

doi:10.3788/gzxb20144309.0912005

费米折射率平面波导激励的差分检测型对称结构表面等离子共振传感研究

杨海马¹, 刘瑾², 杨晖¹, 孔平¹

(1 上海理工大学 光电信息与计算机工程学院, 上海 200093)

(2 上海工程技术大学 电子电气工程学院, 上海 201620)

摘 要: 为了实现被测折射率范围可调, 提高检测灵敏度, 将双波长差分检测技术应用于平面波导激励的金属-介质-金属组成的对称型表面等离子体共振传感结构中. 通过对对称结构的模式特性分析, 研究了该结构中激发等离子体表面波时, 介质厚度与被测折射率的关系及双波长差分检测的原理. 采用离子交换法制备平面波导, 用费米函数拟合其渐变折射率分布. 用光强调制方式, 分别进行单波长和双波长差分检测, 对折射率为 1.33~1.428 之间的甘油溶液进行测试, 实验结果表明, 该结构可激发等离子体表面波, 与传统平面波导激励的表面等离子体共振传感结构相比, 通过改变被测介质的厚度可以改变共振条件, 进而改变折射率的测量范围. 若被测范围选择合适, 检测的线性较好, 采用差分检测方法比单波长检测方法的灵敏度提高近一倍.

关键词: 表面等离子体共振; 传感器; 差分检测; 对称传感结构; 平面波导; 离子交换; 折射率

中图分类号: TN244

文献标识码: A

文章编号: 1004-4213(2014)09-0912005-6

The Differential Detection Method of the Symmetric Surface Plasmon Resonance Sensing Structure Excited by FEMI Planar Waveguide

YANG Hai-ma¹, LIU Jin², YANG Hui¹, KONG Ping¹

(1 School of Optical-Electrical and Computer Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China)

2 College of Electronic and Electrical Engineering, Shanghai University of Engineering Science, Shanghai 201620, China)

Abstract: In order to improve the detection sensitivity, the method of dual-wavelength differential detection is used. To realize the measured refractive index range being adjustable, a novel surface plasmon resonance sensing structure is described, which consists of a planar waveguide and a symmetric structure with metal-sample-metal layer. The mode characteristic of the symmetric structure is analyzed. When the surface plasmon wave is excited, the relationship between the tested refractive index and the dielectric thickness, and the dual-wavelength differential method are researched. Planar waveguides are prepared by the ion-exchange and the graded-index distribution can be fitted by the Fermi function. In experiments Glycerin solutions with the refractive index range of 1.33-1.428 are used for detection by intensity method. Methods of single wavelength and dual-wavelength based on the symmetric structure are used respectively, then the plasmon surface wave can be excited. The refractive index matching condition of this structure can be adjusted through the thickness of the sample, so the tested range is adjustable. If the measured range is appropriate, a linear relationship between normalized intensity and refractive index can be obtained. Theoretical analysis and experimental results show that the sensitivity of the differential detection method is nearly doubled compared with the single-wavelength method.

基金项目: 国家自然科学基金 (Nos. 61302181, 61007002)、上海市教委科研创新项目 (No. 13YZ111)、上海市自然科学基金 (No. 14ZR1418400) 资助

第一作者: 杨海马 (1979-), 男, 讲师, 博士研究生, 主要研究方向为光电传感技术及智能仪器设计. Email: snowyhm@sina.com

收稿日期: 2013-11-11; **录用日期:** 2014-03-17

<http://www.photon.ac.cn>

Key words: Surface plasmon resonance; Sensors; Differential detection; Symmetric structure; Planar waveguide; Ion exchange; Refractive index

OCIS Codes: 120.1880 ; 120.4640; 130.6010

0 引言

表面等离子体共振 (Surface Plasmon Resonance, SPR) 现象是指当采用 TM 模式 (磁矢量与传播方向垂直) 的偏振光入射到金属与介质界面, 若满足波矢匹配条件, 入射光光强将产生衰减并且其相位将发生改变, 即沿金属薄膜表面传播的表面等离子体波 (Surface Plasmon Wave, SPW) 被激发, 这种现象对金属表面电介质的折射率非常敏感, 当其发生微小变化时, 即可使匹配条件随之变化, 因此利用 SPR 原理可检测折射率的变化。

波导型 SPR 传感器不需要昂贵的精密角度转动装置和控制系统, 比光纤式 SPR 传感器模式便于分析, 具有微型化, 稳定性好等特点, 因此在 SPR 传感领域得到了广泛的应用^[1-9]. 传统平面波导激励的 SPR 传感结构中, 由于所制备波导的传播常数较大, 若要满足波矢匹配条件进而激发 SPW, 则要求被测物质的折射率较大^[10], 使得测量范围相对受限, 因此研究具有较高灵敏度的新型传感结构以增强检测的灵活性备受关注. Sung-Hoon Hong 等^[11] 研究的石英基板-铬-金 SPR 传感结构和 Dostalek J^[12] 研究的波导-铬-金-Ta₂O₅ SPR 传感结构都是为了提高检测性能^[13].

本文研究由平面波导激励的金属-介质-金属的对称传感结构, 该结构与传统平面波导激励的 SPR 传感结构相比, 可通过改变被测介质的厚度来改变共振条件, 使被测折射率范围具有一定的可调性. 研究基于此结构的双波长差分检测方法, 若选择两个合适波长, 可以使 SPR 谱线中光强的变化与折射率变化的方向相反, 那么采用光强变化的差值来检测折射率的变化, 可提高检测灵敏度。

1 基本原理

本文采用平面波导激励对称传感结构, 用离子交换法制备高质量渐变折射率波导, 间接测试结合数值拟合来确定折射率分布. FERMI 函数拟合平面波导的折射率分布式为

$$f(d, x) = \left[1 - \exp\left(-\frac{b}{a}\right) + \exp\left(\frac{x-b}{a}\right) \right]^{-1} \quad (1)$$

式中, x 是离开波导表面的距离, a 和 b 为与渐变波导的变化率及有效厚度等有关的参量. 通过改变参数的值可以调整 FERMI 曲线的形状, 平面渐变波导的折射率方程表示为

$$n(x) = n_s + \Delta n f(x) \quad (2)$$

Δn 为表面折射率增量; n_s 为基板折射率, $f(x)$ 为费米函数。

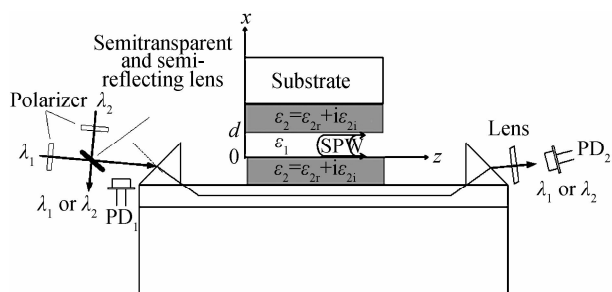


图 1 平面波导激励的差分检测型对称结构表面等离子共振传感系统

Fig. 1 The symmetric surface plasmon resonance sensing structure excited by planar waveguide by differential detection method

平面波导激励的差分检测型对称结构表面等离子共振传感系统如图 1. LD 波长分别为 λ_1 、 λ_2 , 经起偏器滤除 TE 模式后传播 TM 模式, 经半透半反镜后耦合进波导, 来激发对称结构中的 SPW, PD₂ 用来检测激发 SPW 后的光强, PD₁ 用来检测没有激发 SPW 是的光强, 可作为参考信号来消除光源波动等造成的影响。

对称结构中, 设介质的介电常数为 ϵ_1 , 厚度为 d , 其两侧覆盖了介电常数 $\epsilon_2 = \epsilon_{2r} + i\epsilon_{2i}$ 的金属包层, ϵ_{2r} 和 ϵ_{2i} 分别代表金属介电常数的实部和虚部. 对其模式特性进行分析时, 可忽略 ϵ_{2i} 的影响, 则图 1 中的对称结构可以被认为对称金属覆盖介质波导也可被称为双面金属覆盖介质波导, 其 TM 模式的本征方程为^[14]

$$\kappa_1 d = m\pi + 2 \arctan\left(\frac{\epsilon_1 \alpha_2}{\epsilon_2 \kappa_1}\right) \quad (3)$$

式中: $m = 0, 1, 2, \dots$, $\kappa_1 = \sqrt{k_0^2 \epsilon_1 - \beta^2}$, $\alpha_2 = \sqrt{\beta^2 - k_0^2 \epsilon_2}$, β 表示导模的传播常数。

分别对该结构的 TM₀ 模和 TM₁ 模的本征方程及波动方程进行分析。

对于 TM₀ 模式, 根据方程(3), 在 $m=0$ 时, 可以得到以下结论: 由于 $\epsilon_2 < 0$, 方程在 $\beta/k_0 < \sqrt{\epsilon_1}$ 范围内无解. 当 $\beta/k_0 > \sqrt{\epsilon_1}$ 时, 有 $\kappa_1 = i\alpha_1$, 介质薄膜中的振荡场变为两个指数衰减场的叠加, 方程(3)变为

$$\tanh\left(\frac{1}{2} \alpha_1 d\right) = -\frac{\epsilon_1 \alpha_2}{\epsilon_2 \alpha_1} \quad (4)$$

介质膜厚为 $0 < d < \infty$ 时, 得到 TM₀ 模有效折射率的存在范围为

$$\sqrt{\frac{\epsilon_1 \epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2}} < \frac{\beta}{k_0} < \infty \quad (5)$$

上式表明, TM₀ 模有效折射率处于导模有效折射率的存在范围之外, 所以, 可以断定, TM₀ 模是表面模。

对于 TM₁ 模式, 利用恒等式

$$\arctan(|u|) = \frac{\pi}{2} - \arctan(|u|^{-1}) \quad (6)$$

将 TM_1 模的本征方程改写为

$$\kappa_1 d = 2 \arctan\left(-\frac{\varepsilon_2 \kappa_1}{\varepsilon_1 \alpha_2}\right) \quad (7)$$

当 $0 < \beta/k_0 < \sqrt{\varepsilon_1}$ 时, 方程(7)有解, 此时 TM_1 模为导模. $\beta/k_0 = \sqrt{\varepsilon_1}$ 时, 计算出其临界厚度为 $d_c^{TM_1} =$

$$\frac{2\varepsilon_2}{k_0 \varepsilon_1 \sqrt{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}}.$$

当 $\beta/k_0 > \sqrt{\varepsilon_1}$ 时, 有 $\kappa_1 = i\alpha_1$, 则式(7)转化为

$$\tanh\left(\frac{1}{2}\alpha_1 d\right) = -\frac{\varepsilon_2 \alpha_1}{\varepsilon_1 \alpha_2} \quad (8)$$

此时 TM_1 模式为表面模, 由式(8)可知, 当 $d \rightarrow \infty$ 时, 有效折射率为

$$\frac{\beta}{k_0} = \sqrt{\frac{\varepsilon_1 \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}} \quad (9)$$

因此当 $d_c^{TM_1} < d < \infty$ 时, TM_1 为表面模, 其有效折射率的范围为

$$\sqrt{\varepsilon_1} < \frac{\beta}{k_0} < \sqrt{\frac{\varepsilon_1 \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}} \quad (10)$$

理论分析可知: 在对称结构中, TM_0 和 TM_1 模式均可以为等离子体表面波; TM_0 模表面波的传播常数 β 及 d 的取值范围比 TM_1 模表面波大; 一般情况下, 多组分玻璃波导 TM 导模的传播常数都大于 $k_0 \sqrt{\varepsilon_1 \varepsilon_2 / (\varepsilon_1 + \varepsilon_2)}$, 因此, 对于对称传感结构, 通常选择激发其 TM_0 表面波. 图 1 所示的平面波导耦合方式可以激发对称结构中的表面等离子体波, 采用 TM 模式入射激励, 使平面波导中导模的平行于界面的波矢等于表面等离子体波的波矢 (具有相等的有效折射率), 则大部分入射光的能量将耦合到表面等离子体波中, 经波导后的出射光强明显下降, 形成衰减峰. 采用折射率呈 FERMI 分布的平面波导 TM 导模来激发对称传感结构中的 TM_0 表面模. 因为对称结构中间层的 ε_1 影响波矢匹配的条件, 此结构可用于检测介质的浓度 (折射率), 采用真空镀膜技术将参数相同的金属薄膜分别制备在 FEMRI 波导和基板上, 采用微调机构来调整 d 可以改变对称结构的等效折射率进而适应不同的传感范围. 以 $\lambda = 632.8 \text{ nm}$, 金属薄膜为金膜, 介电常数为 $-13.0731 + 0.9965i$, 分别对介质折射率分别为 1.1, 1.33, 1.36, 1.38 和 1.4 的情况下采用式(3)得出介质厚度 d 和有效折射率 $N (N = \beta/k_0)$ 之间的关系 (如图 2). 从图中可以看出, 介质的折射率越大, 则产生等离子体共振时匹配的 d 值越大, 当介质折射率相同时, 则模折射率 N 值越大, 匹配的 d 值越小. 从图 2 中可以看到当模折射率 N 为 1.5 左右时, 如果选择 $d = 50 \text{ nm}$, 即便介质折射率为 1 也是可以满足波矢匹配条件进而激发 SPW 的, 而这对于平面波导激发的传统结构来讲是

不可能实现的.

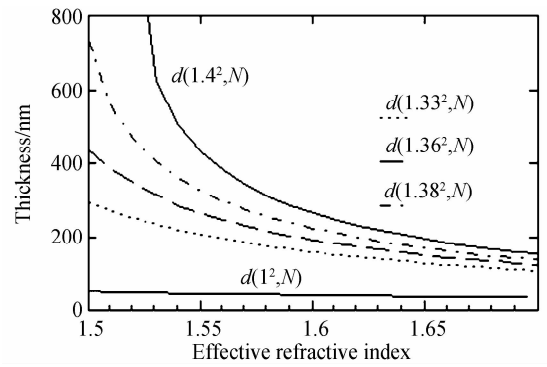


图 2 介质厚度 d 与等效折射率 N 的关系

Fig. 2 Relationship of thickness and equivalent refractive index

可以采用双波长差分检测的方法来提高灵敏度. 其原理如图 3 所示, 用两个波长不同的 LD 交替点亮,

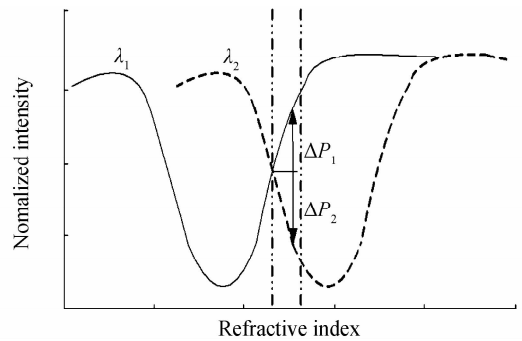


图 3 差分检测原理

Fig. 3 Principal of the differential detection

则衰减峰的位置将会改变, 若选择波长合适, 使得在 λ_1 时, 随着介质折射率的增大光强值升高, 即光强改变量为 ΔP_1 为正; 在 λ_2 时, 随着介质折射率的增大光强值降低, 即光强该变量为 ΔP_2 为负, 分时测量不同波长下的光强变化量, 并作差运算可得

$$\Delta P = \Delta P_1 - \Delta P_2 \quad (11)$$

式(11)中在两个波长的光强变化符号相反, 因此可采用其差值来检测折射率变化, 灵敏度为

$$s_2 = \frac{\Delta P}{\Delta n} \quad (12)$$

而采用单波长测量的灵敏度为

$$s_1 = \frac{\Delta P_1}{\Delta n} \quad (13)$$

可见采用双波长差分检测的方法比单波长检测时的灵敏度提高了将近一倍.

2 实验及分析

2.1 FERMI 平面波导导模等效折射率的测定及折射率分布拟合

实验中平面波导采用离子交换方法制备, 波导的基板采用德国 B270 光学玻璃 (在波长 $\lambda = 632.8 \text{ nm}$ 时, 其基板折射率 $n_s = 1.520167$), 离子交换温度为

350℃,浓度比(摩尔)为0.004AgNO₃-0.996NaNO₃.制备交换时间为35min的波导.采用棱镜耦合系统来测定该波导各模式的同步角,进而计算各个模式的等效折射率.根据棱镜耦合同步角原理,导模的等效折射率为^[15]

$$N = \sin(\theta_p) \sqrt{n_p^2 - \sin^2(\theta)} + \cos(\theta_p) \sin(\theta) \quad (14)$$

其中, n_p 表示棱镜折射率, θ_p 表示棱镜的底角, θ 为测得的同步角.

实验中导模的实际传输效果如图4.所用棱镜底角 $\theta_p = 44.9875^\circ$, 折射率 $n_p = 1.7497$ (ZF6). 根据检测到的同步角值, 计算出其各个 TM 导模的模折射率为: $N_{TM_0} = 1.557647$, $N_{TM_1} = 1.543614$, $N_{TM_2} = 1.530513$.

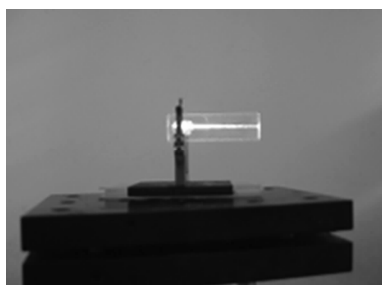


图4 导模传输效果

Fig. 4 Propagation of the guided mode

采用上述实测数据,用费米函数来拟合平面波导的折射率分布,应用循环迭代方法^[16],对数据进行计算,得到该平面波导 FERMI 函数折射率拟合参数值: $\Delta n = 0.0452$, $a = 0.5857$, $d = 2.4482$. 所有模式的传播常数的实测值与拟合值均方差小于0.00019. 图5

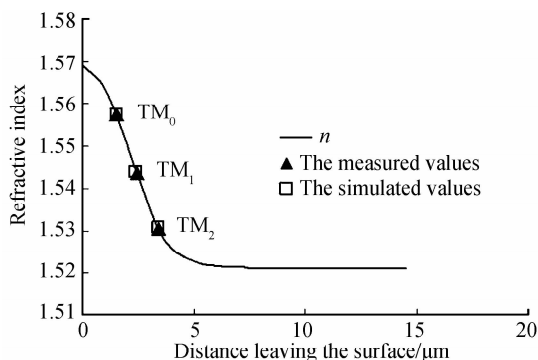


图5 拟合波导的3个TM模式

Fig. 5 Fitting results of the refractive index distribution

表示该平面波导的拟合及实测情况,可以看出,折射率的拟合情况较好.

2.2 折射率检测实验

在介质折射率检测实验中采用离子交换时间为35min的FERMI平面波导,由于该波导3个模式的等效折射率值均大于1.53.若采用平面波导镀金膜的传统结构来激发SPW,根据计算,只有被测样品折射率大于1.4时,才能匹配产生最大衰减.图6为分别采用传统结构和对称结构在 $\lambda = 632.8$ nm 时对0%~70%甘油溶液(折射率范围为1.333~1.428)的测试结果.

采用传统结构时,在离子交换时间为35min的平面光波导上镀50nm的金膜,选择性激励 TM_2 导波光时,在介质折射率为1.4097时产生最大衰减.采用对称结构时,用真空热蒸发的方法制备在波导和同质玻璃基板上的金薄膜参数为:5mm长度,50nm左右的膜厚,采用微调机构将金膜之间间隙调节为300nm时,选择性激励 TM_2 导波光时,激发对称结构中的 TM_0 表面膜,在1.3634产生最大衰减.对称结构使匹配的折射率降低,更利于传感.图7所示为采用上述波导激发 TM_2 导波光,在介质厚度分别为250nm、300nm、400nm和500nm时被测介质折射率与归一化光强之间的关系,分别在1.3452、1.3634、1.3857和1.3979产生最大衰减.可见对于对称传感结构两金属薄膜间的介质厚度变化将改变匹配条件,因此可

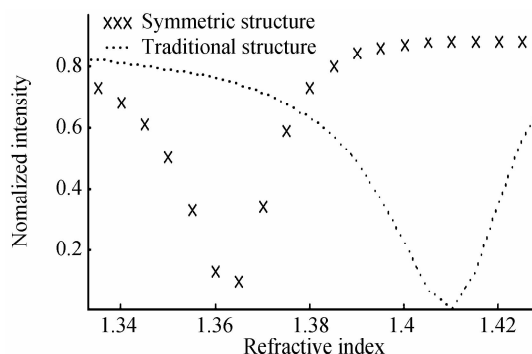


图6 对称结构与传统结构对比

Fig. 6 Comparison with symmetric and traditional structure

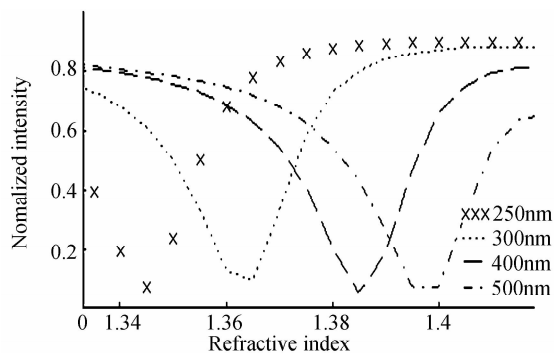


图7 介质厚度不同时光强随折射率变化

Fig. 7 Light intensity change with the refractive index change at different medium thickness

根据被测介质的折射率范围选择合适的介质厚度以便进行较灵活的可调谐传感.若固定介质厚度,在共振条件附近可实现强度传感.

分别采用635nm、650nm、660nm、670nm、685nm和690nm的LD作为光源,采用对称结构,介质厚度为300nm时,进行单波长检测,被测介质的折射率与归一化光强之间的关系如图8.为了更好地显示光强随折射率的变化趋势,取折射率在1.37~1.38范围内进行研究,如图9.可以看出在一定范围内,采用波长为635nm、650nm、660nm、670nm进行测试时

(一组),随着折射率的增大,归一化光强呈增长趋势,在同一范围内采用波长 685 nm 和 690 nm 进行测试时(二组),随着折射率的增大,归一化光强呈下降趋势,因此可从一组和二组中分别选择一个波长组成双波长差分检测系统,以两者光强变化的差值来检测折射率的变化来提高检测的灵敏度。

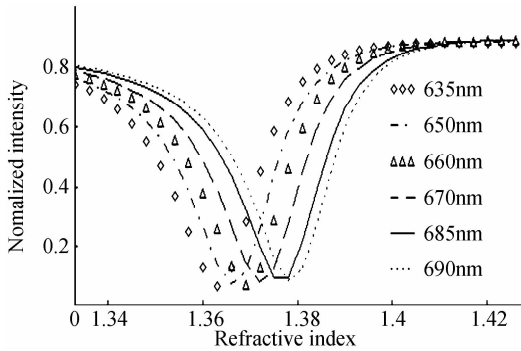


图 8 不同波长检测时折射率变化与归一化光强的关系
Fig. 8 Relationship between changes of normalized intensity and refractive index at different wavelength

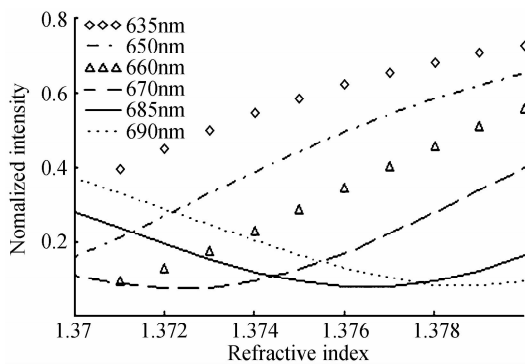


图 9 不同波长检测时折射率变化与归一化光强的关系 (折射率范围:1.37~1.38)
Fig. 9 Relationship between changes of normalized intensity and refractive index at different wavelength with the refractive index range of 1.37~1.38

图 10 为采用波长为 635 nm 和 690 nm 的 LD 作为光源,交替点亮进行差分检测以及采用 635 nm 的 LD 作为光源进行单波长检测的结果.其中双波长检测的线性相关度为 0.997 7,单波长相关系数为 0.998 2.从

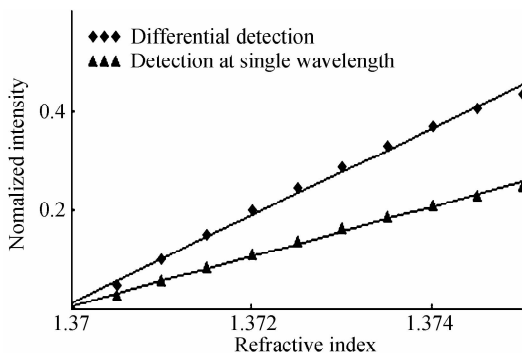


图 10 单波长检测与差分检测对比
Fig. 10 Contrast of two method

结果中可以看出两种检测方法的线性都较好,采用双波长检测的灵敏度比单波长检测的灵敏度提高了近一倍。

3 结论

构建了平面波导激励的金属—介质—金属组成的对称型 SPR 传感结构,可通过改变被测介质的厚度来改变共振条件,进而使得被测折射率范围具有一定的可调性,制备了平面波导,对其模折射率进行测试,根据测试结果对其渐变折射率分布采用费米函数进行拟合,拟合效果较好.采用该结构对折射率为 1.33~1.428 之间的甘油溶液进行了测试,对介质厚度对匹配条件的影响进行了探讨,可实现折射率的可调谐传感.将双波长差分检测的方法应用与对称型 SPR 传感结构中,提高了检测的灵敏度。

参考文献

- [1] CAO Zhen-xin. Measurement of gold film refractive index at visible light bandwidth based on SPR effect[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2008, **37**(8):1563-1565.
曹振新. 利用 SPR 效应测定可见光波段金膜折射率[J]. *光子学报*, 2008, **37**(8):1563-1565.
- [2] LV Qiang, HUANG De-xiu, YUAN Xiu-hua. Stability research of water quality analysis system based on surface Plasmon resonance[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2007, **36**(7):1268-1272.
吕强,黄德修,元秀华. 基于表面等离子体共振的水质分析系统稳定性研究[J]. *光子学报*, 2007, **36**(7):1268-1272.
- [3] COOPER M A. Optical biosensors in drug discovery [J]. *Nature Reviews Drug Discovery*, 2002, **1**(7):515-528.
- [4] WU Ying-cai, YUAN Yi-fang, XU Yan-ping. Development of surface Plasmon resonance sensors[J]. *Journal of Transducer Technology*, 2004, **23**(5):1-5.
吴英才,袁一方,徐艳平. 表面等离子共振传感器的研究进展[J]. *传感器技术*, 2004, **23**(5):1-5.
- [5] CAO Zhen-xin, WU Le-nan, LIANG Da-kai. Gold and silver film optical fiber SPR sensors [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2004, **33**(10):1169-1171.
曹振新,吴乐南,梁大开. 金膜和银膜光纤 SPR 传感器[J]. *光子学报*, 2004, **33**(10):1169-1171.
- [6] SHERIDAN A K, HARRIS R D, BARTLETT P N, et al. Phase interrogation of an integrated optical SPR sensor[J]. *Sensors and Actuators B*, 2004, **97**(1):114-121.
- [7] LEVY R, PELED A, RUSCHIN S. Waveguided SPR sensor using a Mach-Zehnder interferometer with variable power splitting ratio[J]. *Sensors and Actuators B*, 2006, **119**(1):20-26.
- [8] TOBISKA P, HUGON O, TROUILLET A, et al. An integrated optic hydrogen sensor based on SPR on palladium [J]. *Sensors and Actuators B*, 2001, **74**(1):168-172.
- [9] XIA Li, Zhang Ya-ting, ZHOU Chi, et al. Numerical analysis of plasmon polariton refractive index fiber sensors with hollow core and a long period grating [J]. *Optics Communications*, 2011, **284**(12):2835-2838.
- [10] SUN Yun, CHEN Bao-xue, LIU Jin, et al. The excitation of surface plasmon resonance using TM modes in a symmetric waveguide structure [J]. *Optical Instruments*, 2009, **31**(2):72-74.

- 孙云,陈抱雪,刘瑾,等. TM导膜激励的表面等离子体共振结构的研究[J]. 光学仪器, 2009, 31(2):72-74.
- [11] HONG S H, KONG C K, KIM B S, *et al.* Implementation of surface plasmon resonance planar waveguide sensor system [J]. *Microelectronic Engineering*, 2010, 87(5): 1315-1318.
- [12] DOSTALEK J, CTYROKY J, HOMOLA J, *et al.* Surface plasmon resonance biosensor based on integrated optical waveguide[J]. *Sensors and Actuators B*, 2001, 76(1):8-12.
- [13] SUZUKI A, KONDOH J, MATSUI Y, *et al.* Development of novel optical waveguide surface plasmon resonance (SPR) sensor with dual light emitting diodes [J]. *Sensors and Actuators B*, 2005, 106(1): 383-387.
- [14] 曹庄琪. 导波光学[M]. 北京: 科学出版社, 2007.
- [15] ZOU Lin-er, YAO Song-chao, WANG Guo-ri, *et al.* Characteristics of optical waveguide in Nd-doped phosphate glass with protection of BK7 glass thin film [J]. *Optical Technique*, 2012, 38(6):708-711.
邹林儿,姚松超,王国日,等. BK7 玻璃保护层掺钕磷酸盐玻璃波导特性[J]. 光学技术, 2012, 38(6):708-711.
- [16] LIANG Dong-bo, TANG Jie, JL S, *et al.* Recovery of refractive index profiles of proton-exchanged waveguides using statistical optimum iteration method [J]. *Acta Optica Sinica*, 2002, 22(6):670-673.
梁东波,唐杰,矾守,等. 统计优化迭代法测量质子交换波导折射率分布[J]. 光学学报, 2002, 22(6):670-673.