

微流道中消逝场激励的荧光光源研究

张远宪, 储玉飞, 普小云*

云南大学物理系, 云南 昆明 650091

摘要 将石英裸光纤植入聚二甲基硅氧烷(PDMS)基片的微流道中,采用沿光纤轴向光激励、消逝场激励染料分子的方式,在基片微流道中获得均匀的荧光辐射。实验发现,在激励光强确定的条件下,荧光辐射的强度与染料溶液的浓度呈线性正相关关系,而与包层溶液的折射率呈非线性正相关的关系。用消逝波激励荧光的辐射理论,很好地解释了实验结果。

关键词 光纤光学; 消逝场; 光流控荧光; 染料

中图分类号 O431.1 **文献标识码** A

doi: 10.3788/AOS201737.0106008

Study on Fluorescent Radiation Excited by Evanescent Field in a Microfluidic Channel

Zhang Yuanxian, Chu Yufei, Pu Xiaoyun

Department of Physics, Yunnan University, Kunming, Yunnan 650091, China

Abstract A bare quartz optical fiber is embedded in a polydimethylsiloxane (PDMS) substrate microfluidic channel, pumped by a continuous wave laser along the fiber axis, and the dye fluorescence excited by evanescent field of the pump beam has been investigated. As the evanescent field of the pump beam is homogeneous along the fiber axis, it is found that the fluorescent emission from the rim of fiber is uniform along the microfluidic channel. The experimental results show that the fluorescent emission intensity strongly depends on the dye concentration and the refractive index of the dye solution, and with the increase of the dye concentration and the refractive index of dye solution, the emitted fluorescent intensity increases accordingly. The observed phenomena have been successfully explained based on the mechanism of evanescent wave pumping fluorescent radiation.

Key words fiber optics; evanescent field; optofluidic fluorescence; dye

aZOCIS codes 060.2310; 130.3120; 300.2530; 230.4000

1 引 言

近年来,结合现代光学、光电子学和微流控技术而形成的新型交叉前沿学科和技术-光流控技术^[1-3],受到国内外研究人员的广泛关注和重视。光流控系统可在微米尺度上通过操控流体达到调节系统的光学或光电子学特性的目的^[4-6],该类系统具有快速、高效、样品取样少等优点,在芯片上的实验室(Lab-on-chip)系统中有着广泛的应用前景^[7]。作为芯片系统中至关重要的检测单元,激光诱导荧光(LIF)检测法通常用于检测能发出荧光的化合物,是一种最为普通但又具有较高灵敏度的检测方法。因此,芯片内荧光的产生是光流控技术的主要研究方向之一。目前,芯片内光的产生主要包括两种类型:1)基于三明治型的液芯和液体包层波导^[4,8]。这种类型的波导是在聚二甲基硅氧烷(PDMS)微流道中用溶入染料分子的高折射率的乙二醇(折射率为1.432)作为液芯,用低折射率的水(折射率为1.333)作为液芯的包层,通过选用不同的染料分子可以

收稿日期: 2016-07-18; **收到修改稿日期:** 2016-09-02

基金项目: 国家自然科学基金(11404282,61465014,61465015)、中科院西部之光人才培养项目、云南大学中青年骨干教师培养项目

作者简介: 张远宪(1983—),男,博士,副教授,主要从事光学与光电子学方面的理论和实验方面的研究。

E-mail: zyx74635@163.com

* **通信联系人.** E-mail: xyphu@163.com

获得不同波长范围的荧光辐射;2)基于两相分层流动的液芯和空气包层的液芯波导^[9],这种类型的光波导也是在 PDMS 微流道中用溶入染料分子的高折射率的乙二醇作为液芯,用低折射率的空气(折射率为1.000)作为液芯的包层,这种类型的波导由于液芯介质和空气间较大的折射率差值增强了波导对传输光的控制。然而,由于上述两种类型波导总是在一种强光的横向(垂直于基片平面)直接激励作用下产生的,或者将激励光经过外部光纤耦合后直接进入溶入染料分子的液芯的一端,染料分子都属于对激励光具有强烈吸收的分子,其较大的吸收使得激励光在芯区的空间分布是非均匀的,由此产生的荧光的空间分布也是非均匀的^[4,9]。

为了获得微流芯片内均匀的荧光辐射,本文设计并制作了一种新型的基于 PDMS(折射率为 1.410)的微流芯片。以 PDMS 作为基片材料,将单一折射率的石英裸光纤(折射率 1.458)植入 PDMS 基片微流道中,在微流道中注入低折射率的染料溶液作为光纤包层,以连续波(CW)激光器作为激励光源,采用沿光纤轴向光激励方式,激励光沿光纤轴向以受抑全反射方式(FTR)传播,其消逝场渗透到包层溶液中,并在此消逝场区域内激励染料分子产生荧光辐射。由于激励光的消逝场在光纤周围是均匀分布的,所以荧光辐射在光纤周围也是均匀分布的,在一定距离范围内,光纤中的激励光沿光纤轴向也是接近均匀分布的,因此沿光纤轴向的荧光辐射也是接近均匀分布的。在此基础上,研究了染料溶液浓度以及溶液折射率对荧光辐射强度的影响。

2 芯片的设计与制作

图 1(a)、(b)分别是基于 PDMS 基片微流道芯片的俯视图和实物图,实物由苏州汶颢芯片科技有限公司制作。PDMS 基片尺寸为 $42\text{ mm} \times 16\text{ mm}$,单一折射率的石英裸光纤直径 D 为 $188\text{ }\mu\text{m}$,其两端均由 PDMS 固定,中间部分置于尺寸为 $34\text{ mm} \times 0.3\text{ mm} \times 0.3\text{ mm}$ 的微流道内,在微流道内注入低折射率的染料溶液作为光纤的增益包层。染料溶液通过芯片上的流体入口和出口流入和流出。 z 表示微流道轴向距流体入口的长度。

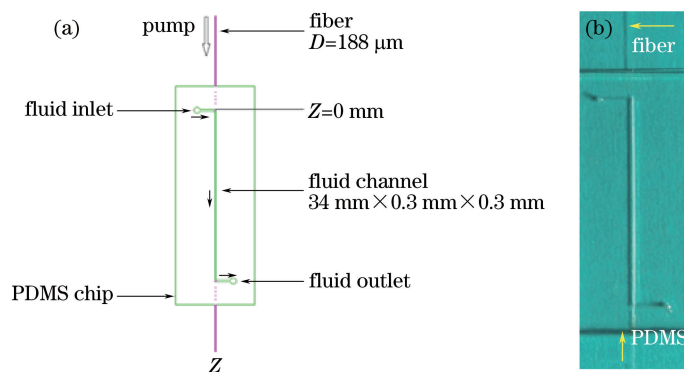


图 1 PDMS 芯片结构图。(a) 俯视图; (b) 实物图

Fig. 1 Schematic of the PDMS chip. (a) Top view of PDMS chip; (b) picture of PDMS chip

3 实验结果及讨论

3.1 实验安排

如图 2 所示,以波长为 532 nm 的 CW 激光器(功率 500 mW)作为激励光源,激励光依次经过全反射镜 M 及衰减片 ATT,衰减后激励光的功率为 20 mW 。激励光经显微物镜 L(20 倍, $NA = 0.4$)会聚后进入 PDMS 基片内单一折射率的石英裸光纤的前端面。孔径光阑 D(孔径 $300\text{ }\mu\text{m}$)的作用是减小激励光对实验结果的影响。芯片微流通道中作为光纤包层的 Rhodamine 6G 染料溶液浓度 N 为 0.01 mmol/L ,溶液折射率 n_2 为 1.361 。激励光沿光纤轴向以受抑全反射方式传播,其消逝场渗透到包层溶液中,并在此消逝场区域内激励染料分子产生荧光辐射,荧光沿光纤表面辐射后由导光光纤送入光谱采集系统。特别地,由于激励光先经过空气包层,然后进入 PDMS 包层再进入染料包层溶液,由于包层折射率不同时光线在光纤界面的全

反射角不同,则部分在空气中满足全反射条件但在染料溶液中不满足全反射条件的光也会折射到染料溶液中激励染料分子产生荧光辐射,使得微流道端口处约 L_0 长度范围内荧光辐射强度较强且衰减较快,从而对实验产生影响。设光纤以空气和以染料溶液为包层时的全反射角分别为 θ_{c1} 及 θ_{c2} ,由全反射定律知

$$\sin \theta_{c1} = \frac{n_0}{n_1}, \quad \sin \theta_{c2} = \frac{n_2}{n_1}, \quad (1)$$

式中 n_0 和 n_1 分别为空气和光纤折射率,取染料溶液折射率 n_2 为 1.432,则 $\theta_{c1} < \theta_{c2}$,即角度在 θ_{c1} 至 $\theta_{c2} - \theta_{c1}$ 范围内的光线进入染料包层溶液后不能继续在光纤界面以全反射方式传播而折射到包层溶液中。设光纤半径为 r ,则 $L_0 = 2r \tan \theta_{c2}$,以 $n_2 = 1.432$ 计算,得 $L_0 \approx 1.0$ mm。因此,为了减弱折射光对实验的影响,在激励光进入微流道前,在光路中加入毛细管 C(直径 $D = 300 \mu\text{m}$),并在 C 内注入和微流道中相同浓度和折射率的包层染料溶液,滤去在微流道中不满足全反射条件的激励光。为方便实验,取毛细管的长度为 2 cm。

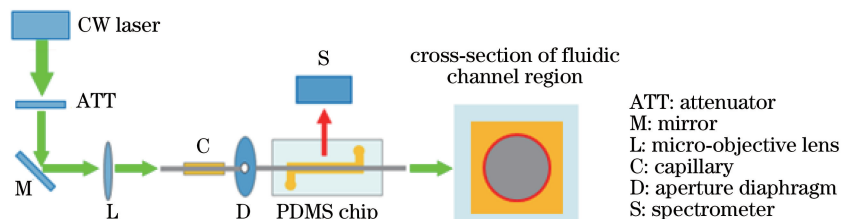


图 2 实验装置图

Fig. 2 Illustration of the experimental setup

3.2 实 验

3.2.1 荧光沿光纤轴向的分布

图 3 是在激励功率为 20 mW,染料浓度 $N = 0.01$ mmol/L 和溶液折射率 $n_2 = 1.361$ 时 Rhodamine 6G 的荧光强度分布。图 3(a)是荧光沿光纤轴向辐射的实物图,图 3(b)、(c)分别是荧光沿光纤轴向不同位置处的荧光光谱和荧光辐射强度的分布。由图 3 可知,采用沿光纤轴向激励光的消逝场激励染料分子的方式,可以获得沿光纤轴向较长范围的荧光辐射;由于激励光的消逝场在光纤周围是均匀分布的,所以荧光辐射在光纤周围也是均匀分布的;通过选择适当的包层溶液折射率以及染料浓度可以获得沿光纤轴向接近均匀的荧光辐射。下面主要讨论在 $Z = 0$ mm 处 PDMS 芯片微流通道内包层染料浓度及溶液折射率对荧光辐射强度的影响。

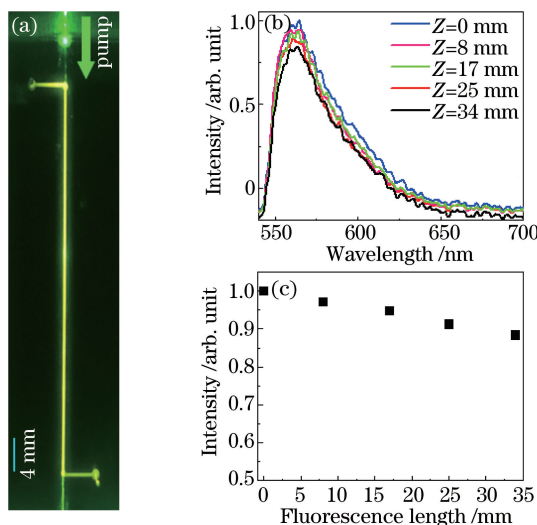


图 3 (a) 荧光沿光纤轴向辐射实物图; (b) 荧光沿光纤轴向的光谱; (c) 荧光沿光纤轴向的强度分布

Fig. 3 (a) Picture of the fluorescence emission along the fiber axis; (b) fluorescence spectra at different positions; (c) fluorescence emission intensity distribution at different positions

3.2.2 染料浓度及溶液折射率对荧光辐射强度的影响

3.2.2.1 实 验

首先用折射率为 1.361 的无水乙醇配制了浓度为 5 mmol/L 的 Rhodamine 6G 染料母液,并用无水乙醇将母液稀释后得到浓度为 0.01~3 mmol/L 的一系列染料溶液。然后再用折射率分别为 1.334 和 1.432 的水和乙二醇分别配浓度为 0.01 mmol/L 的 Rhodamine 6G 染料母液,两种母液按一定比例混合后得到折射率为 1.334~1.432 的一系列染料溶液。采用沿光纤轴向消逝波激励染料方式,得到在激励功率为 20 mW,在 $Z=0$ mm 处荧光辐射强度随 PDMS 芯片微流道中包层染料溶液浓度及染料溶液折射率的变化(图 4)。

图 4(a)、(b)为包层染料溶液折射率为 1.361,荧光辐射强度随染料溶液浓度的变化关系。由图可知,随溶液浓度的增加,荧光辐射的强度不断增大。图 4(c)、(d)是为包层染料溶液浓度为 0.01 mmol/L,荧光辐射强度随染料溶液折射率的变化。由图可知,随溶液折射率的增加,荧光辐射的强度也不断增强。下面用消逝波激励的荧光辐射理论解释如上实验现象。

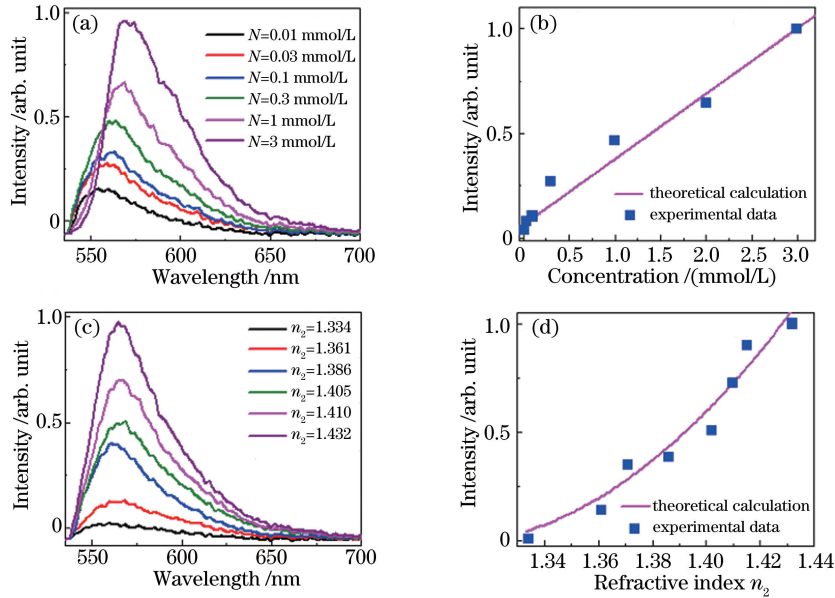


图 4 (a) 不同染料浓度的荧光光谱; (b) 荧光辐射强度随染料浓度的变化; (c) 不同折射率的荧光光谱; (d) 荧光辐射强度随溶液折射率的变化

Fig. 4 (a) Fluorescence spectra for different dye concentration; (b) fluorescence emission intensity varied with dye concentration; (c) fluorescence spectra for different solution refractive index; (d) fluorescence emission intensity varied with solution refractive index

3.2.2.2 理论解释

在消逝波沿光纤轴向光激励条件下,在 $Z=0$ mm 处,荧光沿光纤径向的强度可以表示为^[10]

$$I_F = \frac{C'N\lambda_p I_0}{4\pi[(n_1^2 \sin^2 \theta_t - n_2^2)^{1/2} + \lambda_p \alpha_{\text{abs}}^{\text{p,out}}]}, \quad (2)$$

式中 C' 是由激励光的耦合效率及染料分子的荧光量子效率等因素确定的常数, N 为染料溶液的浓度, $\lambda_p = 532$ nm 是激励光的波长, I_0 为激励光在 $Z=0$ mm 处激励光的强度, n_1 和 n_2 分别是石英光纤和包层染料溶液的折射率, θ_t 是激励光在光纤界面上的全反射角, $\alpha_{\text{abs}}^{\text{p,out}}$ 是激励光在包层溶液中的吸收系数。(2)式表明,在消逝波激励染料分子产生荧光辐射的条件下,荧光强度 I_F 仍然正比于染料浓度;然而, I_F 随包层染料溶液折射率的增加而增强,二者是一种非线性关系。

对波长为 532 nm 的激励光, Rhodamine 6G 的吸收截面 $\sigma_{\text{abs}} = 4.8 \times 10^{-16}$ cm²^[11], 由 $\alpha_{\text{abs}}^{\text{p,out}} = N\sigma_{\text{abs}}$ 即可计算出 $\alpha_{\text{abs}}^{\text{p,out}}$ 。对于实验所用的物镜 L, 经计算可知 $\theta_t = 80.6^\circ$ ^[12]。所以(2)式中除常数 C' 以外,其他都是数值确定的实验量或可计算量。在图 4(b)中任取一组 (N, I_F) 代入(1)式便可得消除 C' 后的荧光辐射强度 I_F 随溶液浓度 N 的变化。同理,在图 4(d)中任取一组 (n_2, I_F) 代入(2)式就可得消除 C' 后的荧光辐射强度 I_F 随

溶液折射率 n_2 的变化。由图 4(b)、(d)所示,理论计算和实验结果吻合较好。

4 结 论

设计并制作了一种新型的基于 PDMS 的微流芯片。采用沿光纤轴向消逝波光激励方式,实现了 PDMS 芯片微流道中均匀的荧光辐射。同时,通过改变染料浓度和溶液折射率对荧光辐射强度进行了研究。实验发现,荧光辐射的强度与染料溶液的浓度以及溶液折射率密切相关,随着溶液浓度及折射率的增加,荧光辐射的强度均不断增强。用消逝波激励荧光的辐射理论,很好地解释了实验结果。设计制作的 PDMS 微流芯片可为芯片上的实验室提供一种均匀的荧光光源,对微流控系统中开展生物技术^[13-14]、化学分析^[7]等工作具有一定的应用价值。

参 考 文 献

- [1] Psaltis D, Quake S R, Yang C. Developing optofluidic technology through the fusion of microfluidics and optics[J]. *Nature*, 2006, 442(7101): 381-386.
- [2] Monat C, Domachuk P, Eggleton B J. Integrated optofluidics: a new river of light[J]. *Nature Photonics*, 2007, 1(2): 106-114.
- [3] Schmidt H, Hawkins A R. The photonic integration of non-solid media using optofluidics[J]. *Nature Photonics*, 2011, 5(10): 598-604.
- [4] Wolfe D B, Conroy R S, Garsteckl P, *et al.* Dynamic control of liquid-core/liquid-cladding optical waveguides[J]. *Proceedings of Natural Academy of Sciences of the United States of America*, 2004, 101(34): 12434-12438.
- [5] Tang S K, Stan C A, Whitesides G M. Dynamically reconfigurable liquid-core/liquid-cladding lens in a microfluidic channel[J]. *Lab Chip*, 2008, 8(3): 395-401.
- [6] Tang S K, Li Z, Abate A R, *et al.* A multi-color fast-switching microfluidic droplet dye laser[J]. *Lab Chip*, 2009, 9(19): 2767-2771.
- [7] Fan X D, White I M. Optofluidic microsystems for chemical and biological analysis[J]. *Nature Photonics*, 2011, 5(10): 591-597.
- [8] Vezenov D V, Mayers B T, Wolfe D B, *et al.* Integrated fluorescent light source for optofluidic applications[J]. *Applied Physics Letters*, 2005, 86(4): 041104.
- [9] Lim J M, Kim S H, Choi J H, *et al.* Fluorescent liquid-core/air-cladding waveguides integrated optofluidic light sources[J]. *Lab Chip*, 2008, 8(9): 1580-1585.
- [10] Zhang Y X, Pu X Y, Zhu K, *et al.* Threshold property of whispering-gallery-mode fiber lasers pumped by evanescent waves[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2011, 28(8): 2048-2056.
- [11] Xiang Wenli, Pu Xiaoyun, Bai Ran, *et al.* Longitudinal evanescent-wave pumped whispering-gallery-mode fiber laser[J]. *Acta Optica Sinica*, 2008, 28(12): 2359-2364.
向文丽, 普小云, 白 然, 等. 轴向隐失波激励的回音壁模式光纤激光器[J]. *光学学报*, 2008, 28(12): 2359-2364.
- [12] Zhang Yuanxian, Feng Li, Liu Chun, *et al.* Gain calculation of a whispering-gallery-mode fiber laser pumped by evanescent waves[J]. *Acta Optica Sinica*, 2012, 32(2): 0214001.
张远宪, 冯 黎, 刘 春, 等. 倏逝波激励的回音壁模式激光增益计算[J]. *光学学报*, 2012, 32(2): 0214001.
- [13] Sun Y, Shopova S I, Wu C S, *et al.* Bioinspired optofluidic FRET lasers via DNA scaffolds[J]. *Proceedings of Natural Academy of Sciences of the United States of America*, 2010, 107(37): 16039-16042.
- [14] Chen Q S, Zhang X W, Sun Y Z, *et al.* Highly sensitive fluorescent protein detection using optofluidic lasers[J]. *Lab Chip*, 2013, 13(14): 2679-2681.