轴、 y 轴和 z 轴分布不同，其中沿 z 方向聚焦光斑区域要大于横向方向的聚焦光斑区域。

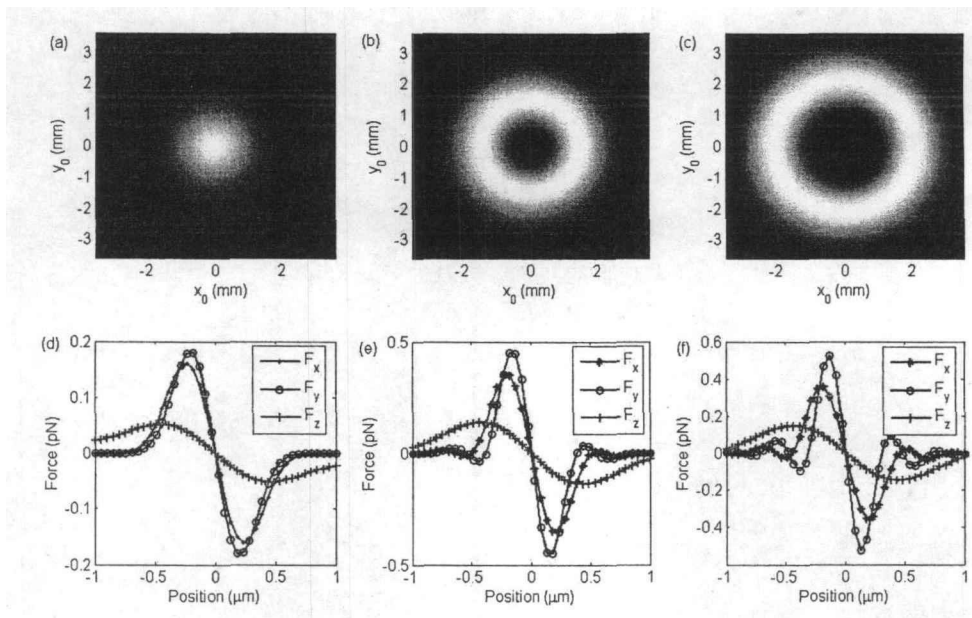


图 5.1 不同聚焦光束对颗粒的辐射力。 $NA=1.25$, $\gamma=0.5$, $\lambda=780\text{nm}$ 。(a-c) 为不同光束在物镜后瞳截面分布。(d-f) 分别为颗粒在焦点附近沿 x 、 y 和 z 不同位置上所受的辐射力。其中 (a)和(d)对应于 $n=0$; (b)和(e)对应于 $n=1$; (c)和(f)对应于 $n=2$ 。

5.2 球差对辐射力的影响

在球差影响下，随着俘获深度的增加，纳米颗粒受到的辐射力会发生变化。以高斯光束为例 ($n=0$)，在不同俘获深度下，三维方向上辐射力如图 5.2 所示。当俘获深度 d 从 $-5\ \mu\text{m}$ 变化到 $-20\ \mu\text{m}$ 时，横向 $|F_x|_{max}$ 和 $|F_y|_{max}$ 会迅速变小，沿 $+z$ 方向的 $|F_z|_{max}$ 也在变小，但为缓慢变小。在无球差情形下，横向最大辐射力远大于 $|F_z|_{max}$ 。而在有球差时，沿 $+z$ 方向的 $|F_z|_{max}$ 不一定要比横向最大辐射力要小，如 $d=-20\ \mu\text{m}$ 时，纵向最大回复力就大于横向 x 和 y 方向的最大回复力。对于空

心高斯光束，光阱俘获纳米颗粒的力也会随着俘获深度增加而降低。

从图 5.2(c)可以得知，当俘获深度增加时，光阱在球差的影响下，颗粒的平衡位置发生较大偏移。由于颗粒偏离成像面，即使光阱俘获了颗粒，我们也很难由探测器判断颗粒是否被稳定俘获。因此在光阱俘获纳米颗粒时，尽可能在底面操纵，或者在较大俘获深度上利用球差补偿的方式，增强辐射力，并使颗粒的轴向平衡位置调整到成像面上。有关利用球差补偿增强光阱俘获纳米颗粒的实验见第六章。

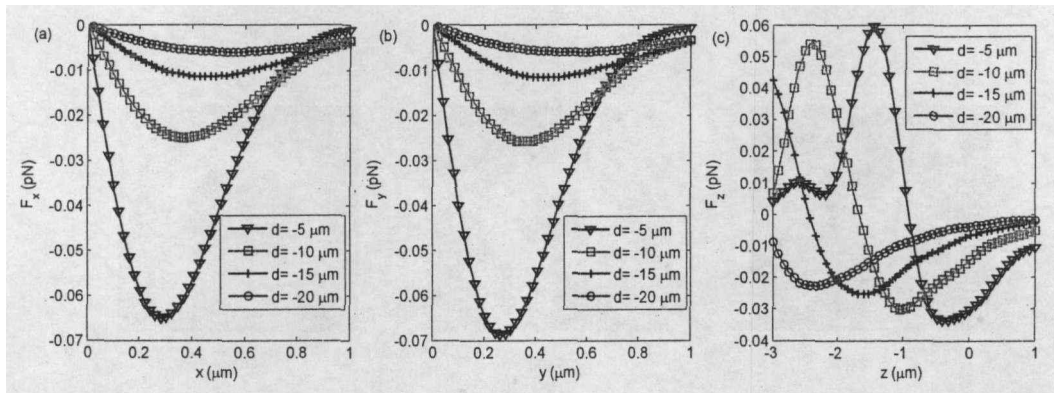


图 5.2 在不同俘获深度上三维方向的辐射力分布。(a)和(b)为处于 $z=0$ 的平面上的横向辐射力，(c)为 $x=0$ 和 $y=0$ 时沿光轴方向的辐射力， $NA=1.25$ ， $\gamma=0.5$ ， $\lambda=780\text{nm}$ ， $n=0$ 。

5.3 数值孔径和波长对辐射力的影响

当被物镜强会聚的光束俘获纳米颗粒时，不同数值孔径和入射激光波长都会影响辐射力的大小。由前述分析，不同深度的球差对辐射力的影响也较大，为了便于对比，我们取无球差系统，研究数值孔径 NA 和入射激光波长 λ 对三维辐射力的影响。

图 5.3 为三维方向上最大辐射力 ($F_{z,max}$ 为沿 z 方向最大回复力) 随 NA 和 λ 的变化趋势。从图 5.3(a-c)中可知，随着 NA 从 0.8 增大到 1.3 时， $F_{z,max}$ 增大到初始值的 12.5~15.5 倍，而在横向上 $F_{x,max}$ 增大~4 倍， $F_{y,max}$ 增大~5 倍。当数值孔径增大时，聚焦光斑会迅速减小，在 z 轴上表现更为明显。光斑减小，增强电场的梯度，因此辐射力增大。由于 z 方向的 $F_{z,max}$ 比横向的最大辐射力要小，增大 $F_{x,max}$ 能提高光阱的稳定性。在其他相同条件下，高数值孔径物镜聚焦激光束能俘获更小的纳米颗粒。

若波长从 $0.5\ \mu\text{m}$ 变化到 $1\ \mu\text{m}$ ，见图 5-3(d-f)， $F_{z,max}$ 减小到 1/5~1/7。对于横

向沿 x 和 y 方向的最大辐射力，随波长变化减小到原来的 $\sim 1/8$ 。随着激光波长的增大，在相同条件下衍射极限对应的光斑会增大，电场梯度减小，因此辐射力会降低。就激光波长与最大辐射力的变化趋势而言，增大波长，虽然光阱的横向辐射力下降最快，但轴向变化缓慢。

从上面分析可以得知，采用高数值孔径物镜和短波长激光，都有利于提高光阱的最大辐射力。在实际应用中，由于短波长激光对生物细胞等有损伤作用，一般采用近红外激光，因此增大物镜的高数值孔径能大幅增大光阱对纳米颗粒的轴向俘获力，这一结论同样也适应于微米尺度的颗粒。

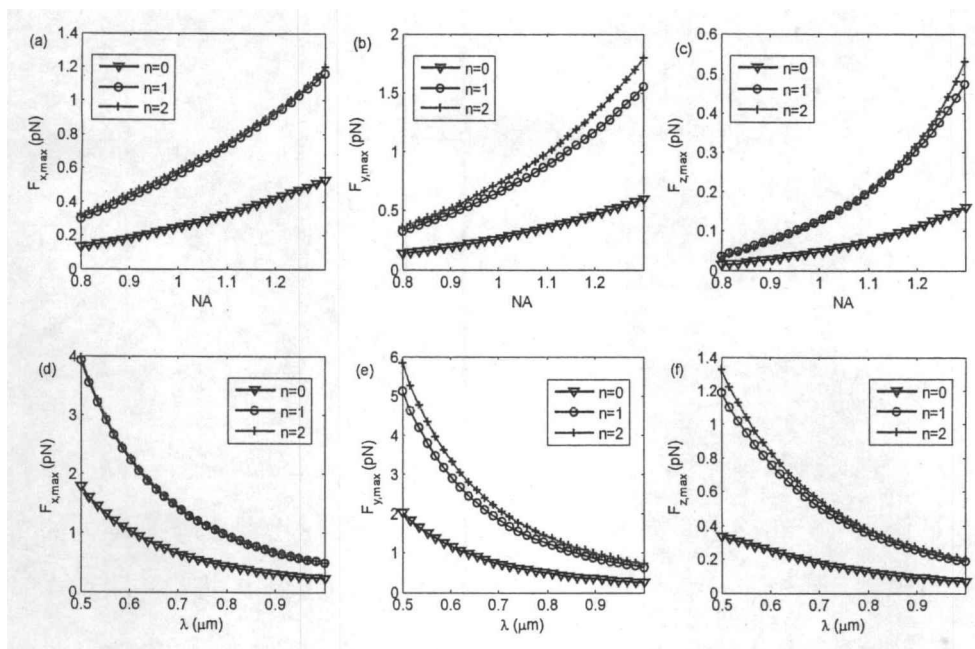


图 5.3 在三维方向上不同光束随 NA (a-c) 和 λ (d-f) 变化的最大辐射力。其中 $\gamma=0.5$,

(a-c) $\lambda=780\text{nm}$, (d-f) $NA=1.25$ 。

5.4 光束截面分布对辐射力的影响

从图 5.1 和 5.3 可知，当 $\gamma=0.5$ 时，空心高斯光束的最大辐射力均大于高斯光束的最大辐射力。在以往我们的研究中^[53]，空心高斯光束能有效提高对微米级颗粒的纵向俘获力，但同时会降低光阱的横向俘获力。一般来说，轴向俘获力要远小于横向俘获力，也就是轴向俘获力大小成为稳定俘获纳米颗粒的关键。对于空心高斯光束，利用 RO 模型对微米颗粒光阱力的研究结论能否适应于纳米颗粒操纵呢？下面我们就这一问题进行理论模拟。

5.4.1 高斯光束和空心高斯光束的比较

先从无球差系统出发，三维方向上最大辐射力与光束截面 γ 分布的关系见图 5.4。对于高斯光束($n=0$)的光束，在随着 γ 值增大时， $F_{x,max}$ 、 $F_{y,max}$ 和 $F_{z,max}$ 几乎同时增大，在 $\gamma \sim 1$ 处达到最大值，之后便同时减小。曲线的峰值位置所对应的 γ 值即为最佳光束截面分布。空心高斯光束($n=1,2,3,4$)的三维最大辐射力同样也随着 γ 值增大而增大，当 γ 增大到最佳位置时，最大辐射力便随着 γ 增大而减小，并且三维方向最大辐射力所对应的最佳 γ 值很接近。电磁理论中采用 Rayleigh 近似所得的结论与 RO 模型中三维俘获力有很大的区别，在 RO 模型中，增大轴向俘获力，意味着降低横向俘获力，在三维方向上辐射力不能同时增大^[53]。

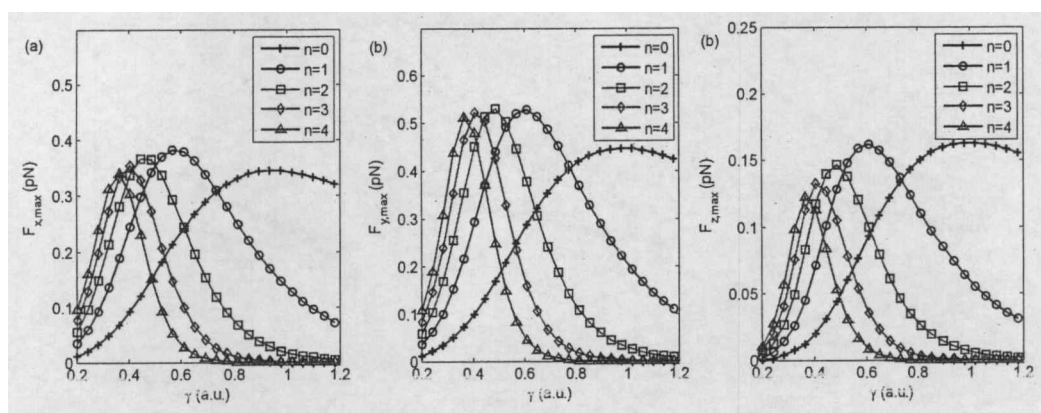


图 5.4 三维方向上最大辐射力与光束截面的关系。 $NA=1.25$, $\lambda=780nm$, $\gamma=\omega_0/R_{obj}$ 。

存在最佳光束分布的主要原因在于两个方面：一方面入射到物镜后瞳处的光束束腰分布越大，强聚焦光束的光斑就越小，即在焦点附近的三维空间中聚焦区域变小，电场分布就容易产生较大的梯度，则三维方向的梯度力都在增大。另一方面当光束分布增大一定程度时，由于物镜后瞳相当于光阑，截断光束传播，则对于聚焦光束存在功率损失，反而辐射力变小。以上两个原因相互作用，使得光束分布不能过小，也不能过大，否则会引起不是聚焦光斑过大就是功率损失过大，两者都会降低辐射力。

从图 5.4 可以看出，在最佳 γ 值时，高斯光束的纵向最大辐射力($F_{z,max}$)一直比空心高斯光束的力要大。而对于横向最大辐射力($F_{x,max}$, $F_{y,max}$)，低阶数($n=1,2,3,4$)的空心高斯光束的辐射力要比高斯光束的力要大。但空心高斯光束随着 n 增大，横向最大辐射力在逐渐减小，因此在 n 较大时，横向最大辐射力其实要比高斯光束小。例如 $n=16$ ，光束在最佳 γ 值， $F_{x,max}=0.25 pN$, $F_{y,max}=0.42 pN$, $F_{z,max}=0.07 pN$ ，横向辐射力比高斯光束所对应的力稍小一些，而纵向辐射力比高斯光束的

力小很多。在以往 RO 模型中,空心高斯光束能起到增大纵向俘获力^[53]的作用,而对于纳米颗粒却是降低纵向俘获力。

在最佳 γ 值,空心高斯光束($n=16$)光束被切趾后通过的激光功率百分比为97.9%,而高斯光束为86.9%。尽管前者切趾通过的功率比高于后者,但前者最大辐射力却比后者小,并在 z 方向上小很多。为了解释这一现象,我们比较这两种光束分布所对应于聚焦区域的光强分布,见图5.5。空心高斯光束在入射物镜后瞳处的光斑为暗中心的环形分布,并且峰值强度远离光轴。取峰值强度的半高宽为光斑大小,在焦平面上,空心高斯光束的聚焦光斑要小于高斯光束的聚焦光斑,但衍射环分布要比前者明显,聚焦后场的衍射环分布同时也削弱了中心场的强度分布。空心高斯光束沿 z 方向上拉长了聚焦的区域,即横向的光斑大小要比纵向的光斑小。高斯光束在 z 方向的光斑约为 x 方向光斑~2倍, y 方向的光斑~3倍,而空心高斯光束的 z 方向的光斑是 x 方向光斑的~3.3倍,是 y 方向光斑的~5.6倍。光斑越大,梯度力越小,所以在这种情形下,空心高斯光束的辐射力要小于高斯光束的辐射力。

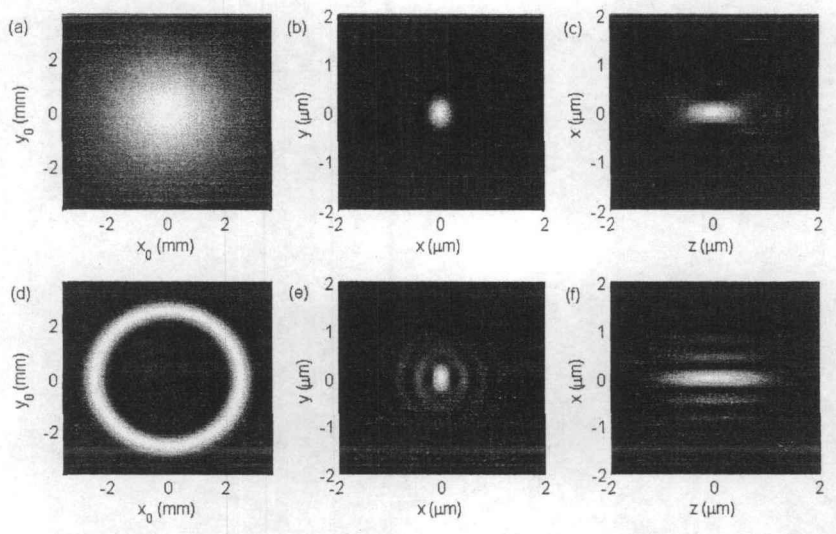


图 5.5 在最佳 γ 值高斯光束($n=0$)和空心高斯光束($n=16$)在不同截面的光强分布。 $NA=1.25$,
 $\lambda=780nm$ 。(a-c)为高斯光束,(d-f)为空心高斯光束;(a)和(d)为物镜后瞳截面,(b-c)和(e-f)为
聚焦区域的截面。

5.4.2 界面球差对最佳光束截面的影响

根据前述分析,高斯光束比空心高斯光束所形成的光阱更适合俘获纳米颗

粒。对于无球差系统而言，最佳的光束截面分布是恰好充满物镜后瞳，而在实际应用中，界面球差会降低光阱对颗粒的辐射力，还会影响颗粒的平衡位置，纵向平衡位置反过来影响横向辐射力。在讨论最大辐射力与光束截面分布的关系时，我们先讨论颗粒的轴向平衡位置。由于球差的影响，在光阱中被稳定俘获的颗粒，它的纵向平衡位置会随着俘获深度和光束截面分布变化而改变，见图 5.6。随着 γ 增大，轴向平衡点逐渐远离物镜的焦点，但变化比较缓慢。当俘获深度 ($|d|$) 增大时，则轴向平衡位置会大幅远离理想焦点，因此俘获深度是决定轴向平衡位置的关键因素。在我们以往的实验中，由于微米级颗粒的散射力较大，散射力和球差导致的轴向偏移有相互抵消的趋势，因此控制颗粒轴向平衡位置即调节光阱阱位的位置比较容易。当俘获纳米颗粒时，需要调节光束的发散角使得光阱中心与成像面重合，并且不同俘获深度上调节的情况还不一样。

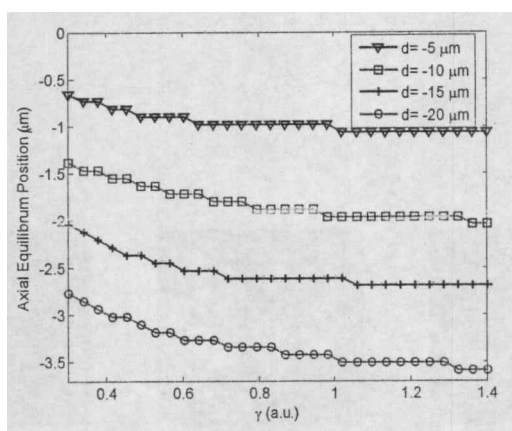


图 5.6 不同俘获深度上轴向平衡位置与光束截面的关系。 $NA=1.25$, $\lambda=780nm$, $\gamma=\omega_0/R_{obj}$ 。

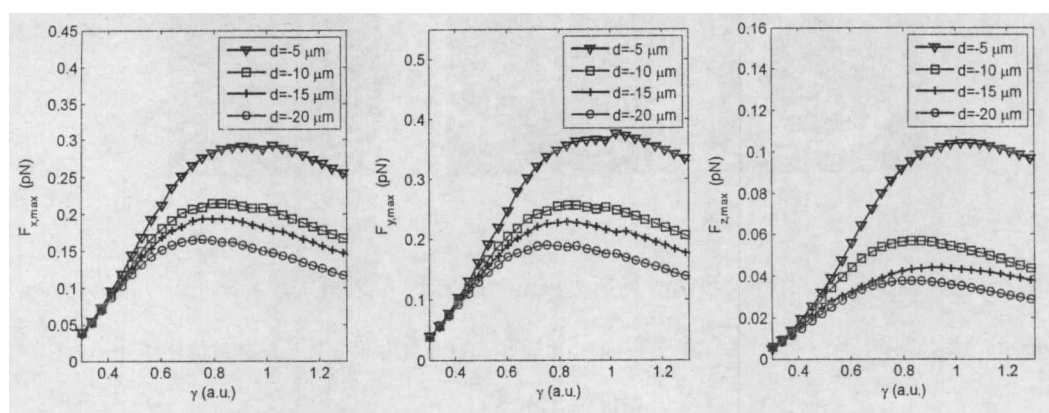


图 5.7 不同俘获深度上三维最大辐射力与光束截面分布的关系。 $NA=1.25$, $\lambda=780nm$ 。

在球差影响下，高斯光束的最大辐射力与光束截面分布的关系见图 5.7。随着俘获深度增大，三维方向上最大辐射力曲线的峰值在变小，并且最初的变化非

常快。俘获深度较小时 ($|d|=5\mu\text{m}$), 最佳 $\gamma\sim 1$, 并且三维方向变化趋势相同。而当俘获深度增大时, 最佳 γ 逐渐变小, 并且三维方向上变化趋势稍有差异。在 $|d|=20\mu\text{m}$, 横向最大俘获力 $F_{x,max}$ 和 $F_{y,max}$ 曲线峰值对应于 $\gamma\sim 0.76$, 轴向最大俘获力 $F_{z,max}$ 曲线的峰值对应于 $\gamma\sim 0.83$ 。因此对于 $|d|<20\mu\text{m}$ 时, 光镊设计时可以将 γ 选取在 $0.76\sim 0.83$ 之间, 这样在横向和纵向上, 最大辐射力都比较大。

以上模拟结果虽然是针对纳米颗粒, 但实际上讨论的是聚焦光斑的分布和场的梯度, 因此预测的趋势能适应于微米级颗粒。在我们以前的实验研究中, 由于背散射探测测量纵向光阱刚度的困难, 只测量出横向光阱刚度和物镜后瞳光束分布的关系, 在实验上指出最佳的 γ 为 $0.7\sim 0.8$ ^[194]。

5.5 Rayleigh近似下的金属颗粒的辐射力

由于金属颗粒具有复折射率, 它对光有强烈的散射, 导致它在轴向受到的散射力比较强, 因此普通高斯光束难以稳定俘获尺度较大的金属颗粒^[90]。当颗粒尺度小到一定程度, 梯度力能足以克服散射力的影响, 它就能被光阱稳定俘获。我们以金颗粒为例, 金颗粒电极化率随波长的关系参考文献^[195], 强聚焦的高斯光束对半径5nm的金(Au)和PS小球的辐射力见图5.8。对于横向俘获力(a)和(b), Au小球受到的最大回复力是PS小球的~10倍, 而对于纵向俘获力(c), Au小球沿z方向偏离平衡位置的最大回复力为PS小球的力~9倍。两种材料小球所受辐射力的差异主要来源于极化率的差异, 并且随波长的变化而变化。根据Rayleigh近似的分析, 操纵金属纳米颗粒比介电纳米颗粒要容易。

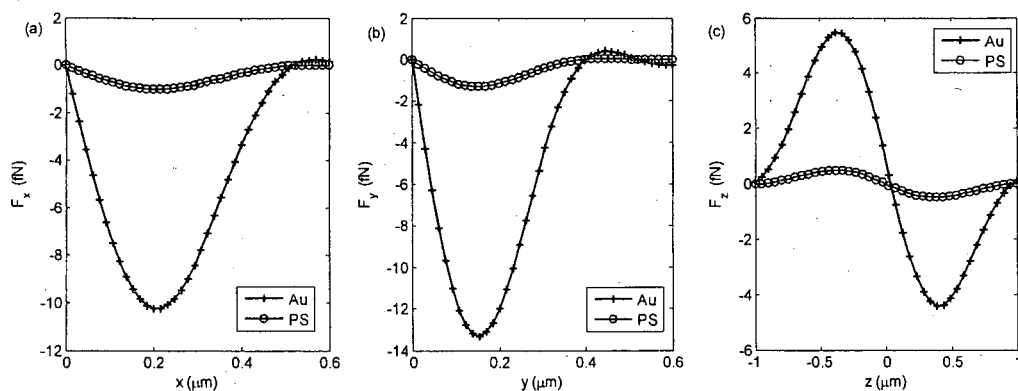


图5.8 光阱中金颗粒 (Au) 与聚苯乙烯 (PS) 的三维辐射力。 $\gamma=1$, $radius=5\text{nm}$, $\lambda=780\text{nm}$, $NA=1.25$, $n=0$ 。(a-b) $z=0$; (c) $x=0$; $y=0$ 。

由于金属颗粒的复折射率与入射光波长有关, 我们来分析下激光波长对俘获

金属纳米颗粒的影响。在无球差系统下，三种激光波长的光阱对金小球的辐射力见图5.9。从图(a)和(b)图中可知，随着激光波长的增大，最大横向辐射力 ($|F_x|_{max}$) 急剧下降。除了前述分析中提及的激光波长影响聚焦光斑的大小之外，最主要的原因在于折射率的变化影响力的大小。在波长为532nm、633nm和780nm的光照下，金小球的折射率^[195]分别为 $0.50 + i2.24$ 、 $0.18 + i3.43$ 和 $0.16 + i4.75$ ，所对应的Clausius-Mossotti (CM) 因子的虚部依次小一个数量级，从而导致梯度力相差很远。对于轴向辐射力(c)，由于金小球在波长532nm的光阱中CM因子中的虚部与实部具有相同数量级，小球散射和吸收光子所受的推力远大于光阱的梯度力，在这一种情形下就无法稳定俘获金颗粒。对于波长为633nm和780nm的光阱，CM因子的虚部比实部要小一个到两个量级，梯度力比散射和吸收导致的辐射力要大，这种情形下有可能俘获金纳米颗粒，颗粒能否被稳定俘获依赖于势阱深度能否克服颗粒剧烈的布朗运动。

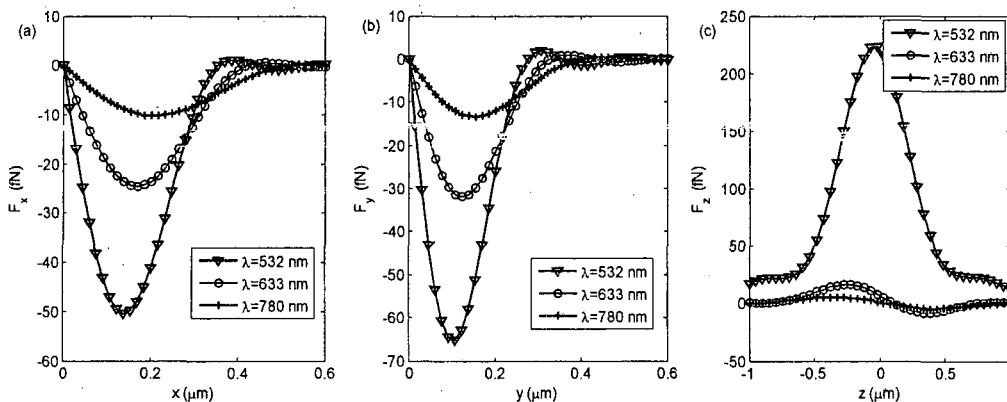


图5.9 光阱中Au小球所受的辐射力与波长的关系。 $\gamma=1$, $radius=5nm$, $n=0$, $NA=1.25$ 。(a-b) $z=0$; (c) $x=0$; $y=0$ 。

以上都是基于Rayleigh近似分析金属纳米颗粒的辐射力，实际上对达到几十纳米的金属颗粒，需要严格计算电磁散射导致的辐射力。基于Rayleigh近似分析出的结论定性给出了短波长激光不适合俘获金颗粒。

5.6 颗粒在光阱中的稳定性

对于处于光阱中的纳米颗粒，它被稳定俘获的条件为一方面要求满足纵向梯度力要比散射力大，另一方面为光阱的势阱深度能克服颗粒布朗运动。为了简单起见，我们针对PS纳米小球，分析无球差的高斯光阱的稳定俘获的条件。

介电纳米颗粒处于光阱中心时有最大散射力，而颗粒只有偏离光阱中心才会

受到最大纵向梯度力。对于纳米颗粒而言，处于最佳 γ 值的不同光束的最大散射力比最大纵向梯度力要小两个数量级，光阱的梯度力能克服散射力束缚颗粒。影响颗粒被稳定俘获的另一因素为布朗运动。处于光阱中的颗粒受到一个梯度力势阱作用，势能克服颗粒的热运动动能使得颗粒束缚在光阱中。由公式(4.48)可以将复数场中梯度力表示为，

$$\vec{F}(r) = \nabla U(r), \quad (5.1)$$

其中，

$$U(r) = \pi m_m^2 \varepsilon_0 a^3 \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} |E(r)|^2. \quad (5.2)$$

则颗粒在光阱中任意位置的分布概率为^[71]

$$u(r) = u(0) \exp\left(\frac{U(r) - U(0)}{k_B T}\right), \quad (5.3)$$

其中 $u(0)$ 为颗粒在光阱中心的概率， k_B 为玻尔兹曼常数， T 为环境温度。光阱稳定俘获纳米颗粒时，颗粒远离光阱中心的概率很小。由于远离光阱中心时 $U(r)$ 很小，则

$$\exp(-U(0)/k_B T) \ll 1, \quad (5.4)$$

即 $U(0) \gg k_B T$ ，一般取 $U(0) = 10 k_B T$ ，所对应的激光功率 P 称之为稳定俘获的最低功率。

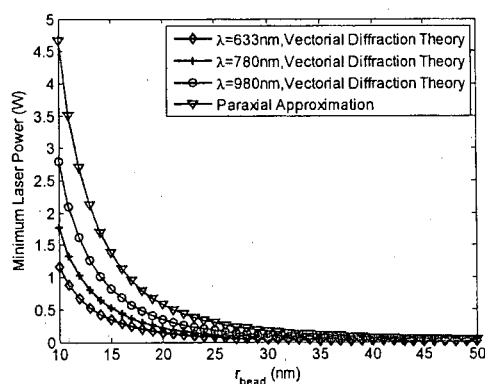


图 5.10 稳定俘获 PS 小球的最低俘获功率。NA=1.25, T=300K。

光阱稳定俘获不同大小的纳米颗粒，所需最低激光功率见图 5.10，其中 NA=1.25, T=300K，高斯光束的分布 $\gamma=1$ 。通过矢量衍射理论计算，不同波长所

需要的最低功率随颗粒的半径的减小而急剧增大,并且在颗粒半径很小时,长波长的激光所需要的最低功率比短波长要大得多。Harada^[67]在傍轴近似下分析高斯光束对纳米颗粒的最小俘获功率,得出最小功率与波长无关的结论,并且在俘获半径很小的颗粒时,傍轴近似下的最小功率远大于矢量衍射理论计算的结果。造成这种差异的原因在于,傍轴近似下没有考虑光束的矢量特性和强聚焦特性。

对于半径 50nm 的 PS 小球,根据傍轴近似计算最低俘获功率为 37.3mW,而在 632.8nm 的 He-Ne 激光时,矢量衍射理论值仅为 9.3mW。我们从实验上曾采用 14mW 的 He-Ne 激光入射物镜后瞳,实现稳定俘获半径 50nm 的聚苯乙烯小球^[188],可见采用矢量衍射理论分析所得出的结论与实际情况更接近。根据图 5.8,对于纳米级的金颗粒,它的梯度力远比同尺寸的 PS 小球要大,因此俘获金属纳米颗粒,比俘获相同尺度 PS 小球的最小功率要小很多。

5.7 小结

本章通过矢量衍射理论分析了纳米颗粒在高斯光束和空心高斯光束光阱中的辐射力。得出设计空心光束的光阱并不能增强对纳米颗粒的纵向光阱力,在增大物镜的数值孔径和采用短波长的激光能大幅增强介电颗粒的纵向俘获力。而对于金属纳米颗粒,短波长激光光阱并不能稳定俘获它,所以操纵金属纳米颗粒通常为近红外激光^[99]。光束截面分布只有在最佳分布时,三维辐射力才能得到增强。在球差的影响下,最佳光束截面分布与物镜后瞳截面的比值为 0.76~0.83,这不同于光镊设计中光束恰好充满和过充满物镜后瞳的认识。通过矢量衍射理论分析,稳定俘获纳米颗粒的最低激光功率比傍轴近似得到的结果要低很多,表明我们能在较低激光功率下实现操纵纳米颗粒。

研究强强会聚光束对纳米颗粒受到的辐射力,有助于我们进一步认识到光镊的参数与力的依赖关系,指导光镊的设计,优化参数,提高光阱的俘获效率,能在尽可能低的激光功率下实现纳米颗粒的稳定俘获,减小对样品的热效应并达到稳定操纵纳米颗粒。在下一章,将利用这些方面的结果指导实验分析,实现对纳米颗粒的三维操纵。

第6章 纳米颗粒的三维操纵

基于高数值孔径 (NA) 物镜的单光束梯度力阱, 能非接触俘获乳胶小球^[9]、细胞^[196]和细菌^[197]等, 它俘获微粒的尺度从几十纳米到几十微米。在传统的光学显微镜中, 无法直接观察到纳米颗粒, 我们也就无法利用光镊实时观察和主动操纵纳米颗粒。虽然利用荧光标记能实现对纳米颗粒的观察, 并能达到纳米精度的定位, 如 PALM 技术等^[198], 但荧光漂泊等因素制约了长时间观察样品。在一些纳米胶体的研究中, 需要长时间、宽视场和实时动态观测纳米颗粒, 因此无标记的观察方式有望能将光镊应用拓展到纳米级胶体领域。

利用光学干涉探测^[199]可以宽视场观察无标记的纳米颗粒的布朗运动, 但这种方式只能局限于玻片表面附近, 而且后期图像处理的方式并不适合实时观察, 也就不利于整合光镊设备。Ashkin^[9]在报道单光束梯度力阱时, 从样品池侧面通过光电探测器探测光阱中纳米颗粒的散射光, 从实验上证实了光镊能直接俘获纳米颗粒。但观察纳米颗粒的视场只能是聚焦光束的区域, 并不是整个成像平面。这不便于寻找目标颗粒去主动操纵它, 只能被动地等待颗粒进入光阱中。而在暗场显微镜中, 能直接观察到纳米颗粒, 对于金属颗粒, 暗场显微镜能观察几纳米的颗粒^[86]。将白光通过暗场聚光镜照明, Prikulis^[92]实时观察到直径 80nm 的 Ag 颗粒, 由于局域表面等离子体 (LSP) 共振, 并利用聚焦光束实现了二维操纵 Ag 颗粒。一般暗场显微镜中物镜的数值孔径小于 0.7, 根据第五章的研究, 低数值孔径聚焦光束的光阱力很弱, 不适合俘获介电纳米小球。

在研究微米级颗粒的散射光时, Doornbos^[200]和 Ulanowski^[201]曾提出了垂直显微镜光轴的激光照明。Huisken^[202]和 Engelbrecht^[203]同样在垂直显微成像光轴的方向上照明样品, 通过柱透镜将照明激光束聚焦成为光学薄片, 观察和重构了较大活体生物样品的荧光像, 这种光学薄片式照明显微术称之为单平面照明显微术 (SPIM)。若将光学薄片式激光照明运用到暗场显微术上, 它能在高数值孔径物镜实时观察整个成像面上的纳米颗粒, 结合光镊设备便实现主动操纵纳米介电小球, 为此, 我们提出横向暗场照明光镊^[188, 204]。

6.1 暗场显微镜

暗场显微镜 (Dark Field Microscope) 技术是利用斜射照明法阻挡透过标本细节的直射光, 以反射光和衍射光来观察标本^[205]。它可以有效的提高信噪比, 观

察到亚细胞的细微结构,将人类的视野延伸到更微观结构,例如Jamjoom^[206]借助暗场显微镜观察,无需染色就能分辨出成不连续小棒状的疟原虫细胞分散在整个被感染的血红细胞,为疟原虫感染的诊断提供了简便有效的方法。除了在生物学的应用外,暗场显微镜在研究胶体分散体系上也十分有用,一般可以应用于测定溶胶颗粒的大小、观察布朗运动和涨落现象、确定胶体颗粒的形状、估计胶体溶液分散度、研究聚沉动力学过程和沉降平衡等^[207]。

商品化的显微镜中一般可以选购配件实现暗场显微术,实现暗场照明的主要配件为暗场聚光镜。暗场聚光镜为心形聚光器,利用光阑实现空心光束。暗场聚光镜的数值孔径要高于物镜的数值孔径,照射的光线不进入物镜,形成暗视野背景,而颗粒的散射光进入物镜成像。对于较大颗粒,暗场成像为全黑的背景上出现清晰的边沿轮廓,对于纳米级颗粒,视野全是纳米颗粒对应的光点,这样在明场中难以观察的颗粒便能在暗场中观察到。

商品化的暗场聚光镜配件一般适用于很薄的样品池,不仅限制了摆放样品的空间,还限制物镜的数值孔径不能太高,在使用中无法进行明/暗场切换。在不改造显微镜的前提下,横向暗场激光照明方式就能实现纳米颗粒的暗场观察,这种照明方式能方便明/暗场切换,结合光镊便可实时观察和操纵纳米颗粒。

6.2 实验方案

纳米颗粒的散射光与颗粒半径和照射激光波长有关,根据瑞利光散射^[207]可得,散射光强度与颗粒半径的六次方成正比,与入射光波长的四次方成反比,因此照射的激光尽可能选取短波长激光,并且聚焦照射观察样品的平面。

具体设计方案见图6.1。一束He-Ne激光(632.8nm,14mW,Polarized,Coherent,USA)光束经过扩束后耦合进入正置显微镜(BX50,Olympus,Japan),光束通过显微物镜(Oil 100×,NA 1.25)强会聚形成光镊。侧面照明光源为一束波长为532nm的激光,输出功率为30mW。绿色激光通过一个可移动的柱透镜聚焦为扁平光束,直接进入侧壁透明的样品池中。通过调节柱透镜位置,使会聚光束的束腰恰好处于显微镜成像面上。为了防止照明激光束进入物镜,选用焦距50mm的柱透镜将照明光束弱聚焦。颗粒的散射光被物镜收集后进入CCD(MinTong1881,China)成像,调节机械平台移动颗粒到光阱处,便可观察单颗粒的散射光,同时也可监控俘获纳米颗粒。

由于纳米颗粒在光阱中的梯度力很弱，布朗运动剧烈，稳定俘获和观察到纳米颗粒，涉及到激光最低功率的要求、光阱位与成像面的重叠、激光照明平面与成像面重叠等。面对在设备调试中俘获纳米颗粒可能出现的各种因素，我们从实验步骤上遵循从俘获大颗粒到小颗粒调节光阱的位置，观察上也从大到小进行观察比较，逐步实现对纳米颗粒的宽视场观察和主动操纵。

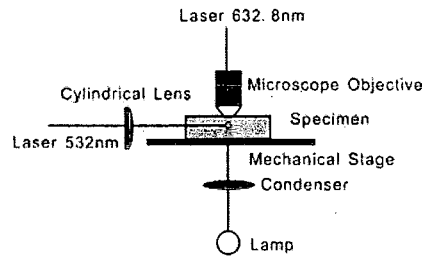


图 6.1 实验装置示意图。

6.3 暗视野中的光学微操纵

在这种横向暗场照明的方式中，由于散射，颗粒的暗场像与其尺寸和性质有关。对于 Rayleigh 颗粒，散射光很弱，不同大小颗粒的散射光强弱差别很大。在暗场照明下闪烁的光点只能证实溶液中存在颗粒，这种光点通常比自身要大许多，在 CCD 上成像大小只能粗略反映颗粒的尺寸。由于散射光强度与颗粒半径的六次方成正比，若用光电探测器探测散射光强度就可以比较颗粒大小。

在实验中初步调节阱位，我们可以在明场中俘获微米级颗粒，再切换到暗场中观察，通过对比不同大小的颗粒，最后便得到稳定俘获纳米颗粒和宽视场观察所需要的条件。因此有必要了解下单颗粒的光散射特性，定性地区分不同大小的颗粒。

6.3.1 单颗粒的光散射

在溶液中，横向照明激光束截面的尺度比颗粒要大得多，所以入射波可以近似为平面波，又由于微粒间距离很大，因此可以看成是单颗粒对平面波的散射。散射光的空间分布反映颗粒本身的属性，不同大小 Mie 氏颗粒的散射光空间分布就有很大差别，可以通过严格的电磁理论计算。图 6.2 为直径 $3\mu\text{m}$ 和 500nm 的聚苯乙烯 (PS) 小球的光散射分布。对于 $3\mu\text{m}$ 的小球，除了前向散射很强之外，还呈现放射状分布，这些放射状分布代表了这一角度上的光散射强弱，而对于 500nm 的小球的散射光分布缺少这样明显的放射状分布。通过 Mie 散射理论模拟

[46]，理论分布上也确实是大颗粒呈现放射状分布，而小颗粒散射光在不同方位上的差别在逐步缩小，当颗粒小到一定程度，它的光散射分布成像哑铃状，但在垂直方向上通过物镜观察时，他们仅仅呈现为对称的圆形光斑。因此通过散射光分布能定性的区别颗粒大小，可作为后续实验中的判断依据。

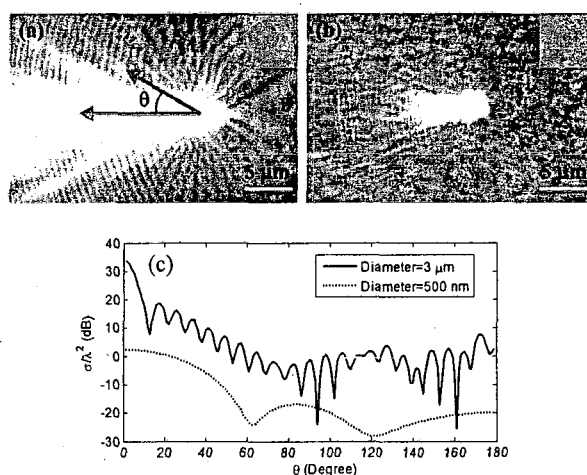


图 6.2 直径 $3\mu\text{m}$ (a)和 500nm (b)的 PS 小球的光散射像和光散射分布(c)。(a)和(b)中右上角为颗粒对应的明场像，长箭头代表照明方向； θ 为观察方位与照明方向的夹角。



图 6.3 酵母细胞的散射光分布。右上角为明场像。

对于生物细胞，他们的光散射非常复杂，如酵母细胞的光散射分布见图 6.3，直径为 $4.4\mu\text{m}$ 。从图中可以看出，酵母的光散射分布与 $3\mu\text{m}$ 的 PS 的光散射分布特性不一样，对称性不如 PS 小球，这说明酵母内部折射率分布不均匀，主要由细胞器引起的。生物细胞光散射探测能反应内部结构的信息，这是传统光散射难以实现的问题。借助于光镊，很容易观测到单颗粒的散射光，如对 A375 细胞^[208]、人淋巴细胞^[200]以及酵母发芽过程^[196]的散射光研究，揭示了细胞难以从显微镜所能观察到的特性。因此借助散射光的对称性等，可以区分颗粒的种类。

6.3.2 纳米颗粒的俘获

对于不同大小的颗粒，它的轴向位置不同。通过比较观察和俘获从大到小颗粒的一系列实验，不断调节光束俘获光源的发散角调节轴向俘获位置，将被俘获

的纳米颗粒调节到成像面上。暗场观察和俘获直径100nm的PS小球（Duke Scientific, 5010A）的情况见图6.4。当我们采用卤素灯照明并关闭横向照明激光时，在明场中无法观察到PS小球。反之，在暗场观察时，显微镜视场中呈现许多亮点。在图6.4中除了颗粒B外，所有亮点的大小几乎一致，因此除了颗粒B外所有的亮点代表了100nm的PS小球。颗粒A在依次三帧图片上的位置并没有明显变化，表示它被He-Ne光阱所束缚后作受限布朗运动。其他无标记的亮点在作无规则的布朗运动，例如颗粒A附近的一个颗粒，从图(a)移动到图(b)，在图(c)中消失，整个过程为一秒之内。由于100nm的PS小球的散射光很弱，当颗粒在纵向位置发生微小变化时，成像上就无法观察，因此在显微镜中呈现为闪烁亮点。

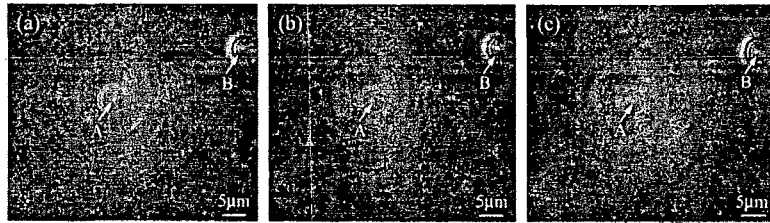


图 6.4 暗场显微中观察直径 100nm 的 PS 小球。图(a)、(b)和(c)为一秒之内依次拍摄的图片，图中颗粒 A 为俘获的 PS 小球，颗粒 B 为杂质。

颗粒 B 的散射环表示它偏离成像面，这与其他小亮点在轴向偏离时成像不一样。并且它的散射光强度远强于其他颗粒，根据 Rayleigh 散射理论，颗粒 B 尺度上要大于颗粒 A。当考虑颗粒 B 在图像的像素上的变化时，我们发现从图(a)到(c)整个一秒之内它只朝左移动了 $0.5\mu\text{m}$ 。因此表明颗粒 B 的布朗运动不如未标记的颗粒运动得那么快，也间接证明了它是个较大的杂质。无论是散射光强还是布朗运动，通过光散射能有效区分不同大小的颗粒。

通过图 6.4 表明横向暗场照明的方法能成功地宽视场观察纳米颗粒，这种方法不同于观察光阱区域的纳米颗粒的方法^[9]。借助这种横向暗场照明的方法，我们还能观察到例如直径 70nm 的 PS 小球（Duke Scientific, 3070A），但散射光很弱。根据第五章的颗粒在光阱中的稳定性分析，在现有俘获激光的功率下，难以稳定俘获这一尺度的颗粒。从图 6.4 可知，我们可以追踪纳米颗粒的轨迹，这样能研究胶粒的布朗运动。

6.4 球差补偿后纳米颗粒的三维操纵

在我们前述实验研究中，在正置显微镜（BX50,Olympus）上，通过配备相

应的高数值孔径物镜聚焦光束形成光镊,可以俘获 100nm 的 PS 小球。结合横向暗场照明的方式,我们能实时和长时间观察成像面上的纳米颗粒。但在俘获和观察更小的颗粒上,在两个方面存在困难:一、对准照明光束中心的困难;二、由于球差影响导致光阱力下降难以俘获更小的颗粒,下面将具体解释这些具体困难的原因。

由于散射光强度与粒径的六次方成正比,因此在观察更小的颗粒时,应该将照明光束最强的中心部位对准纳米颗粒照明。为了获得很好的暗场像,我们希望从聚焦点到玻片的距离越大越好,这样就能容易调节光束中心对准物镜的成像面。然而基于高数值孔径的物镜,光阱只能在有限的距离上俘获颗粒,它称之为俘获深度。俘获深度与激光功率和颗粒大小有关,在我们前述光镊系统中,光阱的俘获深度很小,对于 100nm 的 PS 而言,14mW 的 He-Ne 光束的俘获深度 $<20\mu\text{m}$ 。对于将光束中心对准位于成像面上,这一俘获深度太小,不便于实验调节。并且由于油浸物镜中玻璃-水界面上几何球差的影响^[109, 190],随着俘获深度增大,俘获颗粒的光阱力急剧变小,具体 RO 模型和 EM 模型的理论分析见第三章到第五章,因此稳定俘获纳米颗粒所需的最低功率会迅速增大。这就意味着前述系统中最大俘获力和最低俘获功率都位于玻片表面位置。

对于观察和俘获更小的颗粒,光阱需要增大俘获深度范围,并能在较大的俘获深度上能有效增强光阱力,这样便于对准照明光束,也利于稳定俘获更小的颗粒。就目前我们所知,在光路中球差补偿能实现这一目标。球差补偿的方式有几种,包括变形镜球差补偿^[209]、计算全息的球差补偿^[125]、改变机械筒长^[123-124]和物镜匹配油的折射率^[127]。

6.4.1 球差补偿

对于一个成像的光学系统而言,各种光学元件都是通过系统优化设计,达到消像差的要求,即像差最小。像差包括球差、慧差、像散、场曲和畸变五种单色像差,除了单色像差外还有色差^[210]。在光学显微镜的高倍物镜的设计中,商品化的物镜已经达到消像差,但消像差只能针对特定的成像面设计优化,一般为玻片表面。例如油浸物镜中,在样品池底面成像和深入样品中一定距离成像,他们在成像的点扩散函数上会有差别,这种差别主要来源于球差的影响。由于我们的光学系统大部分光学元件都是基于显微镜部件,因此在考虑像差上主要考虑球差

的影响。

有关玻璃-水界面的球差见图 3.2 和图 4.3。在显微镜成像系统中，除了玻璃-水界面的球差外，还有其他位置也会产生球差，如机械筒长的不匹配，物镜油折射率不匹配，因此整个系统的球差可表示为^[127]

$$SA_{total} = SA_{obj} + SA_{o/g} + SA_{g/w} + SA_{conj}。 \quad (6.1)$$

其中， SA_{obj} 为物镜中各光学镜片对应的球差， $SA_{o/g}$ 和 $SA_{g/w}$ 分别为玻璃-物镜油和玻璃-水折射率不匹配导致的球差， SA_{conj} 为共轭距变化引起球差对应的相位。在这些球差因素中，一般来说我们可以选取与玻璃折射率匹配的物镜油（如香柏油）减小 $SA_{o/g}$ ，在规定的机械筒长上设计光镊的光路减小 SA_{conj} ，因此在使用消像差物镜的过程中，光学系统总的球差主要来源于 $SA_{g/w}$ 。对于玻璃-水界面折射率失配引起的球差具体对应的相位表示见公式(4.17a)，俘获深度增大，球差增大，导致聚焦光斑纵向拉长。

如果我们能从其他减小球差的方面去补偿玻璃-水界面折射率失配导致的球差，那么就有可能在较大深度上实现对聚焦光束减小球差，使得聚焦光斑变形最小。通过购置不同折射率的物镜油，实现与玻璃折射率失配达到球差补偿。若增强不同俘获深度上的光阱力，则需要购置一系列的物镜油。当然还可以购买空间光调制器，通过相位调制，在外光路中引入球差去补偿玻璃-水折射率失配的球差。最为简单的方式，就是通过改变机械筒长的方式，即不按成像光路中要求的机械筒长去设计光路，能实现在某一俘获深度上补偿球差。

6.4.2 临界俘获功率

实验装置的设计方案与前述装置类似，包含球差的实验示意图见图 6.5，我们选取调节机械筒长方式补偿球差，增强特定俘获深度上的光阱的光阱力。系统主要以正置显微镜（BX50）为基础搭建光镊，将 Olympus 的无限远物镜更换为有限远修正的江南显微镜厂的物镜（Oil 100，NA 1.25，机械筒长 160mm）。根据第五章分析，俘获更小的纳米颗粒需要功率更高的激光，将 He-Ne 激光替换为波长 784nm 的半导体激光器（最大输出功率为 120mW，Thorlabs）。同时也将照明光路中的绿色激光更换成为输出功率 500mW 的 532nm 的激光（镭宝光电技术有限公司，北京）。绿色激光束通过柱透镜聚焦后，水平通过透明的样品池壁照明物镜的成像面，颗粒的散射光通过成像后呈现闪烁的亮点，可以通过 CCD

探测器实时记录颗粒的布朗运动（敏通 1881，25 帧每秒）。

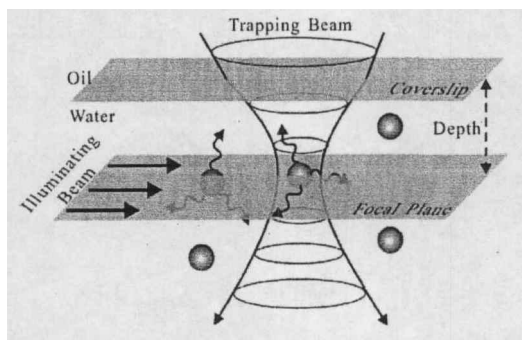


图 6.5 球差影响下暗场照明光镊示意图。

一般而言，经过扩束后的俘获光束进入机械筒长匹配的物镜聚焦，例如对于无限远修正的物镜，扩束后的光束平行进入物镜。对于有限远修正的物镜，若光束平行进入物镜聚焦，由于机械筒长不匹配会导致几何球差，而这些光线再经过玻璃-水界面折射率失配引起的球差，在特定的俘获深度上，两种球差在某种程度上相互补偿，因而也就增强了相应的俘获力。具体有关调节机械筒长补偿球差的细节，参考钟敏成的博士论文。

根据第五章的分析，为了稳定俘获 Rayleigh 颗粒，光阱的势能应该足以克服颗粒的热运动，即颗粒的位置概率

$$\exp(-U(0)/k_b T) \ll 1, \quad (6.2)$$

其中势能 $U(0) \propto |\mathbf{E}|^2$ ，而物镜焦点处的 $|\mathbf{E}|^2$ 正比于激光功率。对于油浸物镜，由于玻璃-水界面球差的影响，聚焦光斑会拉长，并且随着俘获深度增大时， $|\mathbf{E}|^2$ 逐渐减弱，相应地，光阱俘获所需的最低激光功率在增大，因此最佳俘获深度在玻片表面。对于我们球差补偿的光镊系统，通过改变机械筒长的方式只能实现对特定的俘获深度上的球差补偿，因而实际最佳的俘获深度需要通过实验来测量。为了获得我们系统的合适的俘获深度，我们在不同俘获深度上测量了稳定俘获纳米颗粒的最低激光功率，我们将它称之为临界俘获功率。光阱能够稳定俘获颗粒的判断标准为纳米颗粒在光阱中至少稳定俘获 5 秒，并逐渐调低激光功率，直至光阱无法稳定束缚纳米颗粒而逃逸光阱。那么最佳的俘获深度对应于临界功率最小的俘获深度。

我们系统中俘获纳米颗粒的俘获深度与临界功率关系见图 6.6。样品为 100nm 的 PS 小球，每次测量的步长为 $5\mu\text{m}$ ，临界功率为物镜后瞳处的激光功率。

随着俘获深度的增加,在 $35\ \mu\text{m}$ 之前临界功率迅速降低,而在 $55\ \mu\text{m}$ 之后迅速增大。这条曲线的趋势与以往俘获纳米颗粒的理论研究报告^[190]完全不同。在 $35\ \mu\text{m}\sim 55\ \mu\text{m}$ 的区间中,临界功率相差不大,并且最小临界功率出现在 $40\ \mu\text{m}$ 处,也就意味着它为最佳俘获深度,临界功率约为 $\sim 32\text{mW}$ 。在每次测量这种趋势中,最佳俘获深度略有差异。导致这种差异的原因有机械平台的回程误差,还有热运动的概率判断标准对不同颗粒也会出现差异。在我们的光镊系统上,有效的俘获深度超过 $90\ \mu\text{m}$,在那里的临界功率为 49.7mW ,也就意味着在相同功率下更难俘获更小的颗粒。若不采用球差补偿的光镊系统,有效俘获深度一般不超过 $50\ \mu\text{m}$,远小于前述测量值。因此球差补偿能增大光阱的有效俘获深度,并能在特定的较大俘获深度处增强俘获纳米颗粒的光阱力。

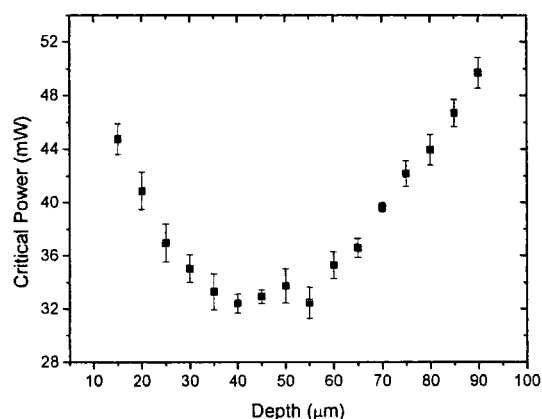


图 6.6 在球差补偿的光阱中俘获纳米颗粒的临界俘获功率与俘获深度的关系。

6.4.3 暗场中三维操纵纳米颗粒

通过第五章的图 5.10 分析,稳定俘获纳米颗粒的激光功率随着粒径减小而迅速增加。为了在相同功率下俘获更小的颗粒,我们应该将光阱调节到最低临界功率所对应的俘获深度上。在图 6.6,在 $35\ \mu\text{m}\sim 55\ \mu\text{m}$ 的区间中,临界俘获功率差异小,这一区间适合光镊操纵更小的颗粒。为了调节照明光束观察纳米颗粒的方便,我们期望俘获深度越大越好。综合考虑这两种因素,我们在下面的实验中选在 $55\ \mu\text{m}$ 处观察和操纵更小的纳米颗粒。

图 6.7 为横向操纵直径 70nm 的 PS 小球 (Duke Scientific, 3070A)。颗粒 A 被光阱俘获,颗粒 B 和图中其他未标记的颗粒作自由运动。调节机械平台,样品池和颗粒 B 同步运动,但颗粒 A 被光阱俘获在原位不动。从图(a)到(c),能清楚地观察整个操纵颗粒横向运动过程。在这个过程中,照明光束调节到 45mW ,

俘获光束调节到 76mW。

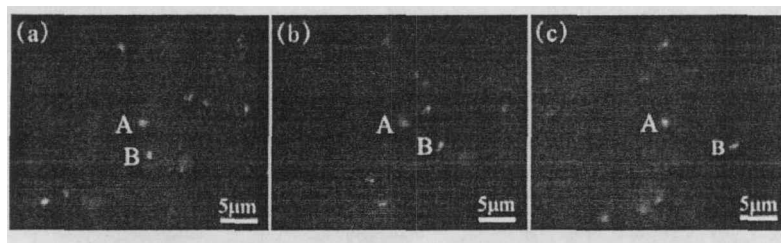


图 6.7 观察横向操纵纳米颗粒。颗粒 A 在光阱中，光阱外的颗粒 B 随着样品池横向移动从(a)移动到(c)。

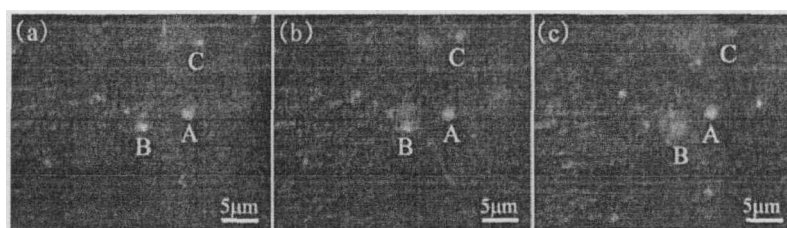


图 6.8 观察轴向操纵纳米颗粒。颗粒 A 在光阱中，光阱外颗粒 B 和 C 随着平台上升而从(a)上升到(c)。

当纳米颗粒轴向偏离成像面很小位移时，它的散射光强度会迅速衰减。由于剧烈的布朗运动，这些未标记亮点在轴向位移上发生变化出现闪烁。即使对于被俘获的颗粒 A，由于受限布朗运动导致很小的轴向偏离，使得颗粒 A 的散射光强也有变化。尽管在图 6.7 中的亮点能被区分，但 45mW 照明光束不能观察轴向运动时颗粒的散射光变化。为了提高散射光强度，我们将照明光束调节到 100mW，这些亮点变得更亮，当颗粒在轴向移动一定范围时，能清楚地观察到这些颗粒。

图 6.8 为轴向操纵 70nm 的 PS 小球。颗粒 A 被光阱所俘获，其他颗粒位于光阱之外作自由布朗运动。调节平台上升带动样品池上升时，未被俘获的颗粒随着样品池一起作定向移动。在这个移动中，我们能清楚地观察到颗粒 A 被俘获在原位，颗粒 B 和 C 相对于颗粒 A 从(a) 移动到(c)。由于颗粒偏离成像面，颗粒 B 和 C 的亮点逐渐变得模糊，直到消失。

为了区分颗粒，暗背景和颗粒亮点之间的高对比度是非常重要的。我们期望背景越黑越好，为了降低杂散光的影响，照明光束的功率越低越好。然而在低功率照明下，颗粒的散射光强就会减弱。因此为获得合适的像，照明光束的选取需要达到平衡要求。很明显在图 6.8 中背景要比图 6.7 要亮，主要原因是功率增大

后杂散光增强。为了获得好的暗场像，在 CCD 探测器前加入灰度衰减片降低杂散光背景，同时也将颗粒的散射光也减弱。随着激光功率的增强，散射光比杂散光增强更明显，所以选择合适的衰减片，可以衰减在 CCD 上达到饱和的杂散光，实现清晰的观察效果。在我们三维操纵纳米颗粒的实验中，灰度衰减片比例达到 89%。

在图 6.7 和图 6.8 中，亮点比颗粒自身要大许多，光斑大小与照明激光功率有关。即使减小功率，可观察的亮点也是衍射极限。对于清晰区分单颗粒的暗场像，我们目前的实验方法还不能适用于高浓度的颗粒悬浮液。对于 70nm 的 PS 小球，质量百分比上限为百万分之二(2 ppm)。由于剧烈的布朗运动，颗粒作快速无规则的运动，在我们现有每秒 25 帧的 CCD 探测器观察时，PS 小球出现拖影。若观察更小的颗粒，CCD 探测器的速度需要提高。

6.5 多纳米颗粒俘获

当光镊操纵的纳米颗粒尺度远小于俘获激光的波长时，光阱中能俘获许多纳米颗粒进行组装，这种组装方式称之为光学组装 (Optical Assembly)。Holfkens^[211-212]报道过利用近红外激光光束的光热效应实现对大分子的光学组装，在光阱力作用下，大分子聚集在光阱中并组装成大颗粒，在光阱中俘获的颗粒随着时间推移，颗粒会逐渐长大。颗粒间弱的相互作用与热运动能量差不多，这种相互作用使得胶体组装非常灵活，因此很容易通过温度、浓度和 PH 值的调节来改变组装的结构。但是这种灵活的组装结构易碎，使得微米和纳米制作这种结构比较困难。许多研究者试图通过各种方式进行胶体组装，尽管自组织的方式是最有前景的组装方式，但无法获得任意结构。而通过光学俘获，可以获得可控的组装方式，如大阪大学小组利用光学俘获，研究聚合物纳米颗粒^[84]和金属纳米颗粒^[66]的组装动力学过程，揭示了俘获纳米颗粒和形成团簇是同时进行^[65]，并且团簇使光阱中心产生更大的聚集体。

鉴于俘获多纳米颗粒有非常重要的作用，我们在目前设备上作了一些尝试性实验。由于我们前述暗场照明光镊设备只具备俘获和宽视场观察，还没有整合高精度的四象限探测器收集光阱中的散射光，在这里我们只粗略对比光阱开/关状态下多纳米颗粒的暗场像，见图 6.9，颗粒为 100nm 的 PS 小球，俘获激光波长为 780nm。当光阱打开时，多个纳米颗粒被俘获，他们的暗场像呈现为一个大光

斑, 见图(a)箭头所指。当光阱关闭时, 纳米颗粒间由于相互排斥和布朗运动等因素相互分离, 见图(b)箭头所指。因为在轴向方向远离时难以观察, 光阱中纳米颗粒的数目不少于3个, 精确测量纳米颗粒的个数需要借助光电探测器探测散射光强。我们在另一套光镊系统——纳米光镊系统上测量了背散射光区分光阱中纳米颗粒的数目^[213], 在较少颗粒数目下, 纳米颗粒的散射光强与颗粒数之间为台阶状分布。

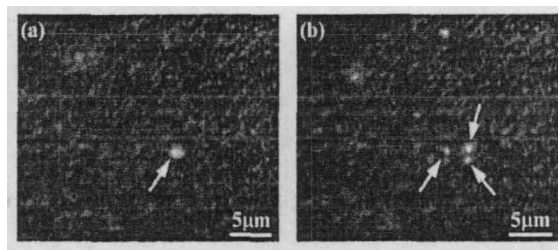


图 6.9 光阱开(a)/关(b)状态的多纳米颗粒暗场像。

当光阱中纳米颗粒较多时, 这些纳米颗粒之间处于非接触的状态, 由于光阱力的作用将他们束缚在有限区间, 当他们之间相互作用力和光阱力之间达到动态平衡形成一定的微结构时, 也就成为纳米颗粒的团簇。目前我们的暗场成像还无法直观演示团簇的形成。只能显示纳米颗粒逃逸光阱中心是否结合, 有关光阱操纵纳米颗粒团簇需要进一步改进我们的设备。

6.6 小结

这一章提出横向暗场照明光镊, 实现对纳米颗粒的宽视场、长时间和实时动态观察, 并通过球差补偿的方式增强光阱在特定俘获深度上的光阱力, 方便了观察和俘获纳米颗粒, 适合光镊去主动操纵目标颗粒。在暗场照明光镊中三维操纵纳米颗粒, 使光镊在单个颗粒层次上微观研究胶体从微米/亚微米尺度延伸到纳米尺度。在实际应用中, 整个系统需要达到操作方便, 能主动俘获目标颗粒, 并能区别不同颗粒, 并能对颗粒进行精确定位, 目前设备还有待进一步整合。

这种横向激光照明方式不仅仅能实现暗场观察, 同时还可自由切换到明场观察。除了能观察未标记的纳米颗粒, 还可以观察发射荧光的颗粒。此外, 光散射图案体现了颗粒性质的一些信息, 利用光镊非接触的操纵液相中的颗粒, 结合横向激光照明还有利于研究单个颗粒/细胞的光散射特性。

第7章 自相关函数法标定纳米颗粒的光阱刚度

光阱刚度——光阱力与微粒偏离光阱位移的线性比例系数，是光镊的一个重要参数。光阱刚度依赖光镊设备的各项参数（如功率、激光波长、物镜的数值孔径等）和样品尺寸，在光镊的应用中必须通过实验标定。纳米颗粒在光阱中刚度很小，容易受到外界环境因素的影响，常用的流体力学法并不适用于对纳米颗粒的光阱刚度的测量。并且纳米颗粒很小时，散射光很弱，利用背散射探测时，采集的信号比较弱，故系统的信噪会比较低，因此需要选取合适的刚度标定方法。

这一章围绕如何在探测信号较弱的光镊设备上标定光阱刚度。这一章主要讨论自相关函数与功率谱的联系，并就系统采集带宽和外界噪声的影响上从理论和实验上对比两者的区别。由于标定刚度在光镊应用中是一个普遍的问题，为了实验验证的方便，我们主要以微米级颗粒为例，然后在低信噪比情形下标定纳米颗粒的光阱刚度。

7.1 标定光阱刚度的方法

常用标定光阱刚度的方法有流体力学法、功率谱法、外加周期力驱动法、均方位移法和Boltzmann统计法^[36, 214]，这些方法各有优缺点^[36, 215]，结合实际需要选取不同的标定方法。流体力学法和外加周期驱动力法都是以光阱力与液体粘滞力平衡为基础的。使用流体力学法时，我们所需要的是在微粒处于平衡态时的准确的平衡位置，一般借助图像软件分析实验录像，此方法直观易行但费时。外加周期力法是测量周期正弦驱动力信号与颗粒受到周期力所作的周期运动的相位差，不需要标定位移，但此方法适用的粒径一般在 $0.5\sim 3\mu\text{m}$ ，测量也比较费时。热运动方法中有均方位移法和Boltzmann法，两者都需要测量颗粒在光阱中的位移，而实际位移信号的获取受到系统采集带宽影响^[216]。功率谱方法是将测量到的时间信号进行功率谱分析，从频率域中通过洛仑兹拟合到特征频率，从而得到光阱刚度。借助于高精度的四象限探测器，颗粒位移与测量的电压信号成正比，没有标定的电压位移信号的功率谱与标定后的结果仅仅是幅值上不同，曲线特性并没有变化。这种不标定位移就能快速标定光阱刚度的方法，广泛应用于光镊测量力学量的实验中。

前述各种方法中除功率谱法外，不是需要位移标定就是测量费时，难以实现实时测量和原位测量。功率谱方法除了需要较宽的采集带宽外，还会受到系统的

噪声的影响。除了设计系统时降低电子噪声和采用防震措施隔离环境噪声影响外,可以在频率域中屏蔽一些偏离较大的数据点和平滑处理^[217-218],提高半导体探测器对近红外光的探测带宽^[219],结合正弦振动方式的功率谱分析^[39]等方法都能提高测量精度。在光镊设计中,俘获光也同时作为探测光,采用背散射探测方式,这种方式系统结构比前向探测要简单,但得到的信号强度远不如前向探测强,因此信噪比要低于前向探测方式。

尽管采取一些系统设计不断减小噪声影响和数据处理等措施能提高功率谱方法的精度,但很难消除外界环境的低频振动和电子电路噪声等影响,因此功率谱方法标定光阱刚度与系统的不同噪声水平密切相关。对于实时原位测量而言,若从信号的时域特性出发,从复杂信号中准确提炼在光阱中的颗粒与溶液的相互作用,会一定程度上降低这些因素的影响。

由于信号的自相关函数(Autocorrelation Function, ACF)与功率谱实际上就是对同一时域信号的不同处理方式,他们之间存在傅立叶变换关系。既然功率谱方式受到噪声影响和系统采集带宽的影响,那么自相关函数与它们的联系又是如何,目前还没有报道过。

7.2 颗粒的受限布朗运动

处于光阱中的微粒不仅受到光阱力和溶液对颗粒的随机力的作用,还由于运动受到流体对它的粘滞阻力。在光阱中心附近,颗粒受到的光阱力与弹簧的回复力类似,力与位移 x 成线性关系,即 $F=-\kappa x$,比例系数 κ 为光阱刚度。满足线性关系的区域为光阱的线性区。在线性区内,颗粒满足的 Langevin 方程为,

$$m\ddot{x} + \gamma\dot{x} + \kappa x = f(t)。 \quad (7.1)$$

其中 m 为颗粒质量, $\gamma=6\pi\eta r$, r 为颗粒半径, η 为溶液的粘滞系数, $f(t)$ 随时间变化的随机力。随机力满足,

$$\langle f(t) \rangle = 0, \quad (7.2)$$

$$\langle f(t)f(t') \rangle = 2\gamma k_B T \delta(t-t'), \quad (7.3)$$

其中 k_B 为 Boltzmann 常数。在低雷诺数下,这种运动是过阻尼运动,惯性项可以忽略,则公式(7.1)可得到

$$\dot{x} + \frac{x}{\tau_0} = \frac{f(t)}{\gamma}, \quad (7.4)$$

其中, $\tau_0 = \gamma/k = 1/2\pi f_c$ 。

利用傅立叶变换式 $\tilde{x}_k = \int_{-T_{msr}/2}^{T_{msr}/2} e^{-i2\pi f_k t} x(t) dt$, $f_k = k/T_{msr}$, k 为整数, T_{msr} 为测量时间。对此方程两边做傅立叶变换, 信号的功率谱^[32, 217]为

$$P_k = \langle |x_k|^2 / T_{msr} \rangle = \frac{k_B T / 2\pi^2 \gamma}{f_c^2 + f_k^2} \quad (7.5)$$

根据信号的功率谱, 作洛仑兹拟合即可得到 f_c , 也就得到了刚度。当然将低频的功率谱结合粘滞系数, 拟合直线也可得出 f_c , 但这一方法需要先标定位移。若将 $f(t)$ 作为任意驱动函数求解, 则位移为^[220-221]

$$x(t) = x(0)e^{-t/\tau_0} + \int_0^t \frac{1}{\gamma} f(\tau_1) e^{-(t-\tau_1)/\tau_0} d\tau_1 \quad (7.6)$$

由于颗粒运动统计特性为高斯过程, $\langle x(0) \rangle = 0$, 则颗粒的统计平均值为

$$\langle x(t) \rangle = \langle x(0) \rangle e^{-t/\tau_0} + \int_0^t \frac{1}{\gamma} \langle f(\tau_1) \rangle e^{-(t-\tau_1)/\tau_0} d\tau_1 = 0 \quad (7.7)$$

当 $t' > t$ 时刻, 不同时刻位移的相关为

$$\langle x(t)x(t') \rangle = \frac{k_B T \tau_0}{\gamma} [e^{-(t'-t)/\tau_0} - e^{-(t+t')/\tau_0}] \quad (7.8)$$

对于较长时间, 公式(7.8)的第二项相对于第一项而言, 将迅速衰减可以忽略。因此, 对于作受限布朗运动颗粒的位移, 在任意时间间隔 $\tau = t' - t$, 位移的自相关为

$$\langle x(0)x(\tau) \rangle = \langle x(t)x(t+\tau) \rangle = \frac{k_B T}{k} e^{-\tau/\tau_0} \quad (7.9)$$

由(7.9)可以知道, 由位移的自相关的指数衰减的幅度值直接就可以得到刚度, 若信号没有标定, 则幅度值与刚度之间相差常数因子。指数项中时间常数 τ_0 作为特征常数, 包含了光阱刚度、粘滞系数和粒径信息。对于标准小球, 即使没有标定位移, 也能由指数衰减项拟合出特征常数, 便可得到光阱的刚度。

由于外界振动会影响颗粒的布朗运动, 为了简化分析, 我们以样品池平台被环境驱动作单一频率的周期运动,

$$x_d(t) = A \sin(2\pi f_d t), \quad (7.10)$$

液相中颗粒作相对运动 $v_d(t) = dx_d / dt$, 则颗粒运动方程为

$$\gamma(\dot{x}(t) - v_d(t)) + \kappa x = f(t) \quad (7.11)$$

它的解可分为布朗运动项 $x_B(t)$ 和驱动响应项 $x_r(t)$

$$x(t) = x_B(t) + x_r(t) \quad (7.12)$$

上式中 x_T 对应于公式(7.6), 另一项^[39]

$$x_r = \frac{x_d(t-t_0)}{\sqrt{1+(f_c/f_d)^2}} \quad (7.13)$$

其中 $t_0 = (\tan^{-1}(f_c/f_d) - \pi/2)/2\pi f_d$ 。由于布朗运动幅度很小, 外界驱动信号强时表现出最终测量信号为振动的波形, 测量驱动信号和颗粒运动的信号的波形的相移, 则获得了 f_c , 即可获得光阱刚度, 这种测量刚度的方法也被称之为外加周期驱动力法^[36]。

将公式(7.12)表示受外界驱动颗粒的位移作傅立叶变换, 对应的功率谱会在公式(7.5)上多出一个尖峰, 利用这个尖峰的幅值可以原位测量光阱刚度^[39]。若在时域上作自相关, 有

$$g(\tau) = \langle x(0)x(\tau) \rangle = \langle x_B(0)x_B(\tau) \rangle + \langle x_r(0)x_r(\tau) \rangle \quad (7.13)$$

上式中关于布朗运动项 x_B 的结果为公式(7.9), 而后一项为

$$\langle x_r(0)x_r(\tau) \rangle = \frac{A^2/2}{1+(f_c/f_d)^2} \cos(2\pi f_d \tau) \quad (7.14)$$

若外界环境驱动样品作正弦运动, 则他们位移的自相关中会出现余弦振动项。利用公式(7.14)同时也可做原位标定光阱刚度。由于测量系统中不可避免受到环境的影响, 测量到的信号中也就包括了各种振动噪声。

在测量中主要包含环境的低频振动 $\chi(t)$ 和放大电路的电子噪声 $\zeta(t)$, 两种噪声独立无关, 并且与溶液中颗粒运动无关, 则有 $\langle \zeta(t) \rangle = 0$, $\langle \chi(t) \rangle = 0$, $\langle \chi(t)\zeta(t) \rangle = 0$, $\langle \zeta(t)x(t) \rangle = 0$, $\langle \chi(t)x(t) \rangle = 0$ 。此外, 在四象限探测器的调节中, 很难调节到四象限信号绝对对称的位置, 因此测量的位移偏移零点中心 x_c , 颗粒位移的测量信号 $x_m(t) = x_B(t) + \zeta(t) + \chi(t) + x_c$, 他们的自相关为

$$g_m(\tau) = \langle x_m(0)x_m(\tau) \rangle = g_B(\tau) + g_\zeta(\tau) + g_\chi(\tau) + x_c^2 \quad (7.15)$$

其中颗粒布朗运动项 $g_B(\tau) = Ae^{-\tau/\tau_0}$ 。上式中第二项为电子噪声项, 一般电路噪声为高斯白噪声, 在 $\tau > 0$, $g_\zeta(\tau) = \langle \zeta(0)\zeta(\tau) \rangle = 0$ 。低频振动项 $g_\chi(\tau) = \langle \chi(0)\chi(\tau) \rangle$, 在短时间尺度上趋于常数。最后一项为常数项, 源自实验中调节中心对称的差异,

因此对于未标定的信号，最终可以写为，

$$\langle x_m(t)x_m(t+\tau) \rangle = \langle x_m(0)x_m(\tau) \rangle = Ae^{-\tau/\tau_0} + B, \quad (7.16)$$

其中 B 为实验拟合基线，包含低频振动项。

7.3 实验系统

虽然我们的研究低信噪比系统里标定纳米颗粒的光阱刚度，但测量方法是对所有的颗粒都适用。方法上的摸索可以独立于暗场照明光镊系统之外。以下的实验均在我们实验室现有的纳米光镊系统上完成。

整个光镊系统如图 7.1 所示，包括倒置显微镜（Olympus IX 70; 100X 油浸物镜 NA=1.35）、功率为 35mW 的 He-Ne 激光器（Coherent, $\lambda=632.8\text{nm}$ ）、5 倍扩束镜（Coherent）、以及三维压电平台（Physik Instrumente, P517.3CL）、CCD 相机（CoolSNAP cf）和自建的四象限探测系统（Hamamatsu, S1557）。四象限探测器（Quadrant Photodiode Detector, QPD）靶面分为四个部分，见图 7.2。当颗粒在激光散射成像后投影到靶面上，颗粒在中心时则四个靶面信号相等，当颗粒偏离中心后，感光多的靶面则电压信号强。四象限探测器的电压信号通过以下运算规则才能转化为位移信号^[36]，

$$U_z = A + B + C + D, \quad (7.17A)$$

$$U_x = [(A + D) - (B + C)] / U_z, \quad (7.17B)$$

$$U_y = [(A + B) - (C + D)] / U_z. \quad (7.17C)$$

当颗粒偏离光阱中心一定位移，输出的 QPD 电压信号与位移成正比，即横向位移偏移量与 U_x 和 U_y 成正比，见图 7.2(c)，电压与位移的比例系数需要通过实验标定。在透射式前向探测颗粒的散射时， U_z 与纵向位移也成正比^[32, 222]。

当微粒的像投影到 QPD 探测靶面上，QPD 采集的光电压信号一般都很弱，需要通过电路的模拟放大，将放大的信号送入计算机采样输出，详细细节参考陈洪涛^[38]和龚鏊^[36]的博士论文。电路设计中除了使用单电源精密双路运放，对光电流信号进行采样放大，放大电路中隔离一级放大和二级放大，另外还采用了 50Hz 的滤波电路对输出的信号进行滤波（图 7.3^[38]）。有关 50Hz 滤波电路对后续实验的影响见实验分析和讨论部分。

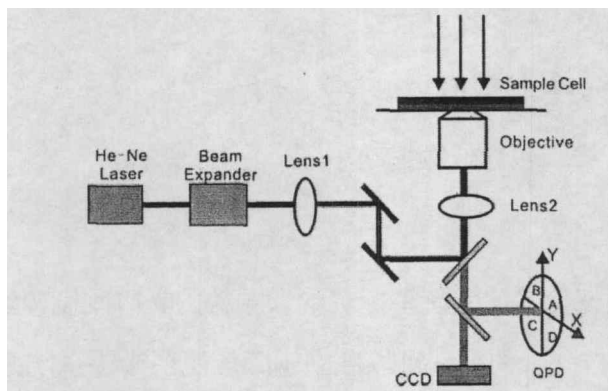


图 7.1 实验装置示意图。

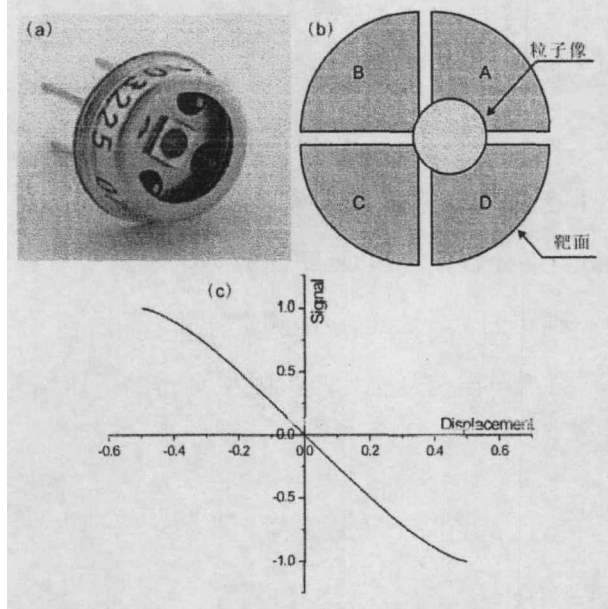


图 7.2 四象限探测器。(a)实物图^[223]；(b)颗粒像偏离靶面中心示意图；(c)对应于(b)图的 QPD 信号输出（靶面直径 1.5mm，小球像直径 0.5mm）。

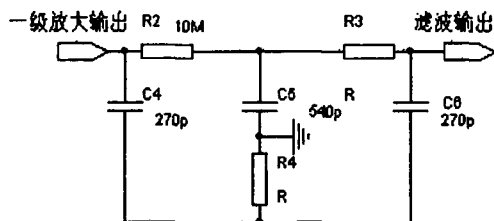


图 7.3 50Hz 滤波电路^[38]。

7.4 实验结果及分析

下面将分析信号的自相关函数与功率谱所对应的情况，以及相互关系和相关影响的因素。对于俘获的纳米颗粒，分析在低信噪比探测时两种方法之间的差异。不特殊说明时，样品为直径 $1\mu\text{m}$ 的 PS 小球（Duke Scientific, 4009A）。

7.4.1 自相关函数

在没有 50Hz 滤波电路时, 通过 QPD 采集到光阱中无微粒、固定微粒和悬浮微粒的位移信号如图 7.4 所示。系统采样频率取 20kHz, 对于光阱中没有微粒的存在 (图(a)), 光斑从玻片底面反射, 输入信号较弱, 标准偏差为 0.95mV, 噪声以电子噪声为主, 同时也包括了激光功率漂移的影响等。对于固定在玻片底面的微粒 (图(b)), 由于颗粒散射, 信号增强, 信号包含了电子噪声与环境振动所引起的位移, 标准偏差为 1.9mV。我们尽量减小这两个方面的噪声, 但难以消除。对于光阱中离底 20 μm 悬浮微粒 (图(c)) 而言, 由于颗粒的布朗运动, QPD 探测的信号比系统噪声要强, 标准偏差达到 10.2mV, 信号同时包含了电子噪声、环境振动和颗粒在光阱中布朗运动的特性。根据信噪比 (Signal-to-Noise Rate, SNR) 的定义, 系统噪声的 SNR 为 5.4 (14.6dB)。根据 CCD 标定的结果, 固定颗粒的标准偏差小于 1.3nm。由于统计平均值都趋于 0, 对位移测量等影响不大。

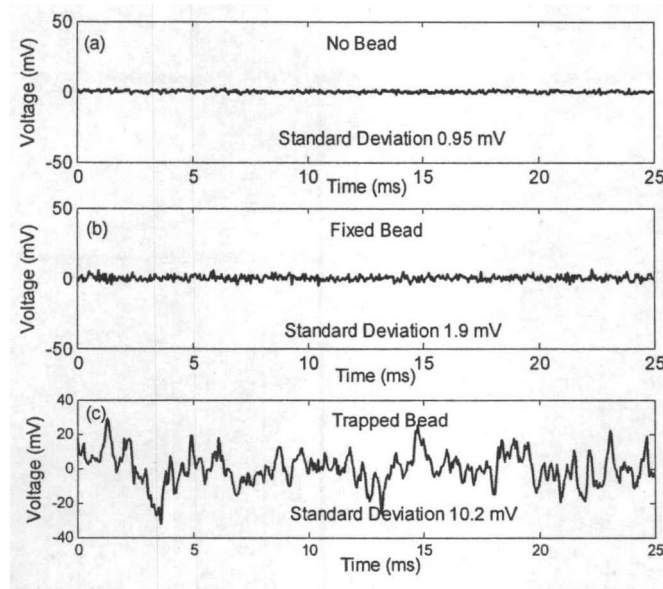


图 7.4 在没有颗粒(a)、底面固定微粒(b)和离底 20 μm 俘获微粒(c)的 QPD 信号。标准偏差为 1s 内的统计值。

对三种情况的位移信号作自相关运算, 通过公式 (7.16) 拟合归一化的自相关函数, 参数见图 7.5。一般而言, 电子系统的噪声为高斯白噪声, 这些噪声信号的自相关的特征时间应当趋于 0。从图(a)可见, 噪声的信号自相关特征时间很短, 低于采样的时间间隔 (0.05ms), 可见噪声对位移自相关测量影响很小。由

于输入信号最弱，偏离中心导致输出的拟合基线最高 ($B=0.306$)。当光阱中有固定颗粒存在时，见图(b)，由于颗粒的背向散射，投射到靶面的信号增强，导致相应的基线降低，相关特征时间仍低于采样时间间隔。第二个数据点低于第三个数据点，可以看出存在低频振动，但幅度很弱。在图(c)中，ACF 曲线产生很明显的指数衰减，自相关特征时间 $\tau_0=0.256\text{ms}$ ，远大于采样时间间隔，对应于颗粒在光阱中的受限布朗运动。在室温25度，根据 $\tau_0=\gamma/\kappa$ ， $1\ \mu\text{m}$ 的 PS 小球在光阱中的刚度 $\kappa=32.9\ \text{pN}/\mu\text{m}$ 。尽管系统受到噪声的影响，但电子噪声和低频噪声对自相关函数影响很小，而且光阱中心并不需要与探测靶面完全重合。

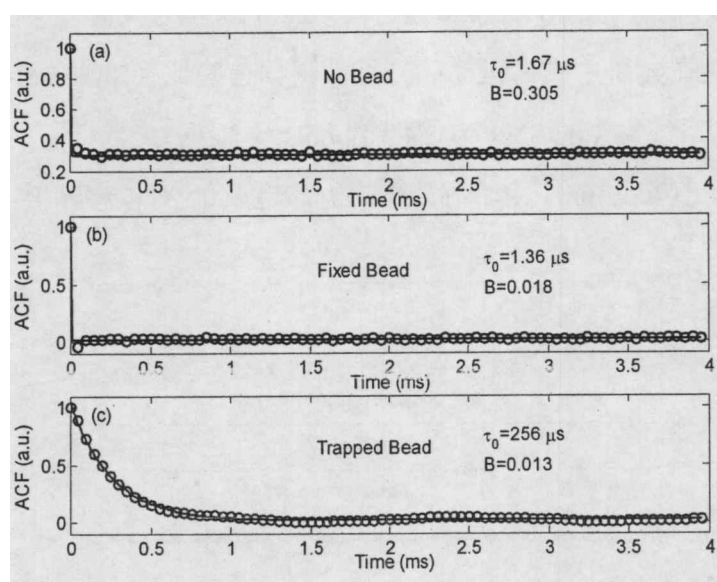


图 7.5 三种情况下信号的归一化的 ACF。

7.4.2 功率谱

作为比较，上述三种信号的功率谱见图 7.6。从图中可知，背景噪声的功率谱在频率较高部分（见图(a)和(b)），对所测布朗运动位移信号的功率谱影响很大，一次测量中若不进行分组平均，在 Origin 中无法直接通过洛仑兹拟合(c)图的功率谱特征频率 f_c 。对测量的信号做背景噪声相减，通过功率谱可以拟合出光阱刚度，如图 7.7 所示。从图中可以看出，拟合存在较大误差。特征频率 $f_c=625\text{Hz}$ 对应的光阱刚度 $33.1\ \text{pN}/\mu\text{m}$ 。这一结果与采用 Tweezercalib 软件包^[218]拟合的结果比较相近 ($f_c=610.8\text{Hz}$)。对比功率谱法和自相关函数标定的光阱刚度，它们的结果很相近。利用功率谱方法拟合刚度还可借助多次测量取平均的方式。可见

在处理数据上，自相关函数的方式要显得方便。

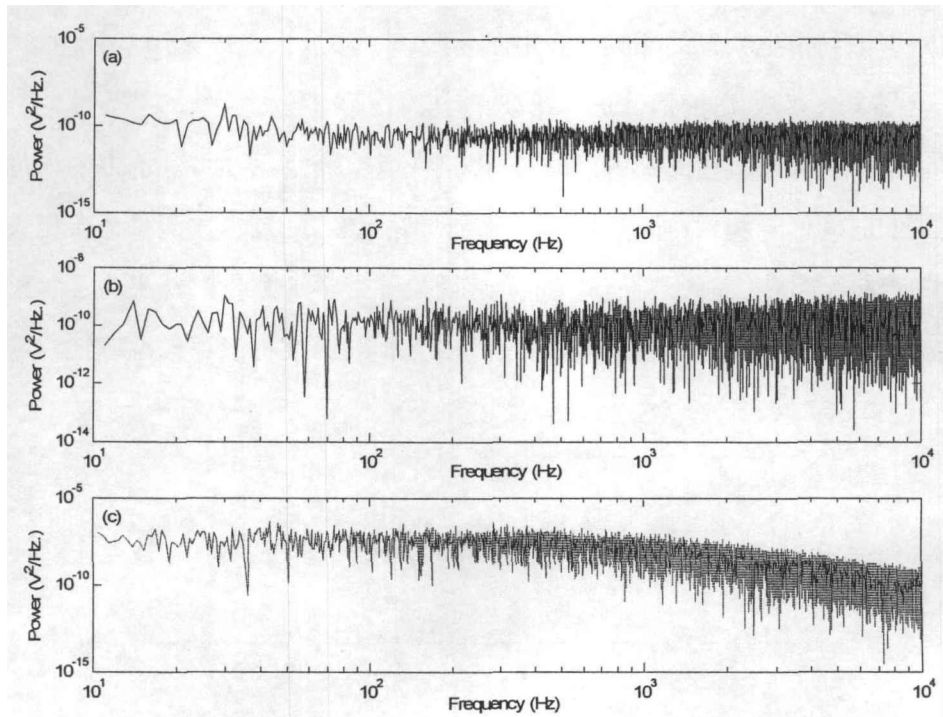


图 7.6 三种信号对应的功率谱。

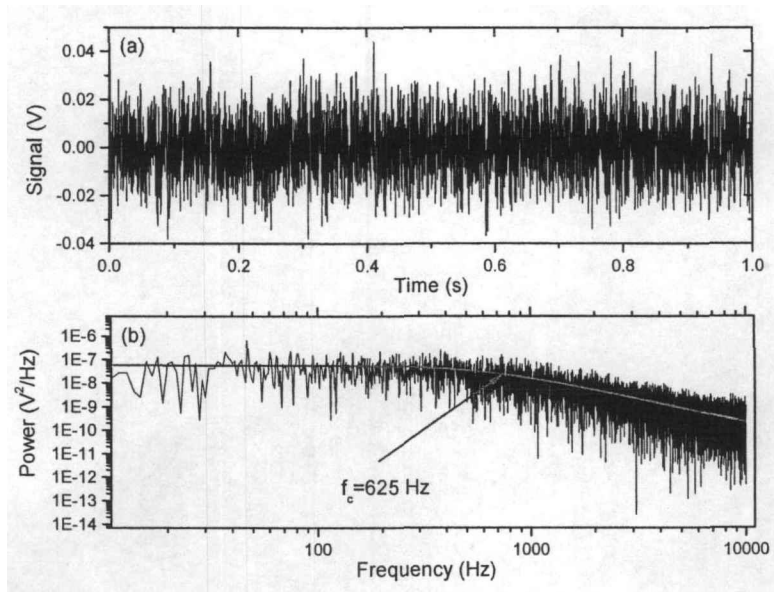


图 7.7 减除背景噪声后的信号(a)及功率谱(b)。

7.4.3 滤波对测量刚度的影响

由于我们探测系统为背散射探测，探测光强较弱，信号一般要经过放大电路来放大信号。在自行设计的电路中，采用相互隔离的二级放大，考虑到信号噪声

的影响,信号采集时都经过滤波处理。下面就滤波对自相关和功率谱的影响进行对比。首先考虑到市电频率的影响,在电路一级和二级放大之间采用50Hz的滤波电路(见图7.3)对输出的信号进行滤波^[36,38]。

采样频率为10KHz,样品仍为 $1\mu\text{m}$ 的PS小球,离底高度为 $15\mu\text{m}$ 左右,单次所采集到的时间信号和相对应的自相关函数见图7.8。经过多次测量,自相关测量所得的光阱刚度在 $33.5\pm 1.5\text{ pN}/\mu\text{m}$,通过流体力学法测量的结果为 $34.4\pm 2.5\text{ pN}/\mu\text{m}$ 。结果表明即使信号在滤波后,利用自相关函数也能比较准确地标定光阱刚度。

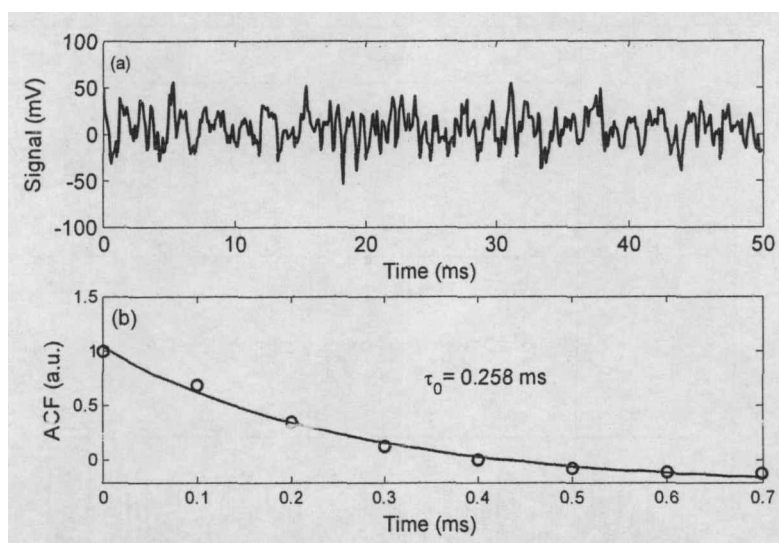


图7.8 经过50Hz滤波的时域信号(a)以及自相关函数(b)。

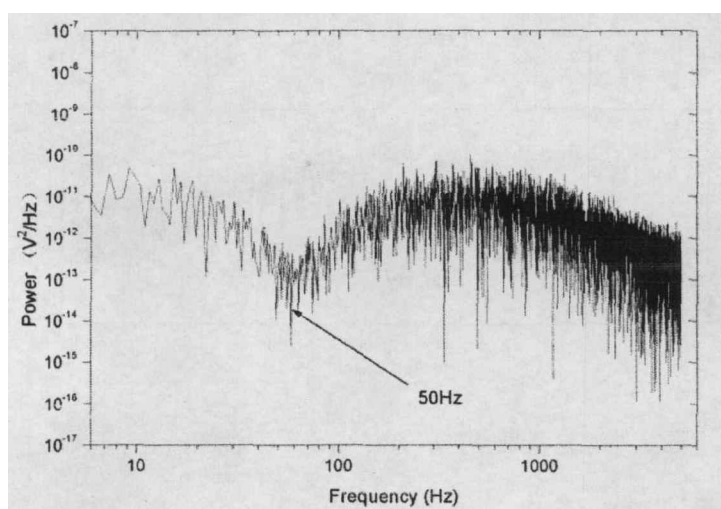


图7.9 经过50Hz滤波电路后信号的功率谱

信号的功率谱在50Hz附近存在一个凹陷,见图7.9(未分组平均),实验上陷波滤波器存在滤波上限和下限,即使分组平均也无法利用洛仑兹函数拟合出特

征频率。若考虑低频和高频分别拟合进行求解特征频率的话，由于频率较高部分的信号幅值实际很小，拟合的误差会相当大。可见我们以往 QPD 系统中的滤波电路对于功率谱测量光阱刚度是有很大影响的，而对自相关函数测量刚度的影响很小。这也就反应出自相关函数测量光阱刚度受到滤波的影响相对功率谱法要小一些。

7.4.4 Wiener-Khinchin 定理

为什么同样的信号在滤波时影响功率谱，而对自相关函数的影响却比较小呢？为此，我们来分析下自相关函数与功率谱密度的关系。对于一时域信号 $x(t)$ ， $-T/2 \leq t \leq T/2$ ，它的频谱和时域信号的关系为

$$\tilde{x}_f = \int_{-T/2}^{T/2} x(t) e^{-i2\pi ft} dt, \quad (7.18A)$$

$$x(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{x}_f e^{i2\pi ft} df. \quad (7.18B)$$

由于 $x(t)$ 是实数，因此 $\tilde{x}(f) = \tilde{x}^*(-f)$ 。时域信号的自相关为

$$x(t+\tau)x(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{x}(f)\tilde{x}^*(f') e^{i2\pi(f-f')t} e^{i2\pi f\tau} df df', \quad (7.19)$$

$$\begin{aligned} g(\tau) &= \langle x(t+\tau)x(t) \rangle_T = \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} x(t+\tau)x(t) dt \\ &= \frac{1}{T} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{x}(f)\tilde{x}^*(f') e^{i2\pi f\tau} df df' \int_{-T/2}^{T/2} e^{i2\pi(f-f')t} dt. \end{aligned} \quad (7.20)$$

其中当 T 很大时，则

$$\lim_{T \rightarrow \infty} \int_{-T/2}^{T/2} e^{i2\pi(f-f')t} dt = \delta(f-f'). \quad (7.21)$$

并且，

$$\lim_{T \rightarrow \infty} \frac{|x_f|^2}{T} = P(f), \quad (7.22)$$

其中 $P(f)$ 为对应信号的功率谱密度。因此，

$$g(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} P(f) e^{i2\pi f\tau} df = 2 \int_0^{\infty} P(f) \cos(2\pi f\tau) df, \quad (7.23)$$

上式也就是 Wiener-Khinchin 定理^[220]，即信号的自相关函数与功率谱密度互为傅立叶变换关系。

将公式(7.5)代入 (7.23)，其中所有常数项用 A 表示，则

$$g(\tau) = A \int_0^{\infty} \frac{1}{f_c^2 + f^2} \cos(2\pi f\tau) df. \quad (7.24)$$

滤波范围 $f_1 < f < f_2$ 时, 对公式(7.24)分段积分为

$$g(\tau) = B_1(\tau, 0, f_1) + B_2(\tau, f_1, f_2) + B_3(\tau, f_2, \infty) \quad (7.25)$$

其中,

$$B(\tau, f_a, f_b) = A \int_{f_a}^{f_b} \frac{1}{f_c^2 + f^2} \cos(2\pi f\tau) df \quad (7.26)$$

对于理想陷波滤波时, 自相关函数少了分段积分的 B_2 项。如果在有限的时间 τ 内, 滤波频率上限都满足 $\cos(2\pi f\tau) \sim 1$, 分段积分中的 B_1 和 B_2 近似为常数, 则 $g(\tau)$ 变化主要依赖 B_3 项。根据前面测量的结果所知, 衰减常数 $\tau_0 < 0.3\text{ms}$, 当 $f < 100\text{Hz}$ 时, $\cos(2\pi f\tau_0) > 0.98$ 。因而在较短自相关时间内, 即使少了 50Hz 滤波的那部分频谱, 与没有滤波的信号对比, 归一化的自相关函数曲线分布趋势没有多少变化, 只是幅值整体上会有差异, 在拟合自相关函数时, 这种固定值的变化完全可以归到实验基线上去。虽然功率谱和自相关函数互为傅立叶变换关系, 但在实际测量系统中总是有一定带宽, 并容易受到噪声影响, 因此实验曲线上它们并不一定就完全能对应起来, 会略有差异。

7.4.5 采样频率对测量的影响

根据奈奎斯特采样频率要求, 采样频率要大于带宽的频率上限的 2 倍。在实际的数字采样系统中, 为了更好的还原信号, 一般采样率都取到传输信号最高频率的 5 倍以上。我们实验室的纳米光镊系统中的 QPD 系统, 电路设计的带宽为 10kHz 。采集卡型号为 AC6115, 四路无相差模式下最大采样频率为 $50\text{kHz}/\text{通道}$, 普通扫描模式时 (通道建立等时间间隔采样), 每通道速度在 400kHz 。自编软件读取数据的采样率最大达到 100kHz 。

在低采样率 f_s 时, 根据奈奎斯特频率要求, 采样的信号相当于经过最高频率为 $f_s/2$ 的低通滤波, 利用功率谱法测量光阱刚度时, 根据洛仑兹线型拟合, 最高频率满足 $f_s/2 \gg f_c$ 。当然采样率尽可能的高, 但拟合所用到的频率范围不能超过带宽的最高频率。在采样率 f_s 所得相邻数据点的最小时间间隔 $\Delta t = 1/f_s$, 在自相关的曲线拟合中, 至少要满足 $\tau_0 \gg \Delta t$, 即需要高采样率。测量中希望等效还原信号, 希望带宽越宽越好, 采样率也越高。而实际测量系统的带宽总是有限, 那么尽可能准确测量所需要的最低采样率与实际系统参数有关。一般来说, 刚度越大, 所需要的采样率更高, 刚度越小, 则需要的采样率较低一些, 如低刚度情形下也可

直接用 CCD 探测位移分析自相关函数和功率谱^[33]。

为了方便阐明这一问题,我们在不同采样频率下多次测量 $1\mu\text{m}$ 的 PS 小球在俘获深度 $20\mu\text{m}$ 的光阱刚度,得到结果见图 7.10。从图中可以看出,自相关测量刚度在低于 15kHz 采样时测量值偏小,出现这一现象的原因为采样时间间隔过大,与拟合的 τ_0 相近,故拟合不够准确。低频采样时,由于许多高频信号被滤除,采用洛仑兹拟合的功率谱的误差会很大。在我们目前的光阱刚度下,很低的采样频率下甚至无法拟合出特征频率 f_c 。在高于 15kHz 后两种方法测量光阱刚度趋于一致,并且光阱刚度也趋于稳定。如 20kHz 时,自相关测量光阱刚度为 $34.09\pm 1.00\text{pN}/\mu\text{m}$ (相对误差 2.9%),功率谱测量光阱刚度为 $35.21\pm 1.34\text{pN}/\mu\text{m}$ (相对误差 3.8%),而采用流体力学法测量的光阱刚度在 $34.11\pm 3.35\text{pN}/\mu\text{m}$ (相对误差 9.8%)。从测量精度上而言,自相关函数拟合出的光阱刚度略高于功率谱法。

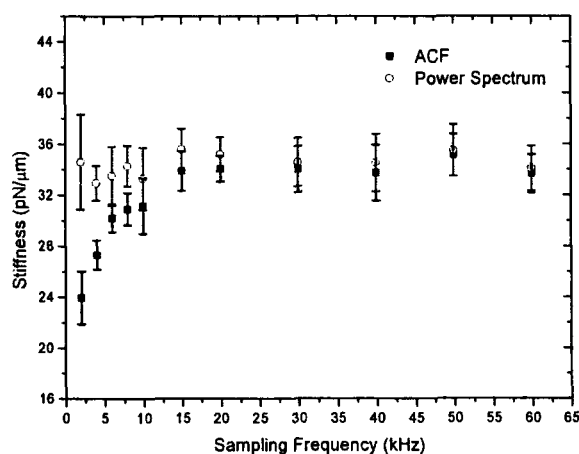


图 7.10 在不同采样率下自相关和功率谱测量光阱刚度

7.4.6 纳米颗粒的刚度

通过标定微米颗粒光阱刚度的理论和实验分析,可知无需位移标定,利用自相关即可测量光阱刚度,从数据处理、滤波影响和标定精度上都优于功率谱方法。由于纳米颗粒的惯性质量小,在溶液中的布朗运动变化快,外界噪声容易会扰乱颗粒的布朗运动,因此选用的测量方法尽可能降低这些因素的影响。为了观察纳米颗粒的方便,我们以直径 500nm 的 PS 小球 (Duke Scientific, 3500A) 为例,研究在环境因素的影响下,自相关函数和功率谱法测量结果的差异。以下的实验中,颗粒处于俘获深度 $10\mu\text{m}$,信号的采样频率为 20kHz 。

首先我们来比较在纳米颗粒受环境低频振动影响时,自相关函数和功率谱法

测量光阱刚度差异。在实验中，对光学防震平台不充气，则地面的振动就能传导到样品池，引起颗粒相对于样品池的相对运动，对于颗粒的受限布朗运动而言，这些振动为不希望的噪声，一般地面传递的噪声以低频振动为主。图7.11为同一信号在两种方法下的拟合分布。利用自相关函数拟合，低频振动在短时间尺度上，根据公式(7.14)，振动项近似为一常数，拟合曲线和实验曲线符合的比较好，见图(a)。对于同一信号的功率谱密度，拟合出的曲线在高频部分与测量信号有较大偏差。颗粒的布朗运动在低频部分占主导因素，高频部分与系统的电子噪声水平相当，因此拟合曲线主要根据低频部分拟合所得。但地面的低频噪声也同时影响了功率谱信号，因此相当于增大了功率谱的低频信号，使得拟合中 f_c 偏小，即刚度比真实值要低，而在自相关函数拟合中，低频噪声的影响归到了实验基线上。经过十组测量，统计出自相关函数光阱刚度为 $5.78 \pm 0.57 \text{ pN}/\mu\text{m}$ (相对误差 9.9%)，功率谱方法拟合出的光阱刚度 $5.52 \pm 0.88 \text{ pN}/\mu\text{m}$ (相对误差 15.9%)，它们也就反应出两种拟合方法在这种情况下的区别。它们的误差范围反应了纳米颗粒的布朗运动受外界环境噪声影响程度。

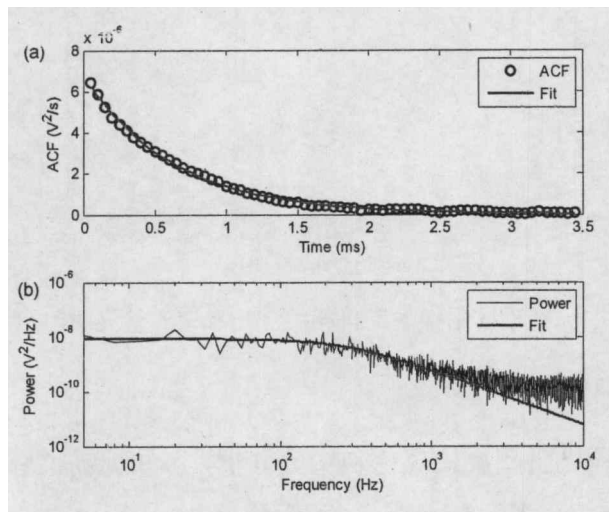


图7.11 利用位移自相关函数(a)和功率谱法(b)测量纳米颗粒的光阱刚度。

为了进一步了解低频振动对刚度测量结果的影响，我们通过压电平台发生正弦振动，使得平台相对于颗粒作正弦运动，振幅 $0.2 \mu\text{m}$ ，频率 10Hz，测量信号的自相关函数和功率谱见图 7.12。为了便于比较低频噪声和引入的正弦振动，我们将自相关函数的时间轴延长到 0.2s，图(a)中自相关函数的曲线并未出现公式(7.14)的正弦振动分布，说明从地面传递过来的振动噪声幅度超过我们引入的正弦振动的幅度。在功率谱图(b)上，曲线也没有出现低频振动所对应的尖峰。由此可见，

引入的振动信号实际淹没在低频噪声中。实验中我们测量五组数据，通过自相关函数拟合刚度为 $5.84 \pm 0.45 \text{ pN}/\mu\text{m}$ (相对误差 7.7%)，功率谱法 $5.34 \pm 0.66 \text{ pN}/\mu\text{m}$ (12.4%)。对比前面测量的结果，引入正弦振动的情形下，自相关函数拟合的刚度增大了 $0.06 \text{ pN}/\mu\text{m}$ ，而功率谱法拟合的刚度降低了 $0.18 \text{ pN}/\mu\text{m}$ 。引入低频振动相当于增大了整个光镊系统的环境噪声，对于自相关函数，在短时间尺度上拟合刚度受到的影响很小，而对于功率谱法，低频振动增大时使得低频拟合权重加大，拟合的 f_c 降低，即刚度。在环境中存在许多类似的低频振动，因此在低信噪比系统上测量光阱的刚度，功率谱法所得结果要比自相关函数的结果要低一些。

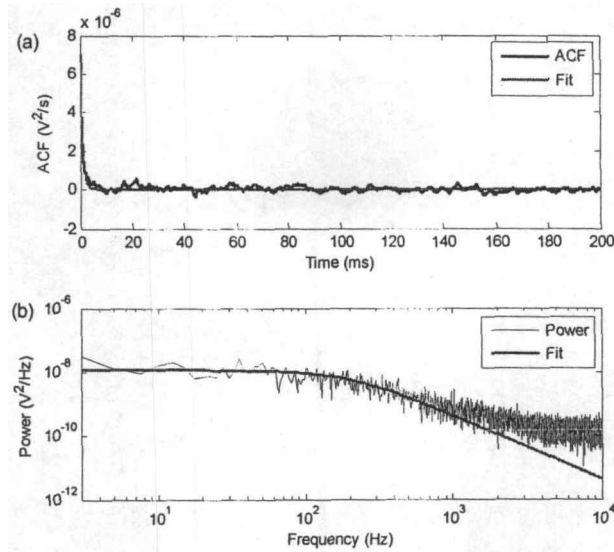


图7.12 平台作低振幅正弦振动运动时纳米颗粒的位移自相关函数(a)和功率谱法(b)测量光阱刚度。 $A=0.2\mu\text{m}$, $f_d=10\text{Hz}$ 。

为了对比这两种方法在存在高频噪声时的差异，我们在作低振幅正弦振动的实验上，加入其他的噪声源，手拿播放器大声播放音乐。实验测量上测量纳米颗粒在光阱中位移信号的自相关函数和功率谱见图7.13。从图(a)可知，自相关函数信号中存在一些高频的振动，曲线不够平坦，但振幅比较小。由于声音中各种频率的信号都有，尤其是增强了中高频信号，所以自相关函数中前几个数据点的权重会增大许多，因此导致拟合中指数衰减的特征时间常数偏小，即光阱刚度增大。从另一角度上来理解，外界噪声扰乱颗粒在光阱中的布朗运动。在功率谱的分布中，中高频信号的幅度相对于低频信号提高了许多，因此在拟合中，中高频的信号的权重加大，拟合的 f_c 增大了许多。通过多次实验测量，自相关函数拟合的刚度 $26.1 \pm 4.08 \text{ pN}/\mu\text{m}$ ，而功率谱法拟合的刚度为 $67.7 \pm 8.02 \text{ pN}/\mu\text{m}$ 。与最初测

量纳米颗粒的刚度相比, 在外界声音噪声的影响下, 两种测量方法都远偏离了初始的刚度, 功率谱法偏离地更远。

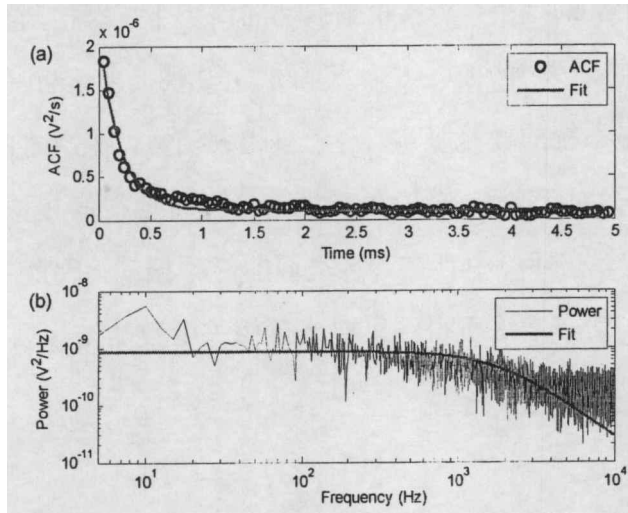


图7.13 在扬声器噪声影响下纳米颗粒的位移自相关函数(a)和功率谱法 (b)。

通过各种引入的噪声比较, 可见自相关函数拟合刚度方法更适合低信噪比下系统。对于光阱中更小的纳米颗粒, 不仅信号弱, 还容易受到外界噪声影响, 背散射探测的信噪比会更弱, 自相关函数更适合测量刚度。对于实际光镊测量系统, 无论是纳米颗粒, 还是微米颗粒, 都会受到各种外界噪声的影响, 因此在实验中应尽可能使用减震平台, 对样品池进行密封和采取一定的隔音措施。

7.5 小结

在微小力学量的测量中, 我们必须标定光阱刚度。选用合适的标定方法, 能有效提高实验的测量精度。虽然自相关函数和功率谱法互为傅立叶变换, 但探测系统在滤波和受到外界噪声影响下, 通过拟合的标定结果会有差异。通过理论和实验分析, 在低信噪比系统和纳米颗粒的测量上, 短时间尺度上利用自相关函数拟合光阱刚度能获得比功率谱法更好的结果。

在生命科学中应用光镊测量力学量时, 我们希望能实时测量出位移和力学量, 也就是能原位和实时标定力谱, 利用自相关函数有望达到这一目标。在光镊中应用自相关函数, 除了能实现快速标定刚度外, 光阱中带电颗粒在电场作用下的布朗运动位移作自相关运算, 还可测量微粒所带的电荷^[224]; 在胶体中, 利用颗粒在速度自相关, 可以测量出颗粒在溶液边界处受到流体逆流和边界效应的影响, 还可测量出各项异性的颗粒扩散特性^[225]。

总结与展望

本论文从 RO 模型提出矢量光线追迹计算方法,它简化了 RO 模型计算复杂情形下光阱对微粒的三维作用力,包括光束偏振态和类球体微粒等情况。本论文还在 EM 模型中提出矢量衍射-矩量法,并研究了高折射率颗粒的辐射力。利用矢量衍射理论,我们分析了在光阱中纳米颗粒的辐射力与光镊参数的关系,并从实验上探索观察和三维操纵纳米颗粒。在研究低信噪比情形下,本论文研究了自相关函数标定颗粒的光阱刚度,表明它适用于标定纳米颗粒的光阱刚度。

从单光束梯度力阱开始,光镊发展到现在的阵列光阱、涡旋光阱以及表面等离子体光镊,光镊技术本身在不断的发展,不断融入新的技术,出现新的现象。径向偏振激光光镊就是其中一例,这一光源构成的光阱对微粒轴向散射力很弱,它能提高光阱的纵向稳定性,适合操纵金属颗粒,但目前缺乏稳定的径向偏振光源。利用表面等离子体操纵微/纳尺度的颗粒,所需要的激光功率很低,在俘获纳米颗粒上非常有优势。发展不同光镊,我们离不开对俘获原理的理解,建立相应的理论模型,有助于我们设计实验和深入分析问题。

自从单光束能三维操纵颗粒以来,光镊技术就成为单分子领域中非常重要的工具,如测量马达蛋白的行走步长、测量 DNA 的弹性和拉伸蛋白质的结构域等,每年在顶级期刊上都会有光镊技术在单分子方面的应用报道。光镊在单分子上的应用非常吸引人,值得我们关注。光镊技术还在其他领域有着重要的应用,如在微流变学领域利用探针颗粒做粘弹性的高频测量;在纳米领域能进行微/纳组装。

在应用中,提高测量精度和改进测量方法都非常重要。在一些单分子测量中,信号很弱,需要不断提高测量精度,减小外界影响的因素。为了达到准确测量,都希望在原位测量信号,并能实时测量力学量的瞬时变化,这对单分子测量非常有帮助。因此理解颗粒在溶液中的布朗运动,将有助于我们提取需要的信息。

光镊技术发展到现在,不断结合其他技术,成为功能越来越强大的工具,应用方面也越来越广。如光镊技术和拉曼光谱的组合,能探测单细胞的拉曼光谱,操纵金属纳米颗粒可以实现表面增强拉曼散射信号。利用光阱俘获的颗粒作探针扫描样品成像,称之为光子力显微镜,目前操纵纳米棒有望成为新一代光子力显微镜的纳米探针。在实际测量中,光镊若能结合超分辨率的荧光显微术,那么有可能在测量力学信息的同时还能观察到研究对象的结构变化。

参考文献

1. D. E. Smith, S. J. Tans, S. B. Smith, S. Grimes, D. L. Anderson, C. Bustamante, "The bacteriophage phi 29 portal motor can package DNA against a large internal force," *Nature*,**413**, 748-752 (2001).
2. H. B. Li, A. F. Oberhauser, S. D. Redick, M. Carrion-Vazquez, H. P. Erickson, J. M. Fernandez, "Multiple conformations of PEVK proteins detected by single-molecule techniques," *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*,**98**, 10682-10686 (2001).
3. H. M. Hertz, "Standing-Wave Acoustic Trap for Nonintrusive Positioning of Microparticles," *Journal of Applied Physics*,**78**, 4845-4849 (1995).
4. N. Ribeck, O. A. Saleh, "Multiplexed single-molecule measurements with magnetic tweezers," *Review of Scientific Instruments*,**79**, 094301 (2008).
5. L. Kremser, D. Blaas, E. Kenndler, "Capillary electrophoresis of biological particles: Viruses, bacteria, and eukaryotic cells," *Electrophoresis*,**25**, 2282-2291 (2004).
6. 周金华, 龚鋈, 李银妹, "光镊与介电泳微操纵技术," *激光生物学报*,**16**, 119-127 (2007).
7. P. R. C. Gascoyne, J. Vykoukal, "Particle separation by dielectrophoresis," *Electrophoresis*,**23**, 1973-1983 (2002).
8. X. H. Zhang, K. Halvorsen, C. Z. Zhang, W. P. Wong, T. A. Springer, "Mechanoenzymatic Cleavage of the Ultralarge Vascular Protein von Willebrand Factor," *Science*,**324**, 1330-1334 (2009).
9. A. Ashkin, J. M. Dziedzic, J. E. Bjorkholm, S. Chu, "Observation of a single-beam gradient force optical trap for dielectric particles " *Optics Letters*,**11**, 288-290 (1986).
10. W. J. Greenleaf, M. T. Woodside, S. M. Block, "High-resolution, single-molecule measurements of biomolecular motion," *Annual Review of Biophysics and Biomolecular Structure*,**36**, 171-190 (2007).
11. P. Y. Chiou, A. T. Ohta, M. C. Wu, "Massively parallel manipulation of single cells and microparticles using optical images," *Nature*,**436**, 370-372 (2005).
12. J. C. Crocker, D. G. Grier, "Microscopic Measurement of the Pair Interaction Potential of Charge-Stabilized Colloid," *Physical Review Letters*,**73**, 352-355 (1994).
13. J. Leach, H. Mushfique, S. Keen, R. Di Leonardo, G. Ruocco, J. M. Cooper, M. J. Padgett, "Comparison of Faxen's correction for a microsphere translating or rotating near a surface," *Physical Review E*,**79**, 026301 (2009).
14. G. Knöner, S. Parkin, T. A. Nieminen, N. R. Heckenberg, H. Rubinsztein-Dunlop, "Measurement of the index of refraction of single microparticles," *Physical Review Letters*,**97**, 4 (2006).
15. H. W. Wang, X. H. Liu, Y. M. Li, B. Han, L. R. Lou, K. J. Wang, "Isolation of a single rice chromosome by optical micromanipulation," *Journal of Optics a-Pure and Applied Optics*,**6**, 89-93 (2004).
16. J. Guck, R. Ananthakrishnan, T. J. Moon, C. C. Cunningham, J. Käs, "Optical deformability of soft biological dielectrics," *Physical Review Letters*,**84**, 5451-5454 (2000).
17. G. V. Shivashankar, G. Stolovitzky, A. Libchaber, "Backscattering from a tethered bead as

- a probe of DNA flexibility," *Applied Physics Letters*, **73**, 291-293 (1998).
18. A. I. Bishop, T. A. Nieminen, N. R. Heckenberg, H. Rubinsztein-Dunlop, "Optical microrheology using rotating laser-trapped particles," *Physical Review Letters*, **92**, 198104 (2004).
 19. P. J. Pauzauskie, A. Radenovic, E. Trepagnier, H. Shroff, P. D. Yang, J. Liphardt, "Optical trapping and integration of semiconductor nanowire assemblies in water," *Nature Materials*, **5**, 97-101 (2006).
 20. F. Svedberg, Z. P. Li, H. X. Xu, M. Kall, "Creating hot nanoparticle pairs for surface-enhanced Raman spectroscopy through optical manipulation," *Nano Letters*, **6**, 2639-2641 (2006).
 21. A. Mukhopadhyay, S. Granick, "Micro- and nanorheology," *Current Opinion in Colloid & Interface Science*, **6**, 423-429 (2001).
 22. M. E. J. Friese, T. A. Nieminen, N. R. Heckenberg, H. Rubinsztein-Dunlop, "Optical alignment and spinning of laser-trapped microscopic particles," *Nature*, **394**, 348-350 (1998).
 23. C. Deufel, S. Forth, C. R. Simmons, S. Dejgosha, M. D. Wang, "Nanofabricated quartz cylinders for angular trapping: DNA supercoiling torque detection," *Nature Methods*, **4**, 223-225 (2007).
 24. S. Parkin, G. Knöner, T. A. Nieminen, N. R. Heckenberg, H. Rubinsztein-Dunlop, "Measurement of the total optical angular momentum transfer in optical tweezers," *Optics Express*, **14**, 6963-6970 (2006).
 25. D. G. Grier, "A revolution in optical manipulation," *Nature*, **424**, 810-816 (2003).
 26. D. L. J. Vossen, M. A. Plaisier, A. van Blaaderen, "Colloidal crystallization induced by optical gradient forces exerted by optical tweezers," *Proc. of SPIE*, **5514**, 755-762 (2004).
 27. D. Maystre, P. Vincent, "Making photonic crystals using trapping and binding optical forces on particles," *Journal of Optics a-Pure and Applied Optics*, **8**, 1059-1066 (2006).
 28. M. D. Mannie, T. J. McConnell, C. G. Xie, Y. Q. Li, "Activation-dependent phases of T cells distinguished by use of optical tweezers and near infrared Raman spectroscopy," *Journal of Immunological Methods*, **297**, 53-60 (2005).
 29. Y. Harada, "Studies on biomolecules using single molecule imaging and manipulation techniques," *Science and Technology of Advanced Materials*, **5**, 709-713 (2004).
 30. Y. X. Liu, M. Yu, "Investigation of inclined dual-fiber optical tweezers for 3D manipulation and force sensing," *Optics Express*, **17**, 13624-13638 (2009).
 31. M. Gu, J. B. Haumonte, Y. Micheau, J. W. M. Chon, X. S. Gan, "Laser trapping and manipulation under focused evanescent wave illumination," *Applied Physics Letters*, **84**, 4236-4238 (2004).
 32. K. C. Neuman, S. M. Block, "Optical trapping," *Review of Scientific Instruments*, **75**, 2787-2809 (2004).
 33. G. M. Gibson, J. Leach, S. Keen, A. J. Wright, M. J. Padgett, "Measuring the accuracy of particle position and force in optical tweezers using high-speed video microscopy," *Optics Express*, **16**, 14561-14570 (2008).
 34. B. Lukić, S. Jeney, Ž. Sviben, A. J. Kulik, E. L. Florin, L. Forró, "Motion of a colloidal particle in an optical trap," *Physical Review E*, **76**, 011112 (2007).
 35. S. B. Smith, Y. J. Cui, C. Bustamante, "Optical-trap force transducer that operates by

- direct measurement of light momentum," *Method Enzymol*,**361**, 134-162 (2003).
36. 龚玺, "光镊技术中微小力学量的测量," (中国科学技术大学, 合肥, 2007).
 37. 龚玺, 陈洪涛, 李银妹, 楼立人, 邱俊, "四种光阱刚度测量法的实验研究与比较," *中国科学技术大学学报*,**35**, 601-607 (2005).
 38. 陈洪涛, "纳米光镊技术研究," (中国科学技术大学, 合肥, 2004).
 39. S. F. Tolić-Nørrelykke, E. Schäffer, J. Howard, F. S. Pavone, F. Jülicher, H. Flyvbjerg, "Calibration of optical tweezers with positional detection in the back focal plane," *Review of Scientific Instruments*,**77**, 103101 (2006).
 40. J. R. Moffitt, Y. R. Chemla, D. Izhaky, C. Bustamante, "Differential detection of dual traps improves the spatial resolution of optical tweezers," *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*,**103**, 9006-9011 (2006).
 41. J. Q. Qin, X. L. Wang, D. Jia, J. Chen, Y. X. Fan, J. P. Ding, H. T. Wang, "FDTD approach to optical forces of tightly focused vector beams on metal particles," *Optics Express*,**17**, 8407-8416 (2009).
 42. Y. Q. Zhao, G. Milne, J. S. Edgar, G. D. M. Jeffries, D. McGloin, D. T. Chiu, "Quantitative force mapping of an optical vortex trap," *Applied Physics Letters*,**92**, 161111 (2008).
 43. T. A. Nieminen, A. B. Stilgoe, V. L. Y. Loke, N. R. Heckenberg, H. Rubinsztein-Dunlop, "The effect of Mie resonances on trapping in optical tweezers: reply," *Optics Express*,**17**, 2661-2662 (2009).
 44. M. L. Povinelli, S. G. Johnson, M. Lončar, M. Ibanescu, E. J. Smythe, F. Capasso, J. D. Joannopoulos, "High-Q enhancement of attractive and repulsive optical forces between coupled whispering-gallery-mode resonators," *Optics Express*,**13**, 8286-8295 (2005).
 45. A. Mazzei, S. Göttinger, L. D. Menezes, V. Sandoghdar, O. Benson, "Optimization of prism coupling to high-Q modes in a microsphere resonator using a near-field probe," *Optics Communications*,**250**, 428-433 (2005).
 46. 鲁述, 徐鹏根, *电磁场边值问题解析方法* (武汉大学出版社, 武汉, 2005).
 47. Y. K. Nahmias, D. J. Odde, "Analysis of radiation forces in laser trapping and laser-guided direct writing applications," *Ieee Journal of Quantum Electronics*,**38**, 131-141 (2002).
 48. D. Bonessi, K. Bonin, T. Walker, "Optical forces on particles of arbitrary shape and size," *Journal of Optics a-Pure and Applied Optics*,**9**, S228-S234 (2007).
 49. A. Ashkin, "Forces of a Single-Beam Gradient Laser Trap on a Dielectric Sphere in the Ray Optics Regime," *Biophysical Journal*,**61**, 569-582 (1992).
 50. K. B. Im, D. Y. Lee, H. I. Kim, C. H. Oh, S. H. Song, P. S. Kim, B. C. Park, "Calculation of optical trapping forces on microspheres in the ray optics regime," *Journal of the Korean Physical Society*,**40**, 930-933 (2002).
 51. E. Aspnes, T. D. Milster, K. Visscher, "Optical force model based on sequential ray tracing," *Applied Optics*,**48**, 1642-1650 (2009).
 52. B. J. Park, E. M. Furst, "Optical Trapping Forces for Colloids at the Oil-Water Interface," *Langmuir*,**24**, 13383-13392 (2008).
 53. S. H. Xu, Y. M. Li, L. R. Lou, "Systematical study of the trapping forces of optical tweezers formed by different types of optical ring beams," *Chinese Physics*,**15**, 1391-1397 (2006).
 54. K. Shima, R. Omori, A. Suzuki, "Forces of a single-beam gradient-force optical trap on

- dielectric spheroidal particles in the geometric-optics regime," *Japanese Journal of Applied Physics* **37**, 6012-6015 (1998).
55. P. B. Bareil, Y. Sheng, Y. Q. Chen, A. Chiou, "Calculation of spherical red blood cell deformation in a dual-beam optical stretcher," *Optics Express*, **15**, 16029-16034 (2007).
 56. K. F. Ren, G. Gréhan, G. Gouesbet, "Prediction of reverse radiation pressure by generalized Lorenz-Mie theory," *Applied Optics*, **35**, 2702-2710 (1996).
 57. M. I. Mishchenko, "Calculation of the amplitude matrix for a nonspherical particle in a fixed orientation," *Applied Optics*, **39**, 1026-1031 (2000).
 58. R. C. Gauthier, "Computation of the optical trapping force using an FDTD based technique," *Optics Express*, **13**, 3707-3718 (2005).
 59. D. A. White, "Numerical modeling of optical gradient traps using the vector finite element method," *Journal of Computational Physics*, **159**, 13-37 (2000).
 60. A. Rohrbach, E. H. K. Stelzer, "Optical trapping of dielectric particles in arbitrary fields," *Journal of the Optical Society of America A*, **18**, 839-853 (2001).
 61. G. Gouesbet, B. Maheu, G. Gréhan, "Light scattering from a sphere arbitrarily located in a Gaussian beam, using a Bromwich formulation," *Journal of the Optical Society of America A*, **5**, 1427-1443 (1988).
 62. H. Polaert, G. Gréhan, G. Gouesbet, "Improved standard beams with application to reverse radiation pressure," *Applied Optics*, **37**, 2435-2440 (1998).
 63. A. Rohrbach, E. H. K. Stelzer, "Trapping forces, force constants, and potential depths for dielectric spheres in the presence of spherical aberrations," *Applied Optics*, **41**, 2494-2507 (2002).
 64. F. Xu, K. F. Ren, G. Gouesbet, X. S. Cai, G. Gréhan, "Theoretical prediction of radiation pressure force exerted on a spheroid by an arbitrarily shaped beam," *Physical Review E*, **75**, 026613 (2007).
 65. C. Hosokawa, H. Yoshikawa, H. Masuhara, "Cluster formation of nanoparticles in an optical trap studied by fluorescence correlation spectroscopy," *Physical Review E*, **72**, 021408 (2005).
 66. H. Yoshikawa, T. Matsui, H. Masuhara, "Reversible assembly of gold nanoparticles confined in an optical microcage," *Physical Review E*, **70**, 061406 (2004).
 67. Y. Harada, T. Asakura, "Radiation forces on a dielectric sphere in the Rayleigh scattering regime," *Optics Communications*, **124**, 529-541 (1996).
 68. P. Zemánek, A. Jonáš, L. Šrámek, M. Liška, "Optical trapping of Rayleigh particles using a Gaussian standing wave," *Optics Communications*, **151**, 273-285 (1998).
 69. L. Novotny, R. X. Bian, X. S. Xie, "Theory of nanometric optical tweezers," *Physical Review Letters*, **79**, 645-648 (1997).
 70. P. C. Chaumet, A. Rahmani, M. Nieto-Vesperinas, "Optical trapping and manipulation of nano-objects with an apertureless probe," *Physical Review Letters*, **88**, 123601 (2002).
 71. T. J. Davis, "Brownian diffusion of nano-particles in optical traps," *Optics Express*, **15**, 2702-2712 (2007).
 72. M. Dienerowitz, M. Mazilu, K. Dholakia, "Optical manipulation of nanoparticles: a review," *Journal of Nanophotonics*, **2**, 021875 (2008).
 73. 章莉娟, 郑忠, *胶体与界面化学* (华南理工大学出版社, 广州, 2006).
 74. 杨玉良, 胡汉杰, *高分子物理* (化学工业出版社, 北京, 2001).

75. P. Cicuti, A. M. Donald, "Microrheology: a review of the method and applications," *Soft Matter*, **3**, 1449-1455 (2007).
76. E. M. Furst, "Applications of laser tweezers in complex fluid rheology," *Current Opinion in Colloid & Interface Science*, **10**, 79-86 (2005).
77. D. T. Chen, E. R. Weeks, J. C. Crocker, M. F. Islam, R. Verma, J. Gruber, A. J. Levine, T. C. Lubensky, A. G. Yodh, "Rheological microscopy: Local mechanical properties from microrheology," *Physical Review Letters*, **90**, 108301 (2003).
78. J. S. H. Lee, P. Panorchan, C. M. Hale, S. B. Khatau, T. P. Kole, Y. Tseng, D. Wirtz, "Ballistic intracellular nanorheology reveals ROCK-hard cytoplasmic stiffening response to fluid flow," *Journal of Cell Science*, **119**, 1760-1768 (2006).
79. S. H. Xu, L. R. Lou, Y. M. Li, Z. W. Sun, "On the aggregation kinetics of two particles trapped in an optical tweezers," *Colloids and Surfaces A*, **255**, 159-163 (2005).
80. Z. W. Sun, S. H. Xu, J. Liu, Y. M. Li, L. R. Lou, J. C. Xie, "Improved procedure on the microscopic approach to determine colloidal stability," *Journal of Chemical Physics*, **122**, 184904 (2005).
81. M. Khan, A. K. Sood, F. L. Deepak, C. N. R. Rao, "Nanorotors using asymmetric inorganic nanorods in an optical trap," *Nanotechnology*, **17**, S287-S290 (2006).
82. S. D. Tan, H. A. Lopez, C. W. Cai, Y. G. Zhang, "Optical trapping of single-walled carbon nanotubes," *Nano Letters*, **4**, 1415-1419 (2004).
83. T. Yu, F. C. Cheong, C. H. Sow, "The manipulation and assembly of CuO nanorods with line optical tweezers," *Nanotechnology*, **15**, 1732-1736 (2004).
84. C. Hosokawa, H. Yoshikawa, H. Masuhara, "Optical assembling dynamics of individual polymer nanospheres investigated by single-particle fluorescence detection," *Physical Review E*, **70**, 061410 (2004).
85. A. Pertsinidis, X. S. Ling, "Equilibrium configurations and energetics of point defects in two-dimensional colloidal crystals," *Physical Review Letters*, **8709**, 098303 (2001).
86. S. Schultz, D. R. Smith, J. J. Mock, D. A. Schultz, "Single-target molecule detection with nonbleaching multicolor optical immunolabels," *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, **97**, 996-1001 (2000).
87. A. Dror-Ehre, H. Mamane, T. Belenkova, G. Markovich, A. Adin, "Silver nanoparticle-E. coli colloidal interaction in water and effect on E-coli survival," *Journal of Colloid and Interface Science*, **339**, 521-526 (2009).
88. F. Svedberg, Z. P. Li, H. X. Xu, M. Käll, "Creating Hot Nanoparticle Pairs For Surface-Enhanced Raman Spectroscopy through Optical Manipulation," *Nano Letters*, **6**, 2639-2641 (2006).
89. M. Gu, D. Morrish, P. C. Ke, "Enhancement of transverse trapping efficiency for a metallic particle using an obstructed laser beam," *Applied Physics Letters*, **77**, 34-36 (2000).
90. 陈冠雄, 周金华, 任煜轩, 李银妹, "操控金属粒子的光镊技术," *激光与光电子学进展*, **46**, 37-43 (2009).
91. K. Svoboda, S. M. Block, "Optical Trapping of Metallic Rayleigh Particles," *Optics Letters*, **19**, 930-932 (1994).
92. J. Prikulis, F. Svedberg, M. Käll, J. Enger, K. Ramser, M. Goksör, D. Hanstorp, "Optical spectroscopy of single trapped metal nanoparticles in solution," *Nano Letters*, **4**, 115-118

- (2004).
93. Q. Zhan, "Trapping metallic Rayleigh particles with radial polarization," *Optics Express*,**12**, 3377-3382 (2004).
 94. M. Dienerowitz, M. Mazilu, P. J. Reece, T. F. Krauss, K. Dholakia, "Optical vortex trap for resonant confinement of metal nanoparticles," *Optics Express*,**16**, 4991-4999 (2008).
 95. P. M. Hansen, V. K. Bhatia, N. Harrit, L. Oddershede, "Expanding the optical trapping range of gold nanoparticles," *Nano Letters*,**5**, 1937-1942 (2005).
 96. K. C. Toussaint, M. Liu, M. Pelton, J. Pesic, M. J. Guffey, P. Guyot-Sionnest, N. F. Scherer, "Plasmon resonance-based optical trapping of single and multiple Au nanoparticles," *Optics Express*,**15**, 12017-12029 (2007).
 97. M. Pelton, M. Z. Liu, H. Y. Kim, G. Smith, P. Guyot-Sionnest, N. E. Scherer, "Optical trapping and alignment of single gold nanorods by using plasmon resonances," *Optics Letters*,**31**, 2075-2077 (2006).
 98. Y. Seol, A. E. Carpenter, T. T. Perkins, "Gold nanoparticles: enhanced optical trapping and sensitivity coupled with significant heating," *Optics Letters*,**31**, 2429-2431 (2006).
 99. C. Selhuber-Unkel, I. Zins, O. Schubert, C. Sönnichsen, L. B. Oddershede, "Quantitative optical trapping of single gold nanorods," *Nano Letters*,**8**, 2998-3003 (2008).
 100. L. Y. Pan, A. Ishikawa, N. Tamai, "Detection of optical trapping of CdTe quantum dots by two-photon-induced luminescence," *Physical Review B*,**75**, 161305(R) (2007).
 101. L. Jauffred, A. C. Richardson, L. B. Oddershede, "Three-Dimensional Optical Control of Individual Quantum Dots," *Nano Letters*,**8**, 3376-3380 (2008).
 102. D. E. Segall, P. C. Nelson, R. Phillips, "Volume-exclusion effects in tethered-particle experiments: Bead size matters," *Physical Review Letters*,**96**, 088306 (2006).
 103. G. Roosen, S. Slanksy, "Influence of the beam divergence on the exerted force on a sphere by a laser beam and required conditions for stable optical levitation," *Optics Communications*,**29**, 341-346 (1979).
 104. R. Gussgard, T. Lindmo, I. Brevik, "Calculation of the Trapping Force in a Strongly Focused Laser-Beam," *Journal of the Optical Society of America B*,**9**, 1922-1930 (1992).
 105. A. Rohrbach, H. Kress, E. H. K. Stelzer, "Reply to comment on "Trapping force, force constant, and potential depths for dielectric spheres in the presence of spherical aberrations"," *Applied Optics*,**43**, 1827-1829 (2004).
 106. A. Rohrbach, "Stiffness of optical traps: Quantitative agreement between experiment and electromagnetic theory," *Physical Review Letters*,**95**, 168102 (2005).
 107. M. Gu, P. C. Ke, X. S. Gan, "Trapping force by a high numerical-aperture microscope objective obeying the sine condition," *Review of Scientific Instruments*,**68**, 3666-3668 (1997).
 108. X. C. Yao, Z. L. Li, H. L. Guo, B. Y. Cheng, X. H. Han, D. Z. Zhang, "Effect of spherical aberration introduced by water solution on trapping force," *Chinese Physics*,**9**, 824-826 (2000).
 109. E. Fällman, O. Axner, "Influence of a glass-water interface on the on-axis trapping of micrometer-sized spherical objects by optical tweezers," *Applied Optics*,**42**, 3915-3926 (2003).
 110. S. H. Xu, Y. M. Li, L. R. Lou, "Axial optical trapping forces on two particles trapped simultaneously by optical tweezers," *Applied Optics*,**44**, 2667-2672 (2005).

111. Z. Gong, Z. Wang, Y. M. Li, L. R. Lou, S. H. Xu, "Axial deviation of an optically trapped particle in trapping force calibration using the drag force method," *Optics Communications*,**273**, 37-42 (2007).
112. S. Kuriakose, X. S. Gan, J. W. M. Chon, M. Gu, "Optical lifting force under focused evanescent wave illumination: A ray optics model," *Journal of Applied Physics*,**97**, 083103 (2005).
113. Y. R. Chang, L. Hsu, S. Chi, "Optical trapping of a spherically symmetric sphere in the ray-optics regime: a model for optical tweezers upon cells," *Applied Optics*,**45**, 3885-3892 (2006).
114. 徐升华, "光镊技术研究微粒碰撞聚集过程和分散体系的稳定性," (中国科学技术大学, 合肥, 2005).
115. J. H. Zhou, H. L. Ren, J. Cai, Y. M. Li, "Ray-tracing methodology: application of spatial analytic geometry in the ray-optic model of optical tweezers," *Applied Optics*,**47**, 6307-6314 (2008).
116. P. B. Bareil, Y. L. Sheng, A. Chiou, "Local stress distribution on the surface of a spherical cell in an optical stretcher," *Optics Express*,**14**, 12503-12509 (2006).
117. G. B. Liao, P. B. Bareil, Y. L. Sheng, A. Chiou, "One-dimensional jumping optical tweezers for optical stretching of bi-concave human red blood cells," *Optics Express*,**16**, 1996-2004 (2008).
118. M. Born, E. Wolf, *Principles of optics: 7th (expanded) edition*, electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light (Cambridge University Press, Cambridge, 1999).
119. S. H. Simpson, S. Hanna, "Optical trapping of spheroidal particles in Gaussian beams," *Journal of the Optical Society of America a-Optics Image Science and Vision*,**24**, 430-443 (2007).
120. T. A. Nieminen, V. L. Y. Loke, A. B. Stilgoe, G. Knoner, A. M. Branczyk, N. R. Heckenberg, H. Rubinsztein-Dunlop, "Optical tweezers computational toolbox," *Journal of Optics a-Pure and Applied Optics*,**9**, S196-S203 (2007).
121. R. N. C. Pfeifer, T. A. Nieminen, N. R. Heckenberg, H. Rubinsztein-Dunlop, "Colloquium: Momentum of an electromagnetic wave in dielectric media," *Reviews of Modern Physics*,**79**, 1197-1216 (2007).
122. P. Török, P. Varga, Z. Laczik, G. R. Booker, "Electromagnetic Diffraction of Light Focused through a Planar Interface between Materials of Mismatched Refractive-Indexes - an Integral-Representation," *Journal of the Optical Society of America A*,**12**, 325-332 (1995).
123. P. C. Ke, M. Gu, "Characterization of trapping force in the presence of spherical aberration," *Journal of Modern Optics*,**45**, 2159-2168 (1998).
124. S. N. S. Reihani, M. A. Charsooghi, H. R. Khalesifard, R. Golestanian, "Efficient in-depth trapping with an oil-immersion objective lens," *Optics Letters*,**31**, 766-768 (2006).
125. Y. Roichman, A. Waldron, E. Gardel, D. G. Grier, "Optical traps with geometric aberrations," *Applied Optics*,**45**, 3425-3429 (2006).
126. K. C. Vermeulen, G. J. L. Wuite, G. J. M. Stienen, C. F. Schmidt, "Optical trap stiffness in the presence and absence of spherical aberrations," *Applied Optics*,**45**, 1812-1819 (2006).
127. S. N. S. Reihani, L. B. Oddershede, "Optimizing immersion media refractive index

- improves optical trapping by compensating spherical aberrations," *Optics Letters*,**32**, 1998-2000 (2007).
128. k. Taguchi, M. Tanaka, M. Ikeda, "Optical Force on a Micro-Sphere by the Laser Beam from a Lensed Optical Fiber Inserted at an Angle," *Optical Review*,**8**, 203-205 (2001).
129. K. F. Ren, G. Grehan, G. Gouesbet, "Prediction of reverse radiation pressure by generalized Lorenz-Mie theory," *Applied Optics*,**35**, 2702-2710 (1996).
130. F. Xu, K. F. Ren, G. Gouesbet, X. S. Cai, G. Grehan, "Theoretical prediction of radiation pressure force exerted on a spheroid by an arbitrarily shaped beam," *Physical Review E*,**75**, 14 (2007).
131. T. A. Nieminen, H. Rubinsztein-Dunlop, N. R. Heckenberg, "Multipole expansion of strongly focussed laser beams," *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*,**79**, 1005-1017 (2003).
132. D. Ganic, X. S. Gan, M. Gu, "Exact radiation trapping force calculation based on vectorial diffraction theory," *Optics Express*,**12**, 2670-2675 (2004).
133. T. A. Nieminen, H. Rubinsztein-Dunlop, N. R. Heckenberg, A. I. Bishop, "Numerical modelling of optical trapping," *Computer Physics Communications*,**142**, 468-471 (2001).
134. S. H. Simpson, S. Hanna, "Numerical calculation of interparticle forces arising in association with holographic assembly," *Journal of the Optical Society of America A*,**23**, 1419-1431 (2006).
135. M. Mansuripur, A. R. Zakharian, J. V. Moloney, "Radiation pressure on a dielectric wedge," *Optics Express*,**13**, 2064-2074 (2005).
136. T. Wriedt, U. Comberg, "Comparison of computational scattering methods," *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*,**60**, 411-423 (1998).
137. A. R. Zakharian, P. Polynkin, M. Mansuripur, J. V. Moloney, "Single-beam trapping of micro-beads in polarized light: Numerical simulations," *Optics Express*,**14**, 3660-3676 (2006).
138. S. M. Barnett, R. Loudon, "On the electromagnetic force on a dielectric medium," *Journal of Physics B*,**39**, S671-S684 (2006).
139. F. Zhou, X. S. Gan, W. D. Xu, F. X. Gan, "Comment on: Computation of the optical trapping force using an FDTD based technique," *Optics Express*,**14**, 12494-12496 (2006).
140. S. H. Simpson, S. Hanna, "Optical trapping of spheroidal particles in Gaussian beams," *Journal of the Optical Society of America A*,**24**, 430-443 (2007).
141. H. Polaert, G. Grehan, G. Gouesbet, "Forces and torques exerted on a multilayered spherical particle by a focused Gaussian beam," *Optics Communications*,**155**, 169-179 (1998).
142. R. Pobre, C. Saloma, "Radiation force on a nonlinear microsphere by a tightly focused Gaussian beam," *Applied Optics*,**41**, 7694-7701 (2002).
143. P. Zemánek, A. Jonáš, P. Ják, J. Ježek, M. Šerý, M. Liška, "Theoretical comparison of optical traps created by standing wave and single beam," *Optics Communications*,**220**, 401-412 (2003).
144. J. A. Lock, "Calculation of the radiation trapping force for laser tweezers by use of generalized Lorenz-Mie theory. II. On-axis trapping force," *Applied Optics*,**43**, 2545-2554 (2004).
145. J. A. Lock, "Calculation of the radiation trapping force for laser tweezers by use of

- generalized Lorenz-Mie theory. I. Localized model description of an on-axis tightly focused laser beam with spherical aberration," *Applied Optics*,**43**, 2532-2544 (2004).
146. T. A. Nieminen, V. L. Y. Loke, A. B. Stilgoe, G. Knöner, A. M. Brańczyk, N. R. Heckenberg, H. Rubinsztein-Dunlop, "Optical tweezers computational toolbox," *Journal of Optics a-Pure and Applied Optics*,**9**, S196-S203 (2007).
147. A. B. Stilgoe, T. A. Nieminen, G. Knöner, N. R. Heckenberg, H. Rubinsztein-Dunlop, "The effect of Mie resonances on trapping in optical tweezers," *Optics Express*,**16**, 15039-15051 (2008).
148. A. Jannasch, V. Bormuth, C. M. van Kats, A. van Blaaderen, J. Howard, E. Schäffer, "Coated microspheres as enhanced probes for optical trapping," *Proc. of SPIE*,**7038**, 70382B (2008).
149. M. I. Mishchenko, L. D. Travis, A. A. Lacis, *Scattering, Absorption, and Emission of Light by Small Particles* (Cambridge University Press, Cambridge, 2002).
150. 葛德彪, 闫玉波, *电磁波时域有限差分方法(第二版)* (西安电子科技大学出版社, 西安, 2005).
151. A. R. Zakharian, M. Mansuripur, J. V. Moloney, "Radiation pressure and the distribution of electromagnetic force in dielectric media," *Optics Express*,**13**, 2321-2336 (2005).
152. Z. H. Liu, C. K. Guo, J. Yang, L. B. Yuan, "Tapered fiber optical tweezers for microscopic particle trapping: fabrication and application," *Optics Express*,**14**, 12510-12516 (2006).
153. 郭硕鸿, *电动力学* (高等教育出版社, 北京, 1997).
154. P. C. Chaumet, "Comment on "Trapping force, force constant, and potential depths for dielectric spheres in the presence of spherical aberrations"," *Applied Optics*,**43**, 1825-1826 (2004).
155. 沈元壤, *非线性光学原理(下)* (科学出版社, 北京, 1987).
156. M. A. Yurkin, A. G. Hoekstra, R. S. Brock, J. Q. Lu, "Systematic comparison of the discrete dipole approximation and the finite difference time domain method for large dielectric scatterers," *Optics Express*,**15**, 17902-17911 (2007).
157. 盛新庆, *计算电磁学要论* (科学出版社, 北京, 2004).
158. 朱秀芹, 耿友林, 吴信宝, "三维各向异性介质目标电磁散射的 MOM-CGM-FFT 方法," *电波科学学报*,**17**, 209-215 (2002).
159. K. S. Youngworth, T. G. Brown, "Focusing of high numerical aperture cylindrical-vector beams," *Optics Express*,**7**, 77-87 (2000).
160. P. Liu, B. Lü, "Phase singularities of the transverse field component of high numerical aperture dark-hollow Gaussian beams in the focal region," *Optics Communications*,**272**, 1-8 (2007).
161. E. Wolf, "Electromagnetic diffraction in optical systems I. An integral representation of the image field," *Proceedings of the Royal Society of London*,**253**, 349-357 (1959).
162. B. Richards, E. Wolf, "Electromagnetic Diffraction in Optical Systems. II. Structure of the Image Field in an Aplanatic System " *Proceedings of the Royal Society of London*,**253**, 358-379 (1959).
163. 张艳丽, 赵逸琼, 詹其文, 李永平, "高数值孔径聚焦三维光链的研究," *物理学报*,**55**, 1253-1258 (2006).
164. P. Török, P. Varga, Z. Laczik, G. R. Booker, "Electromagnetic Diffraction of Light Focused through a Planar Interface between Materials of Mismatched Refractive-Indexes

- an Integral-Representation (errata)," *Journal of the Optical Society of America A*,**12**, 1605-1605 (1995).
165. P. Török, P. Varga, G. R. Booker, "Electromagnetic Diffraction of Light Focused through a Planar Interface between Materials of Mismatched Refractive-Indexes - Structure of the Electromagnetic-Field .1," *Journal of the Optical Society of America A*,**12**, 2136-2144 (1995).
166. P. Török, P. Varga, A. Konkol, G. R. Booker, "Electromagnetic diffraction of light focused through a planar interface between materials of mismatched refractive indices: Structure of the electromagnetic field .2," *Journal of the Optical Society of America A*,**13**, 2232-2238 (1996).
167. P. Liu, B. Lu, "Phase singularities of the transverse field component of high numerical aperture dark-hollow Gaussian beams in the focal region," *Optics Communications*,**272**, 1-8 (2007).
168. C. L. Zhao, L. G. Wang, X. H. Lu, "Radiation forces on a dielectric sphere produced by highly focused hollow Gaussian beams," *Physics Letters A*,**363**, 502-506 (2007).
169. M. A. Yurkin, A. G. Hoekstra, "The discrete dipole approximation: An overview and recent developments," *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*,**106**, 558-589 (2007).
170. B. T. Draine, "The discrete-dipole approximation and its application to interstellar graphite grains," *Astrophysical Journal*,**333**, 848-872 (1988).
171. F. M. Kahnert, "Numerical methods in electromagnetic scattering theory," *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*,**79**, 775-824 (2003).
172. 樊德森, *电磁场数值解法的数理基础* (科大胶印版, 合肥, 2005).
173. G. Recktenwald, 伍卫国译, *数值方法和MATLAB 实现与应用* (机械工业出版社, 北京, 2004).
174. 王长清, *现代计算电磁学基础* (北京大学出版社, 北京, 2005).
175. P. C. Chaumet, M. Nieto-Vesperinas, "Time-averaged total force on a dipolar sphere in an electromagnetic field," *Optics Letters*,**25**, 1065-1067 (2000).
176. F. Merenda, G. Boer, J. Rohner, G. Delacrétaç, R. P. Salathé, "Escape trajectories of single-beam optically trapped micro-particles in a transverse fluid flow," *Optics Express*,**14**, 1685-1699 (2006).
177. C. K. Sun, Y. C. Huang, P. C. Cheng, H. C. Liu, B. L. Lin, "Cell manipulation by use of diamond microparticles as handles of optical tweezers," *Journal of the Optical Society of America B*,**18**, 1483-1489 (2001).
178. A. van der Horst, P. D. J. Oostrum, A. Moroz, A. van Blaaderen, M. Dogterom, "High trapping forces for high-refractive index particles trapped in dynamic arrays of counterpropagating optical tweezers," *Applied Optics*,**47**, 3196-3202 (2008).
179. Y. Arai, R. Yasuda, K. Akashi, Y. Harada, H. Miyata, K. Kinoshita, H. Itoh, "Tying a molecular knot with optical tweezers," *Nature*,**399**, 446-448 (1999).
180. A. D. Mehta, M. Rief, J. A. Spudich, D. A. Smith, R. M. Simmons, "Single-molecule biomechanics with optical methods," *Science*,**283**, 1689-1695 (1999).
181. X. H. Liu, H. W. Wang, Y. M. Li, Y. S. Tang, Y. L. Liu, X. Hu, P. X. Jia, K. Ying, Q. Feng, J. P. Guan, C. Q. Jin, L. Zhang, L. R. Lou, Z. A. Zhou, B. Han, "Preparation of single rice chromosome for construction of a DNA library using a laser microbeam trap," *Journal of*

- Biotechnology, **109**, 217-226 (2004).
182. Y. Nishimura, T. Yoshinari, K. Naruse, T. Yamada, K. Sumi, H. Mitani, T. Higashiyama, T. Kuroiwa, "Active digestion of sperm mitochondrial DNA in single living sperm revealed by optical tweezers," *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, **103**, 1382-1387 (2006).
183. J. C. Crocker, "Measurement of the hydrodynamic corrections to the Brownian motion of two colloidal spheres," *Journal of Chemical Physics*, **106**, 2837-2840 (1997).
184. K. Ajito, K. Torimitsu, "Single nanoparticle trapping using a Raman tweezers microscope," *Applied Spectroscopy*, **56**, 541-544 (2002).
185. F. V. Ignatovich, D. Topham, L. Novotny, "Optical detection of single nanoparticles and viruses," *IEEE Journal on Selected Topics in Quantum Electronics*, **12**, 1292-1299 (2006).
186. E. L. Florin, A. Pralle, J. K. H. Hörber, E. H. K. Stelzer, "Photonic force microscope based on optical tweezers and two-photon excitation for biological applications," *Journal of Structural Biology*, **119**, 202-211 (1997).
187. O. M. Maragò, P. H. Jones, F. Bonaccorso, V. Scardaci, P. G. Gucciardi, A. G. Rozhin, A. C. Ferrari, "Femtonewton Force Sensing with Optically Trapped Nanotubes," *Nano Letters*, **8**, 3211-3216 (2008).
188. J. H. Zhou, L. J. Qu, K. Yao, M. C. Zhong, Y. M. Li, "Observing nanometre scale particles with light scattering for manipulation using optical tweezers," *Chinese Physics Letters*, **25**, 329-331 (2008).
189. P. Zemanek, A. Jonas, L. Sramek, M. Liska, "Optical trapping of Rayleigh particles using a Gaussian standing wave," *Optics Communications*, **151**, 273-285 (1998).
190. X. C. Yao, Z. L. Li, H. L. Guo, B. Y. Cheng, D. Z. Zhang, "Effects of spherical aberration on optical trapping forces for Rayleigh particles," *Chinese Physics Letters*, **18**, 432-434 (2001).
191. L. G. Wang, C. L. Zhao, L. Q. Wang, X. H. Lu, S. Y. Zhu, "Effect of spatial coherence on radiation forces acting on a Rayleigh dielectric sphere," *Optics Letters*, **32**, 1393-1395 (2007).
192. R. Saija, P. Denti, F. Borghese, O. M. Maragò, M. A. Iati, "Optical trapping calculations for metal nanoparticles. Comparison with experimental data for Au and Ag spheres.," *Optics Express*, **17**, 10231-10241 (2009).
193. N. B. Viana, M. S. Rocha, O. N. Mesquita, A. Mazolli, P. A. M. Neto, "Characterization of objective transmittance for optical tweezers," *Applied Optics*, **45**, 4263-4269 (2006).
194. B. H. Meng, J. H. Zhou, M. C. Zhong, Y. M. Li, W. J. G., H. L. Ren, "Improvement of transverse trapping efficiency of optical tweezers," *Chinese Physics Letters*, **25**, 2296-2298 (2008).
195. A. Vial, A. S. Grimault, D. Macías, D. Barchiesi, M. L. de la Chapelle, "Improved analytical fit of gold dispersion: Application to the modeling of extinction spectra with a finite-difference time-domain method," *Physical Review B*, **71**, 085416 (2005).
196. G. Volpe, G. P. Singh, D. Petrov, "Dynamics of a growing cell in an optical trap," *Applied Physics Letters*, **88**, 231106 (2006).
197. M. Ericsson, D. Hanstorp, P. Hagberg, J. Enger, T. Nystrom, "Sorting out bacterial viability with optical tweezers," *Journal of Bacteriology*, **182**, 5551-5555 (2000).
198. S. Manley, J. M. Gillette, G. H. Patterson, H. Shroff, H. F. Hess, E. Betzig, J.

- Lippincott-Schwartz, "High-density mapping of single-molecule trajectories with photoactivated localization microscopy," *Nature Methods*,**5**, 155-157 (2008).
199. V. Jacobsen, P. Stoller, C. Brunner, V. Vogel, V. Sandoghdar, "Interferometric optical detection and tracking of very small gold nanoparticles at a water-glass interface," *Optics Express*,**14**, 405-414 (2006).
200. R. M. P. Doornbos, M. Schaeffer, A. G. Hoekstra, P. M. A. Sloot, B. G. deGroot, J. Greve, "Elastic light-scattering measurements of single biological cells in an optical trap," *Applied Optics*,**35**, 729-734 (1996).
201. Z. Ulanowski, R. S. Greenaway, P. H. Kaye, I. K. Ludlow, "Laser diffractometer for single-particle scattering measurements," *Measurement Science & Technology*,**13**, 292-296 (2002).
202. J. Huisken, J. Swoger, F. Del Bene, J. Wittbrodt, E. H. K. Stelzer, "Optical sectioning deep inside live embryos by selective plane illumination microscopy," *Science*,**305**, 1007-1009 (2004).
203. C. J. Engelbrecht, E. H. K. Stelzer, "Resolution enhancement in a light-sheet-based microscope (SPIM)," *Optics Letters*,**31**, 1477-1479 (2006).
204. J. H. Zhou, R. Z. Tao, Z. B. Hu, M. C. Zhong, Z. Q. Wang, J. Cai, Y. M. Li, "Manipulation of nanoparticles using dark-field-illumination optical tweezers with compensating spherical aberration," *Chinese Physics Letters*,**26**, 068701 (2009).
205. 舍英, 伊力奇, 呼和巴特尔, *现代光学显微镜* (科学出版社, 北京, 1997).
206. G. A. Jamjoom, "Dark-field microscopy for detection of malaria in unstained blood films," *Journal of Clinical Microbiology*,**17**, 717-721 (1983).
207. 陈宗淇, 王光信, 徐桂英, *胶体与界面化学* (高等教育出版社, 北京, 2001).
208. D. Watson, N. Hagen, J. Diver, P. Marchand, M. Chachisvilis, "Elastic light scattering studies from single cells in optical trap," *Proc. of SPIE*,**6326**, 63260Q (2006).
209. T. Ota, T. Sugiura, S. Kawata, M. J. Booth, M. A. A. Neil, R. Juskaitis, T. Wilson, "Enhancement of laser trapping force by spherical aberration correction using a deformable mirror," *Japanese Journal of Applied Physics* **42**, L701-L703 (2003).
210. 郁道银, 谈恒英, *工程光学 (第二版)* (机械工业出版社, 北京, 2006).
211. J. Hofkens, J. Hotta, K. Sasaki, H. Masuhara, K. Iwai, "Molecular assembling by the radiation pressure of a focused laser beam: Poly(N-isopropylacrylamide) in aqueous solution," *Langmuir*,**13**, 414-419 (1997).
212. J. Hofkens, J. Hotta, K. Sasaki, H. Masuhara, T. Taniguchi, T. Miyashita, "Molecular association by the radiation pressure of a focused laser beam: Fluorescence characterization of pyrene-labeled PNIPAM," *Journal of the American Chemical Society*,**119**, 2741-2742 (1997).
213. 钟敏成, 张文静, 周金华, 李银妹, 田来科, 白晋涛, "利用背散光分辨单光镊捕获的纳米粒子个数," *中国激光*,**37**, 398-403 (2010).
214. K. O. Greulich, *Micromanipulation by light in biology and medicine*, The laser microbeam and optical tweezers (Birkhäuser Verlag, Basel, 1999).
215. M. Capitanio, G. Romano, R. Ballerini, M. Giuntini, F. S. Pavone, D. Dunlap, L. Finzi, "Calibration of optical tweezers with differential interference contrast signals," *Review of Scientific Instruments*,**73**, 1687-1696 (2002).
216. Z. Gong, H. T. Chen, S. H. Xu, Y. M. Li, L. R. Lou, "Monte-Carlo simulation of optical

- trap stiffness measurement," *Optics Communications*,**263**, 229-234 (2006).
217. K. Berg-Sørensen, H. Flyvbjerg, "Power spectrum analysis for optical tweezers," *Review of Scientific Instruments*,**75**, 594-612 (2004).
218. P. M. Hansen, I. M. Tolić-Nørrelykke, H. Flyvbjerg, K. Berg-Sørensen, "tweezercalib 2.1: Faster version of MatLab package for precise calibration of optical tweezers," *Computer Physics Communications*,**175**, 572-573 (2006).
219. K. Berg-Sørensen, E. J. G. Peterman, T. Weber, C. F. Schmidt, H. Flyvbjerg, "Power spectrum analysis for optical tweezers. II: Laser wavelength dependence of parasitic filtering, and how to achieve high bandwidth," *Review of Scientific Instruments*,**77**, 063106 (2006).
220. R. M. Mazo, *Brownian motion: fluctuations, dynamics and applications*, International series of monographs on physics (Clarendon Press, Oxford, 2002), p. 62.
221. J. Bechhoefer, S. Wilson, "Faster, cheaper, safer optical tweezers for the undergraduate laboratory," *American Journal of Physics*,**70**, 393-400 (2002).
222. G. Volpe, G. Kozyreff, D. Petrov, "Backscattering position detection for photonic force microscopy," *Journal of Applied Physics*,**102**, 084701 (2007).
223. 四象限探测器, retrieved <http://www.pacific-sensor.com/pages/quadrant.html>.
224. G. S. Roberts, T. A. Wood, W. J. Frith, P. Bartlett, "Direct measurement of the effective charge in nonpolar suspensions by optical tracking of single particles," *Journal of Chemical Physics*,**126**, 12 (2007).
225. S. Jeney, B. Lukic, J. A. Kraus, T. Franosch, L. Forro, "Anisotropic memory effects in confined colloidal diffusion," *Physical Review Letters*,**100**, 240604 (2008).

博士期间发表的论文

1. *J. H. Zhou*, R. Z. Tao, Z. B. Hu, M. C. Zhong, Z. Q. Wang, J. Cai, Y. M. Li, "Manipulation of nanoparticles using dark-field-illumination optical tweezers with compensating spherical aberration," *Chinese Physics Letters*,**26**, 068701 (2009).
2. *J. H. Zhou*, H. L. Ren, J. Cai, Y. M. Li, "Ray-tracing methodology: application of spatial analytic geometry in the ray-optic model of optical tweezers," *Applied Optics*,**47**, 6307-6314 (2008).
3. *J. H. Zhou*, L. J. Qu, K. Yao, M. C. Zhong, Y. M. Li, "Observing nanometre scale particles with light scattering for manipulation using optical tweezers," *Chinese Physics Letters*,**25**, 329-331 (2008).
4. *周金华*, 龚鑫, 李银妹, "光镊与介电泳微操纵技术," *激光生物学报*,**16**, 119-127 (2007).
5. M. C. Zhong, *J. H. Zhou*, Y. M. Li, "Calculation of Optical Trapping Forces on Dielectric Spheres at an Oil-Water Interface with Ray-Optics Model," *Chinese Optics Letters*,**8** (2010, Accepted).
6. 陈冠雄, *周金华*, 任煜轩, 李银妹, "操控金属粒子的光镊技术," *激光与光电子学进展*,**46**, 37-43 (2009).
7. M. C. Zhong, *J. H. Zhou*, J. G. Wu, Y. M. Li, "Determination of the axial stiffness of an optical trap with information entropy signals," *Proc. SPIE*, **7507**, 75070J (2009)
8. M. C. Zhong, *J. H. Zhou*, Y. X. Ren, Y. M. Li, Z. Q. Wang, "Rotation of birefringent particles in optical tweezers with spherical aberration," *Applied Optics*,**48**, 4397-4402 (2009).
9. 任煜轩, *周金华*, 吴建光, 李银妹, "全息光镊—光镊家族中极具活力的成员," *激光与光电子学进展*,**45**, 35-41 (2008).
10. B. H. Meng, *J. H. Zhou*, M. C. Zhong, Y. M. Li, W. J.G., H. L. Ren, "Improvement of transverse trapping efficiency of optical tweezers," *Chinese Physics Letters*,**25**, 2296-2298 (2008).
11. 钟敏成, 张文静, *周金华*, 李银妹, 田来科, 白晋涛, "利用背散光分辨单光镊捕获的纳米粒子个数," *中国激光*,**37**, 398-403 (2010).

附录 英文缩写索引

ACF, Autocorrelation Function	自相关函数
CDM, Coupled Dipole Method	耦合偶极子方法
CG, Conjugated Gradient	共轭梯度
CM, Clausius-Mossotti	克劳修斯-莫索提
DDA, Discrete Dipole Approximation	离散偶极子方法
EM, Electromagnetic	电磁场模型
EBCM, Extended Boundary Condition Method	拓展边界条件方法
FEM, Finite Element Method	有限元法
FDTD, Finite Difference Time Domain	时域有限差分
FFT, Fast Fourier Transform	快速傅立叶变化
GLMT, Generalized Lorentz-Mie Theory	广义洛仑兹米氏散射理论
LSP, localized surface plasmon	局域表面等离子体
LG, Laguerre-Gaussian	拉盖尔高斯
MOM, Moment of Method,	矩量法
NA, Numerical Aperture	数值孔径
PS, Polystyrene	聚苯乙烯
QPD, Quadrant Photodiode Detector	四象限探测器
RO, Ray Optics,	光线光学, 几何光学
SNR, Signal-to-Noise Rate	信噪比
SPIM, Selective Plane Illumination Microscopy	单平面照明显微术
VD, Vectorial Diffraction,	矢量衍射
VIEM, Volume Integral Equation Method	体积分方程方法

致谢

感谢我的导师——郭光灿院士和李银妹教授。正是在两位导师的亲切关怀和悉心指导下，本论文得以顺利完成。2005年我进入实验室，开始研究生学习，两位导师严谨的治学态度、精益求精的工作作风一直鞭策着我，我的点滴进步都凝聚着他们辛勤的汗水和殷切的期望。郭老师以高屋建瓴地指导和渊博的学识，开阔了我的视野；李老师在学习和生活中给予莫大的关心，鼓励我在科研上放宽视野、挑战困难，在生活中胸怀宽广、积极主动，这些做事做人的道理我将会永远铭记！

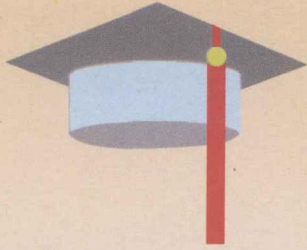
感谢楼立人、姚焜、蔡俊、王自强老师。在刚刚进入实验室时，楼老师耐心解答我提出的各种问题，使我在后续学习中受益匪浅。这些年，姚老师不厌其烦地给我讲解光学仪器知识，还陪同我做实验，毫无保留地传授经验给我，十分感激；蔡老师帮我修改论文，提出宝贵很多意见，使我获益良多；王老师在背后默默奉献，兢兢业业工作，为我的研究工作提供各种支持，一同表示感谢。

感谢实验室各位同学。这几年，实验室融洽的工作氛围，缓解了许多压力。正是在实验室各位同学热情的帮助下，我的研究工作顺利展开。感谢钟敏成，对我的许多实验给予极大的支持；感谢吴建光、任煜轩、孟炳寰、任洪亮和周程提出的宝贵建议；感谢龚鋈、谷勇强、张文静和王忠，在我刚进入实验室时给予我许多指导；感谢李煌、薛国胜和高红芳，在我毕业时分担许多工作。

感谢我的家人。在我求学的这几年里，是他们一直鼓励我放手追寻自己的梦想。我的父母虽已年迈，仍辛勤劳作，以减轻我的负担；我的岳父母一家人总是在我最困难的时候，伸出援助之手；我的姐姐精心照顾年迈的双亲，让我能安心学习。他们的支持和鼓励是我的动力，他们的恩情绝非一个谢字就够了的。我非常感谢我生命中最亲密的朋友——我的妻子，在这几年的生活中，没有她的支持，我无法完成学业。在相隔千里的日子里，她既要工作还要独自带着我们可爱的女儿，毫无怨言地陪我度过这几年最艰难的日子。还要感谢我女儿，她的笑声能让我忘却所有的烦恼。

周金华

二〇一〇年四月于中国科学技术大学



USTC

中国科学技术大学博士学位论文