

双层介质加载等离子体微环的高灵敏生物传感

刘 恒¹, 马 涛^{1,2,3}, 余重秀³, 高金辉¹

- (1. 河南师范大学 电子与电气工程学院, 河南 新乡 453007;
2. 河南省高校电磁波特征信息探测重点学科开放实验室, 河南 新乡 453007;
3. 北京邮电大学 信息光子学与光通信国家重点实验室, 北京 100876)

摘 要: 为了提高介质加载表面等离子体的传输距离, 提出了基于双层介质加载的表面等离子体波导结构。利用有限元方法研究了介质加载的表面等离子体波导的模式分布及传输特性, 并对其传感应用的波导灵敏度进行了分析。研究表明, 当低折射率介质厚度占波导总厚度的 33% 时, 传输距离是单层介质加载表面等离子体波导的 2.4 倍。利用该波导结构组成的微环谐振腔被用于生物传感研究, 其传感特性分析表明, 传感灵敏度为 411 nm/RIU, 检测极限为 1.2×10^{-5} RIU。双层混合介质加载表面等离子体波导的设计和研发为其进行无标记生物传感应用提供了有价值的指导。

关键词: 表面等离子体波导; 介质加载; 微环谐振腔; 生物传感

中图分类号: TN256 文献标志码: A DOI: 10.3788/IRLA201645.0322003

Highly sensitive biosensor based on two-layer dielectric-loaded plasmonic microring

Liu Heng¹, Ma Tao^{1,2,3}, Yu Chongxiu³, Gao Jinhui¹

- (1. College of Electronic and Electrical Engineering, Henan Normal University, Xinxiang 453007, China;
2. Henan Key Discipline Open Laboratory of Electromagnetic Wave Detecting, Xinxiang 453007, China;
3. State Key Laboratory of Information Photonics and Optical Communications, Beijing University of Posts and Telecommunications, Beijing 100876, China)

Abstract: In order to realize long propagation length, a two-layer dielectric-loaded surface plasmon polaritons (TDL-SPPs) waveguide was proposed. The mode field distributions and propagation properties of the TDL-SPPs waveguide were studied by using finite element method (FEM). The waveguide sensitivity was also studied. The results show that the propagation length of the proposed TDL-SPPs waveguide is 2.4 times as much as that of the conventional dielectric-loaded surface plasmon polaritons (DL-SPPs) waveguide. The TDL-SPPs microring resonator based highly sensitive biosensor was demonstrated. The results show that the sensitivity is more than 411 nm/RIU and the detection limit is less than 1.2×10^{-5} RIU. The design and research on the biosensor based on TDL-SPP microring resonator is a valuable exploration in biosensing application with high sensitivity.

Key words: surface plasmon polaritons waveguide; dielectric-loaded; microring resonator; biosensor

收稿日期: 2016-07-05; 修订日期: 2016-08-03

基金项目: 河南省重点科技攻关项目(132102210043); 河南师范大学青年科学基金(2011QK08, 2012QK08)

作者简介: 刘恒(1979-), 女, 讲师, 硕士, 主要从事光信息处理方面的研究。Email: hengmaggie@163.com

0 引言

集成光子器件由于灵敏度高, 尺寸小和集成度高等优点, 在无标记光学生物传感中得到广泛的关注。可集成的无标记光学生物传感技术为医疗诊断、食品安全控制, 药品开发和环境监测等领域实现与片上实验室(Lab on chip)集成开拓了广阔的发展前景。由于平面导波器件能够测量环境微小折射率的变化, 许多不同的结构被提出进行无标记生物传感应用, 比如方向耦合器^[1]、Mach-Zehnder 干涉结构^[2]、光子晶体^[3]、环形谐振腔^[4]和微盘^[5]等。

近些年, 由于表面等离子体 (Surface plasmon polaritons, SPPs) 独特的传输特性, 在金属纳米结构中 SPPs 能够突破光的衍射极限^[6], 因此在未来纳米集成光子回路或器件中具有重要的应用。常见的等离子体波导结构存在较大的传输损耗, 限制了其在亚波长电子器件中的应用。近几年, 介质加载混合表面等离子体波导^[7-10]获得了广泛的关注, 金属表面附近的介质折射率差增强了金属-介质界面的 SPPs 波的局域化, 使其具备亚波长条件下的低损耗, 可以大幅提高模式的传播距离, 为其在微环谐振腔中的应用提供了基础。

文中提出了基于 $\text{PSiO}_2\text{-Si}_3\text{N}_4$ 双层介质加载的表面等离子体 (two-layer dielectric-loaded surface plasmon polaritons, TDL-SPPs) 波导结构, 并研究其微环谐振腔结构及生物传感应用。利用有限元方法分析了 TDL-SPPs 波导的特性及其用于传感的波导灵敏度。然后, 对基于 TDL-SPPs 微环谐振腔的传输特性进行了分析。最后, 研究了利用这种结构进行生物传感的灵敏度和检测极限。

1 波导结构与制备方法

TDL-SPPs 波导的结构如图 1 所示。直波导和微环波导都是由沉积于 70 nm 厚的金薄膜上的两层介质层组成的矩形波导, 金的折射率可见参考文献[11]。考虑到微环的弯曲损耗, 微环半径 R 选择 $5\ \mu\text{m}$ (弯曲损耗减小至 1 dB)^[12]。直波导和微环谐振腔的相关参数均标示在图 1 中。由于单层介质加载等离子体波导 (Dielectric-loaded surface plasmon polaritons, DL-SPPs) 的单模传输条件^[13]为宽度小于 655 nm, 波

导厚度小于 635 nm, 为了确保波导的单模传输条件, 选择波导宽度 w 为 600 nm, 厚度 h 为 600 nm。文中所用的参数符号如图 1(a) 所示, $t=h_2/h$ 表示低折射率波导厚度与双层介质波导总厚度的比值。

TDL-SPPs 波导的制备可以利用电子束光刻技术实现^[12]。首先利用电子枪将金膜蒸镀在玻璃基质上, 然后利用电子束光刻技术和剥离方法制备双介质层波导。为了获得全通滤波器型微环结构, 需要在蒸镀金膜的玻璃基质上旋涂 600 nm 的聚甲基丙烯酸甲酯 (polymethyl methacrylate, PMMA) 层, 然后用电子束按照设定的结构进行曝光, 进行剥离后再分别沉积纳米多孔二氧化硅 PSiO_2 (折射率约为 1.23) 和氮化硅 Si_3N_4 (折射率为 2), TDL-SPPs 波导覆盖层为空气 (折射率 $n_c=1$)。

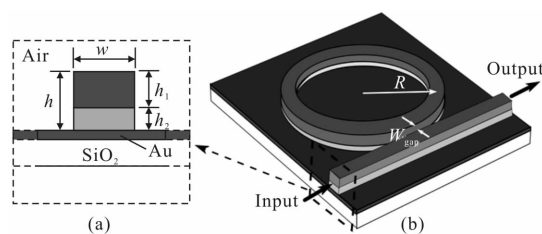


图 1 TDL-SPPs 截面图(a)和 TDL-SPPs 微环谐振腔结构(b)

Fig.1 Section of TDL-SPPs waveguide (a) and TDL-SPPs microring resonator (b)

2 波导特性分析

利用二维有限元方法中的模式分析对 TDL-SPPs 波导的特性进行了仿真分析。其垂直电场分量分布如图 2 所示。图 2 中, 左图为 TDL-SPPs 截面的

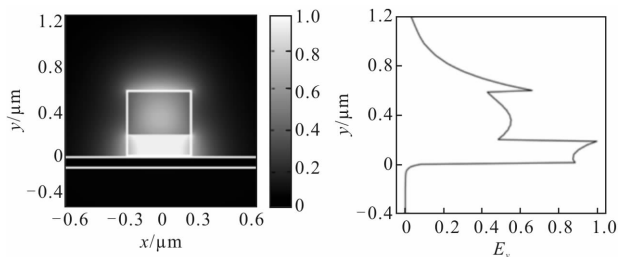


图 2 TDL-SPPs 波导垂直电场分量 E_y 分布 ($w=600\ \text{nm}$, $h=600\ \text{nm}$, $t=33\%$)

Fig.2 Field distribution profile of the vertical component of the electric field E_y for ridge dimension $w=600\ \text{nm}$, $h=600\ \text{nm}$, $t=33\%$

电场分布,右图为 $x=0$ 时,电场分量 E_y 沿 y 方向的变化曲线。右图表明模场的主要电场分量集中在低折射率介质中,并且靠近高折射率介质一边的电场分量最高。由于能量主要位于两种介质交界面,从而减小了金属表面的欧姆损耗。

波导复有效折射率的实部和传播距离 L_{prop} 随 t 变化的规律如图 3 所示。波导的传播距离可由公式(1)求出:

$$L_{prop} = \frac{\lambda}{4\pi \times \text{Im}[n_{eff}]} \quad (1)$$

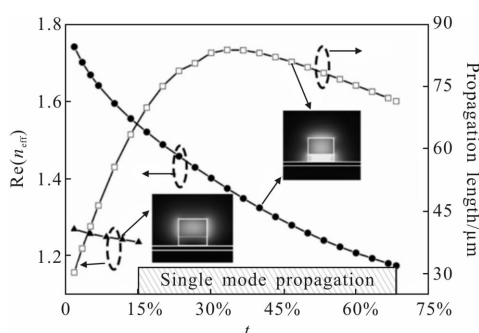


图 3 TDL-SPPs 波导的有效折射率(实部)和传播长度在波长 1.55 μm 处随 t 变化的规律(插图为模式分布图)

Fig.3 Real component of mode effective index and propagation length of the TDL-SPPs waveguide with different t at the wavelength of 1.55 μm , the insets are mode field distributions

由图 3 可知,波导中存在两种模式,一种是混合 SPPs 模式,模场主要限制在低折射率介质中(图 3 右上模场图所示)。另一种类似介质波导中的导波模式,模场主要限制在高折射率介质中(如图 3 左下模场图所示)。两种模式的有效折射率都随着 t 的增加而逐渐减小,这是由于低折射率介质厚度增加降低了波导的有效折射率。为了获得单模传输, t 必须选择在 15%~68.3%之间。在这个区间内,传播长度随着 t 的增加先增加然后逐渐减小。当 t 比较小时,电场虽然主要集中在双介质交界面,但是由于距离金属层太近,从而使欧姆损耗增大,其传播距离也就出现明显的下降。当 t 比较大时,高折射率介质中的能量会相应增加,波导的辐射损耗会略微增加,导致了传播距离相应的减小。为了获得较长的传播距离, t 选择在 33.3%附近。波导的传播长度约为 84 μm ,是 DL-SPPs 波导(42 μm ^[14])的 2 倍。

改变 TDL-SPPs 波导覆盖层折射率 n_c 的

值(1.3~1.6),利用有限元方法计算模式的有效折射率,分析波导在不同环境折射率下的波导灵敏度 $S_{wg}(n_c)$ 和传输长度 L_{prop} 。TDL-SPPs 波导的波导灵敏度和传播长度随 n_c 变化的规律如图 4 所示。当 n_c 在 1.3~1.5(大部分生物传感待测物质的折射率范围)时,双层介质加载等离子波导的传播长度大于 100 μm (是单层聚合物加载波导的 2.4 倍左右)。

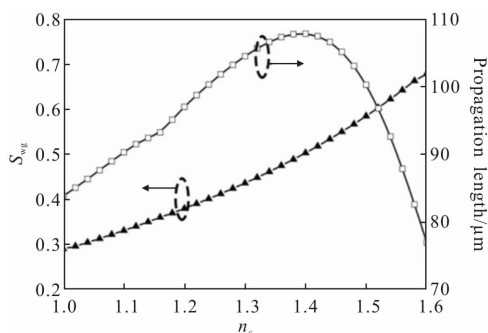


图 4 TDL-SPPs 波导的波导灵敏度和传播长度随 n_c 的变化

Fig.4 Waveguide sensitivity and propagation length of the TDL-SPPs as a function of n_c

微环的灵敏度 S 可表示为谐振波长 λ_{res} 的变化量 $\Delta\lambda_{res}$ 与待分析物折射率变化量 Δn_c 的比值,即

$$S = \frac{\Delta\lambda_{res}}{\Delta n_c} = \frac{\Delta\lambda_{res}}{\Delta n_{eff}} \frac{\Delta n_{eff}}{\Delta n_c} = S_{dev} S_{wg} \quad (2)$$

$$S_{wg}(n_c) = \frac{\Delta n_{eff}}{\Delta n_c} \approx \frac{d\text{Re}(n_{eff}(n_c))}{dn_c} \Big|_{n_c} \quad (3)$$

$$S_{dev} = \frac{\Delta\lambda}{\Delta n_{eff}} = \frac{\lambda}{n_{eff}} = \frac{2\pi R}{m} \quad (4)$$

式中: m 为微环谐振腔的谐振阶数。由上式可知,灵敏度由波导灵敏度和器件灵敏度两部分组成。其中,波导灵敏度由波导的结构决定,随着 n_c 从 1.0 增加至 1.6,波导灵敏度从 0.29 增加到 0.69,可见当待测物折射率接近波导的有效折射率时,波导灵敏度最大。器件灵敏度 S_{dev} 主要由传感的结构决定,微环谐振腔的 S_{dev} 可由谐振条件得到。

$$S_{wg}|_{n_c=1.33} = 0.45 \quad (5)$$

$$S_{dev} = \frac{\Delta\lambda}{\Delta n_{eff}} = \frac{\lambda}{n_{eff}} = \frac{2\pi R}{m} = \frac{2\pi \times 5[\mu\text{m}]}{31} \approx 1.01 \mu\text{m}/\text{RIU} \quad (6)$$

$$S = S_{wg} S_{dev} \approx 456 \text{ nm}/\text{RIU} \quad (7)$$

3 TDL-SPPs 微环谐振腔传输特性分析

通过对波导结构的优化,获得了 TDL-SPPs 波导的结构参数。利用 TDL-SPPs 波导组成的全通滤

波器型微环谐振腔如图 1(b)所示。通过计算微环谐振腔输出端功率 P_o 和输入端功率 P_i 的比值得到透射谱。利用谐振波长 λ_{res} 与谐振峰半高全宽(full width at half maximum, FWHM)的比值计算 Q 值,如公式(8)所示。

$$Q = \frac{\lambda_{res}}{FWHM} \quad (8)$$

消光比 ER 如公式(9)所示

$$ER = -10\lg(P_o/P_i) \quad (9)$$

高 Q 值有利于增加光场与待测物质之间的相互作用,从而有效地增加传感的检测极限。高消光比则表征着良好微环谐振腔的传输特性有利于抑制背景噪声。微环谐振腔的品质因数 Q 和消光比 ER 随直波导与微环的耦合间隔 W_{gap} 变化的规律如图 5(a)所示。 Q 值随着 W_{gap} 的增加而增大,ER 在 $W_{gap}=170$ nm 时接近临界状态。为了获得较高的 Q 值,选择微环谐振腔工作在欠耦合状态,即 $W_{gap}=200$ nm, Q 达到 385, ER 为 16 dB。图 5(b)为 $W_{gap}=200$ nm 时的透射谱,其自由谱宽(Free spectral range, FSR)约为 38 nm。波长为 1550 nm 和 1570 nm 处的电场垂直方向分量分别如图 5(c)和(d)所示。在谐振波长 1550 nm 处,光场几乎全部被限制在环形谐振腔中,而在失谐波长处,光场能量只有很少一部分进入环形腔内。

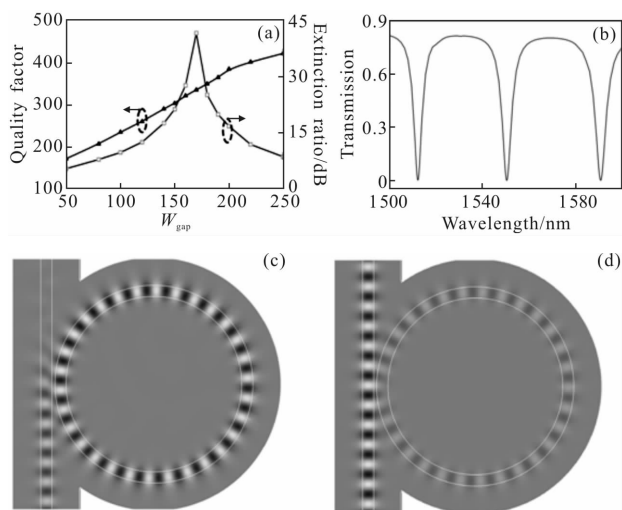


图 5 TDL-SPPs 微环谐振腔的谐振特性及其电场分布

Fig.5 Resonant characteristics and electric field distribution of the TDL-SPPs waveguide

4 生物传感特性分析

为了研究TDL-SPPs 微环谐振腔在生物传感种

的应用,通过改变微环周围待测物质的折射率 n_c 分析其传感灵敏度和检测极限。氯化钠溶液^[15]、葡萄糖溶液^[1]以及细胞溶液^[16]的折射率变化范围在 1.33~1.4 之间,因此通过改变 n_c 使其从 1.33 以 0.01 的步长变化到 1.4。谐振波长的变化 $\Delta\lambda_{res}$ 随 n_c 增加的变化规律如图 6 所示,其线性拟合如图 6 虚线所示。线性拟合的确定系数为 0.99 992,曲线的斜率即是折射率传感的灵敏度。因此,可得出传感灵敏度 S 为 411 nm/RIU,与前面分析的灵敏度基本吻合,其灵敏度是传统硅基微环谐振腔传感灵敏度(约 70 nm/RIU)的 6 倍。其传感的检测极限 LOD(Limit of detection)可以由公式(10)进行估算:

$$LOD = \lambda_{resolution}/S \quad (10)$$

式中: $\lambda_{resolution}$ 为波长分辨率,如果选择使用波长分辨率 $\lambda_{resolution}$ 为 5 pm 的可调激光源和光功率探测器,则传感的检测极限 LOD 约为 1.2×10^{-5} RIU。

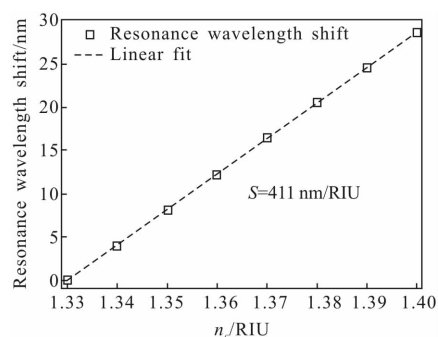


图 6 谐振波长偏移量随环境折射率 n_c 变化的曲线及其线性拟合

Fig.6 Resonance wavelength shift versus surrounding refractive index change n_c and linear fit

5 结论

为了解决传统的单层介质加载表面等离子体波导的传输距离短的问题,PSiO₂-Si₃N₄ 双层介质加载表面等离子体波导被提出,并对其模式场分布和传输特性进行了分析。通过研究双层介质厚度比例对传输距离的影响,得到了获得最大传输距离的结构尺寸。在满足单模传输的条件下,低折射率波导厚度与双层介质波导总厚度的比值 t 均为 33%时,可以获得传输距离的最优值,为在集成光子学的应用提供了指导。利用 TDL-SPPs 波导组成微环谐振腔结构,研究其传输特性和生物传感特性。研究表明,该结构可实现高灵敏度生物传感,传感灵敏度为

411 nm/RIU, 检测极限为 1.2×10^{-5} RIU。由于其尺寸小便于集成, 在生物传感的集成化和实现片上实验室等方面具有广阔的应用前景。

参考文献:

- [1] Uchiyamada K, Okubo K, Yokokawa M, et al. Micron scale directional coupler as a transducer for biochemical sensing [J]. *Optics Express*, 2015, 23(13): 17156–17168.
- [2] Yang Yang, He Hao, Li Qiushun, et al. TiO₂ nanowire array based interferometric sensor [J]. *Chinese Optics*, 2014, 7(3): 421–427. (in Chinese)
杨洋, 何皓, 李秋顺, 等. TiO₂ 纳米线阵列干涉传感器[J]. *中国光学*, 2014, 7(3): 421–427.
- [3] Shi Pengfei, Gao Renjing, Liu Shutian. Strain sensor based on coaxial photonic band gap crystal [J]. *Optics and Precision Engineering*, 2015, 23(4): 956–964. (in Chinese)
史鹏飞, 高仁璟, 刘书田. 基于同轴光子带隙晶体的应变传感盘[J]. *光学精密工程*, 2015, 23(4): 956–964.
- [4] Cui Naidi, Kou Jieting, Liang Jingqiu, et al. Athermal biosensor based on three waveguide micro-ring resonators [J]. *Chinese Optics*, 2014, 7(3): 428–434. (in Chinese)
崔乃迪, 寇婕婷, 梁静秋, 等. 三环型波导微环谐振器无热化生物传感器[J]. *中国光学*. 2014, 7(3): 428–434.
- [5] Kouno T, Sakai M, Kishino K, et al. Sensing operations based on hexagonal GaN microdisks acting as whispering-gallery mode optical microcavities [J]. *Optics Letters*, 2015, 40(12): 2866–2869.
- [6] Gramotnev D K, Bozhevolnyi S I. Plasmonics beyond the diffraction limit [J]. *Nature Photonics*, 2010, 4(2): 83–91.
- [7] Qi Pan, Li Ying, Feng Mingchuang, et al. Scanning surface plasmon resonance biosensor for array sample detection [J]. *Optics and Precision Engineering*, 2012, 20 (11): 2365–2372. (in Chinese)
齐攀, 李莹, 冯明创, 等. 用于阵列样品检测的扫描式表面等离子体共振生物传感器 [J]. *光学精密工程*. 2012, 20 (11): 2365–2372.
- [8] Yang Pengfei, Yao Jianquan, Liu Xiaobo, et al. Hybrid nanorod plasmonic wave guide for subwavelength confinement [J]. *Infrared & Laser Engineering*, 2012, 41(6): 1477–1480. (in Chinese)
杨鹏飞, 姚建铨, 刘晓波, 等. 具有高模场限制的异质纳米棒结构波导 [J]. *红外与激光工程*, 2012, 41(6): 1477–1480.
- [9] Zhang Jing, Cai Likang, Bai Wenli, et al. Hybrid plasmonic waveguide with gain medium for lossless propagation with nanoscale confinement [J]. *Optics Letters*, 2011, 36 (12): 2312–2314.
- [10] Zhang Bingfang, Zhang Xueru, Li Mangxue, et al. Influence of optical nonlinearity on surface plasmon resonance [J]. *Infrared & Laser Engineering*, 2008, 37(S2): 386–388. (in Chinese)
张丙芳, 张学如, 李茫雪, 等. 含光学非线性介质薄膜对表面等离子波的影响 [J]. *红外与激光工程*, 2008, 37(S2): 386–388.
- [11] Johnson P B. Optical constants of the noble metals [J]. *Phys Rev B*, 1972, 6(12): 4370–4379.
- [12] Pan Mingyang, Lin Enhong, Wang Likarn, et al. Enhancing surface plasmon polariton propagation by two-layer dielectric-loaded waveguides on silver surface [J]. *Applied Physics A*, 2014, 115(1): 93–98.
- [13] Gosciniaik J. Theoretical analysis of long-range dielectric-loaded surface plasmon polariton waveguides [J]. *Journal of Lightwave Technology*, 2011, 29(10): 1473–1481.
- [14] Tsilipakos O, Yioultsis T V, Kriezis E E. Theoretical analysis of thermally tunable microring resonator filters made of dielectric-loaded plasmonic waveguides [J]. *Journal of Applied Physics*, 2009, 106(9): 93109.
- [15] Jiang Qi, Lv Dandan, Yu Minghao, et al. The experiment research on solution refractive index sensor based on tilted Fiber Bragg Grating [J]. *Spectroscopy & Spectral Analysis*, 2013, 33(12): 3425–3431. (in Chinese)
蒋奇, 吕丹丹, 于明浩, 等. 倾斜光纤光栅溶液折射率传感器的实验研究 [J]. *光谱学与光谱分析*, 2013, 33(12): 3425–3431.
- [16] Beres C, De Nazaré F V, De Souza N C, et al. Tapered plastic optical fiber-based biosensor-tests and application [J]. *Biosensors & Bioelectronics*, 2011, 30(1): 328–332.