

可调谐交叉领结形石墨烯阵列结构等离子体 折射率传感器

肖功利^{1*}, 杨秀华¹, 杨宏艳², 窦婉滢¹, 徐俊林¹, 韦清臣¹, 李海鸥¹, 张法碧¹,
李琦¹, 陈永和¹, 傅涛¹, 孙堂友¹

¹桂林电子科技大学广西精密导航技术与应用重点实验室, 广西 桂林 541004;

²桂林电子科技大学电子工程与自动化学院, 广西 桂林 541004

摘要 设计一种新颖的交叉领结形石墨烯阵列结构等离子体折射率传感器。利用石墨烯与电介质界面产生的表面等离子体效应,在中红外波段获得双共振透射现象,结合石墨烯的电可调特性来实现透射谱的动态调制,采用时域有限差分法研究该结构中石墨烯的化学势、层数及几何参数对双共振透射现象的影响。结果表明:通过改变石墨烯的化学势及层数能够实现共振位置的调谐;优化结构参数后,该结构具有较好的传感性能和双共振透射现象,2个共振谷的灵敏度分别高达 (1280 ± 24) nm/RIU 和 (2800 ± 49) nm/RIU,品质因数分别为 17.1 RIU^{-1} 和 12.3 RIU^{-1} 。研究结果为石墨烯等离子体生物传感器的设计提供了理论依据。

关键词 传感器;交叉领结形石墨烯;时域有限差分法;折射率传感器

中图分类号 TN252

文献标识码 A

doi: 10.3788/AOS201939.0728011

Plasma Refractive Index Sensor with Tunable Cross Tie-Shaped Graphene Array Structure

Xiao Gongli^{1*}, Yang Xiuhua¹, Yang Hongyan², Dou Wanying¹, Xu Junlin¹, Wei Qingchen¹,
Li Haiou¹, Zhang Fabi¹, Li Qi¹, Chen Yonghe¹, Fu Tao¹, Sun Tangyou¹

¹Guangxi Key Laboratory of Precision Navigation Technology and Application, Guilin University of Electronic
Technology, Guilin, Guangxi 541004, China;

²School of Electronic Engineering and Automation, Guilin University of Electronic Technology, Guilin,
Guangxi 541004, China

Abstract In this study, we design a plasma refractive index sensor with a cross tie-shaped graphene array structure. Further, the double-resonance transmission phenomenon in the mid-infrared band can be obtained by using the surface plasmon effect produced by the interface between the graphene and dielectric, and the dynamic regulation of the transmission spectrum can be realized by combining the electrically adjustable characteristics of graphenes. Subsequently, the effects of the chemical potential, number of layers, and geometric parameters of graphenes on the double-resonance transmission phenomenon in the structure are studied using the finite-difference time-domain method. The results denote that the resonance position can be tuned by changing the chemical potential and the number of layers of the graphene. Compared with a traditional sensor, this structure exhibits better sensing performance and double-resonance transmission phenomenon after the structural parameter optimization. The sensitivities of two resonance valleys are as high as (1280 ± 24) and (2800 ± 49) nm/RIU with quality factors of 17.1 and 12.3 RIU^{-1} , respectively. These results provide a theoretical basis for the graphene plasma biosensor design.

Key words sensors; cross tie-shaped graphene; finite difference time domain method; refractive index sensor

OCIS codes 280.5715; 240.6680; 230.7370; 160.4236

收稿日期: 2019-01-14; 修回日期: 2019-03-01; 录用日期: 2019-04-01

基金项目: 国家自然科学基金(61465004, 61765004)、广西自然科学基金(2017GXNSFAA198164, 2016GXNSFAA380006)、桂林电子科技大学研究生优秀学位论文培育项目(17YJPYSS07)、桂林电子科技大学大学生创新创业计划(201710608001)、桂林电子科技大学研究生教育创新计划(2019YCX028, 2017YJXC41)、桂林电子科技大学广西精密导航技术与应用重点实验室资助课题(DH201804, DH201703)

* E-mail: xgl.hy@126.com

1 引 言

自从2004年Novoselov等^[1]通过微机械剥离法从石墨晶体中成功分离出石墨烯以来,石墨烯在光学、电学和力学等方面的优异性能引起了科研人员的广泛关注,这些独特的性质使其在微纳加工^[2]、能源储存^[3]、半导体材料^[4]、环境监测^[5]和生物医学^[6]等诸多领域具有重要的应用前景。石墨烯是一种由碳原子以正六边形晶格结构排列而成的二维纳米材料,其内部结构的碳原子排列方式以 sp^2 杂化轨道成键,面内 σ 键与其他碳原子连接成蜂窝状结构,剩余的 π 电子之间形成离域大 π 键,这些离域键的电子在该平面层内自由移动^[7],使得石墨烯具有优越的导电性能。更重要的是,石墨烯具有对称锥型零带隙结构和极高的载流子迁移率,能够通过外加偏置电压或化学掺杂来改变其载流子浓度,从而实现表面电导率的调控^[8]。此外,石墨烯在红外和太赫兹波段具备贵金属的特性,能够支持表面等离子体(SPP)的传播^[9-10]。相比于金属,石墨烯SPP具有较强的束缚性、低损性、局域性及动态可调性等优点^[11-12]。基于这些性质,研究者设计出了各种光电子器件,如吸光器^[13]、调制器^[14]、滤波器^[15]和传感器^[16-17]等。可见,借助石墨烯制备高性能折射率传感器具有巨大的潜能优势。

近年来,石墨烯表面等离子体传感器成为微纳光电器件的研究热点之一^[18-19]。2013年,Zhao等^[20]报道了一种基于石墨烯带等离子体的红外生物传感器,该传感器采用窄带透射光谱来衡量、检测吸附在石墨烯上的生物分子,灵敏度高达1697 nm/RIU(RIU表示单位折射率)。同年Vasic等^[21]基于石墨烯带阵列结构,探讨了带上方均匀介质薄膜中的折射率灵敏度以及厚度灵敏度,获得了较好的传感性能。2014年,Wei等^[22]提出了将石墨烯片覆盖在纳米硅槽结构上的等离子体红外生物传感器,研究纳米硅槽中的生物流体分子对共振光谱的影响,该传感器的灵敏度可高达1920 nm/RIU。2015年,Wei等^[23]采用石墨烯带阵列结构提出了反射型红外生物传感器,该传感器具有良好的品质因数,该品质因数约为传统透射型红外生物传感器的4倍。2015年,Rodrigo等^[24]设计了一种基于石墨烯的可调谐中红外生物传感器,利用红外光谱的振动指纹对生物分子进行鉴定的方法,结合石墨烯独特的电光特性,对定量蛋白质和化学特异性分子进行了检测,并取得了较好的检测效果。2016年,

Han等^[25]提出了石墨烯纳米带波导结构的高灵敏折射率传感器,在优化的结构参数下,可以获得折射率灵敏度高达1800 nm/RIU的理论值。2017年,Zundel等^[26]研究了石墨烯纳米盘阵列结构的空分光学传感,证明了石墨烯纳米结构的传感能力与亚波长空分分辨率相结合能增强等离子体红外传感的可能性。2018年,Cen等^[27]报道了一种石墨烯纳米带阵列结构的可调谐等离子体折射率传感器,该传感器可以实现较高的灵敏度,且传感性能的品质因数可达 9.5 RIU^{-1} 。结合新结构、新材料对光传感器进行研究已成为一种新的趋势。虽然上述文献报道的传感器在传感性能上具有一定的优势,但在某些方面却限制了它的应用范围。例如,微量级检测灵敏度不高,识别效率低,小分子低浓度检测分辨率低等,且其在传输特性上大多以单个共振波长来传感,而利用多个共振波长进行折射率传感的相关研究还很少见。虽然陈颖等^[28]采用金属光栅-电介质-金属混合波导结构激发了多个共振峰用于传感,张东阳等^[29]证明了介质光栅金属薄膜复合结构比金属光栅结构的传感损耗小,并验证了介质光栅金属薄膜复合结构作为传感器的优势,但其频谱难以实时操控限制了它的实用性。因此,设计一种石墨烯动态可调谐多共振波长的折射率传感器十分有必要。

基于上述研究背景,本文提出一种交叉领结形石墨烯阵列结构,用该结构来加强表面等离子体共振耦合效应,使其在透射谱中展现出双共振现象。利用两个共振谷进行折射率传感,以期获得较好的灵敏度。采用时域有限差分法(FDTD)研究该结构的石墨烯化学势、层数及几何参数对透射现象的影响。当层数 $N=6$ 、石墨烯化学势 $\mu_c=0.9 \text{ eV}$ 、交叉领结形石墨烯的周期 $P=160 \text{ nm}$ 、相邻梯形之间的距离 $W=20 \text{ nm}$ 、纵向领结形长度 $H_1=120 \text{ nm}$ 、横向领结形长度 $H_2=120 \text{ nm}$ 时,该结构表现出较好的共振透射现象。通过优化结构参数,该传感器的折射率灵敏度达到了 $(2800 \pm 49) \text{ nm/RIU}$,品质因数可达 17.1 RIU^{-1} ,灵敏度高于文献^[20,22,25]中的理论值,品质因数相比文献^[27]提高了 7.6 RIU^{-1} 。该结构及数值结果可以为实现各种可调谐等离子体器件提供新思路,有望在生物传感和检测方面体现其应用价值。

2 结构设计与数值模拟

2.1 改进 P-I 迟滞模型建模

图1(a)所示为交叉领结形石墨烯阵列结构模

型。图中 E 、 H 、 K 分别表示电场矢量、磁场矢量和波矢。该结构由上到下依次为石墨烯层、电介质层。电介质层材料为二氧化硅(SiO_2)，其折射率为1.44；石墨烯层由纵向(y 轴)和横向(x 轴)领结形均匀、垂直叠加，构成统一整体的交叉领结形石墨烯结构，其中单领结形石墨烯由矩形的宽与两个相同的等腰梯形的上底相连而成。结构参数如下： L 为矩形的长度，即2个梯形之间的距离； D 为矩形的宽度，即梯形上底的长度； I 为梯形下底的长度； S 为梯形的腰长； h 为梯形的高度； θ 为梯形下底与腰的夹角； H_1 为纵向领结形的长度； H_2 为横向领结形的长度； W 为相邻梯形之间的距离； P 为交叉领结形石墨烯的周期。 H 和 θ 固定不变($D=20\text{ nm}$ ， $\theta=45^\circ$)，变化的参数为 $S=\sqrt{2}h$ 、 $L=H_1-2h$ (或 $L=$

H_2-2h)、 $I=H_1-\sqrt{2}W$ (或 $I=H_2-\sqrt{2}W$)、 $h=(I/2+10)(I, S$ 和 L 随着 W 的变化而变化)，其余结构参数初始化为 $H_1=120\text{ nm}$ 、 $H_2=120\text{ nm}$ 、 $W=20\text{ nm}$ 、 $P=160\text{ nm}$ 。采用基于时域有限差分算法的 Lumerical FDTD Solutions 商业软件对交叉领结形石墨烯阵列结构的光学特性进行研究，以单个交叉领结形石墨烯结构为模拟周期，仿真区域在 x 方向和 y 方向设置为周期性边界条件， z 方向设置为完美匹配层(PML)。为了提高精度，设置网格大小为 $\Delta x=\Delta y=\Delta z=2\text{ nm}$ 。平面光源沿 z 轴从上到下垂直入射(K 为传播常数)，电场强度 E 和磁场强度 H 分别沿 x 轴和 y 轴方向。在研究结构参数对透射谱的影响时，设置周围介质为空气(折射率为1)。

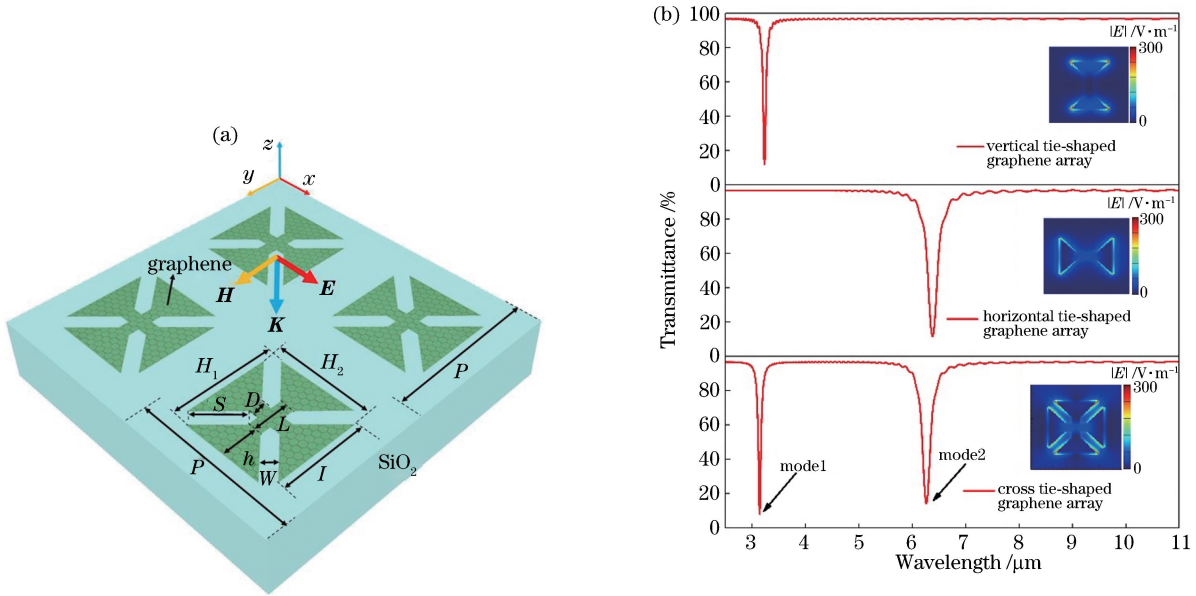


图1 石墨烯阵列结构的模型及透射光谱。(a)交叉领结形石墨烯阵列结构的模型；(b)纵向、横向及交叉领结形石墨烯阵列结构的透射光谱

Fig. 1 Model and transmittance spectra of graphene array structure. (a) Structure of cross tie-shaped graphene array; (b) transmittance spectra of vertical, horizontal, and cross tie-shaped graphene array

图1(b)所示为模拟计算得到的纵向、横向及交叉领结形石墨烯阵列结构的透射光谱。由图1(b)可知：3种结构均出现了不同的窄带透射谷，单纵向领结形石墨烯结构的共振波长在 $3.1\ \mu\text{m}$ 处对应的透射率为11.5%，单横向领结形石墨烯结构共振波长在 $6.4\ \mu\text{m}$ 处对应的透射率为12.7%，交叉领结形石墨烯结构出现了双共振模式。定义 λ_{res1} 、 t_{res1} 分别为共振模式1的共振波长和透射率， λ_{res2} 、 t_{res2} 分别为共振模式2的共振波长和透射率，则 $\lambda_{\text{res1}}=3.1\ \mu\text{m}$ ， $t_{\text{res1}}=8.7\%$ ， $\lambda_{\text{res2}}=6.3\ \mu\text{m}$ ， t_{res2} 为14.1%。此结果表明，与单一领结形石墨烯结构相比，该交叉领结形石墨烯复合

结构呈现出良好的双共振模式，且相对应的电场服从均匀分布，因此可以通过改变结构参数来调节表面等离子体共振效应，使双共振谷发生变化，进而提高传感检测的可靠性。可见，相对于单一结构，研究石墨烯复合结构在某些方面具有一定的研究意义。石墨烯在结构上遵守叠加定律，基于此可以获得相应的光谱特性，这为未来的研究提供了新思路。

2.2 数值模拟

石墨烯的光学特性主要借助电导率和等效介电常数进行描述。根据 Kubo 公式，石墨烯的复表面电导率由带内电导率 σ_{intra} 和带间电导率 σ_{inter} 两部分

构成,即 $\sigma(\lambda) = \sigma_{\text{intra}} + \sigma_{\text{inter}}$, 其中 λ 为响应波长。此时带内电导率与带间电导率^[30]分别为

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

$$\sigma_{\text{inter}} = \frac{ie^2}{4\pi\hbar} \ln \left[\frac{2|\mu_c| - (2\pi\nu\lambda^{-1} + i\tau^{-1})\hbar}{2|\mu_c| + (2\pi\nu\lambda^{-1} + i\tau^{-1})\hbar} \right], \quad (2)$$

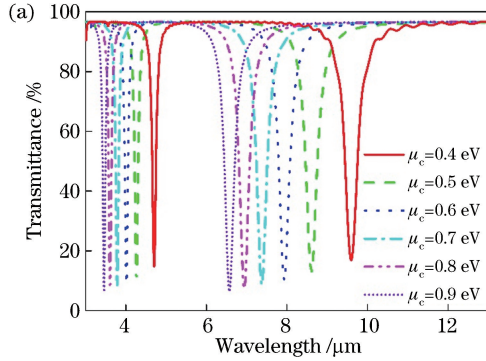
式中: e 为元电荷; \hbar 为约化普朗克常量; k_B 为玻尔兹曼常量; T 为石墨烯所处的环境温度; ν 为光速; $\mu_c \approx \hbar v_f \sqrt{\pi n_s}$ 为石墨烯的化学势, 其大小由载流子浓度 n_s 决定; $\tau = \mu_c / (e v_F^2)$ 为电子弛豫时间, 其中 $\mu \approx 10^4 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ 为电子迁移率^[27], $v_F \approx 10^6 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 为费米速度。当 $T = 300 \text{ K}$ 以及 $k_B T \ll |\mu_c|$ 时, 在太赫兹和中红外波段的带内电导率 σ_{intra} 起主导作用, 石墨烯表面的电导率^[31]可以简化为

$$\sigma(\lambda) = \frac{ie^2 \mu_c}{\pi \hbar^2 (2\pi\nu\lambda^{-1} + i\tau^{-1})}. \quad (3)$$

在数值模拟计算中, 石墨烯可以被视为厚度为 1 nm 的薄层^[25, 27], 石墨烯在平面方向上的介电常数 ϵ 与复表面电导率 $\sigma(\lambda)$ 之间的关系^[32]为

$$\epsilon = 1 + i\sigma(\lambda) / (\epsilon_0 2\pi\nu\lambda^{-1} \Delta), \quad (4)$$

式中: Δ 为石墨烯的厚度; ϵ_0 为真空介电常数。



3 结果与讨论

为了深入研究交叉领结形石墨烯阵列结构对透射现象的影响, 详细探讨石墨烯化学势 μ_c 、层数 N 、纵向领结形长度 H_1 和横向领结形长度 H_2 对共振波长、透射率的影响。图 2(a) 所示为当 $N = 6$ 、 $P = 160 \text{ nm}$ 、 $W = 20 \text{ nm}$ 、 $H_1 = 120 \text{ nm}$ 、 $H_2 = 120 \text{ nm}$ 时, 不同 μ_c 下的透射光谱, 可知: 随着石墨烯化学势 μ_c 以步长 0.1 eV 从 0.4 eV 增加到 0.9 eV , λ_{res1} 从 $4.7 \mu\text{m}$ 有规律地蓝移到 $3.5 \mu\text{m}$, t_{res1} 从 14.7% 减小到 6.9% ; λ_{res2} 从 $9.6 \mu\text{m}$ 有规律地蓝移到 $6.6 \mu\text{m}$, t_{res2} 从 16.9% 减小到 6.3% , 双透射谷逐渐变窄。原因是石墨烯化学势 μ_c 增大, 导致表面电导率增大, 使入射电磁波与石墨烯表面等离激元相互作用产生的共振耦合增强, 进而增加了透射谷的共振深度, 使透射率 t_{res1} 、 t_{res2} 减小; 而发生蓝移现象的主要原因是共振波长 λ_{res} 随石墨烯化学势的改变而改变^[33], 关系式为

$$\lambda_{\text{res}} = \frac{2\pi\nu}{0.62 \sqrt{e^2 \mu_c / (\hbar^2 \epsilon_r \epsilon_0 P)}}, \quad (5)$$

式中: ϵ_r 为衬底的介电常数。

由(5)式可推得, 共振波长 λ_{res} 随着 μ_c 的增大而减小, 这很好地解释了图 2(a) 中共振波长蓝移的现象, 该变化趋势与文献[19]的报道一致。

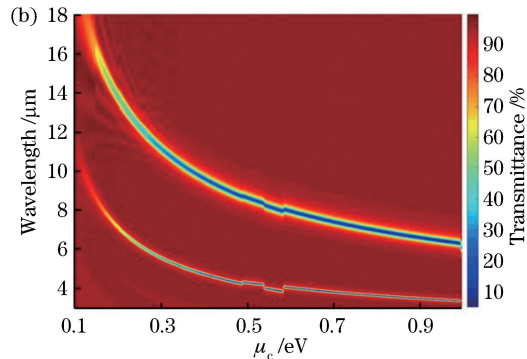


图 2 石墨烯化学势对光谱的影响。(a) 不同石墨烯化学势下的透射光谱; (b) 石墨烯化学势与波长和透射率的关系
Fig. 2 Influence of graphene chemical potential on spectrum. (a) Transmittance spectra under different graphene chemical potentials; (b) relationship among chemical potential, wavelength, and transmittance of graphene

象, 该变化趋势与文献[19]的报道一致。为了更清楚地理解透射谱的共振起源, 计算石墨烯化学势与波长的透射率函数关系, 如图 2(b) 所示, 可知: 随着 μ_c 增大, 共振深度越明显, 共振波长逐渐变小; 当 μ_c 为 $0.1 \sim 0.2 \text{ eV}$ 时, 透射谱起振深度较小, 相应的共振波长 λ_{res1} 、 λ_{res2} 分别为 $8 \sim 10 \mu\text{m}$ 、 $16 \sim 18 \mu\text{m}$; 当 μ_c 增加至 0.9 eV 以上时, $\lambda_{\text{res1}} < 3.5 \mu\text{m}$, $t_{\text{res1}} < 6.9\%$, $\lambda_{\text{res2}} < 6.6 \mu\text{m}$, t_{res2} 减小至 6.3% 。分析数值的变化趋势可以发现, 在石墨烯化学势接近 0 处, 透射

谱开始起振, 且共振深度随着石墨烯化学势的增大而增加。原因是石墨烯起振具有一定的约束条件, 当石墨烯化学势大于光子能量的 $1/2$ (即 $|\mu_c| > \hbar\omega/2$) 时, 表面等离子体动量增强, 使表面等离子体波在石墨烯中的传播成为可能, 在该波传播的情况下, 入射电场将与之有效地耦合, 在结构中形成法布里-珀罗谐振腔。此时, 在透射谱中开始产生共振, 即共振模式 1 与共振模式 2, 共振条件^[21]可近似为 $2n_{\text{eff}} H_m = \lambda_{\text{res}}$, 其中 n_{eff} 为 SPP 的有效折射率, H_m

为石墨烯的横向宽度。在此条件下,当 n_{eff} 一定时,石墨烯的横向宽度取决于光谱的共振波长。由于纵向领结形石墨烯的横向宽度小于横向领结形石墨烯的横向宽度,使得共振波长 $\lambda_{\text{res1}} < \lambda_{\text{res2}}$,因此,在结构参数一定的条件下,可以通过改变石墨烯的化学势来调控透射谱的共振位置,进而可以在应用过程中根据不同的需要来确定石墨烯的化学势,保证其频率与实际应用相匹配。此外,还能够通过外加偏置电压来调节载流子浓度,以实现调控石墨烯的化学势^[31],即 $n_s = V_g \epsilon_r \epsilon_0 / (ed)$ (V_g 为外加偏置电压, d 为衬底的厚度),进而实现透射谱的实时动态可调。

在 $\mu_c = 0.5 \text{ eV}$ 、 $P = 160 \text{ nm}$ 、 $W = 20 \text{ nm}$ 、 $H_1 = 120 \text{ nm}$ 、 $H_2 = 120 \text{ nm}$ 的条件下,讨论石墨烯层数 N 对透射谱的影响。将石墨烯的厚度设置为 $N\Delta$,电导率的定义^[18]为

$$\sigma_N(\lambda) = N\sigma(\lambda) = N \frac{ie^2\mu_c}{\pi\hbar^2(2\pi\nu\lambda^{-1} + i\tau^{-1})} \quad (6)$$

图 3(a) 所示为不同 N 时波长与透射率的关系,可知,当 N 以间隔 1 从 4 增加到 9 时,透射谷随着 N 的改变而改变,共振谷均向短波长方向移动

(即蓝移),透射率随之减小,共振谷逐渐变窄。这是因为石墨烯层数 N 影响了电导率变化的主要因素。由(4)式可知,石墨烯电导率是一种具有实部和虚部的有损介质,当 N 增加时,石墨烯电导率的实部和虚部随之成倍增加,总体载流子浓度增强,导致 μ_c 增大,对应的共振谷发生蓝移,这一点可以根据(5)式得到。图 3(b) 清楚地反映了图 3(a) 的变化趋势。从图 3(b) 中可以发现, λ_{res1} 蓝移了 $1.5 \mu\text{m}$, t_{res1} 减小了 7.5% , λ_{res2} 蓝移了 $3.4 \mu\text{m}$, t_{res2} 下降了 12.5% 。透射率减小主要是由石墨烯层数增加而使吸收光增强引起的,由于单层厚度的石墨烯在宽光谱范围内具有很强的吸收能力,当入射光波垂直于石墨烯表面入射时,石墨烯的反射率约为 1.3×10^{-4} ,明显低于光学透射率的数值。因此可以认为,多层石墨烯的吸收率与石墨烯的层数成正比^[34],即吸收率 $A = N\pi\alpha$ ($\alpha = 1/137$,为精细结构常数),则相应的透射率为 $T = 1 - N\pi\alpha$ 。随着 N 的增加,石墨烯对光吸收增强,使相应的 t_{res1} 、 t_{res2} 减小。根据石墨烯的这一特性可实现滤波可调谐功能。

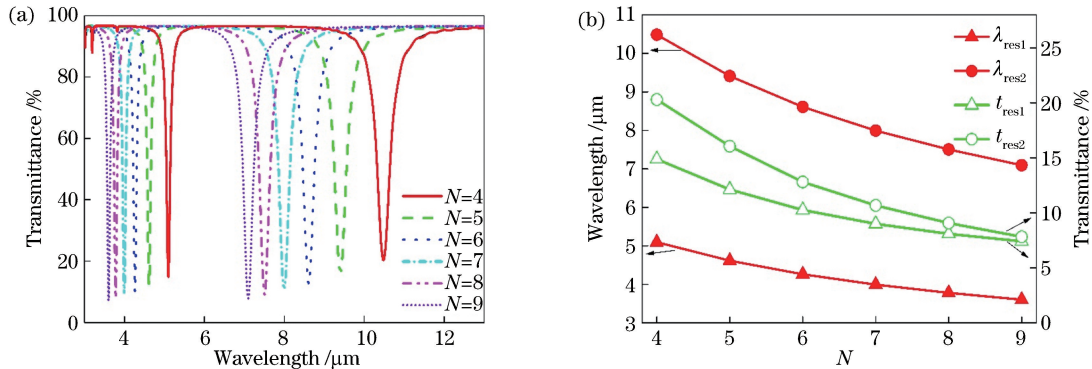


图 3 石墨烯层数对光谱的影响。(a)不同石墨烯层数时的透射光谱;(b)石墨烯层数与共振波长 λ_{res1} 、 λ_{res2} 及透射率 t_{res1} 、 t_{res2} 的关系

Fig. 3 Influence of number of graphene layers on spectrum. (a) Transmittance spectra under different graphene layers; (b) relationship among number of graphene layers, resonance wavelengths λ_{res1} , λ_{res2} , and transmittance t_{res1} , t_{res2}

为了探讨结构参数对透射谱的影响,考察当 $N = 6$ 、 $\mu_c = 0.9 \text{ eV}$ 、 $P = 200 \text{ nm}$ 、 $W = 30 \text{ nm}$ 、 $H_2 = 120 \text{ nm}$ 时,不同 H_1 下波长与透射率的关系,如图 4(a) 所示。由图 4(a) 可知,当 H_1 以步长 10 nm 从 110 nm 增加到 160 nm 时,共振波长 λ_{res1} 从 $3.17 \mu\text{m}$ 有规律地红移到 $3.81 \mu\text{m}$, t_{res1} 从 27.3% 减小到 5.1% , λ_{res2} 和 t_{res2} 几乎不变。纵向领结形石墨烯长度 H_1 增大可使石墨烯的占空比变大,而共振波长与石墨烯的占空比呈正相关^[35],即 $\lambda_{\text{res1}} \propto \sqrt{H_1/\mu_c}$, λ_{res1} 随着 H_1 的增大而增大。为了更清楚地理解该

现象的原因,分析不同 H_1 时 λ_{res1} 的电场能量密度分布。由图 4(b) 可知,电场能量主要束缚在纵向领结形 4 个外角的边缘处,这是由于当入射光波耦合进入石墨烯带,入射光子频率与石墨烯传导电子的整体振动频率相匹配时,就会发生局域表面等离子体共振(LSPR),使纵向领结形 4 个外角边缘处的电荷累积,导致局部电场增强,因此产生共振模式 1。在纵向领结形石墨烯与电场的强耦合作用下,纵向领结形石墨烯的宽度在很大程度上决定了 SPP 的有效折射率 n_{eff} ,宽度较小的石墨烯表现出较大的 n_{eff} ,而光主要倾向于聚焦在具有 n_{eff} 较大的介质上。

因此,当 H_1 增大时,宽度随之增大, n_{eff} 减小,导致电场强度逐渐减弱。随着石墨烯的占空比变大,吸收增强,使得 t_{res1} 减小。

当 $N=6, \mu_c=0.9 \text{ eV}, P=200 \text{ nm}, W=30 \text{ nm}, H_1=120 \text{ nm}$ 时,不同 H_2 下波长与透射率的关系如图 5(a)所示。由图 5(a)可知,随着 H_2 增大,共振波长 λ_{res2} 从 $5.58 \mu\text{m}$ 红移到 $8.41 \mu\text{m}$,透射率 t_{res2} 从 15.8% 减小到 5.4% ; $\lambda_{\text{res1}}, t_{\text{res1}}$ 几乎不变。图 5(b)所示为不同 H_2 时共振波长 λ_{res2} 的电场强度分布。可知,所有的电场强度主要分布在横向领结形石墨烯的两个梯形边缘处,这主要是由横向领结形石墨烯表面等离子体共振引起的。当入射光波进入横向领结形石墨烯时,横向石墨烯表面的等离子体被激发,

此时会产生感应极化电流,使电荷累积,导致 SPP 与石墨烯带共振耦合效率增强,进而产生明显的共振模式 2。当 H_2 逐渐增大时,意味着横向领结形石墨烯的占空比变大,在 μ_c 不变的条件下 ($\lambda_{\text{res2}} \propto \sqrt{H_2/\mu_c}$),共振波长 λ_{res2} 红移,增强吸收, t_{res2} 减小。SPP 的 n_{eff} 主要取决于横向领结形石墨烯的长度 H_2 ,当 H_2 较小时, n_{eff} 较大,束缚在横向领结形石墨烯梯形边缘处的电场增强。当 H_2 增大时,横向领结形石墨烯纵向宽度逐渐增大, n_{eff} 减小,导致横向领结形石墨烯梯形边缘处的电场强度减弱。该现象表明,通过改变横向领结形石墨烯的长度,可以调控横向石墨烯等离子体共振,进而可调节共振模式 2 及透射率。

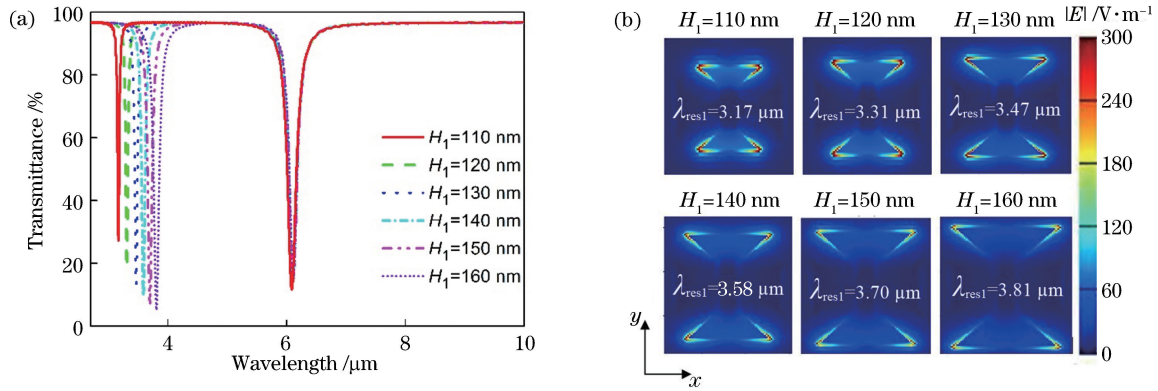


图 4 石墨烯结构参数对光谱的影响。(a)不同 H_1 时的透射光谱;(b)不同 H_1 时共振波长 λ_{res1} 的电场强度 $|E|$ 分布
Fig. 4 Influences of graphene structural parameters on spectrum. (a) Transmission spectra under different H_1 ; (b) electric field intensity distributions ($|E|$) of resonant wavelength λ_{res1} under different H_1

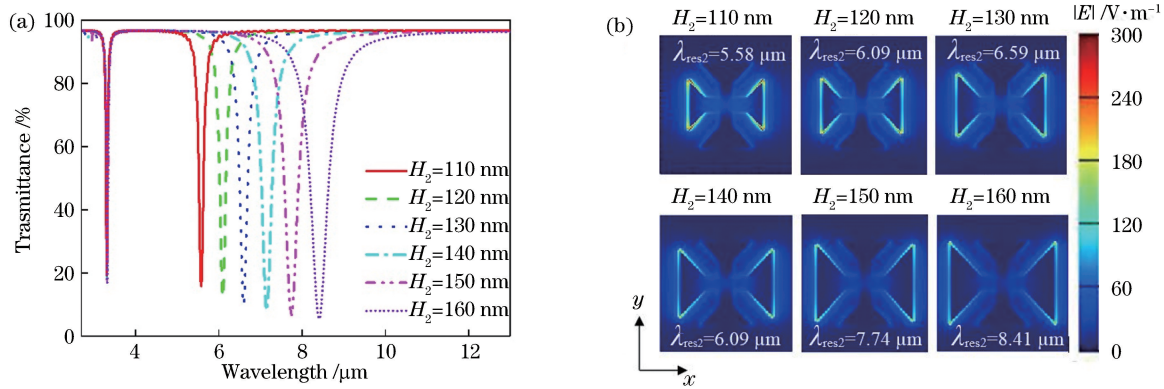


图 5 石墨烯结构参数对光谱的影响。(a)不同 H_2 时的透射光谱;(b)不同 H_2 时共振波长 λ_{res2} 的电场强度 $|E|$ 分布
Fig. 5 Influences of graphene structural parameters on spectrum. (a) Transmission spectra under different H_2 ; (b) electric field intensity distributions ($|E|$) of resonant wavelength λ_{res2} under different H_2

石墨烯较大的比表面积使其对周围环境非常敏感,不同待测介质的折射率会有相应的共振波长,传感机理是通过测量共振波长的偏移来确定待测介质的折射率传感特性。本文提出的结构在透射传输特性上体现出 2 个共振谷,因此在探测时,1 个折射率

对应不同的双共振谷。当 $N=5, \mu_c=0.6 \text{ eV}, P=200 \text{ nm}, W=20 \text{ nm}, H_1=120 \text{ nm}, H_2=120 \text{ nm}$ 时,通过改变周围环境的介质折射率 n 来模拟实际待测物质。图 6(a)所示为不同周围环境介质折射率 n 下的透射光谱,当周围环境折射率 n 从 1.0 以

步长 0.1 增加到 1.6 时, 双共振波长出现明显的红移, λ_{res1} 从 4.3 μm 红移到 5.1 μm , λ_{res2} 从 8.3 μm 红移到 9.9 μm 。将 2 个共振波长与周围环境折射率 n

进行线性拟合, 结果如图 6(b) 所示, 所得关系式为

$$\begin{cases} \lambda_{res1} = 3.02 + 1.28n \quad (1.0 \leq n \leq 1.6) \\ \lambda_{res2} = 5.47 + 2.80n \quad (1.0 \leq n \leq 1.6) \end{cases} \quad (7)$$

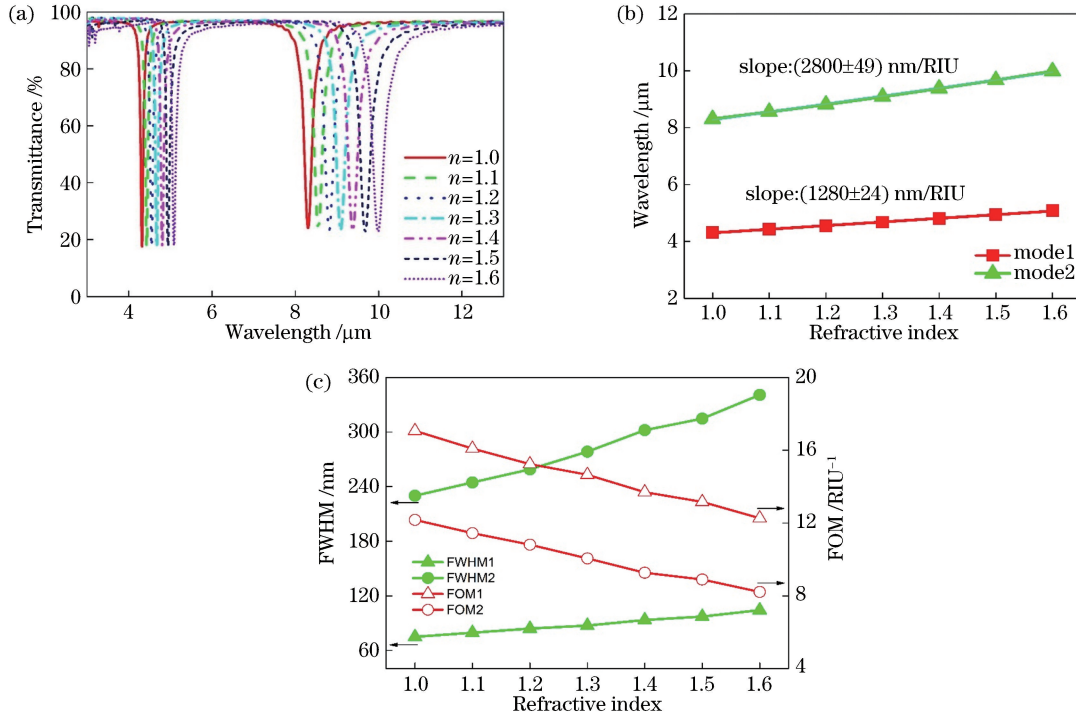


图 6 交叉领结形石墨烯结构折射率传感器的传感特性。(a)不同折射率 n 下的透射光谱;(b)折射率与共振波长 λ_{res1} 、 λ_{res2} 的关系;(c)折射率与透射谷半峰全宽、品质因数的关系

Fig. 6 Sensing characteristics of refractive index sensor with cross tie-shaped graphene structure. (a) Transmission spectra under different refractive index n ; (b) relationship between refractive index and resonance wavelengths λ_{res1} , λ_{res2} ; (c) relationship among refractive index, full width at half maximum of transmission valley, and quality factor

折射率灵敏度 S 是衡量传感器的一个重要指数, 其定义为单位折射率变化对应的共振波长的偏移量, 表达式^[22]为

$$S = \frac{\Delta\lambda_{res}}{\Delta n}, \quad (8)$$

式中: $\Delta\lambda_{res}$ 为共振波长的变化量; Δn 为折射率的变化量。图 6(b) 中线形拟合直线的斜率是该传感器的折射率灵敏度, 根据图 6(b) 计算出透射谱共振模式 1 的灵敏度为 (1280 ± 24) nm/RIU, 共振模式 2 的灵敏度为 (2800 ± 49) nm/RIU。此外, 品质因数 (FOM) 是评价传感器性能的另一个指标, 该指数越大, 表明传感性能越好, 其表达式^[21]为

$$f_{FOM} = \frac{S}{f_{FWHM}}, \quad (9)$$

式中: f_{FWHM} 为共振谷的半峰全宽; S 为折射率灵敏度。图 6(c) 为不同的周围环境折射率对应的半峰全宽和品质因数, 其中 FWHM1、FWHM2 分别为共振模式 1 和共振模式 2 共振谷的半峰全宽, FOM1、FOM2 分别为共振模式 1 和共振模式 2 的

品质因数。由图 6(c) 可知, FOM1、FOM2 分别高达 17.1 RIU^{-1} 和 12.3 RIU^{-1} 。可见, 两个共振谷均呈现出较好的性能, 灵敏度相较于文献^[20, 22, 36]的结果得到了改善。针对单共振波长传感而言, 双共振波长单次检测可以同时获得两个测量结果, 其可靠性将远大于单共振波长。这表明石墨烯阵列结构有望在新一代高性能微纳等离子体生物传感器设计中得到应用。

4 结 论

提出了一种可调谐交叉领结形石墨烯阵列结构等离子体折射率传感器, 采用 FDTD 法分析了该结构石墨烯的化学势和层数等主要几何参数对透射现象的影响, 并研究了基于该现象的折射率传感特性。结果表明: 相对于单一领结形石墨烯结构, 该交叉领结形阵列石墨烯与光的作用可表现出双共振透射现象, 利用双共振模式传感可减小检测误差, 为设计折射率传感提供了创新思路。通过改变石墨烯的化学

势和层数,可以实现透射谱的动态调制。随着 μ_c 和 N 增大, t_{res1} 与 t_{res2} 均减小, λ_{res1} 和 λ_{res2} 蓝移;随着 H_1 增大, t_{res1} 逐渐减小, t_{res2} 保持不变, λ_{res1} 红移, λ_{res2} 几乎不变;随着 H_2 增大, t_{res1} 基本保持不变, t_{res2} 逐渐减小, λ_{res1} 几乎保持不变, λ_{res2} 有规律地红移。在 $N=5$ 、 $\mu_c=0.6$ eV、 $P=200$ nm、 $W=20$ nm、 $H_1=120$ nm、 $H_2=120$ nm 时,该结构具有较好的传感性能,两个共振谷的折射率灵敏度分别为 (1280 ± 24) nm/RIU 和 (2800 ± 49) nm/RIU,品质因数分别为 17.1 RIU $^{-1}$ 和 12.3 RIU $^{-1}$ 。相对于传统传感器,石墨烯等离子体传感器在结构和性能上均具有一定优势,且设计双共振传感可进一步提高检测的可靠性。这些研究结果为新一代高性能石墨烯表面等离子体共振传感器设计提供了理论参考。

参 考 文 献

- [1] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, *et al.* Electric field effect in atomically thin carbon films [J]. *Science*, 2004, 306(5696): 666-669.
- [2] Li Y, Zhang F, Chen H, *et al.* Research progress of the process technology for graphene micro/nano structures [J]. *Micronanoelectronic Technology*, 2013, 50(4): 255-263.
李艳, 张芳, 陈辉, 等. 石墨烯微纳结构加工技术的研究进展[J]. *微纳电子技术*, 2013, 50(4): 255-263.
- [3] Xu J J, Wang K, Zu S Z, *et al.* Hierarchical nanocomposites of polyaniline nanowire arrays on graphene oxide sheets with synergistic effect for energy storage [J]. *ACS Nano*, 2010, 4(9): 5019-5026.
- [4] Gaspari F, Shkrebtii A I, McNelles P, *et al.* Partially hydrogenated graphene: semiconductor material with a tunable gap and its non-destructive optical characterization [J]. *MRS Proceedings*, 2011, 1362: mrss11-1362-qq09-18.
- [5] Zhao Y F, Yue T X, Jin L R, *et al.* The application of graphene-based electrochemical sensor in environmental monitoring [J]. *Journal of Environmental Management College of China*, 2012, 22(4): 56-59, 70.
赵燕芳, 岳太星, 金玲仁, 等. 基于石墨烯构建的电化学传感器在环境监测中的应用[J]. *中国环境管理干部学院学报*, 2012, 22(4): 56-59, 70.
- [6] Yang K, Gong H, Shi X Z, *et al.* *In vivo* biodistribution and toxicology of functionalized nanographene oxide in mice after oral and intraperitoneal administration [J]. *Biomaterials*, 2013, 34(11): 2787-2795.
- [7] Du W. Research on graphene-based active optoelectronics devices [D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2015.
杜威. 石墨烯光电子有源器件的研究[D]. 杭州: 浙江大学, 2015.
- [8] Ye C Y, Zhu Z H, Xu W, *et al.* Electrically tunable absorber based on nonstructured graphene [J]. *Journal of Optics*, 2015, 17(12): 125009.
- [9] Gan C H, Chu H S, Li E P. Synthesis of highly confined surface plasmon modes with doped graphene sheets in the midinfrared and terahertz frequencies [J]. *Physical Review B*, 2012, 85(12): 125431.
- [10] Wang F, Zhang Y, Tian C, *et al.* Gate-variable optical transitions in graphene [J]. *Science*, 2008, 320(5873): 206-209.
- [11] Lu W B, Zhu W, Xu H J, *et al.* Flexible transformation plasmonics using graphene [J]. *Optics Express*, 2013, 21(9): 10475-10482.
- [12] Woessner A, Lundeberg M B, Gao Y D, *et al.* Highly confined low-loss plasmons in graphene-boron nitride heterostructures [J]. *Nature Materials*, 2015, 14(4): 421-425.
- [13] Chen J J, Zeng Y, Xu X B, *et al.* Plasmonic absorption enhancement in elliptical graphene arrays [J]. *Nanomaterials*, 2018, 8(3): 175.
- [14] Hu X, Wang J. High figure of merit graphene modulator based on long-range hybrid plasmonic slot waveguide [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 2017, 53(3): 7200308.
- [15] Feng Y C, Liu Y W, Wang X H, *et al.* Tunable multichannel plasmonic filter based on a single graphene sheet on a Fibonacci quasiperiodic structure [J]. *Plasmonics*, 2018, 13(2): 653-659.
- [16] Tao L Q, Zhang K N, Tian H, *et al.* Graphene-paper pressure sensor for detecting human motions [J]. *ACS Nano*, 2017, 11(9): 8790-8795.
- [17] Zhou P, Zheng G G. High-efficient light absorption of monolayer graphene via cylindrical dielectric arrays and the sensing application [J]. *Optical Materials*, 2018, 78: 471-476.
- [18] Wu J, Zhou C H, Yu J J, *et al.* Design of infrared surface plasmon resonance sensors based on graphene ribbon arrays [J]. *Optics & Laser Technology*, 2014, 59: 99-103.
- [19] Bai Y K, Wang B, Ma X R. Versatile infrared refractive-index sensor based on surface plasmon resonance in graphene sheet [J]. *Optical Engineering*, 2018, 57(3): 037107.
- [20] Zhao Y, Hu X, Chen G X, *et al.* Infrared biosensors based on graphene plasmonics: modeling [J]. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 2013, 15(40):

- 17118-17125.
- [21] Vasić B, Isić G, Gajić R. Localized surface plasmon resonances in graphene ribbon arrays for sensing of dielectric environment at infrared frequencies [J]. *Journal of Applied Physics*, 2013, 113(1): 013110.
- [22] Wei W, Nong J P, Zhang G W, *et al.* An infrared biosensor based on graphene plasmonic for integrated nanofluidic analysis[J]. *Proceedings of SPIE*, 2014, 9278: 92780F.
- [23] Wei W, Nong J P, Tang L L, *et al.* Reflection-type infrared biosensor based on surface plasmonics in graphene ribbon arrays [J]. *Chinese Optics Letters*, 2015, 13(8): 082801.
- [24] Rodrigo D, Limaj O, Janner D, *et al.* Mid-infrared plasmonic biosensing with graphene [J]. *Science*, 2015, 349(6244): 165-168.
- [25] Han X, Wang T. High sensitive refractive index sensor in a graphene-based nanoribbon waveguide system based on the finite-difference time-domain method[C]//2016 IEEE International Conference on Computational Electromagnetics (ICCEM), February 23-25, 2016, Guangzhou, China. New York: IEEE, 2016: 265-267.
- [26] Zundel L, Manjavacas A. Spatially resolved optical sensing using graphene nanodisk arrays [J]. *ACS Photonics*, 2017, 4(7): 1831-1838.
- [27] Cen C L, Lin H, Huang J, *et al.* A tunable plasmonic refractive index sensor with nanoring-strip graphene arrays[J]. *Sensors*, 2018, 18(12): 4489.
- [28] Chen Y, Tian Y N, He L, *et al.* Research on subwavelength metal grating/dielectric/metal hybrid waveguide sensing structure [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2018, 45(1): 0110001.
陈颖, 田亚宁, 何磊, 等. 亚波长金属光栅/电介质/金属混合波导传感结构的研究 [J]. *中国激光*, 2018, 45(1): 0110001.
- [29] Zhang D Y, Zhao L, Wang X X, *et al.* A refractive index sensor based on composite structure of dielectric grating with metal films [J]. *Acta Optica Sinica*, 2017, 37(11): 1124001.
张东阳, 赵磊, 王向贤, 等. 一种基于介质光栅金属薄膜复合结构的折射率传感器 [J]. *光学学报*, 2017, 37(11): 1124001.
- [30] 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.
- [31] Li Z Q, Feng D D, Li X, *et al.* Graphene surface plasmon polaritons based photoelectric modulator with double branched structure [J]. *Acta Optica Sinica*, 2018, 38(1): 0124001.
李志全, 冯丹丹, 李欣, 等. 基于石墨烯表面等离子激元的双支节结构光电调制器 [J]. *光学学报*, 2018, 38(1): 0124001.
- [32] He S L, Zhang X Z, He Y R. Graphene nano-ribbon waveguides of record-small mode area and ultra-high effective refractive indices for future VLSI [J]. *Optics Express*, 2013, 21(25): 30664-30673.
- [33] Gao W L, Shu J, Qiu C Y, *et al.* Excitation of plasmonic waves in graphene by guided-mode resonances [J]. *ACS Nano*, 2012, 6(9): 7806-7813.
- [34] Jiang X Q, Liu Z B, Tian J G. The optical properties of graphene and its application [J]. *Progress in Physics*, 2017, 37(1): 22-36.
姜小强, 刘智波, 田建国. 石墨烯光学性质及其应用研究进展 [J]. *物理学进展*, 2017, 37(1): 22-36.
- [35] Nikitin A Y, Guinea F, Garcia-Vidal F J, *et al.* Surface plasmon enhanced absorption and suppressed transmission in periodic arrays of graphene ribbons [J]. *Physical Review B*, 2012, 85(8): 081405.
- [36] Han X, Wang T. Tunable plasmon induced transparency in a graphene-based waveguide structure and its applications in sensing [J]. *Proceedings of SPIE*, 2017, 10343: 103432H.