金属光栅结构对表面等离子体共振的影响

肖钰斐¹ 张卫平¹ 黄海华¹ 庞 霖^{1,2}* (¹广西大学物理科学与工程技术学院,广西南宁 530004) ²四川大学物理科学与技术学院,四川 成都 610064

摘要 为了在表面等离子体共振(SPR)传感器中提高信噪比、灵敏度等,需要使光波尽可能多地和表面等离子体波 (SPP)相耦合。主要研究了如何通过改变金属光栅结构以增强 SPR 共振峰从而提高其 SPR 传感器的灵敏度。在 选定一维矩形光栅面型的基础上,通过改变光栅结构及面型参数,寻找入射光波与表面等离子体波耦合度最大时 的面型参数值。将基本光栅面型函数分解展开并逐项分析其对表面等离子体共振的影响,针对已优化的一维矩形 金属光栅面型函数,分析其傅里叶展开式中各项对等离子体耦合的贡献,以期为进一步寻求光能量最大耦合的物 理本质提供分析支持。

关键词 光栅;表面等离子体共振;矩形光栅;面型参数 **中图分类**号 O436.2 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL201340.1114001

Influence of Function of Metal Grating Shape on Surface **Plasmon Resonance**

Xiao Yufei¹ Zhang Weiping¹ Huang Haihua¹ Pang Lin^{1,2}

¹ College of Physics Science and Technology, Guangxi University, Nanning, Guangxi 530004, China ² College of Physics Science and Technology, Sichuan University, Chengdu, Sichuan 610064, China

Abstract In order to increase the signal-to-noise ratio and sensitivity of surface plasmon resonance (SPR) sensor, incident light should be coupled with surface plasmon polariton (SPP) as much as possible. The profile of a metal grating is studied in order to realize the highest SPR coupling efficient. The parameters of one-dimensional rectangular grating are optimized to find the highest SPR coupling efficient. Fourier expansion of the grating shape is used to analyze the contribution of each order to the excitation of SPR, which will provide analytic support to seek essence of physics of the max-coupling of SPR.

Key words gratings; surface plasmon resonance; rectangular grating; configuration parameters OCIS codes 050.1950; 050.2770; 240.6680; 250.5403

1 弓[言

表面等离子体共振(SPR)技术是近代发展起来 的传感技术,由于它具有高灵敏度、非破坏性、可远程 实时监测等优点,受到不同领域研究者的关注,在生 化检测^[1-2]、医疗诊断^[3-4]、环境监测^[5-6]、纳米光子 器件^[3]等方面得到广泛的应用研究。目前对 SPR 传 感器的研究的一个重要方面是提高传感器的灵敏 度[7-8],这取决于光自由空间模式与等离子传播模式 间的耦合程度。光栅作为一种光波激发金属表面等 离子的器件[9-10],被广泛应用于表面等离子体波 (SPP)。如何实现这两种模式的最佳匹配,光栅的结 构及面型参数的选择是极为关键的。Reather^[11]研究 了正弦金属光栅的光栅周期、振幅等因素对表面等离 子体共振的影响,Rosengart等^[12-13]分别研究了准正 弦金属光栅发生表面等离子共振时,准正弦函数的高 阶谐波对高级反射光的反射光谱的影响。Hori 等^[14]

收稿日期: 2013-02-28; 收到修改稿日期: 2013-06-17

基金项目:国家自然科学基金(61167001)、广西大学3期创新项目

作者简介:肖钰斐(1985--),男,硕士研究生,主要从事表面等离子体共振方面的研究。E-mail: xallen@163.com

导师简介:张卫平(1958—),女,教授,硕士生导师,主要从事光栅衍射成像及光全息等方面的研究。

E-mail: wpzhang@163.com(中国光学学会会员号: S042011180S)

^{*} 通信联系人。E-mail: lin. lpang@gmail. com

研究了矩形和等腰梯形光栅凹槽深度对表面等离子 体共振的影响,以及等腰梯形底角大小对表面等离子 体共振的影响。

然而光栅的形状各式各样,如何寻找更优的光 栅形状以得到更大的表面等离子体共振深度是个值 得研究的问题,这方面的工作尚未见公开报道。本 文为此提出了在确定光栅的金属材料和光栅周围介 质折射率的基础上,以金属正弦光栅为基础应用傅 里叶分析方法进行分解展开,逐项分析,探讨展开式 各项对表面等离子体共振的影响,为进一步分析这 种耦合的物理本质提供有力的技术支持和依据。

2 表面等离子体共振理论

当光波(含 p 偏振光)入射到电介质(样品)与金 属光栅所组成的结构时,在光栅表面将发生衍射现 象,不同的衍射角度对应于不同的衍射级。根据光 栅方程可知第 m(m=±1,±2,±3,…,±n)级衍 射光的波矢在平行于界面方向上的分量为

$$k_x = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_2} \sin \theta \pm m \, \frac{2\pi}{\Lambda},\tag{1}$$

式中 θ 为光在光栅与介质界面处的入射角,ε₂ 为金属光栅表面上介质的介电常数,*m* 为整数,对应不同的衍射级,Λ 为光栅周期。

从(1)式中可知,由于光栅的衍射作用,衍射光 的波矢得到增大,从而第 m 级衍射光平行于界面的 波矢分量就可以与界面上表面等离子体波的波矢相 等,即

$$\frac{\omega}{c}\sqrt{\epsilon_2}\sin\theta \pm m\,\frac{2\pi}{\Lambda} = \frac{\omega}{c} \left(\frac{\epsilon_1'\epsilon_2}{\epsilon_1'+\epsilon_2}\right)^{1/2},\qquad(2)$$

当满足(2)式时,入射光就会与表面等离子波相耦 合,从而表面等离子体波将会被入射光所激发,产生 等离子体共振现象。此时,入射光的能量大部分耦 合到表面等离子体波中,反射光的能量急剧减小,并



图 1 表面等离子体共振曲线 Fig. 1 SPR angular spectrum

达到最小值。

图 1 为入射光波的反射率随入射角度变化曲线 即 SPR 曲线,图 1 中 H 为共振深度(共振峰的高度), Δθ_{FWHM} 为共振半峰全宽(FWHM),θ_{min} 为共振角,表示 发生表面等离子共振时的入射光波的入射角。共振 角、共振半峰全宽和共振深度反映了 SPR 曲线性 质^[15]。共振深度越大则表示入射光波与表面等离子 波耦合程度越大。入射光波与表面等离子体波相耦 合时入射光波波长、入射角度、光栅周期满足(2)式。

3 一维矩形金属光栅对表面等离子体 共振的计算

模拟计算 SPR 的一个目的是为了寻求较大的 耦合效率下的面型参数, SPR 的耦合效率主要依赖 于光栅的面型参数如占空比、调制深度等^[15]。前述 已发表的优化研究都是先选定光栅面型,然后通过 改变光栅的各面型参数,计算并寻找最大的入射光 波与表面等离子体波耦合度,从而得到耦合度最大 时的面型参数值。用该方法对一维(1D)矩形金属 光栅面型进行优化计算。

计算模型是一维矩形金属光栅,其横截面如图 2 所示,该光栅由金属光栅与金属基底(图中网格图 案部分)和玻璃基底(图中斜纹部分)组成,光栅表面 覆盖着介电常数为 ϵ_1 的电介质(本文采用折射率为 1.33 的水)。如图 2 所示,金属基底厚度参数为 d, 光栅周期为 Λ ,栅纹高度(也称为凹槽深度) 为 h,栅 纹宽度(也称为凹槽宽度) 为 b,占空比为 D,D =





图 2 一维矩形金属光栅横截面

3.1 金属基底对表面等离子体共振的影响

研究的金属光栅和金属基底都采用金属金,首 先考虑金属基底厚度对表面等离子共振的影响,设 定金基底厚度为变量,光栅周期为1000 nm,凹槽深

Fig. 2 Structure of 1D rectangular grating

度为 60 nm,占空比 D 为 0.5,根据严格耦合波理 论,运用 SPR 角度扫描方法,计算入射光波波长为 1500 nm 时,每个入射角所对应的反射光的反射率, 得出反射率和入射角度的关系曲线,如图 3(a)所 示;运用 SPR 波长扫描方法,计算当入射角度为 0° 时,每个入射波长所对应的反射光的反射率,得出反 射率和入射波长的关系曲线,如图 3(b)所示。





Fig. 3 TM reflectivities from different thicknesses of basements. (a) Angular spectra; (b) wavelength spectra 计算模型中由于有金属与水、金属基底与介质基 底两交界的存在,在反射谱中有一深一浅两个反射共 振峰如图 3(a)所示。由于应用表面等离子体传感芯 片检测的是覆盖在金属光栅上表面媒介的性质,因此 仅研究金光栅和水交界面处的表面等离子体共振。

图 3(a)的模拟计算结果显示了 SPR 共振深度 随金属基底厚度的变化趋势:当金基底厚度小于 100 nm 时, SPR 共振深度随着金基底的厚度增大 而略有增大,该厚度从 20 nm 增大到 40 nm 时,SPR 共振深度从 0.77 变化到 0.8,该厚度从 40 nm 增大 到 100 nm 时, SPR 共振深度从 0.8 变化到 0.82; 当 金基底厚度大于100 nm 后,共振深度不再增大。

类似于 SPR 共振深度变化趋势,当金基底厚度 小于 100 nm 时, SPR 共振半峰全宽随着金基底的 厚度增大而减小,金属基底厚度从 20 nm 增大到 40 nm时, SPR 共振半峰全宽变化较大, 从 0.92 变 化到 0.7; 金属基底厚度从 40 nm 增大到 100 nm 时,SPR 共振半峰全宽变化趋势变缓,从 0.7 变化 到 0.66; 当金基底厚度大于 100 nm 后 SPR 共振光 谱将不再随金基底厚度的增大而变化,趋于稳定。

图 3(b)的模拟计算结果显示了 SPR 共振深度 和共振宽度随金属基底厚度的变化趋势,当金基底 厚度小于 100 nm 时, SPR 共振深度和共振宽度随 着金基底的厚度增大而减小,当金属基底厚度从 20 nm增大到 40 nm 时, SPR 共振深度从 0.63 变化 到 0.61, 共振宽度从 42 nm 变到 31 nm; 金属基底 厚度从 40 nm 增大到 100 nm 时, SPR 共振深度从 0.61 变化到 0.58, 共振宽度从 31 nm 变到 28 nm; 当金基底厚度大于100 nm 后,共振深度不再增大。

3.2金属光栅面型结构对表面等离子共振的影响

在分析光栅其他结构参数的影响时,设定金基 底为半无限厚,选取入射光波的波长为1500 nm,光 栅周期为1000 nm,根据严格耦合波理论,运用 SPR 角度扫描方法,计算每个入射角所对应的反射光的 反射率,得出反射率和入射角度的关系曲线。在此 取占空比 D 分别为 0.1,0.3,0.5,0.7,0.9, 用该方 法计算出 5 组不同凹槽深度的矩形金光栅对应的表 面等离子体共振曲线,如图 4(a)~(e)所示。

由图 4 可知,当占空比为定值时,SPR 的共振 深度随着凹槽深度从 20 nm 开始增大而增大,当凹 槽深度达到某一值时「如图 4(c), h = 40 nm], SPR 的共振深度最大。随着凹槽深度的继续增大,共振 深度将随之逐渐减小。当凹槽深度为定值时,同样 也有某个占空比值,使得共振深度最大。

在诸多凹槽深度和占空比的组合中,通过设定 凹槽深度和占空比同为变量,运用 SPR 角度扫描方 法找到一组最佳的组合使得 SPR 共振深度最大。 最佳组合为:凹槽深度和占空比分别为h=40 nm, D=0.5,其对应的共振深度为 0.9544。这是用通常 的做法得到的面型结构优化参数,面型本身不发生 改变。

图 3 的结果显示,金属光栅周围介质的变化将 影响 SPP 的响应,而图 4 则说明光栅面型的变化对 SPP 响应曲线的影响更为显著,这其中包括相应宽 度、幅度及位置。



图 4 不同占空比与凹槽深度的矩形光栅对应的 SPR 曲线。(a) D=0.1; (b) D=0.3;

(c) D=0.5; (d) D=0.7; (e) D=0.9

Fig. 4 TM reflectivities from different groove depths of rectangle gratings , angular spectra. (a) D=0.1; (b) D=0.3; (c) D=0.5; (d) D=0.7; (e) D=0.9

4 SPP 共振响应的物理本质

图 3、4 所示的反射率与金属光栅面型及基底金 材料的关系直接反映了光与金属结构的相互作用的 物理本质。这一过程涉及光响应的两个基本通道: 入射光被材料界面、面型的直接散射及光栅结构的 共振散射。前者称其为背景散射,是能量的连续散 射;而后者则为一种束缚态散射,光首先耦合进共振 态,然后再耦合出去。总散射场(即这里的反射场) 为以上两种散射场的相干叠加。而其反射曲线即为 典型的非对称共振线形:Fano 线形^[16]。 对于这里所讨论的亚波长金属光栅结构,所涉 及的共振散射即为表面等离子体激发所引起。当光 波入射到光栅结构,特定波段、入射角度的光波激 发、耦合进表面等离子体波;等离子体波传播过程中 被光栅结构所散射,从而耦合出来形成反射耦合(这 里并不讨论透射耦合)。这种反射耦合是光从等离 子体共振到散射态的耦合,其耦合强度直接取决于 光栅表面等离子体共振的阻尼辐射。另外,金属材 料的本征吸收也影响耦合强度。依据 Fano 表征, 反射率可以写成以下定性形式^[17]:

$$T \sim |r_{\rm b}|^2 \frac{\left[\omega - (\omega_{\rm sp} + \Delta) + \delta\right]^2}{\left[\omega - (\omega_{\rm sp} + \Delta)\right]^2 + (\Gamma/2)^2}, \quad (3)$$

式中 ω_{sp} 为 SPP 共振频率,取决于 SPP 耦合频率的 实部, Γ 代表线宽, Δ 代表共振频率漂移, r_b 代表背景 散射, δ 代表共振散射与背景散射的幅度比, $q = 2\delta/\Gamma$ 决定了 Fano 线性的非对称形态。

金属光栅面型的变化,将直接改变光栅对背景 散射及 SPP 共振耦合散射的强度;金基底厚度的变 化将影响吸收阻尼。这些变化直接改变 Fano 线形 方程中的各个参量,从而改变反射率曲线线形。 图 5中的各曲线为(3)式中各参数取不同值的组合 时,共振响应的形态。图 5 曲线的形态与图 3 及 图 4中的 SPP 反射响应极为相似。这也说明 Fano 理论解释 SPP 共振反射响应的可行性。



图 5 (3)式中各参数取不同值组合时 SPP 共振的 Fano 线形 Fig. 5 Fano line shapes redulted from the

different parameters in equation 3

图 4 的结果已经说明,矩形面型的变化直接影响 SPP 耦合效率。而面型影响的具体含义,或者说 光栅的物理面型对 SPP 背景、共振耦合及阻尼的贡献,可以通过光栅面型的频谱分析,进行定性确定。

5 光栅面型函数展开式中各项对表面 等离子共振的影响

由于光栅面型参量是由光栅的面型函数所表示, 其面型函数可以按傅里叶余弦级数展开为无穷多个 不同频率余弦波分量的线性组合,每一项余弦谐波分 量的频率都是原面型函数频率的整数倍。因此对光 栅面型参量如占空比、调制深度等的改变,可以看为 同时改变函数傅里叶级数展开式中每一项余弦谐波 分量的振幅。下面对光栅面型函数的傅里叶展开式 中的各项对表面等离子体共振的影响进行分析。

对于一个基本的矩形光栅面型函数 g(x),它在 一个周期内的表达式为

$$g(x) = \begin{cases} h, & |x| \leq \frac{D\Lambda}{2} \\ 0, & \frac{D\Lambda}{2} < |x| \leq \frac{\Lambda}{2} \end{cases}$$
(4)

根据傅里叶级数知识可知,矩形函数 g(x)可以 按三角傅里叶级数展开为

$$g(x) = D \cdot h + \frac{2h}{\pi} \times \left\{ \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n} \sin(nD\pi) \cos\left[2\pi \left(\frac{n}{\Lambda}\right)x\right] \right\},$$
(5)

展开式中第 n 项的表达式为

$$f_n(x) = \frac{2h}{\pi} \times \frac{1}{n} \sin(nD\pi) \cos\left[2\pi \left(\frac{n}{\Lambda}\right)x\right].$$
(6)

矩形光栅面型函数 g(x) 对表面等离子体共振 的影响可以看作其傅里叶展开式的每一项表面等离 子体共振影响的总和。

采用前述得到的最佳矩形光栅参数组合为:光 栅周期 1000 nm,凹槽深度 h=40 nm、占空比 D= 0.5,设定入射光波波长为 1500 nm,代入(5)式可得 该函数的傅里叶级数的各项。由于傅里叶展开式中 高阶谐波对表面等离子体共振的影响逐渐趋于零, 并由于计算量的缘故,只考虑展开式的前 17 项。

此处用 H_{rect} 表示矩形光栅的面型函数 g(x)的 SPR 共振深度。 H_n 表示傅里叶展开式中缺少第 n项时的函数 $g'_n(x) = g(x) - f_n(x)$ 的 SPR 共振深 度。则 $H_{\text{rect}} - H_n$ 为傅里叶展开式第n 项对共振深度 的贡献如图 6 所示。再用 $\Delta\theta_{\text{rect}}$ 表示矩形光栅的面型 函数 g(x)的 SPR 共振半峰全宽。 $\Delta\theta_n$ 表示傅里叶展 开式中缺少第 n 项时的函数 $g'_n(x) = g(x) - f_n(x)$ 的 SPR 共振半峰全宽。 $\Delta\theta_{\text{rect}} - \Delta\theta_n$ 为傅里叶展开式 第 n 项对共振半峰全宽的贡献如图 7 所示。

 $H_{rect} - H_n$ 为正值表示增大 SPR 共振深度,为 零则表示对 SPR 共振深度无影响。 $\Delta \theta_{rect} - \Delta \theta_n$ 为正 值表示增大 SPR 共振半峰全宽,为零时表示对 SPR 共振半峰全宽无影响。

从图 6 可知,函数 g(x)傅里叶展开式中不同项 的影响是不同的,每个项的影响并不随级数增大而 减小,函数 g(x)傅里叶展开式中第 1 项到第 17 项







图 7 傅里叶展开式中各项对共振半峰全宽的贡献

Fig. 7 Contribution of harmonics to SPR FWHM 都是起到增大 SPR 共振深度的作用,其中第 1 项的 作用要远大于其他各项,即起主要作用。从图 7 可 知,函数展开式中第 1 项对增大共振半峰全宽的作 用要远大于其他各项,第 13 项的作用仅次于第一 项,也明显大于其他各项。

图 6 和 7 定性说明,光栅的物理面型(不同频率 组合将构成不同的光栅面型)对共振耦合的强度和 阻尼影响的贡献是不同的。

6 结 论

模拟研究了光栅结构及面型函数与表面等离子 共振的关系,旨在探讨实现光栅结构面型对光波的 自由空间模式与表面等离子传播模式间耦合的影 响,给出 SPP 反射率与金属面型参数及基底之间的 关系。作为研究光与表面等离子耦合的第一阶 段——数值分析,运用严格耦合波理论,计算金属基 底厚度对表面等离子共振的影响,当金属基底厚度 达到一定时,厚度的进一步增加对表面等离子共振 已经没有影响了。

计算得到了矩形金光栅不同结构参数下的表面 等离子体共振曲线,得出一组最佳的光栅凹槽深度和 占空比使得 SPR 共振深度最大,通过将该矩形面型 函数进行傅里叶级数展开,分析面型函数展开式中各 空间频率项对表面等离子体共振的贡献。结果显示, 尽管矩形光栅面型函数可展开为多级分量,但对光的 耦合而言,光栅函数的一级分量起到了主要作用,高 级分量起的作用较小。可能的原因包括面型函数各 空间级对光栅衍射效率、散射辐射的影响不同。

参考文献

1 Zhang Mei, Dai Jixiang, Yang Minghong, *et al.*. Fiber-optic surface plasmon resonance hydrogen sensor based on palladium coating[J]. Chinese J Lasers, 2011, 38(12): 1205005. 张 美,代吉祥,杨明红,等.基于表面等离子体共振的钯膜氢 气传感器[J].中国激光,2011,38(12):1205005.

- 2 Kaushik Brahmachari, Sharmila Ghosh, Mina Ray. Surface plasmon resonance based sensing of different chemical and biological samples using admittance loci method [J]. Photonic Sensors, 2013, 3(2): 159-167.
- 3 Zhang Xingfang, Zhang Lamei, Fan Qunfang, *et al.*. Tunable localized surface plasmon resonance of gold nanoshell particle[J]. Chinese J Lasers, 2011, 38(9): 0910001.

张兴坊,张腊梅,范群芳,等.金纳米球壳结构局域表面等离子体共振调谐特性[J].中国激光,2011,38(9):0910001.

- 4 Preejith Vachali, Binxing Li, Kelly Nelson. Surface plasmon resonance (SPR) studies on the interactions of carotenoids and their binding proteins [J]. Archives of Biochemistry and Biophysics, 2012, 519(1): 32-37.
- 5 Audrey Berrier, Peter Offermans, Ruud Cools, *et al.*. Enhancing the gas sensitivity of surface plasmon resonance with a nanoporous silica matrix[J]. Sensors and Actuators B: Chemical, 2011, 160(1): 181-188.
- 6 Kateřina Hegnerová, Jiří Homola. Surface plasmon resonance sensor for detection of bisphenol A in drinking water[J]. Sensors and Actuators B: Chemical, 2010, 151(1): 177-179.
- 7 Kaiqun Lin, Yonghua Lu, Junxue Chen, et al.. Surface plasmon resonance hydrogen sensor based on metallic grating with high sensitivity[J]. Opt Express, 2008, 16(23): 18599-18604.
- 8 Li-Yang Shao, Yanina Shevchenko, Jacques Albert. Intrinsic temperature sensitivity of tilted fiber Bragg grating based surface plasmon resonance sensors [J]. Opt Express, 2010, 18(11): 11464-11471.
- 9 Shuai Binbin, Xia Li, Zhang Yating, *et al.*. Principle and study progress of surface plasmon resonance sensors based on gratings [J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2011, 48(10): 100502. 帅彬彬,夏 历,张雅婷,等. 基于光栅的表面等离子体共振传感器的原理及进展[J]. 激光与光电子学进展, 2011, 48(10): 100502.
- 10 Liu Chang, Zou Zhengfeng, Chen Shufen, *et al.*. Surface plasmon resonance sensor based on compact disk grating [J]. Chinese J Lasers, 2012, 39(3): 0314001.
 刘 畅,邹正峰,陈淑芬,等. 基于光盘光栅的表面等离子体共振传感器[J]. 中国激光, 2012, 39(3): 0314001.
- 11 H Reather. Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings[M]. Berlin: Springer Verlag, 1983. 105-107.
- 12 E -H Rosengart, I Pockrand. Influence of higher harmonics of a grating on the intensity profile of the diffraction orders via surface plasmons[J]. Opt Lett, 1977, 1(6): 194-195.
- 13 Jakub Dostálek, Jiří Homola, Miroslav Miler. Rich information format surface plasmon resonance biosensor based on array of diffraction gratings[J]. Sensors and Actuators B, 2005, 107(1): 154-161.
- 14 Hironobu Hori, Keiko Tawa, Kenji Kintaka, et al.. Influence of groove depth and surface profile on fluorescence enhancement by grating-coupled surface plasmon resonance[J]. Opt Rev, 2009, 16(2): 216-221.
- 15 M C Hutley, F Mayster. The total absorption of light by a diffraction grating[J]. Opt Commun, 1976, 19(3): 431-436.
- 16 U Fano. Effects of configuration interaction on intensities and phase shift[J]. Phys Rev, 1961, 124(6): 1866-1878.
- 17 C Genet, M P Van Exter, J P Woerdman. Fano-type interpretation of red shifts and red tails in hole array transmission spetra[J]. Opt Commun, 2003, 225(4-6): 331-336.

栏目编辑:何卓铭