文章编号: 1005-5630(2023)03-0080-07

DOI: 10.3969/j.issn.1005-5630.2023.003.011

基于 OAM 光束的球形颗粒的手性信号 增强机理

孙 阳、胡海峰

(上海理工大学光电信息与计算机工程学院,上海200093)

摘要:为了分析球形颗粒的手性信号增强机理,基于T矩阵法对手性球形颗粒的 Mie 散射特性进行了研究,分析了基于入射光束轨道角动量(OAM)的调控和颗粒特性参数调控的手性信号增强机理。对紧聚焦线偏振光的波前进行调控,通过调控光束携带 OAM 的符号实现 OAM 二色性的测量,并研究 OAM 阶数与手性信号强度之间的关系。当光束携带 OAM 的阶 数与小球的尺寸相匹配时得到较圆偏振光散射圆二色性信号 22.8 倍的提升。同时分析了小球 特性参数(颗粒尺寸、手性参数)对 OAM 二色性信号的影响。

关键词:轨道角动量; Mie 散射; T矩阵; 手性测量; 光场调控 中图分类号: O 434.14 文献标志码: A

Enhancement mechanism of chiral signal from spheres based on OAM beams

SUN Yang, HU Haifeng

(School of Optical-Electrical and Computer Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China)

Abstract: In order to analyze the mechanism of chiral signal enhancement of spherical particles, the Mie scattering characteristics of spherical particles are studied based on the T-matrix method, and the mechanism of chiral signal enhancement is analyzed based on the regulation of incident beam with orbital angular momentum (OAM) and particle's characteristic parameters. The wave front of tightly focused linearly polarized light is regulated, the dichroism of OAM is measured by regulating the sign of OAM carried by the beam, and the relationship between the order of OAM and the intensity of the chiral signal is studied. When the order of the OAM carried by the beam is matched with the size of the sphere, the scattering circular dichroism signal can be enhanced by 22.8 times compared to that of circularly polarized light. The influence of particle size and chiral parameters on OAM dichroism signal is also analyzed.

收稿日期: 2022-11-21

基金项目: 国家自然科学基金 (62075132); 上海市自然科学基金(22ZR1443100)

第一作者: 孙阳 (1998—), 男, 硕士研究生, 研究方向为光学手性效应。E-mail: 203590592@st.usst.edu.cn 通信作者: 胡海峰 (1984—), 男, 副教授, 研究方向为纳米光子学与光场调控。E-mail: hfhu@usst.edu.cn

Keywords: orbital angular momentum; Mie scattering; T matrix; measurement of chirality; field manipulation

引 言

手性是自然界的基本属性。如果一个物体与 其本身的镜像不同,即其镜像不能与原始物体重 合,该物体可以被称为手性物体^[1-2]。许多生物 分子是手性的,如氨基酸、脂肪。手性分子及其 镜像分子被定义为对映体。由于对映体可能具有 不同的毒性,所以如何区分对映体在制药工业中 非常重要^[3]。由于它们的特性在很多方面都相 同,如组成元素种类、分子量、化学键等,因此 手性异构体必须与另一手性物质发生作用时才能 对其进行区分。圆偏振光由于携带自旋角动量从 而具有手性^[4-5],电场矢量沿着传播方向顺时针 旋转是左旋圆偏振光, 逆时针旋转是右旋圆偏振 光。由于手性异构体对左旋和右旋圆偏振光 (CPL)的反应不同,因此人们可以利用手性效应 来实现区分^[6]。圆二色性(CD)就是这些效应的 一个典型例子^[7]。CD 信号可以表示为g=2(A+- A^{-} /($A^{+} + A^{-}$),其中 A^{+} 和 A^{-} 是分子对左旋、右 旋圆偏振光的吸收效率^[8]。由于分子尺寸通常远 小于光学波长,这导致 CD 信号的强度(即 g 因 子)很小,很难测量^[1]。

目前,已经有很多研究者对如何提升手性信号开展了相关工作。这些研究表明,手性信号的强度不仅与分子的手性特征有关,还与入射光场的手性有关^[2]。2018年,Yao等^[9]通过设计硅立方体结构,基于两个硅立方体间的狭缝能激发电场热点与磁场热点,可获得较圆偏振光15倍的光场手性信号提升。2019年,Hu等^[10]基于Richards-Wolf矢量衍射积分法,对携带轨道角动量(OAM)的径向偏振光经高数值孔径物镜聚焦后的焦场进行计算,结果显示在透镜焦点处可获得较圆偏振光11.9倍的光场手性信号提升。

$$\boldsymbol{E}_{\rm inc} = \frac{\mathrm{i}A}{2\pi} \int_0^\alpha \sin\theta d\theta \int_0^{2\pi} \mathrm{e}^{\mathrm{i}l\phi} P(\theta) \mathrm{e}^{[\mathrm{i}kz\cos\theta + \mathrm{i}kr\sin\theta\cos\theta]}$$

式中: A是与焦距和波长相关的常数; $k=2\pi/\lambda$ 是真空中的波数; $\alpha = a \sin(NA/n_0)$, 研究表明光场手性与手性信号强度成正比,所以 提升光场手性能有效提升分子的手性信号^[2]。但 是通过提升光场手性信号去提升分子手性信号只 适用于瑞利分子,即分子尺寸远小于波长的情 况。对于尺寸接近波长甚至大于波长的结构,其 手性信号不仅与光场特性有关,还与手性结构特 性、大小等参数有关。上述通过提升光场手性的 方法对于大尺寸的结构就不再适用。

手性信号的测量必须通过两束手性相反的光 束分别激发手性结构,通过手性结构对两束具 有相反手性光束响应的相对差别,实现手性信号 的测量。除了使用左旋、右旋圆偏振光之外,也 可以通过改变入射光的螺旋形等相位面的方向 (即光子 OAM 量子数的符号)实现结构手性特征 的测量,即OAM 二色性测量^[11-12]。在这项工作中, 我们基于 T 矩阵法对手性小球的 Mie 散射特性 进行研究,解释了基于入射光束 OAM 调控的手性 信号增强机理。本文选用具有 OAM 的紧聚焦线 偏振光作为入射光场,将手性小球放置于入射光 场的焦点位置处,通过改变 OAM 的符号实现 OAM 二色性的测量,再通过调控 OAM 的阶数来 提高 Mie 散射球形颗粒的手性响应。最后讨论 了颗粒本身特性参数与 OAM 二色性之间的关系。

1 紧聚焦光场计算

选取携带 OAM 沿 X 方向偏振的线偏振光束 作为入射场^[13],在柱坐标系中,这个入射场可 以表示为

$$\boldsymbol{E}_{\rm inc} = E_0 \mathrm{e}^{\mathrm{i}l\phi} \boldsymbol{\hat{e}}_x \tag{1}$$

式中: E_0 为振幅因子; l为拓扑荷数。利用Rachards-Wolf衍射积分公式计算出焦点处的场分布表达式为^[14-16]

$$s(\varphi-\phi) \left[\begin{pmatrix} \cos\theta\cos^2\phi - \sin^2\phi \end{pmatrix} \hat{\boldsymbol{e}}_x \\ (\cos\theta\sin\phi\cos\phi + \sin\phi\cos\phi) \hat{\boldsymbol{e}}_y \\ \sin\theta\cos\phi \hat{\boldsymbol{e}}_z \end{pmatrix} d\phi$$
(2)

 n_0 为空气折射率, NA 为聚焦透镜的数值孔径大小; $P(\theta)$ 是透镜的切趾函数, 可表示为

$$P(\theta) = \sqrt{\cos\theta} \exp\left[-\beta_0^2 \left(\frac{\sin\theta}{\sin\alpha}\right)^2\right] J_1\left(2\beta_0 \frac{\sin\theta}{\sin\alpha}\right) \quad (3)$$

式中: $\beta_0 = 1$; J₁ 是一阶的第一类贝塞尔函数。

利用式(2), 计算输入波长为 900 nm, *NA*= 0.9, 拓扑荷数分别为 0、5、10 时的焦场分布。 计算得到焦点附近 *xy* 面内的场分布如图 1 所 示。其中图 1(a)~(c)表示拓扑荷数分别为 0、 5、10时焦点附近电场的总强度分布,图1(d)~ (f)为对应的相位分布。可以看出随着拓扑荷数 的增加,光斑由实心光斑变成中空的圆环分布。 随着拓扑荷数增加,光斑的横向分布尺寸增大, 光斑中间暗场的尺寸越来越大,并且焦点附近的 场强也随着拓扑荷数的增加而减小。





2 球形颗粒手性散射模型

图 2 所示为分析手性小球散射模型的原理 图,将携带 OAM 的线偏振光经高数值孔径透镜





聚焦后的光场作为入射光场,将手性小球放置在 焦点处。基于T矩阵法对手性小球的Mie 散射 特性进行研究,计算出手性小球在正负阶拓扑荷 光场激发下的散射强度,并计算OAM二色值 g_{scat} ,定义为: $g_{scat} = 2(W_{scat}^+ - W_{scat}^-)/(W_{scat}^+ + W_{scat}^-)$, 式中 W_{scat}^+ 与 W_{scat}^- 分别是手性小球在正负阶拓扑 荷数的光场激发下的散射强度。

对于球形手性 Mie 散射颗粒的散射特性的 计算,T矩阵法具有明显的优势。为了分析基 于 OAM 的紧聚焦光场对手性小球散射信号的增 强效果,可借助以下理论模型进行分析。手性材 料的本构关系表示为^[11]

$$\boldsymbol{D} = \boldsymbol{\varepsilon}_{\mathrm{s}} \boldsymbol{E} - \mathrm{i}\boldsymbol{\kappa} \boldsymbol{H} \tag{4}$$

$$\boldsymbol{B} = \mu_{\rm s} \boldsymbol{H} + \mathrm{i} \boldsymbol{\kappa} \boldsymbol{E} \tag{5}$$

式中: ε_s 、 μ_s 分别是小球的介电常数、磁导率; κ 为手性参数,用来描述材料光学手性的强弱。根据 Bohren^[17]提出的线性变换关系,手性

小球中的电磁场(E1,H1)可以表示为以下形式:

$$\begin{bmatrix} E_1 \\ H_1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} j \sqrt{\varepsilon_s \mu_s} & \mu_s \\ \varepsilon_s & j \sqrt{\varepsilon_s \mu_s} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} Q_L \\ Q_R \end{bmatrix}$$
(6)

其中 Q_L 和 Q_R 满足波动方程 $\nabla^2 Q_{L/R} + k^2_{L/R}Q_{L/R} = 0$,可以展开成为矢量球谐函数的线性组合:

$$Q_{\rm L} = \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{m=-n}^{+n} c_{mn} \left[RgM_{mn}(k_{\rm L}) + RgN_{mn}(k_{\rm L}) \right]$$
(7)

$$Q_{\rm R} = \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{m=-n}^{+n} d_{mn} \left[Rg M_{mn}(k_{\rm R}) - Rg N_{mn}(k_{\rm R}) \right]$$
(8)

式中: $k_{L/R} = \omega \sqrt{\varepsilon_s \mu_s} \mp \omega \kappa$; $m \le n$ 是矢量球谐 函数阶数。在本研究中, $RgM_{mn} \le RgN_{mn}$ 用来 表示无奇点的矢量球谐函数, $M_{mn} \le N_{mn}$ 表示 用于散射场展开的具有奇点的矢量球谐函数 ^[18]。在手性球的外部, 入射场(E_{inc} , H_{inc})与散射 场(E_s , H_s)可以表示为矢量球谐函数的组合:

$$E_{\rm inc} = \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{m=-n}^{n} (u_{mn} Rg M_{mn} + v_{mn} Rg N_{mn}) \qquad (9)$$

$$H_{\rm inc} = \frac{1}{iZ_0} \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{m=-n}^{n} (u_{mn} Rg N_{mn} + v_{mn} Rg M_{mn}) \quad (10)$$

$$E_{\rm s} = \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{m=-n}^{n} (a_{mn}M_{mn} + b_{mn}N_{mn})$$
(11)

$$H_{\rm s} = \frac{1}{{\rm i}Z_0} \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{m=-n}^{n} (a_{mn}N_{mn} + b_{mn}M_{mn}) \qquad (12)$$

在式(9)与式(10)中,展开系数 u_{mn} 与 v_{mn} 由入射场决定。基于 T 矩阵法,可根据入射场的展开系数 u_{mn} 与 v_{mn} 计算散射场的展开系数。 根据手性球表面的边界条件 $(r = R_s)$,手性球体的 T 矩阵可由下式得出:

$$\begin{bmatrix} E_{\rm s} \\ H_{\rm s} \end{bmatrix} = \boldsymbol{T} \begin{bmatrix} E_{\rm inc} \\ H_{\rm inc} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \boldsymbol{T}^{(1)} \end{bmatrix}^{-1} \boldsymbol{T}^{(2)} \begin{bmatrix} E_{\rm inc} \\ H_{\rm inc} \end{bmatrix}$$
(13)

其中矩阵 T⁽¹⁾ 与 T⁽²⁾ 的各项元素由下式给出:

$$T^{(1)}{}_{11,mn} = iZ_0 \varepsilon_s \xi_n(k_0 R_s) \psi'_n(k_R R_s) - i \sqrt{\varepsilon_s \mu_s} \psi_n(k_R R_s) \xi'_n(k_0 R_s)$$
(14)

$$T^{(1)}{}_{12,mn} = iZ_0 \varepsilon_s \psi_n(k_R R_s) \xi'_n(k_0 R_s) - i \sqrt{\varepsilon_s \mu_s} \xi_n(k_R R_s) \psi'_n(k_R R_s)$$
(15)

$$T^{(1)}{}_{21,mn} = -Z_0 \sqrt{\varepsilon_s \mu_s} \xi_n(k_0 R_s) \psi'_n(k_L R_s) + \mu_s \psi_n(k_L R_s) \xi'_n(k_0 R_s)$$
(16)

$$T^{(1)}_{22,mn} = Z_0 \sqrt{\varepsilon_s \mu_s} \psi_n(k_{\rm L} R_s) \xi'_n(k_0 R_s) - \mu_s \xi_n(k_{\rm L} R_s) \psi'_n(k_{\rm L} R_s)$$
(17)

$$T^{(2)}{}_{11,mn} = -iZ_0\varepsilon_s\psi_n(k_0R_s)\psi'_n(k_RR_s) + i\sqrt{\varepsilon_s\mu_s}\psi_n(k_RR_s)\psi'_n(k_0R_s)$$
(18)

$$T^{(2)}{}_{12,mn} = -iZ_0\varepsilon_s\psi_n(k_RR_s)\psi'_n(k_0R_s) + i\sqrt{\varepsilon_s\mu_s}\psi_n(k_0R_s)\psi'_n(k_RR_s)$$
(19)

$$T^{(2)}{}_{21,mn} = Z_0 \sqrt{\varepsilon_s \mu_s} \psi_n(k_0 R_s) \psi'_n(k_L R_s) - \mu_s \psi_n(k_L R_s) \psi'_n(k_0 R_s)$$
(20)

$$T^{(2)}{}_{22,mn} = -Z_0 \sqrt{\varepsilon_s \mu_s} \psi_n(k_{\rm L} R_s) \psi'_n(k_0 R_s) + \mu_s \psi_n(k_0 R_s) \psi'_n(k_{\rm L} R_s)$$
(21)

在式(14)~(21)中,第一类球贝塞尔函数定 义为 $\psi_n(\rho) = \rho j_n(\rho)$,第三类球贝塞尔函数定义为 $\xi_n(\rho) = \rho h_n^{(1)}(\rho)$ 。 Z_0 是真空中的阻抗, $k_0 = \omega/c$ 是真空中的波数。基于 Mie 散射理论,散射强 度可以根据散射系数由下式计算:

$$W_{\text{scat}} = \frac{1}{2k_0^2} \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{m=-n}^{n} (|a_{mn}|^2 + |b_{mn}|^2)$$
(22)

3 讨论与分析

利用上述理论模型研究了散射强度与光束拓 扑荷之间的关系并使用 MATLAB 软件完成仿真 计算, 仿真结果如图 3 所示。其中入射光波长 为 900 nm, 手性小球的折射率为 1.5, 手性小球 的半径为 1.9 μm, 手性参数 κ 为 ±0.01, 拓扑荷 的变化范围是-20~20。图 3(a) 与图 3(b) 分别 表示左手结构与右手结构时散射强度与光束拓扑 荷之间的关系, 图 3(c)表示左手结构与右手结 构时散射 CD 信号与光束拓扑荷之间的关系。可 以看出不论是左手结构还是右手结构, 散射强度 随着拓扑荷数的增加而减小并逐渐趋近于0. 这 是因为拓扑荷数变大会导致焦点附近的场强越来 越弱,且光斑中间暗场的尺寸越来越大,导致照 射在手性小球上的光强越来越弱, 散射强度也越 来越弱。OAM 光束的手性信息包含在其螺旋形 等相位面中,可通过调控光束 OAM 阶数来改变 其螺旋形等相位面大小。对于尺寸固定的手性颗粒,当OAM光束螺旋形等相位面的大小与颗粒尺寸相当时,分子与光子OAM的手性相互作用最强烈。正如图3(c)所示,左手结构与右手结构的散射CD信号在拓扑荷为0~2与14~17范围内有显著提升,并且在拓扑荷数为1和17时有明显的峰值。当拓扑荷数为17的时候,散射







CD 信号达到最大值。这是因为光束的拓扑荷数 与手性颗粒的尺寸相匹配时,手性颗粒对光场的 手性响应最强。

为了分析不同尺寸的手性小球 OAM 二色性 与拓扑荷数之间的关系,分别计算了小球半径 为 1.4 µm、1.5 µm、1.6 µm、1.7 µm、1.8 µm、 1.9 μm 时基于圆偏振光的散射 CD 信号以及紧聚 焦线偏振光的 OAM 二色性,其中入射光波长 为 900 nm, 小球折射率为 1.5, 手性参数 κ 为 0.01。同时计算得出入射光束具有不同拓扑荷 时,基于紧聚焦光场测得的手性信号较圆偏振光 入射条件下手性信号强度的增强因子,如图4所 示。图 4(a)表示随着小球的尺寸变大,紧聚焦 线偏振光情况下的 OAM 二色性的峰值信号也向 更大的拓扑荷数位置处移动,证明了手性信号与 拓扑荷数的匹配机制。图 4(b)为小球半径为 1.4 μm, 1.5 μm, 1.6 μm, 1.7 μm, 1.8 μm, 1.9 μm 时在圆偏振光入射下的散射 CD 信号。从图 4(c) 可以发现, 随着小球的尺寸变大, 手性信号增强 因子的峰值也向更大的拓扑荷数位置处移动,并 且当小球的尺寸为 1.7 µm 时, 在拓扑荷数为 15 时得到最大值 22.8。此结果表明,为了获得 更大的手性信号强度,入射光束的拓扑荷数要与 球形颗粒的尺寸相匹配。

手性信号增强因子不仅与入射光场有关,还 与球形颗粒本身的特性参数有关,因此进一步计 算了不同手性参数值情况下的散射手性信号。计 算了手性参数 κ 分别取 0.01、0.02 和 0.03时的散 射手性信号,其中入射光波长为 900 nm,手性 小球折射率为 1.5,手性小球半径为 1.9 μm,结 果如图 5 所示。可以看出当拓扑荷数为 17 时不 同的手性参数 κ 对应的散射手性信号都达到最大 值,并且随着手性参数 κ 的增大,不同手性参 数 κ 对应的信号最大值也逐渐增强。

4 结论

本文基于 T 矩阵法对手性小球的 Mie 散射 特性进行了研究,与瑞利散射相比, Mie 散射能 准确描述球状手性结构的散射特性。结果表明, 为了实现手性信号的提升,需要使 OAM 阶数与 小球尺寸相匹配。本文针对特定尺寸的球形颗



图 4 不同尺寸小球在紧聚焦 OAM 光束与圆偏振光束情况下的散射手性信号及手性信号增强因子。g、g_{CPL} 分别是线偏振 OAM 光束和圆偏振光情况下的手性信号增强因子



粒,通过优化入射光束 OAM 阶数,理论上得到 的手性信号强度比常规的圆偏振光场得到的散



Fig. 5 Scattering chiral signals from the sphere with different chiral parameters

射 CD 信号提升了 22.8 倍。另外在手性小球尺 寸与 OAM 阶数相匹配的情况下提升手性小球本 身的手性参数,可以在不改变散射 CD 信号峰值 位置的前提下,进一步提升手性信号强度。因 此,为了增强手性信可以从远场和近场两方面入 手,在远场对入射光场进行调控,在近场优化设 计手性结构,并实现两者之间的匹配。本文中的 理论模型将有助于手性信号增强机理的分析以及 物质手性光学探测方法的研究。

参考文献:

- [1] MUN J, KIM M, YANG Y, et al. Electromagnetic chirality: from fundamentals to nontraditional chiroptical phenomena[J]. Light: Science & Applications, 2020, 9: 139.
- [2] TANG Y Q, COHEN A E. Optical chirality and its interaction with matter[J]. Physical Review Letters, 2010, 104(16): 163901.
- [3] ZHAO Y, ASKARPOUR A N, SUN L Y, et al. Chirality detection of enantiomers using twisted optical metamaterials[J]. Nature Communications, 2017, 8: 14180.
- [4] TANG Y Q, COHEN A E. Enhanced enantioselectivity in excitation of chiral molecules by superchiral light[J].
 Science, 2011, 332(6027): 333 – 336.
- [5] NI J C, LIU S L, WU D, et al. Gigantic vortical differential scattering as a monochromatic probe for multiscale chiral structures[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2021, 118(2): e2020055118.

- [6] KIM M, RHO J. Plasmonic-enhanced chirality examined by generalized wavenumber eigenvalue simulation[J]. Optics Express, 2018, 26(11): 14051 – 14057.
- [7] ROSALES-GUZMÁN C, VOLKE-SEPULVEDA K, TORRES J P. Light with enhanced optical chirality[J].
 Optics Letters, 2012, 37(17): 3486 – 3488.
- [8] HU H F, ZHAN Q W. Enhanced chiral Mie scattering by a dielectric sphere within a superchiral light field[J].
 Physics, 2021, 3(3): 747 – 756.
- [9] YAO K, LIU Y M. Enhancing circular dichroism by chiral hotspots in silicon nanocube dimers[J].
 Nanoscale, 2018, 10(18): 8779 – 8786.
- [10] HU H F, GAN Q Q, ZHAN Q W. Generation of a nondiffracting superchiral optical needle for circular dichroism imaging of sparse subdiffraction objects[J]. Physical Review Letters, 2019, 122(22): 223901.
- [11] HU H F, ZHAN Q W. Chirality measurements using orbital angular momentum of light[J]. Chinese Journal of Quantum Electronics, 2022, 39(2): 272 – 285.
- [12] HU H F, GAN Q Q, ZHAN Q W. Achieving maximum scattering circular dichroism through the excitation of

anapole states within chiral Mie nanospheres[J]. Physical Review B, 2022, 105(24): 245412.

- [13] GANIC D, GAN X S, GU M. Focusing of doughnut laser beams by a high numerical-aperture objective in free space[J]. Optics Express, 2003, 11(21): 2747 – 2752.
- [14] KIM J, WANG Y, ZHANG X. Calculation of vectorial diffraction in optical systems[J]. Journal of the Optical Society of America A, 2018, 35(4): 526 – 535.
- [15] YOUNGWORTH K S, BROWN T G. Focusing of high numerical aperture cylindrical-vector beams[J]. Optics Express, 2000, 7(2): 77 – 87.
- [16] ZHAN Q W. Cylindrical vector beams: from mathematical concepts to applications[J]. Advances in Optics and Photonics, 2009, 1(1): 1 – 57.
- BOHREN C F. Light scattering by an optically active sphere[J]. Chemical Physics Letters, 1974, 29(3): 458 – 462.
- [18] MISHCHENKO M I, TRAVIS L D, LACIS A A. Scattering, absorption, and emission of light by small particles[M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2002.

(编辑:张 磊)