

# 金属开口环谐振器超构分子中 二次谐波偏振态的调控\*

马明宇 吴晗 陈卓†

(南京大学物理学院, 南京 210093)

(2019年5月29日收到; 2019年7月15日收到修改稿)

采用有限元法研究了由两个共振在基波处的金属开口环谐振器组成的立体“超构分子”中的二次谐波产生特性. 通过改变立体“超构分子”中两个金属开口环谐振器之间的相对取向角度, 使得在基波处共振的模式耦合发生变化, 从而调控了二次谐波中两个正交分量之间的振幅比和相位差, 获得了具有不同偏振态的二次谐波辐射.

**关键词:** 开口环谐振器, 二次谐波, 偏振调控**PACS:** 42.65.-k, 42.25.Ja, 42.25.-p**DOI:** 10.7498/aps.68.20190837

## 1 引言

随着微纳加工技术的不断进步, 微纳光子学在近几十年中得到了长足发展. 而在微纳光子学的发展过程中, 对一些新近发展起来的具有优异性能的纳米材料进行研究是不可或缺的. 例如, 碳纳米管<sup>[1,2]</sup>、黑磷<sup>[3]</sup>、少层铋烯二维材料<sup>[4]</sup>、石墨烯-碲化铋<sup>[5]</sup>等新型材料已经被用于光电探测、传感、饱和吸收超短脉冲产生以及超快光学等领域.

在光波的波前调控领域, 对于偏振调控, 目前主要还是集中于用波片、偏振片或者相位延迟器等宏观的器件来实现. 为了实现集成光学的效果, 人们提出了一些基于微纳材料的二维结构来调控光的偏振态<sup>[6-10]</sup>. 比如, 在线性领域, L形金属纳米线由于对称性的破缺, 在正交方向上能产生不同频率的共振, 那么反射光在正交方向上的相位差和电场会随着纳米线的旋转而独立变化, 所以就可以用来调节反射光的偏振态<sup>[11]</sup>. 或者采用两组亚单元的组合, 分别在正交方向上产生相应的线偏振光, 再

通过亚单元之间的空间位错引入相位差, 从而将入射的线偏振光转化为各种椭圆偏振态<sup>[12]</sup>. 另外, 还可以采用双圆形开口环的立体结构组成一个手性超分子, 它会在与入射偏振正交的方向上引入共振, 从而在不同波长下产生不同偏振态的透射光<sup>[13]</sup>. 总之, 偏振调控的关键在于如何在两个正交方向上引入相位差. 但目前偏振调控还多局限在线性领域中的实现, 至于如何在非线性领域调控二次谐波(second harmonic generation, SHG)的偏振态, 目前鲜见报道.

微纳尺度下, 两个结构单元之间的耦合效应对其模式特性起到了至关重要的作用<sup>[14-18]</sup>. 超材料在光学频段既有电共振特性, 又有磁共振特性<sup>[19]</sup>, 所以电和磁的偶极子以及更高阶的多极子之间的耦合是其中的重要机制. 耦合体系内部不同的耦合形式可以帮助我们很好地理解从分子态到固体物理模型的演变. 由于超材料的体积小于光的波长, 材料内部的两个结构单元之间相互作用就会极大地增强<sup>[20]</sup>. 每个微纳尺度的亚单元可以看成“超原子”, 它们的组合构成“超构分子”的过程中,

\* 国家自然科学基金(批准号: 11674168)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zchen@nju.edu.cn

由于电磁耦合作用,“超原子”不同的排列方式或相对位置会带来“超分子”不同的光学特性的改变<sup>[21]</sup>,这就为研究模式耦合及其应用带来了更多的调控自由度.

金属开口环谐振器 (split ring resonators, SRR) 由于在共振时表面存在环形电流<sup>[22]</sup>,相当于一个磁偶极子,所以可以看成一种磁性“超原子”.本文研究了由两个 SRR 堆叠构成的立体超构分子中的 SHG 特性.相比于单个 SRR 仅能产生电场沿着其臂的方向振动的线偏振 SHG<sup>[23]</sup>,在 SRR 超构分子中利用两个开口环超原子之间的耦合,通过其开口方向的旋转可以引入电场在正交方向振动的两个 SHG 分量,并且可以调控正交分量之间的振幅比和相位差,从而可以获得具有不同偏振态的 SHG 辐射.

## 2 结构示意图及线性表征

如图 1(a) 所示,采用的超构分子结构由两个全同的金 SRR 上下间隔一定间距堆叠而成,两个 SRR 之间开口的相对朝向夹角为  $\varphi$ . 本文所选用的 SRR 的结构参数分别为: 边长  $L = 230$  nm, 臂

宽  $W = 90$  nm, 臂长  $b = 140$  nm, 厚度  $T = 50$  nm. 上层 SRR 上表面到下层 SRR 上表面的间距为  $D = 100$  nm. 我们使用了有限元法 (finite-element-method, FEM) 仿真软件 COMSOL Multiphysics 对它们的线性光学性质进行了模拟. 在模拟计算中,上层 SRR 的底部以及线偏振入射光的电场方向始终沿着  $x$  方向,并且 SRR 超构分子处于均匀介质环境 (空气, 折射率设为 1) 中. 金的介电常数采用了实验参数<sup>[24]</sup>. 我们采用周期边界条件来模拟  $x$  和  $y$  方向的周期性,并且将其周期设为  $P_x = P_y = 500$  nm 以保证在我们研究的基波以及 SHG 波段仅有零级衍射. 如图 1(b) 所示,计算了上下开口环相对角度  $\varphi = 90^\circ$  时超构分子的吸收谱. 此时,上层 SRR 的磁等离子激元模式可以被线偏振光直接激发,而由于下层 SRR 的底部与线偏振入射光的电场方向垂直,其磁等离子激元模式无法被入射光直接激发. 但是,研究发现该结构在吸收谱的  $wl1$  和  $wl2$  处出现了两个明显的吸收峰. 为了说明这两个吸收峰的成因,进一步在图 1(c) 中给出了这两个吸收峰对应波长处 SRR 表面的磁场垂直分量  $H_z$ . 可以看到,  $wl1$  波长处的两个 SRR 之间的磁场垂直分量有一个  $\pi$  的位相差 (反相位),而  $wl2$  处的两

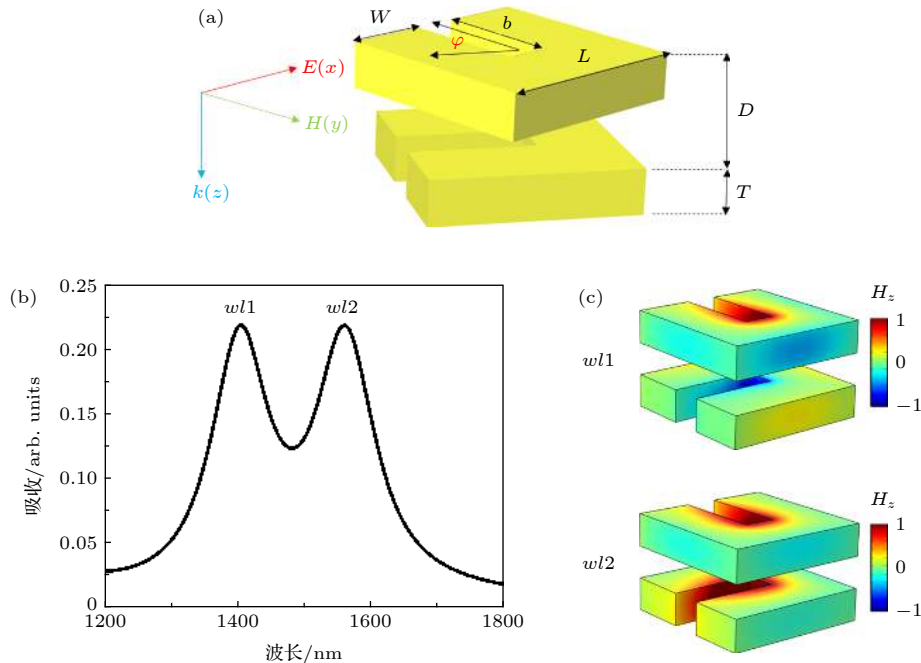


图 1 (a) 由两个金属 SRR 上下堆叠组成的超构分子结构示意图; (b) 上下两个 SRR 相对开口朝向夹角为  $\varphi = 90^\circ$  时超构分子的吸收谱; (c) 与吸收谱中两个吸收峰对应的波长  $wl1$  和  $wl2$  处 SRR 表面的磁场垂直分量  $H_z$  分布图

Fig. 1. (a) Schematic diagram of SRR-based meta-molecule; (b) absorption spectrum of the meta-molecule consisting of two SRRs with a twist angle  $\varphi = 90^\circ$ ; (c) distributions of magnetic field component  $H_z$  on the surface of the SRRs at wavelengths corresponding to two absorption peaks  $wl1$  and  $wl2$ .

个 SRR 之间的磁场垂直分量是同相位的. 这两种不同的磁场垂直分量分布表明我们在图 1(b) 中所观察到的两个吸收峰对应于两个磁偶极子相互作用后形成的反对称和对称模式, 与模式耦合作用会导致能级劈裂的预测相一致 [25].

### 3 非线性表征及偏振调控的实现

在保持上层 SRR 开口取向以及入射波电场方向不变的前提下, 进一步计算了上下层 SRR 之间相对开口朝向夹角  $\varphi$  从  $0^\circ$  变化为  $180^\circ$  时的超构分子的吸收谱的变化, 如图 2(a) 所示. 可以看出, 在每个开口朝向夹角的吸收谱中都展现出了类似图 1(b) 中的对称和反对称耦合模式所对应的两个吸收峰的现象. 并且, 随着开口朝向夹角从  $0^\circ$  增加

到  $60^\circ$ , 两个吸收峰之间的距离逐渐变小, 在  $60^\circ$  左右时达到最小, 继续增加开口朝向夹角从  $70^\circ$  增加到  $180^\circ$ , 两个吸收峰之间的距离又开始逐渐变大. 这是由于随着开口朝向夹角的变化, 双层开口环的电耦合和磁耦合共同作用导致耦合强度的变化所致. 基于流体力学的模型 [26], 我们在 FEM 仿真软件 COMSOL Multiphysics 中将基波处 SRR 表面附近的电场转化为二阶非线性表面电流, 并以此作为产生 SHG 的源, 计算了不同开口朝向夹角下的 SHG 产生强度随基波波长的变化, 如图 2(b) 所示. 可以看出, 与超构分子线性吸收谱峰值之间距离的变化趋势相对应, SHG 强度的峰值也随角度发生了先靠近后分开的情况, 这体现了基波处模式的耦合效应对于 SHG 具有显著的调控.

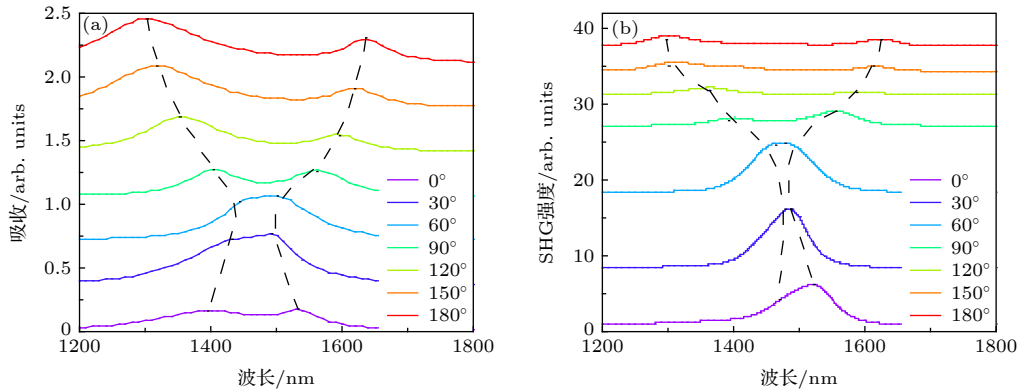


图 2 双层相对角度改变时, (a) 吸收谱和 (b) SHG 强度的变化, 黑色划线代表每条线左右峰值的连线

Fig. 2. (a) Absorption spectrum and (b) the SHG intensity with the relative angle of the two layers changing. The black dash line represents the line connecting the left and right peaks of each line.

我们知道单个 SRR 结构在入射基波偏振沿着其底边方向时, 所产生的 SHG 也是一种线偏振, 并且电场振动方向与 SRR 底边相垂直, 即沿着 SRR 臂的方向. 而在由两个 SRR 组成的超构分子中, 我们已经在图 1 中展示了即使下层 SRR 无法被入射基波直接激发的情况下, 也可以通过先激发上层 SRR 的磁共振模式, 继而通过模式耦合作用从而将下层 SRR 的磁共振模式激发出来. 由于 SRR 中 SHG 辐射的电场振动方向是与其臂的方向平行的, 因此在我们研究的超构分子中, 上层 SRR 将提供 SHG 的  $y$  分量, 而调节下层 SRR 的开口方向, 使得上下两个 SRR 的开口朝向夹角不为  $0^\circ$  或  $180^\circ$  时, 下层 SRR 产生的 SHG 就会具有  $x$  分量, 这就为调控 SHG 的偏振态提供了一个可能的途径.

我们选取相对角度从  $30^\circ$  到  $150^\circ$  每隔  $30^\circ$  变化的 5 个参数, 分别给出了这五种结构下的远场 SHG 强度、SHG 辐射的  $y$  和  $x$  分量的振幅比  $E_y/E_x$  和相位差  $\delta$ , 如图 3(a)–(c) 所示. 可以看到, 由于下层 SRR 的开口偏离了  $y$  轴, 引入了 SHG 在  $x$  方向的电场分量, 因而 SHG 在两正交方向上的电场不再以  $y$  分量为主导, 振幅比  $E_y/E_x$  总体在 1 左右变化. 与此同时, SHG 辐射的电场两正交分量之间的相位差  $\delta$  在所选波段内都有比较大的变化.

值得一提的是, 不同角度下 SHG 在  $y$  和  $x$  方向上的相位差随波长变化的斜率有所不同, 且对于吸收谱明显劈裂为两个共振峰的  $90^\circ$ ,  $120^\circ$ ,  $150^\circ$ , 相位差存在两次斜率较大的变化, 由图 3(c) 中黑色辅助线可以看出, 这两次明显变化对应的波长与

各自线性谱的两个峰位是符合的. 而在两峰位之间相位差的变化则相对比较平缓, 这说明共振会带来相位差的较大变化. 这是由于双层 SRR 之间的耦合作用在磁共振时会得到极大的增强, 能量就从上层 SRR 转移到下层 SRR. 而两层 SRR 分别提供 SHG 沿着开口方向上的分量, 所以  $y$  和  $x$  方向上的相位差会受到共振明显的调制.

为了实现 SHG 辐射较为丰富的偏振态, 要在保证固定波段内 SHG 效率的前提下, 尽量让两正交方向的振幅比  $E_y/E_x$  接近于 1, 同时相位差  $\delta$  能有较大的变化. 综合考虑这些因素, 我们以上下夹

角为  $60^\circ$  的双层 SRR 为例来展示可以获得的 SHG 偏振态. 把其对应的远场 SHG 强度、SHG 辐射的  $y$  和  $x$  分量的振幅比  $E_y/E_x$  和相位差  $\delta$  在图 3(d)—(f) 中单独显示, 发现超构分子在 1410—1550 nm 这段基波波长范围内都具有较高的 SHG 效率, 且 SHG 在  $y$  和  $x$  分量间的振幅比在 1—4 之间变化, 相位差也具有超过  $360^\circ$  的全相位变化.

那么有了 SHG 两个正交分量的相位差和振幅比的信息, 就可以得出 SHG 偏振态. 对于一个面向波的传播方向的观察者来说, 传播的电场在两个正交方向上的分量会遵循这个经典的关系式:

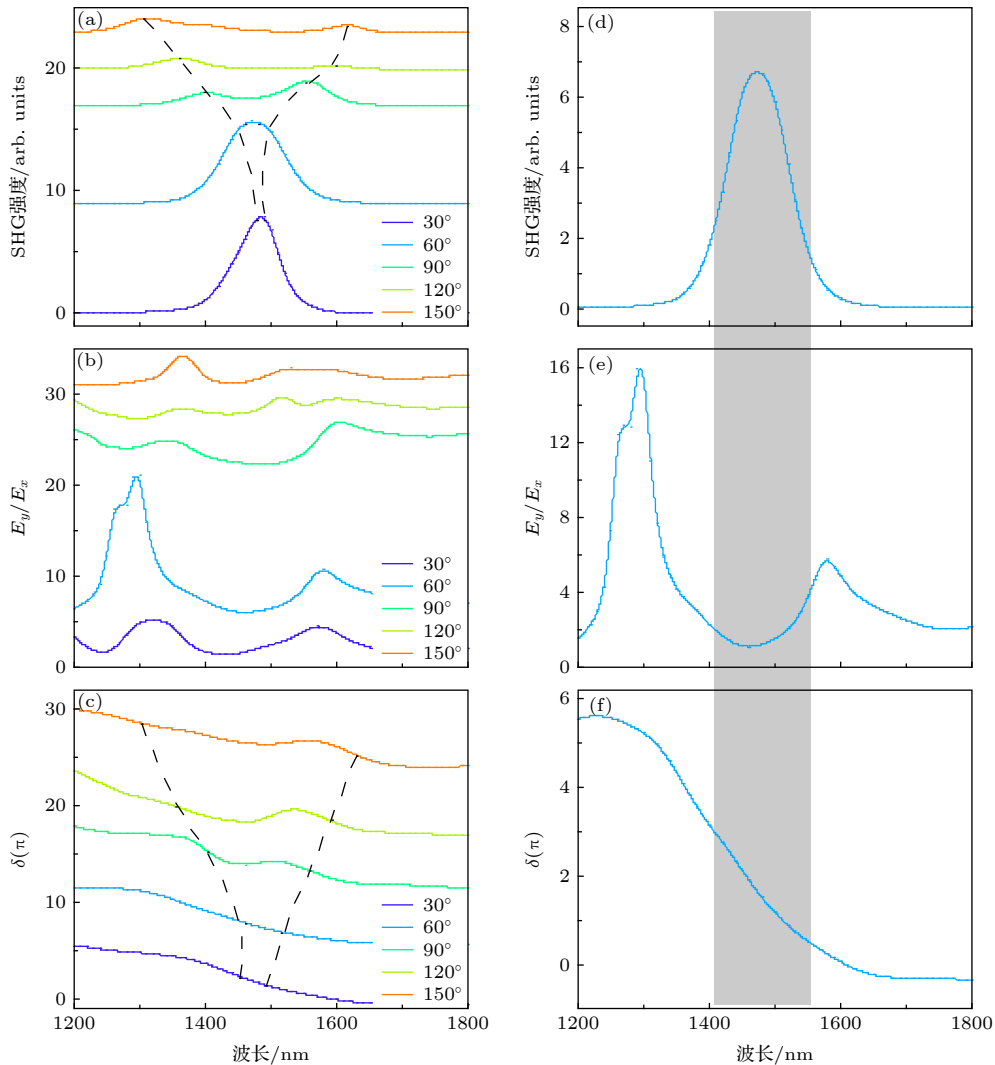


图 3 双层相对角度为  $30^\circ$ — $150^\circ$  时的远场 SHG 强度 (a)、SHG 辐射的  $y$  和  $x$  分量的振幅比  $E_y/E_x$  (b) 和相位差  $\delta$  (c) 随着波长的变化; 双层相对角度为  $60^\circ$  时的远场 SHG 强度 (d)、SHG 辐射的  $y$  和  $x$  分量的振幅比  $E_y/E_x$  (e) 和相位差  $\delta$  (f) 随着波长的变化; 其中阴影区域表示 SHG 效率较大的一段波长区域

Fig. 3. When the relative angle of the two layers changes from  $30^\circ$  to  $150^\circ$ , (a) SHG intensity, (b) amplitude ratio of SHG in the  $y$  and  $x$  directions and (c) the phase difference of SHG in the  $y$  and  $x$  directions as a function of wavelength; when the relative angle of the two layers is  $60^\circ$ , (d) SHG intensity, (e) amplitude ratio of SHG in the  $y$  and  $x$  directions and (f) the phase difference of SHG in the  $y$  and  $x$  directions as a function of wavelength. The shaded area indicates a wavelength region where the SHG efficiency is relatively large.



$$\left(\frac{E_x}{|E_x|}\right)^2 + \left(\frac{E_y}{|E_y|}\right)^2 - 2\frac{E_x}{|E_x|}\frac{E_y}{|E_y|}\cos\delta = \sin^2\delta, \quad (1)$$

其中  $E_y$  和  $E_x$  分别是 SHG 电场的  $y$  和  $x$  分量,  $\delta$  就是两个分量之间的相位差. 如前面所述, 在接近吸收峰时, 两个分量之间的相位差  $\delta$  变化比较大. 我们在 SHG 产生效率较高的波段选择了 6 个特殊的波长 1410, 1430, 1460, 1480, 1510 以及 1550 nm, 使得  $\delta$  近似以  $90^\circ$  的步长变化, 并分别求

出这些波长处 SHG 的两个正交电场分量, 并和  $\delta$  一起代入 (1) 式. 通过导入数值计算软件 Matlab, 得到了 SHG 的偏振态对应的电场矢量轨迹, 结果如图 4 所示. 可以看出, 随着基波波长的改变, 激发出的 SHG 椭圆偏振态的长轴发生了旋转, SHG 在远场出现了椭圆偏振、近线偏振和近似圆偏振, 实现了 SHG 偏振态的变化, 同时 SHG 的产生效率又保持在较高的水平.

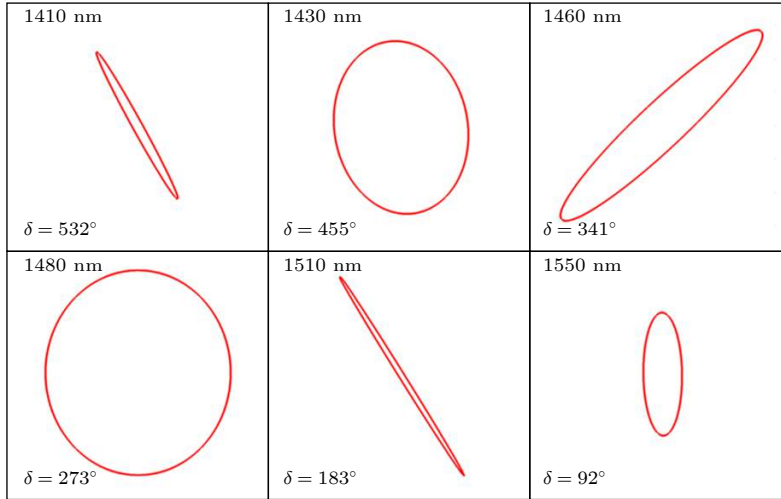


图 4 双层相对角度为  $60^\circ$ 、不同波长的基波入射时, 远场 SHG 偏振态的变化

Fig. 4. Polarization of the far-field SHG changes when the relative angle of the two layers is  $60^\circ$ , and the the fundamental wave of different wavelengths is incident.

另外, 非线性偏振转换器件的工作环境有时需要固定基波波长就可以产生不同偏振态的非线性信号. 于是又按照图 3 选取了固定的基波波长 1500 nm, 根据此波长处不同角度时的 SHG 强度

和振幅比, 求出了不同角度下 SHG 的两个正交电场分量  $E_y$  和  $E_x$ , 并和相应的相位差  $\delta$  一起代入 (1) 式. 再导入数值计算软件 Matlab, 得到了固定波长下, 远场 SHG 偏振态随相对角度的变化, 结

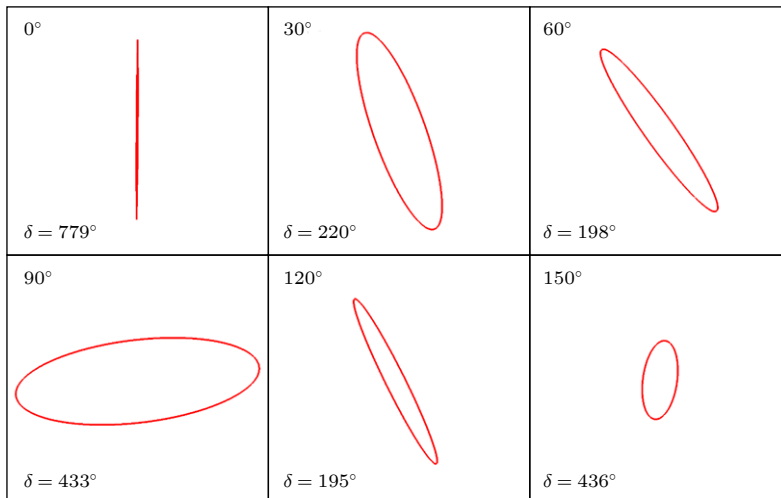


图 5 基波波长为 1500 nm 入射时, 不同相对角度的结构的远场 SHG 偏振态的变化

Fig. 5. When the incident wavelength is 1500 nm, the polarization of the far-field SHG changes with the relative angle of the two layers.

果如图 5 所示. 可以看出, 随着双层 SRR 相对角度的变化, 固定的基波激发出的 SHG 椭圆偏振态的长轴发生了旋转, 展示了近线偏振和椭圆偏振态的变化.

## 4 结 论

本文利用双层金属 SRR 组成的超构分子中存在的模式耦合特性, 通过调节上下层金属开口谐振器之间的相对开口方向, 使得超构分子的 SHG 辐射能够同时具有两个正交分量. 在 SHG 产生效率较高的波段内, 产生了依赖基波波长改变的 SHG 两个正交分量振幅比和相位差的变化, 从而实现了椭圆偏振、近线偏振、近圆偏振等多种偏振态的 SHG 辐射. 也可以用不同相对角度的 SRR 超构分子的组合, 在固定的基波激发下, 获得不同偏振态的 SHG 辐射.

## 参考文献

- [1] Wan P B, Wen X M, Sun C Z, Bevila K C, Zhang H, Sun X M, Chen X D 2015 *Small* **11** 5409
- [2] Wang T, Guo Y L, Wan P B, Zhang H, Chen X D, Sun X M 2016 *Small* **12** 3748
- [3] Ren X H, Li Z J, Huang Z Y, Sang D, Qiao H, Qi X, Li J Q, Zhong J X, Zhang H 2017 *Adv. Funct. Mater.* **27** 1606834
- [4] Lu L, Liang Z M, Wu L M, Chen Y X, Song Y F, Dhanabalan S C, Ponraj J S, Dong B Q, Xiang Y J, Xing F, Fan D Y, Zhang H 2018 *Laser Photonics Rev.* **12** 1700221
- [5] Mu H R, Wang Z T, Yuan J, Xiao S, Chen C Y, Chen Y, Chen Y, Song J C, Wang Y S, Xue Y Z, Zhang H, Bao Q L 2015 *ACS Photon.* **2** 832
- [6] Yin Y L, Sun X B, Song M X, Chen W, Chen F N 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 024203 (in Chinese) [殷玉龙, 孙晓兵, 宋茂新, 陈卫, 陈斐楠 2019 物理学报 **68** 024203]
- [7] Lin X, Jin Z M, Li J G, Guo F Y, Zhuang N F, Chen J Z, Dai Y, Yan X N, Ma G H 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 237801 (in Chinese) [林贤, 金钻明, 李炬庚, 郭飞云, 庄乃锋, 陈建中, 戴晔, 阎晓娜, 马国宏 2018 物理学报 **67** 237801]
- [8] Nicholls L H, Rodríguez-Fortuño F J, Nasir M E, Córdova-Castro R M, Olivier N, Wurtz G A, Zayats A V 2017 *Nat. Photon.* **11** 628
- [9] Norrman A, Blomstedt K, Setälä T, Friberg A T 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 040401
- [10] Laudari A, Mazza A R, Daykin A, Khanra S, Ghosh K, Cummings F, Muller T, Miceli P F, Guha S 2018 *Phys. Rev. Appl.* **10** 014011
- [11] Xiong X, Xue Z H, Meng C, Jiang S C, Hu Y H, Peng R W, Wang M 2013 *Phys. Rev. B* **88** 115105
- [12] Wu P C, Tsai W Y, Chen W T, Huang Y W, Chen T Y, Chen J W, Liao C Y, Chu C H, Sun G, Tsai D P 2017 *Nano Lett.* **17** 445
- [13] Liu H, Genov D A, Wu D M, Liu Y M, Liu Z W, Sun C, Zhu S N, Zhang X 2007 *Phys. Rev. B* **76** 073101
- [14] Li Z Y, Kim M H, Wang C, Han Z H, Shrestha S, Overvig A C, Lu M, Stein A, Agarwal A M, Loncar M, Yu N F 2017 *Nat. Nanotechnol.* **12** 675
- [15] Gao X, Singh L, Yang W 2017 *Sci. Rep.* **7** 6817
- [16] Alam M Z, Schulz S A, Upham J, Leon I D, Boyd R W 2018 *Nat. Photon.* **12** 79
- [17] Semmlinger M, Tseng M L, Yang J, Zhang M, Zhang C, Tsai W Y, Tsai D P, Nordlander P, Halas N J 2018 *Nano Lett.* **18** 5738
- [18] Woerner M, Somma C, Reimann K, Elsaesser T, Liu P Q, Yang Y M, Reno J L, Brener I 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 107402
- [19] Liu N, Giessen H 2010 *Angewandte Chemie International Edition* **49** 9838
- [20] Brettin A, Abolmaali F, Blanchette K F, McGinnis C L, Nesmelov Y E, Limberopoulos N I, Walker D E, Anisimov I, Urbas A M, Poffo L, Maslov A V, Astratov V N 2019 *Appl. Phys. Lett.* **114** 131101
- [21] Wen Y Z, Zhou J 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 167401
- [22] Zhou J F, Koschny T, Soukoulis C M 2007 *Opt. Express* **15** 17881
- [23] Segal N, Keren-Zur S, Hendler N, Ellenbogen T 2015 *Nat. Photon.* **9** 180
- [24] Johnson P B, Christy R W 1972 *Phys. Rev. B* **6** 4370
- [25] Liu N, Liu H, Zhu S N, Giessen H 2009 *Nat. Photon.* **3** 157
- [26] Ciraci C, Poutirina E, Scalora M, Smith D R 2012 *Phys. Rev. B* **85** 201403

# Polarization state of second harmonic generation in split ring resonator based meta-molecule\*

Ma Ming-Yu    Wu Han    Chen Zhuo<sup>†</sup>

(*School of Physics, Nanjing University, Nanjing 210093, China*)

( Received 29 May 2019; revised manuscript received 15 July 2019 )

## Abstract

In this paper, we study the second harmonic generation (SHG) from the stereo-stacked meta-molecules consisting of two vertically stacked split ring resonators (SRRs) that resonate at the fundamental wavelength. When pumped by the linearly polarized incident wave with the electric field direction along one of the SRRs' arms, the meta-molecules emit the SHG that can have two non-zero orthogonal electric field components, provided that the top SRR and the bottom SRR are not arranged in mutually parallel or anti-parallel manner. Due to the strong coupling between the two SRRs, the plasmonic properties of the stereo-stacked meta-molecules could be tuned by varying the twist angle between the two SRRs. In this process, we demonstrate that the amplitudes of the two orthogonal SHG field components, and the phase difference between these two components can be varied with changing the twist angle between two SRRs. Based on the concept of the light polarization, different polarization states can be achieved by changing the differences in phase and amplitude between the orthogonal field components. Therefore, the twist angle dependent amplitudes of and phase difference between two orthogonal SHG field components can be used to manipulate the polarization states of the emitted SHG. For the stereo-stacked meta-molecules with a fixed twist angle of  $60^\circ$ , elliptically, near-circularly and near-linearly polarized SHG emission can be obtained at different fundamental wavelengths. In addition, for the fundamental wave with a fixed wavelength of 1500 nm, the stereo-stacked meta-molecules with different twist angles are demonstrated to be able to emit SHG with elliptical and near-linear polarization states.

**Keywords:** split ring resonator, second harmonic generation, polarization control

**PACS:** 42.65.-k, 42.25.Ja, 42.25.-p

**DOI:** 10.7498/aps.68.20190837

---

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11674168).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [zchen@nju.edu.cn](mailto:zchen@nju.edu.cn)