

A Study of the Dependence on Incidence Angle of the Sensitivity of an Extraordinary Optical Transmission Sensor

Yongjae Kwon¹, Seunghun Lee¹, Taeyeon Kim¹, and Kyujung Kim^{1,2†}

¹Department of Cogno-Mechatronics Engineering, Pusan National University, Busan 46241, Korea

²Department of Optics and Mechatronics Engineering, Pusan National University, Busan 46241, Korea

(Received February 10, 2021; Revised March 18, 2021; Accepted March 22, 2021)

In this research, we have investigated the sensitivity of an extraordinary optical transmission sensor depending on the angle of incident light. Three types of light, including a collimated beam and focused beams (4× and 10×), were designed for the sensor system. To compare the sensitivity of the sensor, we measured transmittance spectra using deionized water ($n=1.333$) and refractive-index-matching oils ($n=1.360$ and 1.380). Those spectra were analyzed in terms of redshifting of the peak, so that we could determine the sensitivity. The sensitivity tended to increase when the collimated beam is used on the system, and we have concluded that the sensitivity could be affected by the incidence angle on an extraordinary optical transmission sensor.

Keywords: Extraordinary optical transmission, Subwavelength nano hole array, Plasmonics, Collimated beam, Focused beam

OCIS codes: (250.5403) Plasmonics; (280.4788) Optical sensing and sensors; (310.6628) Subwavelength structures, nanostructures

특이 광 투과 센서에서 민감도의 입사각 의존성 연구

권용재¹ · 이승훈¹ · 김태연¹ · 김규정^{1,2†}

¹부산대학교 인지메카트로닉스공학과

☎ 46241 부산광역시 금정구 부산대학로 63번길 2

²부산대학교 광메카트로닉스공학과

☎ 46241 부산광역시 금정구 부산대학로 63번길 2

(2021년 2월 10일 받음, 2021년 3월 18일 수정본 받음, 2021년 3월 22일 게재 확정)

본 논문에서는 특이 광 투과 현상 센서에서 보조 파장 홀 패턴에 입사되는 광원의 각도 조절을 통해 센서의 민감도를 측정 및 분석하여 이를 극대화할 수 있는 방법을 고안하였다. 입사파 광원을 평행화된 광원과 각도가 서로 다른 두 개의 집속화된 광원 총 3개의 광원을 시스템적으로 설계하여 서로 다른 각도로 보조 파장 홀 패턴에 입사되게 제작하였다. 그리고 증류수($n=1.333$)와 굴절률 정합액($n=1.360, 1.380$)을 사용하여 투과 스펙트럼을 측정하고 센서의 민감도를 계산한 결과 평행화된 광원을 사용하였을 때 센서의 민감도가 향상됨을 확인하였다.

Keywords: 특이 광 투과 현상, 보조 파장 홀 패턴, 플라즈모닉스, 평행화된 광원, 집속화된 광원

OCIS codes: (250.5403) Plasmonics; (280.4788) Optical sensing and sensors; (310.6628) Subwavelength structures, nanostructures

I. 서 론

코로나바이러스감염증-19 (COVID-19)로 인해 세계적으로 사람들이 이 질병에 감염되어 심하게는 사망에 이르게 되

며, 세계보건기구(WHO)는 COVID-19가 범유행 전염병(팬데믹)임을 선언하였다^[1]. 이러한 상황 속에서 바이러스와 같은 질병들을 더욱 빠르고 정확하게 실시간으로 감지할 수 있는 바이오 센서 개발의 필요성이 대두되고 있다. 특히 바이러스

[†]E-mail: k.kim@pusan.ac.kr, ORCID: 0000-0002-0913-2291

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

와 같은 작은 크기의 물질을 감지하기 위해서는 민감도가 높은 센서를 개발하는 것이 필수적이다^[2,3].

바이오센서는 1950년대 클락(Clack)에 의해서 포도당 측정을 위해 개발된 글루코오스 센서를 시작으로 지금까지 꾸준히 개발되어 왔다. 바이오센서의 원리는 병원균, 바이러스, 혈당과 같은 분석하고자 하는 물질이 효소, 항체와 같은 생체 수용체와 선택적으로 반응하는 것으로, 이 과정에서 발생하는 생물학적 신호를 변환기를 통해 측정하게 되며 측정방식은 크게 광학적 측정 방식, 전기화학적 측정 방식으로 나뉜다^[4,5].

광학적 측정 방식을 이용한 바이오 센서는 높은 선택성과 민감도를 가진다는 큰 장점이 있다^[6]. 대표적인 예로 특이 광 투과(extraordinary optical transmission, EOT) 현상을 이용한 바이오 센서가 있다^[7]. 일반적으로 아주 작은 구멍에서는 빛이 통과하지 못한다고 알려진 결과와 다르게 에비슨(Ebbesen) 연구팀은 빛의 파장보다 작은 크기를 가지는 연속적인 보조파장 홀(subwavelength hole)에서 빛이 투과할 때는 빛이 투과하는 특이 현상을 발견하였다^[8,9]. 이러한 현상은 빛과 금속이 상호작용하여 금속 내의 자유전자들이 집단적으로 진동하여 만들어낸 표면 플라즈몬(surface plasmon, SP)에 의해서 나타난다. 이때, 표면 플라즈몬은 입사평면과 평행하게 진동하게 되고, 이로 인해 금속 표면 위에는 표면 플라즈몬-폴라리톤(surface plasmon-polaritons, SPPs)이 형성된다^[10,11]. 이때, 표면 플라즈몬-폴라리톤 파장이 금속 표면 위의 나노 홀 어레이의 주기와 일치하게 되면 특이 광 투과 현상이 일어나게 된다^[12,13].

특이 광 투과 현상처럼 플라즈모닉스 효과를 이용한 센서에서 민감도 측정은 굴절률의 변화 대비 투과 스펙트럼 파장이 적색편이되는 정도에 따라 결정된다. 민감도의 경우 금속의 유전율과 홀 사이즈, 주기 그리고 모양과 같은 파라미터에 의해 달라진다^[14-16]. 또한, 특이 광 투과 현상을 연구할 때 나노 홀 어레이에 정확하게 빛을 집속시키기 위해 대물렌즈를 사용한다. 이때, 광원이 입사되는 과정에서 각도가 커지면서 특이 광 투과현상 효과가 감소하여 센서의 민감도에도 영향을 미치는 경향이 있다^[17,18].

본 논문에서는 입사 광원의 각도를 최소화하여 특이 광 투과 현상의 투과 스펙트럼을 측정, 분석하였다. 먼저 지름이 250 nm, 주기가 550 nm인 나노 홀 어레이 패턴을 가지는 기판을 제작하고, 이어 입사각의 각도를 조절할 수 있는 시스템을 제작하였다. 평행화된 광원(collimated beam)과 집속화된 광원(focused beam)을 이용하여 입사각도에 차이를 두었고 이를 통해 투과 스펙트럼을 측정하여 민감도와 반치전폭(full width at half maximum, FWHM)을 분석하였다. 이를 바탕으로 광원의 각도에 따른 센서의 민감도를 비교해보고자 한다.

II. 실험

2.1. 특이 광 투과 현상 기반 센서 시스템 제작

특이 광 투과 스펙트럼을 측정하기 위해 광학 시스템을 그림 1과 같이 설계하였다. 본 광학 시스템에서는 광원으로 백색광 HL-2000 (Ocean Optics Inc., FL, USA)을 사용하였고 3개의 렌즈에 의해 광원이 평행을 이루도록 설계하였다. 그 후 광원은 편광자를 통과하여 TM (transverse magnetic) 파 형태로 바뀌게 되며 이 광원은 홀 어레이 패턴에 조사된다. 입사 각도에 따른 차이를 광원 세 가지로 구분하였으며, 그림 1(a)와 같이 평행화된 광원과 그림 1(b)의 집속화된 광원을 제작하였다. 그림 1(a)의 경우 입사 각도를 최소화하였으며, 그림 1(b)는 대물렌즈(numerical aperture, NA: 0.10) 4배와 대물렌즈(NA: 0.28) 10배를 사용하였다. 이때, 그림 1(b)에서 배율이 4배인 대물렌즈에서는 입사각도가 0도부터 최대 6도의 광원이 입사하고, 배율이 10배인 대물렌즈에서는 0도부터 16도의 광원이 입사하게 된다. 나노 홀 어레이 패턴을 투과한 빛은 20배 배율 대물렌즈(NA: 0.40)와 분광기 USB2000+ (Ocean Optics Inc., FL, USA)를 통해 수집하여 투과 스펙트럼을 측정하였다.

2.2. 나노 홀 어레이 패턴 제작

지름이 250 nm, 주기가 550 nm인 나노 홀 어레이 패턴을 제작하기 위해 전자 빔 리소그래피 공정과 리프트 오프 공정을 사용하였다. 먼저 BK7 유리기판을 세척한 후, Cr 10 nm와 Au 10 nm를 물리 기상 증착(physical vapor deposition) 방식인 전자 빔 증발법(E-beam evaporation)과 열 증발법(thermal evaporation)을 혼용하여 증착하였다. Cr은 접착층으로서 BK7 유리기판과 금을 접촉하기 위해 사용하였다. 이 기판 위에 네거티브 전자빔 레지스트 AR-N 7520.17 new (Allresist, Brandenburg, Germany)를 4,000 rpm 조건으로 코팅하였고 85 °C에서 1분 동안 열처리를 하였다. 그 후, 전자 빔 리소그래피 공정을 통해 나노 홀 어레이 패턴에 맞게 리소그래피 공정을 진행한 후 현상하였다. 그리고 다시 열 증발법을 이용하여 Au 100 nm를 증착하였고, 리프트-오프(lift-off) 공정을 진행하여 샘플을 제작하였다. 전자 빔 리소그래피 과정에서는 프로그램 상으로 정확하게 250 nm의 지름을 가지는 홀 사이즈를 설정하였지만, 전자 빔 레지스터에 노광을 할 당시 표면과 광원의 반응에 따라 결과적으로 얻어지는 나노 홀 사이즈의 크기는 그림 2(8)의 SEM 이미지와 같이 오차가 있음을 확인할 수 있었으며, 이러한 오차에 의해 실험과 시뮬레이션 상에서의 차이를 확인할 수 있었다.

2.3. FDTD 시뮬레이션

나노 홀 어레이 패턴에서의 특이 광 투과 스펙트럼 분석을

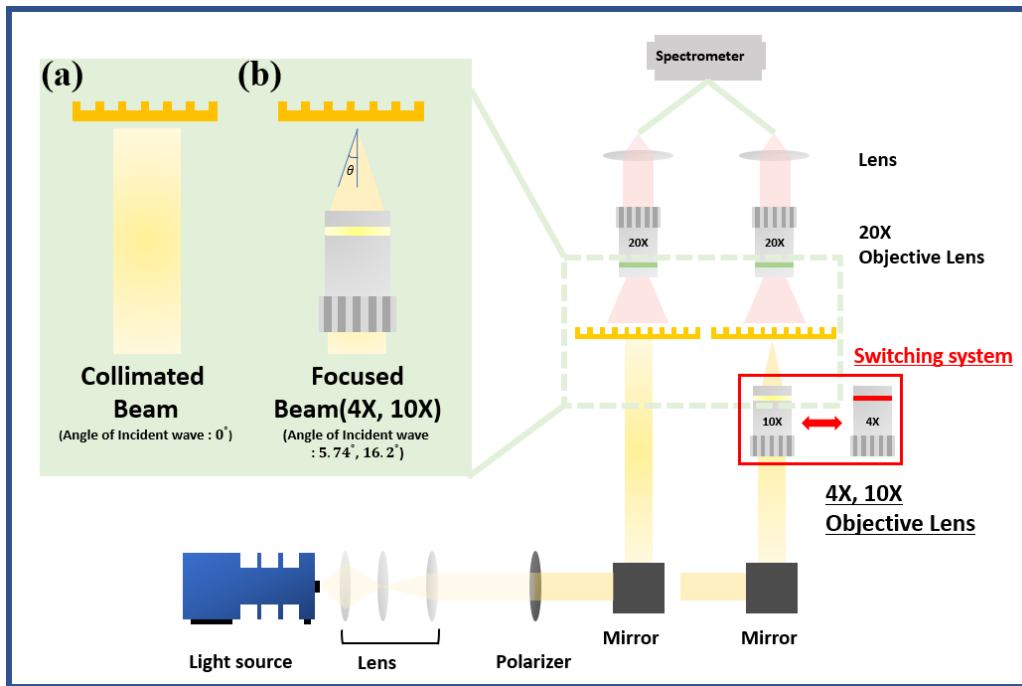


Fig. 1. Schematic of the sensor system based on extraordinary optical transmission. (a) Collimated beam and (b) focused beam having two different angles of incident wave.

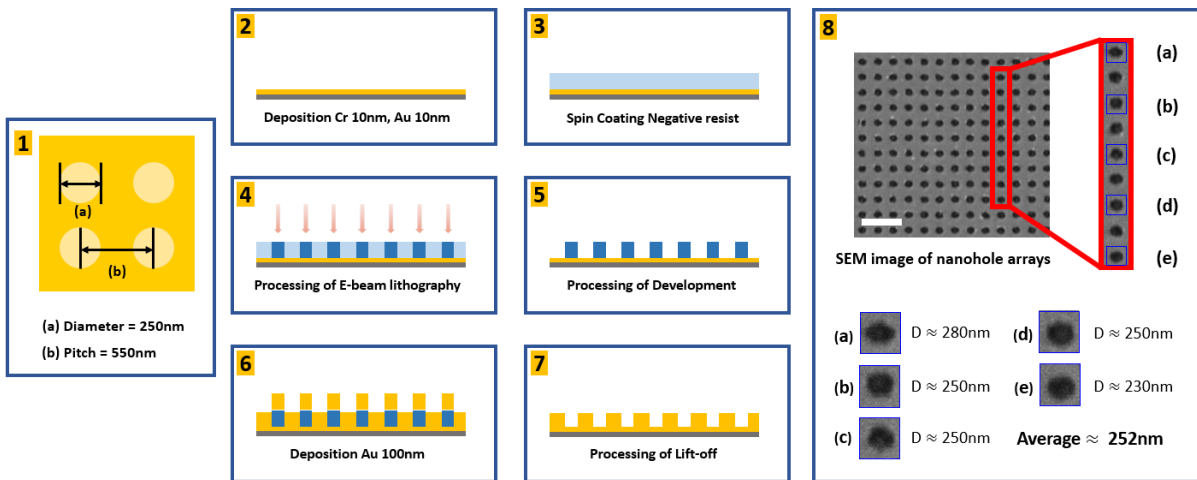


Fig. 2. Process of fabricating the subwavelength nano hole arrays. (1) The image of nanohole array patten; diameter 250 nm and pitch 550 nm, (2) deposition of Cr 10 nm and Au 10 nm on BK7, (3) spin coating of negative E-beam resist, (4) processing of E-beam lithography, (5) processing of development, (6) deposition of Au 100 nm, (7) processing of lift-off, and (8) the SEM image of nanohole arrays. The scale bar is 1 μm and the hole diameter is calculated by using the SEM.

위해 유한차분시간영역법(finite-difference time-domain method, FDTD)을 이용하여 시뮬레이션을 진행하였다. 입사파의 각도 변화에 따른 투과 스펙트럼 및 민감도 차이를 분석하기 위해 크게 두 가지 경우로 나누어 시뮬레이션을 진행하였다. 먼저 공통되는 부분인 나노 홀 패턴은 지름 250 nm와 주기 550 nm로 설정하였고, 광원은 TM파를 사용하였다.

평행화된 광원은 입사 각도를 0도로 평행하게 빛이 입사되도록 설정하였고 집중화된 광원은 0도부터 6도(대물렌즈 4배, NA: 0.10)와 16도(대물렌즈 10배, NA: 0.28) 총 두 개의 입사 각도를 설정하였다. 그 후, 각도별로 계산된 스펙트럼의 결과값 평균을 구하여 전체적인 집중 광원의 스펙트럼을 구현하였다. 각도별로 나누어진 입사각은 플라즈모닉 현상 내에서

스펙트럼의 위상차와 분산 같은 현상에 영향을 주었으며 이를 평균화함으로써 전체 스펙트럼 위상 감소에 대한 부분들이 함께 계산되었다^[19]. 이후 나노 홀 어레이 패턴 위의 굴절률을 1.333에서 1.360, 1.380으로 변화시켰을 때의 투과 스펙트럼을 얻은 후 각 조건에서의 민감도를 계산하였다.

III. 결과 및 고찰

특이 광 투과 현상을 이용한 센서에서 입사각의 각도에 따른 민감도를 비교하기 위해서 광원을 평행화된 광원과 두 개의 집속화된 광원(각각 대물렌즈 배율 4배, 10배)으로 구분하고, 총 세 개의 광원을 이용하여 투과 스펙트럼을 측정 후 분

석을 하였다. 나노 홀 어레이 패턴 위의 물질에 의한 굴절률의 변화를 이용하여 민감도를 측정하기 위해 서로 다른 굴절률을 가지는 물질 DI water ($n=1.333$), 굴절률 정합액(refractive index matching oil, $n=1.360, 1.380$)을 이용하여 센서의 민감도를 측정하였다.

그림 3은 파장에 따른 투과 스펙트럼의 세기 측정 결과이며 그림 3(a)는 10배 집속화된 광원, 그림 3(b)는 4배 집속화된 광원을 사용하였을 때의 투과 스펙트럼, 그림 3(c)는 평행화된 광원을 사용하였을 때 얻은 투과 스펙트럼이다. 검은색 선은 굴절률이 1.333인 증류수를 사용하였을 때 얻은 투과 스펙트럼이고, 빨간색과 파란색 선은 굴절률이 각각 1.360, 1.380인 굴절률 정합액을 사용하였을 때 얻은 투과 스펙트럼이다.

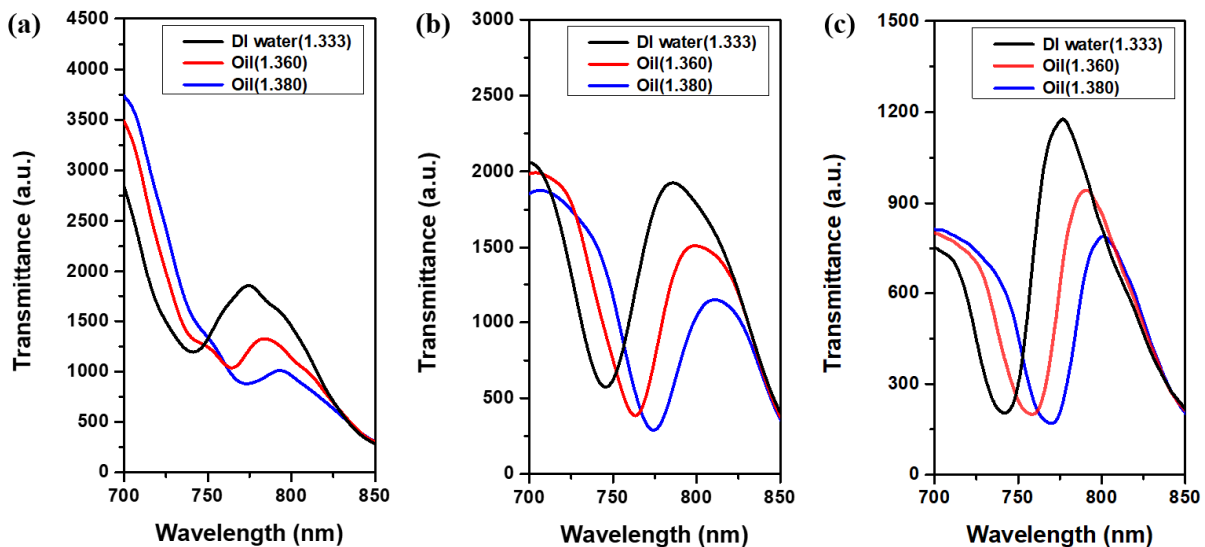


Fig. 3. Experimental results of transmission spectra of (a) focused beam (10×), (b) focused beam (4×), and (c) collimated beam when using DI water; $n=1.333$ and the refractive index matching oil; $n=1.360$ and 1.380 .

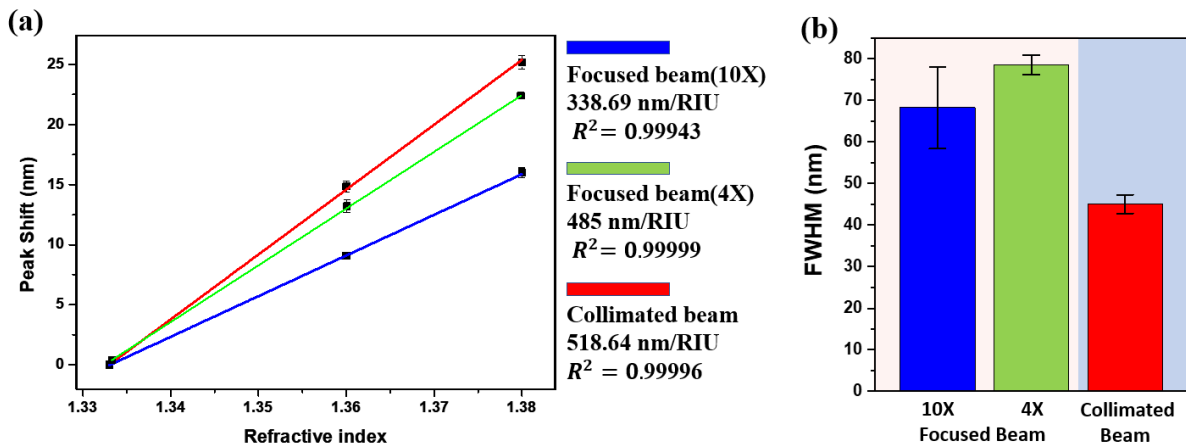


Fig. 4. Experimental results. (a) Calibration plot of sensitivity. (b) Calculated FWHM (blue line, focused beam (10×); green line, focused beam (4×); red line, collimated beam).

먼저 집속화된 광원에서의 결과를 보면, 그림 3(a)에서 증류수를 사용하였을 때 투과 스펙트럼의 최대 피크 파장은 776.28 nm이며, 굴절률이 1.360, 1.380인 굴절률 정합액을 사용하였을 때는 각각 785.36 nm, 792.29 nm에서 피크 파장이

측정되었다. 그림 3(b)에서 증류수를 사용하였을 때 투과 스펙트럼의 최대 피크 파장은 790 nm이며, 굴절률이 1.360, 1.380인 굴절률 정합액을 사용하였을 때는 각각 803.26 nm, 812.79 nm에서 피크 파장이 측정되었다. 평행화된 광원을

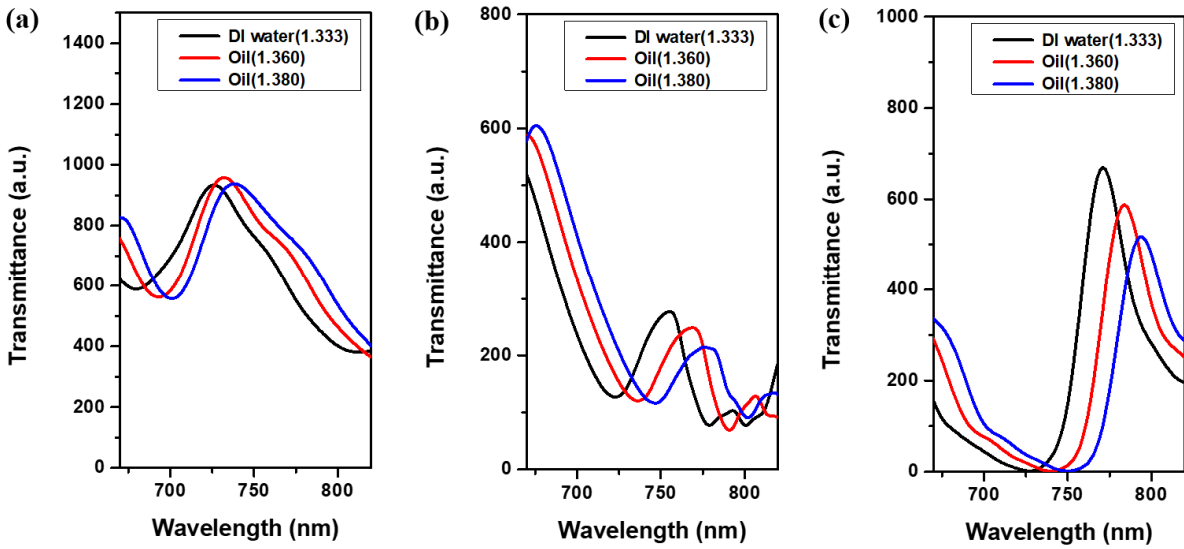


Fig. 5. Simulation results of transmission spectra of (a) focused beam (10×), (b) focused beam (4×), and (c) collimated beam when using DI water; $n = 1.333$ and the refractive index matching oil; $n = 1.360$ and 1.380 .

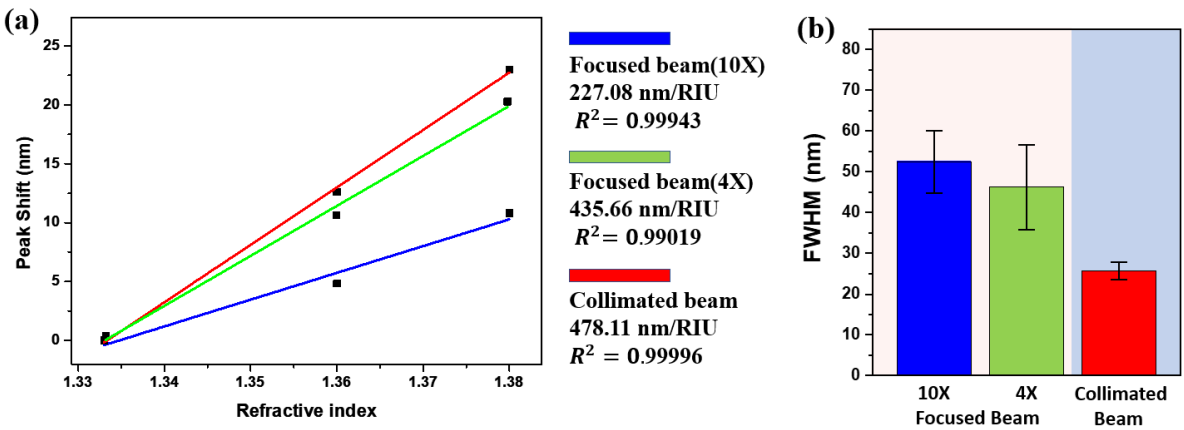


Fig. 6. Simulation results. (a) Calibration plot of sensitivity. (b) Calculated FWHM (blue line, focused beam (10×); green line, focused beam (4×); red line, collimated beam).

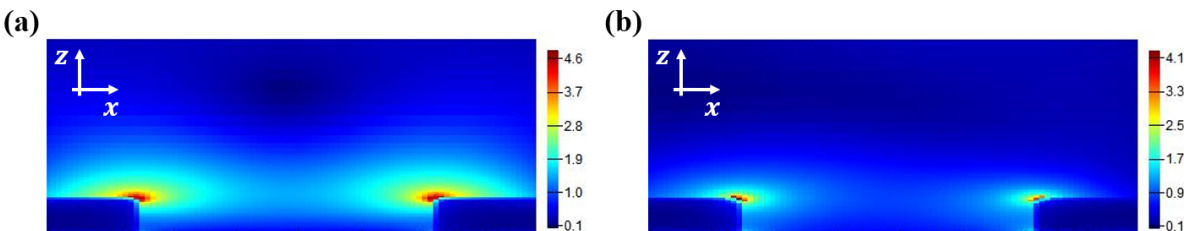


Fig. 7. Intensity of near field on a subwavelength hole. (a) Collimated beam. (b) Focused beam.

이용한 그림 3(c)에서는 증류수를 사용하였을 때 투과 스펙트럼의 최대 피크의 파장이 776.36 nm, 굴절률 정합액 1.360 과 1.380에서는 791.20 nm, 801.51 nm에서 피크 파장이 측정되었다.

그림 4(a)는 실험 결과를 바탕으로 센서의 민감도를 계산한 결과이며 그림 4(b)는 반치전폭을 구한 결과이다. 그림 4(a)에서 집속화된 광원을 사용하였을 때, 10배 집속화된 광원(파란선)을 사용하였을 때 센서의 민감도는 338.69 nm/RIU로 측정되었으며, 4배 집속화된 광원(초록선)에서는 485 nm/RIU, 평행화된 광원(빨간선)에서는 민감도가 518.64 nm/RIU로 측정되었다. 반치전폭의 경우 10배 집속화된 광원에서 68.24 nm, 4배 집속화된 광원에서는 78.54 nm, 평행화된 광원을 사용하였을 때 45.06 nm로 측정되었다. 이 결과를 토대로, 집속화된 광원을 사용한 경우와 평행화된 광원을 사용한 경우를 비교하면 반치전폭이 각각 약 23.18 nm, 33.46 nm으로, 평행화된 광원에서 반치전폭이 더 좁은 것을 확인할 수 있었다. 결론적으로, 평행화된 광원을 사용하였을 경우 민감도가 179.95 nm/RIU으로, 10배 집속화된 광원을 사용하였을 때 대비 46.29% 향상되었다. 반면에, 4배 집속화된 광원을 사용하였을 경우와 대비하였을 경우에는 33.64 nm/RIU으로 6.4% 향상됨을 확인하였다.

그림 5는 FDTD 시뮬레이션 결과이며 그림 5(a)는 10배 집속화된 광원, 그림 5(b)는 4배 집속화된 광원, 그림 5(c)는 평행화된 광원을 설정하여 얻은 투과 스펙트럼이다. 그림 5(a)에서 증류수, 굴절률 정합액($n=1.360, 1.380$)의 투과 스펙트럼이 최대가 되는 지점은 각각 725.7 nm, 730.52 nm, 736.51 nm이며, 그림 5(b)에서는 752.96 nm, 763.54 nm, 773.56 nm, 그림 5(c)에서는 각각 771.8 nm, 784.42 nm, 794.75 nm로 나타났다.

그림 6은 시뮬레이션 결과로 센서의 민감도와 반치전폭을 계산한 결과이다. 그림 6(a)에서 10배와 4배 집속화된 광원에서는 민감도가 각각 227.08 nm/RIU, 435.66 nm/RIU의 민감도를, 평행화된 광원에서는 478.11 nm/RIU의 민감도를 얻었다. 민감도의 차이는 각각 251.03 nm/RIU, 42.45 nm/RIU로서 평행화된 광원에서 더 높은 민감도를 가지는 것을 시뮬레이션에서도 확인할 수 있었다. 반치전폭은 10배와 4배 집속화된 광원에서 52.42 nm, 46.24 nm로 나타났고, 평행화된 광원에서는 25.74 nm로 평행화된 광원에서 스펙트럼의 폭이 더 좁은 것을 알 수 있었다.

실험과 시뮬레이션으로 계산한 민감도를 바탕으로 상대오차의 백분율을 계산해보면, 4배 대물렌즈의 경우 11.32%, 10배 대물렌즈에서는 49.15%, 평행화된 광원에서는 8%의 결과값이 나타났다.

그림 7은 시뮬레이션으로 각도에 따라 나노 홀에서 나타나는 근접장의 세기를 계산한 결과이다. 그림 7(a)의 그림은

입사 각도가 0도일 때, 그림 7(b)는 입사 각도가 16도일 때의 근접장의 세기이다. 그림 7(a)의 경우 근접장의 최대 세기는 4.1×10^{-3} V/m으로 계산되었고 그림 7(b)의 경우 4.6×10^{-3} V/m로 계산되었다. 이로 인해 입사각도가 0도일 때 근접장의 세기가 최대로 나타났다. 이를 통해 입사각도가 작아질수록 나노 홀 어레이 패턴에서 근접장의 세기가 최대가 되며, 에너지의 손실이 적다는 것을 확인하였다.

IV. 결 론

본 연구에서는 특이 광 투과 현상을 이용한 센서에서 나노 홀 어레이 패턴에 입사되는 광원의 각도에 따른 센서의 민감도를 비교해보았다. 특히, 기존의 샘플 내의 다양한 파라미터에 변화를 주는 방식 대신 샘플 외부의 요소인 입사 각도에 변화를 주었을 경우의 민감도의 변화를 측정해 보았다. 먼저 나노 홀 어레이 패턴을 제작하였고, 이후 투과 스펙트럼을 측정할 수 있는 시스템을 제작하였다. 평행화된 광원에서는 센서의 민감도가 518.64 nm/RIU, 4배 집속화된 광원에서는 민감도가 485 nm/RIU, 10배 집속화된 광원에서는 민감도가 338.69 nm/RIU으로 측정되어 10배 집속화된 광원과 비교하였을 시 평행화된 광원에서 민감도가 46.29% 향상됨을 확인하였다.

이를 통해 나노 홀 어레이 패턴의 다양한 파라미터를 바꾸는 대신 입사광원의 각도를 최소화함으로써 센서의 민감도가 향상되어 물질을 측정할 수 있는 범위가 다소 증가되었음을 확인할 수 있었다.

감사의 글

이 논문은 부산대학교 기본연구지원사업(2년)에 의하여 연구되었음.

References

1. M. Asif, M. Ajmal, G. Asharf, N. Muhammad, A. Aziz, T. Ifikhar, J. Wang, and H. Liu, "The role of biosensors in coronavirus disease-2019 outbreak," *Curr. Opin. Electrochem.* **23**, 174-184 (2020).
2. J. R. Choi, "Development of point-of-care biosensors for COVID-19," *Front. Chem.* **8**, 517 (2020).
3. R. Samson, G. R. Navale, and M. S. Dharne, "Biosensors: frontiers in rapid detection of COVID-19," *3 Biotech.* **10**, 385 (2020).
4. S. Bahl, M. Javaid, A. K. Bagha, R. P. Singh, A. Haleem, R. Baishya, and R. Suman, "Biosensors applications in fighting COVID-19 pandemic," *Apollo Medicine* **17**, 221-223 (2020).
5. S. K. Metkar and K. Girigoswami, "Diagnostic biosensors in

- medicine—a review,” *Biocatal. Agric. Biotechnol.* **17**, 271-283 (2019).
6. A. Banerjee, S. Maity, and C. H. Mastrangelo, “Nanotechnology for biosensors: a review,” arXiv: 2101.02430 (2021).
 7. A. M. Shrivastav, U. Cvelbar, and I. Abdulhalim, “A comprehensive review on plasmonic-based biosensors used in viral diagnostics,” *Commun. Biol.* **4**, 70 (2021).
 8. H. A. Bethe, “Theory of diffraction by small holes,” *Phys. Rev.* **66**, 163 (1944).
 9. T. W. Ebbesen, H. J. Lezec, H. F. Ghaemi, T. Thio, and P. A. Wolff, “Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays,” *Nature* **391**, 667-669 (1998).
 10. J.-H. Choe and J. T. Kim, “Design of vanadium dioxide-based plasmonic modulator for both TE and TM modes,” *IEEE Photon. Technol. Lett.* **27**, 514-517 (2014).
 11. J.-Y. Li, Y.-L. Hua, J.-X. Fu, and Z.-Y. Li, “Influence of hole geometry and lattice constant on extraordinary optical transmission through subwavelength hole arrays in metal films,” *J. Appl. Phys.* **107**, 073101 (2010).
 12. X. Zhang, G. Liu, Z. Liu, Y. Hu, Z. Cai, X. Liu, G. Fu, and M. Liu, “Near-field plasmon effects in extraordinary optical transmission through periodic triangular hole arrays,” *Opt. Eng.* **53**, 107108 (2014).
 13. R. Gordon, D. Sinton, K. L. Kavanagh, and A. G. Brolo, “A new generation of sensors based on extraordinary optical transmission,” *Acc. Chem. Res.* **41**, 1049-1057 (2008).
 14. W. Yue, Z. Wang, Y. Yang, J. Li, Y. Wu, L. Chen, B. Ooi, X. Wang, and X.-X. Zhang, “Enhanced extraordinary optical transmission (EOT) through arrays of bridged nanohole pairs and their sensing applications,” *Nanoscale* **6**, 7917-7923 (2014).
 15. M. Irannejad and B. Cui, “Effects of refractive index variations on the optical transmittance spectral properties of the nanohole arrays,” *Plasmonics* **8**, 1245-1251 (2013).
 16. B. Dionne, L. Guyot, S. Patskovsky, R. Gordon, and M. Meunier, “Intensity based surface plasmon resonance sensor using a nanohole rectangular array,” *Opt. Express* **19**, 15041-15046 (2011).
 17. M. Eitan, Z. Iluz, Y. Yifat, A. Boag, Y. Hanein, and J. Scheuer, “Degeneracy breaking of Wood’s anomaly for enhanced refractive index sensing,” *ACS Photonics* **2**, 615-621 (2015).
 18. M. Couture, Y. Liang, H. Richard, R. Faid, W. Peng, and J. Masson, “Tuning the 3D plasmon field of nanohole arrays,” *Nanoscale* **5**, 12399-12408 (2013).
 19. N. Anh, B. Chun, S. Choi, D. Kim, S. Kim, and Y. Kim, “Plasmonic dynamics measured with frequency-comb-referenced phase spectroscopy,” *Nature Phys.* **15**, 132-137 (2019).