

电介质微球和金属平面纳米层增强 荧光远场定向发射*

郭付周¹⁾²⁾ 陈智辉^{1)2)†} 冯光¹⁾²⁾ 王晓伟¹⁾²⁾
费宏明¹⁾²⁾ 孙非¹⁾²⁾ 杨毅彪¹⁾²⁾

1) (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)

2) (太原理工大学, 物理与光电工程学院, 太原 030024)

(2022 年 4 月 1 日收到; 2022 年 4 月 25 日收到修改稿)

本文提出了一种由电介质微球和金属平面纳米层组成的复合结构, 用于增强荧光远场定向发射强度和
提高荧光收集效率. 通过时域有限差分法研究了位于电介质微球和金层之间量子点的激发和发射过程. 量子
点作为荧光材料涂敷于聚甲基丙烯酸甲酯中, 用于控制和金层的距离从而调控荧光增强. 该结构基于等离激
元耦合、回音壁模式以及光子纳米射流之间的协同效应, 使远场荧光强度增强 230 倍, 荧光收集效率高达
70%. 与电介质微球和金球二聚体复合结构增强荧光相比, 金球二聚体之间的间距不易控制, 此外量子点要放
在金球之间特定的位置. 而本文提出的三维平面复合纳米结构相对更方便实现. 以上结果在提高荧光生物检
测灵敏度、成像质量以及发光器件效率等领域具有非常重要的应用意义.

关键词: 荧光增强, 光子纳米射流, 电介质微球, 生物检测

PACS: 68.65.Ac, 78.67.-n, 81.16.Rf

DOI: 10.7498/aps.71.20220605

1 引言

荧光物质、荧光染料或量子点在外界电磁辐射
激励情况下, 一般会发射出比激发光波长更长的荧
光. 荧光发射最显著的特征在于其全空间的辐射特
性, 荧光发射器能够在分子或原子尺度上与目标物
质相互作用. 目前基于分子荧光的测量和设备在生
物学^[1-3]、化学^[4,5]、光子学^[6,7]和医学^[8,9]等领
域的应用越来越广泛. 然而荧光物质的本征发射太
弱, 在低浓度下很难检测到荧光信号; 此外其全方
向辐射特性给荧光信号的收集效率也带来了进一
步的挑战, 这两个问题限制了荧光检测技术的进
一步发展和应用. 因此, 提高荧光强度和收集效率
是亟需

解决的两个问题. 回顾之前相关的研究提出了许多
结构, 如光子晶体结构^[10-12]、超材料纳米结构^[13,14]、
共振波导光栅^[15-17], 通过调节激发和荧光场来增
强荧光. 然而这些结构需要先进而复杂的纳米制造
技术和精细的设计^[18,19]. 近年来, 平面等离子体纳
米结构在荧光增强方面受到越来越多研究者的关
注. 2012 年, Choudhury 等^[20]提出了金属-电介质-
金属结构可以调控荧光辐射特性, 并将荧光引导到
一个狭窄的光束中, 提高了荧光的收集效率, 同时
能对发射方向进行更大的控制. 2014 年, Yan 等^[21]
利用 ZnO 薄层状结构实现了 10 倍的紫外光致发
光增强. 2017 年, Sepideh 等^[22]提出了一种 Ag-
TPBi-Ag 平面等离子体结构, 可以实现增强 3 倍
荧光发射的能力. 2019 年, Nyman 等^[23]提出了一

* 国家自然科学基金 (批准号: 62175178)、中央引导地方科技发展资金项目 (批准号: YDZJSX2021A013)、山西省青年拔尖人才支
持计划和三晋英才支持计划资助的课题.

† 通信作者. E-mail: huixu@126.com

种使远场荧光增强达到 120 倍的平面纳米结构. 以上研究者所提出的结构实现了荧光增强因子或荧光收集效率的提高, 荧光增强和收集效率的提高有助于荧光技术的发展和运用.

本文提出了一个新的平面纳米结构, 用以研究荧光物质的远场荧光增强和辐射方向. 众所周知, 金属纳米结构和透明电介质微球是两种很有前途的荧光增强材料. 金属基于表面等离子体共振效应 [24–26] 能够调节荧光物质的辐射和非辐射衰减速率, 并且可以通过磁控溅射和旋涂的方法来制备, 易控制且可重复性强. 自从 2004 年, Chen 等 [27] 第一次发现入射光照射电介质微球可以在微球的背侧面产生光子纳米喷射现象后, 越来越多的研究者关注光子纳米喷射的产生机理及特点 [28–33], 电介质微球像透镜一样可以会聚光场, 提高局域能量密度从而增强荧光. 因此, 为了将二者的优势结合起来, 我们设计了一个由电介质微球、掺杂有量子点的聚甲基丙烯酸甲酯 (PMMA) 层、金层以及玻璃基底构成的平面复合纳米结构, 用于增强荧光和提高荧光收集效率. 研究了微球半径、折射率和量子点位置对荧光定向增强的影响.

2 模型与方法

时域有限差分法 (finite difference time domain, FDTD) [34,35] 是研究荧光与结构相互作用的常用方法. 本文提出的是三维平面复合纳米结构. 在研究荧光发射过程中, 其仿真区域设置为 $(x, y, z) =$

$(-3:3, -3:3, 0:14) \mu\text{m}$, 离散化后的空间网格尺寸为 10 nm 或更小, 以确保计算的准确性. 在 x, y, z 方向上设置完美匹配层条件用于吸收所有到达边界上的光, 没有反射光影响结果. $x-y$ 面功率监视器位于 $z = 9 \mu\text{m}$ 处, 用于探测远场荧光功率. 远场功率表示功率监视器在离光源远场范围 (远超过一个波长距离) 内收集的发射功率. $x-y$ 面功率监视器收集功率的范围是 $6 \mu\text{m} \times 6 \mu\text{m}$. 在 $z = 9 \mu\text{m}$, $y = 0 \mu\text{m}$ 和 $x = 0 \mu\text{m}$ 位置处放置 3 个电场监视器分别覆盖 $x-y$, $x-z$ 和 $y-z$ 面的整个模拟区域用以计算空间电场分布. 计算收集效率时, 在 FDTD 仿真区域内采用由 6 个面功率监视器围成的立方体功率监视器分析组来计算发光功率, 该功率分析组范围是 $(x, y, z) = (-3:3, -3:3, 0:9) \mu\text{m}$. 在本研究中, 电偶极子光源的波长范围是 560–620 nm, 在碲化镉 [36] 量子点的荧光发射谱范围内. 结构的三维示意图及其侧视图如图 1(a)–(d) 所示, 侧视图坐标原点位置 A 已在图中标出, 金层的厚度 $d = 200 \text{ nm}$, PMMA 层的厚度 $d_1 = 400 \text{ nm}$, 玻璃的厚度为 500 nm, 电介质微球的半径 R 和折射率 n 是可变的, 同时层状结构的宽度与电介质微球的直径相同. 此外, 图 1(b)–(d) 中 3 个结构的侧视图依次命名为 gp, ga 和 gs. 背景折射率 $n_0 = 1$, 金和玻璃的折射率来源于 Johnson & Christy [37] 和 Palik [38] 参数的插值拟合. 为研究 PMMA 层中量子点与结构相互作用的物理机制, 我们首先研究单个量子点与结构相互作用, 从而简化研究过程.

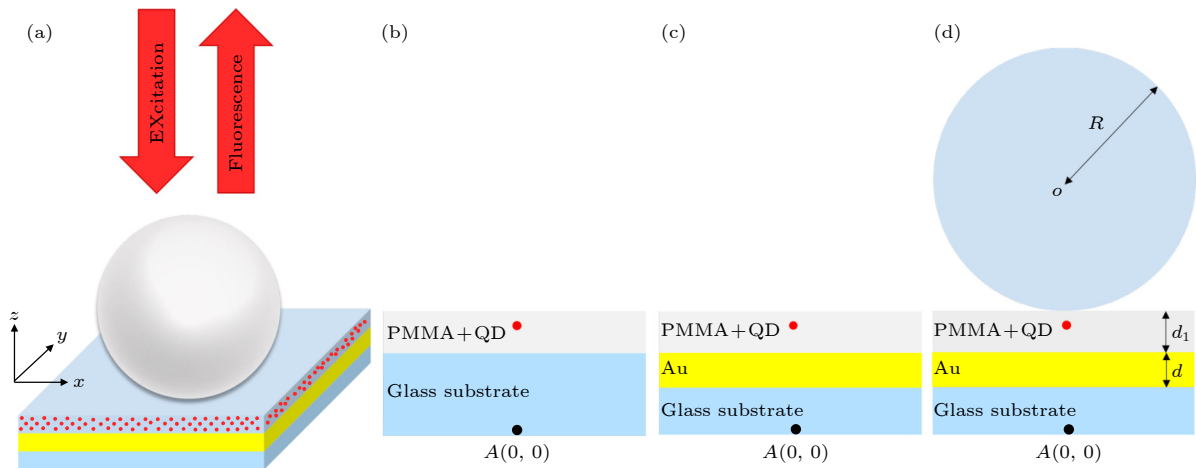


图 1 电介质微球 (灰色球) 和金属平面纳米层组成的复合结构 (a) 三维结构示意图; (b)–(d) 结构 gp, ga, gs 的侧视图, QD 代表量子点

Fig. 1. Composite structure composed of dielectric microsphere (the gray ball) and metallic planar nanolayers: (a) 3D schematic diagram of the structures; (b)–(d) the side views of the structures of gp, ga, gs in order, QD stands for quantum dot.

电介质微球和金属平面纳米层对单个量子点发光的增强可以由表面增强荧光理论来研究. 根据表面增强荧光理论, 荧光增强 ξ 的表达式为^[39]

$$\xi = \frac{\gamma_{\text{em}}}{\gamma_{\text{ex}}^0} = \frac{\gamma_{\text{ex}}}{\gamma_{\text{ex}}^0} \frac{q}{q^0}, \quad (1)$$

其中 γ_{ex} , γ_{em} 和 q 分别是等离子体结构附近的激发速率、发射速率和量子产率. 在激发过程中, 荧光激发率表示为

$$\frac{\gamma_{\text{ex}}}{\gamma_{\text{ex}}^0} = \frac{|E_{\text{loc}}|}{|E_0|}, \quad (2)$$

式中, $|E_{\text{loc}}|$ 指电介质微球和金属纳米层存在时量子点位置处的电场强度; $|E_0|$ 是仅处于 PMMA 背景中且没有电介质微球和金属层存在时, 量子点位置处的电场强度. 本文先研究量子点的发射过程, 再研究其激发过程.

3 结果和讨论

在发射过程中, 量子点在均匀介质中的发光是各向同性的. 因此在理论分析时通常选取几个特殊的偏振态进行研究. 首先研究了量子点处于 x , y , z

偏振态时, 复合结构对量子点荧光发射强度的影响. 选择尺寸 $R = 1 \mu\text{m}$, $n = 1.68$ 的乳胶电介质微球和金属平面纳米层结构进行 FDTD 仿真计算, 量子点的位置选为 $(0, 0, 0.78) \mu\text{m}$, 得到了荧光在不同偏振态条件下与结构耦合时的荧光发射功率增强曲线. 从图 2(a) 所示的功率曲线可以发现: z 偏振态下量子点的荧光远场发射功率较小且其曲线无明显变化, 表明 z 偏振态下的量子点荧光发射与该结构相互作用很弱. 相比于 z 偏振态下的量子点, x 和 y 偏振态的远场荧光发射功率更大, 可以实现较高的荧光发射增强, 并且有明显的荧光发射峰. 因为在 x 和 y 偏振态下, 荧光发射方向与平面层状结构垂直, 金层能够与量子点发射的荧光形成表面等离激元, 从而产生局部热点并能够调节量子点的辐射和非辐射速率, 量子点发射的荧光通过电介质微球会聚放大和产生纳米喷射现象并在空气中传播. 值得注意的是 x 和 y 偏振态下的远场荧光功率谱完全一致, 这是因为我们提出的是对称性的结构, 导致 x 和 y 偏振态下的量子点与结构相互作用的效果相同, 从而反映为相同的功率曲线图.

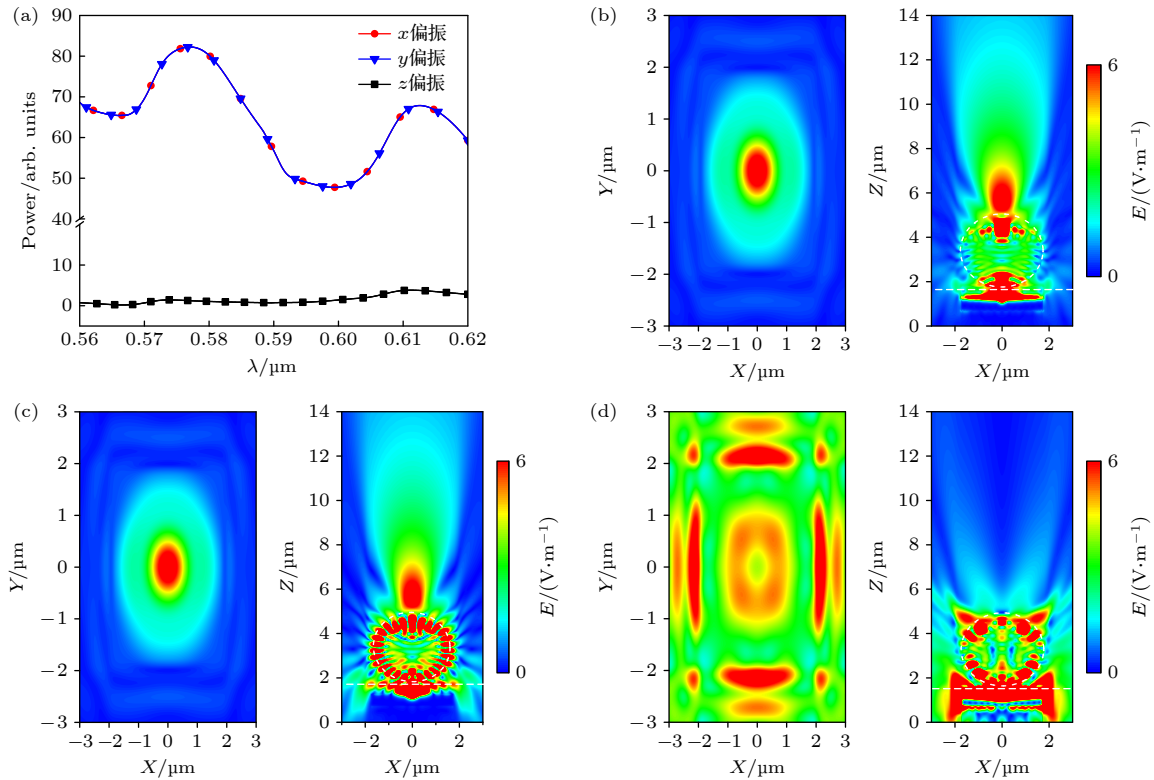


图 2 (a) 不同偏振态下偶极子光源的功率曲线; (b)–(d) 依次为 x , y , z 偏振态下的偶极子光源在中心波长 590 nm 处的俯视和横截面电场分布图

Fig. 2. (a) Power curves of quantum dots in different polarization states; (b)–(d) top-view and cross-sectional electric field profiles of the dipole light source at the center wavelength of 590 nm under the x , y , z polarization states in turn, respectively.

为进一步分析和解释结构与不同偏振态下的量子点相互作用的物理机制,以量子点发射荧光的中心波长为例进行仿真计算,得到了中心波长为 590 nm 处不同偏振态下的 x - y 面和 x - z 面电场分布图,结果如图 2(b)–(d) 所示. 从其电场图可以看出,偶极子光源在 x 和 y 偏振态下可以实现荧光定向远场发射增强,并且其电场俯视图一致. 通过分析功率曲线图 (图 2(a)) 可以得到,当量子点荧光发射方向垂直于微球平面层状结构时,该结构与发射的荧光耦合,从而实现量子点发射荧光的定向增强,并且在 x 和 y 偏振态下得到明显的荧光增强效果. 因此,后面选择 x 偏振态的电偶极子光源进行研究分析.

为提高量子点荧光定向发射强度以及远场荧光的收集效率,将研究 3 个简单的结构. 参考结构如图 1(b) 所示,在玻璃基板上涂覆 400 nm 厚的 PMMA 层,量子点位于其中从而构成荧光层. 图 1(c) 所示的结构是相同的荧光层,但是有 200 nm 厚的金层位于玻璃基底和荧光层之间,用来调控量子点发射的荧光场. 金层不仅可以增强激发光的强度,还可以增强荧光物质的辐射场. 图 1(d) 所示的结构是在图 1(c) 结构基础上放置一个电介质微球. 选择 $R = 2 \mu\text{m}$, $n = 1.5$ 计算量子点的远场荧光强度. 图 3(a) 表示量子点位于 $(0, 0, 0.78) \mu\text{m}$ 时的远场功率,与参考结构 gp 相比,结构 gs 和结构 ga 的远场定向荧光发射增强因子分别达到 23 倍和 9 倍. x 偏振态下的量子点荧光发射在 3 个结构中 x - z 面的电场分布如图 3(b)–(d) 所示. 通过电场图可以得知,图 3(b) 是 gp 结构 x - z 面的电场分

布图,发现量子点发射的荧光主要局域在 PMMA 层中,并且荧光传播方向比较发散;图 3(c) 是 ga 结构 x - z 面的电场分布图,发现荧光的强度比 gp 结构大且荧光主要在金层上方传播;图 3(d) 是 gs 结构 x - z 面的电场分布图,可以看出位于电介质微球和金层之间的量子点发出的荧光发射强度得到明显提高,且增强的荧光可以通过电介质微球产生会聚光束传播到远场. 通过比较 gs 结构 ($R = 2 \mu\text{m}$, $n = 1.5$) 与 ga 结构的电场图,可以发现 gs 结构能显著增大荧光发射强度并且形成会聚光束,而 ga 结构仅能够增强量子点的发射强度,对于荧光的传播方向影响很弱. 因此 gs 结构可以同时实现量子点的激发增强和调控荧光的传播方向,这是由于该复合结构的等离激元共振、回音壁模式以及光子纳米射流效应的综合作用. 之前的研究表明,金属结构能够调控量子点的发射效率,通过两者的距离增强或淬灭荧光. 电介质微球支持回音壁模式是增强荧光的一种方法,由 Garrett 等^[40]在 1961 年提出. 我们提出的结构产生光子纳米喷射现象是由于偶极子光源与结构相互作用,当荧光传播时通过电介质微球作为透镜对光产生会聚作用,而以前的研究是用平面波和高斯光束直接在自由空间中照射微球产生光子纳米喷射现象. 此外,通过对 3 种结构电场图的进一步分析得知,电介质微球的存在可以实现量子点定向荧光发射远场增强. 综上所述,电介质微球在复合结构中起到两个作用:一是作为谐振腔产生回音壁模式以增强荧光发射强度;二是作为透镜会聚增强荧光以及控制荧光传播方向.

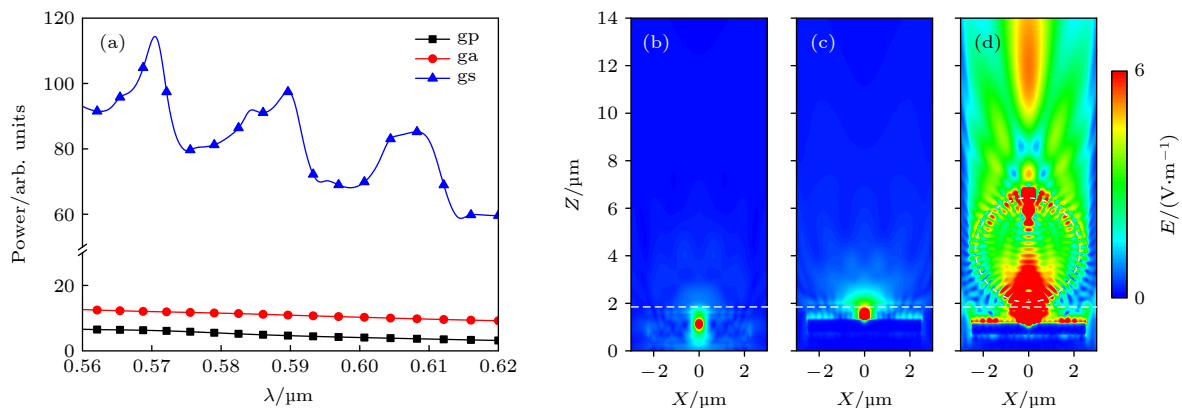


图 3 量子点位于 $(0, 0, 0.78) \mu\text{m}$ 处 (a) 3 种结构的远场功率曲线图; (b)–(d) $R = 2 \mu\text{m}$, $n = 1.5$, 结构 gp, ga 和 gs 横截面处的电场分布图

Fig. 3. Quantum dots are located at $(0, 0, 0.78) \mu\text{m}$: (a) Far-field power curves of the three structures; (b)–(d) plots of the electric field distribution at the cross-section of the gp, ga and gs structures at $R = 2 \mu\text{m}$, $n = 1.5$.

为了详细研究电介质微球对量子点发射荧光定向远场增强的影响, 接下来考虑偶极子光源在特定位置 $(0, 0, 0.78) \mu\text{m}$ 时, 不同半径的电介质微球与定向发射的关系. 电介质微球的折射率固定为 1.5; 微球的半径 $R = 1.0\text{--}2.5 \mu\text{m}$ 时, 微球的位置也需要变化, 以保证微球始终与荧光层相切. 如图 4 所示, 微球尺寸逐渐变大时, 远场辐射功率会出现多个峰值功率, 并且远场辐射峰值功率对于微球的尺寸变化不敏感. 量子点的远场功率在短波长处比较大, 且当 $R = 2 \mu\text{m}$ 时, 其峰值功率对应的波长为 570 nm . 接下来的研究中考考虑到收集效率的计算, 故选择 $R = 2 \mu\text{m}$ 来计算电介质微球和金属平面纳米层结构在波长为 570 nm 处的电场图和远场散射图.

研究表明透镜的相对折射率对会聚光有影响 [28,41,42], 因此有必要研究不同折射率微球对定向发射增强的影响. 我们研究了间隔为 0.2, 电介质微球折射率 1.3—2.1 范围内可以在实际应用中找到对应的材料, 如有机玻璃 PMMA, $n = 1.5$, 其电场图和远场散射图如图 5 所示. 通过电场图可以得到随着折射率的增加, 电介质微球会聚荧光的能力越强, 并且会聚焦点越靠近微球表面, 同时回音壁模式也随着折射率增加而更加明显. 与电场图对应的远场散射图进一步显示了荧光在空气中传播过

程的分布位置, 以及荧光的传输方向, 可以发现不同折射率对应的远场散射图中荧光传播角度很小, 表明我们提出的结构能够很好地控制荧光光束, 会聚荧光, 并且可以有效调控荧光传输的方向.

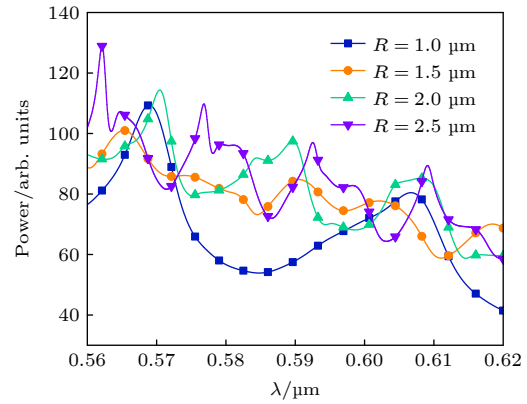


图 4 $n = 1.5$ 且量子点位于 $(0, 0, 0.78) \mu\text{m}$ 处, 不同半径电介质微球的远场功率曲线

Fig. 4. Far-field power curves of the dielectric microsphere with different radii for $n = 1.5$ and the quantum dots are located at $(0, 0, 0.78) \mu\text{m}$.

为了比较不同结构荧光收集效率的影响, 接下来研究并计算了量子点位于 $(0, 0, 0.78) \mu\text{m}$ 处, 不同结构的远场荧光收集效率. 收集效率定义为荧光定向发射方向收集的功率与所有方向总发射功率的比值. 优化后的结构参数分别为电介质微球半

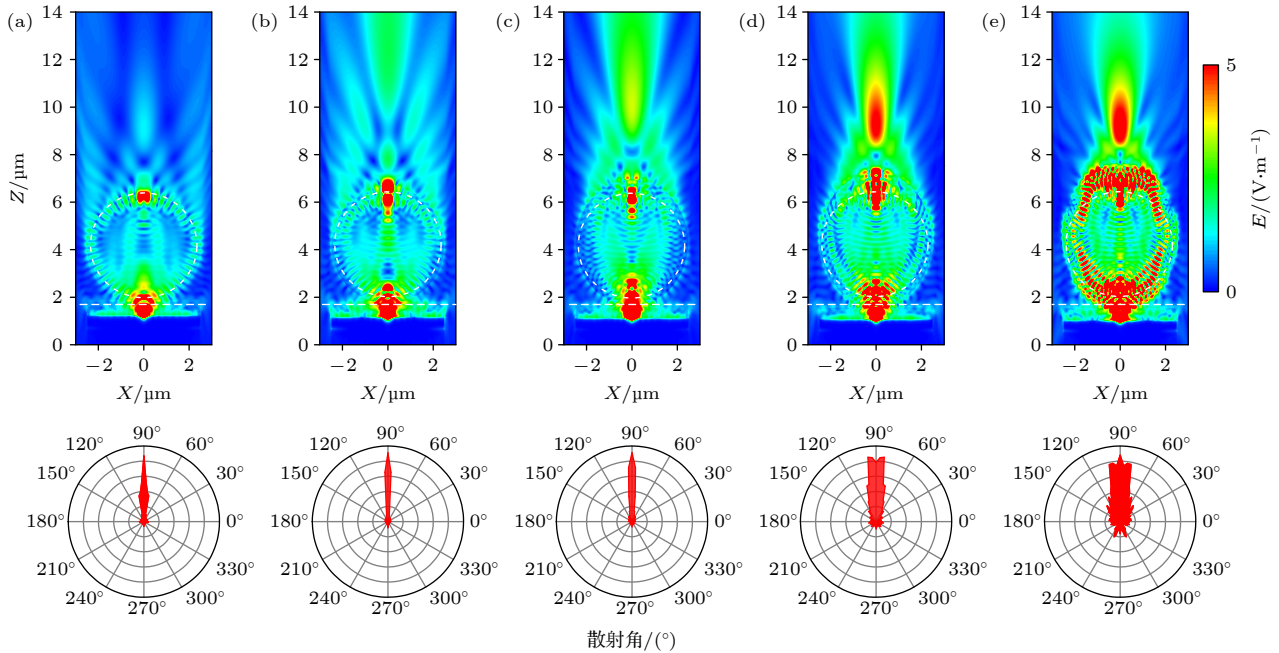


图 5 不同折射率电介质微球的电场强度和远场散射图 (a) $n = 1.3$; (b) $n = 1.5$; (c) $n = 1.7$; (d) $n = 1.9$; (e) $n = 2.1$

Fig. 5. Electric field intensity and far-field scattering distributions of dielectric microsphere with different refractive indices: (a) $n = 1.3$; (b) $n = 1.5$; (c) $n = 1.7$; (d) $n = 1.9$; (e) $n = 2.1$.

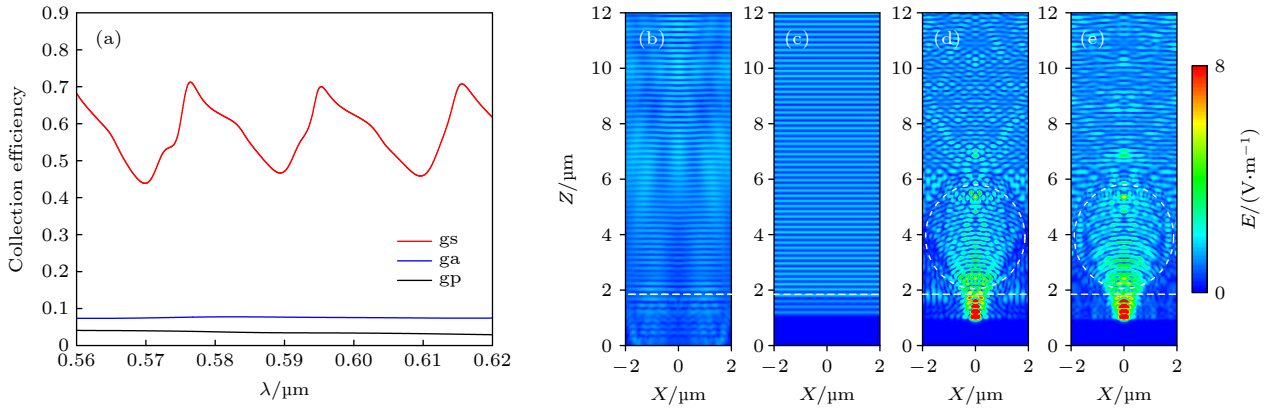


图6 (a) $R = 2 \mu\text{m}$, $n = 1.5$ 时, 3 个结构的远场收集效率; (b)–(e) 单色平面波长为 405 nm 处的激发电场图 (b) gp 结构; (c) ga 结构; (d), (e) gs 结构的 TE 和 TM 偏振

Fig. 6. (a) Far-field collection efficiencies of the three structures with $R = 2 \mu\text{m}$, $n = 1.5$; (b)–(e) excitation electric field maps at a wavelength of 405 nm in the monochromatic plane: (b) gp structure; (c) ga structure; (d), (e) the TE and TM polarizations of gs structure, respectively.

径 $R = 2 \mu\text{m}$, 折射率 $n = 1.5$, 此时得到的荧光收集效率最大. 从图 6(a) 可以看出, 结构 gs 能够有效地收集远场荧光, 使得荧光发射面的收集效率最高达到 70%, 而结构 ga 和 gp 的荧光发射面收集效率最大分别为 7% 和 4%. 由此可知, 结构 gs 能够在荧光发射面收集大部分荧光能量, 这十分有助于提高探测器的灵敏度, 进而促进荧光检测技术的发展.

本文不仅详细研究了量子点的发射增强过程, 并且还考虑了量子点的激发过程. 为了研究量子点的激发过程, 将波长为 405 nm 的单色平面波源放在 $(0, 0, 14)$ 位置上分别入射 3 个不含有量子点荧光层的结构. 仿真范围是 $(x, y, z) = (-6:6, -6:6, 0:12) \mu\text{m}$. 为了避免平面波的边缘效应, x 和 y 方向采用了布洛赫边界条件, z 方向设置了完美匹配层边界条件. 时间监视器用于记录平面波激发量子点的电场. 我们从时域和频域两个方面分别研究了平面波在横电波 (TE 模式) 和横磁波 (TM 模式) 下的激发过程. 通过分析图 6(d), (e) 所示的在 405 nm 波长处激发的电场分布图, 发现我们提出的结构的光强 $|E|^2$ ($|E|^2 = |E_{\text{TE}}|^2 + |E_{\text{TM}}|^2$) 是 3 种结构中最强的, 同时电介质微球金属平面纳米层状结构在大部分区域都可以实现量子点激发增强, 相对于 gp 结构的激发电场强度, gs 结构激发的电场增强了 10 倍. 证明了我们所设计的结构可以有效地实现量子点的激发和发射增强, 总的荧光增强倍数为激发电场增强倍数与发射增强倍数之积, 即该结构的荧光增强倍数为 230.

4 结 论

本文提出了一种由电介质微球和金属平面纳米层组成的等离激元纳米复合结构, 实现了高度聚焦的定向荧光发射增强和激发增强, 并且极大地提高了荧光发射方向的收集效率. 电介质微球和金属平面结构形成平凸谐振腔, 金属结构通过等离激元耦合模式调控荧光辐射强度, 最终荧光通过电介质微球会聚光束并形成光子纳米射流, 回音壁模式能够将发射荧光增强, 调节荧光光束并在空气中定向传输荧光. 这可以通过控制电介质微球的半径, 折射率来调控荧光层的荧光发射. 这对于荧光在生物检测、成像以及提高发光器件效率等领域的发展和应用具有重要的意义.

参考文献

- [1] Wang J, Sun C, Ji M, Wang B, Wang P, Zhou G, Dong B, Du W, Huang L, Wang H, Ren L 2021 *Protein. Expr. Purif.* **187** 105952
- [2] Zhou M, Cao J, Akers W J 2016 *Methods Mol. Biol.* **1444** 45
- [3] Zhou L, Zhou J, Lai W, Yang X, Meng J, Su L, Gu C, Jiang T, Pun E Y B, Shao L, Petti L, Sun X W, Jia Z, Li Q, Han J, Mormile P 2020 *Nat. Commun.* **11** 1785
- [4] Itoh T 2012 *Chem. Rev.* **112** 4541
- [5] Qian Z, Ma J, Shan X, Shao L, Zhou J, Chen J, Feng H 2013 *RSC Advances* **3** 14571
- [6] Lu C Y, Browne D E, Yang T, Pan J W 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 250504
- [7] Fan L, Sun X, Xiong C, Schuck C, Tang H X 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 153507
- [8] Marcu L 2012 *Ann. Biomed. Eng.* **40** 304
- [9] Wang Z, Zheng Y, Zhao D, Zhao Z, Liu L, Pliss A, Zhu F,

- Liu J, Qu J, Luan P 2017 *J. Innov. Opt. Heal. Sci.* **11** 1830001
- [10] Ge F, Yang X 2017 *J. Mater. Sci.* **53** 4840
- [11] Zhong K, Yu W, de Coene Y, Yamada A, Krylychkina O, Jookan S, Deschaume O, Bartic C, Clays K 2021 *Biosens. Bioelectron.* **194** 113577
- [12] Cheng Q, Wang S, Liu N 2021 *IEEE Sens. J.* **21** 17785
- [13] Li L, Wang W, Luk T S, Yang X, Gao J 2017 *ACS Photonics* **4** 501
- [14] Luo S, Li Q, Yang Y, Chen X, Wang W, Qu Y, Qiu M 2017 *Laser & Photonics Rev.* **11** 1600299
- [15] Karvinen P, Nuutinen T, Hyvarinen O, Vahimaa P 2008 *Optics Express* **16** 16364
- [16] Muriano A, Thayil K N A, Salvador J P, Loza-Alvarez P, Soria S, Galve R, Marco M P 2012 *Sensor. Actuat. B:Chem.* **174** 394
- [17] Lin J H, Liou H Y, Wang C D, Tseng C Y, Lee C T, Ting C C, Kan H C, Hsu C C 2015 *ACS Photonics* **2** 530
- [18] Walia S, Shah C M, Gutruf P, Nili H, Chowdhury D R, Withayachumnankul W, Bhaskaran M, Sriram S 2015 *Appl. Phys. Rev.* **2** 011303
- [19] Quaranta G, Basset G, Martin O J F, Gallinet B 2018 *Laser & Photonics Rev.* **12** 1800017
- [20] Choudhury S D, Badugu R, Nowaczyk K, Ray K, Lakowicz J R 2013 *J. Phys. Chem. Lett.* **4** 227
- [21] Yan Y, Zeng Y, Wu Y, Zhao Y, Ji L, Jiang Y, Li L 2014 *Opt. Express.* **22** 23552
- [22] Golmakaniyoon S, Hernandez-Martinez P L, Demir H V, Sun X W 2017 *Appl. Phys. Lett.* **111** 093302
- [23] Nyman M, Shevchenko A, Shavrin I, Ando Y, Lindfors K, Kaivola M 2019 *APL Photonics* **4** 076101
- [24] Huang Y, Lin W, Chen K, Zhang W, Chen X, Zhang M Q 2014 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **16** 11584
- [25] Liu Y S, Lin H C, Xu H L 2018 *IEEE Photonics J.* **10** 1
- [26] Hong F, Tang C, Xue Q, Zhao L, Shi H, Hu B, Zhang X 2019 *Langmuir* **35** 14833
- [27] Chen Z, Taflove A, Backman V 2004 *Opt. Express* **12** 1214
- [28] Liu C Y 2019 *Crystals* **9** 198
- [29] Liu C Y, Lin F C 2016 *Opt. Commun.* **380** 287
- [30] Mahariq I, Abdeljawad T, Karar A S, Alboon S A, Kurt H, Maslov A V 2020 *Photonics* **7** 50
- [31] Sergeev A A, Sergeeva K A, Leonov A A, Voznesenskiy S S 2020 *4th International Conference on Metamaterials and Nanophotonics (METANANO)* Tbilisi, Georgia, 2020, Sep 14–18 pp261–263
- [32] Zhang W, Lei H 2020 *Nanoscale* **12** 6596
- [33] Zhou S, Zhou T 2020 *Appl. Phys. Express* **13** 042010
- [34] Kong S C, Simpson J J, Backman V 2008 *IEEE Microw. Wirel. Compon. Lett.* **18** 4
- [35] Sullivan D 2013 *Electromagnetic Simulation Using the FDTD Method, Second Edition* (Hoboken: IEEE Press) pp85–96
- [36] Duan J, Song L, Zhan J 2010 *Nano Res.* **2** 61
- [37] Johnson P B, Christy R W 1972 *Phys. Rev. B* **6** 4370
- [38] Palik E D 1985 *Handbook of Optical Constants of Solids First Edition* (Orlando: Academic Press) pp286–287
- [39] Das G M, Ringne A B, Dantham V R, Easwaran R K, Laha R 2017 *Opt. Express* **25** 19822
- [40] Garrett C G B, Kaiser W, Bond W L 1961 *Phys. Rev.* **124** 1807
- [41] Guo M, Ye Y H, Hou J, Du B 2015 *Photonics Res.* **3** 339
- [42] Zhu H, Chen M, Zhou S, Wu L 2017 *Macromolecules* **50** 660

Far-field directional emission of fluorescence enhanced by dielectric microsphere and metallic planar nanolayers^{*}

Guo Fu-Zhou¹⁾²⁾ Chen Zhi-Hui^{1)2)†} Feng Guang¹⁾²⁾ Wang Xiao-Wei¹⁾²⁾Fei Hong-Ming¹⁾²⁾ Sun Fei¹⁾²⁾ Yang Yi-Biao¹⁾²⁾1) (*Key Laboratory of Advanced Transducers and Intelligent Control, Ministry of Education, Taiyuan University of Technology, Taiyuan 030024, China*)2) (*Department of Physics and Optoelectronics, Taiyuan University of Technology, Taiyuan 030024, China*)

(Received 1 April 2022; revised manuscript received 25 April 2022)

Abstract

Controlling the emission characteristics of fluorescent substances and increasing the intensity of fluorescence emission are crucial for fluorescence detecting technology in single-molecule detection, biomedicine, and sensing applications. Since fluorescence emission is isotropic in nature, the collected fluorescence is only accounted for a small fraction of the total emitted fluorescence. In this paper, a composite structure composed of dielectric microsphere and metallic planar nanolayers is proposed to enhance the fluorescence far-field directional emission intensity and improve the fluorescence collection efficiency. The excitation process and the emission process of quantum dots (QDs) located between the dielectric microspheres and the gold layer are investigated by the finite difference time domain (FDTD) method. In the emission process, the emission of QDs in a homogeneous medium is isotropic. Therefore, we usually select several special polarizations in theoretical analysis state for research. In this paper, we first study the effect of the structure on the fluorescence emission enhancement of QDs when the QDs are in the x -, y -, and z -polarization state. Some results can be obtained as shown below. When the radiation direction of the QDs is perpendicular to the microsphere plane layered structure, the structure is coupled with the emitted fluorescence, thereby realizing the directional enhancement of the emitted fluorescence of the QDs, and the obvious fluorescence enhancement is obtained in the x - and y -polarization state. Therefore, in the research, we choose and investigate the dipole light source of x -polarization state. We mainly study the influence of microsphere radius, refractive index, and QDs position on the fluorescence directional enhancement. The QDs as a fluorescent material are coated in polymethyl methacrylate (PMMA) to control the distance from the gold layer to tune the fluorescence enhancement. The structure is based on the synergistic effect among plasmon coupling, whispering gallery mode and photonic nanojet, which enhances the far-field fluorescence of QDs by a factor of 230, and the fluorescence collection efficiency is as high as 70%. Comparing with the enhanced fluorescence of the dielectric microspheres and the gold sphere dimer composite structure, the distance between the gold sphere dimers is not easy to control, and the QDs should be placed at specific positions between the gold spheres. The structure we propose is more convenient to implement. In this paper, not only the emission enhancement process of QDs is studied in detail, but also the excitation process of QDs is investigated. Our proposed dielectric microsphere metal planar nanolayered structure can enhance the excitation of QDs in most areas, proving that our designed structure can effectively realize the excitation enhancement of QDs. The above results have very important applications in the fluorescence biological detection, imaging, and light-emitting devices.

Keywords: fluorescence enhancement, photonic nanojet, dielectric microsphere, biological detection**PACS:** 68.65.Ac, 78.67.-n, 81.16.Rf**DOI:** 10.7498/aps.71.20220605

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 62175178), the Central Guidance on Local Science and Technology Development Fund of Shanxi Province, China (Grant No. YDZJSX2021A013), the Program for the Top Young Talents of Shanxi Province, China, and the Program for the Sanjin Outstanding Talents of China.

[†] Corresponding author. E-mail: huixu@126.com

电介质微球和金属平面纳米层增强荧光远场定向发射

郭付周 陈智辉 冯光 王晓伟 费宏明 孙非 杨毅彪

Far-field directional emission of fluorescence enhanced by dielectric microsphere and metallic planar nanolayers

Guo Fu-Zhou Chen Zhi-Hui Feng Guang Wang Xiao-Wei Fei Hong-Ming Sun Fei Yang Yi-Biao

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 176801 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20220605

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220605>

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

构建核壳结构增强 Ho^{3+} 离子在镨基纳米晶中的红光上转换发射

Enhanced red upconversion fluorescence emission of Ho^{3+} ions in NaLuF_4 nanocrystals through building core-shell structure

物理学报. 2019, 68(17): 174204 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190441>

激光3D纳米打印温度敏感的微球激光器

Femtosecond laser 3D printing temperature sensitive microsphere lasers

物理学报. 2019, 68(19): 194204 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190298>

样品表面银膜的粗糙度对钛酸钡微球成像性能的影响

Effect of silver film roughness on imaging property of BaTiO_3 microsphere

物理学报. 2018, 67(21): 214209 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180823>

涂覆石墨烯的非对称椭圆电介质纳米并行线的模式分析

Mode characteristics of asymmetric graphene-coated elliptical dielectric nano-parallel wires waveguide

物理学报. 2020, 69(23): 238102 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201041>

涂覆石墨烯的非对称并行电介质纳米线波导的模式特性分析

Mode properties analysis of graphene-coated asymmetric parallel dielectric nanowire waveguides

物理学报. 2018, 67(3): 038102 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172016>

涂覆石墨烯的椭圆形电介质纳米线光波导的模式特性分析

Mode characteristic analysis of optical waveguides based on graphene-coated elliptical dielectric nanowire

物理学报. 2019, 68(5): 058101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20182090>