

表面等离激元光镊技术

豆秀婕^{1,2} 闵长俊^{1,2*} 张聿全^{1,2} 袁小聪^{1,2}

¹深圳大学纳米光子学研究中心, 广东 深圳 518060

²深圳大学光电工程学院光电子器件与系统教育部/广东省重点实验室, 广东 深圳 518060

摘要 光镊是捕获与操纵微纳颗粒的重要技术手段,其基本原理为光与物质之间动量传递的力学效应,具有非接触、操纵精度高等优点,广泛应用于物理、化学、生物及医学等科学前沿领域。近年来,表面等离激元因具有突破衍射极限和近场能量增强两大特性,为光镊技术的发展带来了新的突破口,成为国际上一个重要和前沿的研究方向。基于表面等离激元的新型光镊技术主要分为两类:结构型表面等离激元光镊技术和全光调控型表面等离激元光镊技术,它们在颗粒捕获精度、捕获范围、操纵动态性与操纵自由度等方面各有特色,吸引了国际上众多研究人员进行大量的理论研究和实验探索。表面等离激元光镊技术在纳米颗粒、金属颗粒捕获以及近场电磁场增强与调控方面展现了独特优势,在生物传感、表面增强拉曼散射等领域具有广阔的应用前景。

关键词 物理光学; 表面等离激元; 光镊; 金属纳米结构; 光学捕获; 表面增强拉曼散射

中图分类号 O439; O539 **文献标识码** A

doi: 10.3788/AOS201636.1026004

Surface Plasmon Polaritons Optical Tweezers Technology

Dou Xiujie^{1,2} Min Changjun^{1,2} Zhang Yuquan^{1,2} Yuan Xiacong^{1,2}

¹Nanophotonics Research Centre, Shenzhen University, Guangdong, Shenzhen 518060, China

²Key Laboratory of Optoelectronic Devices and Systems, Ministry of Education and Guangdong Province, College of Optoelectronic Engineering, Shenzhen University, Guangdong, Shenzhen 518060, China

Abstract As an important technology for capturing and manipulating micro- and nano-particles, the optical tweezers rely on the basic principle of the mechanical effect of the momentum transfer between light and matter. It provides a non-contacting technique with a high precision, and has been widely used in physics, chemistry, biology, medicine and other scientific frontier fields. In recent years, surface plasmon polaritons have brought a new breakthrough for the development of the optical tweezers technology due to their excellent features of the near-field enhancement and the breakthrough of the diffraction limit, and become a very important and international frontier research direction. The new optical tweezers technologies based on the surface plasmon polaritons could be divided into the structure-based and the all-optical modulated surface plasmon polaritons, and each has its own advantages on particle trapping precision, trapping region size, dynamic and degree of freedom of manipulation. These new surface plasmon polaritons optical tweezers technologies attract researchers all over the world to carry out a large number of theoretical research and experimental exploration, show unique advantages on the trapping of nanoparticles and metallic particles and the enhancement and control of the near field electromagnetic field, and prove promising applications in the fields of biological sensing, surface enhanced Raman scattering, etc.

Key words physical optics; surface plasmon polaritons; optical tweezers; metal nanostructures; optical trapping; surface-enhanced Raman scattering

OCIS codes 260.5740; 240.6680; 350.4855

收稿日期: 2016-06-29; **收到修改稿日期:** 2016-08-11

基金项目: 国家自然科学基金(61138003, 61427819, 61422506)、国家 973 计划(2015CB352004)、国家重点研发计划(2016YFC0102401)、深圳市科技创新委员会(KQCS2015032416183980, KQCS2015032416183981, JCYJ 20140418091413543)、广东省“珠江人才计划”领军人才(00201505)

作者简介: 豆秀婕(1991—),女,硕士研究生,主要从事表面等离激元光镊方面的研究。E-mail: douxiujie@email.szu.edu.cn

导师简介: 袁小聪(1963—),男,博士,教授,博士生导师,主要从事微纳光学方面的研究。E-mail: xcyuan@szu.edu.cn

* **通信联系人.** E-mail: cjmin@szu.edu.cn

1 引 言

1986年, Ashkin等^[1]采用显微物镜会聚单束激光,在水溶液样品池中实现了介质微球的三维光学捕获,开启了研究人员对光镊技术的广泛研究^[2-8]。传统的远场光镊技术利用高数值孔径(NA)的显微物镜对激光进行聚焦,在焦点处产生光学梯度力并形成光学势阱,从而实现微小颗粒的捕获。然而,由于聚焦光斑尺寸受远场衍射极限 $\lambda/2$ (λ 为激光波长)的影响,极大限制了对亚波长尺寸颗粒的捕获。为了克服远场光镊技术的局限性,可突破衍射极限 $\lambda/2$ 的近场光镊技术得到了快速发展^[9]。在近场光学研究基础上,研究人员提出了基于棱镜全内反射、镀膜光纤探针等多种不同结构的近场光镊系统^[10-13],实现了对亚波长尺寸颗粒的捕获与操控。

近年来,随着纳米科技的迅速发展和对颗粒捕获要求的不断提高,光镊技术的研究面临新的问题与挑战:1)近场光镊倏逝场偏弱,由于棱镜全内反射,近场光学结构不能增强入射光场,产生的表面倏逝场普遍偏弱,无法形成比较强的梯度力用于捕获;2)金属颗粒难以捕获,金属颗粒的典型特性是对光有较强的反射与吸收,产生很大的光学散射力,如果散射力比梯度力大,金属颗粒将被光束推走而难以捕获。

针对以上问题,近年来,国际研究人员提出了基于表面等离子激元(SPPs)的新型光镊技术。SPPs是金属表面自由电子与入射光子相互耦合、集体振荡产生的一种只在金属表面传播的电磁波,电场强度沿着垂直金属表面方向呈指数衰减^[14]。在许多金属结构中,SPPs激发产生的局域倏逝场强度相比入射光有很大的增强,增强因子可达 10^3 量级^[15]。基于SPPs的光镊技术可以显著提高表面倏逝场产生的梯度力,从而解决倏逝场偏弱的问题^[16],且SPPs与金属颗粒之间产生很强的电磁场耦合作用,进一步增强了金属颗粒和金属膜之间的倏逝场和梯度力,实现对金属颗粒的捕获与操控^[17]。国际上已有不少研究小组对SPPs光镊技术进行了广泛研究,提出的多种SPPs光镊结构与系统具有重要的应用价值^[18-22]。

2 SPPs 基础理论

介绍基于SPPs的光镊技术之前,先了解SPPs的基本特性、激发方式及SPPs产生光学力的计算方法,以便对SPPs光镊技术进行更深层次的研究。

2.1 SPPs 的色散关系

SPPs是光与金属在金属表面相互作用产生的表面电磁波和自由电子振荡的混合模式,因此研究SPPs的特性首先应了解金属的光学性质及色散特性^[23],根据麦克斯韦方程组可得到金属/介质分界面的表面等离子激元的色散公式。

图1为激发SPPs的经典模型,此模型由介电常数为 ϵ_1 的各向同性介质($z > 0$)和介电常数为 ϵ_2 的金属($z < 0$)组成,其中 ϵ_1 为正实数, ϵ_2 为复数。 ϵ_2 可表示为 $\epsilon_2(\omega) = \epsilon_{\text{real}}(\omega) + i\epsilon_{\text{image}}(\omega)$ (ω 为电磁波频率),实部 $\epsilon_{\text{real}}(\omega)$ 为负数, $|\epsilon_{\text{real}}(\omega)| \gg \epsilon_{\text{image}}(\omega)$ 。

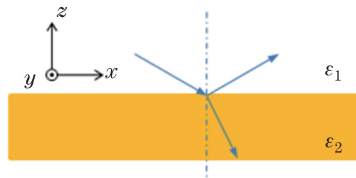


图1 金属表面激发的表面等离子激元

Fig. 1 SPPs excited on metal surface

金属与介质界面处传播的电磁波为横磁模(TM模式),对于 $z > 0$ 的介质空间和 $z < 0$ 的金属空间,场分布可分别表示为^[24-25]

$$\begin{cases} H_1(x, z, t) = (0, M, 0) \exp(ik_{1x}x + k_{1z}z - i\omega t) \\ E_1(x, z, t) = (iM/\omega\epsilon_0\epsilon_1)(k_{1z}, 0, ik) \exp(ik_{1x}x + k_{1z}z - i\omega t) \end{cases}, \quad (1)$$

$$\begin{cases} H_2(x, z, t) = (0, N, 0) \exp(ik_{2x}x - k_{2z}z - i\omega t) \\ E_2(x, z, t) = (iN/\omega\epsilon_0\epsilon_2)(k_{2z}, 0, ik) \exp(ik_{2x}x - k_{2z}z - i\omega t) \end{cases}, \quad (2)$$

式中 $H_1(x, z, t)$ 、 $H_2(x, z, t)$ 分别为介质和金属中的磁场强度, $E_1(x, z, t)$ 、 $E_2(x, z, t)$ 分别为介质和金属中的电场强度, t 为电磁波在介质中传播的时间, M 、 N 为常数, k_{1x} 、 k_{2x} 为电磁波在两种媒介中平行于界面的波矢分量, k_{1z} 、 k_{2z} 为电磁波在两种媒介中垂直于界面的波矢分量 ($k_{iz} = \sqrt{k_{ix}^2 - \epsilon_i k_0^2}$, $i = 1, 2$), $k_0 = \omega/c$ (c 为真空光速), ϵ_0 为真空介电常数。将(1)、(2)式代入麦克斯韦方程, 并且要求场的切分量在界面 $z = 0$ 处连续, 可得

$$\begin{cases} M = N \\ k_{1x} = k_{2x} = k_{\text{SPPs}} \\ Mk_{1z}/\epsilon_1 = -Nk_{2z}/\epsilon_2 \end{cases}, \quad (3)$$

式中 k_{SPPs} 为 SPPs 的波矢值。在 TM 偏振条件下, 两种媒介中垂直于界面的波矢分量与介电常数之间的关系为

$$k_{2z}/k_{1z} = -\epsilon_2/\epsilon_1. \quad (4)$$

结合 $k_{iz} = \sqrt{k_{ix}^2 - \epsilon_i k_0^2}$, 得到介质-金属界面激发 SPPs 的色散关系式为

$$k_{\text{SPPs}} = k_0 \sqrt{\epsilon_1 \epsilon_2 / (\epsilon_1 + \epsilon_2)} = \omega \sqrt{\epsilon_1 \epsilon_2 / (\epsilon_1 + \epsilon_2)} / c. \quad (5)$$

光在自由空间中的色散曲线(A)、高折射率介质中的色散曲线(B)以及表面等离激元的色散关系曲线(C)如图 2 所示。

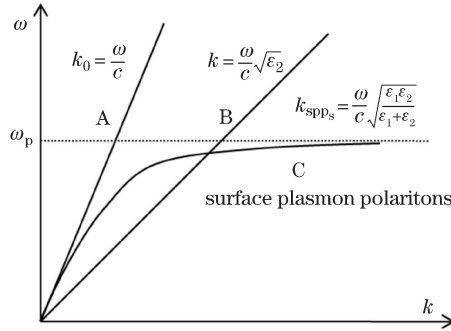


图 2 光在自由空间、电介质以及表面等离激元中的色散关系曲线

Fig. 2 Dispersion relationship curves of light in free space, dielectric and SPPs

在低频区, 表面电磁模靠近真空中的光锥线; 随着频率增加, 表面电磁模逐渐远离光锥线, 趋近一个表面等离子体共振频率 ω_p 。由于 SPPs 的波矢与入射光的波矢不匹配, 通常情况下 SPPs 不能被入射光直接激发, 必须采用特殊方法对入射光进行波矢补偿才能激发 SPPs。

2.2 SPPs 的激发方法

金属介电常数的实部为负值, 根据(5)式可得, SPPs 的波矢大于自由空间入射光的波矢。由图 2 可以看出, SPPs 的色散曲线始终位于自由空间光波矢 k_0 的右侧; 随着频率增加, k_{SPPs} 与 k_0 的距离越来越远, 即 SPPs 的波矢越来越大, 因此入射光波无法直接在金属膜表面耦合激发 SPPs。为了有效激发 SPPs, 必须对激发光的波矢进行补偿, 以满足激发所需的波矢匹配条件。下面简要介绍 SPPs 激发的几种常用方法。

2.2.1 棱镜耦合法激发

利用高折射率介质(n_0 为介质折射率, $n_0 = \sqrt{\epsilon_2} > 1$)可以增大激发光波矢, 如图 2 中 B 曲线所示。当满足波矢匹配条件时, SPPs 在金属/空气界面被激发, 可得

$$\text{Re}[k_{\text{SPPs}}] = \text{Re}[\sqrt{\epsilon_1 \epsilon_m / (\epsilon_1 + \epsilon_m)} \omega_0 / c] = \text{Re}[\sqrt{\epsilon_2} \sin \theta_{\text{sp}} \omega_0 / c], \quad (6)$$

式中 ϵ_m 为金属的介电常数, ω_0 为真空中的角频率, θ_{sp} 为表面等离激元的共振激发角。

棱镜结构耦合法为一种简单有效的激发 SPPs 的方法, 此方法通常有两种结构: 一种是 1968 年 Otto^[26] 提出的结构, 如图 3(a) 所示; 另一种是 Kretschmann 结构^[27], 如图 3(b) 所示。

上述两种结构的区别在于金膜相对于棱镜的位置不同, Otto 结构中棱镜和金属之间的距离较难控制, 因此 Kretschmann 结构的使用更加广泛。棱镜耦合结构具有低损耗、高耦合精度的优点, 广泛应用于生物、

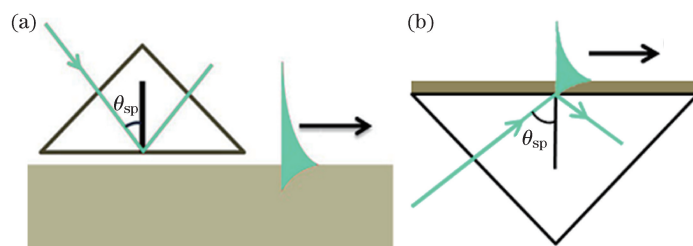


图 3 棱镜耦合法激发 SPPs 示意图。(a) Otto 提出的结构；(b) Kretschmann 结构

Fig. 3 Diagram of exciting SPPs by prism coupling method. (a) Structure proposed by Otto; (b) Kretschmann structure

光子学、传感等领域。

2.2.2 近场散射激发

探针、颗粒、表面缺陷等结构产生的近场散射波具有较宽的空间频谱,存在某个空间频率分量满足 SPPs 波矢匹配条件,从而激发 SPPs。图 4(a)为近场探针激发 SPPs 的结构^[28]。近场范围内,探针的尺寸远小于入射光的波长,入射光通过针尖散射在金属表面,并且产生了倏逝波,为 SPPs 的激发提供波矢补偿。类似地,将一个纳米尺寸的散射体固定在近场区域,也可实现同样的效果^[29],如图 4(b)所示。

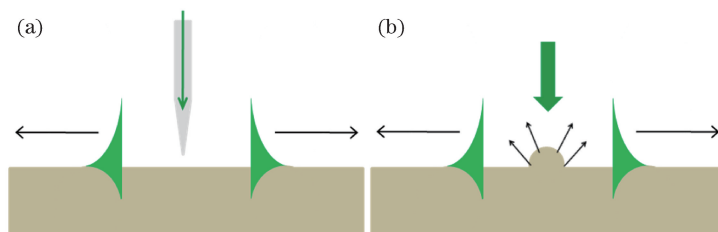


图 4 近场激发 SPPs 示意图。(a) 探针；(b) 纳米尺寸散射体

Fig. 4 Diagram of exciting SPPs by near-field. (a) With a probe; (b) with a nanoscale scatterer

近场散射激发的优点为结构简单、激发容易,缺点为只有很小一部分散射光满足 SPPs 波矢匹配条件,因此近场散射激发 SPPs 的效率比较低。

2.2.3 光栅激发

如果在金属表面刻有周期性光栅结构,当入射光照射到这种周期性结构时,会引入一个额外的空间频率增量,从而满足激发 SPPs 的波矢匹配条件^[30],如图 5 所示。

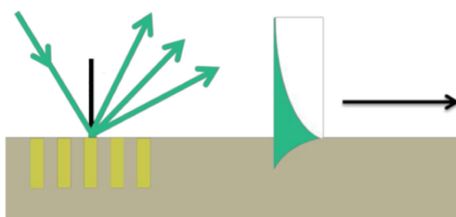


图 5 光栅耦合激发 SPPs 示意图

Fig. 5 Diagram of exciting SPPs by grating coupling

这种 SPPs 耦合方式给自由空间的波矢增加一个额外的光栅空间频率成分,波矢匹配方程为

$$\text{Re}[k_{\text{SPPs}}] = \text{Re}[k_0 \sin \theta \pm mG], \quad (7)$$

式中 θ 为入射角, G 为光栅常数($G = 2\pi/\Lambda$, Λ 为光栅周期), m 为光栅级次(m 为自然数)。这种方法激发 SPPs 的效率较高,但是存在制备成本较高、动态调控性差等缺点。

2.2.4 紧聚焦结构激发

利用具有高数值孔径的显微物镜可以提供足够大的入射角度,当最大入射角大于 SPPs 的激发角度时,入射角度满足激发 SPPs 波矢匹配条件的入射光可以在金属膜的上表面激发 SPPs^[31],如图 6 所示。

该结构的原理与 Kretschmann 结构类似,不同的是由于入射光的圆对称分布,该结构激发的 SPPs 为一个环形,环形 SPPs 进一步向中心传播,在光轴中心处干涉产生一个极强的 SPPs 会聚点(也称为虚拟探

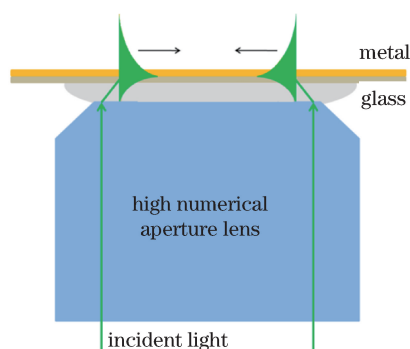


图 6 利用高数值孔径物镜紧聚焦激发 SPPs

Fig. 6 Tightly-focused exciting SPPs by high numerical aperture lens

针)^[32-34]。该结构可以与传统显微系统相结合,因此被广泛应用于生物成像和传感等领域。

2.3 SPPs 光镊的力学效应分析

传统激光光镊技术利用光的梯度力实现对微小颗粒的捕获,这些光镊技术多数利用一定数值孔径的物镜聚焦,产生足够大的光场梯度变化,克服对颗粒的散射力(辐射压力),从而在光束的焦点位置捕获颗粒。SPPs 光场分布一般比激光焦点复杂,传统激光光镊采用的梯度力、散射力公式并不适用于许多 SPPs 光镊中光学力的计算,因此需要采用完整的麦克斯韦应力张量计算 SPPs 光镊中样品的受力情况。

2.3.1 光镊的捕获原理

该内容通过分析激光光镊中介质颗粒的受力情况,阐述光镊的捕获原理。当会聚激光束照射到颗粒上时,在颗粒表面发生折射和反射,同时也产生一部分吸收,被颗粒反射和吸收的光产生的作用即为光辐射压力(也称散射力)。光辐射压力的方向为光的传播方向,散射力的作用可使小球沿趋向于光束的传播方向运动。为了实现对微小颗粒的稳定捕获,需要与光传播方向相反的拉力与散射力的作用平衡,即需要光对颗粒作用的梯度力。

为了阐明梯度力的概念,以介质颗粒为例进行说明,如图 7(a)所示。当颗粒处于横向分布的非均匀场时,根据动量守恒定律与牛顿第三定律,颗粒受到与光束变化大小相等、方向相反的动量,此时颗粒所处位置两侧的光强分布不等,颗粒受到一个指向光强更强方向的力(即指向光束焦点处的力)。当介质小球的球心处于激光束焦点下方时,轴外光线入射到小球上,一部分反射光对颗粒产生散射力的作用;与此同时,光束经过微粒时发生多次折射,所有照射到小球上的光经折射后都具有逆轴向的力,小球受到的纵向力为竖直向上的拉力,把小球拉向焦点,如图 7(b)所示。对于球心在光束焦点上方的情况,根据类似的受力分析可以得到,光通过小球折射后,小球受到指向正下方的力,小球向光束焦点运动,如图 7(c)所示。

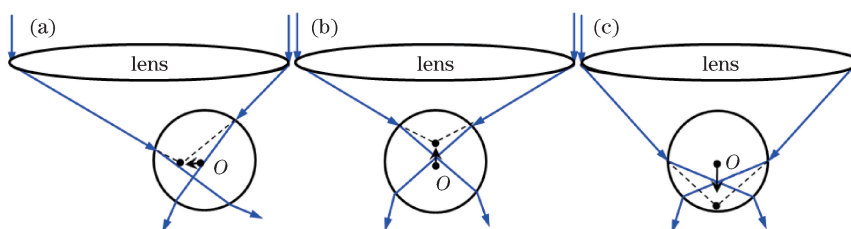


图 7 光场中颗粒所受梯度力示意图。颗粒位于(a)光束焦点水平方向;(b)光束焦点下方;(c)光束焦点上方

Fig. 7 Gradient force diagram of particle in optical field. The partical is (a) horizontal with the focus of beam;

(b) under the focus of beam; (c) above the focus of beam

2.3.2 激光光镊对颗粒的力学分析

2.3.2.1 米氏颗粒($d \gg \lambda$)

当颗粒的直径(d)远大于入射光波长时,将此类颗粒称为米氏尺寸颗粒。在分析米氏颗粒的光学力时,光镊的势阱原理可以用几何光学解释^[35-37]。

几何光学模型中的散射力 F_s 和梯度力 F_g 的计算公式分别为

$$\begin{cases} F_s = n_m p Q_s / c = n_m p / c \left\{ 1 + \cos 2\theta_1 - \frac{T^2 [\sin(2\theta_1 - 2\theta_2) + R \sin 2\theta_1]}{1 + R^2 + 2R \cos 2\theta_2} \right\} \\ F_g = n_m p Q_g / c = n_m p / c \left\{ -R \cos 2\theta_1 + \frac{T^2 [\sin(2\theta_1 - 2\theta_2) + R \sin 2\theta_1]}{1 + R^2 + 2R \cos 2\theta_2} \right\} \end{cases}, \quad (8)$$

式中 R 为反射率, T 为透射率, p 为捕获激光的功率, θ_1 为光的入射角, θ_2 为光入射到颗粒中的折射角, Q_s 、 Q_g 分别为散射力和梯度力的参数值, n_m 为颗粒周围介质的折射率。

2.3.2.2 介观颗粒 ($d \approx \lambda$)

当颗粒的尺寸在波长量级(一般为微米或亚微米量级)时,将此类颗粒称为介观颗粒。近十几年,人们根据电磁理论设计了多种光镊电磁理论的计算模型,光镊的电磁场理论模型大多以洛伦兹-米氏散射理论(简称米氏理论)为基础^[38-39],米氏理论可由麦克斯韦方程组推导得到。当微粒相对于光束直径不是很小时,经典米氏理论不再适用,光阱力的分析需要采用严格的电磁场理论,目前适用的模型包括广义洛伦兹-米氏散射理论模型(GLMT)、有限元法理论模型(FEM)、时域有限差分(FDTD)理论模型以及 T 矩阵理论模型等^[40-42]。

在 GLMT 理论中,当微粒为球形粒子,折射率为 n_1 ,微粒周围介质的折射率为 n_2 。微粒中心 O_p 与激光束会聚中心 O_G 不重合时,以微粒中心设立直角坐标系 (x, y, z_{O_p}) ,光波沿 z 轴正方向传播,光的偏振方向沿 x 轴。求出三个横截面横向分力 $C_{pr,x}(r)$ 、 $C_{pr,y}(r)$ 以及轴向分力 $C_{pr,z}(r)$,即可求出光阱力^[42]。光阱力的表达式为

$$F(r) = \frac{n_2 p}{c} [x C_{pr,x}(r) + y C_{pr,y}(r) + z C_{pr,z}(r)], \quad (9)$$

式中 r 为位置标量。(9)式也可以表示为

$$\begin{cases} F(r) = (n_2 p / c) Q_i \\ Q_i = C_{pr,i}(r) \end{cases}, \quad (10)$$

式中 Q_i ($i = x, y, z$) 为三个直角坐标分量的捕获效率。

2.3.2.3 瑞利颗粒 ($d \ll \lambda$)

当颗粒的尺寸远小于激光波长时,将此类颗粒称为瑞利颗粒。瑞利颗粒满足瑞利散射理论,可以将颗粒当作电偶极子计算^[43-46]。在瑞利散射理论的近似下,颗粒受到的散射力与光强成正比,可表示为^[47]

$$F_s = \frac{I_0 n_m}{c} \frac{128 \pi^5 a^6}{3 \lambda^4} \left(\frac{h^2 - 1}{h^2 + 2} \right)^2, \quad (11)$$

式中 I_0 为入射到颗粒上的光强, a 为颗粒半径, h 为颗粒与周围环境介质折射率的比值。

颗粒受到的梯度力与光强的梯度成正比,可表示为

$$F_g = \frac{n_m^2 a^3}{2} \left(\frac{h^2 - 1}{h^2 + 2} \right)^2 \nabla I_0, \quad (12)$$

式中 ∇I_0 为光强的梯度。

瑞利颗粒所受的散射力是由光在偶极子之间的吸收和再辐射引起的;瑞利颗粒所受的梯度力是由电偶极子与光场之间电荷的相互作用引起的。当梯度力与散射力达到平衡时,即可实现对颗粒的稳定捕获。

2.3.3 SPPs 光镊对颗粒的力学分析

为了揭示 SPPs 场对颗粒作用力的本质,这里采用 FDTD 数值计算结合麦克斯韦张量矩阵(MST)的方法,先利用 3D-FDTD 方法计算颗粒表面电磁场的分布,再利用 MST 算法获得 SPPs 施加在颗粒上的电磁场力^[48]。

根据经典电磁场理论,金属颗粒受到的总的电磁场力(即洛伦兹力)为

$$\mathbf{f} = \rho \mathbf{E} + \mathbf{j} \times \mathbf{B}, \quad (13)$$

式中 ρ 为电荷密度, \mathbf{j} 为电流密度, \mathbf{E} 为电矢量, \mathbf{B} 为磁感应强度。由电场产生的梯度力及磁场产生的散射力可分别表示为^[49]

$$\begin{cases} \mathbf{F}_{\text{grad}}(t) = \int_v \rho(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) d\mathbf{v} \\ \mathbf{F}_{\text{scat}}(t) = \frac{1}{c} \int_v \mathbf{j}(\mathbf{r}, t) \times \mathbf{H}(\mathbf{r}, t) d\mathbf{v} \end{cases}, \quad (14)$$

式中 v 为积分的空间区域。

非齐次麦克斯韦方程为

$$\begin{cases} \nabla \cdot \mathbf{E} = \rho/\epsilon \\ \nabla \times \mathbf{B} = \mu \mathbf{j} + \mu \epsilon \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \end{cases}, \quad (15)$$

式中 ϵ 为粒子周围介质的介电常数, μ 为粒子周围介质的磁导系数。

根据(15)式,将(13)转化为

$$\mathbf{f} = \epsilon(\nabla \cdot \mathbf{E})\mathbf{E} + \frac{1}{\mu}(\nabla \times \mathbf{B}) \times \mathbf{B} - \epsilon \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \times \mathbf{B}. \quad (16)$$

根据 $\frac{\partial(\mathbf{E} \times \mathbf{B})}{\partial t} = \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \times \mathbf{B} + \mathbf{E} \times \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} = \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \times \mathbf{B} + \mathbf{E} \times (-\nabla \times \mathbf{E})$, 将(16)式转化为

$$\mathbf{f} = \epsilon(\nabla \cdot \mathbf{E})\mathbf{E} + \frac{1}{\mu}(\nabla \times \mathbf{B}) \times \mathbf{B} - \epsilon \mathbf{E} \times (\nabla \times \mathbf{E}) - \epsilon \frac{\partial(\mathbf{E} \times \mathbf{B})}{\partial t}. \quad (17)$$

将(17)式整理后可得

$$\mathbf{f} = \epsilon \left[\nabla \cdot (\mathbf{E}\mathbf{E}) - \frac{1}{2} \nabla \cdot (\mathbf{I}\mathbf{E}^2) \right] + \frac{1}{\mu} \left[\nabla \cdot (\mathbf{B}\mathbf{B}) - \frac{1}{2} \nabla \cdot (\mathbf{I}\mathbf{B}^2) \right] - \epsilon \frac{\partial(\mathbf{E} \times \mathbf{B})}{\partial t}, \quad (18)$$

式中 $\mathbf{E}\mathbf{E}$ 、 $\mathbf{B}\mathbf{B}$ 为张量, \mathbf{I} 为单位张量, 由此可得,

$$\mathbf{f} = \nabla \left[\epsilon(\mathbf{E}\mathbf{E}) - \frac{\epsilon}{2}(\mathbf{I}\mathbf{E}^2) + \frac{1}{\mu}(\mathbf{B}\mathbf{B}) - \frac{1}{2\mu}(\mathbf{I}\mathbf{B}^2) \right] - \epsilon \frac{\partial(\mathbf{E} \times \mathbf{B})}{\partial t}. \quad (19)$$

由坡印廷矢量 $\mathbf{S} = \mathbf{E} \times \mathbf{H} = \frac{1}{\mu} \mathbf{E} \times \mathbf{B}$ 可得

$$\mathbf{f} = \nabla \cdot \mathbf{T} - \epsilon \frac{\partial(\mathbf{E} \times \mathbf{B})}{\partial t} = \nabla \cdot \mathbf{T} - \epsilon \mu \frac{\partial \mathbf{S}}{\partial t}, \quad (20)$$

式中 \mathbf{T} 为麦克斯韦应力张量矩阵, $\mathbf{T} = \epsilon \epsilon_0 \mathbf{E}\mathbf{E} + \mu \mu_0 \mathbf{H}\mathbf{H} - \frac{\mathbf{I}}{2} (\epsilon \epsilon_0 |\mathbf{E}|^2 + \mu \mu_0 |\mathbf{H}|^2)$, 其中 ϵ_0 为真空介电常数, μ_0 为真空磁导率。因此, 作用于颗粒的总电磁场力可表示为

$$\mathbf{F} = \int_v \mathbf{f} \cdot d\mathbf{v} = \int_v \nabla \cdot \mathbf{T} d\mathbf{v} - \epsilon \mu \int_v \frac{\partial \mathbf{S}}{\partial t} d\mathbf{v}. \quad (21)$$

根据散度定理 $\int_v \nabla \cdot \mathbf{A} d\mathbf{v} = \oint_S \mathbf{A}_s \cdot \mathbf{n} dS$, (21)式可改写为

$$\mathbf{F} = \oint_S \mathbf{T} \cdot \mathbf{n} dS - \epsilon \mu \int_v \frac{\partial \mathbf{S}}{\partial t} d\mathbf{v}, \quad (22)$$

式中 \mathbf{n} 为垂直于颗粒表面 dS 的单位法线向量。

静磁场中, $\frac{\partial \mathbf{S}}{\partial t} = 0$, 总的平均受力为 $\langle \mathbf{F} \rangle = \langle \oint_S \mathbf{T} \cdot \mathbf{n} dS \rangle$, 即

$$\langle \mathbf{F} \rangle = \oint_S \left\{ \frac{\epsilon}{2} \text{Re}[(\mathbf{E} \cdot \mathbf{n})\mathbf{E}^*] - \frac{\epsilon}{4}(\mathbf{E} \cdot \mathbf{E}^*)\mathbf{n} + \frac{\mu}{2} \text{Re}[\mu(\mathbf{H} \cdot \mathbf{n})\mathbf{H}^*] - \frac{\mu}{4}(\mathbf{H} \cdot \mathbf{H}^*)\mathbf{n} \right\} dS. \quad (23)$$

MST 算法只给出了作用于颗粒上的总电磁场力, 为了揭示 SPPs 光镊对于颗粒的作用与激光光镊的不同之处, 需要将总的电磁场力进一步分解为梯度力和散射力。对于瑞利颗粒, 可以根据电偶极子近似模型计算得到梯度力和散射力^[50]。对于介观尺寸以及米氏尺寸的颗粒, 电偶极子模型不再适用。基于金属材料的电磁场特性, 对于介观/米氏尺寸金属颗粒, 可以进一步改进 MST 算法计算梯度力和散射力分量。

本质上, 梯度力为库仑力, 它取决于颗粒的局域电场和电荷密度分布; 散射力为拉普拉斯力, 它与局域磁

场有关。因此,洛伦兹力的电场分量(梯度力)可用(12)式表示,再根据(15)式可得

$$\mathbf{f}_{\text{grad}} = \epsilon(\nabla \cdot \mathbf{E})\mathbf{E}。 \quad (24)$$

因此, \mathbf{f}_{grad} 为(18)式中 $\epsilon \nabla \cdot (\mathbf{E}\mathbf{E}) = \epsilon[(\nabla \cdot \mathbf{E})\mathbf{E} + (\mathbf{E} \cdot \nabla)\mathbf{E}]$ 的第一项, 第二项 $\epsilon(\mathbf{E} \cdot \nabla)\mathbf{E}$ 为磁场力的一部分, 经推导得到 $(\nabla \cdot \mathbf{E})\mathbf{E} = (\mathbf{E} \cdot \nabla)\mathbf{E} = \frac{1}{2}\nabla \cdot (\mathbf{E}\mathbf{E})$, 故洛伦兹力的梯度力分量可表示为

$$\mathbf{f}_{\text{grad}} = \epsilon(\nabla \cdot \mathbf{E})\mathbf{E} = \frac{\epsilon}{2} \nabla \cdot (\mathbf{E}\mathbf{E})。 \quad (25)$$

由于 $\mathbf{E}\mathbf{E}$ 为张量, 梯度力同样可表示为张量形式。总的梯度力可表示为

$$\langle \mathbf{F}_{\text{grad}} \rangle = \left\langle \int_V \mathbf{f}_{\text{grad}} dV \right\rangle = \left\langle \int_S \mathbf{T}_{\text{grad}} \cdot \mathbf{n} dS \right\rangle, \quad (26)$$

式中 \mathbf{T}_{grad} 为梯度力的张量, 可表示为

$$\mathbf{T}_{\text{grad}} = \frac{\epsilon}{2} \mathbf{E}\mathbf{E} = \frac{\epsilon}{2} \begin{bmatrix} E_x E_x & E_x E_y & E_x E_z \\ E_y E_x & E_y E_y & E_y E_z \\ E_z E_x & E_z E_y & E_z E_z \end{bmatrix}。 \quad (27)$$

麦克斯韦应力张量矩阵由两部分组成, 即

$$\mathbf{T} = \mathbf{T}_{\text{grad}} + \mathbf{T}_{\text{scat}}。 \quad (28)$$

总的磁场力(散射力)可表示为

$$\langle \mathbf{F}_{\text{scat}} \rangle = \left\langle \int_V \mathbf{f}_{\text{scat}} dV \right\rangle = \left\langle \int_S \mathbf{T}_{\text{scat}} \cdot \mathbf{n} dS \right\rangle, \quad (29)$$

式中 \mathbf{T}_{scat} 为散射力的张量, 可表示为

$$\mathbf{T}_{\text{scat}} = \mathbf{T} - \mathbf{T}_{\text{grad}} = \begin{bmatrix} \frac{1}{2}\epsilon E_x E_x - \frac{\epsilon}{2} E^2 + \frac{\mu}{2} \left(H_x H_x - \frac{H^2}{2} \right) & \frac{1}{2}\epsilon E_x E_y - \frac{\epsilon}{2} E^2 + \frac{\mu}{2} \left(H_x H_y - \frac{H^2}{2} \right) & \frac{1}{2}\epsilon E_x E_z - \frac{\epsilon}{2} E^2 + \frac{\mu}{2} \left(H_x H_z - \frac{H^2}{2} \right) \\ \frac{1}{2}\epsilon E_y E_x - \frac{\epsilon}{2} E^2 + \frac{\mu}{2} \left(H_y H_x - \frac{H^2}{2} \right) & \frac{1}{2}\epsilon E_y E_y - \frac{\epsilon}{2} E^2 + \frac{\mu}{2} \left(H_y H_y - \frac{H^2}{2} \right) & \frac{1}{2}\epsilon E_y E_z - \frac{\epsilon}{2} E^2 + \frac{\mu}{2} \left(H_y H_z - \frac{H^2}{2} \right) \\ \frac{1}{2}\epsilon E_z E_x - \frac{\epsilon}{2} E^2 + \frac{\mu}{2} \left(H_z H_x - \frac{H^2}{2} \right) & \frac{1}{2}\epsilon E_z E_y - \frac{\epsilon}{2} E^2 + \frac{\mu}{2} \left(H_z H_y - \frac{H^2}{2} \right) & \frac{1}{2}\epsilon E_z E_z - \frac{\epsilon}{2} E^2 + \frac{\mu}{2} \left(H_z H_z - \frac{H^2}{2} \right) \end{bmatrix}。 \quad (30)$$

由 \mathbf{T}_{grad} 和 \mathbf{T}_{scat} , 即可得到最终的梯度力和散射力。

上述两式中用到的电场分量 \mathbf{E} 与磁场分量 \mathbf{H} 均为基于 FDTD 方法计算得到的结果, 不同于传统光学梯度力只依赖于强度梯度, 这里的梯度力是在粒子表面由振幅和位相的电场分量决定的, 该方法可用于计算不同形状金属颗粒的光学力。

3 SPPs 光镊技术研究介绍

最初的 SPPs 光镊技术主要利用固定的纳米金属结构激发 SPPs, 纳米结构具有极强的局域能力, 可将光场能量局域在远小于衍射极限的区域内形成 SPPs 热点, 从而提供极大的梯度力和纳米尺度的捕获精度。但由于固定结构仅实现一种特定的 SPPs 光场分布, 无法对 SPPs 进行动态调控。因此, 研究人员进一步提出了基于全光调控的 SPPs 光镊技术, 具有高效激发、动态调控、自重构等优点。下面将介绍这两种 SPPs 光镊技术。

3.1 结构型 SPPs 光镊

在多种激发 SPPs 产生倏逝波的方法中, 利用金属纳米结构激发 SPPs 是一种有效的方法。设计不同的表面等离子体激发纳米结构, 可以实现光的高效耦合和局域场增强, 得到比入射光场高几个数量级的电磁场热点, 从而为纳米量级的光镊捕获与操纵提供了更多的可行性。

3.1.1 基于 SPPs 圆盘阵列的微球捕获

2007 年, Quidant 等^[51-52]利用制作的微米金属圆盘结构进行了 SPPs 光镊实验研究。他们在石英基底

上设计了金圆盘阵列,圆盘厚度为 40 nm,直径为 3.5 μm 或 4.8 μm ,采用波长为 785 nm 的激光通过棱镜全内反射方式激发 SPPs,激光功率密度约为 $5 \times 10^7 \text{ W}/\text{m}^2$ 。由于激发的 SPPs 局域在圆盘上形成电磁场热点,提供足够的梯度力,从而成功地在圆盘上捕获溶液中的聚苯乙烯微球,实验装置如图 8 所示。

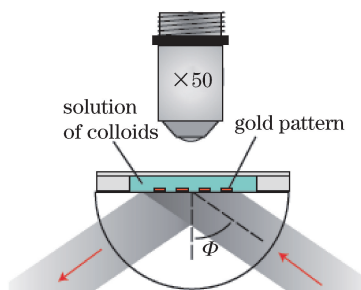


图 8 基于 SPPs 圆盘阵列的光镊技术实验装置示意图

Fig. 8 Experimental setup diagram of optical tweezers technology based on SPPs disk-array

图 9 为捕获与排列聚苯乙烯微球的实验结果。图 9(a)~(c)利用单个金属圆盘对颗粒进行了捕获,依次记录了 4.8 μm 的聚苯乙烯小球在 4.8 μm 的金属圆盘上被捕获的过程。图 9(d)中的入射光由 p 偏振切换为 s 偏振,此时对捕获起关键作用的 SPPs 光场未被激发,聚苯乙烯微球从金属圆盘上释放。图 9(e)展示了一个紧凑的金属圆盘组成的典型六角区域经入射光照射 10 min 后对聚苯乙烯微球的捕获情况。实验中在玻璃基面上设计不同的圆盘排列结构,实现了对聚苯乙烯微球的捕获排列图,图 9(f)~(g)为利用圆盘阵列捕获聚苯乙烯小球得到的不同排列图案。在此研究方向上,研究人员实现了在微流体回路中对酵母细胞的捕获^[53]。

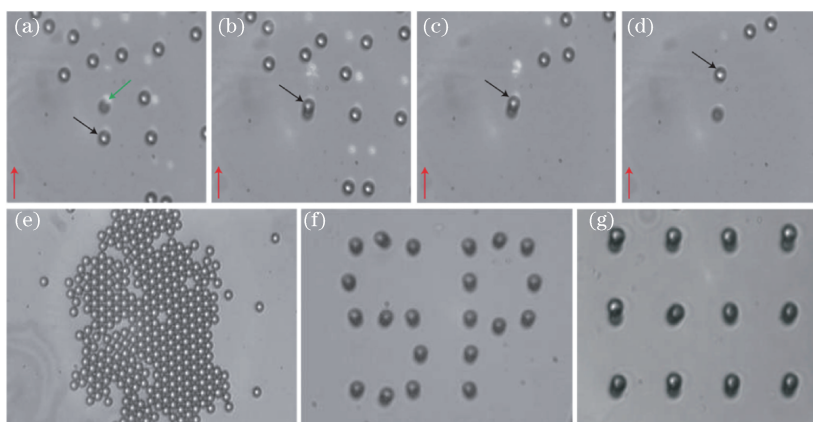


图 9 利用 SPPs 金属圆盘结构进行颗粒的捕获及排列。(a)~(c)单个圆盘;(d)入射光由 p 偏振切换为 s 偏振;
(e)圆盘组成的六角区域;(f)~(g)圆盘阵列

Fig. 9 Trapping and arranging of particles by SPPs metal disk structure. (a)-(c) Single disk;
(d) polarization of the incident light changes from p to s; (f)-(g) disk array

由于金微米圆盘表面 SPPs 传播产生的散射力,聚苯乙烯微球被捕获在金纳米圆盘边缘而不是中心,该现象可以从图 9(g)中清晰地看到,且与理论预测结果相吻合。

3.1.2 基于 SPPs 偶极天线的纳米颗粒捕获

尽管减小圆盘的尺寸可以将被捕获颗粒的尺寸减小为 1 μm 左右,但无法实现更小颗粒的捕获。研究人员开发了多种二聚体及多聚体纳米结构^[54-55],利用其超强的电磁耦合特性实现对等离子体场更加精确地调控。2010 年, Martin 等^[56]利用金纳米棒组成的二聚体纳米天线结构成功捕获了直径为 10 nm 的金纳米颗粒。实验中采用波长为 808 nm 的激光器,激光经过数值孔径为 1.45 的油浸物镜,发生全内反射并产生倏逝波,从而激发偶极天线中的 SPPs。激光到达样品的功率为 0.8 W,作用范围约为 $20 \mu\text{m} \times 20 \mu\text{m}$ 。为了检测偶极天线的瑞利散射光谱,白光光源经分束器耦合到与捕获光同样的光路中,图 10(a)为实验系统示意图。研究人员发现,当金纳米颗粒被纳米天线捕获后,纳米颗粒和二聚体之间的电磁场耦合使得 SPPs 共振

峰发生红移,如图 10(b)所示。二维偶极天线阵列由电子束光刻技术制备而成,图 10(c)为 2 个金纳米棒组成的典型偶极天线的电镜图(SEM),阵列中偶极天线的长度和间隙的大小各不相同。当金纳米棒之间的间隙只有几个纳米时,由于金纳米棒的局域表面等离子激元(LSP)共振和尖端耦合增强效应,间隙内产生极大的电磁场增强,产生的梯度力将纳米颗粒捕获在间隙区域。

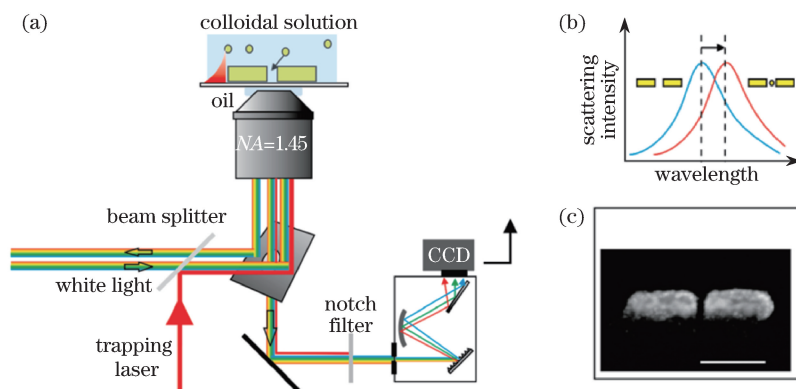


图 10 基于 SPPs 偶极天线捕获纳米颗粒的(a)实验装置示意图和(b)实验结果; (c)偶极天线的扫描电子显微镜成像
Fig. 10 (a) Diagram of experimental setup and (b) experimental result of trapping nanoparticle based on SPPs dipole antenna;
(c) SEM image of dipole antenna

通过测量散射光谱变化即可判断是否有纳米颗粒被捕获,并且可以通过计算共振峰位移的波长范围判断被捕获颗粒的数目。图 11 为偶极天线捕获金纳米颗粒时捕获的瀑布图及共振峰位移谱线。图 11(a)为臂长 l 为 80 nm、间隙尺寸 h 为 5 nm 的偶极天线在末端捕获的直径 d 为 20 nm 的金纳米颗粒的瑞利散射瀑布图及位移谱线。图 11(b)为臂长 l 为 90 nm、间隙尺寸 h 为 15 nm 的偶极天线在间隙中捕获的直径 d 为 10 nm 的金纳米颗粒的瑞利散射瀑布图及位移谱线。

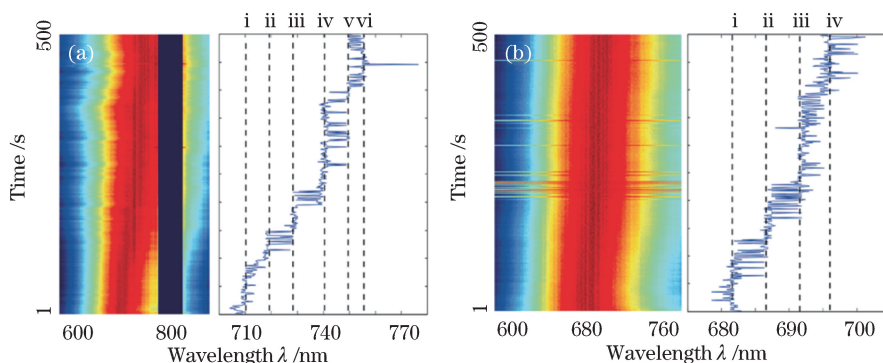


图 11 捕获的瀑布图及共振峰位移谱线。(a) $l=80$ nm, $h=5$ nm, $d=20$ nm; (b) $l=90$ nm, $h=15$ nm, $d=10$ nm
Fig. 11 Trapping waterfall plots and resonance peak shift spectral lines. (a) $l=80$ nm, $h=5$ nm, $d=20$ nm;
(b) $l=90$ nm, $h=15$ nm, $d=10$ nm

该工作不仅实现了 10 nm 尺寸金颗粒的捕获,还利用瑞利散射光谱对单个金纳米颗粒的捕获过程进行了监测。该工作将基于局域表面等离子激元共振的传感技术与等离子激元操作技术相结合,对特定的热点区域进行分析,此类技术在数据处理^[57]、光谱及传感^[58-61]、非线性光学^[59]等领域具有很大的应用价值。

3.1.3 基于自诱导反作用机制的三维捕获

尽管前面讨论的各种方案都可以得到很大的局域电场增强和梯度力,但在实际操作中,场增强带来的热泳效应直接影响颗粒的捕获。为了降低热泳效应对样品的影响,研究人员通过调控 SPPs 模式的方式优化捕获效率。当物体出现时,势阱内局域电场的强度达到最强,在不需要外界检测与矫正的情况下,利用捕获光与样品间的相互作用实现自动反馈控制。利用金属膜上的纳米孔径验证了这种自诱导反作用的机制^[62-66]。

2014 年,Quidant 等^[67]利用近场扫描光镊技术对尺寸为 50 nm 的介质颗粒实现了稳定捕获和精确三维

操纵。该工作利用近场扫描探针结构,实验中使用的探针为镀铝锥状光纤,利用金将光纤前端面金属化,表面设计了蝶型纳米孔径,实验探针示意图如图 12(a)所示。当入射光照射蝶型金属纳米孔径时,由于散射作用激发了 SPPs,激发的 SPPs 聚焦在孔径中心最狭窄处,孔径中心产生的梯度力可以捕获纳米颗粒。

实验采用光纤耦合器(分光比为 90/10)与 1064 nm 的保偏光纤相连接,捕获操作和监测功能都可以通过光纤实现。控制 10%的那路光纤以调节 1064 nm 入射光的偏振状态并使通过蝶型纳米孔径的光功率达到最大。1064 nm 的入射光进入保偏光纤后,一部分入射光在光纤的锥形端面上被反射并被 90%那路光纤接收,最后聚焦在硅探测器上。透过锥形端面的传输光被一个 40 倍($NA=0.65$)的物镜接收,最后在 CCD 上成像。图 12(b)为硅探测器接收到的反射信号的时间追记图,图中 1064 nm 的反射光有两种信号水平,分别对应无捕获(高信号水平)和捕获单个纳米小球(低信号水平)两种状态。仔细观察图中的时间追记图,可以区分出三个不同的阶段:无捕获阶段(蓝色区域)、不稳定捕获阶段(橙色区域)和稳定捕获阶段(黄色区域)。不稳定区域表明纳米球未达到蝶型纳米孔径的平衡位置,一旦进入稳定捕获阶段,便可对纳米小球进行三维操纵。图 12(c)展示了颗粒捕获后的扫描轨迹,探针在 xy 平面内的位移约为 15 mm,在 z 轴方向的位移约为 5 mm。实验中被捕获的纳米颗粒并没有被永久性粘在蝶型纳米孔径上,遮挡捕获激光后,颗粒被释放。

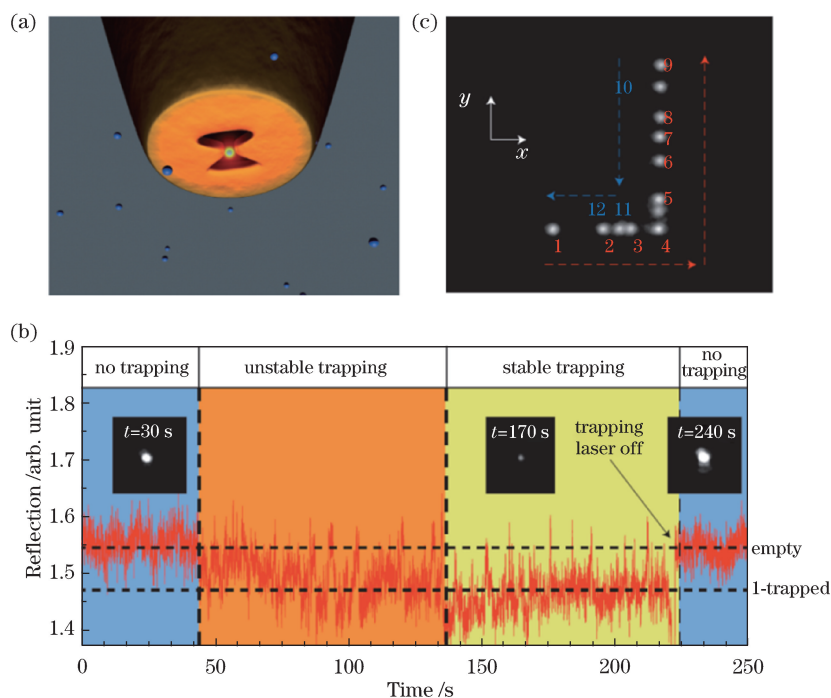


图 12 (a)实验探针示意图;(b)硅探测器接收到反射信号的时间追迹图;(c)颗粒捕获后的扫描轨迹

Fig. 12 (a) Diagram of probe in experiment; (b) time tracing figure of reflecting signal detected by silicon detector; (c) scanning trace after particle being trapped

该研究把 SPPs 光镊的捕获与监测功能集成到一根光纤中,实现了对介质纳米颗粒的稳定捕获和精确三维操纵。在低光功率条件下,此类型的 SPPs 光镊可以对样品进行长时间、大范围的操纵,因此可应用于对热敏生物样品^[68]等纳米尺寸目标物的高效无损伤操控。

利用金属纳米结构可以在特定的纳米尺寸区域产生 SPPs 热点,SPPs 热点可用于捕获颗粒。此方法具有较高的捕获精度,但在捕获的动态性、效率等方面存在一些缺点:1)SPPs 的激发和场分布受限于固定的金属结构,不易实现动态调控;2)纳米金属结构加工较为复杂,一种结构只能用于一次捕获实验,不具有可重复性;3)不少散射型纳米结构激发 SPPs 的效率不高,能量利用率低。因此,近年来研究人员提出了无结构的基于全光调控的 SPPs 光镊技术。

3.2 全光调控型 SPPs 光镊

全光调控型 SPPs 光镊技术(即利用入射光束整形产生特殊相位、偏振分布的新颖光束)选择性地地在均

匀金属/介质界面激发可重构的 SPPs 光场,并进一步通过变化入射光束的相位、振幅、偏振动态调控激发的 SPPs 光场。此方法无须制备复杂的纳米金属结构,简单经济,不仅可以用于 SPPs 光镊,在基于 SPPs 的成像、传感、信号处理等方面也具有广阔的应用前景^[69-71]。

3.2.1 聚焦 SPPs 光镊操控金属颗粒

金属颗粒对光的高反射、高吸收使其产生很大的散射排斥力,因此传统聚焦激光光镊无法实现对介观尺寸金属颗粒(颗粒大小为几十纳米或几微米量级)的稳定捕获^[13,49,72]。2013 年,袁小聪等^[73]提出并实现了新型聚焦 SPPs 光镊,解决了传统光镊难以捕获介观尺寸金属颗粒的难题。入射光波长为 1064 nm,最大功率为 100 mW。入射光经光学元件转化为径向偏振光后,再经倒置的高数值孔径($NA=1.49$)显微物镜紧聚焦于镀有 45 nm 金膜的玻璃基底,进而在金膜的上表面激发 SPPs。SPPs 向金膜中心传播并发生干涉,在光轴中心形成电磁场增强的 SPPs 虚拟探针,利用虚拟探针的梯度力可捕获金属颗粒。图 13 为基于紧聚焦径向偏振光束激发的 SPPs 光镊实验装置示意图,底部黄色箭头为入射径向偏振光的偏振方向,蓝色箭头为 SPPs 光场中金属颗粒受力方向。

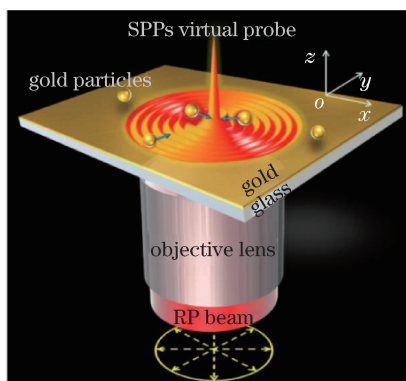


图 13 基于紧聚焦径向偏振光束激发 SPPs 的光镊实验装置示意图

Fig. 13 Experimental setup diagram of optical tweezers exciting SPPs based on tightly-focused radial polarization beam

聚焦 SPPs 光镊系统对于几十纳米至几微米尺寸的介质和金属颗粒都可实现稳定捕获,实验截图如图 14 所示,图中金颗粒直径 d 约为 $1\ \mu\text{m}$ 。图 14(a)、(b)分别为利用聚焦 SPPs 光镊对直径为 $1\ \mu\text{m}$ 和 $2.2\ \mu\text{m}$ 金颗粒的捕获过程,十字所在位置为虚拟探针的位置。图 14(a)、(b)相邻图片的时间间隔 Δt 分别约为 0.2 s 和 0.5 s,图中金颗粒被逐渐吸引至虚拟探针处,实现稳定捕获。图 14(c)为同样条件下利用聚焦激光光镊捕获金颗粒的情况对比,相邻图片时间间隔约为 0.15 s,从图中可以看出,由于散射力把金颗粒推走,聚焦激光光镊无法实现对金颗粒的稳定捕获。图 14(d)、(e)为利用 SPPs 光镊实现对多个金颗粒排列的图案。

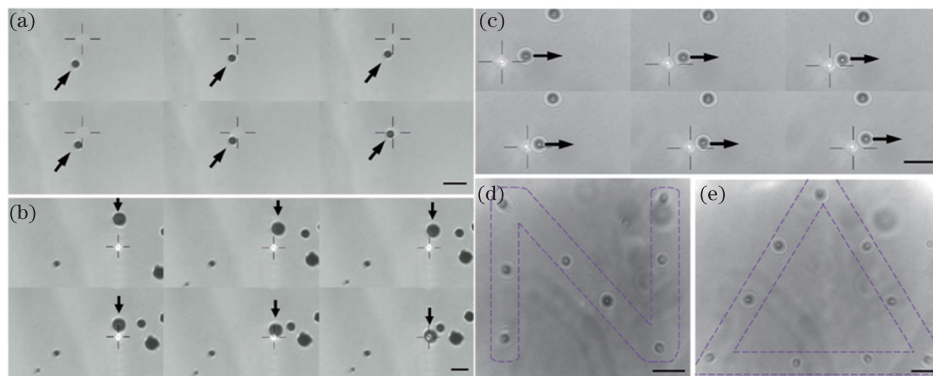


图 14 SPPs 光镊和激光光镊的对比实验。(a) $d=1\ \mu\text{m}$, $\Delta t=0.2\ \text{s}$;
(b) $d=2.2\ \mu\text{m}$, $\Delta t=0.5\ \text{s}$; (c) $\Delta t=0.15\ \text{s}$; (d) 颗粒阵列

Fig. 14 Comparison of SPPs optical tweezers and laser optical tweezers experiments. (a) $d=1\ \mu\text{m}$, $\Delta t=0.2\ \text{s}$;
(b) $d=2.2\ \mu\text{m}$, $\Delta t=0.5\ \text{s}$; (c) $\Delta t=0.15\ \text{s}$; (d) partical array

为了揭示激光光镊和 SPPs 光镊对金属颗粒的不同作用,研究人员利用基于 FDTD 和 MST 的算法对比

分析了金属颗粒在聚焦光场和聚焦 SPPs 光场中的受力情况。激光光镊和 SPPs 光镊均采用径向偏振光波长为 1064 nm、入射功率为 100 mW 的光源,不同的是,激光光镊中去掉了激发 SPPs 的金膜。两种光镊技术的理论计算结果如图 15 所示,图 15(a)~(c)分别为金属颗粒在 SPPs 光场中的受到的合力、梯度力以及散射力;15(d)~(f)分别对应金属颗粒在激光光场中受到的合力、梯度力以及散射力。不难发现,当金属颗粒位于 SPPs 光场中时,由于 SPPs 提供指向中心的梯度力作用,金颗粒被吸引至 SPPs 虚拟探针位置(中心位置);激光光镊中金属颗粒所受散射力大于梯度力,被推离光斑中心位置,无法实现捕获。

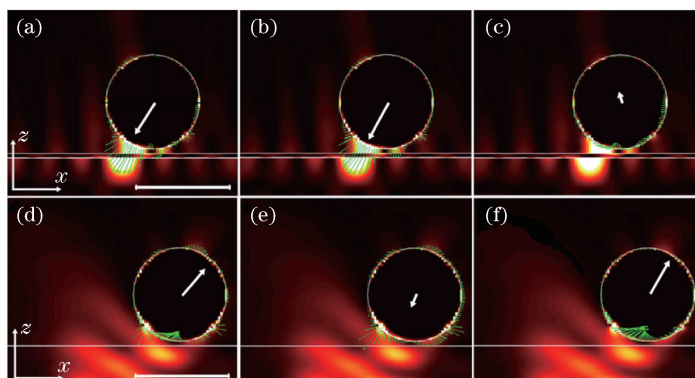


图 15 利用基于 FDTD 和 MST 的算法对颗粒在(a)SPPs 光场和(b)激光光场中的受力情况分析

Fig. 15 Force analysis of particles by algorithm which is based on FDTD and MST methods in (a) SPPs light field and (b) laser light field

实验中操控 10 个左右的金属颗粒,将金属粒子摆成了字母 N 及三角形的图案,证明了该系统可以动态操控颗粒位置,进一步为基于微纳颗粒的微结构制作以及定点拉曼光谱增强等领域的应用提供了可能。

3.2.2 聚焦 SPPs 光镊操纵纳米线

2014 年,袁小聪等^[74]基于线偏振光激发的聚焦 SPPs 光镊系统实现了对金属纳米线的捕获与旋转操纵。当金属纳米线置于金属膜表面时,由于金属纳米线激发的 LSP 与金属膜激发的 SPPs 光场相互耦合增强,光场能量集中在纳米线与金属膜中间狭长的间隙中,此间隙区域内获得极大的场增强^[75-79]。与聚焦 SPPs 光镊系统类似,不同的是激发光束由径向偏振光换成线偏振光,样品是直径为 75 nm、长度为 1 μm 的金纳米线,系统光路图如图 16 所示。

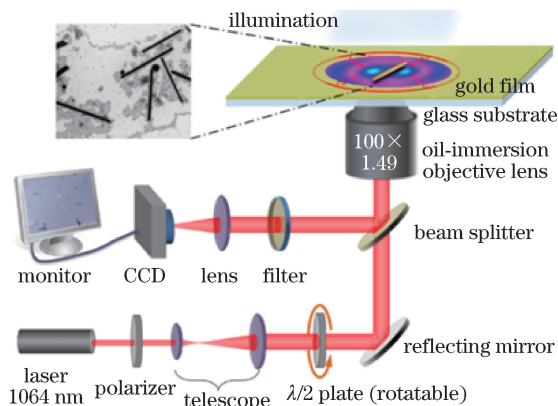


图 16 基于线偏振 SPPs 的光镊系统光路图

Fig. 16 Optical path diagram of optical tweezers system based on linear-polarization SPPs

处于 SPPs 光场中的纳米线被吸引到金属膜表面的 SPPs 光场中心位置。图 17 展示了捕获离心位置金纳米线的理论与实验结果图。图 17(a)为非平衡位置金纳米线的位置示意图。图 17(b)为非平衡位置纳米线的电场分布与受力情况,背景为电场强度,箭头所示方向为该处受力方向,可以看出,纳米线主要受向中心位置的吸引力作用。图 17(c)中十字所在位置为 SPPs 光场中心位置,可以看到金纳米线逐步被吸引到中心位置并捕获,实验结果与理论结果相吻合。

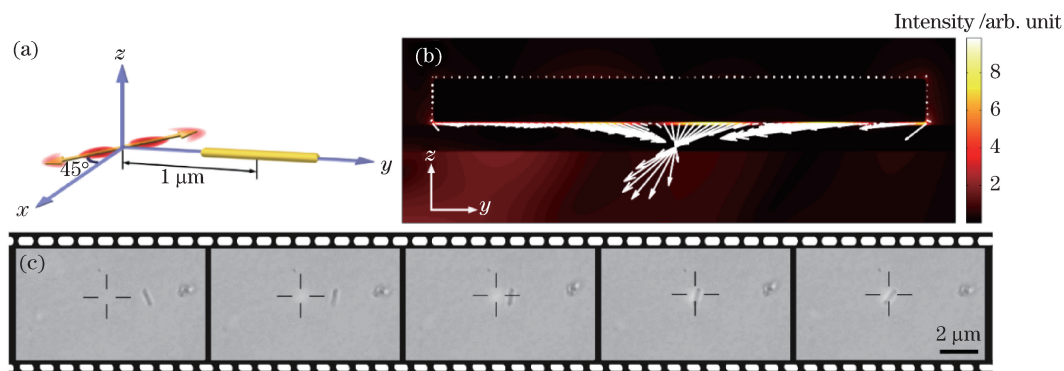


图 17 非平衡位置金纳米线的(a)位置示意图、(b)受力分析图以及(c)捕获过程

Fig. 17 (a) Location diagram, (b) force analysis diagram and (c) capture process of gold nanowire at non-equilibrium position

实验中,当金纳米线被捕获到金属膜表面 SPPs 的光场中心位置后,如果纳米线本身的方向与入射光的线偏振方向有一定夹角,纳米线周围产生非对称的 SPPs 光场分布,并产生一个旋转力矩使纳米线发生旋转。研究发现,金纳米线在 SPPs 光场中最终的平衡位置方向与入射光偏振方向垂直。因此,当金属纳米线被 SPPs 光场稳定捕获后,改变入射光的偏振方向(实验中通过旋转半波片实现)可实现纳米线的顺时针/逆时针旋转,如图 18 所示。

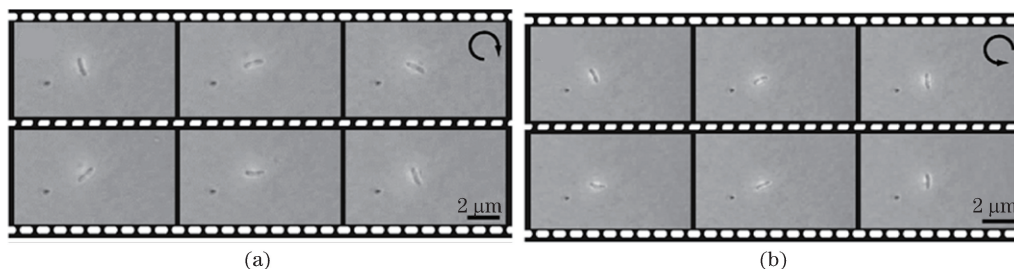


图 18 被捕获的纳米线的(a)顺时针旋转和(b)逆时针旋转

Fig. 18 (a) Clockwise and (b) anticlockwise rotations of trapped gold nanowires

2016 年,该课题组利用聚焦 SPPs 光镊系统实现了对半导体 ZnO 纳米线的捕获、操纵与结构搭建^[80]。实验发现,激光光镊捕获 ZnO 纳米线时,纳米线从水平状态变为竖起状态;SPPs 光镊对 ZnO 的捕获始终稳定在与金属膜平行的水平面内,更有利于平面内片上纳米线结构的构建。该工作验证了 SPPs 光镊对半导体材料片上操纵的优势,对基于纳米线结构的光电器件的制备具有重要的参考价值^[81-83]。

3.2.3 聚焦表面等离激元旋涡光镊操纵金属颗粒

光学旋涡(OV)是一种拥有螺旋相位和轨道角动量的特殊光束,近年来成为国际上的一个研究热点。基于光学旋涡的光镊技术被广泛应用于对微观介质的光学操纵领域,称为光学扳手^[84-89]。表面等离激元旋涡(PV)作为光学旋涡在 SPPs 中的对应光场,同时具备了光学旋涡和表面等离激元的特点,在光镊、微观结构设计、超分辨显微成像以及表面拉曼散射增强等领域都具有重要的应用价值。

2015 年,袁小聪等^[90]采用径向偏振旋涡光束紧聚焦激发 PV 的方法将多个金颗粒稳定地捕获在 PV 聚焦环上,形成 PV 光镊。图 19 为金属颗粒被 PV 光镊操纵的示意图,径向偏振 OV 光束激发的 SPPs 向中心传播并相互干涉,产生的 PV 场为一系列 SPPs 驻波圆环。由于 OV 光束的轨道角动量传递给 PV,PV 场中每个亮环都具有轨道角动量,产生切向推动力,因此被捕获的颗粒有序地绕光场中心做圆周运动,且颗粒运动半径和速度可通过入射轨道角动量的数值来调控。

为了揭示 PV 光镊系统与 OV 光镊系统中金属颗粒捕获与运动情况的不同,研究人员针对有/无金膜条件下的 PV/OV 光镊作对比实验,如图 20 所示。图 20(a)、(b)为金颗粒在 OV 光镊中的运动。从图 20(a)可以看出,金颗粒在 OV 光镊中的运动形式较难掌控,由于散射力的作用,当颗粒从外部接近 OV 聚焦主环时很快被推开。为了解决这个问题,研究人员将颗粒预先置于 OV 聚焦主环内部,成功地将其限制在圆环内部,使其做圆周运动,如图 20(b)所示,但此方法使得 OV 光镊捕获的成功率受颗粒初始位置的影响较大。

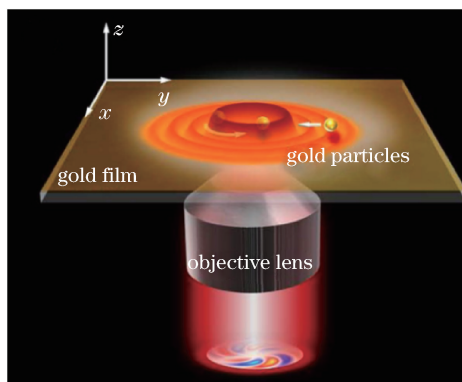


图 19 PV 光镊操纵金属颗粒的示意图

Fig. 19 Diagram of gold particles manipulated by PV tweezers

图 20(c)为 PV 光镊系统捕获金颗粒并将其旋转的实验结果, PV 场中多个金颗粒可以从远处被 PV 场吸引, 被稳定捕获在 PV 聚焦圆环上, 并有序地绕中心做圆周运动。

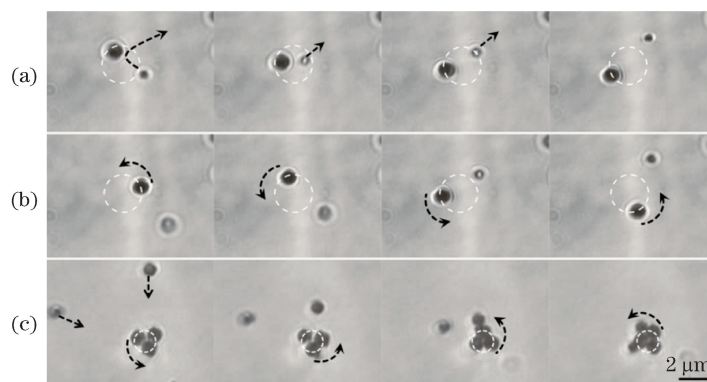


图 20 (a)(b)金属颗粒在 OV 光镊系统中的运动;(c)金属颗粒在 PV 光镊系统中的运动

Fig. 20 (a)(b) Movement of metal particles in OV optical tweezers system;

(c) movement of metal particles in PV optical tweezers system

为了形象地展示金属颗粒在两种旋涡光镊中的捕获与运动情况, 研究人员根据 FDTD 模拟与 MST 计算得到颗粒在 PV 和 OV 聚焦场中的受力分布, 并画出了两种旋涡场中的势阱分布。图 21(a)为金颗粒在 OV 场中的势阱分布, 在 OV 场中, 径向方向强大的散射力使颗粒远离强度最高的聚焦亮环, 因此颗粒在聚焦亮环两端时的势能大于零($U > 0$), 在亮环处产生了一道能量壁垒, 阻止环外颗粒接近, 同时阻止原来在环内部的颗粒逃逸。图 21(b)为金颗粒在 PV 场中的势阱分布, 颗粒在 PV 场中受到的势能在聚焦环处产生了负的势阱($U < 0$), 使得金属颗粒在 PV 场中(环内或环外)受到吸引后落入环形势阱中。图中 F_{ϕ} 为力的角向分量。理论结果与实验结果吻合, 充分证明了 PV 光镊作为一种新型的光学扳手在操纵金属颗粒方面相对于传统 OV 光镊的优越性, PV 光镊可应用于轨道角动量检测等领域。

4 SPPs 光镊技术的应用

SPPs 光镊技术作为一种高精度、强场增强、全光动态的光学操控手段, 对光镊技术的发展具有重要价值, 在很多领域具有广阔的应用前景, 以下介绍 SPPs 光镊技术的应用。

4.1 基于结构型 SPPs 光镊的 DNA 分子捕获

2013 年, Tsuboi 等^[91]利用连续激光与飞秒激光形成的 SPPs 光镊捕获生物分子。实验中, 在玻璃基底上制作纳米金属结构, 并在特定位置激发 SPPs 热点, 从而实现目标样品的捕获。玻璃基底上的纳米结构为金纳米金字塔二聚物阵列, 此阵列的每个单元由两个大小不同的金纳米金字塔构成, 较小金字塔的高和底边长均约为 30 nm, 较大金字塔的高和底边长均约为 50 nm, 如图 22 所示。

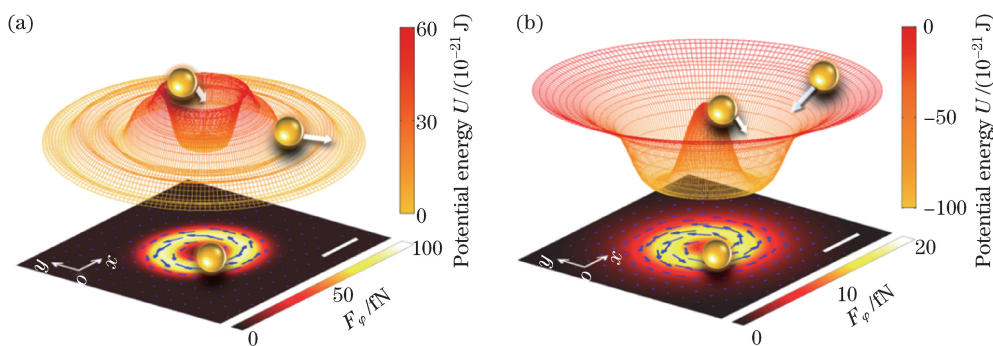


图 21 金颗粒在(a)OV 场和(b)PV 场中的势阱分布

Fig. 21 Potential well distributions of metal particles in (a) OV filed and (b) PV filed

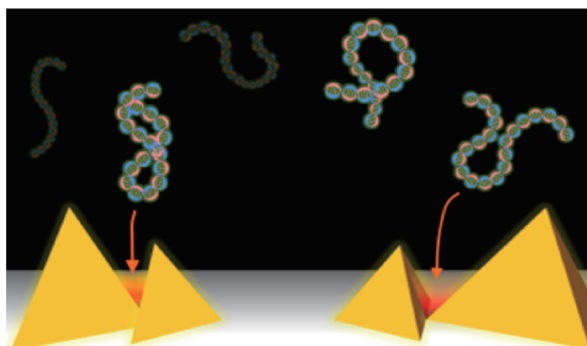


图 22 SPPs 光镊捕获 DNA 的示意图

Fig. 22 Diagram of DNA trapped by SPPs optical tweezers

实验中, λ -DNA 分子被 YOYO-1 染料标记, YOYO-1 为典型的 DNA 分子荧光探针, 可以发出绿色的荧光。图 23(a)为利用近红外连续激光照射形成 SPPs 光镊捕获 DNA 分子过程图, 在连续光照射下, 照明区域内形成了 DNA 分子的永久性微米圆环结构。永久性圆环结构的形成不仅受局域电场增强产生的梯度力的作用, 还受辐射力和热泳力的共同作用。在入射光照射下, 由于温度的升高, 照明区域产生了热对流和热泳作用, 将 DNA 分子从较热区域运输到较冷区域。在照明区域的边缘, 辐射力克服了热泳力, 将 DNA 分子稳定捕获。停止照明后, 微环结构仍然保留在金纳米结构基底上, 这主要归结于 DNA 分子与基底表面电荷之间的库仑力作用。图 23(b)为利用飞秒激光进行实验的过程, 结果发现, 使用飞秒激光进行 DNA 捕获和释放的过程与使用连续激光的情况大不相同。在飞秒激光的照射下, λ -DNA 的绿色荧光随着照射时间逐渐变深, 表明 SPPs 光镊实现了对 λ -DNA 的捕获。飞秒模式下, DNA 分子在照明区域形成圆盘结构而不是圆环结构, 当移除入射光后, 可以清楚地看到圆盘结构逐渐释放。这是由于飞秒脉冲具有很高的峰值功率, 在照明区域内产生了很强的辐射压, 可以直接克服热泳力并将 DNA 分子捕获。

该研究表明, 通过控制入射光的脉冲和照明区域, 可绘制不同的 λ -DNA 动态图案, 飞秒 SPPs 光镊技术在捕获蛋白质和多糖等生物分子方面具有广阔的应用前景。

4.2 基于全光调控 SPPs 光镊的动态 SERS 技术

2013 年, 袁小聪等^[92]进行了基于全光调控 SPPs 光镊系统的动态表面增强拉曼光谱(SERS)技术研究。该技术将 SPPs 光镊技术对金属纳米结构的动态操控能力和 SERS 的物质成分识别能力相结合, 在物质成分分析与成像等领域具有重要的应用价值。

径向偏振光束紧聚焦在金属纳米薄膜上, 激发 SPPs, 图 24(a)为 SPPs 虚拟探针附近的电磁场能量分布情况。当金纳米颗粒被 SPPs 光镊捕获后, 金纳米颗粒与金属膜之间形成 Gap 结构。与 SPPs 虚拟探针附近的电磁场能量分布相比, SPPs 光镊捕获金纳米颗粒后, 电磁场能量在空间上被压缩, 进一步增强了颗粒附近的电磁场。图 24(b)、(c)分别为 SPPs 光镊捕获金纳米颗粒后的三维结果图和二维结果图。从图 24(c)可以看出, 由于金属纳米颗粒的作用, 能量主要被局域到金属纳米颗粒和金属膜之间狭小的 Gap 区域内, 产生

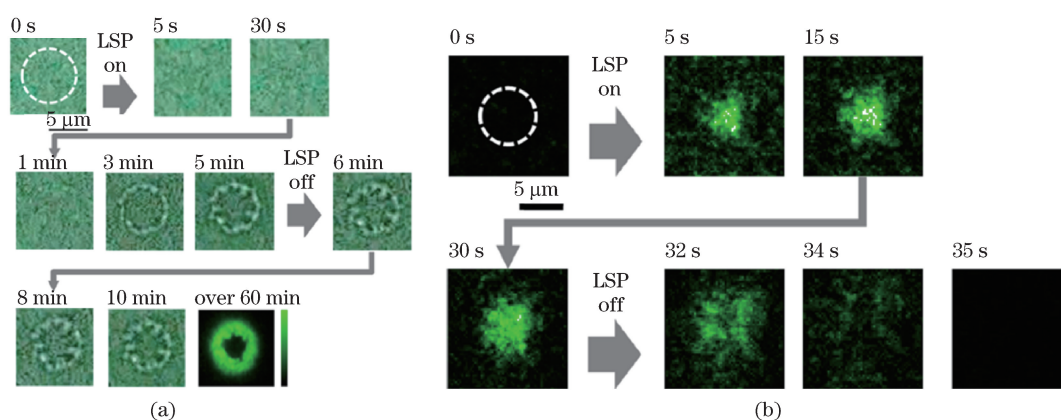


图 23 利用(a)连续激光和(b)飞秒激光照射形成 SPPs 光镊捕获 DNA 的过程图

Fig. 23 Process diagrams of DNA trapped by SPPs optical tweezers with (a) continuous laser and (b) femtosecond laser

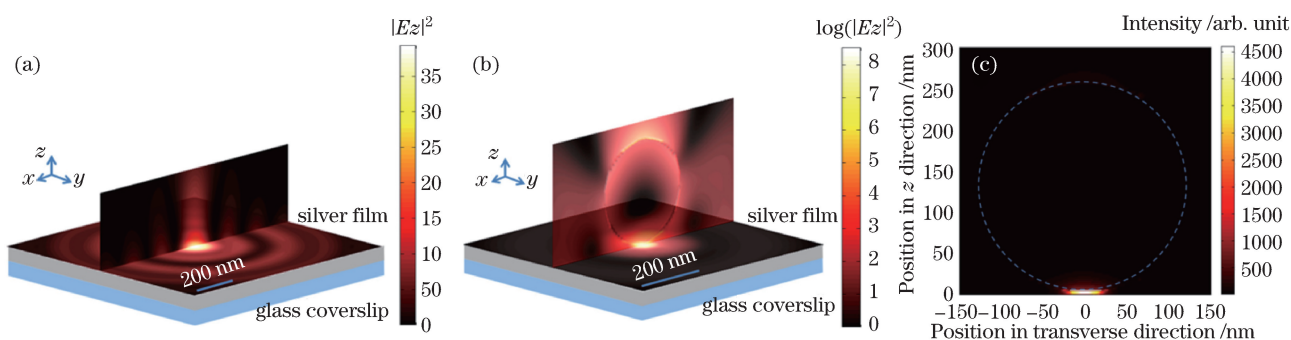


图 24 (a) SPPs 虚拟探针附近的电磁场能量分布; SPPs 光镊捕捉金属纳米颗粒后(b)三维和(c)二维电磁场能量分布

Fig. 24 (a) Electromagnetic energy distribution nearby SPPs virtual probe; (b) three-dimensional and (c) two-dimensional electromagnetic energy distributions of metal particle trapped by SPPs optical tweezers

10^4 量级的超高电磁场增强。Gap 区域内样品的拉曼信号也得到很大增强,理论预测该结构的拉曼增强因子大于 10^9 。

该系统的主要组成部分包括径向偏振光束的产生及调控部分、SPPs 激发部分、SPPs 光镊动态控制部分以及拉曼信号收集部分。该系统可实现定点拉曼信号增强的探测且探测位置可控。该系统捕获金属颗粒的方法与聚焦 SPPs 光镊对金属颗粒操控的实验相同,即利用 SPPs 光镊将金属颗粒移动至预定的位置,从而增强了定点位置的拉曼信号。被捕获的金属纳米颗粒的移动过程如图 25 所示,图中金属纳米颗粒的直径为 250 nm,白色环内的颗粒为固定位置参照物,红色环内的颗粒为被捕获颗粒。

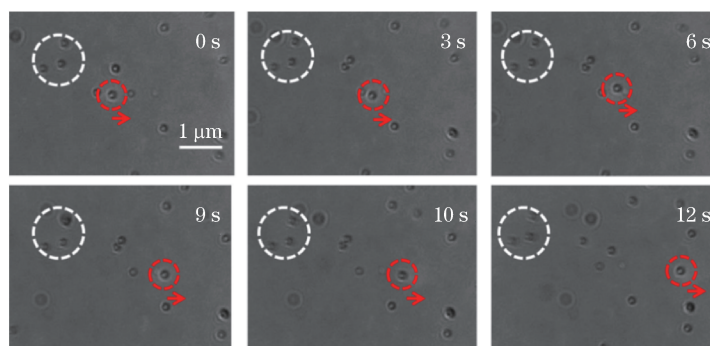


图 25 SPPs 光镊移动金属纳米颗粒的过程图

Fig. 25 Progress diagram of metal nanoparticle shifted by SPPs tweezers

针对 SERS 基底,实验中利用在金属纳米薄膜上自组装的方法形成了拉曼分子的单分子层或多分子层,并借助 SPPs 光镊的捕捉、操控能力形成了金属纳米颗粒-拉曼分子-金属纳米薄膜的三层结构。图 26 为捕

获颗粒(红色曲线)、释放颗粒(蓝色曲线)以及再次捕获颗粒(黑色曲线)的拉曼光谱。结果证实了 Gap 结构的形成以及此结构中拉曼信号的增强,验证了该 SPPs 光镊系统对拉曼信号的实时、动态检测能力^[93]。

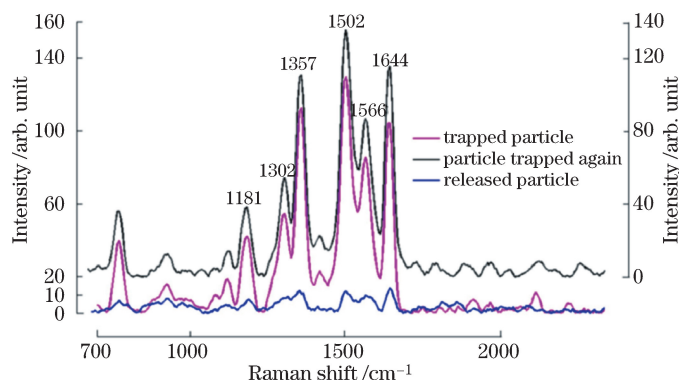


图 26 捕获颗粒、释放颗粒以及再次捕获颗粒的拉曼光谱

Fig. 26 Raman spectra of trapped particle, released particle and particle trapped again

该动态 SERS 增强与检测技术具有很高的纳米空间分辨率,并且具有很强的电磁场增强能力、动态扫描能力以及基于细胞吞噬纳米金属颗粒的能力,为细胞内物质成分的拉曼检测与成像提供了可能。

5 总结与展望

SPPs 可突破衍射极限,具有近场能量较强和设计灵活等优点,为纳米尺度的近场光学捕获与操纵提供了新的突破点,并产生了许多基于 SPPs 的新型光镊技术及其应用。

基于金属纳米结构的 SPPs 光镊具有捕获精度高以及可实现多颗粒阵列捕获(如结构阵列)等优点,是针对纳米量级物体捕获的一种非常有效的方法,目前的研究主要集中在提高捕获精度、实现单分子捕获以及与功能结构(如纳米光开关)的结合等领域。基于全光调制的 SPPs 光镊具有动态操控的优点,可对激发光的偏振、相位等基本特性进行调制,实现平滑金属表面上的 SPPs 光场的动态调控,从而拓展了 SPPs 光镊技术的灵活性和研究领域,目前的研究主要集中在提高激发效率^[94-96]、实现高精度拉曼扫描成像以及与数字微镜器件或脉冲光束等结合实现更高自由度的 SPPs 光场调控等领域。作为一种具有纳米量级精度的操纵手段,SPPs 光镊可以实现分子水平甚至原子水平的操控和检测,为物理化学、生命科学、临床医学等领域的研究提供了重要的研究工具^[97-99]。利用阵列 SPPs 光镊的多对象捕获可以实现对纳米颗粒的鉴别、分选等功能^[100-101],该技术可为药物筛选以及基于微小差异的细胞分选等研究提供重要的技术手段。利用 SPPs 光镊动态操控的优势也可以实现金属表面纳米结构的搭建,在构建光电功能芯片与器件方面具有重要的应用前景。SPPs 光镊技术在捕获纳米级研究对象的同时常伴随着很高的电磁场增强,在光谱、传感、催化、生物技术等领域具有重要的应用价值。SPPs 光镊技术的进一步发展将为纳米光子学、纳米生物学和医药学的研究和发展带来深远影响。

参 考 文 献

- 1 Ashkin A, Dziedzic J M, Bjorkholm J E, *et al.* Observation of a single-beam gradient force optical trap for dielectric particles[J]. *Opt Lett*, 1986, 11(5): 288-290.
- 2 Ashkin A. History of optical trapping and manipulation of small-neutral particle, atoms, and molecules[J]. *IEEE Journal on Selected Topics in Quantum Electronics*, 2000, 6(6): 841-856.
- 3 李银妹, 楼立人. 纳米光镊技术[J]. *激光与光电子学进展*, 2003, 40(1): 1-5.
- 4 Jonás A, Zemánek P. Light at work: the use of optical forces for particle manipulation, sorting, and analysis[J]. *Electrophoresis*, 2008, 29(24): 4813-4851.
- 5 Dienerowitz M, Mazilu M, Dholakia K. Optical manipulation of nanoparticles: a review[J]. *Journal of Nanophotonics*, 2008, 2(1): 021875.
- 6 Zhan Q W. Cylindrical vector beams: from mathematical concepts to applications[J]. *Advances in Optics and Photonics*, 2009, 1(1): 1-57.

- 7 Dholakia K, Čizmar T. Shaping the future of manipulation[J]. Nat Photonics, 2011, 5: 335-342.
- 8 Padgett M, Bowman R. Tweezers with a twist[J]. Nat Photonics, 2011, 5: 343-348.
- 9 Huo Xin, Pan Shi, Sun Wei. Principles and development of laser trapping technique[J]. Optical Technique, 2006, 32(2): 311-315, 318.
霍 鑫, 潘 石, 孙 伟. 激光捕获技术及其发展[J]. 光学技术, 2006, 32(2): 311-315, 318.
- 10 Kawata S, Sugita T. Movement of micrometer-sized particles in the evanescent field of a laser beam[J]. Opt Lett, 1992, 17(11): 772-774.
- 11 Wang K Y, Zhen J, Huang W H. The possibility of trapping and manipulating a nanometer scale particle by the SNOM tip[J]. Opt Commun, 1998, 149(1-3): 38-42.
- 12 Chaumet P C, Rahmani A, Nieto-Vesperinas M. Optical trapping and manipulation of nano-objects with an apertureless probe[J]. Phys Rev Lett, 2002, 88(12): 123601.
- 13 Gu M, Haumonte J, Mischeau Y, *et al.* Laser trapping and manipulation under focused evanescent wave illumination[J]. Appl Phys Lett, 2004, 84(21): 4236-4238.
- 14 Barnes W L, Dereux A, Ebbesen T W. Surface plasmon subwavelength optics[J]. Nature, 2003, 424(6950): 824-830.
- 15 Maier S A. Plasmonics: fundamentals and applications[M]. New York: Springer Science+Business Media LLC, 2007.
- 16 Quidant R, Girard C. Surface-plasmon-based optical manipulation[J]. Laser & Photonics Review, 2008, 2(1-2): 47-57.
- 17 Wang K, Schonbrun E, Steinvurzel P, *et al.* Propulsion of gold nanoparticles with surface plasmon polaritons: evidence of enhanced optical force from near-field coupling between gold particle and gold film[J]. Nano Lett, 2009, 9(7): 2623-2629.
- 18 Righini M, Volpe G, Girard C, *et al.* Surface plasmon optical tweezers: tunable optical manipulation in the femtonewton range[J]. Phys Rev Lett, 2008, 100(18): 186804.
- 19 Wang K, Corzier K B. Plasmonic trapping with a gold nanopillar[J]. Chem Phys Chem, 2012, 13(11): 2639-2648.
- 20 Kotnala A, Gordon R. Quantification of high-efficiency trapping of nanoparticles in a double nanohole optical tweezer[J]. Nano Lett, 2014, 14(2): 853-856.
- 21 Yan Z J, Justin J E, Sweet J, *et al.* Three-dimensional optical trapping and manipulation of single silver nanowires[J]. Nano Lett, 2012, 12(10): 5155-5161.
- 22 Kotsifaki D G, Kandyla M, Lagoudakis P G. Plasmon enhanced optical tweezers with gold-coated black silicon[J]. Sci Rep, 2016, 6: 26275.
- 23 Kawata S. Near-field optics and surface plasmon polaritons[M]. Berlin: Springer Science & Business Media, 2001.
- 24 Raether H. Surface plasmons on smooth and rough surfaces and on gratings[M]. Berlin: Springer-Verlag, 1988.
- 25 Dykhne A M, Sarychev A K, Shalaev V M. Resonant transmittance through metal films with fabricated and light-induced modulation[J]. Phys Rev B, 2003, 67: 195402.
- 26 Otto A. Excitation of nonradiative surface plasma waves in silver by the method of frustrated total reflection [J]. Zeitschrift für Physik, 1968, 216(4): 398-410.
- 27 Kretschmann E, Raether H. Radiative decay of non radiative surface plasmons excited by light [J]. Znaturforsch für Naturforschung A, 1968, 23(12): 2135-2136.
- 28 Hecht B, Bielefeldt H, Novotny L, *et al.* Local excitation, scattering, and interference of surface plasmons[J]. Phys Rev Lett, 1996, 77(9): 1889-1892.
- 29 Hornauer D, Kapitza H, Raether H. The dispersion relation of surface plasmonson rough surfaces[J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 1974, 7(9): L100-L102.
- 30 Nash D J, Cotter N P K, Wood E L, *et al.* Examination of the +1, -1 surface plasmon mini-gap on a gold grating[J]. Journal of Modern Optics, 1995, 42(1): 243-248.
- 31 Kano H, Mizuguchi S, Kawata S. Excitation of surface-plasmon polaritons by a focused laser beam [J]. Journal of the Optical Society of America B, 1998, 15(4): 1381-1386.
- 32 Moh K J, Yuan X C, Bu J, *et al.* Surface plasmon resonance imaging of cell-substrate contacts with radially polarized beams[J]. Opt Express, 2008, 16(25): 20734-20741.
- 33 Moh K J, Yuan X C, Bu J, *et al.* Radial polarization induced surface plasmon virtual probe for two-photon fluorescence microscopy[J]. Opt Lett, 2009, 34(7): 971-973.
- 34 Zhan Q. Evanescent Bessel beam generation via surface plasmon resonance excitation by a radially polarized beam[J]. Opt Lett, 2006, 31(11): 1726-1728.
- 35 Sato S, Harada Y, Waseda Y. Optical trapping of microscopic metal particles[J]. Opt Lett, 1994, 19(22): 1807-1809.

- 36 Ke P C, Gu M. Characterization of trapping force on metallic Mie particles[J]. *Appl Opt*, 1999, 38(1): 160-167.
- 37 Kaneta T, Ishidzu Y, Mishima N, *et al.* Theory of optical chromatography[J]. *Anal chem*, 1997, 69(14): 2701-2710.
- 38 Ren K F, Gréhan G, Gouesbet G. Prediction of reverse radiation pressure by generalized Lorenz-Mie theory[J]. *Appl Opt*, 1996, 35(15): 2702-2710.
- 39 Lock J A. Calculation of the radiation trapping force for laser tweezers by use of generalized Lorenz-Mie theory. II. On-axis trapping force[J]. *Appl Opt*, 2004, 43(12): 2545-2554.
- 40 Lock J A. 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[J]. *Appl Optics*, 2004, 43(12): 2532-2544.
- 41 Grehan G, Maheu B, Gouesbet G. Scattering of laser beams by Mie scatter centers: numerical results using a localized approximation[J]. *Appl Opt*, 1986, 25(19): 3539-3548.
- 42 Wright W H, Sonek G J, Berns M W. Parametric study of the forces on microspheres held by optical tweezers[J]. *Appl Opt*, 1994, 33(9): 1735-1748.
- 43 Chaumet P C, Nieto-Vesperinas M. Time-averaged total force on a dipolar sphere in an electromagnetic field[J]. *Opt Lett*, 2000, 25(15): 1065-1067.
- 44 Chaumet P C, Nieto-Vesperinas M. Coupled dipole method determination of the electromagnetic force on a particle over a flat dielectric substrate[J]. *Phys Rev B*, 2000, 61(20): 14119-14127.
- 45 Chaumet P C, Nieto-Vesperinas M. Electromagnetic force on a metallic particle in the presence of a dielectric surface[J]. *Phys Rev B*, 2000, 62(16): 11185-11191.
- 46 Arias-Gonzalez J R, Nieto-Vesperinas M. Optical forces on small particles: attractive and repulsive nature and plasmon-resonance conditions[J]. *Journal of the Optical Society of America A*, 2003, 20(7): 1201-1209.
- 47 Harada Y, Asakura T. Radiation forces on a dielectric sphere in the Rayleigh scattering regime[J]. *Opt Commun*[J]. 1996, 124(5-6): 529-541.
- 48 Griffiths D J. Introduction to electrodynamics[M]. Upper Saddle River: Prentice Hall, 1999: 351-356.
- 49 Zhan Q. Trapping metallic Rayleigh particles with radial polarization[J]. *Opt Express*, 2004, 12(15): 3377-3382.
- 50 Quidant R, Girard C. Surface-plasmon-based optical manipulation[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2008, 2(1-2): 47-57.
- 51 Righini M, Zelenina A S, Girard C, *et al.* Parallel and selective trapping in a patterned plasmonic landscape[J]. *Nat Phys*, 2007, 3: 477-480.
- 52 Righini M, Volpe G, Girard C, *et al.* Surface plasmon optical tweezers: tunable optical manipulation in the femtonewton range[J]. *Phys Rev Lett*, 2008, 100(18): 183604.
- 53 Huang L, Maerkl S J, Martin O J F. Integration of plasmonic trapping in a microfluidic environment[J]. *Opt Express*, 2009, 17(8): 6018-6024.
- 54 Grigorenko A N, Roberts N W, Dickinson M R, *et al.* Nanometric optical tweezers based on nanostructured substrates[J]. *Nat Photonics*, 2008, 2: 365-370.
- 55 Righini M, Ghenuche P, Cherukulappurath S. Nano-optical trapping of Rayleigh particles and *Escherichia coli* bacteria with resonant optical antennas[J]. *Nano Lett*, 2009, 9(10): 3387-3391.
- 56 Zhang W, Huang L, Santschi C, *et al.* Trapping and sensing 10 nm metal nanoparticles using plasmonic dipole antennas[J]. *Nano Lett*, 2010, 10(3): 1006-1011.
- 57 Tang L, Kocabas S E, Latif S, *et al.* Nanometre-scale germanium photodetector enhanced by a near-infrared dipole antenna[J]. *Nat Photonics*, 2008, 2: 226-229.
- 58 Kinkhabwala A, Yu Z F, Fan S H, *et al.* Large single-molecule fluorescence enhancements produced by a bowtie nanoantenna[J]. *Nat Photonics*, 2009, 3: 654-657.
- 59 Aćimović S, Kreuzer M P, González M U, *et al.* Plasmon near-field coupling in metal dimers as a step toward single-molecule sensing[J]. *ACS Nano*, 2009, 3(5): 1231-1237.
- 60 Garcia-Parajo M F. Optical antennas focus in on biology[J]. *Nat Photonics*, 2008, 2: 201-203.
- 61 Kim S, Jin J, Kim Y J, *et al.* High-harmonic generation by resonant plasmon field enhancement[J]. *Nature*, 2008, 453(7196): 757-760.
- 62 Juan M L, Gordon R, Pang Y J, *et al.* Self-induced back-action optical trapping of dielectric nanoparticles[J]. *Nat Phys*, 2009, 5: 915-919.
- 63 Genet C, Ebbesen T W. Light in tiny holes[J]. *Nature*, 2007, 445: 39-46.
- 64 García-Vidal F J, Moreno E, Porto J A, *et al.* Transmission of light through a single rectangular hole[J]. *Phys Rev*

- Lett, 2005, 95(10): 103901.
- 65 García-Vidal F J, Martín-Moreno L, Moreno E, *et al.* Transmission of light through a single rectangular hole in real metal[J]. Phys Rev B, 2006, 74: 153411.
- 66 de García A F. Light transmission through a single cylindrical hole in a metallic film[J]. Opt Express, 2002, 10(25): 1475-1484.
- 67 Berthelot J, Aćimović S S, Juan M L, *et al.* Three-dimensional manipulation with scanning near-field optical nanotweezers [J]. Nat Nanotechnol, 2014, 9(4): 295-299.
- 68 Pang Y, Gordon R. Optical trapping of a single protein[J]. Nano Lett, 2012, 12(1): 402-406.
- 69 Wei S, Lin J, Wang R, *et al.* Self-imaging generation of plasmonic void arrays[J]. Opt Lett, 2013, 38(15): 2783-2785.
- 70 Wang R, Du L P, Zhang C L, *et al.* A plasmonic petal-shaped beam for a microscopic phase sensitive SPR biosensor with ultrahigh sensitivity[J]. Opt Lett, 2013, 38: 4770-4773.
- 71 Zhang C L, Wang R, Min C J, *et al.* Experimental approach to the microscopic phase-sensitive surface plasmon resonance biosensor[J]. Appl Phys Lett, 2013, 102: 011114.
- 72 Hansen P M, Bhatia V K, Harrit N, *et al.* Expanding the optical trapping range of gold nanoparticles[J]. Nano Lett, 2005, 5(10): 1937-1942.
- 73 Min C J, Shen Z, Shen J F, *et al.* Focused plasmonic trapping of metallic particles[J]. Nat Commun, 2013, 4: 2891.
- 74 Zhang Y Q, Wang J, Shen J F, *et al.* Plasmonic hybridization induced trapping and manipulation of a single Au nanowire on a metallic surface[J]. Nano Lett, 2014, 14(11): 6430-6436.
- 75 Ciraci C, Hill R T, Mock J J, *et al.* Probing the ultimate limits of plasmonic enhancement [J]. Science, 2012, 337 (6098): 1072-1074.
- 76 Du L P, Yuan L D, Yuan G H, *et al.* Mapping plasmonic near-field profiles and interferences by surface-enhanced Raman scattering[J]. Sci Rep, 2013, 3: 3064.
- 77 Maarouf A I, Nygaard J V, Sutherland D S. Plasmon hybridization in silver nanoislands as semishells arrays coupled to a thin metallic film[J]. Plasmonics, 2011, 6(2): 419-425.
- 78 Nordlander P, Prodan E. Plasmon hybridization in nanoparticles near metallic surfaces[J]. Nano Lett, 2004, 4(11): 2209-2213.
- 79 Aubry A, Lei D Y, Maier S A, *et al.* Plasmonic hybridization between nanowires and a metallic surface: a transformation optics approach[J]. ACS Nano, 2011, 5(4): 3293-3308.
- 80 Zhang L C, Dou X J, Min C J, *et al.* In-plane trapping and manipulation of ZnO nanowires by hybrid plasmonic field[J]. Nanoscale, 2016, 8: 9756-9763.
- 81 Piccione B, Cho C H, van Vugt L K, *et al.* All-optical active switching in individual semiconductor nanowires[J]. Nat Nanotechnol, 2012, 7(10): 640-645.
- 82 Kurt H, Giden I H, Citrin D S. Design of T-shaped nanophotonic wire waveguide for optical interconnection in H-tree network[J]. Opt Express, 2011, 19(27): 26827-26838.
- 83 Wei H, Wang Z X, Tian X R, *et al.* Cascaded logic gates in nanophotonic plasmon networks[J]. Nat Commun, 2011, 2: 387.
- 84 He H, Friese M E, Heckenberg N R, *et al.* Direct observation of transfer of angular momentum to absorptive particles from a laser beam with a phase singularity[J]. Phys Rev Lett, 1995, 75(5): 826-829.
- 85 Simpson N B, Dholakia K, Allen L, *et al.* Mechanical equivalence of spin and orbital angular momentum of light: an optical spanner[J]. Opt Lett, 1997, 22(1): 52-54.
- 86 Gahagan K T, Swartzlander G A. Simultaneous trapping of low-index and high-index microparticles observed with an optical-vortex trap[J]. Journal of the Optical Society of America B, 1999, 16(4): 533-537.
- 87 Curtis J E, Grier D G. Structure of optical vortices[J]. Phys Rev Lett, 2003, 90(13): 133901.
- 88 Jeffries G D M, Edgar J S, Zhao Y Q, *et al.* Using polarization-shaped optical vortex traps for single-cell nanosurgery [J]. Nano Lett, 2007, 7(2): 415-420.
- 89 Shvedov V G, Desyatnikov A S, Rode A V, *et al.* Optical vortex beams for trapping and transport of particles in air[J]. Appl Phys A, 2010, 100(2): 327-331.
- 90 Zhang Y Q, Shi W, Shen Z, *et al.* A plasmonic spanner for metal particle manipulation[J]. Sci Rep, 2015, 5: 15446.
- 91 Shoji T, Saitoh J, Kitamura N, *et al.* Permanent fixing or reversible trapping and release of DNA micropatterns on a gold nanostructure using continuous-wave or femtosecond-pulsed near-infrared laser light[J]. Journal of the American Chemical Society, 2013, 135(17): 6643-6648.

-
- 92 Shen J F, Wang J, Zhang C J, *et al.* Dynamic plasmonic tweezers enabled single-particle-film-system gap-mode surface-enhanced Raman scattering[J]. *Appl Phys Lett*, 2013, 103(19): 191119.
- 93 Yang A P. Measurement of multi-angle elastic back scattering spectra of microsphere based on off-axis parabolic mirror [D]. Tianjin: Nankai University, 2014.
- 94 Ostrovsky A S, Rickenstorff-Parrao C, Arrizón A. Generation of the “perfect” optical vortex using a liquid-crystal spatial light modulator[J]. *Opt Lett*, 2013, 38(4): 534-536.
- 95 García-García J, Rickenstorff-Parrao C, Ramos-García R, *et al.* Simple technique for generating the perfect optical vortex[J]. *Opt Lett*, 2014, 39(18): 5305-5308.
- 96 Vaity P, Rusch L. Perfect vortex beam: Fourier transformation of a Bessel beam[J]. *Opt Lett*, 2015, 40(4): 597-600.
- 97 Daniel M C, Astruc D. Gold nanoparticles: assembly, supramolecular chemistry, quantum-size-related properties, and applications toward biology, catalysis, and nanotechnology[J]. *Chem Rev*, 2004, 104(1): 293-346.
- 98 Thakor A S, Jokerst J, Zavaleta C, *et al.* Gold nanoparticles: a revival in precious metal administration to patients[J]. *Nano Lett*, 2011, 11(10): 4029-4036.
- 99 Svedberg F, Li Z P, Xu H X, *et al.* Creating hot nanoparticle pairs for surface-enhanced Raman spectroscopy through optical manipulation[J]. *Nano Lett*, 2006, 6(12): 2639-2641.
- 100 Ndukaife J C, Mishra A, Guler U, *et al.* Photothermal heating enabled by plasmonic nanostructures for electrokinetic manipulation and sorting of particles[J]. *ACS Nano*, 2014, 8(9): 9035-9043.
- 101 Roxworthy B J, Ko K D, Kumar A, *et al.* Application of plasmonic bowtie nanoantenna arrays for optical trapping, stacking, and sorting[J]. *Nano Lett*, 2012, 12(2): 796-801.