

# 相干调制振幅投影金纳米棒取向排布的 动力学研究\*

李耀<sup>1) #</sup> 李琼<sup>1) #</sup> 张重庆<sup>2)</sup> 李燕军<sup>1) †</sup>

1) (山西医科大学第三医院, 山西白求恩医院, 山西医学科学院, 同济山西医院, 太原 030032)

2) (山西省肿瘤医院, 中国医学科学院肿瘤医院山西医院, 山西医科大学附属肿瘤医院, 太原 030013)

(2025年8月21日收到; 2025年9月24日收到修改稿)

金纳米棒作为生物医学探针因其可调谐等离子体特性备受关注, 但其亚细胞尺度精准成像受限于衍射极限与现有超分辨技术的高光损伤、外源标记依赖性等瓶颈. 本文提出相干调制振幅投影成像技术, 通过飞秒脉冲对的空间相干调制与振幅-相位协同耦合机制, 低功率激发就可实现金纳米棒取向分布超分辨探测, 同时无需荧光分子标记. 该方法将亚衍射极限信息编码至频域, 利用傅里叶分析同步解析金纳米棒的空间定位、三维取向及局部微环境响应, 规避了荧光分子标记干扰并显著抑制光热效应影响. 实验证实相干调制振幅投影成像通过调控脉冲间延时与相位可精确操控金纳米棒光致发光相干态, 为研究纳米-生物界面动态过程提供了多维度分析工具.

**关键词:** 双光子光致发光, 相干调制成像, 金纳米棒, 超快光谱

**PACS:** 42.62.Fi, 78.47.jh, 42.65.-k, 78.47.N-

**DOI:** 10.7498/aps.74.20251124

**CSTR:** 32037.14.aps.74.20251124

## 1 引言

金纳米棒 (gold nanorods, AuNRs) 作为生物医学探针因其可调谐等离子体特性备受关注<sup>[1]</sup>, 已成为生物医学领域的关键纳米探针, 广泛应用于肿瘤光热治疗<sup>[2]</sup>、药物靶向递送及活体多模态成像<sup>[3,4]</sup>. 尤其在光致发光超分辨成像中, AuNRs 的本征发光特性可规避外源荧光标记的干扰<sup>[5]</sup>, 为细胞器相互作用、单分子追踪等研究提供理想平台<sup>[6-8]</sup>. 然而, 传统光学显微镜受限于衍射极限, 难以解析亚细胞尺度下 AuNRs 的精准定位及其与生物分

子的相互作用<sup>[9,10]</sup>. 现有超分辨技术虽能突破衍射极限, 却因依赖高强度激光激发而诱发 AuNRs 熔融形变, 且其荧光标记需求掩盖了纳米探针的本征光物理行为, 严重制约 AuNRs 在生物医学中的应用<sup>[11,12]</sup>.

此外, AuNRs 的取向动力学在生物成像研究具有重要意义<sup>[13,14]</sup>, 其各向异性等离子体特性<sup>[5]</sup>与生物微环境的相互作用会形成精密耦合. 当 AuNRs 与生物分子 (如膜受体、抗体或穿膜肽) 结合时, 其长轴的空间取向直接调控局域表面等离子体共振的极化响应, 表现为散射强度、光谱位移及光致发光效率的显著差异<sup>[15-17]</sup>. 这种取向依赖特

\* 国家自然科学基金 (批准号: 62205190)、中国博士后科学基金 (批准号: 2022M722003, 2024T170536)、山西省基础研究计划 (批准号: 202203021212100)、山西省白求恩医院科研启动基金 (批准号: 2021RC032) 和中央引导地方科技发展资金 (批准号: YDZJSX2025D072) 资助的课题.

# 同等贡献作者.

† 通信作者. E-mail: liyanjun@sxbqeh.com.cn

性为解析纳米-生物界面动态过程提供了关键信息. 例如, 内吞过程中 AuNRs 从垂直跨膜 (降低膜曲率能垒) 到平行运输 (减低囊泡运输阻力) 的构象转变, 揭示了网格蛋白介导的内存化机制<sup>[18,19]</sup>; 以及驱动蛋白扭矩诱导的实时旋转特性, 可反推分子马达的步进动力学与能量传递效率<sup>[20]</sup>.

因此, 取向信息不仅是连接纳米探针位置与生物功能的动态桥梁, 更为优化诊疗一体化探针设计提供了分子构象层面的理论依据. 为此, 我们构建了相干调制振幅投影成像 (coherent modulation amplitude projection imaging, CMAPI) 方法, 通过创新性融合空间相干调制与振幅-相位协同耦合机制, 为生物医学样本的 AuNRs 超分辨成像开辟了新途径. 该技术利用飞秒脉冲对调制金纳米棒的光致发光强度和相位, 进而将亚衍射极限信息编码至可探测频段; 结合傅里叶分析的相位信息可直接从 AuNRs 的双光子光致发光 (two-photon photoluminescence, TPPL) 信号中提取纳米级空间特征. 相较于依赖外源荧光的超分辨方法, CMAPI 在生物医学研究中具备显著优势. 1) 本征发光探测: 直接解析 AuNRs 的等离激元增强光致发光, 避免荧光标记导致的信号串扰与光毒性; 2) 低光损伤性: 超低激发功率 ( $<5 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ ) 抑制光热效应, 保障活细胞长时间动态观测; 3) 多参数关联分析: 同步获取 AuNRs 的定位、三维取向及局部微环境变化, 为生物过程提供多维信息.

## 2 结果与讨论

在我们之前的研究中已经证实了金纳米颗粒在飞秒双脉冲激发的 TPPL 过程中, 其为具有真实中间能级的三能级系统<sup>[21]</sup>, 如图 1(b) 所示. 当带有延时、相位和偏振特征的飞秒脉冲对 (15 fs@800 nm) 作用于 AuNRs (直径: 10 nm, 长度: 43 nm), AuNRs 由聚甲基丙烯酸甲酯薄膜固定, 如图 1(a) 所示. 这使得在不同延时状态下, AuNRs 的 TPPL 具有不同的激光偏振与相位响应特性<sup>[21,22]</sup>.

此外, 由于 AuNRs 良好的取向特征, 其 TPPL 激光偏振响应特征满足  $\cos^{2N}\theta$  的依赖性 ( $\theta$  是脉冲偏振方向与 AuNRs 长轴之间的角度), 描述了多光子光致发光 (multiphoton photoluminescence, MPPL) 的  $N$  阶非线性<sup>[23]</sup>. 如图 2(a) 所示, 当  $N = 2$  时,  $\cos^{2N}\theta$  可以很好地拟合单脉冲双光子激发, 该结果表明单脉冲激发的光致发光是双光子过程. 进一步地, 固定 Pulse 1 的偏振方向 (使其沿 AuNRs 的长轴方向), 改变 Pulse 2 的偏振, 测量 AuNRs 的 TPPL 强度随偏振角度的变化. 此时, 对于两脉冲激发时的偏振依赖光致发光过程, 公式  $\cos^{2N}\theta$  已不再适用.

这里, 激发光平面波记为  $\mathbf{F}(t) = \mathbf{F}_0 \cdot e^{-i\omega t + \phi}$ . 对于 AuNRs, 在脉冲对延时  $\Delta t_B = 0.5 \text{ ps}$  时, 改变 Pulse 2 的偏振方向, 结合 AuNRs 三能级特征, TPPL 强度可以表示为

$$\begin{aligned} I_B \propto & |\boldsymbol{\mu}_{01}\mathbf{F}_{01}(\omega_1, t) \cdot \boldsymbol{\mu}_{12}\mathbf{F}_{12}(\omega_2, t)|^2 + |\boldsymbol{\mu}_{01}\mathbf{F}_{01}(\omega_1, t) \cdot \boldsymbol{\mu}_{01}\mathbf{F}_{01}^*(\omega_1, t) \cdot e^{-\Delta t_B/\tau_1}| \\ & \times |\boldsymbol{\mu}_{12}\mathbf{F}_{12}(\omega_2, t + \Delta t_B) \cos\theta \cdot \boldsymbol{\mu}_{12}\mathbf{F}_{12}^*(\omega_2, t + \Delta t_B) \cos\theta| \\ & + |\boldsymbol{\mu}_{01}\mathbf{F}_{01}(\omega_1, t + \Delta t_B) \cos\theta \cdot \boldsymbol{\mu}_{12}\mathbf{F}_{12}(\omega_2, t + \Delta t_B) \cos\theta|^2 \\ = & I_1^2 + \alpha_{01}\beta_{12} \cdot e^{-\Delta t_B/\tau_1} \cos^2\theta + I_2^2 \cos^4\theta, \end{aligned} \quad (1)$$

其中  $\alpha_{nn'}(\beta_{nn'}) = \boldsymbol{\mu}_{nn'} \cdot \mathbf{F}_{nn'}$  ( $n, n' = 0, 1, 2$ ) 是  $|n\rangle \rightarrow |n'\rangle$  通过 Pulse 1 (Pulse 2) 激发引起的电子跃迁.  $\mathbf{F}_{nn'}$  ( $\mathbf{F}'_{nn'}$ ) 是与跃迁  $|n\rangle \rightarrow |n'\rangle$  共振的 Pulse 1 (Pulse 2) 的电场矢量,  $\boldsymbol{\mu}_{nn'}$  是  $|n\rangle \rightarrow |n'\rangle$  跃迁的偶极矩.  $\alpha$  和  $\beta$  分别是由第一束脉冲和第二束脉冲引起的  $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$  和  $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$  的跃迁, 则  $I_1^2 = |\alpha_{01}\alpha_{12}|^2$  和  $I_2^2 = |\beta_{01}\beta_{12}|^2$  是仅由单个脉冲引起的 TPPL 强度. 第二项  $\alpha_{01}\beta_{12} \cdot e^{-\Delta t/\tau_1} \cos^2\theta$  表示来自  $|0\rangle$  态电子被 Pulse 1 激发到  $|1\rangle$  态后, 再由 Pulse 2 激发至  $|2\rangle$  态后向下辐射的 TPPL 信号. (1) 式可以很好地

拟合延迟  $\Delta t_B = 0.5 \text{ ps}$  时 TPPL 的偏振依赖特性, 如图 2(c) 所示. 从拟合结果得到的平均非线性系数  $N = 1.49$ . 当脉冲间延迟 ( $\Delta t_C = 10 \text{ ps}$ ) 比中间状态的寿命 ( $\tau_1 = 2.6 \text{ ps}$ ) 长得多时<sup>[21]</sup>, AuNRs 和两个脉冲之间的耦合消失, (1) 式将简化为

$$I_C \propto I_1^2 + I_2^2 \cos^4\theta. \quad (2)$$

(2) 式可拟合延迟  $\Delta t_C = 10 \text{ ps}$  处的 TPPL 偏振依赖性 (图 2(d)), 其服从系数  $N = 2$  的非线性阶数.

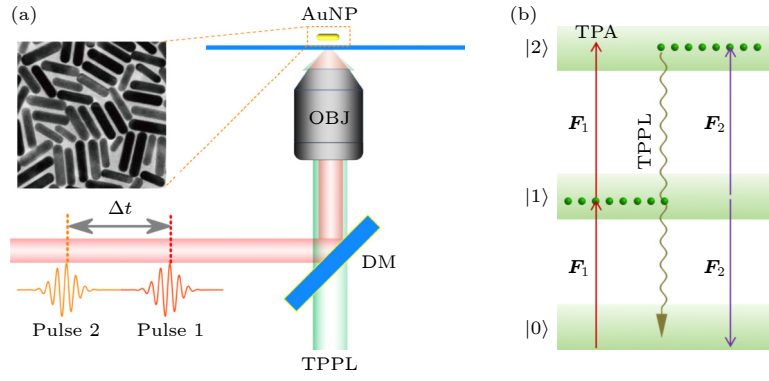


图 1 AuNRs 的双脉冲相干激发 TPPL 装置与能级示意图 (a) AuNRs 的双脉冲相干激发 TPPL 示意图 (DM, 二向色镜; OBJ, 物镜); (b) AuNRs 的 TPPL 能级示意图,  $F_1$  和  $F_2$  为两个脉冲的电场矢量

Fig. 1. Schematic of two-pulse coherent excitation TPPL and energy level diagram of AuNRs: (a) Schematic diagram of two-pulse coherent excitation TPPL for AuNRs (DM, dichroic mirror; OBJ, objective); (b) energy-level diagram illustrating TPPL in AuNRs, where  $F_1$  and  $F_2$  represent the electric field vectors of the two pulses.

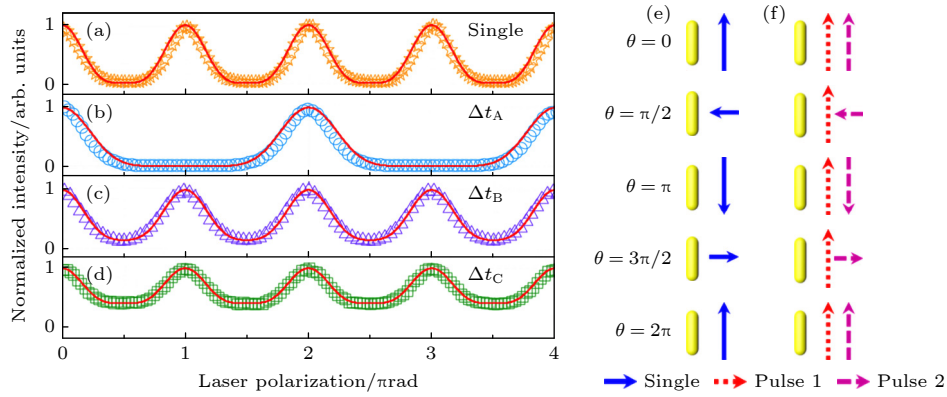


图 2 AuNRs 的激发偏振依赖特性 (a) 单脉冲激发时, AuNRs 发光强度随着夹角  $\theta$  变化轨迹; (b)–(d) 分别为延时  $\Delta t_A = 0$ ,  $\Delta t_B = 0.5$  ps 和  $\Delta t_C = 10$  ps 时, Pulse 1 偏振不变, 旋转 Pulse 2 的偏振获得的 AuNRs 发光强度轨迹; (e), (f) 激光偏振与 AuNRs 长轴夹角的变换示意图, 其中蓝色箭头指示单脉冲激发, 红色和紫色箭头指示了 Pulse 1 (红色虚线箭头) 和 Pulse 2 (紫色虚线箭头) 偏振与 AuNRs 的取向关系

Fig. 2. Excitation polarization dependence of AuNRs: (a) Polar plot of the AuNRs' TPPL intensity as a function of the angle  $\theta$  under single-pulse excitation. (b)–(d) Polar plots of the AuNRs' luminescence intensity acquired by maintaining the polarization of Pulse 1 fixed and rotating the polarization of Pulse 2 at delay times of  $\Delta t_A = 0$ ,  $\Delta t_B = 0.5$  ps and  $\Delta t_C = 10$  ps, respectively. (e), (f) Schematics illustrating the variation of the angle between the laser polarization and the long axis of the AuNRs. The blue arrow indicates single-pulse excitation; the red and purple arrows indicate the orientational relationship between the polarization of Pulse 1 (red dashed arrow) and Pulse 2 (purple dashed arrow) relative to the AuNRs.

当脉冲间延迟短于退相干时间时, 电子的相位与激光脉冲一致, 两个脉冲将产生相干叠加态, 其

偏振依赖关系由下式给出:

$$I_A \propto |[\mu_{01} \mathbf{F}_{01}(\omega_{01}, t) \cdot \mu_{01} \mathbf{F}'_{01}(\omega_{01}, t + \Delta t) \cos \theta] [\mu_{12} \mathbf{F}_{12}(\omega_{12}, t) \cdot \mu_{12} \mathbf{F}'_{12}(\omega_{12}, t + \Delta t) \cos \theta]|^2$$

$$= |\alpha_{01} \alpha_{12} + \alpha_{01}(t) \beta_{12}(t + \Delta t) \cos \theta + \alpha_{12}(t) \beta_{01}(t + \Delta t) \cos \theta + \beta_{01} \beta_{12} \cos^2 \theta|^2 = 16 I_1^2 \cos^8(\theta/2). \quad (3)$$

这里  $I_1^2 = |\alpha_{01} \alpha_{12}|^2 = |\alpha_{01}(t) \beta_{12}(t + \Delta t)|^2 = |\alpha_{12}(t) \beta_{01}(t + \Delta t)|^2 = |\beta_{01} \beta_{12}|^2$ . (3) 式揭示了  $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$  和  $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$  跃迁之间的相干叠加. 如图 2(b) 所示, (3) 式完美地对实验数据进行了拟合, 这也进一步证实了叠加态是依赖于中间态而存在. 可见, AuNRs 具有

脉冲延时依赖的 TPPL 特性, 可以通过控制延时来调控 AuNRs 的激光偏振响应特征.

如图 3(a) 所示, 对于激光偏振响应良好的 AuNRs 而言, 通过调控激光电场矢量  $F_1$  和  $F_2$  在 AuNRs 长轴上的矢量叠加, 即可调控其 TPPL 强度. 为此,

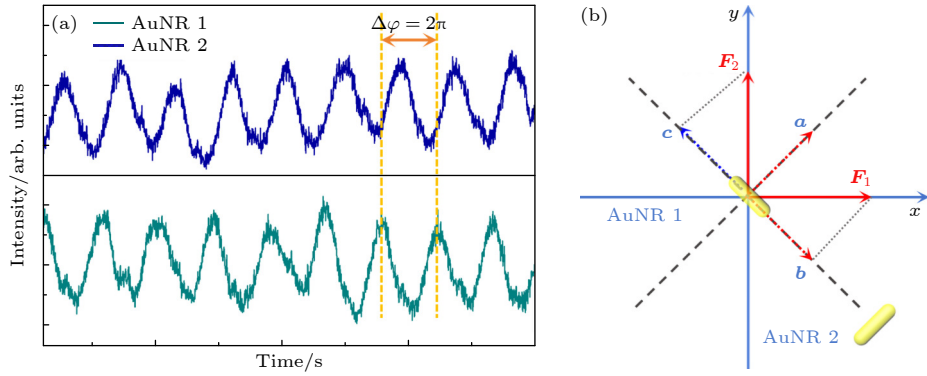


图 3 振幅投影示意图 (a) 以 0.5 Hz 的频率调制 Pulse 1 和 Pulse 2 之间的相对相位, AuNR 1 和 AuNR 2 的 TPPL 强度具有相反的相位响应特征; (b) Pulse 1 和 Pulse 2 的电场矢量方向分别沿  $x$  方向和  $y$  方向, 它们在平行于 AuNR 1 轴线上的投影为  $b$  和  $c$ , 垂直于轴线的投影为  $a$ , AuNR 2 则不同

Fig. 3. Schematic diagram of amplitude projection. (a) When the relative phase between Pulse 1 and Pulse 2 is modulated at a frequency of 0.5 Hz, the TPPL intensities of AuNR 1 and AuNR 2 exhibit opposite-phase response characteristics. (b) The electric field vectors of Pulse 1 and Pulse 2 are oriented along the  $x$ -axis and  $y$ -axis, respectively. Their projections parallel to the long axis of AuNR 1 are denoted as  $b$  and  $c$ , while the perpendicular projection is denoted as  $a$ . The case for AuNR 2 is different.

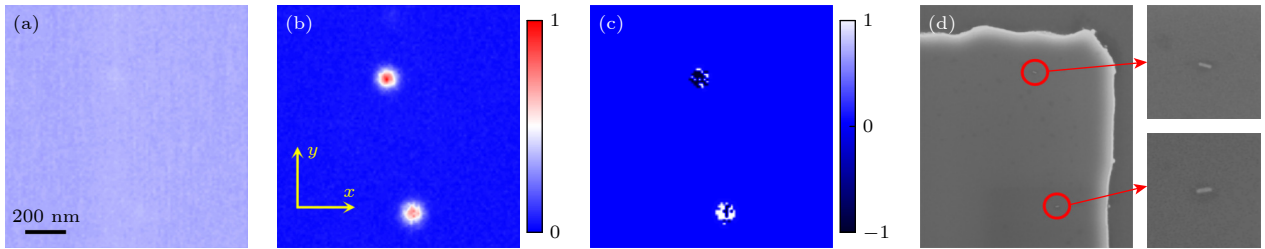


图 4 AuNRs 的 CMAPI 成像 (a), (b) 分别为 TPPL 强度成像和傅里叶变换强度成像, 黄色箭头标记为依据脉冲对的偏振状态确定的坐标系; (c) 傅里叶变换所获得的相位成像; (d) 该成像区域内对应的 SEM 成像, 其中红色圆圈标记出了金纳米棒所处位置, 其区域放大在右侧显示

Fig. 4. CMAPI imaging of AuNRs. Panel (a) and (b) show the TPPL intensity image and the Fourier-transform intensity image, respectively. A coordinate system, determined by the polarization states of the pulse pair, is indicated by the yellow arrows. (c) Phase image obtained from the Fourier transform. (d) Corresponding SEM image of the same region. The locations of the gold nanorods are marked by red circles, with an enlarged view of the area displayed on the right.

我们开发了 CMAPI 方法来快速获取 AuNRs 的取向信息及其环境响应特征. 如图 3(b) 所示, 在由具有垂直偏振的 Pulse 1 和 Pulse 2 电场矢量  $F_1$  和  $F_2$  构成的坐标系中, AuNR 1 和 AuNR 2 具有典型的取向特征. 通过周期性地改变 Pulse 1 和 Pulse 2 之间的相对相位, 其电场矢量  $F_{nn'}$  在 AuNRs 长轴方向的投影  $b$  和  $c$  将发生周期性的改变. 当用 0.5 Hz 的频率调制 Pulse 1 和 Pulse 2 之间的相对相位, 如图 3(a) 所示, TPPL 强度轨迹直观地展示出 AuNR 1 和 AuNR 2 相反的调制相位响应特征.

为了快速地获取 AuNRs 的取向动力学信息, 将 Pulse 1 和 Pulse 2 之间相对相位调制频率增加至 1 kHz. 记录 AuNRs 的 TPPL 光子到达时间, 通过对其进行傅里叶变换获得 AuNRs 的相位信息 (傅里叶变换的相位项). 最为直观地, 在  $-\pi$

到  $\pi$  的范围内, 它们之间正的相位指示 AuNRs 为一三象限取向, 负相位则表明 AuNRs 为二四象限取向.

结合相干调制成像方法, 具体的调制成像原理详见文献 [22], 这里 CMAPI 成像将同时获得相干调制的强度成像和相位成像. 图 4 所示为在实验室明亮环境中, AuNRs 的 CMAPI 成像结果. 其中, 图 4(a) 为 TPPL 强度成像, 由于环境杂散光的影响, 几乎难以对 AuNRs 进行定位. 图 4(b) 为傅里叶变换的幅度成像, 图 4(c) 为傅里叶变换的相位成像, 图 4(d) 为该区域 AuNRs 的扫描电子显微镜 (scanning electron microscope, SEM) 成像结果. 从相位成像可以看出 AuNR 1 和 AuNR 2 的取向是不同的, SEM 成像放大区域清晰地展现出这两个金纳米棒的取向分别为一三象限取向和二四象限

取向. 可见, 不同的取向在调制成像中会展现出不同的相位特征. 此外, 两个 AuNRs 均显示出相位跃变的情况, 如 AuNR 1 相位成像中的白色成分, 预示着其与局部微纳环境的等离子耦合变化特征. 同时, 相位成像有突破光学衍射极限的能力, 如图 5(b) 所示, 在一个衍射光斑内可以明显地展现出不同的相位分布. 这暗示着在这个衍射光斑内存在取向不一的 AuNRs. 已有利用取向分布特征进行超分辨成像的报道<sup>[24]</sup>, 在 SEM 成像中也证实了这一点, 如图 5(b) 插图.

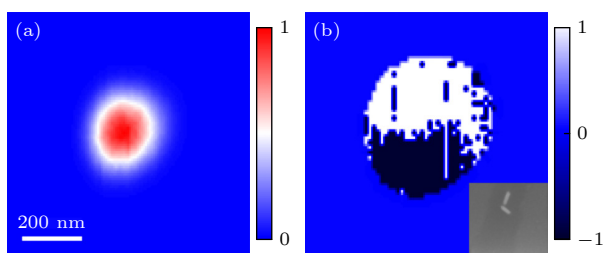


图 5 衍射极限内的 CMAPI 成像 (a) 基于傅里叶变换的幅度成像; (b) 基于傅里叶变换的相位成像, 插图为该区域的 SEM 成像

Fig. 5. CMAPI imaging within the diffraction limit: (a) The Fourier-transform-based amplitude image; (b) the Fourier-transform-based phase image; the inset shows the SEM image of the corresponding region.

### 3 结 论

本研究发展的 CMAPI 技术拓展了 AuNRs 的生物成像应用可能: 通过飞秒脉冲对的相干调制振幅投影, 实现了无外源标记、低光损伤的 AuNRs 超分辨取向动态解析. 通过调制脉冲间相位, 将 AuNRs 的取向信息转化为可探测信号傅里叶变换的强度和相位信息 (如正/负相位差直接映射一三/二四象限取向), 不仅突破衍射极限, 更同步获取定位、三维取向与微环境互作参数. 该技术对于利用 AuNRs 捕捉生物过程中的构象转变 (如跨膜取向切换) 及等离子耦合效应提供了方法, 为阐明纳米探针-生物分子界面机制 (如营养物质摄取与能量代谢、分子马达步进动力学) 提供了研究手段.

### 参考文献

- [1] Wang Z Y, Zhang H 2025 *Acta Phys. Sin.* **74** 158102 (in Chinese) [王致远, 张慧 2025 物理学报 **74** 158102]
- [2] Wei S Y, Huang H, Ma X Y, Huang H W, Xu X, Wang R Y 2025 *Acta Phys. Sin.* **74** 147301 (in Chinese) [魏思雨, 黄浩, 马小云, 黄海文, 徐欣, 王荣瑶 2025 物理学报 **74** 147301]
- [3] Liao S N, Yue W, Cai S N, Tang Q, Lu W T, Huang L X, Qi T T, Liao J F 2021 *Front. Pharmacol.* **12** 664123
- [4] Zhu R, Li J, Lin L S, Song J B, Yang H H 2021 *Adv. Funct. Mater.* **31** 2005709
- [5] Wang Y, Wang L, Sun B X, Lang P, Xu Y, Zhao Z L, Song X W, Ji B Y, Lin J Q 2023 *Acta Phys. Sin.* **72** 175202 (in Chinese) [王悦, 王伦, 孙柏逊, 郎鹏, 徐洋, 赵振龙, 宋晓伟, 季博宇, 林景全 2023 物理学报 **72** 175202]
- [6] Li W, Kaminski Schierle G S, Lei B F, Liu Y L, Kaminski C F 2022 *Chem. Rev.* **122** 12495
- [7] Hu Y Q, Wang Y, Yan J H, Wen N C, Xiong H J, Cai S D, He Q Y, Peng D M, Liu Z B, Liu Y F 2020 *Adv. Sci.* **7** 2000557
- [8] Zhu X R, Shi Z F, Mao Y, Lächelt U, Huang R Q 2024 *Small* **20** 2310605
- [9] Wax A, Sokolov K 2009 *Laser Photonics Rev.* **3** 146
- [10] Omidi M, Amoabediny G, Yazdian F, Habibi-Rezaei M 2014 *Chin. Phys. Lett.* **31** 088701
- [11] Willets K A, Wilson A J, Sundaresan V, Joshi P B 2017 *Chem. Rev.* **117** 7538
- [12] Kim J M, Lee C, Lee Y, Lee J, Park S J, Park S, Nam J M 2021 *Adv. Mater.* **33** 2006966
- [13] Hang Y J, Wang A Y, Wu N Q 2024 *Chem. Soc. Rev.* **53** 2932
- [14] Guo Z L, Yu G, Zhang Z G, Han Y D, Guan G J, Yang W S, Han M Y 2023 *Adv. Mater.* **35** 2206700
- [15] Mayer K M, Hafner J H 2011 *Chem. Rev.* **111** 3828
- [16] Lee T H, Hirst D J, Kulkarni K, Del Borgo M P, Aguilar M I 2018 *Chem. Rev.* **118** 5392
- [17] Mcoyi M P, Mpofu K T, Sekhwama M, Mthunzi-Kufa P 2025 *Plasmonics* **20** 5481
- [18] Fan Z Y, Mao X H, Zhu M, Hu X J, Li M Q, Huang L L, Li J, Maimaiti T, Zuo X L, Fan C H 2025 *Angew. Chem. Int. Ed.* **137** e202413244
- [19] Ge F, Xue J F, Du Y, He Y 2021 *Nano Today* **39** 101158
- [20] Guix M, Mayorga-Martinez C C, Merkoçi A 2014 *Chem. Rev.* **114** 6285
- [21] Li Y, Yang Y G, Qin C B, Song Y R, Han S P, Zhang G F, Chen R Y, Hu J Y, Xiao L T, Jia S T 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 073902
- [22] Li Y, Qin C B, Song Y R, Yan H Y, Han S P, Zhou H T, Wei A N, Zhang G F, Chen R Y, Hu J Y, Jing M Y, Xiao L T, Jia S T 2021 *Opt. Express* **29** 22855
- [23] Ming T, Zhao L, Yang Z, Chen H J, Sun L D, Wang J F, Yan C H 2009 *Nano Lett.* **9** 3896
- [24] Zhanghao K, Liu W H, Li M Q, Wu Z H, Wang X, Chen X Y, Shan C Y, Wang H Q, Chen X W, Dai Q H, Xi P, Jin D Y 2020 *Nat. Commun.* **11** 5890

# Dynamical study on orientation arrangement of gold nanorods via coherent modulation amplitude projection\*

LI Yao<sup>1) #</sup> LI Qiong<sup>1) #</sup> ZHANG Chongqing<sup>2)</sup> LI Yanjun<sup>1) †</sup>

1) (*Third Hospital of Shanxi Medical University, Shanxi Bethune Hospital, Shanxi Academy of Medical Sciences, Tongji Shanxi Hospital, Taiyuan 030032, China*)

2) (*Shanxi Province Cancer Hospital, Shanxi Hospital Affiliated to Cancer Hospital, Chinese Academy of Medical Sciences, Cancer Hospital Affiliated to Shanxi Medical University, Taiyuan 030013, China*)

( Received 21 August 2025; revised manuscript received 24 September 2025 )

## Abstract

Gold nanorods (AuNRs) have become highly promising biomedical probes due to their tunable plasmonic properties, but their real-time, high-resolution imaging of subcellular behavior, particularly their orientation dynamics reflecting critical nano-bio interactions, is hindered by the diffraction limits and drawbacks of existing super-resolution methods, such as reliance on high-intensity lasers and exogenous labeling. To solve this problem, we develop coherent modulation amplitude projection imaging (CMAPI), a novel label-free technique that uses spatially and temporally modulated pairs of femtosecond pulses to coherently control the two-photon photoluminescence (TPPL) of AuNRs. By using AuNRs as three-level systems with a measurable intermediate state, CMAPI encodes sub-diffraction-limit spatial and orientational information into the frequency domain through precise manipulation of inter-pulse delay, phase, and polarization. Experimental results confirm the nonlinear excitation nature of AuNRs, with single-pulse polarization response following a  $\cos^2\theta$  dependence. Under two-pulse excitation, the emission exhibits obvious coherence-dependent behavior: at zero delay, the response is controlled by quantum superposition; under a delay that matches the intermediate state lifetime (0.5 ps), the three-level model accurately describes the response; under a longer delays (10 ps), the system returns to incoherent emission. CMAPI retrieves nanoscale information through Fourier analysis of photon arrival times, producing simultaneous amplitude and phase images that reveal AuNRs' precise positions (about 60 nm localization precision), in-plane orientations (e.g. quadrant-specific arrangement inferred from phase sign), and local environmental coupling, such as plasmon-induced phase jumps, all under ultralow excitation power ( $<5 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ ) to avoid light damage. This approach enables visualization of features beyond the diffraction limit, distinguishing multiple AuNRs within a single diffractive spot, as validated by scanning electron microscopy. CMAPI provides a powerful, non-invasive platform for quantifying dynamic biological processes involving anisotropic nanoparticles. These process include conformational shifts during endocytosis, torque transmission in molecular motors, and real-time tracking of nanoscale interactions, thereby offering profound insights into theranostic probe design and fundamental biophysical research.

**Keywords:** two-photon photoluminescence, coherent modulation imaging, gold nanorods, ultrafast spectroscopy

**PACS:** 42.62.Fi, 78.47.jh, 42.65.-k, 78.47.N-

**DOI:** [10.7498/aps.74.20251124](https://doi.org/10.7498/aps.74.20251124)

**CSTR:** [32037.14.aps.74.20251124](https://cstr.cn/32037.14.aps.74.20251124)

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 62205190), the China Postdoctoral Science Foundation (Grant Nos. 2022M722003, 2024T170536), the Shanxi Provincial Basic Research Program, China (Grant No. 202203021212100), the Scientific Research Start-up Fund of Shanxi Bethune Hospital, China (Grant No. 2021RC032), and the Central Guidance for Local Science and Technology Development Fund of China (Grant No. YDZJSX2025D072).

# These authors contributed equally.

† Corresponding author. E-mail: [liyanjun@sx bqeh.com.cn](mailto:liyanjun@sx bqeh.com.cn)

## 相干调制振幅投影金纳米棒取向排布的动力学研究

李耀 李琼 张重庆 李燕军

## Dynamical study on orientation arrangement of gold nanorods via coherent modulation amplitude projection

LI Yao LI Qiong ZHANG Chongqing LI Yanjun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 74, 244203 (2025) DOI: 10.7498/aps.74.20251124

CSTR: 32037.14.aps.74.20251124

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.74.20251124>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

---

### 您可能感兴趣的其他文章

#### Articles you may be interested in

超导体的Higgs物理

Higgs physics in superconductors

物理学报. 2025, 74(11): 117402 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250241>

红外调制光致发光光谱技术: 从宽波段覆盖到微区高通量测量

Infrared-modulated photoluminescence spectroscopy: From wide-band coverage to micro-area and high-throughput scanning imaging

物理学报. 2025, 74(1): 017801 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20241491>

基于泵浦强度调制的超快光纤激光器中孤子分子光谱脉动动力学研究

Spectral pulsation dynamics of soliton molecules in ultrafast fiber lasers based on pump intensity modulation

物理学报. 2024, 73(1): 014202 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231030>

阿秒瞬态吸收光谱: 揭示电子动力学的超快光学探针

Attosecond transient absorption spectroscopy: an ultrafast optical probe for revealing electron dynamics

物理学报. 2025, 74(15): 153302 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250546>

振荡场作用下聚合物/纳米棒混合体系的自组装

The self-assembly behavior of polymer/nanorods hybrid system under oscillation field

物理学报. 2023, 72(7): 079401 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222207>

基于超快激光调制的纳秒脉冲X射线发射源

Nanosecond pulse X-ray emission source based on ultrafast laser modulation

物理学报. 2024, 73(4): 040701 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231505>