

고감도 단금속 및 쌍금속 표면 플라즈몬 공명 센서 설계를 위한 수치해석 연구

| |
|---------|
| 논 문 |
| 58-4-20 |

Numerical Investigation on Surface Plasmon Resonance Sensor Design with High Sensitivity Using Single and Bimetallic Film Structures

권혁록* · 이성혁†
(Hyuk Rok Gwon · Seong Hyuk Lee)

Abstract - Surface plasmon resonance (SPR) has been widely used for biological and chemical sensing applications. The present study investigates numerically the optical characteristics for the single Au film and bimetallic Ag/Au film SPR configurations by using the multiple beam interference matrix (MBIM) method. We use the prism coupling method, especially Kretschmann configuration for excitation of surface plasmon wave (SPW). The estimated results of reflectance, phase shift and magnetic field intensity enhancement factor are provided for finding out the optimum configuration with high sensitivity for SPR measurement. As a result, the optimum thicknesses are found to be 52 nm for a single Au film and 5 nm to 36 nm for bimetallic Ag-Au film. From the comparison of full width half maximum (FWHM) values for reflectance, phase shift, and enhancement of magnetic field intensity, it is concluded that the highest sensitivity can be obtained when using the phase shift for SPR sensor.

Key Words : Surface plasmon resonance, Multiple beam interference matrix, Bimetallic, Full width half maximum

1. 서 론

표면 플라즈몬 공명(Surface Plasmon Resonance: SPR) 현상은 지난 20여 년 동안 바이오 센서(bio sensor)와 화학 센서(chemical sensor)에의 적용을 위하여 광범위한 연구가 이루어져 왔다[1]. 표면 플라즈몬 공명센서의 센서의 감도가 좋으며, 실시간(in-situ)로 측정이 가능하고, 측정대상이 되는 물질에 형광물질이나 방사선 물질과 같은 표식 없이(label-free) 센싱이 가능하다는 장점이 있다[2]. 최초로 SPR 센서는 CO₂와 O₂의 농도를 측정하기 위하여 처음 개발된 이후 화학 센서 및 바이오 센서로서 물질의 굴절률, 분석 대상 분자의 흡수 또는 투과 특성, 가스의 분석 등 많은 분야에서 적용되어 오고 있다.[3-7] SPR 센서에서 사용하는 금속 박막 층은 빛이 표면에 입사되었을 때 전자들이 활발히 공진할 수 있는 금속 박막들이 사용된다. 일반적으로 금 박막이 SPR 센서에 많이 쓰이고 은 박막은 SPR 각도를 측정함에 있어서 금 박막보다 더 우수한 측정 해상도를 가지지만[2], 표면의 화학적 안정성이 문제가 있기 때문에 단일 금속 박막으로는 쓰이지 못하고 있다.

표면 플라즈몬(surface plasmons)은 입사되는 빛에 의해 야기된 금이나 은과 같은 금속 박막 내의 자유전자의 집단적인 진동을 의미하는데, 일반적으로 금속 박막으로 은을 사용하면 가장 고감도의 표면 플라즈몬 센서를 만들 수 있다. 하지만 은은 화학적 표면 안정성이 매우 약하기 때문에 최근에는 쌍금

속 은-금 박막 구조의 SPR 센서가 대안으로 활발한 연구가 진행되고 있다.

공명 모드(resonant mode)에서 SPR 센서의 반사율과 위상, 그리고 전자기장의 세기는 급격히 변하지만 지금까지 대부분의 연구자들은 SPR 센서에는 단지 반사율만 측정하였다 [1]. 하지만 최근에는 몇몇 연구자들은 SPR 센서에 입사되는 빛의 위상 변화를 적용하기 위한 연구를 시도하고 있다 [8-10]. 또한 자기장의 세기의 측정을 통한 표면 플라즈몬 센서의 가능성도 있으며, 이를 위해서는 자기-저항 자기력계(magneto-resistive magnetometer)와 홀 소자(hall device), 그리고 자기-광학 이미저를 사용하면 자기장의 세기를 정량적으로 측정할 수 있다[11-14].

이러한 반사율, 위상 및 자기장의 세기의 급격한 그림 1의 SPR 구조에서 금속 층의 광학 상수 n, k 및 두께에 밀접한 영향을 받는다. 따라서 SPR 센서에 적용을 위해서 사용되는 금속의 종류 및 두께에 대한 영향을 연구하는 것은 고감도 및 고정밀성의 SPR 센서의 제작에 있어서 상당히 의의가 있다.

2. 이 론

SPR 현상은 외부에서 TM(transverse magnetic) 편광된 빛이 프리즘-금속-유전체 구조에 입사될 때 입사된 빛이 표면 플라즈몬 파(Surface Plasmon Wave : SPW)를 여기시키며 그림 1에 나타나 있는 Kretschmann 구조의 SPR 센서에서 생성되는 표면 플라즈몬 파수벡터(wave vector) k_{sp} 와 프리즘을 통과하는 빛의 파수벡터 k_p 가 일치할 경우 금속과 유전체의 경계면에서 소산파가 발생하게 되며 이 때 일어나는 광학 현상이다[1].

† 교신저자, 정회원 : 중앙대학 기계학과 조교수 · 공박
E-mail : shlee89@cau.ac.kr

* 비 회원 : 중앙대학 기계학과 석사과정
접수일자 : 2009년 1월 12일
최종완료 : 2009년 3월 16일

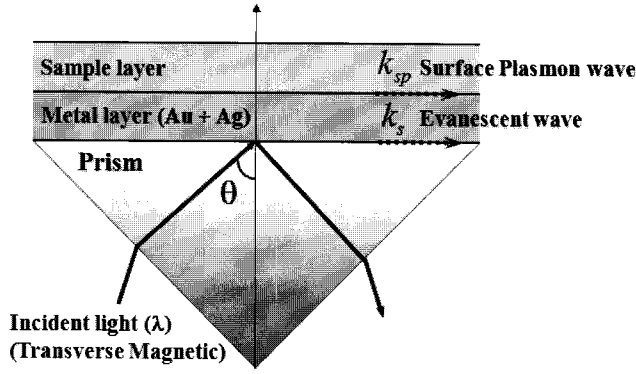


그림 1 Kretschmann SPR 구조에 대한 개략도.
Fig. 1 A schematic of the Kretschmann SPR configuration.

여기에서 SPR의 파수 벡터 k_{sp} 는 맥스웰 방정식으로부터 유도되어지며, 식 (1)과 같이 나타낼 수 있다.

$$k_{sp} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_m \epsilon_d}{\epsilon_m + \epsilon_d}} \quad (1)$$

이 식에서 ω 는 입사되는 빛의 주파수, c 는 광속, 그리고 ϵ_m 와 ϵ_d 는 각각 금속의 유전율과 유전체의 유전율을 나타낸다. 또한 프리즘을 통과하는 빛의 파수벡터 k_p 는 식 (2)와 같이 나타낼 수 있다.

$$k_p = \frac{\omega}{c} n_p \sin \theta \quad (2)$$

여기서 n_p 는 프리즘의 굴절률이다. 두 파수 벡터 k_{sp} 와 k_p 가 일치할 경우 SPR 현상이 일어나며, 식 (1)과 (2)를 이용하여 다음과 같이 SPR 각(SPR angle)을 식 (3)과 같이 유전체와 프리즘, 그리고 금속의 유전율의 함수로 나타낼 수 있다.

$$k_{sp} = k_p, \quad \theta_{sp} = \sin^{-1} \sqrt{\frac{\epsilon_m \epsilon_s}{\epsilon_p (\epsilon_m + \epsilon_s)}} \quad (3)$$

3. 수치해석법

SPR 센서에서 입사되는 빛은 프리즘-금속-유전체로 구성된 다층 박막 구조를 통과하게 되며 각각의 계면에서 입사되는 빛은 반사 또는 투과가 발생하게 된다. 상대적으로 두꺼운 금속의 경우에 있어서는 반사율은 간단히 프레넬 방정식(Fresnel's formulas)에 의해 결정된다. 하지만 박막의 두께가 입사되는 빛의 파장 정도로 얇아지게 프레넬 방정식은 더 이상 적용할 수 없게 되고 각각의 층에서 빛의 간섭 효과가 생긴다.

따라서 이러한 빛의 간섭효과와 다층에서 변화하는 굴절지수를 고려하기 위해서 전자기 이론을 사용하여야 한다. 따라서 본 연구에서는 SPR 센서의 광학적 특성을 전자기 이론[15]에 기초한 MBIM 방법을 이용하여 단금속 및 쌍금속 박막 구조의 SPR 센서의 반사율, 위상변화 및 자기장 세기의 변화에 대해 수치해석적으로 연구하였다.

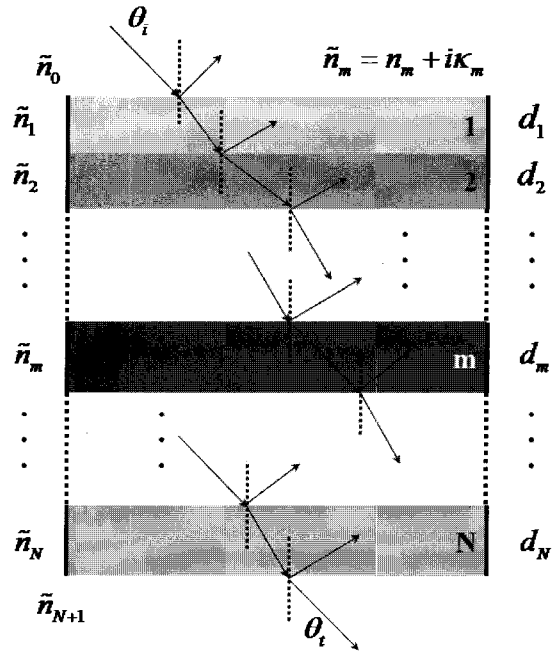


그림 2 다층 박막 구조의 개략도.
Fig. 2 A schematic of multi-layer thin film structure.

그림 2는 일반적인 다층 박막 구조를 보여주고 있다. 이와 같은 구조에서 두께 d_m 을 갖는 m 번째 층은 MBIM 방법을 통하여 다음과 같은 식 (4)와 같이 2×2 행렬로 표현된다.

$$M_m = \begin{bmatrix} M_{11} & M_{12} \\ M_{21} & M_{22} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos \beta_m & -\frac{i}{p_m} \sin \beta_m \\ -ip_m \sin \beta_m & \cos \beta_m \end{bmatrix} \quad (4)$$

식 (4)에서 i 는 허수단위를 나타내며 β_m 과 p_m 은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\beta_m = \frac{2\pi}{\lambda_0} \bar{n}_m d_m \cos \theta_m \quad (5)$$

$$p_m = \bar{n}_m \cos \theta_m \quad (6)$$

여기서 \bar{n}_m 은 식 (7)과 같이 표현되는 m 번째 복소굴절지수이며 λ_0 는 입사되는 빛의 파장을 의미한다.

$$\bar{n}_m = n - ik \quad (7)$$

전체 다층 박막의 MBIM은 식 (8)과 같이 각 층의 행렬을 곱한 형태로 나타낼 수 있다.

$$M = \prod_{m=1}^N M_m \quad (8)$$

그리고 반사계수 r 및 투과계수 t 는 다음과 같이 표현된다.

$$r = \frac{[M(1,1) + M(1,2)\bar{n}_s]\bar{n}_a - [M(2,1) + M(2,2)\bar{n}_s]}{[M(1,1) + M(1,2)\bar{n}_s]\bar{n}_a + [M(2,1) + M(2,2)\bar{n}_s]} \quad (9)$$

$$t = \frac{2\bar{n}_a}{[M(1,1) + M(1,2)\bar{n}_s]\bar{n}_a + [M(2,1) + M(2,2)\bar{n}_s]} \quad (10)$$

최종적으로, 반사 계수를 이용해서 반사율 R 과 투과율 T , 위상 Φ 및 자기장 세기의 변화를 아래와 같이 구할 수 있다.

$$R = |r|^2 \quad (11)$$

$$T = \frac{n_s}{n_a} |t|^2 \quad (12)$$

$$\Phi = \arg|r| \quad (13)$$

$$\left| \frac{H_y(n/n-1)}{H_y(1/2)} \right| = |t_{12...n}|^2 \quad (14)$$

본 연구에서는 633 nm 헬륨-네온 레이저(He-Ne laser)를 입사되는 빛으로 가정하였으며, 프리즘으로는 BK-7 프리즘을 사용하였으며, 유전체로는 물을 사용하였다. 수치해석에 사용된 물질의 광학 물성 값은 표 1에 정리하였다[16, 17].

4. 결과 및 고찰

4.1 MBIM 방법의 검증

먼저 본 연구에서는 MBIM 방법이 SPR 구조에서의 반사율 및 위상의 변화 해석에 타당한지를 검증하기 위하여 참고 문헌에 나와 있는 실험 자료와 수치해석 결과를 비교하였다 [16]. 그림 3에 비교한 결과를 보여주며 실험의 반사율과 MBIM 방법을 이용한 반사율이 잘 일치함을 확인하였다.

4.2 최적 금속 박막 두께

첫 번째로 본 연구에서는 단금속 및 쌍금속 SPR 센서에서의 최적의 금속 박막 두께를 위한 연구를 수행하였다. 먼저 금 박막의 SPR 센서의 경우 두께의 변화에 따른 반사율의 변화를 그림 4에 나타낼 수 있으며, 그림 5에는 최적의 금속 박막 두께인 52 nm 일 때의 전체 입사각에 대한 반사율을 나타내었다.

표 1 물질의 광학 상수[16, 17].

Table 1 Optical properties of materials[16, 17].

| Material | Refractive index (n) | Extinction coefficient (k) | Thickness |
|-----------|----------------------|----------------------------|-----------|
| BK7 Prism | 1.5168 | 0 | 25 mm |
| Au | 0.13 | 3.16 | Various |
| Ag | 0.27 | 4.18 | Various |
| Water | 1.32 | 0 | 30 mm |

쌍금속 은-금 박막 SPR 구조에서는 금 박막의 두께가 증가할수록 SPR 센서의 감도는 떨어짐을 알 수 있다. 하지만 화학진공증착(chemical vapor deposition)이나 금속 스퍼터링(metal sputtering)의 공정 한계로 인해 금 박막의 두께는 5 nm로 고정된 후 은 박막의 두께를 변화시켰다. 그림 6과 같이 쌍금속 은-금 박막 SPR 구조에서는 은이 36 nm 일 때 가장 고감도의 SPR 센서의 성능을 나타냄을 알 수 있다.

4.3 반사율, 위상변화, 자기장세기변화를 이용한 SPR 센서의 감도 비교

앞에서 언급했듯이, SPR 센서에서는 반사율, 위상변화 및 자기장세기변화의 측정이 가능하며, 따라서 이러한 각각의 측정 파라미터의 감도를 비교하는 것은 매우 의미가 있다.

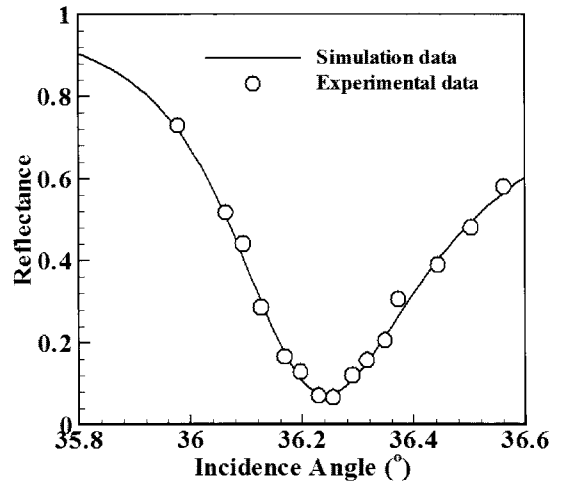


그림 3 반사율에 대한 실험 데이터[16]와 수치해석 결과 비교.
Fig. 3 Comparison of estimated reflectance with experimental data[16].

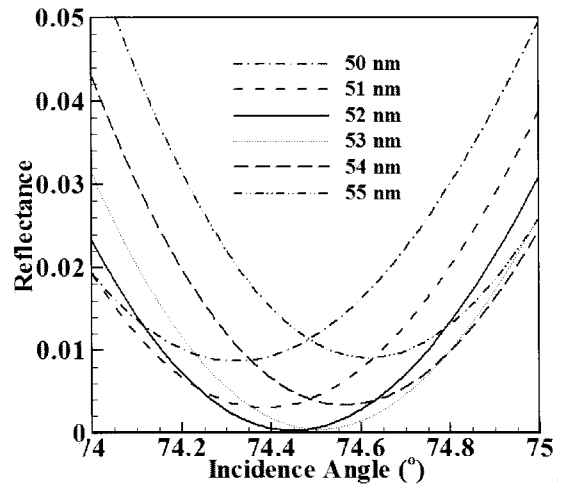


그림 4 금 박막 두께의 변화에 따른 단금속 SPR 센서의 반사율의 변화.
Fig. 4 Reflectance of single SPR sensor for various Au film thicknesses.

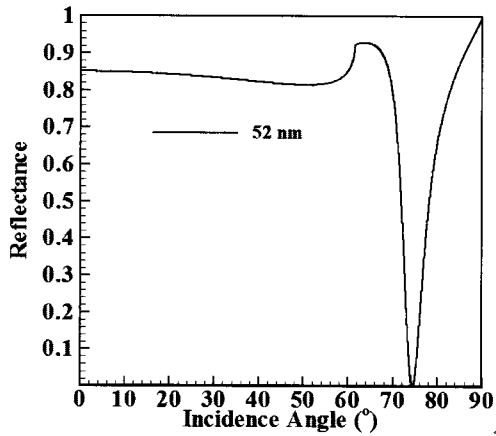


그림 5 52 nm 두께의 금 박막 SPR 센서의 입사각에 따른 반사율.
 Fig. 5 Reflectance with respect to incidence angle for 52 nm Au film for single SPR sensor.

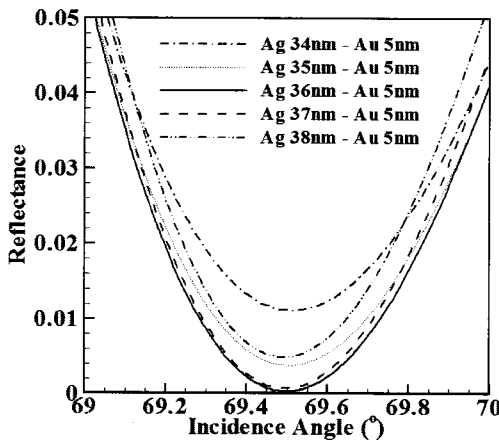


그림 6 은 박막 두께의 변화에 따른 쌍금속 SPR 센서의 반사율의 변화.
 Fig. 6 Reflectance of bimetallic SPR sensor for various Ag film thicknesses.

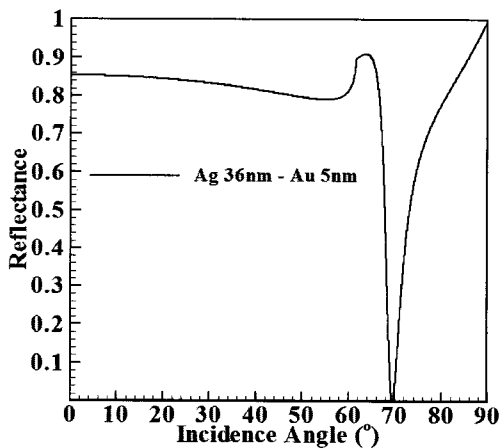


그림 7 36 nm 두께의 은 박막 쌍금속 SPR 센서의 입사각에 따른 반사율.
 Fig. 7 Reflectance with respect to incidence angle for 36 nm Ag film for bimetallic Ag-Au SPR sensor.

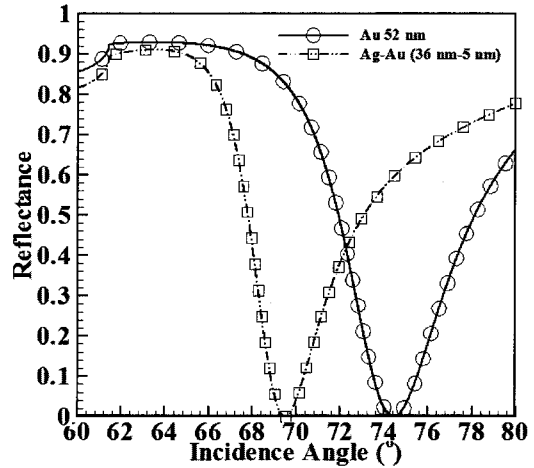


그림 8 단금속 및 쌍금속 SPR 센서의 입사각에 따른 반사율.
 Fig. 8 Reflectance with respect to incidence angle for single and bimetallic SPR sensor.

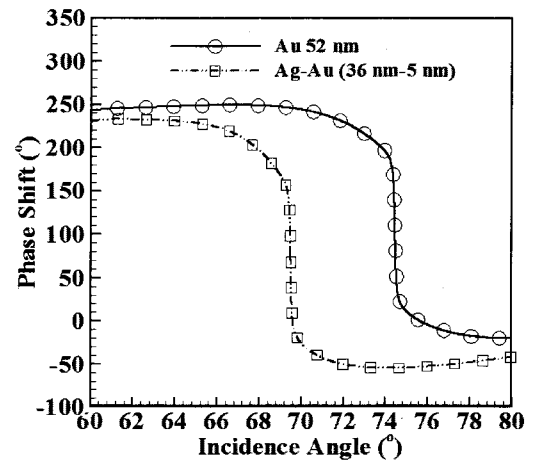


그림 9 단금속 및 쌍금속 SPR 센서의 입사각에 따른 위상 변화.
 Fig. 9 Phase shift with respect to incidence angle for single and bimetallic SPR sensor.

본 연구에서는 각각의 파라미터의 감도의 비교에 반치전폭(full width half maximum)을 도입하였다. 반치전폭은 측정 데이터 및 커브의 급격히 변하는 정도를 나타내며, SPR 센서에서는 이러한 파라미터의 급격한 변화가 센서의 감도의 크기를 나타낸다.

이를 위하여 본 연구에서는 단금속 금 박막 SPR 센서와 쌍금속 금-은 박막 SPR 센서에 대하여 반사율, 위상 변화 및 자기장세기변화를 수치해석방법을 이용하여 계산하였으며, 그림 8, 그림 9, 그리고 그림 10에 나타내었다. 각각의 센서에 대한 반사율, 위상 변화 및 자기장세기 변화의 FWHM을 표 2에 나타내었다.

결과적으로 반사율의 FWHM 값이 위상 변화 및 자기장세기 변화의 FWHM 값보다 상대적으로 크게 나타났으며, 이는 반사율을 이용한 SPR 센서의 감도가 가장 떨어짐을 알 수 있고, 위상 변화를 이용한 SPR 센서의 감도가 단금속 및 쌍금속 구조에서 모두 가장 높은 감도를 나타낼 수 있다.

참 고 문 헌

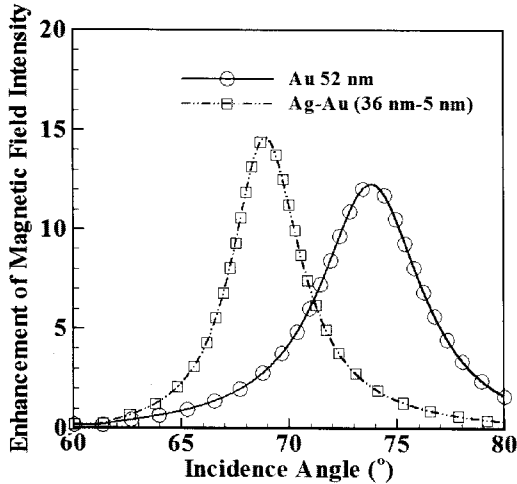


그림 10 단금속 및 쌍금속 SPR 센서의 입사각에 따른 자기장세기변화.

Fig. 10 Enhancement of magnetic field intensity with respect to incidence angle for single and bimetallic SPR sensor.

표 2 단금속 및 쌍금속 SPR 센서의 반사율, 위상변화, 자기장세기변화의 FWHM.

Table 2 FWHM of reflectance, phase shift and enhancement of magnetic field intensity of single and bimetallic SPR sensor.

| Configuration | Full width half maximum value | | |
|------------------|-------------------------------|-------------|--------------------------|
| | Reflectance | Phase shift | Magnetic field intensity |
| Single Au | 6.207 | 0.277 | 5.505 |
| Bimetallic Ag-Au | 5.238 | 0.39 | 3.821 |

4. 결 론

본 연구에서는 SPR 센서의 구조에 대해 단금속 및 쌍금속 박막의 최적의 두께를 살펴보고, SPR 센서에서 측정 가능한 반사율, 위상변화 그리고 자기장세기변화를 이용한 센서의 감도를 비교해 보았다. 그 결과 얻은 결론은 다음과 같다.

1. 단금속 및 쌍금속 SPR 센서의 최적의 금속박막 두께를 예측하였다. 이 결과는 고감도의 SPR 센서의 제작에 적용될 수 있다.
2. 자기장세기변화를 이용한 SPR 센서의 성능이 반사율을 이용한 센서보다 고감도임을 FWHM 값의 비교를 통해서 알 수 있었다.
3. 위상변화를 이용한 SPR 센서가 단금속과 쌍금속의 경우 모두 가장 고감도의 성능을 나타내었다.

감사의 글

이 논문은 2006년도 정부재원(교육인적자원부 학술연구조성사업비)으로 학술진흥재단의 지원을 받아 연구되었음(KRF-2006-311-D00338)

- [1] Jiří Homola, et al., "Surface Plasmon Resonance Sensors: Review", Sensors and Actuators B, vol. 54, No. 1/2 3-15, 1999.
- [2] Jiří Homola, "Present and Future of Surface Plasmon Resonance Biosensors", Analytical and Bioanalytical Chemistry, vol. 377, No. 3, 528-539, 2003.
- [3] O.S. Wolfbeis, "Fiber Optic Chemical Sensors and Biosensors", CRC Press, 1991.
- [4] A. Brecht, and G. Gauglitz, "Optical Probes and Transducers", Biosensors and Bioelectronics. vol. 10, No. 9-10, pp. 923-936, 1995.
- [5] G. Gauglitz, "Opto-Chemical and Opto-Immuno Sensors", Sensors Update, vol. 1, No. 1, pp. 1-48, 2001.
- [6] G. Boisde, A. Harmer, "Chemical and Biochemical Sensing with Optical Fibers and Waveguides", Artech House Publishers, 1996.
- [7] Liedberg, B., et al., "Surface Plasmon Resonance for Gas Detection and Biosensing", Sensors and Actuators, vol. 4, pp. 299-304, 1983.
- [8] H.P. Ho, et al., "Sensitivity Enhancement Based on Application of Multi-Pass Interferometry in Phase-Sensitive Surface Plasmon Resonance Biosensor", Optics Communications, vol. 275, No. 2, pp. 491-496, 2007.
- [9] Ju-Yi Lee, et al., "Measurement of Refractive Index Change by Surface Plasmon Resonance and Phase Quadrature Interferometry", Optics Communications, vol. 276, No. 2, pp. 283-287, 2007.
- [10] K. H. Chen, et al., "Measurement of Small Differences in Refractive Indices of Solutions with Interferometric Optical Method", Optics and Lasers in Engineering, vol. 45, No. 11, pp. 1071-1077, 2007.
- [11] G. Y. Tian, et al., "Multiple Sensors on Pulsed Eddy-Current Detection for 3-D Subsurface Crack Assessment", IEEE Sensors Journal, vol. 5, No. 1, pp. 90-96, 2005.
- [12] Mustafa Göktepe, "Non-Destructive Crack Detection by Capturing Local Flux Leakage Field", Sensors and Actuators A, vol. 91, No. 1/2, pp. 70-72, 2001.
- [13] P.Y. Joubert and J. Pinassaud, "Linear Magneto-Optic Imager for Non-Destructive Evaluation", Sensors and Actuators A, vol. 129, No. 1/2, pp. 126-130, 2006.
- [14] Z. Cui, et al., "High Sensitive Magnetically Actuated Micromirrors for Magnetic Field Measurement", Sensors and Actuators A, vol. 138, No. 1, pp. 145-150, 2007.
- [15] Max Born and Emil Wolf, "Principles of Optics", Cambridge University Press, 1999.
- [16] Vitalii Silinb, et al., "SPR Studies of the Nonspecific Adsorption Kinetics of Human IgG and BSA on Gold

Surfaces Modified by Self-Assembled Monolayers (SAMs)", Journal of Colloid and Interface Science, vol. 185, No. 1, pp. 94-103, 1997.

[17] Marvin J. Weber, "Handbook of Optical Materials", CRC Press, 2003

저 자 소 개



권혁록 (權赫摠)

1981년 1월 22일생, 2006년 중앙대학교 기계공학부 졸업, 2006년~현재 동 대학원 기계공학부 대학원 석박사통합과정.

Tel : 02-823-5332

Fax : 02-814-9476

E-mail : hrgwon99@wm.cau.ac.kr



이성혁 (李晟赫)

1971년 2월 1일생, 1993년 중앙대학교 기계공학부 졸업, 1999년 동대학원 기계공학 졸업(공학박사), 2004년~현재 중앙대학교 기계공학부 부교수.

Tel : 02-820-5254

Fax : 02-814-9476

E-mail : shlee89@cau.ac.kr