

双折射晶体中的“面—体”复合型 双曲极化激元

李培宁^{1,†} 戴 庆² 仇成伟³ 张新亮¹

(1 华中科技大学光学与电子信息学院 武汉光电国家研究中心 武汉 430074)

(2 国家纳米科学中心 北京 100190)

(3 新加坡国立大学电子与计算机工程系 新加坡 117583)

2021-09-16 收到

† email: lipn@hust.edu.cn

DOL: 10.7693/wl20211006

光是人类认识宏观和微观世界的主要媒介，对光与物质相互作用的研究不断拓展着科学的边界，推动着技术的革命。然而，光的波动本性决定了我们很难将光场限制在深亚衍射极限的纳米尺度。如何在纳米尺度对光与物质的相互作用进行调控是当今光物理、光化学、光信息等众多研究领域的核心科学问题。极化激元光学是解决这一科学问题的有效手段之一。极化激元是光和物质相互耦合产生的“半光一半物质”的准粒子，其经典概念和基本物理最早由我国著名的半导体物理学家黄昆先生提出和建立^[1]。极化激元的特点在于可以突破衍射极限，在亚波长尺度对光场进行调控。随着相关理论体系和实验技术的不断发展完善，如今极化激元已经在超分辨成像、光刻、表面光谱增强、探测等领域发挥了重要作用^[2-5]。

传统的极化激元光学研究主要聚焦于等离极化激元——光子和贵金属中电子耦合的共谐振荡，频率范围一般在可见—近红外波段。事实上，根据光与物质耦合相互作用产生的准粒子类型的不同，极化激元还包括声子极化激元(光子与晶格振动产生的光学声子耦合)、激子极化激元(光子与半导体中的电子—空穴对耦合)等等。特别是近年来的研究发现低维范德瓦耳斯晶体中的极化激元有着更强的局域能力及灵活的可调谐性能，同时覆盖更宽的电磁波谱(从可见光到远红外波段)，受到了广泛的关注。结合近场显微成像技术，不同类型极化激元在实空间的传输及局域特性可以直接被观测，展现了众多独特的物理机制，高度空间局域的新型极化激元研究方兴未艾。

物质中电子的运动由其波矢量在动量空间的分布——即“费米面”来描述。相似地，极化激元在介质中的传播由其等频面在动量空间中的分布决定(图1)。传统贵金属中的表面等离极化激元是一种界面电磁模式。这种表面波局域在金属表面并沿其传播，而在金属内部由于其法向的波矢为纯虚数，其传播表现为倏逝波的形式，呈现指数衰减的特性。此外，极化激元(特别是声子极化激元)也可存在于高度各向异性的介质中，其介电张量表示为 $\varepsilon=\text{diag}[\varepsilon_{\perp}, \varepsilon_{\perp}, \varepsilon_{\parallel}]$ ，其中 ε_{\perp} 和 ε_{\parallel} 分别代表平行于光轴和垂直于光轴的分量，尤其当 $\varepsilon_{\perp}\cdot\varepsilon_{\parallel}<0$ 时，极化激元的等频面由 $k_z^2/\varepsilon_{\perp}+(k_x^2+k_y^2)/\varepsilon_{\parallel}=k_0^2$ 描述，其波矢的空间分布可呈现为两种特殊的双曲面型(图1)，此时极化激元具有独特的双曲型色散，因此称为双曲极化激元。由于开放式等频面对波矢大小没有限制，当不考虑吸收时，双曲极化激元理论上能够具有无限大的传播波矢，产生极强的电磁场局域特性，因此双曲介质也常被称为“不定”材料(indefinite materials)。

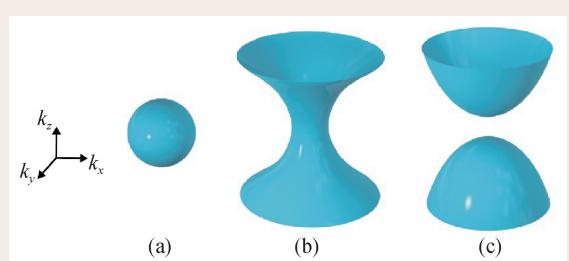


图1 极化激元在单轴晶体中传输的波矢等频面(晶体材料的介电常数 $\varepsilon_{\perp}=\varepsilon_x=\varepsilon_y$, $\varepsilon_{\parallel}=\varepsilon_z$) (a)极化激元在各向同性介质中传输; (b), (c)极化激元在两种不同双曲介质中传输的情况, 其中(b)为 $\varepsilon_{\perp}<0$, $\varepsilon_{\parallel}>0$, (c)为 $\varepsilon_{\perp}>0$, $\varepsilon_{\parallel}<0$

双曲极化激元的研究与超材料光学的发展息息相关。2007年，加州大学伯克利分校张翔教授研究组在可见光波段构筑了基于贵金属层状结构的双曲超材料，实现了突破衍射极限的聚焦成像^[6]。2013年，哥伦比亚大学D. N. Basov教授研究组发现范德瓦尔斯晶体六方氮化硼(hBN)是一种自然的双曲超材料，支持低损耗的双曲型极化激元，这些双曲型极化激元局域在二维晶体内部，以导模形式沿着晶体薄层传播^[7]。2018年，通过构筑首个中红外波段的hBN双曲超表面，我

们人工创造了面内各向异性的双曲型极化激元并观察到他们的面内各向异性传输^[8]。随后，我们进一步发现，范德瓦尔斯晶体 α 相三氧化钼($\alpha\text{-MoO}_3$)天然存在面内各向异性传输的双曲型极化激元^[9]。目前，二维范德瓦尔斯晶体中发现的双曲型极化激元一般为“体传输模式”(简称体模式)，它们在材料内部沿界面法向的波矢为纯实数，能够直接在介质晶体内部传输。

比较特别的是，我们也发现在hBN薄层的侧壁会存在一种界面局域的双曲极化激元“表面模式”^[10]。不同于体模式，这种表面模式在材料内部沿界面法向的波矢为纯虚数，其电场强度随着离界面距离的增加表现出倏逝波的指数型衰减特性，因此具有更强的局域性、更小的群速度以及更加灵敏的环境响应。然而要直接观测这种表面模式的各向异性传播，需要比较大的空间面积，但是受限于hBN的层状材料特性，其薄层侧壁一般只有纳米量级的厚度，因此表面模式双曲极化激元的各向异性传播一直未能被直接的实验成像证明。

最近，我们发现在教科书中经典的双折射晶体——方解石中存在第三种极化激元模式^[11]。由于晶格的光学声子共振，方解石在中红外波段可以支持声子极化激元。当方解石的光轴与晶体表面存在一定夹角时(非平行或正交)，声子极化激元的界面法向波矢为复数，因此它既有表面模式的倏逝波特性，同时也能够在介质中传输(其传播形式如图2所示，在介质内是以倾斜的波前传输)，法向电场呈现独特的振荡衰减现象。普渡大学的E. E. Narimanov教授曾经理论预言过一种界面法向振荡衰减的电磁波，并将量子力学中的经典概念“Ghost Orbits”进行延拓，将这种特殊的电磁模式命名为“Ghost”波^[12]，但是迄今还没有直接的实验证据。此次，我们在方解石中发现的这种法向电场振荡的“Ghost”极化激元模式是亚波长电磁波，具有更强的电磁场束缚能力。

为了实验观测这种新型极化激元模式，我们设计并加工了光轴和平面夹角为 23.3° 的方解石晶体。通过红外光照射位于方解石表面上的金属红

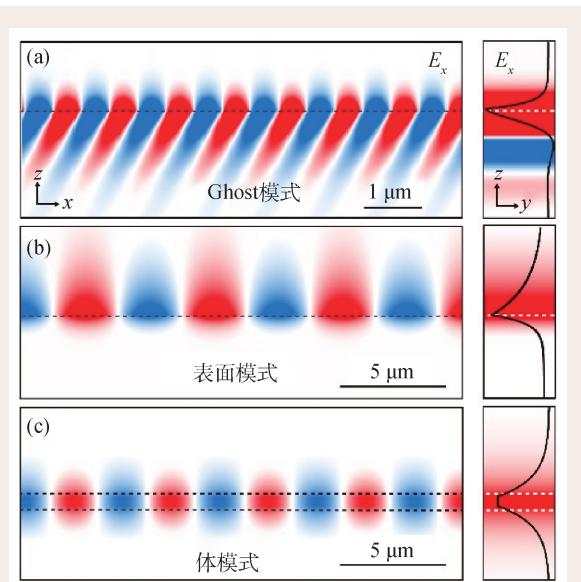


图2 三种双曲极化激元模式的传输(左)及场线分布(右)对比^[11] (a)“面—体”复合的Ghost模式传输；(b)表面模式传输；(c)体模式传输(基模M0)

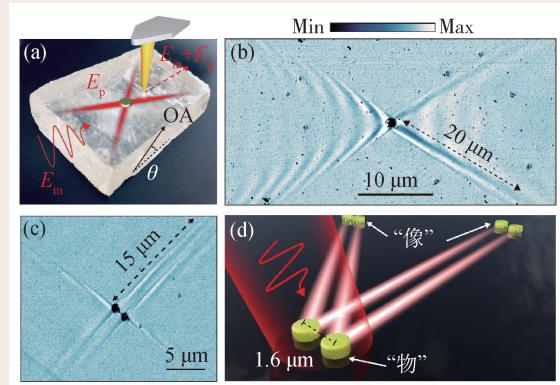


图3 “Ghost”双曲极化激元的实空间成像^[11] (a)近场成像的实验示意图；(b)“Ghost”双曲极化激元的实空间传播；(c), (d)基于“Ghost”双曲极化激元低损耗传输亚波长信息的实验结果(c)及概念示意图(d)

外天线，在天线尖端产生局域电场，激发极化激元。利用散射式近场光学显微镜对方解石中的极化激元进行成像研究，得到了完整、清晰的实空间传播图像，

结果如图3所示。可以看到，成像得到的极化激元传播的模场分布在天线的左右两侧是高度不对称的。我们将这一现象的产生归因于极化激元在斜入射情况下的非对称激发以及与入射电磁场的非对称干涉。在天线的左侧，极化激元的传播和之前研究观测的双曲极化激元波前类似。而在天线右侧，极化激元以一种高度定向的“渠道化射线”传播，直到传输 $20\text{ }\mu\text{m}$ 后，极化激元的场才完全衰减，这是迄今为止，平面内双曲极化激元室温传输的最长距离。我们进一步证明，借助这种新型极化激元能将两个间隔仅 $1.6\text{ }\mu\text{m}$ (真空波长的 $1/4$)圆盘的信息，无衍射地传输 $15\text{ }\mu\text{m}$ 以上。这种低损耗传输亚波长信息的能力有可能应用到纳米尺度上的光学成像、通讯以及传感等方向。

我们发现的这种新型极化激元模式兼具“表面”与“体”模式的特性，是一种“面—体”复合型极化激元。因此，通过调节晶体光轴这一内禀属性，能够对极化激元的“面—体”复合程度进行调节，从而实现对极化激元的本征色散及传播性质进行直接调控。我们在实验中采用了光轴和晶体表面的夹角分别为 23.3° ， 48.5° 及 90° 的三

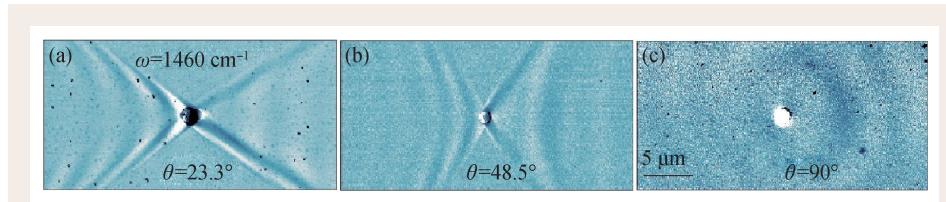


图4 光轴调控方解石双曲极化激元的面内传播特性^[11]。光轴—平面夹角分别为 23.3° (a), 48.5° (b)和 90° (c)时双曲极化激元的传播情况

种不同方解石样品证明了这种光轴调控能力。如图4所示，实验得到的近场实空间成像图案清晰地揭示了在光轴—平面夹角为 23.3° , 48.5° 的方解石中，“渠道化射线”保持各向异性传输，同时传播方向发生了较大改变。而当光轴与平面夹角变为 90° 时，极化激元表现为传统的平面内各向同性的传输特性。因此，这一系列的实验结果充分证明了光轴的朝向能够改变方解石上极化激元的面内色散关系，进而调控极化激元的平面内传播性质。

此项研究工作以方解石为例，理论预测并实验揭示了第三种极化激元模式——“面—体”复合型的Ghost极化激元。这一结果在丰富极化激元研究体系的同时，还有望进一步加深人们对各向异性介质中各种亚波长光学现象的理解。我们预测这种新型极化激元模式可普遍存在于不同种类的双折射材料中，如石英、氧化铝等储量丰富、可大规模制备的极性晶体，这就为实现对电磁波的深亚波长调控及极化激元在诊断、探测、传感、传热等领域的进一步广泛应用提供了丰富的材料体系。

参考文献

- [1] Huang K *et al.* Proc. R. Soc. London. Ser. A, 1951, 208: 352
- [2] Xu H *et al.* Phys. Rev. Lett., 1999, 83: 4357
- [3] Luo X *et al.* Appl. Phys. Lett., 2004, 84: 4780
- [4] Li J *et al.* Nature, 2010, 464: 392
- [5] Zhang R *et al.* Nature, 2013, 498: 82
- [6] Liu Z *et al.* Science, 2007, 315: 1686
- [7] Dai S *et al.* Science, 2014, 343: 112
- [8] Li P *et al.* Science, 2018, 359: 892
- [9] Ma W *et al.* Nature, 2018, 562: 557
- [10] Li P *et al.* Nano Lett., 2017, 17: 228
- [11] Ma W *et al.* Nature, 2021, 596: 362
- [12] Narimanov E. Adv. Photonics, 2019, 1: 046003