

doi: 10.3788/gzxb20154410.1024001

# 基于双电介质层的棱镜表面等离子共振传感的研究

王志斌, 韩欢欢

(燕山大学 电气工程学院, 河北 秦皇岛 066004)

**摘要:** 为了提高表面等离子共振系统的分辨率, 提出了一种五层结构的表面等离子共振效应的激励模型: 棱镜基底-银膜-电介质层 1-电介质层 2-待测介质. 采用薄膜光学和波导理论, 讨论了银和双电介质层复合而成的共振薄膜对表面等离子共振效应的激励机理与调制特性的作用. 借助有限元分析方法, 数值模拟得到双电介质表面等离子共振激励模型的共振光谱. 分析结果表明, 当待测介质折射率相同时, 双电介质表面等离子共振激励模型共振光谱的半峰宽约为传统棱镜表面等离子体共振的 0.1 倍, 理论计算得到双电介质表面等离子共振激励模型的系统分辨率相较于传统棱镜表面提高了 5.4 倍. 以乙二醇溶液为待测样本, 分析得到传感器的灵敏度约为  $7.2^\circ/\text{RIU}$ , 品质因数约为 465, 证明了该结构设计的可行性, 为设计高分辨率和高品质因数的传感系统提供了理论参考.

**关键词:** 表面等离子共振; 光学传感; 有限元法; 共振光谱; 分辨率; 多层膜结构

中图分类号: O433.4

文献标识码: A

文章编号: 1004-4213(2015)10-1024001-5

## Study of Prism Surface Plasmons Resonance Sensor Based on Double Dielectric Layers

WANG Zhi-bin, HAN Huan-huan

(College of Electrical Engineering, Yanshan University, Qinhuangdao, Hebei 066004, China)

**Abstract:** To improve the system resolution of the surface plasmons resonance, a surface plasmons resonance incentive model based on the five-layer structure was proposed which is prism base-silver-dielectric layer1-dielectric layer2-environment media. Silver film and double dielectric layers composed the composite resonance film. According to the thin film optics and waveguide theory, the effect of the double dielectric layer on the incentive mechanism and modulation characteristics of the surface plasmons resonance was discussed. Numerical simulation was conducted on the resonance spectroscopy of the double dielectric layers structure by finite element analysis method. The simulation result shows that, the full width half maximum of the double dielectric structure is about 0.1 times narrower than traditional prism surface plasmons resonance when the refractive index of analyte is same. The resolution of the double dielectric layers structure is 5.4 times higher than the traditional prism surface plasmons resonance. The ethylene glycol was adopted as the sample detected, the quality factor and sensitivity of the refractive index sensor were analyzed. The quality factor can attain 465 and the sensitivity can attain  $7.2^\circ/\text{RIU}$ , which demonstrates the feasibility of the sensing structure. This structure provides a theoretical reference for the design of high resolution and high quality factor sensing system.

**Key words:** Surface plasmons resonance; Optical sensor; Finite element method; Resonance spectra; Resolution; Multi-layer film structures

**OCIS Codes:** 240.6680; 240.0310; 240.6380; 310.4165

基金项目: 国家自然科学基金(No. 61107039)资助

第一作者(导师): 王志斌(1977-), 男, 副教授, 博士, 主要研究方向为大功率 LED 及其应用技术, 智能仪器仪表设计. Email: wzb\_ysu@ysu.edu.cn

通讯作者: 韩欢欢(1991-), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为表面等离子共振传感. Email: h3kk119@163.com.

收稿日期: 2015-05-28; 录用日期: 2015-08-24

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

## 0 引言

表面等离子体共振 (Surface Plasmons Resonance, SPR) 技术是近代发展起来的一种新型传感技术, 由于它具有高灵敏度、实时响应和免标记等优点, 受到不同领域研究者的关注, 在食品安全、医疗诊断、环境监测、纳米光子器件和药品研制等方面得到广泛的应用<sup>[1-5]</sup>. 随着环保监测、生物医药的研究发展, 提高 SPR 检测系统的分辨率和调制效果已经成为研究热点<sup>[6-7]</sup>.

Nenninger 小组<sup>[8]</sup>以氟化镁和 Teflon AF 作为介质缓冲层设计了高分辨率的传感器, 利用优化的传感器对乙醇进行了检测. R. Slavík 等<sup>[9]</sup>基于长程表面等离子体, 采用单模光纤耦合超辐射发光二极管作为光源, 设计了避免反向反射的准直器, 得到了折射率灵敏度为  $5.7 \times 10^4 \text{ nm/RIU}$  (Refractive Index Unit) 的传感器. 张怡龙等<sup>[10]</sup>对对称波导型 SPR 进行光谱解调研究, 以  $\text{MgF}_2\text{-Au-MgF}_2$  结构的波导 SPR 为传感单元, 以光纤输出的卤素灯为光源, 搭建的检测系统对葡萄糖溶液的分辨率为  $2.8 \times 10^{-7} \text{ RIU}$ . 然而, 目前 SPR 传感芯片的测量稳定性、分辨率、重复性以及便携性均有待提高. 本文设计了一种双电介质层的角度调制型棱镜 SPR 激励模型, 采用薄膜光学与波导理论, 借助有限元的方法分析了双电介质层纳米薄膜对 SPR 效应激励机理和调制特性的作用, 并以乙二醇为待测样本, 进行数值模拟, 得到传感的灵敏度和品质因数.

## 1 理论分析

图 1 分别给出了基于棱镜-银膜-待测介质三层结构的 Kretschmann SPR 激励模型 (三层结构 SPR 激励模型)、棱镜-银膜-电介质层 1-待测介质四层结构 SPR 激励模型 (四层结构 SPR 激励模型) 与棱镜-银膜-电介质层 1-电介质层 2-待测介质五层结构 SPR 激励模型 (五层结构 SPR 激励模型) 示意图. 图 1(a) 中, 一束 P 偏振光以入射角  $\theta_1$  入射, 在棱镜-银膜界面发生衰减全反射, 形成倏逝波 (Evanescent Wave, EW), 其波矢沿 Z 方向上的分量为

$$k_{ew} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_1} \sin \theta_1 \quad (1)$$

同时, 在银膜和介质的界面激发金属表面的自由电子, 产生震荡电荷, 从而形成表面等离子体波 (Surface Plasmon Wave, SPW), 其波矢沿 Z 方向上的分量为

$$k_{spw} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_2 \epsilon_3}{\epsilon_2 + \epsilon_3}} \quad (2)$$

式(1)、(2)中,  $\omega$  为入射光的角频率,  $c$  为真空中的光速,  $\epsilon_1$  为棱镜的介电常数,  $\epsilon_2$  为金属银的介电常数,  $\epsilon_3$  为待测介质的介电常数. 当  $k_{ew}$  和  $k_{spw}$  相等, 金属表面的 SPW 与 EW 发生耦合, 从而产生 SPW<sup>[11]</sup>.

如图 1(b), 在银膜和待测介质之间加了电介质层, 当电介质层厚度  $d$  大于  $\lambda/2n$  时, 满足共振条件, 构成波导 SPR, 电介质层既是防止银膜被氧化的保护层, 又是能够传播光波的波导层<sup>[12]</sup>. 图 1(c) 为本文提出的双电介质层 SPR 激励模型, 增加的两层不同电介质对 SPR 激励光谱有调制作用.

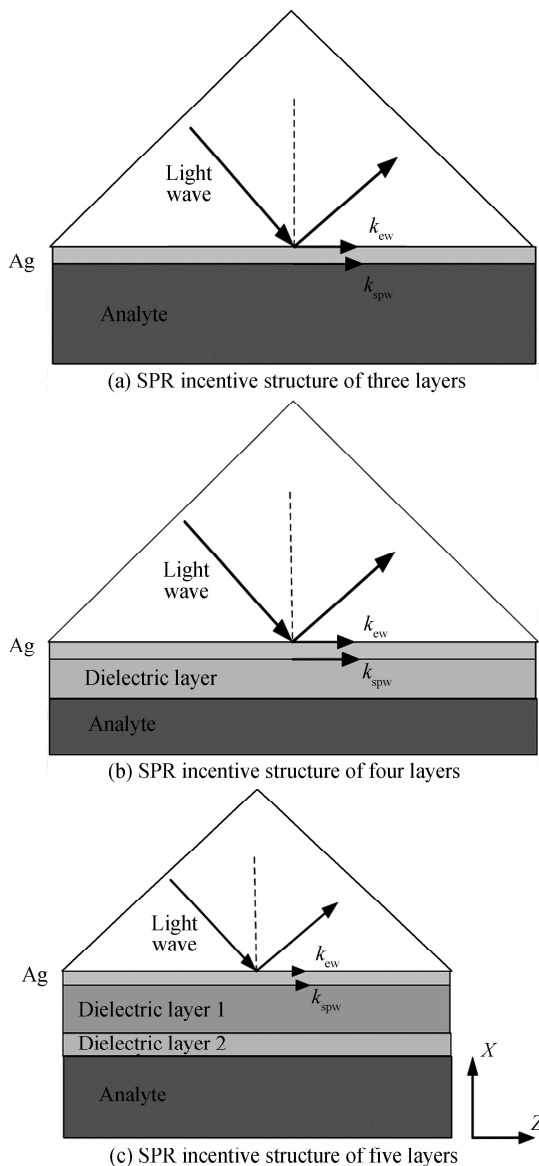


图 1 三种 SPR 激励模型

Fig. 1 Three incentive models of SPR

依据多层膜反射理论建立计算模型<sup>[13]</sup>, 利用菲涅尔公式得到 SPR 结构中反射率  $R$ , 即

$$R = \left| \frac{r_{01} + r_{1n} \exp(2ik_{1z}d_1)}{1 + r_{01}r_{1n} \exp(2ik_{1z}d_1)} \right|^2 \quad (3)$$

$$r_{1n} = \frac{r_{12} + r_{2n} \exp(2ik_{2z}d_2)}{1 + r_{12}r_{2n} \exp(2ik_{2z}d_2)} \quad (4)$$

$$r_{n-1,n} = \frac{X_{n-1}^p - X_n^p}{X_{n-1}^p + X_n^p} \quad (5)$$

$$X_j^p = \frac{\epsilon^{(j)}}{k_{jz}}, j = 1, 2, \dots, n \quad (6)$$

式中,  $d_j$  为第  $j$  层介质厚度,  $k_x$  为波矢  $k$  在  $X$  方向分量,  $k_{zj} = \sqrt{\epsilon^{(j)}(\omega/c)^2 - k_x^2}$ . 式(3)~(6)给出了反射率的递推关系,可一直递推至总的介质层数,最终求得反射率  $R$ .

## 2 数值模拟

采用有限元的方法,模拟了三种模型的 SPR 激励效应. 入射光为波长为 632.8 nm 的 TM 偏振光,金属膜选用银膜,厚度为 50 nm,相对介电常数选取为  $-16 + 0.5i$ <sup>[14]</sup>; 四层结构 SPR 激励模型中,电介质层厚度为 450 nm,折射率为 1.5; 五层结构 SPR 激励模型中,电介质层 1 厚度为 330 nm,折射率为 2.0,电介质层 2 厚度为 170 nm,相对介电常数为 1.5. 为了验证数值模拟的可靠性,对五层结构的多层膜反射理论计算的光谱曲线和数值模拟的光谱曲线进行了对比,如图 2. 可以看出,理论计算结果与数值模拟结果具有良好的—致性.

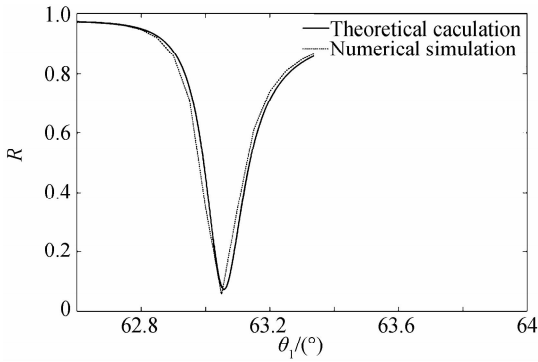


图 2 理论计算光谱与数值模拟光谱

Fig. 2 The SPR spectrum of theoretical calculation and numerical simulation

### 2.1 三种 SPR 激励模型能量密度分析

通过仿真模拟得到三种 SPR 结构沿  $X$  轴方向的坡印亭矢量  $S$  分布曲线,如图 3. 坡印亭矢量  $S$ <sup>[15]</sup> 描述单位面积电磁场的能量通量,为通过垂直于能流方向的单位面积的功率,表达式为  $S = E \times H$ ,其中,  $E$  是电场,  $H$  是磁场强度.

三层 SPR 激励模型中,表面等离子共振发生在银和待测介质界面上,并在介质中以指数形式衰减; 四层和五层 SPR 激励模型中,倏逝波在波导层中传播,等离子共振耦合发生在波导层中,坡印亭矢量在待测介质界面处达到最大,然后在  $X$  方向以指数形式衰减. 由于两层电介质传播光波的作用,五层激励的共振耦合能量的峰值最大,SPW 能量衰减最慢,穿透深度明显大于传统 SPR 结构和四层 SPR 结构,能够达到微米量级. 穿透深度的增加能够拓展 SPR 传感的适用范围,改善 SPR 传感器的检测性能,更加有效地检测生物分子折射率的改变.

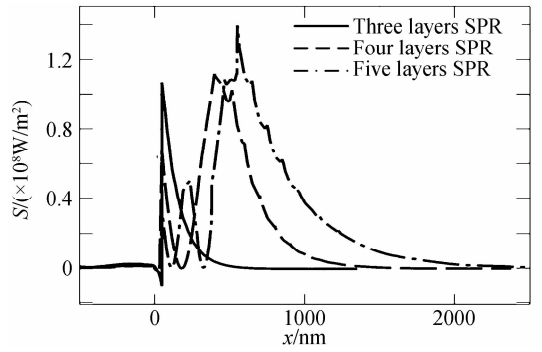
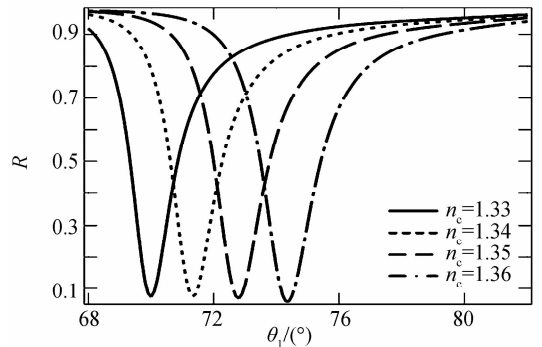


图 3 沿  $X$  轴方向的坡印亭矢量  $S$  分布曲线

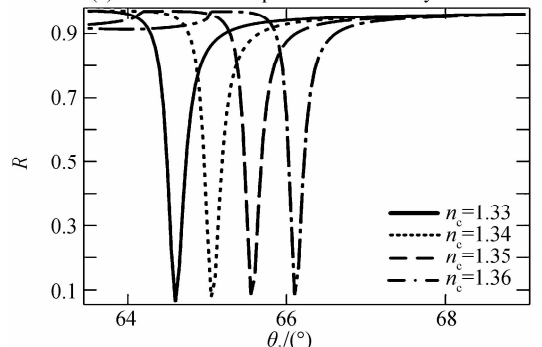
Fig. 3 The distribution curve of poynting vector  $S$  along the  $X$  axis

### 2.2 三种 SPR 激励模型共振光谱特性研究

当三种 SPR 结构激发 SPR 时,共振曲线的共振角随着待测介质折射率的变化而发生偏移,当待测介质折射率变化量相同时,不同激励模型共振角的偏移量不同,从而需要对不同模型的共振特性进行分析. 仿真模拟三种 SPR 激励模型的共振光谱如图 4. 对于相同折射率的待测介质,随着折射率的增加,三种结构的共振角均向大角度方向移动. 对于三种 SPR 激励模型,四层结构 SPR 曲线的半峰宽明显小于三层结构 SPR 曲线的半峰宽(约为  $1.5^\circ$ ),而五层结构 SPR 曲线的半峰宽约为  $0.15^\circ$ ,小于四层结构 SPR 曲线的半峰宽(约为  $0.25^\circ$ ). 五层结构的半峰宽比三层结构的提高了约 10 倍,这主要是由于电介质层对倏逝波的增强,提高了共振耦合效率,得到了更容易识别的共振角. 共振光谱的半峰宽越窄,检测系统的分辨率越高<sup>[16]</sup>,所以五层结构有助于提高 SPR 的共振特性和检测性能.



(a) SPR resonance spectrum of three layers model



(b) SPR resonance spectrum of four layers model

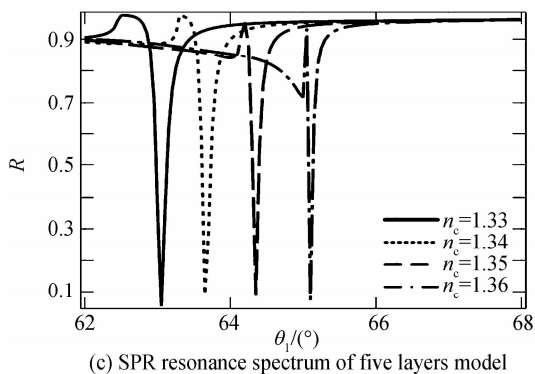


图 4 不同 SPR 激励模型的共振光谱

Fig. 4 SPR resonance spectrum of different incentive model

角度调制型 SPR 激励模型的灵敏度<sup>[17]</sup>为共振角的变化量与待测介质折射率的变化量的比值,即  $S_\theta = d\theta/dn_c$ ,其中  $\theta$  为共振角,  $n_c$  为待测介质折射率. 根据仿真得到共振光谱,将三种模型 SPR 曲线的共振角与相应的待测介质折射率进行线性拟合,得到拟合曲线如图 5.

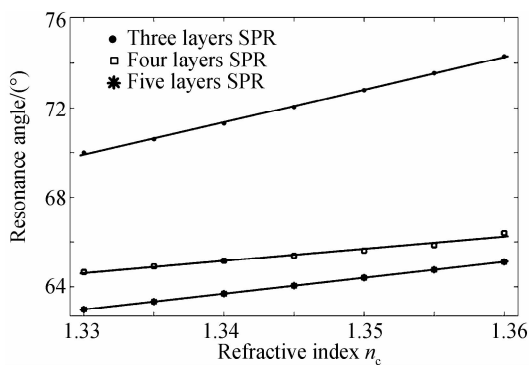


图 5 共振角与待测介质折射率的线性度

Fig. 5 The linearity of resonance Angle and refractive index of solution

经计算得到四层 SPR 和五层 SPR 结构的角灵敏度分别为  $50^\circ/\text{RIU}$  和  $70^\circ/\text{RIU}$ ,三层 SPR 结构的角灵敏度为  $130^\circ/\text{RIU}$ . 显然,四层 SPR 和五层 SPR 结构的灵敏度明显低于三层 SPR 结构,基于波导的棱镜 SPR 并不能提高灵敏度,而五层 SPR 结构的灵敏度相较于四层 SPR 结构有所提高.

假设检测系统的硬件和共振角的算法确定,则系统的输出噪声为<sup>[16]</sup>

$$\sigma_{\text{out}} \propto \sigma \frac{\Delta\theta}{d_R} \quad (7)$$

式中,  $\sigma$  为检测系统噪声,系统硬件和共振角的算法确定时为定值;  $d_R$  为共振峰的深度,同一系统中基本相同;  $\Delta\theta$  为半峰宽. 由式(7)可知,系统输出噪声和半峰宽成正比,五层 SPR 结构能够有效降低系统噪声.

分辨率是指检测系统所能分辨的待测介质最小折射率的变化,角度调制型 SPR 系统的分辨率可表示为<sup>[16]</sup>

$$\sigma_{\text{RI}} = \frac{\sigma_{\text{out}}}{S_\theta} \quad (8)$$

式中,  $S_\theta$  为灵敏度. 将式(7)代入式(8)中,分辨率与半峰宽及灵敏度的关系表示为

$$\sigma_{\text{RI}} \propto \frac{\Delta\theta}{S_\theta d_R} \quad (9)$$

式(9)表明,SPR 系统的分辨率既随着灵敏度的增大而提高,又随着共振曲线半峰宽的变窄而提高. 根据共振光谱,计算得到同一检测系统不同 SPR 激励模型的分辨率,如表 1. 五层 SPR 模型的分辨率比三层 SPR 模型提高了约 5.4 倍,比四层 SPR 模型提高了约 2.3 倍,所以减小半峰宽是提高角度法 SPR 检测分辨率的有效途径.

表 1 同一检测系统中不同结构的分辨率

Table 1 Resolution of different structures with the same detection system

Model	$S_\theta / (^\circ) \cdot \text{RIU}^{-1}$	$\Delta\theta / (^\circ)$	$\sigma_{\text{RI}}$ (Normalized)
Three layers	130	1.5	1
Four layers	50	0.25	0.433
Five layers	70	0.15	0.186

### 3 乙二醇溶液浓度变化的传感特性

实验检测系统选择 BK7 玻璃作为棱镜基底材料,传感芯片中电介质层 1 选择 ZnO 薄膜<sup>[18]</sup>,电介质层 2 选择  $\text{SiO}_2$  薄膜<sup>[19]</sup>. 通过磁控溅射的方法先在棱镜基底上镀一层 50 nm 的银膜,再用蒸发镀膜的方法依次镀上 370 nm 的 ZnO 层和 170 nm 的  $\text{SiO}_2$  层. 该传感系统主要包括光源 (He-Ne 激光器, 632.8 nm), 角度扫描系统, 传感芯片, 光电探测系统及计算机软件分析系统, 如图 6.

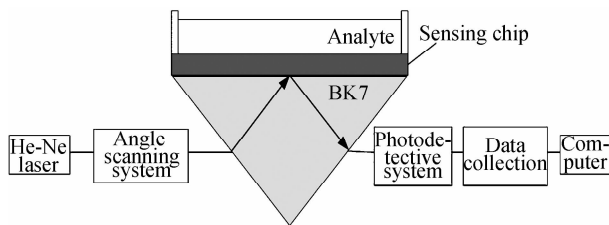


图 6 传感系统结构框图

Fig. 6 Schematic of the sensing system

根据等效折射率“Lichteneccher”方法,不同质量分数的乙二醇溶液折射率满足

$$\ln n = g \times \ln n_g + (1 - g) \times \ln n_w \quad (10)$$

式中  $g$  为乙二醇的质量分数,  $n_g$ 、 $n_w$  分别为乙二醇和纯水的折射率,  $n_g = 1.4318$ ,  $n_w = 1.3330$ . 经计算得到

$$\ln n = 0.0715 \times g + 0.287432 \quad (11)$$

由式(11)得到不同质量分数的乙二醇溶液的折射率,溶液的折射率随着乙二醇质量分数的增大而增大,对

应的共振角会随之变大。

将得到的不同乙二醇溶液的共振角与质量分数的数据进行线性拟合,得到拟合曲线如图 7。由此得出溶液质量分数和共振角之间的关系式为  $g = 0.1425 \cdot \theta_r - 9.256$ , 相关系数  $R^2 = 0.9962$ , 乙二醇含量与共振角有很好的线性关系。传感器测量乙二醇的灵敏度为  $S = \Delta\theta/\Delta g = 0.072^\circ/1\%$ 。当乙二醇含量为 70% 时,其共振角  $\theta_r$  为  $69.75^\circ$ , 半峰宽  $\theta_H$  为  $0.15^\circ$ , 从而得到传感器的品质因数为  $Q = \theta_r/\theta_H = 465$ , 因而该传感结构的分辨率高, 可以实现高分辨率测量。

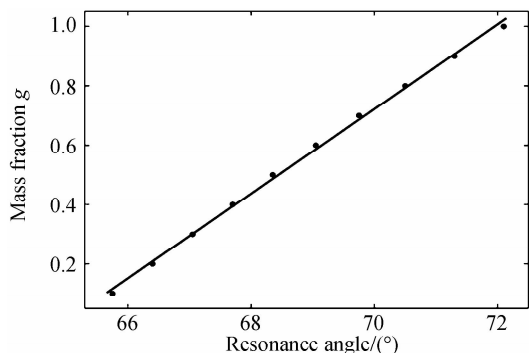


图 7 溶液质量分数与共振角的线性拟合曲线

Fig. 7 The linear fitting curve of mass fraction and resonance angle

## 4 结论

本文研究了一种基于波导的双电介质棱镜 SPR 激励模型, 通过在银膜和待测介质之间增加两层不同的电介质, 构建了一种角度调制型的五层结构 SPR 激励模型, 实现了对 SPR 共振光谱和分辨率的有效调节。仿真结果表明, 当待测介质折射率相同时, 其共振曲线半峰宽约为传统 SPR 结构的 0.1 倍, 分辨率提高约 5.4 倍, SPR 穿透深度显著提高, 能够为进一步设计新型光学器件和大分子检测提供理论基础。以乙二醇溶液为待测样本, 通过数值模拟, 得到共振角与乙二醇含量的线性拟合曲线, 相关系数  $R^2$  为 0.9964。该传感器结构简单, 具有高品质因数和高分辨率, 线性度良好, 在大分子检测和生物传感等领域具有指导意义。

### 参考文献

[1] BAUCH M, TOMA K, TOMA M, *et al.* Plasmon-enhanced fluorescence biosensors: a review[J]. *Plasmonics*, 2014, **9**(4): 781-799.

[2] ESPINOSA-SÁNCHEZ Y M, LUNA-MORENO D, MONZÓN-HERNÁNDEZ D. Detection of aromatic compounds in tequila through the use of surface plasmon resonance[J]. *Applied Optics*, 2015, **54**(14): 4439-4446.

[3] VALA M, ETHERIDGE S, ROACH J A, *et al.* Long-range surface plasmons for sensitive detection of bacterial analytes[J]. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 2009, **139**(1): 59-63.

[4] LI Ying, ZHONG Jin-gang, ZHANG Yong-lin, *et al.* Construction basis of biotic gene chip checking system with

surface plasmons resonance imaging [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2007, **36**(12): 2290-2293.

李莹, 钟金钢, 张永林, 等. 表面等离子体共振成像生物芯片检测系统[J]. *光子学报*, 2007, **36**(12): 2290-2293.

[5] JIANG Ya-lan, WANG Ji-cheng, WANG Yue-ke, *et al.* A MIM surfaceplasmon t-splitter based on a stub structure[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2014, **43**(9): 0923002.

蒋亚兰, 王继成, 王跃科, 等. 一种带有支节的 MIM 型表面等离子体 T 型分束器[J]. *光子学报*, 2014, **43**(9): 0923002.

[6] GAZZAZ K, BERINI P. Theoretical biosensing performance of surface plasmon polariton Bragg gratings [J]. *Applied Optics*, 2015, **54**(7): 1673-1680.

[7] LIU J, TIEFENAUER L, TIAN S, *et al.* PNA-DNA hybridization study using labeled streptavidin by voltammetry and surface plasmon fluorescence spectroscopy[J]. *Analytical Chemistry*, 2006, **78**(2): 470-476.

[8] NENNINGER G G, TOBIŠKA P, HOMOLA J, *et al.* Long-range surface plasmons for high-resolution surface plasmon resonance sensors[J]. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 2001, **74**(1): 145-151.

[9] SLAVIK R, HOMOLA J. Ultrahigh resolution long range surface plasmon-based sensor[J]. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 2007, **123**(1): 10-12.

[10] ZHANG Yi-long, LIU Le, GUO Jun, *et al.* Research on symmetrical optical waveguide based surface plasmons resonance sensing with spectral interrogation [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2015, **35**(02): 289-292.

张怡龙, 刘乐, 郭峻, 等. 基于光谱解调的对称波导型表面等离子体共振传感研究[J]. *光谱学与光谱分析*, 2015, **35**(02): 289-292.

[11] KURIHARA K, SUZUKI K. Theoretical understanding of an absorption-based surface plasmon resonance sensor based on Kretschmann's theory[J]. *Analytical Chemistry*, 2002, **74**(3): 696-701.

[12] BAO Ming, LI Ge, JIANG Dong-mei, *et al.* ZnO sensing film thickness effects on the sensitivity of surface plasmon resonance sensors with angular interrogation[J]. *Materials Science and Engineering: B*, 2010, **171**(1): 155-158.

[13] ZHANG Peng-fei, LIU Le, HE Yong-hong, *et al.* One-dimensional angular surface plasmon resonance imaging based array thermometer[J]. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 2015, **207**: 254-261.

[14] KOU F Y, TAMIR T. Range extension of surface plasmons by dielectric layers[J]. *Optics Letters*, 1987, **12**(5): 367-369.

[15] ZHANG Hong-Qi, WANG Dong-Guang, DENG Yuan-Yong, *et al.* Solar magnetism and the activity telescope at HSOS[J]. *Chinese Journal of Astronomy and Astrophysics*, 2007, **7**(2): 281-288.

[16] PILIARIK M, HOMOLA J. Surface plasmon resonance (SPR) sensors: approaching their limits? [J]. *Optics Express*, 2009, **17**(19): 16505-16517.

[17] ZAYATS A V, SMOLYANINOV I I, Maradudin A A. Nano-optics of surface plasmon polaritons [J]. *Physics Reports*, 2005, **408**(3): 131-314.

[18] HEIDEMAN R G, LAMBECK P V, GARDENIERS J G E. High quality ZnO layers with adjustable refractive indices for integrated optics applications[J]. *Optical Materials*, 1995, **4**(6): 741-755.

[19] WANG Yan-zhi, ZHANG Wei-li, FAN Zheng-xiu, *et al.* Analysis for Accurately Fitting the Refractive Index of SiO<sub>2</sub> Thin Film[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2008, **35**(5): 760-763.

王胭脂, 张伟丽, 范正修, 等. SiO<sub>2</sub> 薄膜折射率的准确拟合分析[J]. *中国激光*, 2008, **35**(5): 760-763.