

## Estimation of Sensitivity Enhancements on Localized Surface Plasmon Resonance Sensor Using Dielectric Multilayer

Heesang Ahn<sup>1</sup>, Tae Young Kang<sup>1</sup>, Jin-Woo Oh<sup>3†</sup> and Kyujung Kim<sup>1,2†</sup>

<sup>1</sup>Department of Cogno-mechatronics Engineering, Pusan National University,

<sup>2</sup>Department of Optics and Mechatronics Engineering, Pusan National University,

<sup>3</sup>Department of Nanoenergy Engineering, Pusan National University,

2 Busandaehak-ro 63beon-gil, Geumjeong-gu, Busan 46241, Korea

(Received December 30, 2016; Revised manuscript February 22, 2017; Accepted February 23, 2017)

In this research, we designed an LSPR sensor based on a thin-film multilayer comprising TiO<sub>2</sub> and SiO<sub>2</sub>. The thickness of the overall substrate layer of the suggested multilayer LSPR sensor is limited to 100 nm, and the number of repeating TiO<sub>2</sub> and SiO<sub>2</sub> thin films is 1-4 within a limited thickness. Additionally, a nanowire structure with a gold thin film of 40 nm, height of 40 nm, period of 600 nm, and line width of 300 nm was formed on the multilayer. To design the variable wavelength-type SPR, the angle was fixed at 75° and the wavelength was changed. We then simulated the system with the finite-element method (FEM) using Maxwell's equations. It was confirmed that the resonance wavelength became shorter as the number of multilayers increased when the refractive index was fixed. We found that the wavelength changes were more sensitive. However, no changes were observed when the number of the multilayers was three or higher.

Keywords: Surface plasmon resonance, Localized surface plasmon resonance, Finite element method

OCIS codes: (240.6680) Surface plasmons; (130.6010) Sensors; (250.5403) Plasmonics

## 유전체 다중층을 이용한 국소 표면 플라즈몬 공명 센서의 감도 향상에 관한 연구

안희상<sup>1</sup> · 강태영<sup>1</sup> · 오진우<sup>3†</sup> · 김규정<sup>1,2†</sup>

<sup>1</sup>부산대학교 인지메카트로닉스공학과

<sup>2</sup>부산대학교 광메카트로닉스공학과

<sup>3</sup>부산대학교 나노에너지공학과

⊕ 46241 부산광역시 금정구 부산대학로 63번길 2

(2016년 12월 30일 받음, 2017년 2월 22일 수정본 받음, 2017년 2월 23일 게재 확정)

본 논문에서는 LSPR 센서에 적용하기 위한 제한된 높이 100 nm에서 TiO<sub>2</sub>, SiO<sub>2</sub>의 다중층을 이용한 LSPR 센서를 디자인을 제안했다. LSPR 센서의 구조는 유전체 층과 나노 구조가 있는 금속층으로 디자인 하였다. 금속층은 금 박막 40 nm와 높이 40 nm, 주기 600 nm, 선폭 300 nm인 나노와이어 구조체를 올려놓은 구조로 디자인하였다. 유전체 층의 높이를 100nm로 제한하고, TiO<sub>2</sub>, SiO<sub>2</sub>가 반복되는 구조로 하여 반복층의 개수를 1~4개로 변경하면서 비교 분석하였다. 파장 가변형 SPR을 디자인하기 위해 각도를 75도로 고정하고 파장을 변화시켜 FEM방식으로 계산하였다. 결과로 굴절율이 고정되어 있을 때 다중층의 개수가 증가할 수록 공명 파장이 짧아지는 현상을 확인 하였고, 파장의 변화에 더 민감하게 변화하는 것을 측정하였다. 다만, 다중층의 개수가 3개층 이상이 되면 변화하지 않는 것을 확인하였다.

Keywords: 표면플라즈몬 공명, 국소 표면플라즈몬공명, 유한요소법

OCIS codes: (240.6680) Surface plasmons; (130.6010) Sensors; (250.5403) Plasmonics

† E-mail: [ojw@pusan.ac.kr](mailto:ojw@pusan.ac.kr), [k.kim@pusan.ac.kr](mailto:k.kim@pusan.ac.kr)

Color versions of one or more of the figures in this paper are available online.

## I. 서 론

표면 플라즈몬 공명(Surface plasmon resonance, SPR)은 귀 금속과 유전체 사이의 계면에서 표면 플라즈몬 파와 입사된 광에 의해 유도되는 자유전자의 집단적인 진동을 말한다<sup>[1-4]</sup>. 이 SPR 현상은 외부 유전 환경에 반응하여 공명되는 파장이나 각도가 변화하게 되고 이를 이용하여 센서나 이미지 등에 응용되고 있다. 대표적인 응용방법으로는 SPR 센서로 SPR 센서는 복합시료에서의 농도, 특이성, 그리고 생체분분자간의 상호작용 측정을 포함하여 화학 및 생물학적 감지에 사용된다.<sup>[5-8]</sup>

기존의 SPR 센서(Propagating SPR, PSPR) 센서라고 하는 가장 일반적인 SPR 센서는 Kretschmann 방법이 있으며 유리 프리즘, 금속박막, 샘플 순서대로 구성하며 각도 또는 파장 가변형 모드로 사용 할 수 있다. 센서는 나노 단위의 단 분자의 물질을 감지할 수 있는 것이 궁극적인 목표이다. 하지만 지금까지 PSPR의 경우 민감도가 낮아 단 분자를 검출하는 데 많은 한계를 보이고 있다. 이를 극복하기 위해 많은 연구팀에서 여러 연구가 진행되었다.

PSPR 현상과 다르게 박막 전체에 표면 플라즈몬 파가 퍼지지 않고 나노 입자나 나노 크기의 구조체를 통한 전자기파를 국소화 시킨 국소 표면 플라즈몬(Localized surface plasmon resonance, LSPR)을 통해 전자기파의 국소화로 센서의 민감도 향상에 대한 연구가 수행되었다.<sup>[9-12]</sup> LSPR 센서 외에도 다른 종류의 SPR 센서를 통해 민감도 향상시키는 방법으로 다중층 장거리 SPR (Long range surface plasmon resonance, LRSPR) 센서가 있다. 그 구성은 프리즘, 유전체 층, 금속 층 및 샘플을 순차적으로 구성하여 PSPR 보다 날카로운 반사 스펙트럼을 가지는 센서에 대한 연구가 수행되었지만 나노 단위의 물질을 감지하기에는 민감도의 한계를 보이고 있다.<sup>[13-17]</sup>

이에 본 연구에서는, LRSPR구조를 기반으로 프리즘, 웨이브 가이드 결합(Waveguide-Coupled, WC)층 및 금속 박막으로 구성된 SPR 센서를 구상하였고, 시뮬레이션을 통해 파장 가변형 모드의 SPR을 분석하려고 한다. 그리고 다중층 LRSPR에 LSPR을 접목한 센서의 민감도를 비교하였고, LRSPR의 반사스펙트럼을 완벽하게 드러내기 위해 다중층 장거리 LSPR (Multilayer long range localized surface plasmon resonance) 센서에서 WC의 개수가 반사스펙트럼에 미치는 영향을 분석하고 특성 변화를 시뮬레이션을 통해 측정하였다.

## II. 광학센서의 시뮬레이션 설계 및 방법

그림 1은 본 논문에서 설계하고자 하는 다중층 LSPR 센서에 대한 개념을 설명한다. 일반적인 SPR 센서와는 달리 TiO<sub>2</sub>와 SiO<sub>2</sub>가 번갈아 가며 BK7 기판과 금으로 이루어진 플라즈몬 금속층 사이에 존재하게 된다. TiO<sub>2</sub>= A, SiO<sub>2</sub>= B 일 때, A/B의 구성으로 이루어진 층이 100 nm 두께 내에 제한하여 다중층을 이루도록 하였다. 금 박막 층의 두께는 40 nm 으

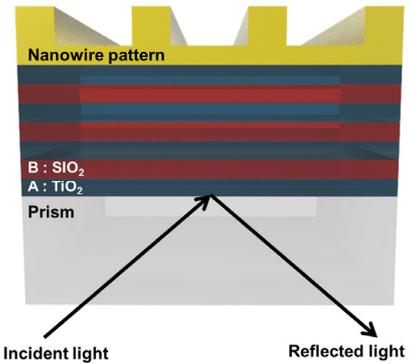


Fig. 1. The schematic of the calculation concept for multilayer long range localized surface plasmon resonance sensor.

이루어졌으며, 나노 와이어 구조가 형성되었을 때에는 두께가 40 nm, 선 폭이 300 nm, 주기가 600 nm인 구조가 박막 위에 구성되도록 하였다. 입사된 광의 각도는 75°로 고정하였으며, 300~900 nm로 가시 광영역과 근적외선 영역의 파장이 조사되었다. 금속 주변에 형성된 유전물질은 1.33~1.36의 굴절률을 가지며 굴절률의 변화에 따른 입사된 광의 파장대역 중 공명 파장의 변화를 시뮬레이션으로 분석할 것이다.

본 연구의 시뮬레이션은 MATLAB 기반의 유한요소법 (Finite Element Method, FEM)을 통한 Maxwell 방정식의 해석을 통해 이루어졌다.<sup>[18,19]</sup>

## III. 시뮬레이션 결과

설계된 시뮬레이션을 해석하여 박막 위 굴절률이 1.33일 때의 100 nm로 제한된 다중층의 개수에 따른 반사스펙트럼을 그림 2에 나타내었다. 다중층 위의 40 nm 나노와이어 구조체와 박막 40 nm만 있을 때보다 다중층의 개수가 증가할

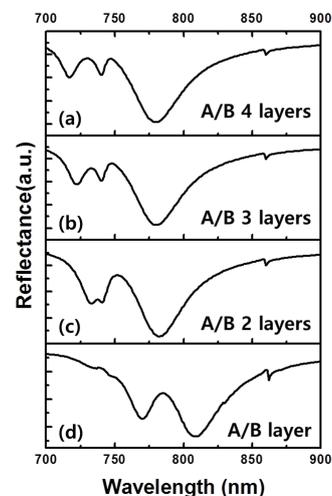
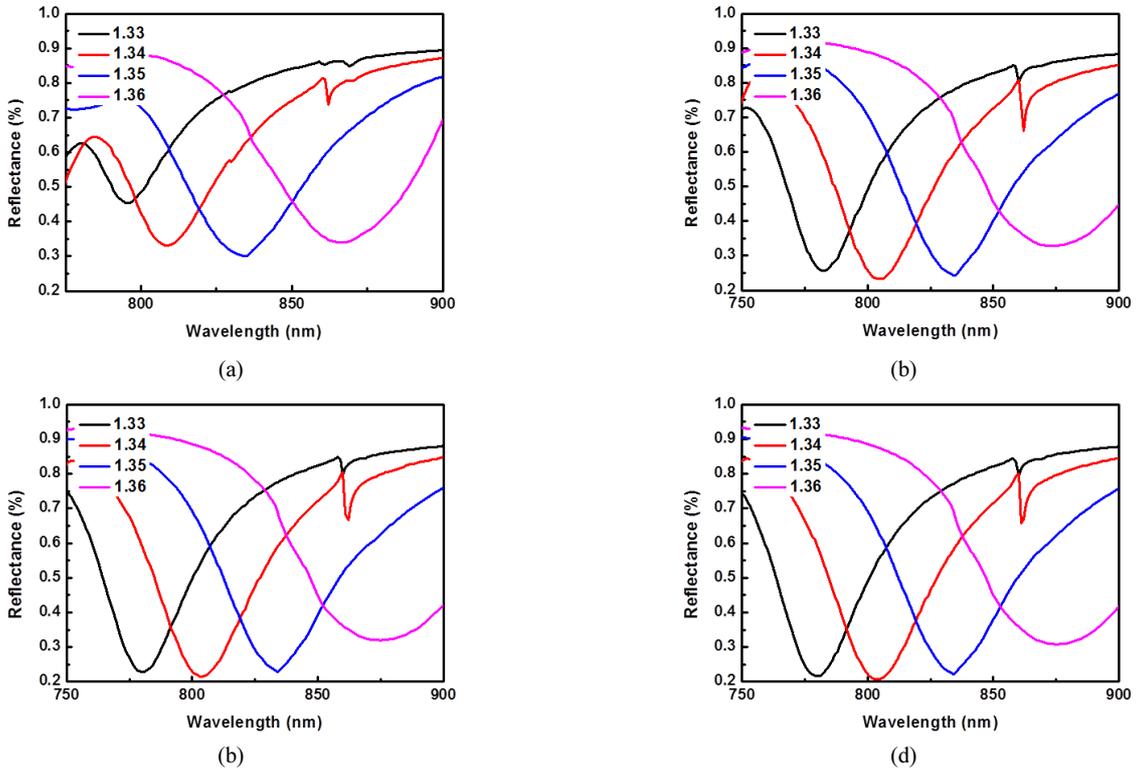


Fig. 2. The spectrum of long range localized surface plasmon resonance. (a) A/B 4 layers, (b) A/B 3 layers, (c) A/B 2 layers, (d) A/B layer. (A: TiO<sub>2</sub>, B: SiO<sub>2</sub>)



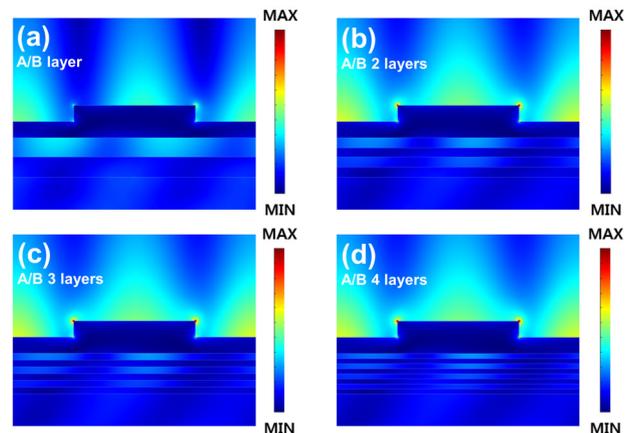
**Fig. 3.** Calculation data of the surface plasmon resonance spectrum based on Maxwell equations with nanowire pattern (Thickness: 40 nm, width: 300 nm, period: 600 nm) on gold 40 nm film on (a) the A/B layer, (b) A/B 2 layers, (c) A/B 3 layers, (d) A/B 4 layers as changing a refractive index from 1.33 to 1.36.

수령 흡수되는 빛의 파장이 그래프의 오른쪽 측, 단파장 영역대로 이동하는 것을 볼 수 있다(그림 2). 이 현상은 박막과 유리기판 사이의 A/B층의 증가로 인한 TiO<sub>2</sub>의 유전 성질의 영향으로 전체 박막의 유효 유전성질이 변화하여 흡수되는 빛의 파장대역이 짧은 파장으로 이동하게 되며 이는 플라즈몬 효과를 나타내기 위해 더 많은 에너지가 필요해짐을 나타낸다.

나노와이어 구조와 다층형 유전체가 접목된 시스템에서의 계산 결과를 분석해 보면 같은 높이의 유전체에서 A/B층의 반복 횟수에 따라 반사파의 스펙트럼을 계산을 통해 얻을 수 있다(그림 3). 그림 3에서 A/B층의 반복 횟수에 따라 굴절률 1.34의 반사파의 반치전폭(Full width at half maximum, FWHM)을 구했을 때, 65.02, 45.27, 46.16, 46.98 nm로 A/B 층이 2번 반복했을 때 반치전폭이 가장 좁게 나타나는 것을 확인하였고, 3번이상이었을 때는 반치전폭이 A/B의 반복 횟수가 증가함에 따라 증가하는 것을 확인하였다.

이 이유에 대한 고찰을 하고자 각 조건에서 공명이 일어나는 파장에서 발생하는 근접장의 분포를 분석하고 세기 변화를 분석하기 위해 Maxwell 방정식을 기반으로 하여 계산을 수행하였다. 그림 4는 각 조건에서 따른 근접장을 계산한 그림이다. 계산 조건은 입사각이 75도로 하였고, A/B층의 반복 횟수에 따라 굴절률 1.36 일 때의 근접장을 계산하였다. A/B층의 반복이 1-4번으로 반복 될 때 근접장의 세기는

1.0435×10<sup>6</sup>, 1.3070×10<sup>6</sup>, 1.3567×10<sup>6</sup>, 1.3770×10<sup>6</sup> (V/m)으로 반복되는 횟수가 많아질수록 근접장의 세기가 커지는 것을 확인 하였다. A/B층의 개수가 1개에서 2개로 변할 때에는 1.25 배로 커지는 반면, A/B층의 개수가 3개 이상일 때에는 1.05배 정도 증가 하여 큰 변화가 없는 것을 확인하였다. 이것으로 A/B층 반복이 1개 일 때 보다 2개이상이었을 때 근



**Fig. 4.** Calculated near-field distributions when the refractive index of surrounding is 1.36. The substrates are composed of nanowire pattern on 40 nm-thick gold film over (a) the A/B, (b) A/B 2, (c) A/B 3 and (d) A/B 4 layers.

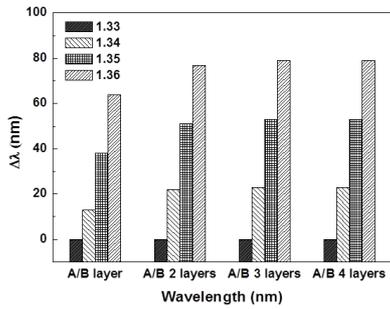


Fig. 5. Comparison data of resonance wavelength shifts on different samples as changing a refractive index from 1.33 to 1.36.

접장이 세기 때문에 작은 변화에도 큰 변화를 보이게 됨을 알 수 있다.

그림 5는 굴절률 1.36에서 샘플의 다중층 개수의 변화에 따른 공명파장의 변화를 측정하여 그래프로 나타낸 것이다. 그래프에서 보면 유전체 층의 개수가 증가할수록 굴절률의 변화에 따른 공명 파장의 변화 폭이 큰 것을 확인 할 수 있다. 하지만 layer의 개수가 3개 이상일 때에는 공명파장의 변화가 같아지는 것을 계산하였다. 굴절률 1.33에서 1.36으로 변화 시, 유전체 다중층의 개수가 1개일 때 보다 2개일 때 약 1.2배 높게 측정되었다. 또한 3개의 다중층과 1개의 다중층을 비교하였을 때에는 1.23배로 변화하였고, 4개의 다중층은 3개의 다중층과 크게 변화가 없는 것을 확인하였다. 즉, SPR 센서를 이용할 때 다중층의 개수에 따른 민감도의 변화는 있음을 확인 하였으나, 이에 대한 민감도는 다중층의 개수가 증가함에 따라 변화가 없어지는 것을 확인 할 수 있었다.

#### IV. 결론

본 연구에서는 제한된 높이에서 TiO<sub>2</sub>, SiO<sub>2</sub> 다중층의 개수를 이용하여 파장 가변 기반의 LSPR 센서를 디자인하고, 다중층의 개수에 따른 민감도를 비교하였다. 다중층의 개수가 증가하므로 인해 공명파장은 점점 짧아지다가 다중층의 개수가 일정 이상이 되면 한 파장으로 고정되어 되고, 민감도에서 비교하면 다중층의 개수에 따라 민감도가 1.23배까지 차이는 것을 확인하였다. 또한, 근접장의 세기에서도 다중층의 개수가 변화할 때 다중층의 개수가 증가함에 따라 증가함을 보였고, 다중층의 개수가 3개 이상이 되었을 때부터 다중층의 개수가 증가하여도 근접장의 세기나 민감도가 변화하지 않는 것을 확인 하였는데, 이는 다중층의 개수가 박막 사이의 층 변화가 증가하면서 박막의 유효 유전상수의 변화로 투과되는 빛의 에너지가 증가 되어 공명 파장과 민감도가 변화를 보이고, 일정 이상의 다중층 개수가 되면 투과되는 빛의 에너지가 안정되어 민감도의 변화가 없어지는 것이다.

이를 통해 향후 불특정 반응의 센싱이나 항원/항체 반응을 이용하지 않아도 되는 물질의 측정을 위한 센서의 민감도 증가를 위해 다중층의 개수를 증가시켜 센서를 제작하는 것이 더욱 효율적임을 확인 할 수 있다. 다만, 다중층의 개수가 3

개 이상 증가하여도 크게 효율이 증가하지 않으므로 이를 고려해서 사용해야 함을 알 수 있다.

#### 감사의 글

이 논문은 부산대학교 기본연구지원사업(2년)에 의하여 연구되었음.

#### References

1. J. Homola, S. S. Yee, and G. Gauglitz, "Surface plasmon resonance sensors: review," *Sens. Actuators B*, **54**, 3-15 (1999).
2. K. Kim, Y. Oh, K. Ma, E. Sim, and D. Kim, "Plasmon-enhanced total-internal-reflection fluorescence by momentum-mismatched surface nanostructures," *Opt. Lett.*, **34**, 3905-3907 (2009).
3. J.-r. Choi, S. Lee, and K. Kim, "Plasmon based super resolution imaging for single molecular detection: Breaking the diffraction limit," *Biomed Eng. Lett.*, **4**, 231-238 (2014).
4. K. Kim, S. J. Yoon, and D. Kim, "Nanowire-based enhancement of localized surface plasmon resonance for highly sensitive detection: a theoretical study," *Opt. Express*, **14**, 12419-12431 (2006).
5. J. Homola, "Present and future of surface plasmon resonance biosensors," *Anal. Bioanal. Chem.*, **377**, 528-539 (2003).
6. R. Slavik and J. Homola, "Ultrahigh resolution long range surface plasmon-based sensor," *Sens. Actuators B*, **123**, 10-12 (2007).
7. S. A. Kim, K. M. Byun, K. Kim, S. M. Jang, K. Ma, Y. Oh, D. Kim, S. G. Kim, M. L. Shuler, and S. J. Kim, "Surface-enhanced localized surface plasmon resonance biosensing of avian influenza DNA hybridization using subwavelength metallic nanoarrays," *Nanotechnology*, **21**, 355503 (2010).
8. E. D. Gaspera and A. Martucci, "Sol-gel thin film for plasmonic gas sensors," *Sensors*, **15**, 16910-16928 (2015).
9. S. Moon, D. J. Kim, K. Kim, D. Kim, H. Lee, K. Lee, and S. Haam, "Surface-enhanced plasmon resonance detection of nanoparticle-conjugated DNA hybridization," *Appl. Opt.*, **49**, 484-491 (2010).
10. K. Kim, D. J. Kim, S. Moon, D. Kim, and K. M. Byun, "Localized surface plasmon resonance detection of layered biointeractions on metallic subwavelength nanogratings," *Nanotechnology*, **20**, 315501 (2009).
11. K. Ma, D. J. Kim, K. Kim, S. Moon, and D. Kim, "Target-localized nanograting-based surface plasmon resonance detection toward label-free molecular biosensing," *IEEE J. Quant. Electron.*, **16**, 1004-1014 (2010).
12. W. Lee, K. Kim, and D. Kim, "Electromagnetic Near-Field Nanoantennas for Subdiffraction-Limited Surface Plasmon-Enhanced Light Microscopy," *IEEE J. Quantum Electron.*, **18**, 1684-1691 (2012).

13. Y. Yuan and Y. Dai, "A Revised LRSPP Sensor with Sharp Reflection Spectrum," *Sensors*, **14**, 16664-16671 (2014)
14. R. Slavík and J. Homola, "Ultrahigh resolution long range surface plasmon-based sensor," *Sens. Actuators B.*, **123**, 10-12 (2007).
15. G. G. Nenninger, P. Tobiškab, J. Homola, and S.S. Yeea, "Long-range surface plasmons for high-resolution surface plasmon resonance sensors," *Sens. Actuators B.*, **74**, 1-3 (2001).
16. J. C. Quail, J. G. Rako, and H. J. Simon, "Long-range surface-plasmon modes in silver and aluminum films," *Opt. Lett.*, **8**, 377-379 (1983).
17. A. W. Wark, H. J. Lee, and R. M. Corn, "Long-range surface plasmon resonance imaging for bioaffinity sensors," *Anal. Chem.*, **77**, 3904-3907(2005).
18. B. Min, E. Ostby, V. Sorger, E. U.-Avila, L. Yang, X. Zhang, and K. Vahala, "High-Q surface plasmon polariton whispering gallery microcavity," *Nature*, **457**, 455-458 (2009).
19. J. H. Jang, S. J. Cho, and J. H. Kim, "Lumped Parameter Modeling and Analysis of Electromagnetic Linear Actuator," *J. of the KSMPE*, **15**, 18-24 (2016).