

表面等离子共振现象的新应用 —— 微弱磁场的测量*

荆庆丽 杜春光[†] 高健存

(清华大学物理系, 低维量子物理国家重点实验室, 北京 100084)

(2012年6月25日收到; 2012年8月30日收到修改稿)

提出了一种新的表面等离子体共振传感器, 它包含三层结构: 棱镜、金属薄膜及二能级介质. 通过理论分析发现, 与通常表面等离子体共振系统不同, 这一物理系统中同时存在两种共振效应 (表面等离子体共振和能级间量子跃迁的共振效应), 它们共同作用的结果导致一系列新的物理现象, 其中一个令人感兴趣的现象是入射光的反射率对外场导致的微小能级移动十分敏感 (这一现象是通常的表面等离子体共振系统所不具有的). 由于能级移动依赖于外场, 所以最终入射光的反射率对外场具有灵敏的响应. 本文以外磁场导致能级移动的情况进行了理论计算, 结果表明, 这种表面等离子体共振系统的入射光的反射率对外加磁场极其敏感. 这一特性可以用来测量物质表面附近的微弱磁场, 有可能发展成为一种新型检测技术.

关键词: 表面等离子体共振, Zeeman 效应, 量子介质

PACS: 73.20.-r, 41.20.-q, 42.25.Bs

DOI: 10.7498/aps.62.037302

1 引言

近年来表面等离子体共振的原理和应用的研究都得到了很大的发展. 用于测量位移、角位置、湿度、温度等传统物理量的表面等离子体共振传感器得到了广泛的应用, 例如表面等离子体可以实现表面增强拉曼散射^[1], 以及实现飞秒抽运探测^[2]等. 表面等离子体共振是存在于传播常数异号的两种介质 (例如金属和电介质) 界面的电荷密度振荡, 由此产生的表面波被限制在界面传播, 在垂直于界面的方向上, 电磁场呈指数衰减^[3]. 在光波段, 有些金属^[4]是可以满足上述条件, 其中最常用的金属是金和银. 表面等离子体共振传感器最常用结构是衰减全反射法^[5]的 Kretschmann 结构^[6], 在棱镜耦合的表面等离子体共振传感器中, 最常用的探测方法是测量反射光的强度^[6]、入射光共振角度^[6]以及入射光共振波长^[6]. 表面等离子体共振现象, 通常用于制作光学传感器用来探测化学或者生物样品的折射率的改变^[7], 因此能够用来测量引起样品折射率变化的物理量, 例如湿度^[8]和温度^[9]等.

本文提出了一种用于测量微弱磁场的新型的表面等离子体共振传感器, 它包含三层结构: 棱镜、金属薄膜及二能级原子介质, 我们发现由于原子介质的量子效应, 这种体系具有丰富的物理现象, 而且具有潜在的应用价值, 例如利用这种系统可以将原子的 Zeeman 效应^[10]与金属的表面等离子体共振效应相结合, 使得磁场引起的原子能级的微小移动在入射光反射率上得以体现, 并具有很高的灵敏度.

2 含钠原子气体介质的表面等离子体共振系统

我们研究的体系包含三层结构: 棱镜、金属薄膜及二能级介质 (如图 1). 由于 Zeeman 效应, 原子的能级受环境磁场影响, 从而使得原子层的介电常数在环境磁场的作用下发生变化. 对微弱的环境磁场, 这种变化是微小的, 但我们发现, 由于表面等离子体共振效应, 这种微小的变化显著影响入射光的反射率.

* 国家自然科学基金 (批准号: 11274197, 10504016) 和科技部 973 项目 (批准号: 2010CB922904) 资助的课题.

[†] 通讯作者. E-mail: ducg@mail.tsinghua.edu.cn

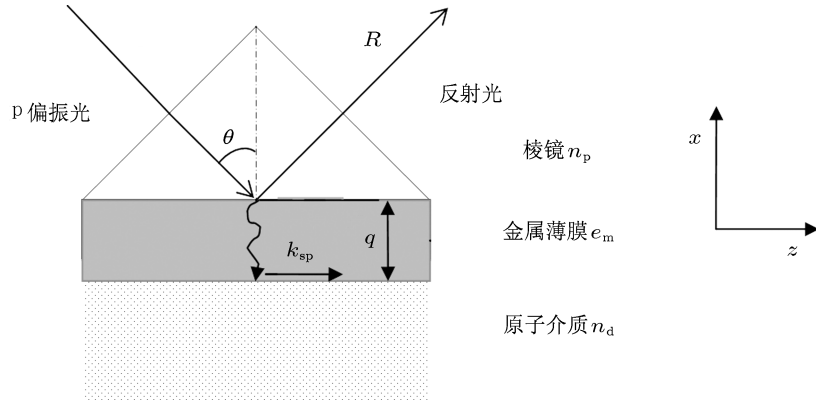


图1 激发表面等离子体的 Kretschmann 结构

当光(或电子)照射到金属板(通常为金银等贵金属)上时,由于光与金属中存在的可迁移自由电子的相互作用,会产生一个沿着金属界面传播的电磁模,这个电磁模或表面波被称为表面等离子体.但是由于表面等离子体的波数要比光在真空中的波数大,所以真空中的光是不能够激发表面等离子体的.因此就必须对真空中的光进行耦合使其波数变大,最常用的方式是棱镜耦合.在图1所示的 Kretschmann 结构中,入射光为 p 偏振的平面波,棱镜、金属、原子介质在 y-z 平面上无限延伸,具有较高的折射率 n_p 的棱镜无缝隙地放置在平行金属/介质波导的上表面上,金属薄膜的介电常数为 ϵ_m ,厚度为 q ,半无限介质的折射率为 n_d .可以应用多层膜的菲涅耳反射公式计算光在上述 Kretschmann 结构中振幅反射率^[5]为

$$r_{\text{pmd}} = \frac{r_{\text{pm}} + r_{\text{md}} \exp(2ik_{\text{mx}}q)}{1 + r_{\text{pm}}r_{\text{md}} \exp(2ik_{\text{mx}}q)}, \quad (1)$$

其中

$$k_z = \frac{2\pi}{\lambda} n_p \sin(\theta), \quad (2)$$

$$r_{ij} = \frac{\epsilon_j k_{ix} - \epsilon_i k_{jx}}{\epsilon_j k_{ix} + \epsilon_i k_{jx}}, \quad (\text{适用于 TM 偏振}) \quad (3)$$

i, j 可以取 p, m 和 d, ϵ_i 为介质的介电常数, λ 为入射光在真空中的波长, θ 为入射角, k_{ix} , k_z 分别为波矢 \mathbf{k} 沿 x 方向和 z 方向的分量.将 r_{pmd} 代入 $R = |r_{\text{pmd}}|^2$ 得到图1所示结构的强度反射率 R .

本文使用钠原子气体介质为基底分析介质作为敏感元构造表面等离子体共振传感器.钠原子气体介质的折射率既可以采用经典电磁理论求得^[10],也可以采用量子光学理论求得.下面我们应用量子光学理论求出二能级钠原子气体介质的折射率.当

频率为 ω 的光照射到二能级原子介质上时,可以利用系统的光学布洛赫方程^[11]

$$\dot{\hat{u}} = \hat{\rho}_{\text{ab}} + \hat{\rho}_{\text{ab}} = -(\bar{\omega} - \omega)v - u/T_2, \quad (4)$$

$$\dot{\hat{v}} = i(\hat{\rho} - \hat{\rho}_{\text{ab}}) = (\bar{\omega} - \omega)\bar{u} + \frac{\mu E_0}{\hbar} w - v/T_2, \quad (5)$$

$$\dot{\hat{w}} = \hat{\rho}_{\text{aa}} - \hat{\rho}_{\text{bb}} = -\frac{\mu E_0}{\hbar} v(w - w_0)/T_1. \quad (6)$$

令 $\dot{\hat{u}} = 0$, $\dot{\hat{v}} = 0$, $\dot{\hat{w}} = 0$ 求出稳态解,可得到密度矩阵的矩阵元 $\hat{\rho}_{\text{ab}}$.并根据介质的极化强度

$$P = N\mu\hat{\rho}_{\text{ab}} = \epsilon_0(\chi' + i\chi'')\frac{E_0}{2}, \quad (7)$$

可得

$$\chi = \chi' + i\chi'' = -\frac{\mu^2 D_0 T_2}{\epsilon_0 \hbar} \frac{i + \bar{\Delta}}{1 + \bar{\Delta}^2 + (E_0/E_s)^2} \quad (8)$$

其中 $\Delta = (\bar{\omega} - \omega)2T_2$, $\bar{\omega} = \omega_a - \omega_b$ 为上下两个能级对应的频率差, μ 为跃迁偶极矩阵元, T_2 为上能级寿命(即布居数的弛豫时间), $D_0 = Nd_0$ 为平衡态反转粒子数, N 为钠原子气体密度,通常平衡态时取 $d_0 = -1$.

当入射光强比较小时, E_0/E_s 很小,可以采取线性近似,忽略式中分母中的 $(E_0/E_s)^2$ 项,因此,二能级原子介质的极化率可以写为

$$\chi = \chi' + i\chi'' = -\frac{\mu^2 D_0 T_2}{\epsilon_0 \hbar} \frac{i + \bar{\Delta}}{1 + \bar{\Delta}^2}, \quad (9)$$

于是折射率

$$\begin{aligned} n &= \sqrt{\epsilon_r} = \sqrt{1 + \chi} \\ &= \sqrt{1 - \frac{\mu^2 D_0 T_2}{\epsilon_0 \hbar} \frac{i + \bar{\Delta}}{1 + \bar{\Delta}^2}}, \end{aligned} \quad (10)$$

其中, $\hbar = \frac{6.62 \times 10^{-34}}{2\pi} (\text{J} \cdot \text{s})$, $\epsilon_0 = 8.854187818 \times 10^{-12} (\text{F/m})$,通过查阅文献,选取钠原子气体介质

数据为原子数密度 $N = 3.3 \times 10^{18}/\text{m}^3$, $T_2 = 1/\gamma_2$ ($\gamma_2 = 61.54 \text{ MHz}$), 跃迁偶极矩阵元 $\mu = 3.5247ea_0$, 其中 $e = 1.602176462 \times 10^{-19} \text{ C}$, 第一玻尔半径 $a_0 = 0.5291772083 \times 10^{-10} \text{ m}$, 上下能级的波长间隔 $\Delta\lambda = 589.1571 \text{ nm}$, 可以画出极化率与相对失谐量 $\bar{\Delta}$ 的关系曲线, 见图 2.

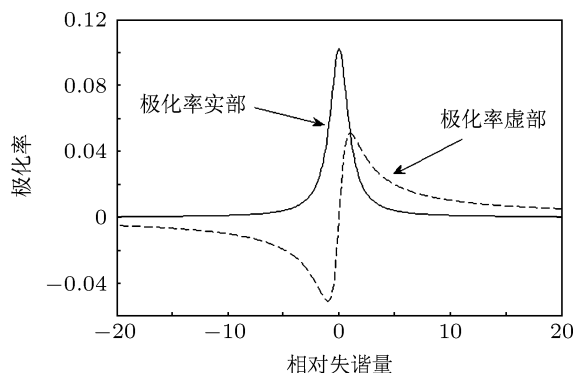


图 2 钠原子气体介质极化率随相对失谐量变化的关系曲线 (原子数密度为 $N = 3.3 \times 10^{18}/\text{m}^3$)

当入射光与钠原子能级共振, 即当 p 偏振入射光波长 $\lambda = 589.1571 \text{ nm}$, 这时相对失谐量 $\bar{\Delta} = 0$, 将其代入 (11) 式中可钠原子介质折射率 $n_{\text{Na}} = 1.0004 + 0.028213i$ 代替图 1 的 Kretschmann 结构中原子介质的折射率 n_d , 棱镜为 BK7 玻璃 (折射率 $n_p = 1.51$), 银层 (介电常数 $\epsilon_m = -13.3 + 0.883i$) 为四种不同厚度, $q = 0 \text{ nm}$ (没有银层), $q = 20 \text{ nm}$, $q = 40 \text{ nm}$, $q = 60 \text{ nm}$, 钠原子气体介质的原子数密度为 $N = 3.3 \times 10^{18}/\text{m}^3$ 时, 绘制出的不同 SPR 系统的反射率与入射角度的关系曲线如图 3 所示.

从图 3 可以看出, 当银层的厚度 $q = 0 \text{ nm}$ 时, 反射率曲线非常类似是一个全反射曲线, 当入射角度大于某个临界角度就会全反射, 这时, 不能在

棱镜和原子气体介质的表面激发表面等离子体. 当 $q = 20, 40, 60 \text{ nm}$ 时, 强度反射率曲线上存在一个明显的谷, 这表明当光在共振角附近入射时, 入射光的能量部分可用于激发表面等离子体波, 因而反射的光能较小. 反射率曲线上的谷对应的横轴坐标即为表面等离子体共振角, 即激发表面等离子体的角度. 可以看出, 四种厚度相比而言, 当 $q = 20 \text{ nm}$ 时, 表面等离子体共振入射角度 $\theta = 44.4^\circ$ 时能够最大地在该 SPR 系统在银层和钠原子气体介质界面激发形成表面等离子体. 还可以发现, 当银层的厚度增加时, 共振耦合角度会有所增加, 反射率曲线谷的宽度和不对称性程度会减小.

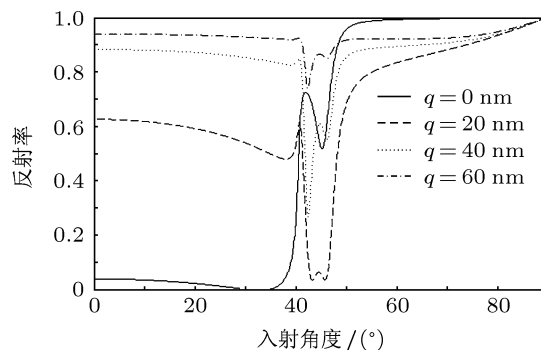


图 3 不同的银层厚度的钠原子气体 SPR 系统反射率曲线 (参数: $N = 3.3 \times 10^{18}/\text{m}^3$, $\epsilon_m = -13.3 + 0.883i$, $n_p = 1.51$, $\lambda = 589.1571 \text{ nm}$)

通过以上分析, 我们将 SPR 系统中的银层厚度选为 $q = 20 \text{ nm}$, 钠原子气体介质的参数与前面相同. 当入射光以 $\theta = 44.4^\circ$ 入射时, 该 SPR 系统的反射率和失谐量的关系曲线如图 4 所示, 其中失谐量为 $(\bar{\omega} - \omega)$, 表示原子上下能级角频率间隔和入射光角频率的差值.

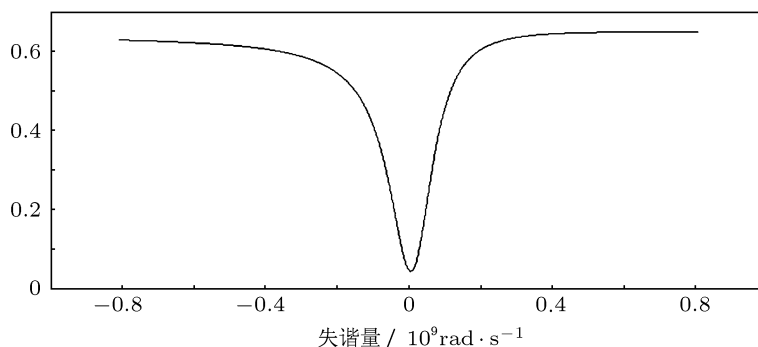


图 4 钠原子气体介质 SPR 系统的反射率与失谐量关系曲线, 其中 $\theta = 44.4^\circ$, 其余参数与图 3 相同

由图 4 可以看出, 考虑共振情况时 (这里的共振包含两层含义: 入射光波长与钠原子两个能级共振, 入射光以共振角度或者接近共振角度入射), 反射率极小对应的失谐量非常接近 0, 而理论上共振时, 反射率最小应该对应的失谐量应该为 0. 这是由于我们选取的共振的入射角度是接近而非精确的共振角度. 因此, 只要非常反射极小的位置失谐量接近 0 就可以认为是共振的. 所以就可以认为前面提到的 SPR 系统工作在共振情况.

对于工作在超低温的真空环境^[12] 之中钠原子气体介质, 选择其工作能级结构如图 5 所示.

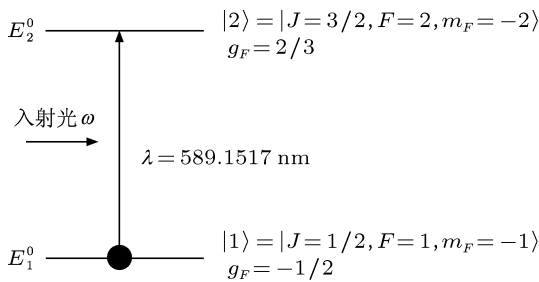


图 5 钠原子工作能级结构

3 应用表面等离子共振效应检测微弱磁场

对于类氢原子, 如钠, 当其处在磁场中时, 会

由于磁场的存在而使得无磁场时的能级发生分裂, 这就是 Zeeman 效应^[10]. 当磁场较小时, 考虑反常 Zeeman 效应, 原始能级的移动的大小与外加磁场的大小成正比. 由于能级的移动导致极化率公式中的相对失谐量发生变化, 从而改变入射光的反射率. 因此可以通过测量的反射率来求出磁场的大小. 这就是利用钠原子气体介质的表面等离子体共振效应测量弱磁场的原理. 当钠原子介质处在比较弱的磁场时, 磁场引起的能级移动相对于超精细能级劈裂而言很小, 可以当作在超精细能级 (能量数值) 上增加一个小的修正量. 由于 z 方向磁场存在而导致的微扰能级 $\Delta E_{|F, m_F\rangle} = \mu_B g_F m_F B_z^{[10]}$, 其中 B_z 为 z 方向的磁感应强度.

加入磁场后, $E_1 = E_1^0 + \Delta E_1$, $E_2 = E_2^0 + \Delta E_2$, 这时, 上下能级角频率差值 $\bar{\omega} = (E_2 - E_1)/\hbar = (E_2^0 - E_1^0 + \Delta E_2 - \Delta E_1)/\hbar$, 因为当无磁场时, SPR 工作在共振情形, 即 $\bar{\omega}_0 - \omega = 0$, 因此加入磁场后的失谐量

$$\Delta = (\bar{\omega} - \omega)2T_2 = (\Delta E_2 - \Delta E_1)2T_2/\hbar = \frac{\mu_B B_z 2T_2}{\hbar} (g_{F'} m_{F'} - g_F m_F), \quad (11)$$

将其代入 (7) 式求出折射率, 可以得到入射光与原子能级共振, 入射角 θ 每次变化 0.2° 取遍 $44.0^\circ - 44.8^\circ$ 时, 该 SPR 系统的反射率与外加磁场的关系曲线如图 6 所示.

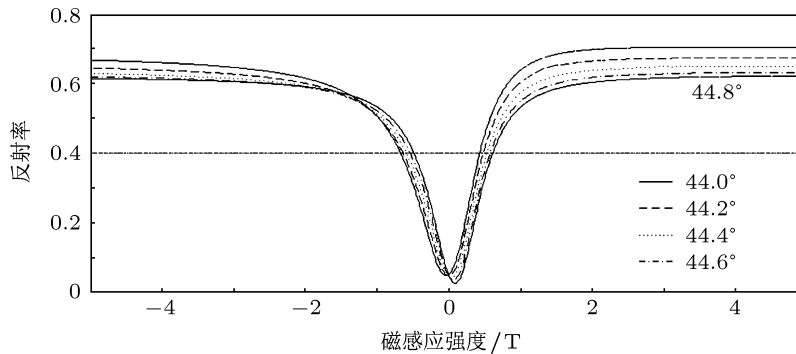


图 6 钠原子气体介质 SPR 系统反射率和外加磁场的关系曲线, 银层厚度 $q = 20 \text{ nm}$, 五条曲线分别对应入射角 $\theta = 44.0^\circ, 44.2^\circ, 44.4^\circ, 44.6^\circ, 44.8^\circ$, 相邻两条曲线的角度间隔为 0.2° , 其余参数与图 3 相同

图 6 中的 $\theta = 44.4^\circ$ 的反射率曲线就是前面图 4 得到的共振情况下的反射率处曲线, 我们选择的外加磁场范围为 $(-5 \times 10^{-3}, 5 \times 10^{-3})$. 结合不同入射角度 (共振角度附近) 的 SPR 系统的反射率曲线, 可以看出, 当磁场在 $(-3 \times 10^{-3}, 2 \times 10^{-3})$ 范围内

时, 即当 SPR 系统得到的反射率数值为小于 0.5 时, 磁场改变很小的量, 能够引起反射率变化很大. 这时该 SPR 系统对微弱磁场探测的灵敏度很高, 能够精确测量微弱磁场. 在实验时, 我们将某一入射角度下得到的反射率值与图 6 中的反射率绿线曲线

对应,可能会得到两个异号的磁场强度,只需将入射光的入射角度增大(或减小)到某一个入射角度时,对比这两条反射率曲线,观察得到的反射率是变成什么数值,从而确定磁场强度的数值.例如,当 $\theta = 44.4^\circ$ 时,假设我们的SPR系统得到了一个反射率数值为0.4,对应反射率曲线上的两个磁场强度大概为 -0.77×10^{-3} 和 0.82×10^{-3} ,将SPR系统入射角度增大到 $\theta = 44.8^\circ$ 放置后,若得到的反射率变大为0.4213,则磁场强度为 -0.77×10^{-3} ,若得到的反射率变小为0.3916,则磁场强度为 0.82×10^{-3} ,从而实现了对外加微弱磁场的测量.

4 讨论

以上分析得到的一个重要结果是入射光反射率依赖于外磁场的磁感应强度,这是由于我们所研究的SPR系统中包含具有能级结构的量子介质(如原子气体),于是存在能级的共振跃迁,在尖锐共振情况下该介质的介电常数对能级移动敏感,而表面等离子体共振效应又导致入射光的反射率对该介电常数敏感,结果,在两种共振(量子跃迁共振和表面等离子体共振)条件都满足时,入射光的反射率就强烈依赖于能级移动,最终依赖于引起能级移动的外场.这是通常SPR系统所不具有的新性质(因为通常的SPR系统没有具有分立能级的量子介质,无法产生尖锐的量子共振跃迁).

当然,从图6也可以看出,该测量方法是有一定的适用范围的,即适用于反射率曲线变化较快的部分所对应的磁场区间的测量.对于处于 $(-3 \times 10^{-3}, 2 \times 10^{-3})$ 之外的磁场强度的测量则可以利用非共

振情况下的反射率曲线加以确定.而且,该方案所使用的用于探测反射光光强的光强计的分辨率和灵敏度越高,得出的磁场强度数值也越准确.将表面等离子体技术用于磁场强度测量的优点是灵敏度高,并可以测量极其微弱的磁场.因此该系统有可能用于新型磁强计.并且,表面等离子体波具有局域分布的特性,其分布深度可小于波长量级,突破衍射极限,所实现的测量是局域化的测量(具有亚波长解析度),即可以测得空间各个微小部分磁场的变化.本文中,我们只是讨论磁场对系统反射率的影响,当然也可以利用该SPR系统可用于检测物质量子特性(如原子能级的移动)的特点利用斯塔克效应实现对外加电场的高灵敏度的测量.因此这种新型SPR系统可以用作微弱外场的测量,并且其空间分辨率可以突破衍射极限的限制.

5 结论

我们提出了一种新型表面等离子体共振(SPR)系统,该系统包含三层结构:棱镜、金属薄膜及原子介质(本文以钠原子气体为例).理论研究发现:由于同时存在两种共振效应(量子共振跃迁和等离子体激元的共振激发),这一系统出现丰富的物理现象,其中的一个重要现象是反射光的光强对原子的能级移动十分敏感(该能级移动由外场所致).于是,该系统与通常SPR系统相比具有一个全新的潜在应用,即有可能发展成为一种基于SPR的新型场探测器(如SPR磁强计),其对场强变化具有高灵敏响应,并且能够实现高局域化测量(空间解析度能够突破光衍射极限限制).

-
- [1] Huang Q, Xiong S Z, Zhao Y, Zhang X D 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 157801 (in Chinese) [黄茜,熊绍珍,赵颖,张晓丹 2012 物理学报 **61** 157801]
- [2] Long Y B, Zhang J, Wang G P 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 7722 (in Chinese) [龙佣兵,张剑,汪国平 2009 物理学报 **58** 7722]
- [3] Homola J, Yee S S, Gauglitz G 1999 *Sensors and Actuators B* **54** 3
- [4] Ordal M A, Long L L, Bell R J, Bell S E, Bell R R, Alexander R W, Ward J, Ward C A 1983 *Appl. Opt.* **11** 1099
- [5] Homola J 2006 *Springer Ser Chen Biosens* **4** 3
- [6] Kretschmann E, Raether H 1968 *Z. Naturforsch.* **23A** 2135
- [7] Le Persona J, Colas F, Compèrea C, Lehaitre M, Anne M L, Boussard-Plédel C, Bureau B, Adam J L, Deputier S, Guilloux-Viry M 2008 *Sensors and Actuators B: Chemical* **130** 771
- [8] Melendez J, Carr R, Bartholomew D U 1996 *Sensors and Actuators B* **35-36** 212
- [9] Melendez J, Carr R, Bartholomew D U, Taneja H, Yee S, Jung C, Furlong C E 1997 *Sensors and Actuators B* **39** 375
- [10] Liu J K 2005 *Optical Technique* **31** 557 (in Chinese) [刘建科 2005 光学技术 **31** 557]
- [11] Li F L 2006 *Advanced Laser Physics* (2nd Edn.) (Beijing: Higher Education Press) p49 (in Chinese) [李福利 2006 高等激光物理(第二版)(北京:高等教育出版社)第49页]
- [12] Hau L V, Harris S E, Dutton Z, Behroozi C H 1999 *Nature* **397** 594

New application of surface plasmon resonance—measurement of weak magnetic field*

Jing Qing-Li Du Chun-Guang[†] Gao Jian-Cun

(State Key Laboratory of Low-Dimensional Quantum Physics, Department of Physics, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

(Received 25 June 2012; revised manuscript received 30 August 2012)

Abstract

In this paper, we present a new kind of surface plasma resonance (SPR) sensor. It comprises three layers, an upper coupling prism, a middle metal layer, and a bottom semi-infinite two-level atom medium. Based on theoretical analysis on this SPR system, it is found that there are some new phenomena due to the coexistence of two resonant effects, i.e., the surface plasmon resonance and the resonant quantum transition between atomic energy levels. An interesting phenomenon is that the reflectivity of the incident light is very sensitive to the shift of atomic level induced by external field. This phenomenon is absent in ordinary SPR systems. Because the shift of atomic level is determined by external field, ultimately, the reflectivity of the incident light is sensitive to the external field. In this paper calculations are presented in the case where the external field is a magnetic field. It is found that the reflectivity of the incident light is very sensitive to the magnetic field. This property can be used for measuring a very weak magnetic field near surface of matter, thus it can be used for developing a new detection technology.

Keywords: surface plasmon resonance, Zeeman effect, quantum medium

PACS: 73.20.-r, 41.20.-q, 42.25.Bs

DOI: 10.7498/aps.62.037302

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11274197, 10504016) and the National Basic Research Program of China (Grant No. 2010CB922904).

[†] Corresponding author. E-mail: ducg@mail.tsinghua.edu.cn