光电器件

DOI：10.16818/j.issn1001－5868.2024042601

基于硅基光子晶体微流通道的荧光定向发射增强特性研究

宋 婕，陈智辉*

（太原理工大学 新型传感器与智能控制教育部重点实验室，太原 030024）

摘 要： 为提高荧光检测的灵敏度，提出一种基于硅基光子晶体的微流通道结构。该结构可以有效增强通道内激发光场，实现量子点的荧光定向发射。利用平面波展开法计算光子晶体的能带结构，同时借助时域有限差分法详细研究了量子点偏振、通道结构参数，以及通道内量子点位置对荧光发射的影响。此外，还分析了该结构在量子点激发过程中的增强效应。仿真结果表明，与传统硅微流通道相比，光子晶体微流通道具有更高的远场发射功率以及更窄的辐射角；与玻璃基底相比，光子晶体微流通道中的量子点远场功率达到了 16.9 倍的增强以及 9°以内的窄角发射；光子晶体微流通道对 945 nm 的激发光场实现了平均 7.9 倍的增强。

关键词： 荧光传感；光子晶体；微流通道；定向发射；荧光增强

中图分类号： O657.3 **文章编号：** 1001－5868(2024)05－0732－06

Directional Fluorescence Emission Enhancement Using Silicon-based Photonic Crystal Microfluidic Channels

SONG Jie, CHEN Zhihui

(Key Laboratory of Advanced Transducers and Intelligent Control, Ministry of Education, Taiyuan University of Technology, Taiyuan 030024, CHN)

Abstract: To improve the sensitivity of fluorescence detection, a microfluidic channel structure using silicon-based photonic crystals is proposed. The microfluidic channel can effectively enhance the excitation light field and realize fluorescence-directed emission of quantum dots. The band structure of the photonic crystal was determined by the plane wave expansion method. The effects of quantum dot polarization, channel structure parameters, and the position of quantum dots in the channel on fluorescence emission were examined using the finite-difference time-domain method. In addition, the enhancement effect of the structure during the excitation of quantum dots was analyzed. The simulation results show that, compared with the traditional silicon microfluidic channel, the photonic crystal microfluidic channel has a higher far-field emission power and a narrower radiation angle. Compared with the glass substrate, the far-field power of quantum dots in the microfluidic channel of the photonic crystal achieves a 16.9-fold enhancement and a narrow-angle emission within 9°. The photonic crystal microfluidic channel achieves an average 7.9-fold enhancement of the excitation field at 945 nm.

Key words: fluorescence sensing; photonic crystals; microfluidic channels; directed emission; fluorescence enhancement

收稿日期：2024－04－26.

基金项目：国家自然科学基金项目（U22A20258，62175178，62205232）；山西省中央引导地方科技发展资金项目（YDZJSX2021A013）；山西省基础研究计划项目(202103021223046).

* **通信作者：**陈智辉

0　引言

量子点作为吸收和发射光谱可调的荧光材料在检测成像[1]、生物传感[2]、环境分析[3]等多个领域展现出了广泛的应用价值。发射波长在 900～1 700 nm 范围内的近红外Ⅱ区(NIR-Ⅱ)量子点在生物医学检测领域具有背景噪声弱、信号穿透深度大等优势，引起了研究人员的广泛关注[4-5]。利用 NIR-Ⅱ波段的量子点进行检测能够提供关于生物样品更为准确和深入的信息[6-7]。然而，当对低浓度生物溶液进行检测时，量子点在均质介质中的全向辐射特性会导致荧光信号的收集效率较低。因此，如何实现对低浓度生物溶液进行高灵敏度荧光检测成为了新的挑战[5-8]。

通过对微流通道进行设计可以实现荧光信号的增强。利用金属等离激元效应产生的强局域场共振实现荧光增强是曾经研究的重点[9]。然而，荧光物质通常在金属表面附近发生淬灭，金属材料在可见光和近红外波长下的高损耗特性会降低荧光的发射强度[10]。电介质材料可以有效避免金属材料带来的焦耳热和荧光猝灭，提高荧光检测的稳定性和可靠性，因此，基于电介质材料的微流通道在荧光传感中具有应用潜力[11-12]。

电介质材料光子晶体结构在光学领域具有导模共振、光子带隙和近零折射率等特性。自 1999 年 Scherer 等[13]在二维光子晶体中添加缺陷形成激光腔以来，由于光子晶体紧凑的尺寸以及高度灵活的几何形状，使研究人员能够精确地调整谐振腔的辐射方向与谐振波长，以满足不同的应用需求。Ryu 等[14]使用有限时域差分法(FDTD)研究了六方晶格谐振腔中对单极子和偶极子的自发发射增强效应。Ganesh 等[15]将量子点放置在具有双带隙的二维光子晶体板上，实现了约 108 倍的荧光增强。Endo 等[16]制备了二维光子晶体以增强结构夹层中的荧光，通过将二维光子晶体作为布拉格镜使荧光信号强度提高了 10 倍，并且荧光强度与样品浓度成正比。Wang 等[17]设计了一种二维光子晶体阵列结构以增强紫外波段的荧光，实现了 10 倍的发射增强。综上所述，电介质光子晶体结构在荧光检测领域具有应用潜力。

本文提出了一种基于硅基光子晶体的微流通道，利用光子晶体谐振腔对通道内的光场的谐振增强，增强了 NIR-Ⅱ区量子点发射的强度，实现定向出射。使用 FDTD 方法对微流通道的荧光增强效应进行模拟，结果表明光子晶体微流通道可以实现 9°以内窄角荧光远场发射，从而提高荧光信号的收集效率。针对激发过程，实现了腔内 7.9 倍的光场增强，从而提高了荧光的激发效率。

1　模型与方法

图 1 所示是硅基光子晶体微流通道的结构示意图。通道的中心位置被设定为原点，通道内填充了折射率为 1.33 的生物溶液，整个结构放置在空气中的载玻片上。硅的折射率来自于 Palik 手册[18]，玻璃的折射率为 1.46，空气的折射率为 1。其中结构的半径为 R，溶液通道的半径为 r，气孔之间的距离即光子晶体的晶格常数为 L，气孔直径为 d_1。结构的具体几何参数为：$R=3.8\ \mu m$，$r=1.5\ \mu m$，$d_1=0.25\ \mu m$，$L=0.575\ \mu m$。

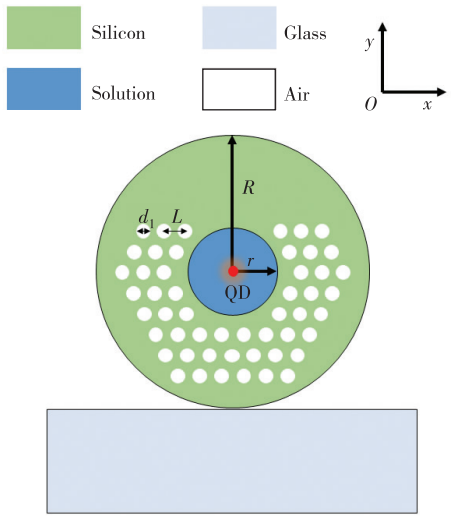


图 1　硅基光子晶体微流通道的结构示意图

空气孔呈三角晶格排列，可以视为晶格常数为 0.575，占空比为 0.43 的光子晶体。平面波展开法是计算光子带隙的一种常用方法，它首先利用布洛赫定理以平面波的形式展开电场和磁场，再将介电函数转换为傅里叶级数，最后将麦克斯韦方程转换为特征方程，通过求解特征方程得到特征值[19]。图 2 为利用平面波展开法计算得到的硅基气孔光子晶体的能带图。计算结果显示，当归一化频率在 0.38～0.42 范围内时，该光子晶体存在禁带，对应为 1 369～1 513 nm 波段。

后文将采用 FDTD 方法来研究微流通道对量子点发光的影响[20]。模拟量子点发射过程的

FDTD 仿真区域为$(x,y)=(-6:6,-8:31)$ μm，使用完美匹配层作为 x 和 y 方向的边界条件以确保模拟结果的准确性。使用精度为 15 nm 的均匀网格进行仿真计算。利用放置在原点位置的电偶极子光源模拟 PbS 量子点的发射，量子点的发射波长范围为 1 350～1 540 nm。在 $y=20$ μm 处，放置等宽于模拟区域的线监视器以测量量子点发射的远场功率。此外，在$(x,y)=(-6:6,-7:30)$ μm 区域设置场监视器记录光场分布。在模拟量子点的激发过程中，将 945 nm 的平面波放置于结构上方 5 μm 处垂直入射以模拟激发光。激发过程的仿真区域为$(x,y)=(-6:6,-7:10)$ μm，在通道内放置了一组时间监视器以进行时域分析，并在$(x,y)=(-1.6:1.6,-1.6:1.6)$ μm 区域设置了场监视器记录激发过程的通道内的光场分布。

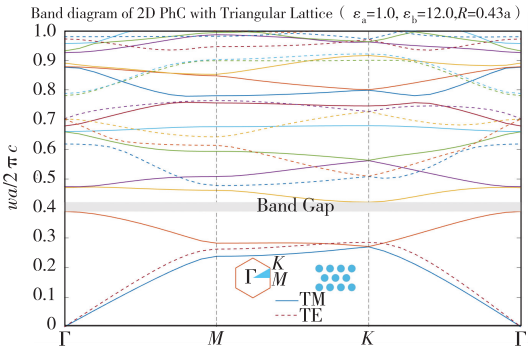


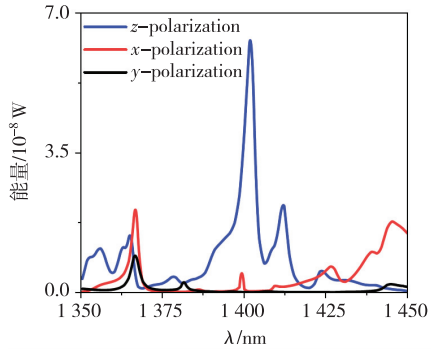
图 2 平面波展开法计算所得光子晶体的能带

2 结果与讨论

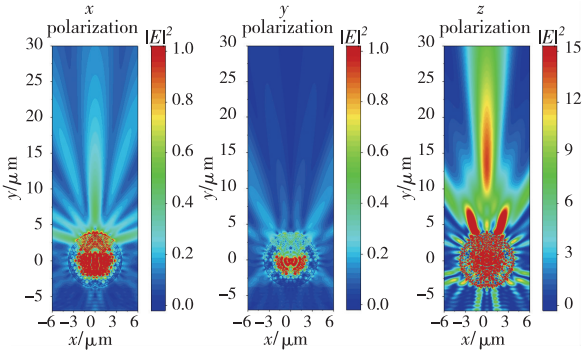
2.1 量子点偏振方向对荧光发射的影响

由于量子点发射具有全向辐射特性，选择 x，y 和 z 这三个具有代表性的偏振方向以研究微流通道对量子点发射的影响。图 3(a)所示为硅基光子晶体微流通道中不同偏振态下的量子点发射的远场功率。当量子点处于 x 或 y 偏振态时，量子点在 1 375～1 425 nm 波段发出的远场功率远小于量子点处于 z 偏振状态时的远场功率。在 x 和 z 偏振下，量子点的发射功率曲线在 1 400 nm 处存在峰值。并且当量子点处于 z 偏振态时，通道内的量子点发射功率比仅有玻璃基底的情况下增强了 16.9 倍，z 偏振量子点的发射传播方向垂直于 x-y 平面，当光在通道中传播时，发射场被有效地局限于通道内部并在光子晶体形成的谐振腔内发生谐振增强。由于上方没有添加气孔该微流通道可以视为一个开放腔，腔内光场自上方泄漏后向外辐射，使有效的远场荧光信号收集成为可能。

图 3(b)显示了量子点发射波长为 1 400 nm 时，不同偏振方向的量子点在微流通道中的光场分布。当量子点处于 x 偏振态时的远场功率远低于 z 偏振态，但 x 与 z 偏振均实现了良好的定向发射效果。当量子点处于 z 偏振状态时通道的增强效果最为显著。微流通道中气孔的添加使发射光在传播过程中受到引导从而实现窄角出射，在发射光向远场传播的过程中存在干涉相长，有助于信号远场传播距离的增加。在后文中选择 z 偏振的点光源作为进一步的研究对象。



(a) 硅基光子晶体微流通道中不同偏振态下量子点发射的远场功率



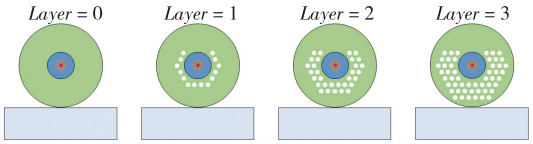
(b) 不同偏振态量子点在微流通道中的电场分布

图 3 硅基光子晶体微流通道中不同偏振态下量子点的发射

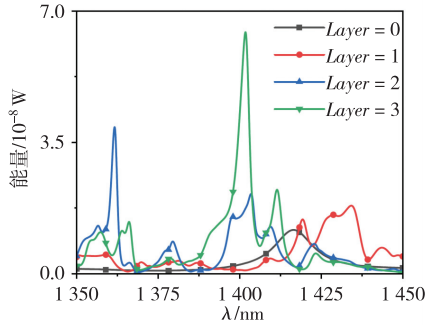
2.2 不同结构对荧光发射的影响

为了进一步研究光子晶体微流通道对荧光发射的影响，分析了图 4(a)中的不同微流通道结构的发射增强效果，使用 *Layer* 表示硅通道所添加的气孔层数。图 4(a)展示了 *Layer* 取值为 0～4 的结构示意图。图 4(b)为在不同气孔层数下微流通道中量子点发射的远场功率曲线，发射功率相较于玻璃基板均有所提高，远场功率的峰值强度与 *Layer* 的取值成正比。这是由于光子晶体在此波段存在禁带，

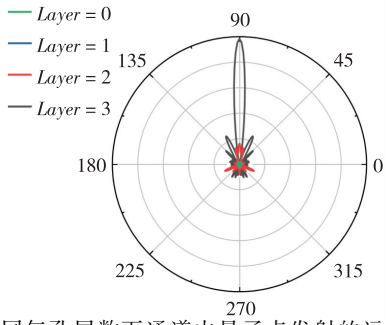
Layer 的取值越高腔壁的反射能力越好，通道的谐振能力越强[21]。图 4(b)为不同结构中量子点在 1 400 nm 时的远场辐射图。随着 *Layer* 值的增加通道向外辐射的荧光定向性逐渐提升，定向性越好荧光发射的传播距离越远。当 *Layer* = 3 时，散射角为 9°，展现了光子晶体通道结构对量子点优异的定向发射效果。



(a) *Layer* = 0，1，2，3 时微流通道的结构示意图



(b) 在不同气孔层数下通道内量子点发射的远场功率



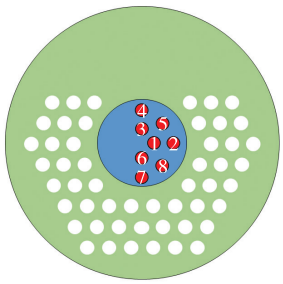
(c) 在不同气孔层数下通道内量子点发射的远场辐射图

图 4　在不同气孔层数下通道内量子点发射

2.3　量子点位置对荧光发射的影响

考虑到当在实际生物传感应用时，溶液中的量子点是随机分布的，实现低浓度荧光检测必须确保通道内大多数位置的量子点发射能够得到定向增强。因此，考虑不同位置量子点的荧光发射特性是必要的。由于硅基光子晶体微流通道是对称结构，在这里选择通道右侧中 8 个具有代表性位置进行分析，通道内位置选择的示意图如图 5(a)所示，图 5(b)为(a)中位置的具体坐标值。

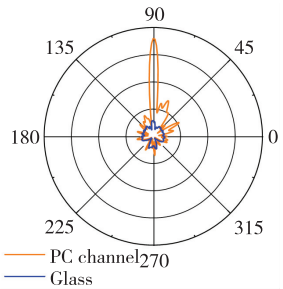
图 5(c)展示了微流通道中 8 个不同位置的量子点在发射波长为 1 400 nm 时的总远场散射图，以及相对的玻璃基板上的总远场散射图，虽然多个不同量子点的总发射角大于单个量子点且有旁瓣的产生，但主瓣 18°的总发射角说明在多量子点情况下光子晶体微流通道仍具有良好的方向性。图 5(d)为微流通道内 8 个位置量子点玻璃基板相比的远场功率增强倍数曲线，增强峰在 1 395～1 405 nm 波段偏移，在 1 400 nm 处，不同位置量子点玻璃基板的平均发射增强倍数达到了 6.6 倍。因此，光子晶体微流通道对随机分布的量子点具有普遍的发射增强能力。



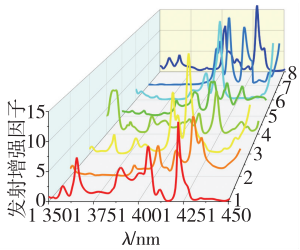
(a) 不同位置的量子点示意图

	坐标
1	(700,0) nm
2	(1 400,0) nm
3	(0,700) nm
4	(0,1 400) nm
5	(750,750) nm
6	(0,−700) nm
7	(0,−1 400) nm
8	(750,−750) nm

(b) (a)中不同位置的坐标



(c) 微流通道和玻璃基底不同位置的总远场辐射图



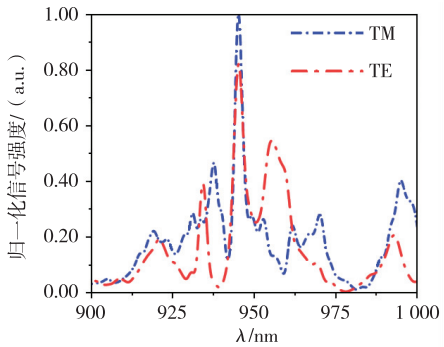
(d) 量子点的远场功率增强倍数

图 5　硅基光子晶体微流通道中不同位置量子点的发射

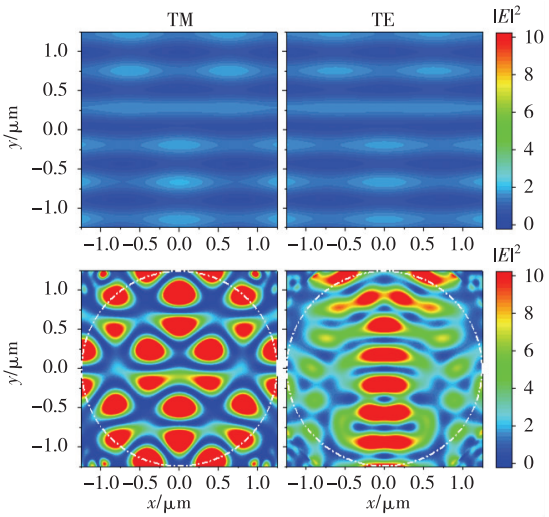
2.4　激发过程

为更全面评价微流通道的荧光增强能力，除量子点的发射过程，本文还研究了通道结构对量子点激发过程的影响。

激发过程中的光强考虑为 TE 模式与 TM 模式的总和：$|E|^2 = |E_{TE}|^2 + |E_{TM}|^2$。图 6(a)所示为通道内时间监视器所收集到的通道内归一化信号强度。当使用平面波照射通道结构时，无论 TE 或 TM 模式都在 945 nm 波长处存在明显的共振峰，可以计算出当使用 TE 模式平面波照射时通道内的 *Q* 因子为 236.1，使用 TM 模式平面波照射时，通道内的 *Q* 因子为 305.6，不同模式的激发光在通道内均能实现良好的谐振效果。不同平面波照射下玻璃基底及通道中的电场分布如图 6(b)所示。与玻璃基底相比通道中的光场平均增强倍数增加了 7.9 倍。



(a) 在 TE 和 TM 模式下,微流通道中的时间监视器在平面波照射下获得归一化信号强度



(b) 在 945 nm 处被 TE 和 TM 平面波照射的玻璃基底和通道中的电场

图 6 硅基光子晶体微流通道中量子点的激发过程

3 总结

本文研究了量子点在硅基光子晶体微流通道中的荧光发射,通过在硅微流通道中添加空气孔形成开放的光子晶体微腔,荧光在微腔内得到谐振增强并在微腔开放处向外发射,实现了良好的远场定向效果。此外,我们还研究了在不同偏振下量子点在通道中对荧光增强效应的影响,其中,在 z 偏振下的量子点发射增强效果最好。接下来研究了微流通道不同气孔层数对荧光定向远场发射的影响,在气孔层数为 3 时与玻璃基底相比实现了 16.9 倍的远场功率增强以及 9°的窄角发射;然后,分析了量子点位置对增强效果的影响,即使量子点的位置发生变化,通道仍能对量子点发射实现良好的定向增强效果。在量子点的激发过程中,通道中的激发光场实现了平均 7.9 倍的增强。总之,该光子晶体微流通道对提高量子点发光效率以及荧光生物传感器的灵敏度具有重要意义。

参考文献:

[1] Guo X, Zhou L, Liu X, et al. Fluorescence detection platform of metal-organic frameworks for biomarkers[J]. Colloids Surf. B, 2023, 229: 113455.

[2] Nicu L, Leïchlé T. Biosensors and tools for surface functionalization from the macro- to the nanoscale: The way forward[J]. J. Appl. Phys., 2008, 104(11): 111101.

[3] Carter K P, Young A M, Palmer A E. Fluorescent sensors for measuring metal ions in living systems[J]. Chem. Rev., 2014, 114(8): 4564-4601.

[4] Dou W-T, Han H-H, Sedgwick A C, et al. Fluorescent probes for the detection of disease-associated biomarkers[J]. Sci. Bulletin, 2022, 67(8): 853-878.

[5] Sargazi S, Fatima I, Hassan Kiani M, et al. Fluorescent-based nanosensors for selective detection of a wide range of biological macromolecules: A comprehensive review[J]. Int. J. Biol. Macromol., 2022, 206: 115-147.

[6] Hussain M M, Khan W U, Ahmed F, et al. Recent developments of Red/NIR carbon dots in biosensing, bioimaging, and tumor theranostics[J]. Chem. Eng. J., 2023, 465: 143010.

[7] Chen C, Tian R, Zeng Y, et al. Activatable fluorescence probes for "Turn-On" and ratiometric biosensing and bioimaging: From NIR-Ⅰ to NIR-Ⅱ[J]. Bioconjugate Chem., 2020, 31(2): 276-292.

[8] Rutckaia V, Heyroth F, Novikov A, et al. Quantum dot emission driven by mie resonances in silicon nanostructures[J]. Nano Lett., 2017, 17(11): 6886-6892.

[9] Kang K A, Wang J, Jasinski J B, et al. Fluorescence manipulation by gold nanoparticles: From complete quenching to extensive enhancement[J]. J. Nanobiotechnol., 2011, 9(1): 16.

[10] Wang Y, Wu L, Wong T I, et al. Directional fluorescence emission co-enhanced by localized and propagating surface plasmons for biosensing[J]. Nanoscale, 2016, 8(15): 8008-8016.

[11] Moitra P, Slovick B A, Gang Yu Z, et al. Experimental demonstration of a broadband all-dielectric metamaterial perfect reflector[J]. Appl. Phys. Lett., 2014, 104(17): 171102.

[12] Staude I, Miroshnichenko A E, Decker M, et al. Tailoring directional scattering through magnetic and electric resonances in subwavelength silicon nanodisks[J]. ACS Nano, 2013, 7(9): 7824-7832.

[13] Painter O, Lee R K, Scherer A, et al. Two-dimensional photonic band-gap defect mode laser[J]. Science, 1999, 284(5421): 1819-1821.

[14] Ryu H Y, Notomi M. Enhancement of spontaneous emission from the resonant modes of a photonic crystal slab single-

defect cavity[J]. Opt. Lett., 2003, 28(23): 2390-2392.

[15] Ganesh N, Zhang W, Mathias P C, et al. Enhanced fluorescence emission from quantum dots on a photonic crystal surface[J]. Nature Nanotechnol., 2007, 2(8): 515-520.

[16] Endo T, Ueda C, Kajita H, et al. Enhancement of the fluorescence intensity of DNA intercalators using nano-imprinted 2-dimensional photonic crystal[J]. Microchimica Acta, 2013, 180(9): 929-934.

[17] Cheng Q, Wang S, Liu N. Enhancement based on a two-dimensional photonic crystal structure for highly sensitivity flourescence-based SO_2 sensing[J]. IEEE Sens. J., 2021, 21(16): 17785-17789.

[18] Palik E D. Handbook of Optical Constants of Solids[M]. Burlington: Academic Press, 1997: ⅩⅦ-ⅩⅧ.

[19] Shi S, Chen C, Prather D W. Plane-wave expansion method for calculating band structure of photonic crystal slabs with perfectly matched layers[J]. J. Opt. Soc. Am. A, 2004, 21(9): 1769-1775.

[20] Kane Y. Numerical solution of initial boundary value problems involving maxwell's equations in isotropic media [J]. IEEE Trans. Antennas Propag., 1966, 14(3): 302-307.

[21] Lonergan A, O'Dwyer C. Many facets of photonic crystals: From optics and sensors to energy storage and photocatalysis [J]. Adv. Mater. Technol., 2023, 8(6): 2201410.

作者简介：

宋　婕(1999—)，女，河北省沧州市人，硕士研究生，主要从事微纳光电子学方面的研究；

陈智辉(1984—)，男，山西省太原市人，博士，教授，博士生导师，研究方向为微纳光电子学。