光电器件

DOI：10.16818/j.issn1001－5868.2024042802

一种增强荧光远场定向发射的错位光栅结构

田栋梁，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： 针对荧光检测中荧光发射强度低且全方向发散的问题，提出了一种由双层错位金属光栅和倾斜电介质光栅组成的复合结构。采用时域有限差分法研究了量子点的偏振态和金属光栅参数对荧光定向发射增强的影响，并分析了荧光激发过程中的电场增强效果。通过将上转换量子点置于复合结构中的聚甲基丙烯酸甲酯层，实现了荧光远场定向发射增强。研究结果表明，与自由空间中相比，当量子点处于错位金属光栅中时，荧光激发增强 40 倍，荧光定向发射增强 26 倍，且远场辐射角小，进而可以提高荧光生物检测的灵敏度。

关键词： 荧光增强；金属光栅；定向发射；发光器件

中图分类号： TN247　**文章编号：** 1001－5868(2024)05－0780－06

A Double-Layer Dislocated Grating Structure for Enhanced Far-Field Fluorescence Emission

TIAN Dongliang，CHEN Zhihui

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

Abstract： This study proposes a hybrid structure consisting of a double-layer dislocated metal grating and an inclined dielectric grating to address the issues of low fluorescence intensity and omnidirectional divergence in fluorescence detection. Using the finite-difference time-domain method，we investigated the effects of polarization state and position，quantum dot positioning，and metal grating period on enhancing directed fluorescence emission. Additionally，we analyzed the enhancement effect during fluorescence excitation. By embedding the up-conversion quantum dots as fluorescent materials within the polymethyl methacrylate layer，the proposed structure achieved significant fluorescence far-field directional enhancement. The results demonstrated that，compared to free space，when quantum dots were placed in dislocated metal gratings，fluorescence excitation was enhanced by 40-fold，directional fluorescence emission was increased by 26-fold，and the far-field radiation angle was reduced，thereby improving the sensitivity of fluorescence-based biological detection.

Key words： fluorescence enhancement；metal gratings；directional emission；light-emitting devices

0　引言

发光工程是光子学基础研究和应用研究的一个重要课题。在过去的 20 年里，荧光在医学诊断、环境检测、食品安全、信息显示等领域的应用取得了显著的增长[1-4]。尽管荧光技术因其在不同领域的广

收稿日期：2024－05－30.

基金项目：国家自然科学基金项目（U22A20258，62175178）；山西省中央引导地方科技发展资金项目（YDZJSX2021A013）.

* **通信作者：**陈智辉

泛应用而成为当今科技领域的一大热点，但传统的荧光物质仍然具有一定的局限性，例如全向辐射特性和低量子产率导致荧光信号微弱，从而限制了检测效率。提高荧光发射效率主要思路是通过改变荧光物质的局部环境来控制它的自发发射能力。基于此，研究者们提出了很多的微纳结构来提高荧光发射效率，例如光子晶体、纳米天线、光学微腔、金属光栅等[5-8]。2018 年，Sun 等提出了一种金属-电介质蘑菇型纳米天线，该设计达到了 20 倍的荧光增强效果[9]。2019 年，Yang 等报道金属膜上的晶体球形硅纳米颗粒天线可以提高量子点的自发发射强度[10]。2023 年，Xu 等将金纳米颗粒与稀土上转换量子点组合，研究了金纳米颗粒以局部等离子共振为代表的外场调制对上转换发光的影响[11]。上述工作的共同特点是存在共振模式，其特征是具有高度增强的光场热点。当荧光物质位于这样的热点处，发射效率与局部场强成正比。荧光发射主要来源于共振模式的激发和随后的辐射衰减。这些共振的性质在很大程度上决定了荧光发射的远场特性。因此，通过对微纳结构进行适当设计，可以提高发射效率，同时调控荧光辐射的远场模式，这些远场特性的改善有助于荧光技术的发展和应用。

最近，研究者对金属光栅在增强荧光发射领域的应用产生了极大的兴趣[12-13]。光栅的特征可以调控等离激元模式，从而影响荧光的响应。2013 年，Huang 等实现了能够在所需方向上选择性发射表面等离激元的超紧凑非周期光栅耦合器[14]。2020 年，Wang 等提出了一种光学超表面平台，用于对任意分布的非相干辐射源的光发射进行方向控制[15]。这种表面增强荧光技术通过将荧光物质置于金属光栅表面的纳米结构之间，可以实现荧光信号的定向增强，从而提高传感器的荧光收集效率[16-17]。

本文提出了一种双层错位金属光栅结构以增强近红外波段荧光发射强度，并改善远场辐射效果。首先，研究了复合结构在不同偏振态下量子点发射的影响；接着，分析结构参数对荧光发射的影响；最后，考虑复合结构的平面波激发过程的效果。本研究所展示的荧光远场发射增强结构为荧光检测、成像及构建发光器件等方面提供了优化思路。

1　模型与方法

本文提出的复合结构如图 1 所示。该结构由石英基板/金膜/介质光栅/金膜组成，金膜通过磁控溅射沉积在石英基板上，再将样品旋转角度 α，制备倾斜的光刻胶电介质光栅，其中，旋转角度 α 改变横向错位距离，在基板上旋涂掺杂量子点的聚甲基丙烯酸甲酯（PMMA）层。双层错位金光栅的光栅周期 P 和厚度 t_1 分别为 897 和 148 nm。H 和 Δx 分别指电介质光栅的厚度和两个金光栅之间的错位距离，W_1 和 W_2 分别表示电介质光栅和上层金属光栅的宽度，t_2 表示金属反射层的厚度，a 和 b 分别表示掺杂量子点的 PMMA 层的长和宽，P_n 表示周期个数，D 是 PMMA 层中心距下层金属光栅的距离。该结构的具体参数 $W_1=210$ nm，$W_2=273$ nm，$H=643$ nm，$\Delta x=112$ nm，$t_2=300$ nm，$D=910$ nm，$a=1\,540$ nm，$b=500$ nm，$P_n=7$。金和石英衬底的复折射率参数来自于 Palik 手册[18]，光刻胶和 PMMA 层的折射率分别为 1.61 和 1.5。

通过使用时域有限差分（Finite Difference Time Domain，FDTD）方法进行数值模拟。将原点 O 设置为结构的几何中心，并以点 O 的水平方向为 x 轴，竖直方向为 y 轴，设置仿真区域为 $(x,y)=(-8:8,-4:4)$ μm，网格精度为 20 nm。在 x 和 y 方向上设置了完美匹配层边界条件。在荧光发射中，使用初始位置位于(0,200) nm 处的一个电偶极子来模拟量子点。位于 $y=20$ μm 的线功率监视器用于观测远场功率，同时在 x-y 平面放置电场监视器以观察电场分布情况。

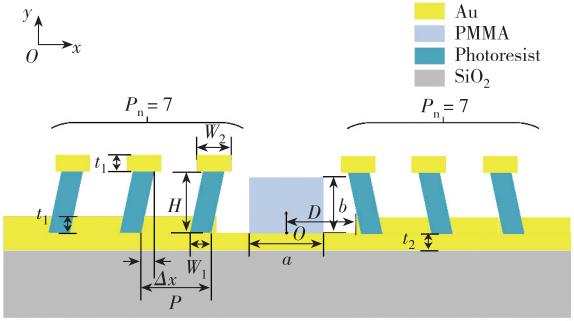


图 1　双层错位金属光栅结构图

该结构的偶极子光源远场发射增强倍数利用珀塞尔因子（F）来衡量，F 反映了荧光物质在特定环境下与自由空间中自发辐射速率的比值，即[19]：

$$F=\frac{\gamma_{\mathrm{em}}}{\gamma_{\mathrm{em}}^{0}}\approx\frac{p_{\mathrm{rad}}}{p_{\mathrm{rad}}^{0}} \tag{1}$$

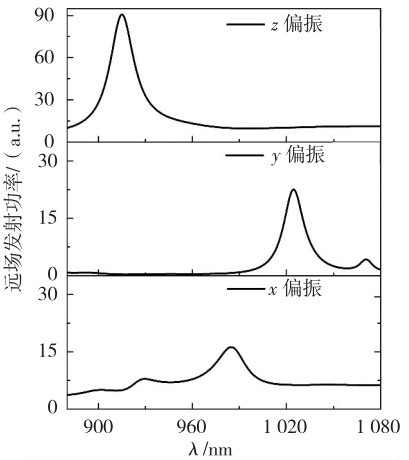
式中，γ_{em}^{0}，p_{rad}^{0} 分别为量子点在自由空间中的辐射衰减率和辐射到远场的功率，γ_{em} 为在复合结构存在时的辐射衰减率，p_{rad} 表示在复合结构存在时辐

射到远场的功率。

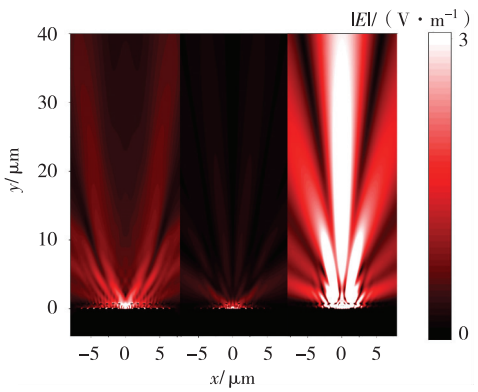
2 分析和讨论

2.1 不同偏振态的量子点对发光强度的影响

鉴于量子点在均匀介质的发射过程中展现出的全向辐射特性，本文选取 x，y 和 z 三个偏振态进行研究，其荧光发射功率曲线如图 2(a)所示。在 x 和 y 偏振态下，远场荧光发射功率相对较低，曲线呈现出微小的共振峰。而这些共振峰并未对 z 偏振态下量子点的共振峰产生显著影响。同时，相比于 x 和 y 偏振态，z 偏振态下的量子点在 915 nm 处实现了最高远场发射功率，这是由于 z 方向偏振量子点发出的荧光会沿着 x-y 平面传播，并与该结构产生强烈的耦合作用。915 nm 处 x，y，z 偏振态下量子点在 x-y 平面的电场分布如图 2(b)所示。当量子点处于 z 偏振态时，共振波段处出现局部电场的显著增强。这是由于量子点的辐射方向与双层错位金属光栅结构垂直，使量子点发射的荧光能够有效与该结构发生耦合，进而产生显著的荧光增强效果。



(a) 远场辐射功率曲线



(b) 915 nm 波长处电场分布图

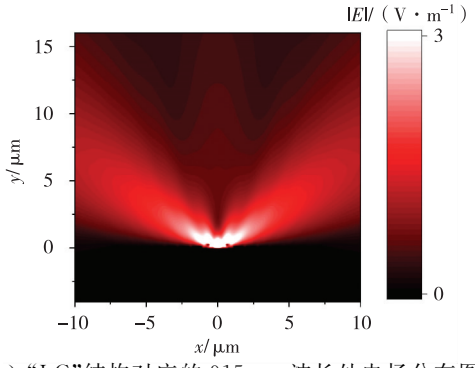
图 2 x，y 和 z 偏振态量子点在复合结构中的远场辐射功率曲线和 915 nm 波长处电场分布图

2.2 不同结构及周期个数对发光强度的影响

为进一步探究偏振态与结构相互作用的物理机制，在 z 偏振态下，将不同的结构进行对比讨论。图 3(a)是只保留下层金属光栅以及掺杂荧光物质的 PMMA 荧光层，称为下金属光栅(Lower Grating，LG)结构。图 3(b)是去除下层金属光栅，保留光刻胶光栅以及上层金属光栅，称为上金属光栅(Upper Grating，UG)结构。将位于(0，200) nm 的量子点置于“LG”及“UG”结构中，得到其 915 nm 波长处的电场分布如图 3(c)和(d)所示。图 3(c)展示出在“LG”结构中，量子点的荧光沿两个不同方向发射，趋势较为分散，且场强相对较低。而与前者相比，在“UG”结构中，电场强度较高且主要集中在上金属光栅与金属反射层之间的区域，如图 3(d)所示。这是因为两层金属光栅之间形成的微腔使得辐射源与结构之间达到了共振状态，从而产生了明显的局域电场热点。这种结构不仅增强了荧光发射的强度，还使得量子点的荧光发射方向更为集中，显示出良好的定向性。证明了“UG”结构有着引导定向发射以及产生高度增强的光场热点的作用。



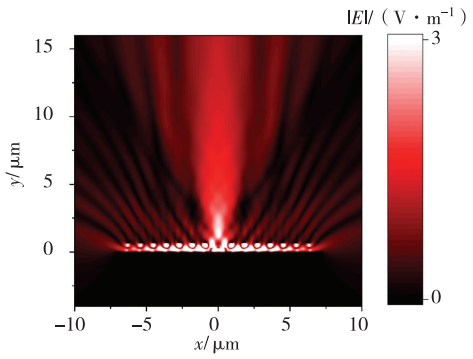
(a) “LG”结构示意图



(c) “LG”结构对应的 915 nm 波长处电场分布图



(b) “UG”结构示意图



（d）“UG”结构对应的 915 nm 波长处电场分布图

图 3　“LG”及“UG”结构及对应的 915 nm 波长处电场分布图

为了得到发射过程中位于初始位置量子点的荧光发射增强倍数，将复合结构和偶极子模型进行比较，其中偶极子模型是将量子点置于自由空间中。图 4 展示了量子点分别在复合结构和偶极子模型中的远场功率曲线。荧光的发射峰位于 915 nm 附近，可以利用 Purcell 效应来进行解释或计算。单个量子点的荧光发射增强倍数为 26。

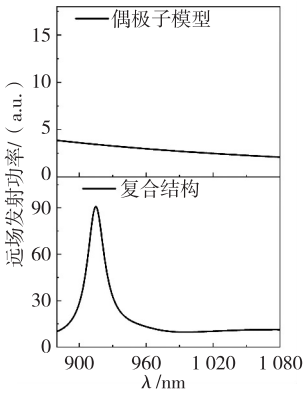
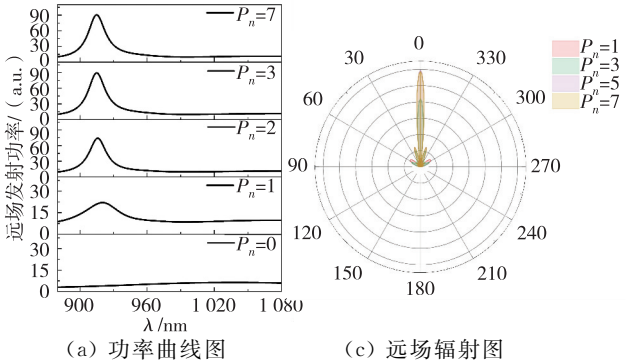
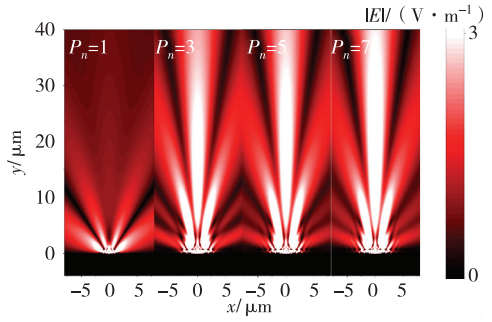


图 4　量子点分别在复合结构和偶极子模型中的远场功率曲线

考虑到不同结构中周期个数 P_n 对荧光发射过程的影响，对比了 P_n 分别为 0，1，2，3 和 7 时对应的荧光输出功率曲线。如图 5(a)所示，当 P_n 为 0 时，结构为单层金属发射板，没有产生明显的荧光发射峰。随着 P_n 的增加，915 nm 波段处的远场功率随之增强。在 P_n 为 3 和 7 的结构中，线功率监视器检测到的远场功率相同。图 5(b)为 915 nm 共振波长下，量子点在不同 P_n 结构中的电场分布，其 P_n 分别为 1，3，5，7。可以看出随着结构周期的增加，结构中心线处远场的电场强度也在增强，增强的荧光经过结构的共振传播到远场。为了进一步探究不同 P_n 结构对荧光定向发射增强的效果，绘制了与电场相对应的远场辐射图，如图 5(c)所示。通过观察远场辐射图，我们可以发现，在 P_n 为 5 的结构中，荧光辐射角度最小，有助于荧光收集。



（a）功率曲线图　　（c）远场辐射图

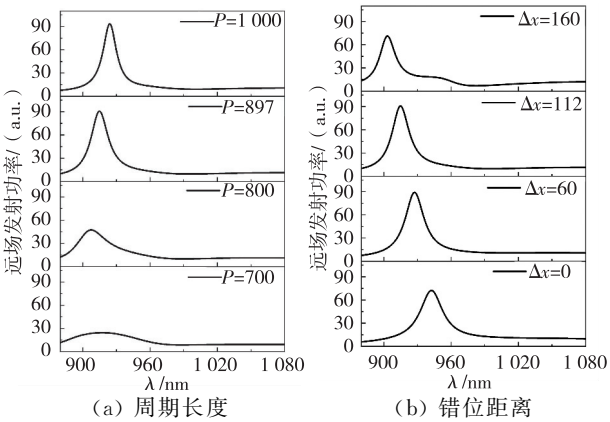


（b）915 nm 处的电场分布图

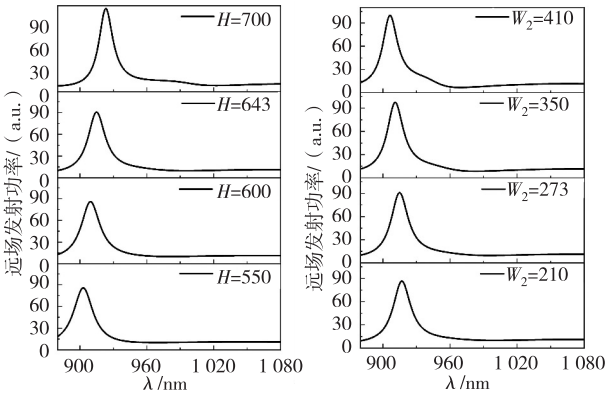
图 5　不同 P_n 复合结构的功率曲线图及对应的 915 nm 处电场分布和远场辐射图

2.3　金属光栅不同参数及量子点位置对发光强度的影响

为进一步探究金属光栅的各个参数对量子点发射的影响，图 6 展示了金属光栅的周期长度 P、错位距离 Δx、高度 H 和上层金属光栅宽度 W_2 与荧光发射过程的关系。由图 6(a)可见，随着 P 增大，远场功率峰值随之增大，但远场定向效果先变好后变差。图 6(b)显示随着 Δx 的增加，共振峰出现蓝移，功率值先增大后减小。这是由于量子点在上金



（a）周期长度　　（b）错位距离

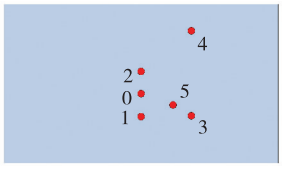


(c) 高度 (d) 上层金属光栅的宽度

图 6 金属光栅的周期长度、错位距离、高度和上层金属光栅的宽度对荧光发射功率的影响

属光栅层及下金属光栅层散射的光波处于相干相长的耦合中。从图 6(c)可以看出随着 H 的增加,共振处的波峰在变大并伴随蓝移。图 6(d)显示上金属光栅的宽度影响效果较小,随着 W_2 变大,共振峰出现轻微蓝移。上述分析表明,通过对几何参数的调控,可以实现对双层错位金属光栅的谐振特性的灵活调整,进而与量子点的发射波长相匹配,极大地扩展了应用范围。

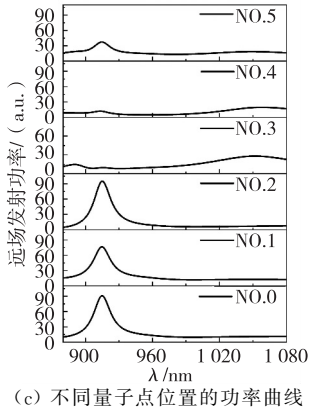
在实际应用中很难固定一个荧光分子的具体位置,因此,在PMMA荧光层中选取5个典型的位置



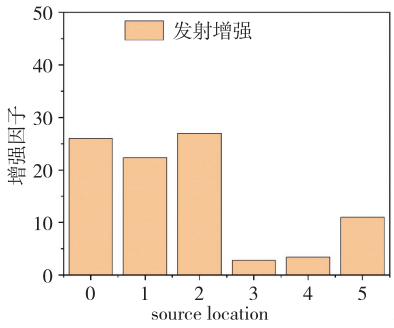
(a) 量子点在 PMMA 荧光层的位置

坐标	编号
(0,0.2)	0
(0,0.15)	1
(0,0.25)	2
(0.2,0.35)	3
(0.2,0.35)	4
(0.1,0.15)	5

(b) 不同量子点位置的编号



(c) 不同量子点位置的功率曲线



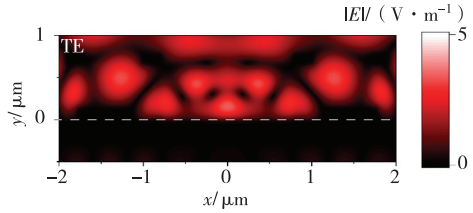
(d) 不同量子点位置的荧光远场发射增强柱状图

图 7 量子点在 PMMA 荧光层的位置、对应编号及其功率曲线和不同量子点位置的荧光远场发射增强柱状图

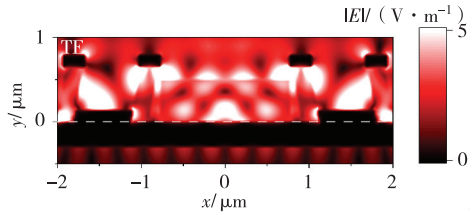
以及初始位置进行分析。量子点的位置及编号如图 7(a)和(b)所示,其对应的远场功率曲线如图 7(c)所示。可以看出,位于结构中轴线处的量子点功率峰值在共振波长处较大。图 7(d)显示了量子点荧光远场发射功率的增强倍数,可以看出在不同位置均有一定的增强效果。

2.4 荧光激发过程

通过基于 $NaGdF_4$ 异质结构[20]的荧光物质,研究上述复合结构对于荧光激发过程的影响。该荧光物质上转换粒子的激发波段为 980 nm,在活体应用中的光学损伤少且穿透深度深,通过掺杂不同的稀土纳米颗粒实现近红外波段发射。在模拟仿真过程中,采用波长为 980 nm 的单色平面波源,并将其置于 $y=12\ \mu m$ 的位置,使其正入射复合结构,以观察和研究其相互作用和响应特性,电场监视器仿真范围是$(x,y)=(-2:2;-0.5:1)\ \mu m$,电场监视器用于记录平面波激发量子点的电场,$x$ 方向采用了周期性边界条件,y方向设置完美匹配层(PML)



(a) TE 模式



(b) TM 模式

图 8 在波长为 980 nm 的单色平面波处的 TE、TM 偏振激发电场分布图

边界条件。一般采用电场强度的增强作为激发增强 $E^2(E^2=E_{TE}^2+E_{TM}^2)$[21]。图 8(a)和(b)依次显示了 980 nm 处平面波在横电波(TE)模式和横磁波(TM)模式下激发的电场分布图。相对于偶极子光源模型，该复合结构实现了对位于 PMMA 层的量子点激发增强 40 倍。在 TM 模式下，平面波散射到光栅的两层，形成水平方向光波，由于结构的对称性，光波单向耦合到 PMMA 层，产生局部强电场；在 TE 模式下，复合结构也有激发增强效果。

3　结论

本文提出了一种错位金属光栅复合结构，通过优化金属光栅参数，当光栅周期个数为 5 时，通过两层金属光栅间谐振腔的耦合作用以及错位光栅的干涉相长，可以实现量子点激发增强 40 倍，远场发射增强 26 倍且荧光发射散射角小。所设计的结构展现出了显著的荧光远场发射增强效果，有助于荧光技术发展，为荧光检测、成像及发光器件制作等领域提供新机遇。

参考文献：

[1] Dong C, Wang Y, Zhao X, et al. Chemical sensing and analysis with optical nanostructures[J]. Chemosensors, 2023, 11(9): 497.

[2] Gao S, Zhou R, Samanta S, et al. Recent advances in plasmon-enhanced luminescence for biosensing and bioimaging [J]. Anal. Chim. Acta, 2023, 1254: 341086.

[3] Wen B, Yang J, Hu C, et al. Top-down fabrication of ordered nanophotonic structures for biomedical applications[J]. Adv. Mater. Interfaces, 2023, 11(5): 2300856.

[4] Zhang C, Qiu M, Wang J, et al. Recent advances in nanoparticle-based optical sensors for detection of pesticide residues in soil[J]. Biosensors (Basel), 2023, 13(4): 415.

[5] Wang Q, Wang X, Wu S. Interaction between two perpendicular Fabry-Perot-like resonances of the antenna-dielectric-slit structure and their influences on the transmission enhancement[J]. Plasmonics, 2012, 8(2): 669-676.

[6] Bao Y, Hou Y, Wang Z, et al. Huge electric field enhancement of magnetic resonator integrated with multiple concentric rings[J]. Plasmonics, 2014, 10(2): 251-256.

[7] Chou R Y, Lu G, Shen H, et al. A hybrid nanoantenna for highly enhanced directional spontaneous emission [J]. J. Appl. Phys., 2014, 115(24): 244310.

[8] Jang J, Jeong M, Lee J, et al. Planar optical cavities hybridized with low-dimensional light-emitting materials[J]. Adv. Mater., 2023, 35(4): 2203889.

[9] Sun S, Li R, Li M, et al. Hybrid mushroom nanoantenna for fluorescence enhancement by matching the stokes shift of the emitter[J]. J. Phys. Chem. C, 2018, 122(26): 14771-14780.

[10] Yang G, Niu Y, Wei H, et al. Greatly amplified spontaneous emission of colloidal quantum dots mediated by a dielectric-plasmonic hybrid nanoantenna[J]. Nanophotonics, 2019, 8(12): 2313-2319.

[11] Xu J, Zhang Y, Yan J, et al. Varying aspect ratios of Au nanorods with LSPR effect for efficient enhanced upconversion luminescence[J]. Inorganic Chem. Commun., 2023, 156: 111134.

[12] Shen H, Lu G, Zhang T, et al. Molecule fluorescence modified by a slit-based nanoantenna with dual gratings[J]. J. Opt. Soc. of Am. B, 2013, 30(9): 2420-2426.

[13] Luo W, Xu F, Li A, et al. Resonant control and enhancement of upconversion luminescence of NaYF4 : Yb, Er nanoparticles on metal gratings[J]. Adv. Opt. Mater., 2022, 10(10): 2102668.

[14] Huang X, Brongersma M L. Compact aperiodic metallic groove arrays for unidirectional launching of surface plasmons [J]. Nano Lett., 2013, 13(11): 5420-5424.

[15] Wang X, Li Y, Toufanian R, et al. Geometrically tunable beamed light emission from a quantum-dot ensemble near a gradient metasurface[J]. Adv. Opt. Mater., 2020, 8(8): 1901951.

[16] Dong Z, Gorelik S, Paniagua-Dominguez R, et al. Silicon nanoantenna mix arrays for a trifecta of quantum emitter enhancements[J]. Nano Lett., 2021, 21(11): 4853-4860.

[17] Zhao W, Tian X, Fang Z, et al. Engineering single-molecule fluorescence with asymmetric nano-antennas[J]. Light Sci. Appl., 2021, 10(1): 79.

[18] Palik E D. Handbook of Optical Constants of Solids[M]. San Diego: Academic Press, 1998.

[19] Thomas M, Greffet J J, Carminati R, et al. Single-molecule spontaneous emission close to absorbing nanostructures[J]. Appl. Phys. Lett., 2004, 85(17): 3863-3865.

[20] Qiu S, Zeng J, Hou Y, et al. Detection of lymph node metastasis with near-infrared upconversion luminescent nanoprobes[J]. Nanoscale, 2018, 10(46): 21772-21781.

[21] Chen Z H, Shi H, Wang Y, et al. Sharp convex gold grooves for fluorescence enhancement in micro/nano fluidic biosensing[J]. J. Mater. Chem. B, 2017, 5(44): 8839-8844.

作者简介：

田栋梁(1997—)，男，山西省晋中市人，硕士研究生，主要从事微纳光子学方面的研究；

陈智辉(1984—)，男，山西省太原市人，博士，教授，博士生导师，主要从事微纳光子学方面的研究。