

doi: 10.3788/gzxb20154402.0228001

基于锥形探头光纤表面等离子共振传感性能优化

付丽辉^{1,2}, 尹文庆¹, 王马华², 季仁东², 居勇峰²

(1 南京农业大学 工学院 江苏省智能化农业装备重点实验室, 南京 210031)

(2 淮阴工学院电子与电气学院, 江苏 淮安 223003)

摘要:为提高系统的测量范围、灵敏度与线性度,利用拉锥光纤替代均匀光纤,进行表面等离子共振光纤传感器性能优化研究。通过大功率激光熔融拉锥工艺,结合圆环靶磁控溅射制备了锥形光纤等离子共振探头;利用光纤光谱仪,在1.33-1.43RIU折射率变化范围内,以探头的表面等离子共振吸收谱对称性、吸收谱半高全宽的稳定性,以及探头共振吸收波长分辨率为指标,进行探头性能测试与筛选;利用筛选出的探头,基于调频光谱原理构建闭环检测系统;在相同检测对象与检测环境条件下,以阿贝折射率仪测量结果为参照,对均匀探头与锥形探头的检测结果进行比较。结果表明,在1.33-1.43 RIU范围内,相对于均匀光纤探头0.00032 RIU的测量准确度、2 600 nm/RIU的波长分辨率,锥形探头可在较大折射率变化范围内,以较好的线性度,实现0.00003 RIU测量灵敏度和约4 500 nm/RIU的波长分辨率。

关键词:表面等离子共振;锥形探头;波长分辨率;半高全宽

中图分类号: TM452; TN253

文献标识码: A

文章编号: 1004-4213(2015)02-0228001-6

Optimization for Closed-Loop Surface Plasmon Resonance Fiber-Optic Refractive Index Sensors Based on Tapered Probes

FU Li-hui^{1,2}, YIN Wen-qing¹, WANG Ma-hua², JI Ren-dong², JU Yong-feng²

(1 Industry School, Jiangsu Key Lab for Intelligent Agricultural Equipment, Nanjing Agriculture University, Nanjing 210031, China)

(2 Faculty of Electronic and Electrical Engineering Huaiyin Institute of Technology, Huaian, Jiangsu 223003, China)

Abstract: For the sake of optimizing its measure range, sensitvity and linearity, a tapered Surface Plasmon Resonance (SPR) fiber probe was applied as the substitution of the uniform fiber probe because of its abundant lossy modes. Simulation results and experimental data shew that this tapered probe had a SPR asorption spectrum with better symmetry and its resonance wavelength could change responding to a bigger range of measured refractive index with a stable wavelength resolution. After constructing a closed-loop SPR fiber sensors based on the tapered probe according to frequency modulation principle, the deionized water sucrose and ethanol solution, whose refractive index value ranged from 1.33 RI unit (RIU) to 1.43 RIU with different concentration, were elected as measurand. The measured results were analyzed and verfied using an Abel refractive index meter. The experimental results demonstrated that the closed-loop SPR fiber-optic sensors with a tapered SPR probe had the sensitivity of 0.00003 RIU, wavelength resolution of 4500 nm/RIU and with better performance in terms of dynamic range, sensitvity and linearity, than that with a uniform SPR probes.

Key words: Surface plasmon resonance; Tapered probes; Wavelength resolution; FWHM

OCIS Codes: 280.4788; 240.6680; 240.3390

基金项目:国家自然科学基金(No. 60977038)、星火计划项目(No. 2013GA690405)、江苏省普通高校研究生科研创新计划项目(No. CXLX12_0277)、江苏省教育厅自然科学基金项目(Nos. 12KJD510003、13KJD510002)和国家级大学生创新创业训练计划项目(No. 201211049009)资助

第一作者:付丽辉(1975-),女,副教授,博士研究生,主要研究方向为光纤传感技术。Email: flh3650326@163.com

导师(通讯作者):尹文庆(1959-),男,教授,博士,主要研究方向为农机现代设计理论与方法。Email: wqyin@njau.edu.cn

收稿日期:2014-06-11; **录用日期:**2014-09-19

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

0 引言

表面等离子共振 (Surface Plasmon Resonance, SPR) 光纤传感器, 通过 SPR 共振波长对环境折射率变化的敏感响应, 集检测准确度、灵敏度和光纤传感探头微型化、抗电磁干扰能力强特点于一体, 易于实现测量的远程化和网络化^[1-9]. 基于调频光谱原理构成闭环测量系统时, 具有动态范围大, 线性度好、零点漂移低等特点^[8-11], 可摆脱测量中对光谱分析工具依赖, 对检测对象零干扰, 可通过折射率及其变化的在线检测, 实现对多种液相、气相生物化学参量的现场测量, 非常适合生物、化学制药等应用中生化反应过程参量的监测及反应过程控制^[1-5].

理论上, SPR 效应的波长分辨率, 即单位折射率对应 SPR 效应共振波长变化 $\delta\lambda/\delta n$, 是传感系统灵敏度的决定因素; 基于调频光谱原理, SPR 效应吸收谱的对称性与半高全宽 (Full Width At Half Maximum, FWHM) 值, 决定着闭环检测系统可实现的检测灵敏度; 在目标折射率变化范围内波长分辨率与 FWHM 的稳定性, 则决定着检测结果的线性性^[8-11].

在文献[9]中发现, 均匀光纤 SPR 探头在检测 1.33~1.43 折射率单位 (Refractive Index Unit, RIU) 大小范围内变化的折射率时, 实际实现折射率的波长分辨率值, 相对于理论估算结果低 2~3 个数量级; 在 1.332~1.375 8 RIU 范围内准确度尚可, 在 1.375~1.426 4 RIU 范围内, 准确度与线性度均较差, 实际可应用的测量范围仅限于 1.33~1.347 RIU 范围. 在排除系统信号处理过程的结构性问题影响后可知, 造成上述现象的主要原因是均匀光纤探头共振吸收效应的波长分辨率下降、FWHM 展宽及其线性的劣化.

导波光学理论表明, 拉锥光纤具有更为丰富的包层泄漏模, 可在较大波长范围内对纤外环境折射率变化, 有着更为稳定的透射吸收谱, 其波长分辨率和 FWHM 可在较大折射率变化范围内保持稳定的理想值.

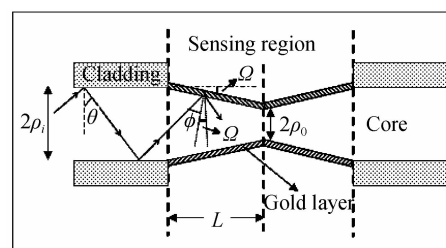
本文以大功率激光熔融拉锥工艺, 结合圆环靶磁控溅射制备锥形光纤 SPR 探头, 利用光纤光谱仪, 在 1.33~1.43 RIU 折射率变化范围内, 以 SPR 吸收谱的对称性、FWHM 稳定性和折射率的波长分辨率为指标, 进行探头测试与筛选, 构建基于调频光谱原理的闭环系统; 在相同检测对象与环境条件下, 以阿贝折射率仪测量结果为参照, 对均匀探头与锥形探头检测结果进行比较, 研究锥形探头对闭环 SPR 光纤折射率性能优化的可行性.

1 实验

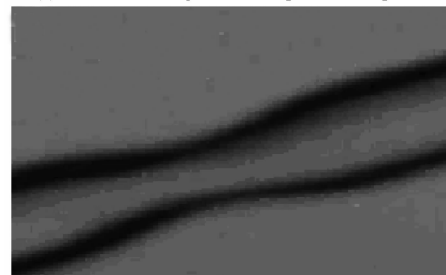
1.1 锥形探头制备与性能分析

选用数值孔径 0.22、纤芯直径 400 μm 、纤芯折射

率 1.468 RIU 的国产阶跃折射率多模光纤, 进行涂敷层处理清洁后, 参照文献[12-15]中做法, 拉制出具有不同锥度比的锥形光纤. 其原理结构如图 1(a). 拉锥时, 基于在线传输光功率损耗监测实现锥度控制; 控制拉锥速度, 保证获得线性轮廓的锥形. 根据实用对探头机械强度要求, 锥腰束直径在 40~80 μm 范围内优化选择, 锥轴长度取 1.5 mm. 拉锥后, 采用圆环形金靶进行真空磁控溅射法镀膜, 保证圆锥表面薄膜厚度的均匀性; 通过溅射速率与时间控制, 薄膜厚度在 30~80 nm 范围内优化选择. 图 1(b) 为镀膜后锥形探头显微图.



(a) Schematic diagram of a tapered SPR probe



(b) Microscopic image of a tapered SPR probe

图 1 锥形 SPR 光纤探头

Fig. 1 Tapered SPR fiber-optic probes

对制备好的探头, 置于折射率变化范围 1.33~1.43 RIU 等离子水蔗糖溶液中, 利用图 2 所示结构的装置, 以 SPR 共振谱的折射率波长分辨率、谱线对称性、FWHM 等指标随待测折射率变化为指示参量, 进行探头性能测试与筛选.

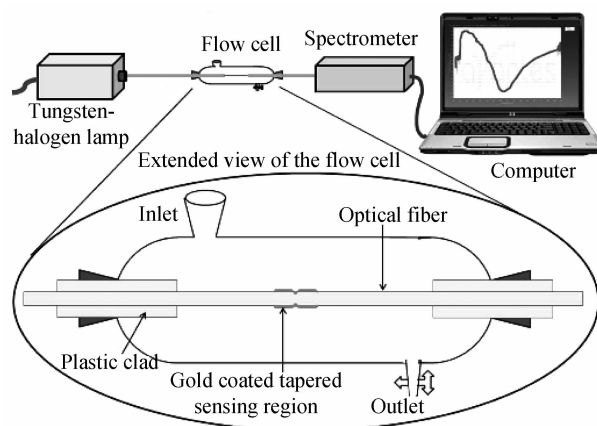


图 2 拉锥探头性能测试与筛选实验结构

Fig. 2 Experimental setup for testing and selecting the tapered probes

同时,对图 1 所示结构锥形探头的 SPR 特性,进行理论分析与数值仿真;建立柱坐标系,设激励光沿 z 轴方向传播.根据 SPR 效应原理,当光纤中各模式传播常量的 z 轴分量与径向表面等离子波传播常量间满足式(1)时,发生 SPR 效应^[12-15].

$$\frac{2\pi}{\lambda} \cdot n_1 \sin \theta = \operatorname{Re} \left[\frac{2\pi}{\lambda} \cdot \left(\frac{\epsilon_m n_s^2}{\epsilon_m + n_s^2} \right)^{1/2} \right] \quad (1)$$

式中, θ 为探头输入端入射光的入射角, λ 为光波长, n_1 为纤芯折射率, ϵ_m 为金膜介电常数, n_s 为待测介质折射率.此时探头可视为吸收峰受环境介质折射率调制的 SPR 共振吸收介质.

根据 N-layer 模型,当且仅当入射光满足 $\theta \in [\theta_1, \theta_2]$ 时方可激励 SPR 效应,产生共振吸收.此时,探头的透射谱为

$$P_{\text{trans}} = \frac{\int_0^L dz \int_{\phi_1(z)}^{\phi_2(z)} R_p^{N_{\text{ref}}(\theta, z)} \frac{n_1^2 \sin \theta \cdot \cos \theta}{(1 - n_1^2 \cos^2 \theta)^2} d\theta}{\int_0^L dz \int_{\phi_1(z)}^{\phi_2(z)} \frac{n_1^2 \sin \theta \cdot \cos \theta}{(1 - n_1^2 \cos^2 \theta)^2} d\theta} \quad (2)$$

式中, $\phi_1(z)$ 、 $\phi_2(z)$ 为以 θ_1 、 θ_2 角度入射光线在探头内的入射角, R_p 为基于 N-Layer 模型确定的光纤/金膜

界面光反向率, $N_{\text{ref}}(\theta, z)$ 为探头内光反射次数,其值为

$$N_{\text{ref}}(\theta, z) = \frac{L}{2\rho(z) \tan(\theta + \Omega)} \quad (3)$$

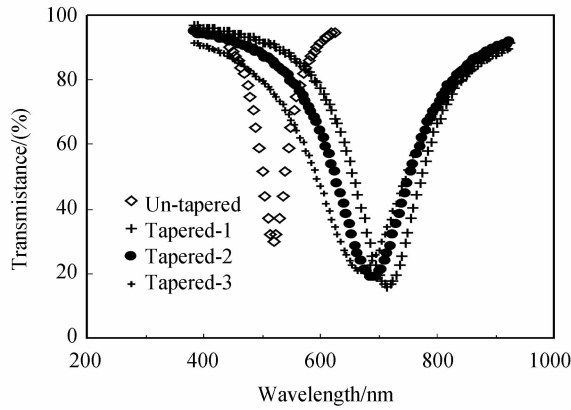
式中, L 为锥的轴线长.设锥底、锥顶半径分别为 ρ_i 、 ρ_0 , 有

$$\phi(z) = \arccos \left[\frac{\rho_i \cos \theta}{\rho(z)} \right] - \arctan \left(\frac{\rho_i - \rho_0}{L} \right) \quad (4)$$

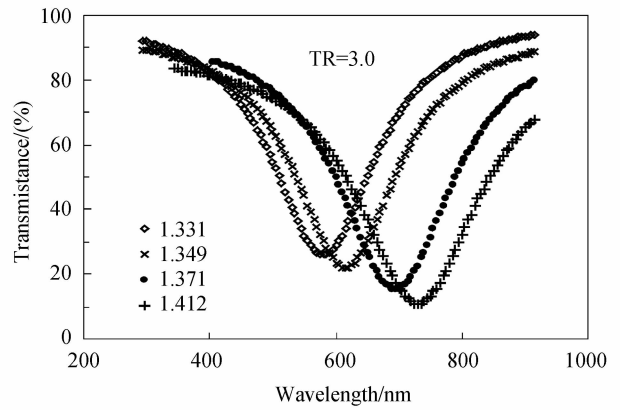
式中, $\rho(z) = \rho_i - z \cdot \left(\frac{\rho_i - \rho_0}{L} \right)$ 为缓变线性轮廓锥体半径随 z 的变化.

定义锥形探头长度与两端直径差之比为锥度比 (Taper Ratio, TR), 金属介电常数选用 Drude 模型, 可得图 3 所示探头 SPR 效应共振吸收谱, 在 1.33~1.40 RIU 范围内随折射率变化的仿真结果.

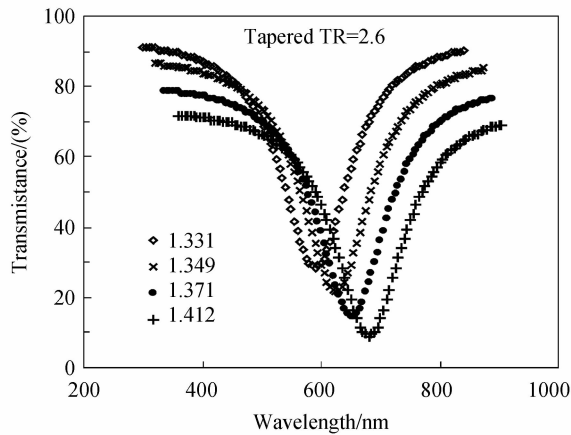
由图 3 可知, 相对于未拉锥情形, 锥形探头 SPR 效应有显著可辨识的谱展宽、共振波长红移及面对环境折射率较大范围的变动, 共振波长跟踪变化具有线性良好的波长分辨率、光谱对称性和 FWHM 值稳定. 因而可有效克服文献[9]中所述未拉锥探头检测范围小、线性度差等问题.



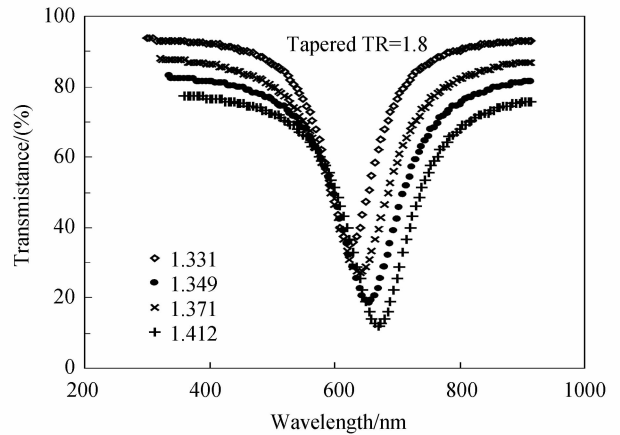
(a) Red-shift and broadening performance of SPR spectrum for tapered probes compared with un-tapered ones



(b) Spectral shift vs RI changing of surrounding medium of the tapered SPR probes with high value of TR



(c) Spectral shift vs RI changing of surrounding medium of the tapered SPR probes with moderate value of TR



(d) Spectral shift vs RI changing of surrounding medium of the tapered SPR probes with small value of TR

图 3 锥度比对锥形 SPR 光纤探头特性的影响

Fig. 3 Influence of the value of TR on the Sensing performance of tapered SPR fiber-optic probes

根据导波光学理论,拉锥后的光纤包层中泄漏模式数增加,各模式传输损耗普遍提高,故有以透过率表示的探头 SPR 谱展宽.拉锥后相对丰富的泄漏模式与强度分布,使得在较大范围的环境折射率变化中,总有一定数量泄漏模光场,在相应波段上有效激励起表面等离子波(Surface Plasmon Wave, SPW)形成共振吸收.探头 SPR 峰红移和共振波长对环境折射率变化的跟踪具有稳定的波长分辨率、光谱对称性和 FWHM 值的稳定.

由图 3(c)~(d),结合式(2)~(4),锥形探头在 TR 增加时,介质/金属界面上激励光入射角趋小,激励光在探头内的内全反射次数增加.入射角的减小,有利于提高 SPR 效应对环境折射率变化响应的灵敏度.同时,小角度增加了探头中全反射的次数,这样高 TR 探头对应着更大的 SPR 共振波长变化范围和稳定的波长分辨率.但是,提高 TR 将使泄漏模数量与能量辐射损失增加,且辐射能量在泄漏模中的模式与波长分布情形益趋复杂.泄漏增加将使 SPR 谱展宽更为严重,而泄漏能量在不同模式与不同波长上非线性分布,决定着 SPR 效应波长分辨率、谱展宽的非线性.

根据调频光谱原理,SPR 谱的 FWHM 展宽会导致灵敏度下降,波长分辨率的提高可以提高测量准确度.理论上这两种影响可以互补,从而实现对较大范围折射率变化的测量,并兼具较好的线性度和测量灵敏度.此外,仿真数据表明,综合考虑测量准确度、灵敏度、线性度及其稳定性,TR 值在 2.2~2.8 范围内选择时,探头性能更佳.

1.2 比较测量

筛选出工艺情形良好、TR 值在 2.5 左右的锥形光纤探头,依据调频光谱原理,构建类似文献[9]所述闭环 SPR 光纤折射率检测系统,用等离子水配制不同浓度、折射率大约在 1.33~1.43 RIU 范围蔗糖和酒精溶液作测量对象,进行锥形光纤探头和均匀光纤探头闭环检测系统性能对比分析.实验中,首先用纯净等离子水进行系统标定;然后分别对蔗糖和乙醇溶液进行折射率测量.利用阿贝折射率仪(2WAI 型,上海光学仪器一厂)对上述液体进行相应折射率测量,通过测量结果对不同结构探头的折射率测量性能进行比较分析.

实验中,由工作波长 360~2 000 nm HL-2000 型宽带光源(美国 Ocean Optics 公司),配合 Semrock Versa Chrome 系列射频可调谐窄带滤波片(Photonics 公司),构成可调谐单色脉冲光源,脉冲重复频率取 5 kHz;参照文献[9,11-12]所述方案,以现场可编程门阵列 FPGA 为主体,构建阶梯波驱动的电光调制信号产生、光电流相干解调等信号采集与处理功能电路处理单元;检测与参考光路由保偏光纤组成以满足 SPR 效应对光偏振特性要求.

2 结果与讨论

图 4 为 TR=2.6 锥形探头折射率测量的仿真与实测结果.图 5 为未拉锥探头相应测量的仿真与测量结果.

由图 4、图 5 对比可知,锥形探头在 1.33~1.412 RIU 范围内,波长分辨率、FWHM 与谱的对称性保持稳定,且实测结果与仿真数据较吻合.进一步扩大测量范围到 1.43 RIU 左右,相对于未拉锥情形,锥形探头

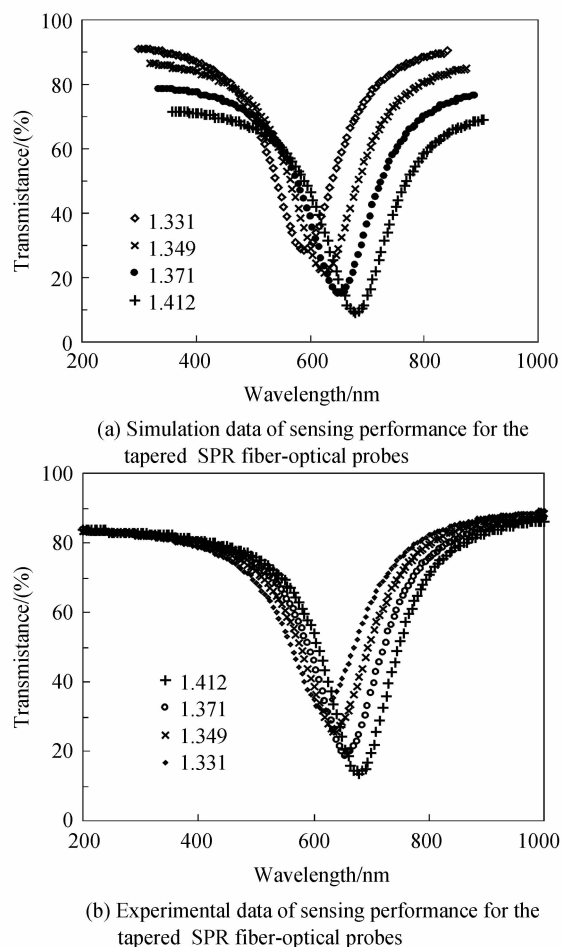
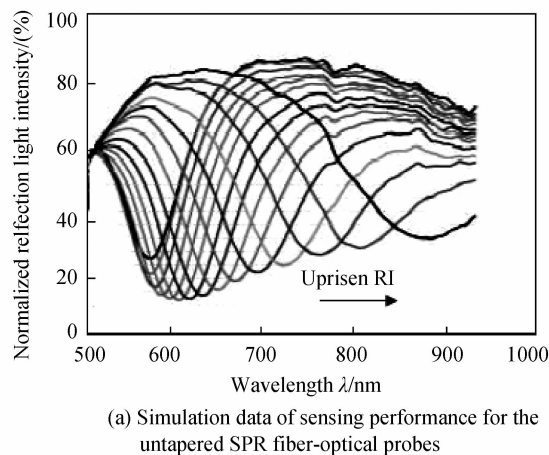
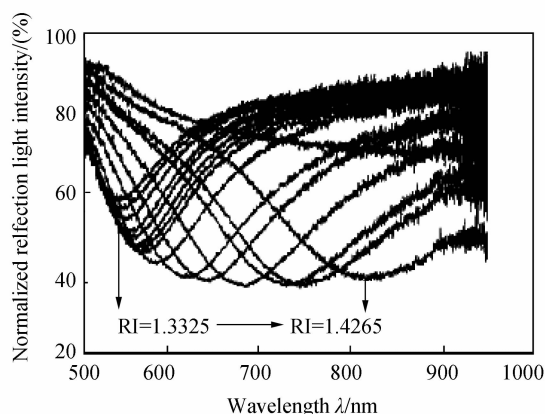


图 4 锥形 SPR 光纤传感探头特性

Fig. 4 Sensing performance of the tapered SPR probes



(a) Simulation data of sensing performance for the untapered SPR fiber-optical probes



(b) Experimental data of sensing performance for the untapered SPR fiber-optical probes

图5 均匀 SPR 光纤传感探头特性

Fig. 5 Sensing performance of the untapered SPR probes 共振吸收波长红移至 1 000 nm 以上,波长分辨率的线性性、谱对称性与 FWHM 的稳定性,仍有着良好的表现.而未拉锥探头 SPR 谱对称性、FWHM 稳定性及其波长分辨率仅在 1.33~1.35 RIU 范围内有着良好表现,此后 FWHM 有着明显展宽,波长分辨率持续增加,线性性严重劣化.

图 6 为以 SPR 共振波长分辨率表示的拉锥探头与未拉锥探头对应系统,对蔗糖溶液的实测结果对比图.

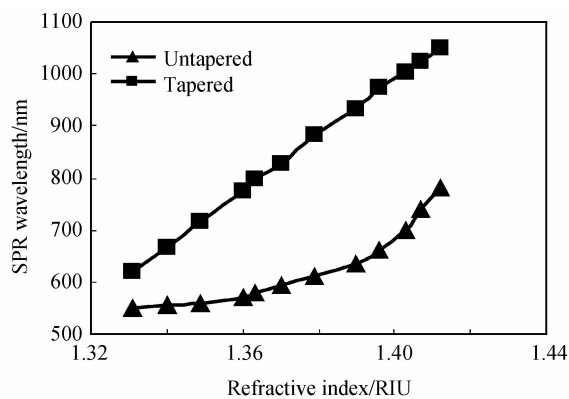


图6 两种探头折射率波长分辨率比较

Fig. 6 Comparison of wavelength resolution between tapered and untapered probes

由图 6 可知,在[1.33-1.43]RIU 折射率变化范围内,未拉锥探头 SPR 波长变化响应约 260 nm,波长分辨率非线性明显,吸收谱的对称性严重破坏,FWHM 明显展宽.拉锥探头对应波长变化在 450 nm 左右,波长分辨率与 SPR 谱对称性、FWHM 值基本稳定.具体地,在 1.332~1.3758 RIU 大小折射率变化范围内,未拉锥探头灵敏度为 0.00016 RIU,在 1.375~1.4264 RIU 范围内,测量准确度为 0.00032 RIU,检测结果的非线性明显.经与阿贝折射率仪测量结果对比,拉锥探头在整个折射率变化范围内测量准确度为

0.00003RIU,未见显著非线性.

将探头经等离子水充分清洗,进行乙醇溶液的对比测量有着与蔗糖情形下基本一致的结论.

3 结论

在理论分析基础上,制备金膜锥形 SPR 光纤传感头,基于薄膜厚度与锥度结构参量进行 SPR 共振特性优化与筛选.相对于未拉锥情形,锥形探头 SPR 共振特性具有更高波长分辨率、良好的光谱对称性和稳定的 FWHM.根据调频光谱原理,良好的光谱对称性和稳定的 FWHM,是闭环测量系统准确度与线性度的根本保证.实测对比结果表明,相对于未拉锥结构,锥形探头在较大的待测折射率变化范围内有着更好的波长分辨率.结合稳定的 SPR 谱对称性和 FWHM 值,可更好地发挥闭环检测系统的结构优势,使系统兼具测量准确度、灵敏度和线性度优势,无需特别的数据处理可更好地满足实际生产过程中的在线测量需求.

致谢 本文中部分制备与检测工作,得到东南大学张彤教授小组的大力支持,在此谨表谢意.

参考文献

- [1] DAMRA E M, YANG T M, ZHOU X, *et al.* Surface plasmon coupling effect of gold nanoparticles with different shape and size on conventional surface plasmon resonance signal[J]. *Plasmonics*, 2010, **5**: 221-231.
- [2] PRIYA B, BANSHI D G. Surface plasmon resonance based on fiber optic ammonia sensor utilizing Bromocresol purple[J]. *Plasmonics*, 2013, **8**: 779-784.
- [3] LODEWIJKS K, RYKEN J, ROY W V, *et al.* Tuning the Fano resonance between localized and propagating surface plasmon resonances for refractive index sensing applications [J]. *Plasmonics*, 2013, **8**: 1379-1384.
- [4] BAHRAMI F, ALAM M Z, AITCHISON J S, *et al.* Dual polarization measurements in the hybrid plasmonic biosensors [J]. *Plasmonics*, 2013, **8**: 465-473.
- [5] CAO Jin, GALBRAITH E K, SUN Tai, *et al.* Cross-comparison of surface plasmon Resonance-based optical fiber sensors with different coating structures[J]. *Sensors Journal*, 2102, **12**(7): 2355-2361.
- [6] SUN Xiao-ming, ZENG Jie, ZHANG Qian-yun, *et al.* Research of optical fiber surface plasmon wave resonance sensor based on Built-in modulation layer [J]. *Acta Optica Sinica*, 2011, **31**(1): 263-268.
孙晓明,曾捷,张前运,等.基于内调制层表面等离子波谐振光纤传感器研究 [J]. *光学学报*, 2011, **31**(1): 263-268.
- [7] GUAN Chun-ying, YUAN Li-bo, SHI Jin-hui. Microstructured-fiber surface plasmon resonance sensor [J]. *Acta Optica Sinica*, 2011, **31**(2): 42-45.
关春颖,苑立波,史金辉.微孔光纤表面等离子体共振传感特性分析 [J]. *光学学报*, 2011, **31**(2): 42-45.
- [8] ZHAO Hua-xin, JIANG Yong-xiang, LUO Tian-qiong, *et al.* Hollow optical fiber sensor based on surface plasmon resonance resonance [J]. *Acta Optica Sinica*, 2012, **32**(6): 240-245.
赵华新,蒋永翔,罗天穹,等.基于表面等离子体共振原理的空芯光纤传感器 [J]. *光学学报*, 2012, **32**(6): 240-245.
- [9] FU Li-hui, YIN Wen-qing. Investigation on the on-line optical fiber surface plasmon resonance sensors based on frequency

- modulation spectroscopy[J]. *Acta Optica Sinica*, 2013, **33**(6): 117-124.
- 付丽辉,尹文庆. 基于调频光谱原理的在线式表面等离子体共振光纤传感器[J]. *光学学报*,2013,**33**(6):117-124.
- [10] WANG Ma-hua, CUI Yi-ping, ZHANG Tong. Analysis on the mechanism of dead band phenomena in digital closed-loop fiber optic current transformers [J]. *Chinese Journal of Sensors and Actuators*, 2009, **22**(01): 24-28.
- 王马华, 崔一平, 张彤. 数字闭环光纤电流互感器死区形成机理分析[J]. *传感技术学报*, 2009,**22**(01):24-28.
- [11] WANG Ma-hua, CUI Yi-ping, ZHANG Tong. Investigation on the optimization for the couple coefficient of P-ROG[J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, **27**(10): 1793-1796.
- 王马华,王马华, 崔一平, 张彤. 聚合物集成光学陀螺最佳耦合比的研究 [J]. *光学学报*,2007, **27**(10):1793-1796.
- [12] WANG Ma-hua, CUI Yin-ping, ZHANG Tong. Application of frequency-modulation spectroscopy in the iptimization of integrated optics gyros [J]. *Journal of Chinese Inertial Technology*, 2007, **15**(4): 464-468.
- 王马华, 崔一平, 张彤. 高频光谱原理在集成光学陀螺性能优化中应用的研究[J]. *中国惯性技术学报*, 2007,**15**(4):464-468.
- [13] PFEIFER K B, THORBERG S M. Surface plasmon sensing of gas phase contaminants using a single-ended multiregion optical fiber[J]. *IEEE Sensors Journal*, 2010, **10**(8): 1360-1367.
- [14] VERMA R K, GUPTA B D. Surface plasmon resonance based tapered fiber optic sensor with different taper profile [J]. *Optical Communication*, 2008, **281**: 1486-1491.
- [15] DIEZ A, ANDRES M V, CRUS J L. In-line fiber-optic sensors based on the excitation of surface plasma modes in metal-coated tapered fibers[J]. *Sensors & Actuators B*, 2001, **73**: 2278-2283.
- [16] KERMA R, SHARMA A K, GUPTA B D. Modeling of tapered fiber-optic surface plasmon resonance sensor with enhanced sensitivity[J]. *IEEE Photonic Technology Letter*, 2007, **19**(22): 1786-1788.