
DNA折纸技术构建单光子发射阵列

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/41843.html>

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

DNA折纸技术构建单光子发射阵列。 导读

原子级厚度的过渡金属硫族化合物（TMDs）中固态单光子发射器（solid-state single-photon emitters, SPEs）因其发射特性可调、且与片上集成工艺高度兼容，被认为是量子通信、量子存储等技术中可扩展、稳健的量子光源候选平台。通过分子表面功能化，可借助电荷掺杂或能量转移态将量子缺陷与二维材料耦合，进而构建二维杂化器件。然而，传统溶液法或光刻法在分子定位精度与长期稳定性方面仍受限，使得实现可扩展、确定性且高精度的SPE制备依然具有挑战。近期，南京大学现代工程与应用科学学院赵坤副教授与德国慕尼黑大学物理系Tim Liedl教授团队合作开发了一种高效率、空间精度可编程的二维材料-有机分子杂化体系：他们采用干法转移，将百微米尺度化学气相沉积（CVD）生长的MoS₂单层转移到带巯基分子的DNA折纸三角形图案基底上，通过结构设计实现了SPE阵列的构筑。所获得的SPE表现出纳秒级寿命，并具备优异的光谱与强度稳定性。进一步地，通过调节巯基-折纸图案的方格周期，团队实现了对局域激子密度前所未有的精确调控。该方法为在纳米尺度精准调控二维材料电子性质提供了新平台，也为构筑高性能微型无机-有机杂化器件，以及面向下一代量子电路与量子通信的量子发射器开辟了新路径。相关研究成果以Deterministic quantum light emitters in DNA origami-engineered molecule-MoS₂ hybrids为题发表于国际顶级学术期刊《Light: Science Applications》。

研究背景

分子表面功能化为二维材料中量子发射器的构筑提供了一条有别于传统缺陷工程与纳米加工的路径。然而，常用的化学表面功能化策略（例如通过分子吸附形成非共价作用，或通过共价键引入功能基团来构建杂化结构）往往难以同时精确控制分子在二维材料表面的浓度与空间位置，从而限制了量子发射器的可扩展、确定性制备与器件一致性。为解决可编程定位这一关键瓶颈，Kerschner等人提出了DNA折纸定位（DNA Origami Placement, DOP）技术，将DNA折纸的自组装优势与光刻纳米图案化相结合，实现了单个DNA折纸对象在图案化基底上的位点选择性与构型（形状）选择性沉积。DOP有效突破了纯自上而下光刻在纳米尺度可编程组装方面的局限，可在高产率条件下，将金属纳米粒子、有机染料等单个纳米组分按预设阵列与图案进行精准放置。尤其值得强调的是，DNA折纸定位的产率可超过90%，显著高于传统单分子沉积方法受泊松统计约束所对应的约37%的单分子结合上限。这一优势为实现高通量+确定性+可编程的纳米组装提供了可靠技术基础。因此，在DOP的基础上发展一种可通过分子图案对TMDs中量子发射器进行化学可控构筑的方法，不仅有望实现量子发射器阵列的可扩展制备与一致性提升，也将为二维材料杂化量子光子器件的集成化与工程化奠定重要基础。

研究亮点

本文提出了一种具备可编程空间精度的二维材料 – 有机分子杂化体系：研究者采用干法转移技术，将百微米尺度化学气相沉积（CVD）生长的 MoS₂ 单层转移至预先制备的、带巯基分子的 DNA 折纸三角形图案芯片上，构建出可形成固态单光子发射器（SPE）阵列的杂化结构。该体系产生的 SPE 表现出纳秒级寿命以及优异的发射强度稳定性。进一步地，通过调节巯基 – 折纸图案的方格周期，实现了对局域激子密度前所未有的精确调控。在设计理念上，该技术将 DNA 折纸作为分子适配器（图

1a）：一方面，借助光刻图案化基底在宏观尺度定义阵列位置；另一方面，利用 DNA 折纸在纳米尺度实现巯基分子的精准定位。随后，通过干法转移将单晶单层 MoS₂ 覆盖在巯基 – 折纸阵列之上，使巯基与 MoS₂ 中的硫空位发生选择性化学结合（图 1b），从而实现二维材料的确定性、位点可控的量子功能化。具体而言，采用 Rothemund 型 DNA 折纸结构，每个三角形携带多条锚定链，可与带巯基的连接链进行高选择性退火配对，实现分子级功能化与空间编程控制，最终达成巯基分子的可编程定位以及二维材料量子发射器的可扩展构筑。

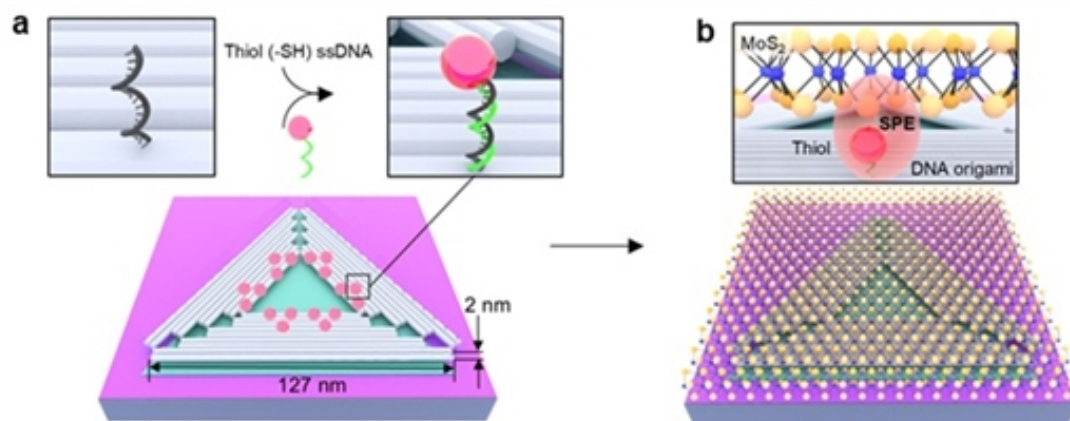


图1：(a) DNA 折纸三角形在 Si/SiO₂ 基底上的选择性定位示意图：基底表面由疏水的甲基覆盖区与亲水的羟基覆盖结合位点（绿色）构成。DNA 折纸三角形携带 18 条腺嘌呤（A）锚定链（每条 20 nt），可与表面带单个巯基的 19 nt 胸腺嘧啶（T）连接链发生退火配对并实现位点选择性结合；(b) 巯基 – 折纸 – 单层 MoS₂ 杂化结构的组装示意图。

为验证该设计的可行性，研究团队采用电子束曝光（EBL）在 Si/SiO₂ 基底上构建亲水/疏水化学图案，从而实现 DNA 折纸在预定位置的选择性、且高产率（约 90%）定位（图 2a）。实验结果进一步表明，巯基 – DNA 折纸的定点功能化能够在单层 MoS₂ 中引入局域激子发射态：在光学显微图中可清晰识别转移后的 MoS₂ 单层（图 2b），并在对应位置观察到新增的局域激子发射信号（图 2c）。

图2：(a) DNA 折纸三角形的原子力显微镜（AFM）图像；(b) 巯基 – DNA 折纸图案化单层 MoS₂的明场显微镜图像及其室温光致发光（PL）强度分布图；(c) 巯基与 MoS₂相互作用前后对应区域的荧光光谱对比。

进一步地，研究团队利用巯基与硫空位的选择性化学键合，在单层 MoS₂中引入施主型缺陷态，从而诱导并实现单光子发射（图 3a）。值得强调的是，本工作首次通过调节 DNA 折纸阵列的周期，实现了对 TMD 中量子发射缺陷密度的几何参数级可编程调控：仅需改变阵列周期这一结构参数，即可在大面积样品上系统地调节缺陷/发射中心的空间密度与分布（图 3b – e）。

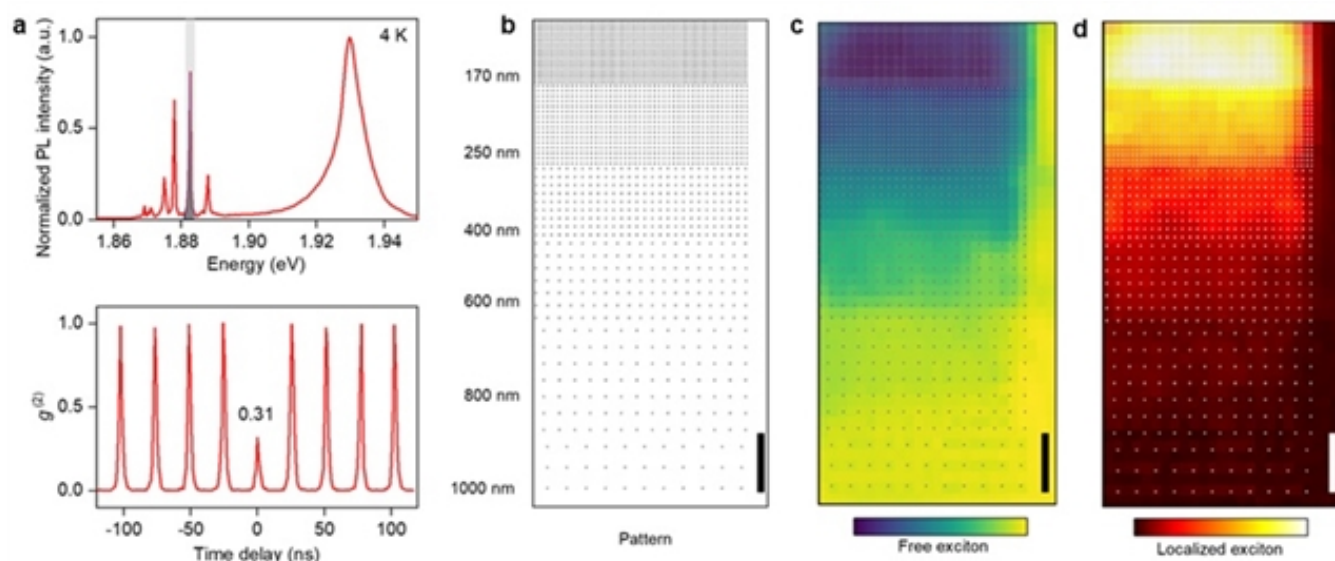


图3：(a) 巯基 – DNA 折纸图案化 MoS₂ 的低温发射光谱及二阶关联函数 $g^{(2)}(\tau)$

测量结果；(b) 由 4750 个独立巯基 – 折纸单元构成的方格阵列示意/图像，阵列周期由 1000 nm 逐步减小至 170 nm；(c,d) 对应区域的自由激子与局域激子光致发光（PL）强度分布图。

总结与展望

本研究通过巯基分子对单层MoS₂进行表面功能化，实现了对其光学响应的有效调控，并借助DNA折纸定位技术将巯基分子以纳米级精度程式化放置于芯片表面。将MoS₂单层干法转移到微米尺度的巯基 – DNA 折纸图案阵列上后，研究者构建了可扩展的量子发射位点阵列：每个位点对应一个单光子发射器（SPE）集合，从而在面积样品上实现了确定性的量子发射中心布局。更进一步，通过调节巯基 – 折纸图案的方格周期，实现了对局域激子密度前所未有的精确控制，将缺陷/发射中心的密度工程提升到可由几何参数直接定义的层面。该策略具有良好的普适性，可推广至包括TMDs、石墨烯及其他二维范德华异质结构在内的多种二维体系，实现高精度、可编程的化学功能化。在纳米光子学应用中，这类二维有机 – 无机杂化结构可用于激子景观工程：通过DNA折纸对局域缺陷数量与密度进行精准调控，为片上量子光源阵列、下一代量子电路与量子通信中的量子发射器提供关键支撑。与此同时，该设计思路也可拓展到纳米电子学及其他需要高空间精度与取向控制的二维材料 – 分子/纳米粒子集成场景，为异质集成制造工艺提供一种可扩展、可编程的新路线。（来源：LightScienceApplications微信公众号）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1038/s41377-026-02204-w>

特别声明：本文转载仅仅是出于传播信息的需要，并不意味着代表本网站观点或证实其内容的真实性；如其他媒体、网站或个人从本网站转载使用，须保留本网站注明的“来源”，并自负版权等法律责任；作者如果不希望被转载或者联系转载稿费事宜，请与我们联系。

作者：赵坤等 来源：《光：科学与应用》

更多 科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](https://www.iikx.com)转发