

基于液芯谐振器的传感器的研制与性能检测

刘昕宇¹ 洪 图¹ 吴子建¹ 刘 奇² 徐 飞¹ 陆延青¹

(¹ 南京大学现代工程与应用科学学院, 江苏 南京 210093)
(² 南通海维科技发展有限公司, 江苏 南通 226000)

摘要 生物传感器在环境监测、食品分析、军事和医学等领域有着广泛的应用,其中光纤生物传感器由于高灵敏度和低噪声的特点而最受关注。作为光纤生物传感器的一种,液芯光学环形谐振传感器(LCORR)物理尺寸小, Q 值高(理论可达 10^9),很有希望成为未来敏感化、小型化和集成化传感器的平台。在理论和实验上对该种器件进行了详尽的研究,尤其改良了制备工艺,将外腐蚀与加热拉伸工艺交替结合,精确调控拉伸速率,制备了壁厚超薄($1.5\ \mu\text{m}$)的微细玻璃管;采用微纳光纤耦合的方法,通过向其中注入纯水、丙酮和不同浓度的 NaCl 溶液来对其 Q 值、灵敏度等性质进行了检测。最终制得的液芯环形谐振器灵敏度高达约 $61.5\ \text{nm}/\text{RIU}$,并具有较好的稳定性。

关键词 传感器;液芯环形谐振器;腐蚀和热拉伸;回音壁模式;灵敏度

中图分类号 TN253; TN29 **文献标识码** A **doi:** 10.3788/AOS201131.s100210

Fabrication and Characteristics of Sensors Based on Liquid-Core Resonators

Liu Xinyu¹ Hong Tu¹ Wu Zijian¹ Liu Qi² Xu Fei¹ Lu Yanqing¹

(¹ College of Engineering and Applied Sciences, Nanjing University, Nanjing, Jiangsu 210093, China)
(² Jiangsu Hi-Wits Technology Development Co., Ltd., Nantong, Jiangsu 226000, China)

Abstract Biosensors are widely used in many fields, such as environmental detection, food analysis, military and medicine. Because of their high sensitivity and low noise, optical biosensors attract the most attention. As one kind of optical biosensors, liquid core optical ring resonator (LCORR) is small in size and has high Q-factor (up to 10^9), which has the potential to become a promising technology platform for future sensitive, miniaturized and lab-on-a-chip type sensors. The devices are investigated theoretically and experimentally in details. Ultra-thin micro-capillaries are fabricated by an improved technique which combines the outer etching and the stretching of the heated LCORR to accurately control the stretching velocity. The Q-factor and the sensitivity of LCORR are tested by injecting pure water, acetone, or NaCl solution of different concentrations into them. The LCORR show high sensitivity of about $61.5\ \text{nm}/\text{RIU}$ and have great stability.

Key words sensors; liquid core optical ring resonators; outer etching and heat stretch; whispering gallery modes; sensitivity

OCIS codes 060.2340; 060.2370; 230.3990; 230.5750

1 引 言

随着社会的发展,人们对于食品、医疗与环境条件的要求越来越高,对生物分子、化学药品的有效检测手段也显得越来越重要。生化传感器在环境监测、食品分析、军事和医疗等领域有着广泛的应用,

而光学环形谐振生化传感器相对于同类生化传感器具有高灵敏度、低噪音和低检测极限等特性,其研究正越来越受到人们的广泛重视。目前应用较多的光学环形谐振传感器有两种形式:球形和平面环形。两者都具有较高的灵敏度^[1~3]。但球形光学环形谐

收稿日期: 2011-03-01; **收到修改稿日期:** 2011-03-08

基金项目: 国家 973 计划(2010CB327803),教育部博士点基金(20090091110044)和教育部博士点新教师基金(20090091120035)资助课题。

作者简介: 刘昕宇(1988—),男,博士研究生,主要从事光纤方面的研究。E-mail: liuxingyu198823@gmail.com

导师简介: 陆延青(1971—),男,博士,教授,主要从事光通信和传感等方面的研究。E-mail: yqlu@nju.edu.cn

振传感器难以注入检测液体,且不易大规模生产,而平面光学环形谐振传感器的集成度和 Q 值不高^[1,4]。基于微细玻璃管的液芯环形谐振器(LCORR)同时拥有高集成度、高灵敏度、低检测限和低成本等优点^[4~6],具有更加广阔的应用前景,由于对该种器件的研究才刚起步,工艺的重复性、玻璃管性能和灵敏度等还不够好,因此对 LCORR 的进一步研究、优化和探讨对于实际应用具有重要的意义。本文在理论和实验上对该种器件进行了详尽的研究,尤其改良了制备工艺,将外腐蚀与加热拉伸工艺交替结合,精确调控拉伸速率,制备了内外壁光滑、超薄

壁厚(1.5 μm)的微细玻璃管;采用 2~3 μm 直径微纳光纤耦合的方法,通过向其中注入各种有机物和无机物对其 Q 值和灵敏度等性质进行了检测。

2 理论模型和实验原理

LCORR 的组成如图 1(a)所示,它由一根薄壁玻璃管与一根耦合微纳光纤组成。微纳光纤通过瞬逝场的作用,将光耦合入玻璃管壁中^[6],光将沿着环形的玻璃管壁传播,形成一个光学环形谐振器,如图 1(b)所示。

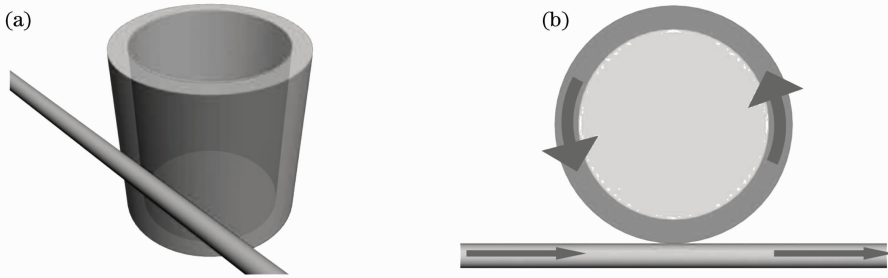


图 1 LCORR 组成示意图。(a)立体图;(b)截面图

Fig. 1 Schematic diagram of a LCORR. (a) Side view; (b) cross-section view

由于在环形谐振器中传播的光必须满足沿着环形玻璃管壁传播一周之后相位不发生变化的条件,因此其只能以特定的回音壁模式(WGMs)传播,并形成谐振,亦即干涉增强。此时,由微纳光纤中耦合入玻璃管壁的光场能量最多,在出射频谱上显示为一个透射谷,其波长满足^[5]

$$\lambda = \frac{2\pi m r}{m}, \quad (1)$$

式中 r 是环形谐振器的外半径, n_{eff} 是等效折射率, m 是一整数。当玻璃管内的液体折射率改变时,谐振器中传播的光的等效折射率也将改变,此时透射谷位置也将发生移动,如图 2 所示。通过测量液体折

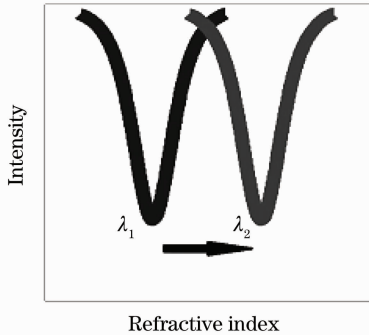


图 2 液芯层折射率改变使得谐振波长移动

Fig. 2 Resonant wavelength shift in response to refractive-index change inside the LCORR capillary

射率改变与峰值移动之间的关系,可以标定出液体折射率变化与峰值位置移动值之间的关系,亦即确定出 LCORR 的测量灵敏度。在以后的测量中即可通过观测峰值的移动量来确定出液体折射率的变化值,并以此为基础确定出液体中生物化学环境的变化。

LCORR 可以用一种二维 3 层圆柱形波导模型所描述,如图 3 所示^[7~9]。

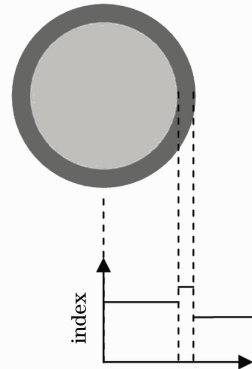


图 3 二维三层圆柱形波导模型

Fig. 3 Planar three-layer model of cylindrical waveguides

3 层介质从内到外的折射率分别为 n_1, n_2 与 n_3 , 分别对应着液芯、LCORR 玻璃管壁与周围介质的折射率。由于是二维系统,波函数可以分为 TE (电场分量平行于二维平面)与 TM(电场分量垂直

于二维平面)两种偏振状态。下面以 TM 模式为例,说明体系中模式分立的情况。依据 Mie 理

论^[4],在 3 层介质内的垂直纸面方向电场 E 在径向分布满足

$$E_{m,l}(r) = \begin{cases} AJ_m(k_{m,l}n_1r) & r < r_1 \\ BJ_m(k_{m,l}n_2r) + CH_m^{(1)}(k_{m,l}n_2r), & r_1 < r < r_2 \\ DH_m^{(1)}(k_{m,l}n_3r) & r > r_2 \end{cases} \quad (2)$$

式中 J_m 与 $H_m^{(1)}$ 分别代表 m 阶 Bessel 函数与 m 阶第一型 Hankel 函数。 r_1 与 r_2 分别表示 LCORR 的内外半径,整数 m, l 为标量场分布的模式数, $k_{m,l}$ 是波矢。通过联立边界条件可以解出色散关系,从而确定分立的模式,再将解得的波矢代入(2)式中,并根

据边界条件解得系数 A, B, C, D 之间的关系,即可确定电场强度的径向场分布,如图 4 所示。可以看出电场模式的阶数越高,进入液芯区域的瞬逝场能量越强,因此灵敏度越高。

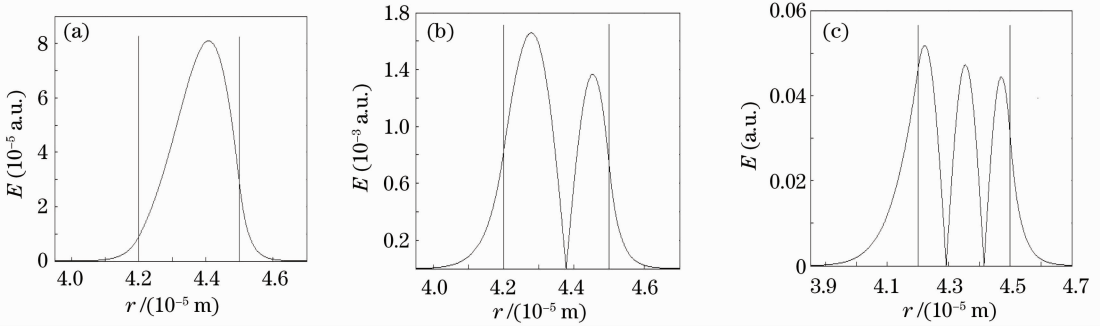


图 4 基模、二阶模、三阶模式下电场的径向分布

Fig. 4 Radial distributions of electrical fields in the first-order, second-order and third-order

LCORR 的灵敏度还与其壁厚有关。当壁厚越小时,进入液芯区域瞬逝场能量越强,灵敏度也就越高。通过数值求解(2)式,解出在 LCORR 中传播的 WGM 的基模模式,得到了壁厚分别为 2, 2.5 和 3 μm 时谐振峰位置的移动与折射率的变化曲线,结果如图 5 所示。波长约为 1550 nm, $l=1, n_1=1.33, n_2=1.45, n_3=1$, 外半径为 50 μm 。壁厚分别为 2, 2.5 和 3 μm 。可以看出,当壁厚减小时,LCORR 测量的灵敏度将显著增加。

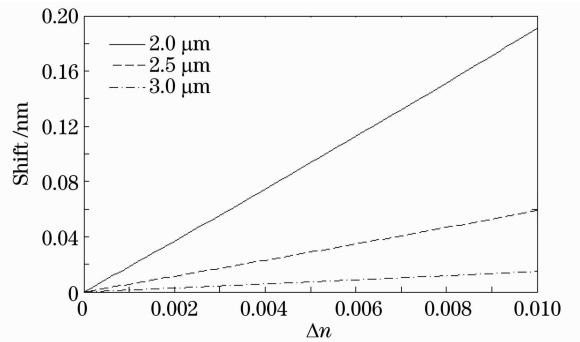


图 5 TM 偏振下 WGM 基模谐振波长随液芯折射率 n_1 和玻璃管壁厚变化图

Fig. 5 First-order WGM resonant-wavelength change in response to the refractive index of liquid core n_1 and LCORR wall thickness in TM polarization

3 实验过程

首先,用体积分数为 40% 的 HF 溶液在室温下对玻璃管进行腐蚀。腐蚀时间要控制好,时间过短会导致玻璃管壁过厚,从而会使其与光纤的耦合效率大大降低;时间过长会使玻璃管表面过于粗糙,从而会降低 Q 值。然后开始控制玻璃管,在对玻璃管中部用酒精喷灯加热的条件下通过优化和控制拉伸速率来得到合适尺寸的 LCORR,装置如图 6 所示。由于石英玻璃管熔点较高,使用酒精喷灯可以加快拉伸速度,且其产生的高温使玻璃管表面平整化,减少 HF 腐蚀后的粗糙度以提高 Q 值。为了进一步

减小管壁的厚度,对控制后的玻璃管进行第 2 次腐蚀。用体积分数为 10% 的 HF 溶液室温下对控制后的玻璃管外腐蚀约 2 h,即得最终的 LCORR 玻璃管。表面还可以用回火的方法使其更加光滑。其光学显微镜截面图如图 7 所示,最终最细处直径 90 μm ,壁厚 3 μm 。耦光微纳光纤拉制方法与拉制 LCORR 玻璃管基本相同,只是使用氢氧焰作为加热装置。

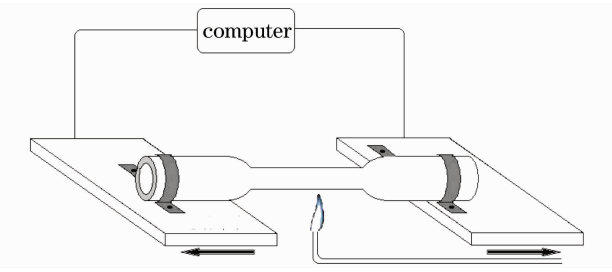


图 6 拉制玻璃管实验装置示意图

Fig. 6 Schematic diagram of the LCORR capillary-pulling platform

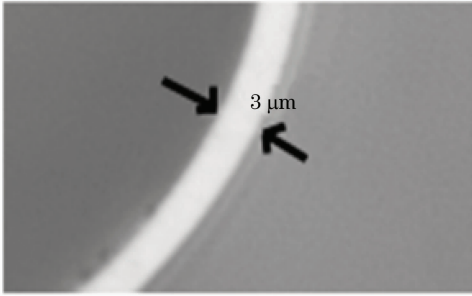


图 7 腐蚀后的玻璃管截面

Fig. 7 Cross-section view of capillary after HF etching

搭建的实验光路如图 8 所示,主要由一台放大自发辐射(ASE)光源,耦合微纳光纤,LCORR,一台光谱分析仪(OSA)组成。拉制好的直径为 $2\sim 3\ \mu\text{m}$ 的耦合微纳光纤与 LCORR 垂直接触。

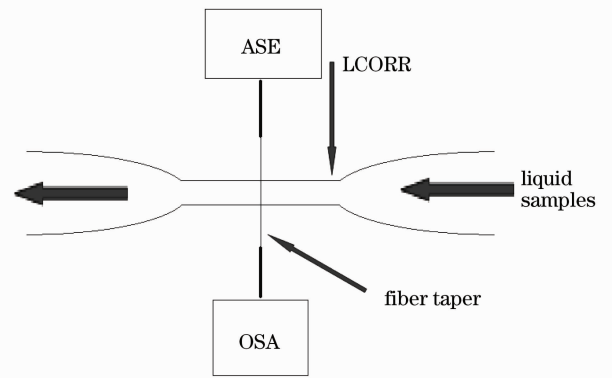


图 8 实验装置示意图

Fig. 8 Schematic diagram of the experimental setup

4 实验结果与分析

搭建好实验光路后对制备好的 LCORR 进行了有机物和无机物溶液检测。图 9 为向 LCORR 中注水后的光谱图。可以看出,同一阶模式下的相邻的两个谐振峰之间距离(FSR)为 $6\ \text{nm}$ 。取 $1597\ \text{nm}$ 附近的谐振峰,如图 10 所示。谐振峰的半峰全宽为 $0.07\ \text{nm}$,则品质因子为

$$Q = \frac{\lambda}{\Delta\lambda} = \frac{1597.04\ \text{nm}}{0.07\ \text{nm}} = 2.281 \times 10^4$$

可见 Q 值是很高的。

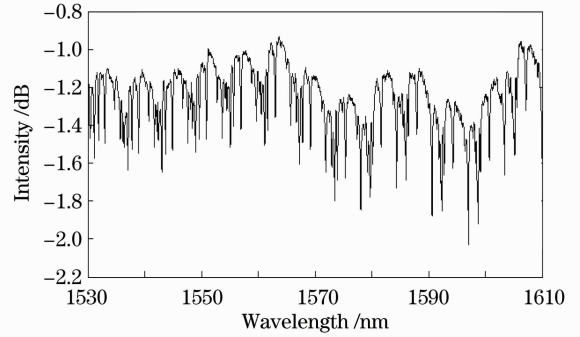


图 9 LCORR 注水后的谐振光谱

Fig. 9 Resonant spectrum of LCORR pumped with water

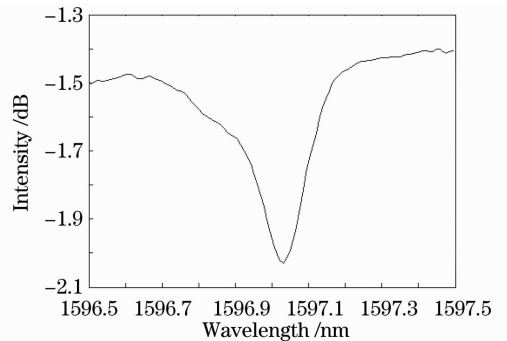


图 10 1597 nm 附近的谐振峰

Fig. 10 A resonant peak near 1597 nm

图 11 为向 LCORR 中分别注入水和丙酮后谐振峰的移动,光谱的移动约为 $0.47\ \text{nm}$ 。

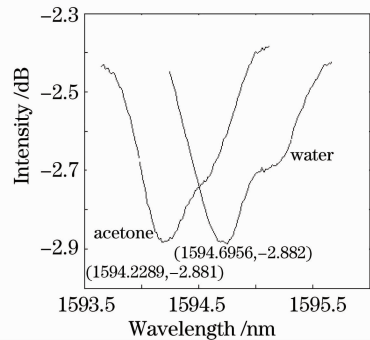


图 11 分别注入水和丙酮后光谱的移动

Fig. 11 Spectrum shift after water or acetone is pumped respectively

向 LCORR 中注入不同质量分数的 NaCl 溶液后,谐振峰位置随溶液质量分数的变化发生移动,如图 12 所示。可以看出,在 NaCl 溶液质量分数不高时,谐振峰位置移动随浓度变化近似为一条直线。NaCl 溶液的质量分数每改变 1% ,谐振峰的位置移

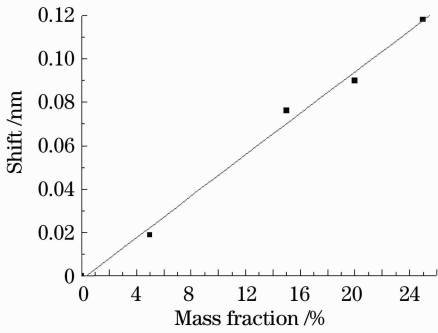


图 12 壁厚约为 $3 \mu\text{m}$ 时谐振峰位置移动随质量分数变化关系

Fig. 12 Resonant-peak shift in response to NaCl concentration with $3 \mu\text{m}$ LCORR wall thickness

动 0.00462 nm 。

根据不同质量分数的 NaCl 溶液在 1550 nm 光波段所对应的折射率(质量分数每变化 5% 折射率改变 $0.009^{[10]}$),可以得到灵敏度约为 2.57 nm/RIU ,与前面理论部分得到的壁厚为 $3 \mu\text{m}$ 的 LCORR 的灵敏度结果符合的很好。但是这个灵敏度并不高,这是由于我们使用的 LCORR 玻璃管壁厚较厚。通过减小 LCORR 壁厚的方式可以提高其灵敏度。制备了壁厚为约 $1.5 \mu\text{m}$ 的 LCORR 玻璃管,重复上述的实验方法,得到了谐振峰位置移动随质量分数的变化曲线如图 13 所示。

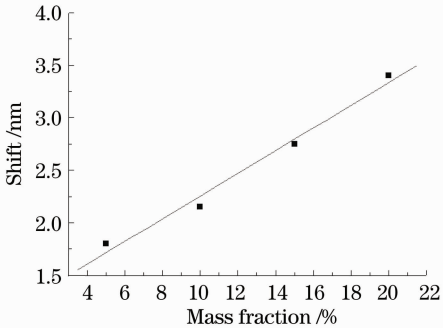


图 13 壁厚为 $2 \mu\text{m}$ 时谐振峰位置移动随质量分数变化关系

Fig. 13 Resonant-peak shift in response to NaCl concentration with $2 \mu\text{m}$ LCORR wall thickness

NaCl 溶液的质量分数每改变 1% ,谐振峰的位置移动 0.11068 nm ,灵敏度显著提高,达到 61.49 nm/RIU ,且要高于以前的文献报道^[4]。对比理论的计算,实际的壁厚大约在 $1.45 \mu\text{m}$ 。灵敏度的提高使得谐振器对微小的折射率变化更加的敏感,因此对微量溶液的测量将会更加的精确。

5 结 论

液芯环形谐振器是一种灵敏度,集成度均较高的浓度传感器。本文从理论、工艺和表征等各方面详细研究了该种谐振器的特性,通过优化改良制备工艺,得到了壁厚小于 $1.5 \mu\text{m}$,灵敏度高达 61.49 nm/RIU 的液芯环形谐振器,这种谐振器件在将来的生物工程,医药卫生的领域将会有巨大的应用前景。

参 考 文 献

- 1 A. Yalcin, K. C. Papat, J. C. Aldridge *et al.*. Optical sensing of biomolecules using microring resonators[J]. *IEEE J. Selected Topics in Quant. Electron.*, 2006, **12**(1): 148~155
- 2 F. Vollmer, D. Braun, A. Libchaber *et al.*. Protein detection by optical shift of a resonant microcavity[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2002, **80**(21): 4057~4059
- 3 N. M. Hanumegowda, C. J. Stica, B. C. Patel *et al.*. Refractometric sensors based on microsphere resonators [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2005, **87**(20): 201107
- 4 X. Fan, I. M. White, H. Zhu *et al.*. Overview of novel integrated optical ring resonator bio/chemical sensors[C]. *SPIE*, 2007, **6452**: 64520M
- 5 R. K. Chang, A. J. Campillo. Optical Processes in Microcavities[M]. Singapore: World Scientific Pub Co Inc, 1996
- 6 J. Heebner, R. Grover, T. Ibrahim. Optical Microresonators [M]. Springer, 2008
- 7 C. F. Bohren, D. R. Huffman. Absorption and Scattering of Light by Small Particles[M]. Wiley-Interscience, 1983
- 8 I. M. White, H. Oveys, X. Fan. Liquid-core optical ring-resonator sensors[J]. *Opt. Lett.*, 2006, **31**(9): 1319~1321
- 9 J. D. Suter, I. M. White, H. Zhu *et al.*. Thermal characterization of liquid core optical ring resonator sensors[J]. *Appl. Opt.*, 2007, **46**(3): 389~396
- 10 K. De Vos, I. Bartolozzi, E. Schacht *et al.*. Silicon-on-insulator microring resonator for sensitive and label-free biosensing [J]. *Opt. Express*, 2007, **15**(12): 7610~7615