

激光与光电子学进展

基于 Fano 共振的石墨烯超材料传感特性研究

赵静¹, 王加贤^{1*}, 邱伟彬², 赵泽阳²¹厦门工学院电子与电气工程学院, 福建 厦门 361021;²华侨大学信息科学与工程学院, 福建 厦门 361021

摘要 提出了一种基于 Fano 共振的太赫兹生物传感器, 该传感器由石墨烯微盘三聚体结构组成。使用有限元方法分析了该结构的传输特性。仿真结果表明: 石墨烯三聚体结构可以激发 Fano 共振, 该传感器在太赫兹波段的灵敏度可以达到 2 THz/RIU, 品质因数可达到 8; 利用石墨烯化学势可以调节谐振峰值, 因此在太赫兹波段可实现对谐振峰值的主动调控。该结构为基于超材料的超灵敏太赫兹传感器提供了一种设计思路, 在微纳米级厚度的物质传感与探测方面具有潜在的应用价值。

关键词 表面光学; 表面等离子激元; 太赫兹传感器; 有限元方法; 石墨烯超材料; Fano 共振

中图分类号 O436

文献标志码 A

doi: 10.3788/LOP202158.0524001

Investigation of Sensing Characteristic of Graphene Metamaterial Based on Fano Resonance

Zhao Jing¹, Wang Jiaxian^{1*}, Qiu Weibin², Zhao Zeyang²¹*School of Electronics and Electrical Engineering, Xiamen Institute of Technology, Xiamen, Fujian 361021, China;*²*College of Information Science and Engineering, Huaqiao University, Xiamen, Fujian 361021, China*

Abstract A terahertz biosensor based on Fano resonance is proposed. The sensor is composed of a graphene microdisk trimer structure. The finite element method is applied to investigate the transmission characteristics of the structure. Simulation results exhibit that the graphene trimer structure can excite Fano resonance. The structure yields a high sensitivity of 2 THz/RIU and a figure of merit (FOM) of 8 in the THz spectrum; the graphene chemical potential can be used to adjust the resonance peak. The band realizes the active regulation of the resonance peak. This structure provides a design idea for the ultra-sensitive terahertz sensor based on metamaterials, and has potential application value in the sensing and detection of materials with micro-nano thickness.

Key words optics at surfaces; surface plasmonic polariton; terahertz sensor; finite element method; graphene metamaterial; Fano resonance

OCIS codes 240.6680; 250.5403; 280.4788; 160.3918

1 引言

太赫兹波以其物质频谱信息丰富以及光子能

量低等特点, 在生物化学传感领域得到广泛应用^[1-3]。然而, 太赫兹波的波长与生物化学分子的尺寸相差较大, 这导致二者的相互作用比较弱, 从而

收稿日期: 2020-07-02; 修回日期: 2020-07-22; 录用日期: 2020-08-03

基金项目: 福建省杰出青年科学基金(2015J06015)、福建省中青年教育科研项目(JAT190942)

*E-mail: wangjx@hqu.edu.cn

限制了太赫兹传感器的性能提升。基于超材料的太赫兹传感器具有更高的灵敏度和易于集成的优点,这引起了研究者的广泛关注^[4-11]。而对于石墨烯,可以通过化学掺杂或改变栅极电压来改变费米能级,进而实现对器件在太赫兹波段的动态可控^[12-13]。基于石墨烯超材料结构的传感器在微纳米级厚度的物质传感与探测方面具有广阔的应用前景^[5, 14]。

Fano 共振是微纳米级的量子干涉效应,是通过连续能量态激发离散能量态并通过二者的干涉耦合产生的。理论上 Fano 共振具有更高的 Q 值以及更窄的线宽,因此可以极大地提高传感器的灵敏度^[15-19]。等离子体结构中可激发两种特征的共振模式:窄带的亚辐射(暗态)共振(sub-radiant resonance)和宽带的超辐射(亮态)共振模式(super-radiant resonance),通过其共振模式间的干涉相消可产生 Fano 线型^[20]。科研人员提出了很多基于 Fano 共振的太赫兹生物传感器^[17, 21-22],这些传感器对微纳米级厚度的物质的敏感度都不是很高,而且不能实现主动调控。He 等^[3]提出了三个不同尺寸的金纳米圆盘组成的结构体系,当入射光偏振与结构的对称轴垂直时,该结构能够支持 Fano 共振模

式,可以达到单分子检测灵敏度。因此,本文提出了一种基于石墨烯超材料的太赫兹传感器,该传感器由石墨烯微盘三聚体组成,数值模拟结果表明,该结构可激发 Fano 共振,通过调整石墨烯化学势可对该结构的反射谱进行主动调控,并进一步研究了生物活性分子的厚度对传感特性以及灵敏度的影响。

2 计算模型和方法

使用等离激元结构产生 Fano 共振的方法一般有两种:一种是改变原有纳米结构的对称性;另一种是增加额外的粒子。通过在石墨烯盘二聚体上增加一个盘的方法产生 Fano 共振。提出的超材料结构示意图如图 1 所示,该结构的每个单元由三个石墨烯盘组成,盘 1 和盘 2 组成二聚体,再增加一个盘 3,三个盘的半径 R 均保持在 $1.5 \mu\text{m}$,将盘之间的间距定义为 g 。石墨烯的弛豫时间为 0.5 ps 。介质衬底选用介电常数小的二氧化硅,厚度 $h_{\text{SiO}_2} = 3.9 \mu\text{m}$,底层金属选用金材料,其电导率为 $\sigma_{\text{Au}} = 4.09 \times 10^9 \text{ S/m}$,厚度 $h_{\text{Au}} = 0.5 \mu\text{m}$ 。每个单元在 x, y 方向呈周期性排列(周期 $p_x = p_y = 9.5 \mu\text{m}$)。

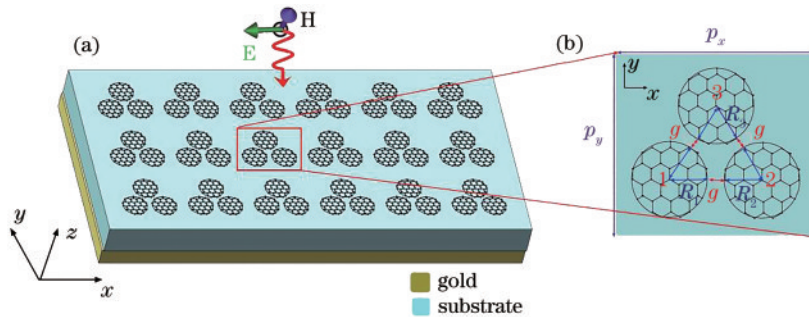


图 1 超材料结构示意图和单元结构俯视图。(a)超材料结构示意图;(b)单元结构俯视图

Fig. 1 Diagram of metamaterial structure, and top view of unit cell. (a) Diagram of metamaterial structure; (b) top view of unit cell

将石墨烯看作零厚度,用表面电导率对其进行表征。石墨烯的复表面电导率通过 Kubo 公式来计算^[23-24]:

$$\sigma_g = \sigma_{\text{intra}} + \sigma_{\text{inter}} = \frac{-ie^2 k_B T}{\pi \hbar^2 (2\pi\nu - i/\tau)} \left\{ \frac{\mu_c}{k_B T} + 2 \ln \left[1 + \exp \left(-\frac{\mu_c}{k_B T} \right) \right] \right\} + \frac{-ie^2}{2h} \ln \left[\frac{2|\mu_c| - \hbar(\varpi - i/\tau)}{2|\mu_c| + \hbar(\varpi - i/\tau)} \right], \quad (1)$$

式中: μ_c 是石墨烯的化学势; ν 是频率; T 是温度; \hbar 是约化普朗克常量; e 是电子电量; τ 是动量弛豫时间(与电子-光子的散射率成反比); k_B 是玻尔兹曼常数; h 是普朗克常量; σ_{intra} 和 σ_{inter} 分别为带内电导率和带间电导率。(1)式中 σ_{intra} 和 σ_{inter} 分

别取决于电子的带内传输和带间传输。在太赫兹频段,由于泡利阻塞效应,带内电导率的贡献占主导地位,在此条件下,表面等离子动量得到增强,表面等离子波在石墨烯中的传播成为可能。

3 结果分析与讨论

为了直观地分析等离子激元 Fano 共振的形成机制,将石墨烯二聚体、单个石墨烯盘和石墨烯三聚体的相关图片作为对比,图 2 为计算得到的石墨烯二聚体和单个石墨烯盘的反射光谱。二聚体和单个盘均产生单一的共振模式,其共振频率分别为 7.65 THz 和 8 THz,相比于二聚体结构,单个盘结构的线宽较窄,两个独立的共振模式通过干涉耦合在反射谱中表现为非对称 Fano 线型。图 3 给出了不同峰值位置的电场分布以及电流分布。图中箭头表示电流的方向。在 M1 位置,石墨烯二聚体被入射波强烈激励,而入射波对单个盘的激励较弱,如图 3(a) 所示。在 M3 位置,石墨烯二聚体和单个盘同时被激励,而二者内部的光波方向相反,因此两者相消干涉,如图 3(b) 所示。在 M2 位置,单个盘被强烈地激励,同时入射波对二聚体的激励相对较弱,如图 3(c) 所示。

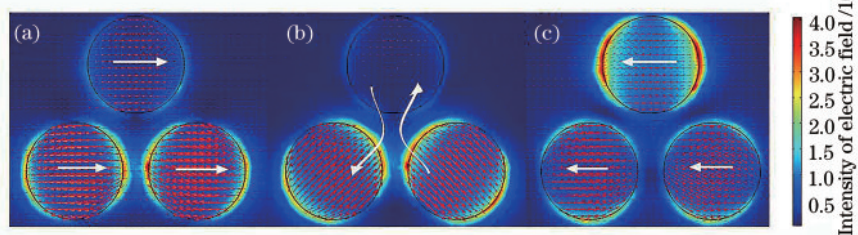


图 3 在特定位置处光场的电场分布图以及电流分布图。(a)M1;(b)M3;(c)M2

Fig. 3 Electric field distributions and current distributions at specific positions. (a) M1; (b) M3; (c) M2

盘间距 g 的变化对石墨烯三聚体的性质有着重要的影响。由图 4 可知,盘间距 g 为 0 时,由于各个石墨烯纳米盘之间的强烈相互作用,石墨烯四聚体成为集体模式。在 g 大于 $1.2 \mu\text{m}$ 时,三个盘之间的

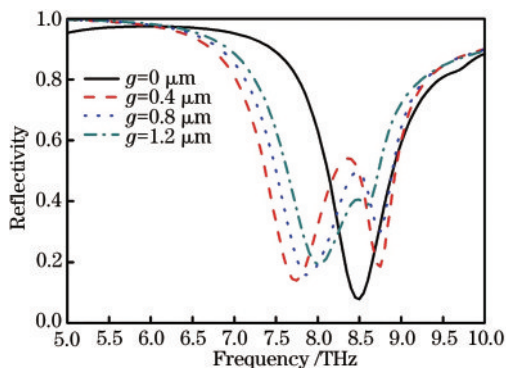


图 4 石墨烯三聚体间距对 Fano 共振的影响,其中石墨烯化学势为 1.1 eV

Fig. 4 Influence of graphene trimer spacing on Fano resonance with grapheme chemical potential of 1.1 eV

石墨烯二聚体作为亮模式和单个盘作为暗模式之间的干涉耦合产生了 Fano 共振^[17]。

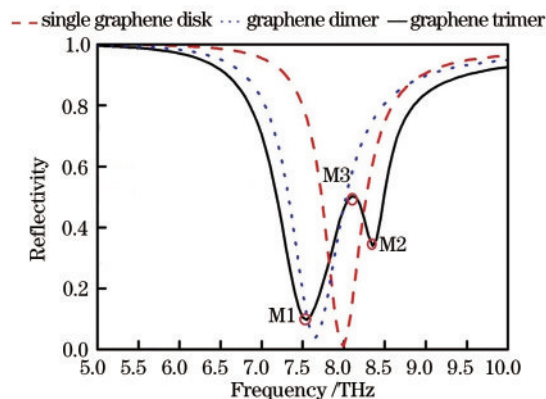


图 2 石墨烯二聚体、单个石墨烯盘以及石墨烯三聚体的反射光谱,其中石墨烯化学势为 1 eV,盘间距为 $0.8 \mu\text{m}$

Fig. 2 Reflectance spectra of graphene dimer, single graphene disk, and graphene trimer. Chemical potential of graphene is 1 eV and spacing of graphene disks is $0.8 \mu\text{m}$

相互作用较弱。在 g 较小时,各个部分之间存在较强的电磁场耦合,即等离子激元杂化,这种耦合即等离子激元结构中超辐射的亮模式与亚辐射模式之间的相互作用。石墨烯二聚体(亮模式)与入射光进行强烈的相互作用,单个纳米盘(暗模式)与入射光进行弱的相互作用,并且能量被存储下来。亮模式与暗模式之间的相消干涉在反射谱中表现为一个峰值。当 $g=0.4 \mu\text{m}$ 时,位置 M3 处出现了一个峰值。

图 5 显示了石墨烯化学势 μ_c 对超材料反射谱的影响,其中盘间距 $g=0.8 \mu\text{m}$ 。随着石墨烯的化学势的增加,Fano 谐振频率发生蓝移,从而实现了 Fano 谐振频率在工作频段内的主动调控。Fano 谐振频率可通过 $\frac{1}{\lambda_{\text{res}}} \approx \left(\frac{m\alpha_0\mu_c}{hc\omega} \right)^{1/2}$ 估算^[25],其中 m 为模式数, α_0 为精细结构常数, h 为普朗克常数, c 为空气中的光速, λ_{res} 为谐振波长, ω 为谐振频率。通过

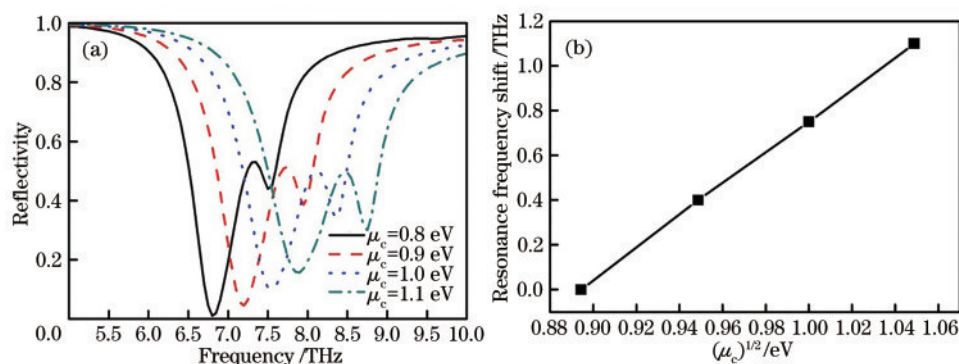


图 5 不同化学势下的石墨烯三聚体反射谱和谐振频率偏移量随石墨烯化学势的变化。(a)不同化学势下的石墨烯三聚体反射谱;(b)谐振频率偏移量随石墨烯化学势的变化

Fig. 5 Reflection spectra of graphene trimer for different chemical potential, and variation in resonance frequency shift with chemical potential of graphene. (a) Reflection spectra of graphene trimer for different chemical potential; (b) variation in resonance frequency shift with chemical potential of graphene

拟合可以发现,谐振峰的频移量随着 $\mu_c^{1/2}$ 呈线性变化。

法诺共振的共振位置对外界环境的折射率十分敏感,会随着外界折射率的变化发生巨大的改变。因此,法诺共振现象可以应用于折射率传感领域。接下来研究衬底和外界环境的改变对石墨烯三聚体产生的法诺共振位置的影响。由于许多生

物分子的折射率为 1.0~2.0,在模拟计算中将折射率的范围设定为 1.0~2.0。图 6 给出了周围介质对三聚体结构的反射光谱的影响,将分析物涂覆在石墨烯上,其厚度为 500 nm。Fano 共振有效地抑制了系统的辐射损耗,导致了局域场增强。可以看到,随着折射率的增加,谐振频率发生红移,这是由分析物的动态电容变化所导致的^[25-26]。

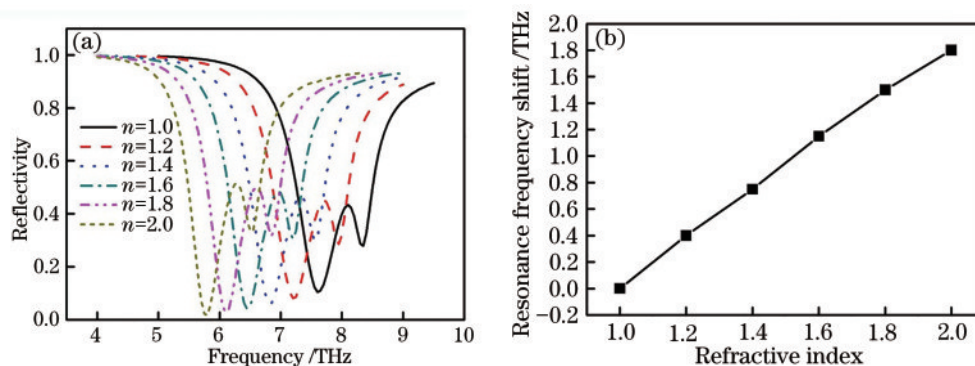


图 6 石墨烯三聚体的反射光谱和谐振频率偏移量,其中石墨烯化学势为 1 eV,盘间距为 0.8 μm 。(a)石墨烯三聚体在不同分析物折射率下的反射光谱;(b)分析物厚度在 500 nm 时,谐振频率偏移量与分析物折射率的关系

Fig. 6 Reflection spectra of graphene trimer and resonance frequency shift. Graphene chemical potential is fixed at 1 eV and spacing of grapheme disks is 0.8 μm . (a) Reflection spectra of graphene trimer for different refractive index of analyte; (b) variation of resonance frequency shift with refractive index of analyte when thickness of analyte is 500 nm

传感器的灵敏度定义为折射率每变化一个单位对应的谐振频率的移动量,其计算公式为 $S = \Delta f / \Delta n$,单位为 THz/RIU,其中 Δf 为谐振峰频率的变化量, Δn 为折射率变化量,单位为 RIU。传感器的品质因数是指单位折射率变化引起的谐振峰波长平移量与谐振峰半峰全宽的比值,其计算公式为 $F_{OM} = S / W_{FWHM}$,其中 W_{FWHM} 为半峰全宽。通过计

算可以得到,该石墨烯超材料结构对折射率的灵敏度为 2 THz/RIU,其品质因子 $F_{OM} = 8$,该值比以前的研究中得到的值要高^[17, 27-28]。这表明该传感器可以很好地辨识不同折射率的分析物,在生物传感器方面有很好的应用前景。

图 7 给出了不同分析物厚度对反射光谱的影响。当折射率固定时,随着附着物厚度的增大,共

振频率红移, 偏移量逐渐增大并趋近饱和, 即灵敏度趋近饱和。

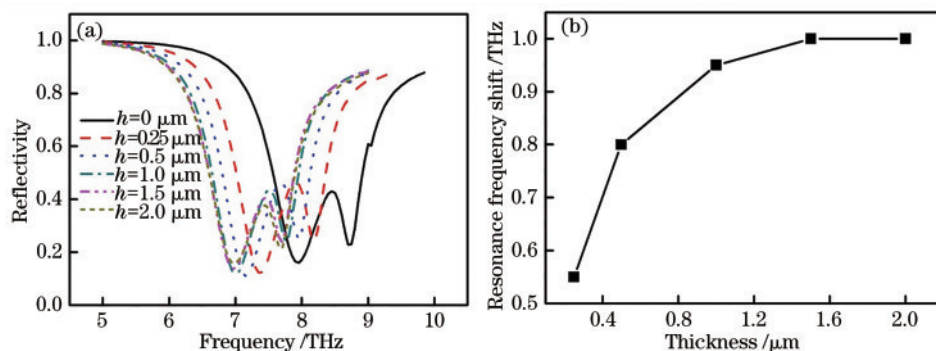


图 7 分析物折射率为 1.4 时不同分析物厚度下的反射谱, 以及谐振峰值偏移量与不同分析物厚度的关系。(a) 分析物折射率为 1.4 时, 不同分析物厚度下的反射谱; (b) 谐振峰值偏移量与不同分析物厚度的关系

Fig. 7 Reflection spectra for different thickness of analyte when refractive index of analyte is 1.4, and relationship between resonance frequency shift and thickness of analyte. (a) Reflection spectra for different thickness of analyte when refractive index of analyte is 1.4; (b) resonance frequency shift versus thickness of analyte

4 结 论

提出了一种由石墨烯盘三聚体组成的可调谐太赫兹生物传感器。数值仿真结果表明, 该结构在太赫兹波段可以激发 Fano 共振模式, 在折射率为 1.0~2.0 的范围内, 该结构的灵敏度可以达到 2.5 THz/RIU, 品质因数达到 8。随着分析物厚度的增加, 该结构的灵敏度增加, 对于 0.25 μm 分析物, 其灵敏度可以达到 1.375 THz/RIU。通过改变栅极电压或者掺杂, 可以改变石墨烯的化学势, 进而改变 Fano 共振的峰值, 最终实现对器件的主动调控。

参 考 文 献

- [1] Siegel P H. Terahertz technology [J]. IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, 2002, 50(3): 910-928.
- [2] Tao H, Kadlec E A, Strikwerda A C, et al. Microwave and terahertz wave sensing with metamaterials [J]. Optics Express, 2011, 19(22): 21620-21626.
- [3] He J, Fan C, Ding P, et al. Near-field engineering of Fano resonances in a plasmonic assembly for maximizing CARS enhancements [J]. Scientific Reports, 2016, 6: 20777.
- [4] Geng Z, Zhang X, Fan Z, et al. A route to terahertz metamaterial biosensor integrated with microfluidics for liver cancer biomarker testing in early stage [J]. Scientific Reports, 2017, 7(1): 16378.
- [5] Zhang R, Chen Q M, Liu K, et al. Terahertz microfluidic metamaterial biosensor for sensitive detection of small-volume liquid samples [J]. IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology, 2019, 9(2): 209-214.
- [6] Cong L Q, Tan S Y, Yahiaoui R, et al. Experimental demonstration of ultrasensitive sensing with terahertz metamaterial absorbers: a comparison with the metasurfaces [J]. Applied Physics Letters, 2015, 106(3): 031107.
- [7] Yang Y P, Xu D Q, Zhang W L. High-sensitivity and label-free identification of a transgenic genome using a terahertz meta-biosensor [J]. Optics Express, 2018, 26(24): 31589-31598.
- [8] Chen M, Fan F, Shen S, et al. Terahertz ultrathin film thickness sensor below $\lambda/90$ based on metamaterial [J]. Applied Optics, 2016, 55(23): 6471-6474.
- [9] Hu F R, Guo E Z, Xu X, et al. Real-time monitoring the interaction between bovine serum albumin and drugs in aqueous with terahertz metamaterial biosensor [J]. Optics Communications, 2017, 388: 62-67.
- [10] Pan W, Yan Y J, Ma Y, et al. A terahertz metamaterial based on electromagnetically induced transparency effect and its sensing performance [J]. Optics Communications, 2019, 431: 115-119.
- [11] Zhang Y J, Wang S F, Zhong G C, et al. Metamaterial-based terahertz multi-band sensors integrated with microfluidic channels [J]. Chinese Journal of Lasers, 2019, 46(6): 0614038.

张赆佳, 王少飞, 钟高超, 等. 微流控-超材料集成多带太赫兹传感器 [J]. 中国激光, 2019, 46(6): 0614038.

- [12] Chen J, Badioli M, Alonso-González P, et al. Optical nano-imaging of gate-tunable graphene plasmons[J]. *Nature*, 2012, 487(7405): 77-81.
- [13] Zhou Y X, Huang Y Y, Jin Y P, et al. Terahertz properties of graphene and graphene-based terahertz devices [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2019, 46(6): 0614011.
周译玄, 黄媛媛, 靳延平, 等. 石墨烯太赫兹波段性质及石墨烯基太赫兹器件[J]. *中国激光*, 2019, 46(6): 0614011.
- [14] Liu B, Tang C J, Chen J, et al. Electrically tunable Fano resonance from the coupling between interband transition in monolayer graphene and magnetic dipole in metamaterials [J]. *Scientific Reports*, 2017, 7: 17117.
- [15] Ahmadivand A, Gerislioglu B, Tomitaka A, et al. Extreme sensitive metasensor for targeted biomarkers identification using colloidal nanoparticles-integrated plasmonic unit cells [J]. *Biomedical Optics Express*, 2018, 9(2): 373-386.
- [16] Park S J, Cha S H, Shin G A, et al. Sensing viruses using terahertz nano-gap metamaterials [J]. *Biomedical Optics Express*, 2017, 8(8): 3551-3558.
- [17] Wang K, Fan W H, Chen X, et al. Graphene based polarization independent Fano resonance at terahertz for tunable sensing at nanoscale [J]. *Optics Communications*, 2019, 439: 61-65.
- [18] Liu F, Zhang K L. Fano resonances in metallic nanorod oligomer with transverse excitation [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2019, 56(1): 012501.
刘菲, 张楷亮. 横向激励下金属纳米棒聚合体的 Fano 共振[J]. *激光与光电子学进展*, 2019, 56(1): 012501.
- [19] Wang M M, Yun L Y, Wang Y F, et al. Plasma refractive index nanosensor based on Fano resonance [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2020, 57(5): 052401.
王梦梦, 韵力宇, 王一飞, 等. 基于 Fano 共振的等离子体折射率纳米传感器[J]. *激光与光电子学进展*, 2020, 57(5): 052401.
- [20] Luk'yanchuk B, Zheludev N I, Maier S A, et al. The Fano resonance in plasmonic nanostructures and metamaterials [J]. *Nature Materials*, 2010, 9(9): 707-715.
- [21] Ding C F, Jiang L K, Wu L, et al. Dual-band ultrasensitive THz sensing utilizing high quality Fano and quadrupole resonances in metamaterials [J]. *Optics Communications*, 2015, 350: 103-107.
- [22] Li Q, Cong L Q, Singh R, et al. Monolayer graphene sensing enabled by the strong Fano-resonant metasurface [J]. *Nanoscale*, 2016, 8(39): 17278-17284.
- [23] Hanson G W. Dyadic Green's functions and guided surface waves for a surface conductivity model of graphene [J]. *Journal of Applied Physics*, 2008, 103(6): 064302.
- [24] Gusynin V P, Sharapov S G, Carbotte J P. Magneto-optical conductivity in graphene [J]. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 2007, 19(2): 026222.
- [25] Chen X, Fan W H, Song C. Multiple plasmonic resonance excitations on graphene metamaterials for ultrasensitive terahertz sensing [J]. *Carbon*, 2018, 133: 416-422.
- [26] Mousavi S H, Kholmanov I, Alici K B, et al. Inductive tuning of Fano-resonant metasurfaces using plasmonic response of graphene in the mid-infrared [J]. *Nano Letters*, 2013, 13(3): 1111-1117.
- [27] Tang W, Wang L, Chen X, et al. Dynamic metamaterial based on the graphene split ring high-Q Fano-resonator for sensing applications [J]. *Nanoscale*, 2016, 8(33): 15196-15204.
- [28] Yan X, Yang M S, Zhang Z, et al. The terahertz electromagnetically induced transparency-like metamaterials for sensitive biosensors in the detection of cancer cells [J]. *Biosensors and Bioelectronics*, 2019, 126: 485-492.