
中国科大等首次实现具有极致内禀手性的连续域中束缚态

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/21676.html>

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

中国科大等首次实现具有极致内禀手性的连续域中束缚态。

近日，中国科学技术大学教授陈杨、哈工大深圳校区教授肖淑敏与新加坡国立大学教授仇成伟合作，在微纳光学与手性光学的交叉领域取得重要进展。合作团队在介质超表面中引入微小倾斜扰动，首次实现并观测到具有极致内禀手性的连续域中束缚态(chiral BIC)，在光学波段同时得到高达0.93的圆二色谱信号和高达2663的光学品质因子，显著增强了光与物质的手性相互作用，这项研究在手性光学领域具有广泛的应用前景。1月19日，相关研究成果以*Observation of intrinsic chiral bound states in the continuum*为题，发表在《自然》(Nature)上。

手性(Chirality)是自然界的基本属性，当一个物体无法通过旋转、平移等操作与其镜像体相重合时，该物体即具有手性。手性在自然界中广泛存在，从我们的双手双脚到宇宙中的星系。更重要的是，构成生命体的基本大分子，如：氨基酸、核糖核酸、单糖等，也具有手性结构，且生命体对这些基本单元的构型选择具有极致的偏向性，如：氨基酸都是L型的，而单糖都是D型的。

相应地，许多生理现象的产生都源于分子手性的精确识别与严格匹配。因此，研究物质手性不仅在食品化妆品、疾病诊断、药物开发等领域具有重要应用价值，而且有助于探索生命起源之谜。Science杂志在最新发布的“全世界最前沿的125个科学问题”中将“为什么生命需要手性”列为其中之一。

手性物质的两个对映异构体(enantiomers)具有基本相同的物理性质、化学性质和热力学性质，但是，当手性物质与手性圆偏振光发生相互作用时，会产生手性光学响应，如圆二色谱(CD)和旋光谱(ORD)，这也是最常用的研究物质手性的方法，并孕育出光学领域的一个重要分支——手性光学(chiroptics)。作为一个历史悠久、应用广泛的学科分支，手性光学研究的核心是增强光与物质的手性相互作用，然而自然界中物质具有的内禀手性通常极其微弱，其产生的手性光学响应也难以探测。

近些年，随着光学超表面(metasurfaces)领域的发展，手性超表面也得到了广泛关注与研究，其主要利用构成单元(meta-atoms)的手性微纳结构在亚波长厚度上产生很强的手性光学响应。然而，现有的手性超表面，无论是基于等离激元还是介质，产生的CD信号依旧不强，更重要的是谐振峰的品质因子(Q)不高，导致内在的光与物质手性相互作用有限。连续域中束缚态(bound state in the continuum, BIC)作为一种存在于可辐射连续光谱却仍然保持局域化的电磁本征态，具有Q值极大、光与物质相互作用极强等特点。而手性连续域中束缚态(chiral BIC)则表现为与

一种自旋方向的圆偏振光完全解耦，而与另一种自旋方向的圆偏振光发生强相互作用，同时产生最大的圆二色谱（ $CD = 1$ ）和极高的品质因子。尽管Y. Kivshar、A. Alu、J.

Dionne等国际知名研究组先后从理论上提出了chiral BIC的实现方案，但由于结构设计难以在实验上实现，这些工作仍停留在理论阶段，具有内禀手性的连续域中束缚态在光学频段的实现与观测依旧是该领域研究的热点和难点。

前期理论研究发现，实现chiral BIC的关键和难点是打破结构的面外镜面对称，这与常用的针对二维

结构

的微纳加

工手段（如：FIB，

EBL等）不兼容。作者创新性地提出利

用结构倾斜打破 TiO_2

介质超表面的面外镜面对称，并结合面内的梯形纳米孔设计，实现三维真手性（图1a）。该超表面是由常见的竖直方孔超表面引入面内几何扰动 α 和面外几何扰动 ϕ 演化而来，支持一系列谐振Bloch模式（图1b）。对于基模 TM_1

，当没有面内和面外扰动时（ $\alpha = 0$ ， $\phi = 0$ ），该模式在动量空间的 Γ 点上支持一个对称保护的连续域中束缚态（symmetry-protected BIC）。

为了分析结构扰动对模式内禀手性的影响，研究者们发展了一种基于近远场光学手性守恒的微观模型。当只有面内扰动引入时（ $\alpha \neq 0$ ， $\phi = 0$ ），该BIC模式退化为quasi-BIC模式，此时模式的近场手性可以用光学手性密度 $OCD = -12\omega \text{Re}[D \cdot B^*]$ 衡量，由于OCD是一个奇宇称（parity-odd）的标量，结构的面外镜面对称会使得OCD在对称面两侧呈反对称分布（图1c）。类比波印廷定理，光学手性在近场与远场的分布也遵循守恒定律，因而当OCD在近场具有反对称分布而互相抵消时，该模式的远场辐射也不具有手性，表现为线偏振。当面内和面外微扰同时引入时（ $\alpha \neq 0$ ， $\phi \neq 0$ ），OCD在近场的反对称分布被打破（图1d），不抵消的OCD会“释放”到远场，产生手性远场辐射，其圆偏振度可以通过近场OCD的不平衡度进行推导，该微观模型也清晰揭示了为什么打破面外镜面对称是实现chiral BIC的关键。

结构倾斜诱导BIC的内禀手性也可以根据手性光学的一般性理论进行解释，即一个物体的光学手性在偶极子近似下决定于 $p_{\perp} \cdot m_{\perp}$ ，其中 $p_{\perp}$ 和 $m_{\perp}$

分别是该物体电偶极子 p 和磁偶极子 m 在与入射波矢 k 垂直面上的投影。针对本工作中的介质超表面，当没有结构倾斜引入时， TM_1 -quasi-

BIC在对称面上（ $z=0$

）磁场分布在面内而电场分布在面外（图1

d），此时 $p_{\perp} \cdot m_{\perp}$

为零

，不具有

内禀手性。而当介

质孔沿 x 方向倾斜时，电偶极子 p 也随之倾斜，产生非零的 $p_{\perp} \cdot m_{\perp}$ 及内禀手性。

为了制备这种倾斜纳米孔超表面，并精准控制倾斜角，作者开发了一套倾斜反应离子刻蚀工艺：将预先经过EBL曝光显影的样品置于具有一定倾角的基底上，射频源发射的离子束经铝挡板上的一个孔径校准后入射到样品上对 TiO_2

薄膜进行刻蚀（图2a），通过对铝挡板的周期和尺寸进行严格的设计，在反应离子刻蚀腔体内部形成平滑的等势线，实现了纳米孔的倾斜角可的精准控制，并在整个超表面区域表现出很好的

一致性（图2b）。

为了得到

最大的远场光学手

性，需要协同设计面内扰动 α 和面外

扰动 ϕ 。通过计算TM₁-quasi-BIC的本征偏振在动量空间的分布，作者发现引入面内扰动 α 会使得代表BIC模式的偏振奇点V分裂成两个具有相反圆偏振的C点（即C-和C+），而引入面外扰动 ϕ 则会引起整个偏振分布向一侧平移，当 α 和 ϕ 取到一组适当值时（如 $\alpha=0.12$, $\phi=0.1$ ），C+点恰好移到动量空间的 Γ 点上（图2c），即实现了chiral BIC，仿真和实验得到的角分辨透射谱也验证了chiral BIC的实现（图2d）。

以上结果可以看出 α 和 ϕ 的协同作用是该超表面体系实现chiral BIC的关键，而实验和理论结果也表明C点在动量空间的移动与 ϕ 的大小近似成线性关系（图3a）。为了得到 α 和 ϕ 之间的内在联系，作者基于手性光学的一般性理论，并经过一系列化简和推导得到chiral BIC在远场辐射的CD值与 α 和 ϕ 的关系近似满足： $CD \sim \phi \alpha^2 + A \phi^2$ ，其中A是常数，该理论结果与仿真和实验结果相符（图3b）。通过进一步对该关系式求极值可以得到CD最大化的条件是 $\alpha = A \phi$ ，这一直接明了的线性关系也被仿真和实验结果所验证（图3c）。

实际上，圆二色谱不仅可以通过物质的内禀手性（真手性truechirality）产生，也可以通过光的倾斜入射或者物质的各向异性（伪手性false chirality）产生。为了进一步验证实验测得的chiral BIC具有内禀手性，作者测量了超表面在正入射条件下的圆偏振基反射谱（图4a），可以看到只有同偏振分量 R_{RR}

具有一个明显且尖锐的谐振峰，而交叉偏振分

量 R_{RL} 和 R_{LR} 以及另一个同偏振分量 R_{LL}

则没有观察到明显的谐振信号，据此可以排除伪手性的影响，证明该chiral BIC模式具有内禀手性。

进一步分析得到该超表面的CD值高达0.93，已经接近极限值1，而Q值高达2663，比现有手性超材料/超表面实验结果高出一个数量级以上（图4b），这种CD值和Q值的同时增强可以显著提高光与物质的手性相互作用，在手性光学领域有广阔应用。作为一个典型性应用，作者展示了基于chiral BIC的手性荧光增强发射，通过在超表面上旋涂染料分子并进行光泵浦可以观察到显著增强的荧光发射，且发射的荧光具有高纯度的圆偏振态（图4c）。

该团队首次实验实现并观测了具有内禀手性的连续域中束缚态（intrinsic chiral BIC），同时得到了高达0.93的CD值和高达2663的Q值，作者还基于微观模型和手性光学的一般性模型揭示了intrinsic chiral BIC的产生机理和设计方法。

虽然这项工作实现在可见光波段，它可以扩展到红外以及更长的波段，而且经过加工工艺的改良和优化，CD值和Q值还可以进一步提升。本文开发的chiral BIC超表面体系可以显著增强光与物质的手性相互作用，在手性光学领域有广阔应用前景，如手性光源与光探测器、手性物质的痕量检测、非对称光催化等。

[论文链接](#)

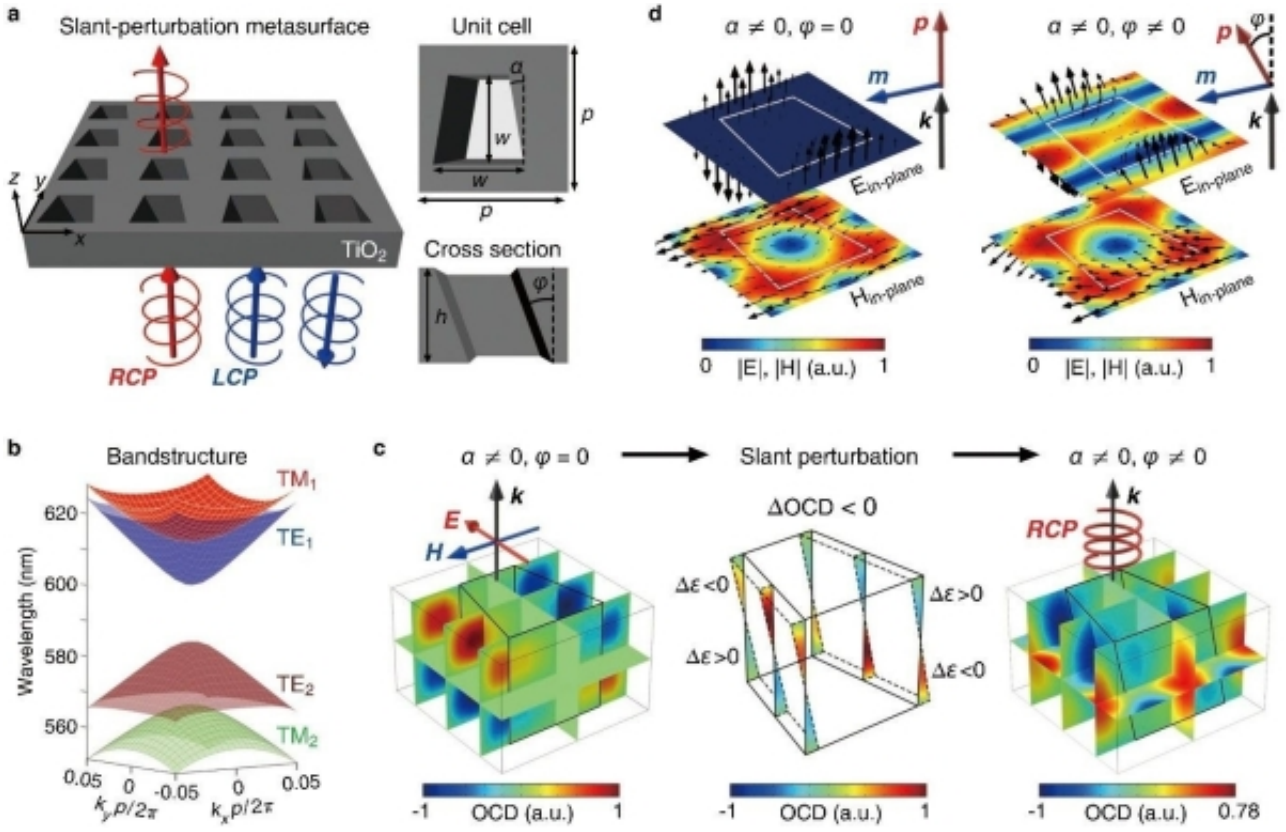


图1. (a) 倾斜扰动超表面产生chiral BIC的示意图。(b) 超表面的能带结构。(c) 截面上OCD的分布。左： $\alpha \neq 0, \phi = 0$ ，右： $\alpha \neq 0, \phi \neq 0$ ，中：倾斜微扰区域的OCD分布。(d) 无倾斜（左）和有倾斜（右）引入情况下，电场和磁场在中心x-y面上的分布，以及相应的电偶极子p和磁偶极子m结构。

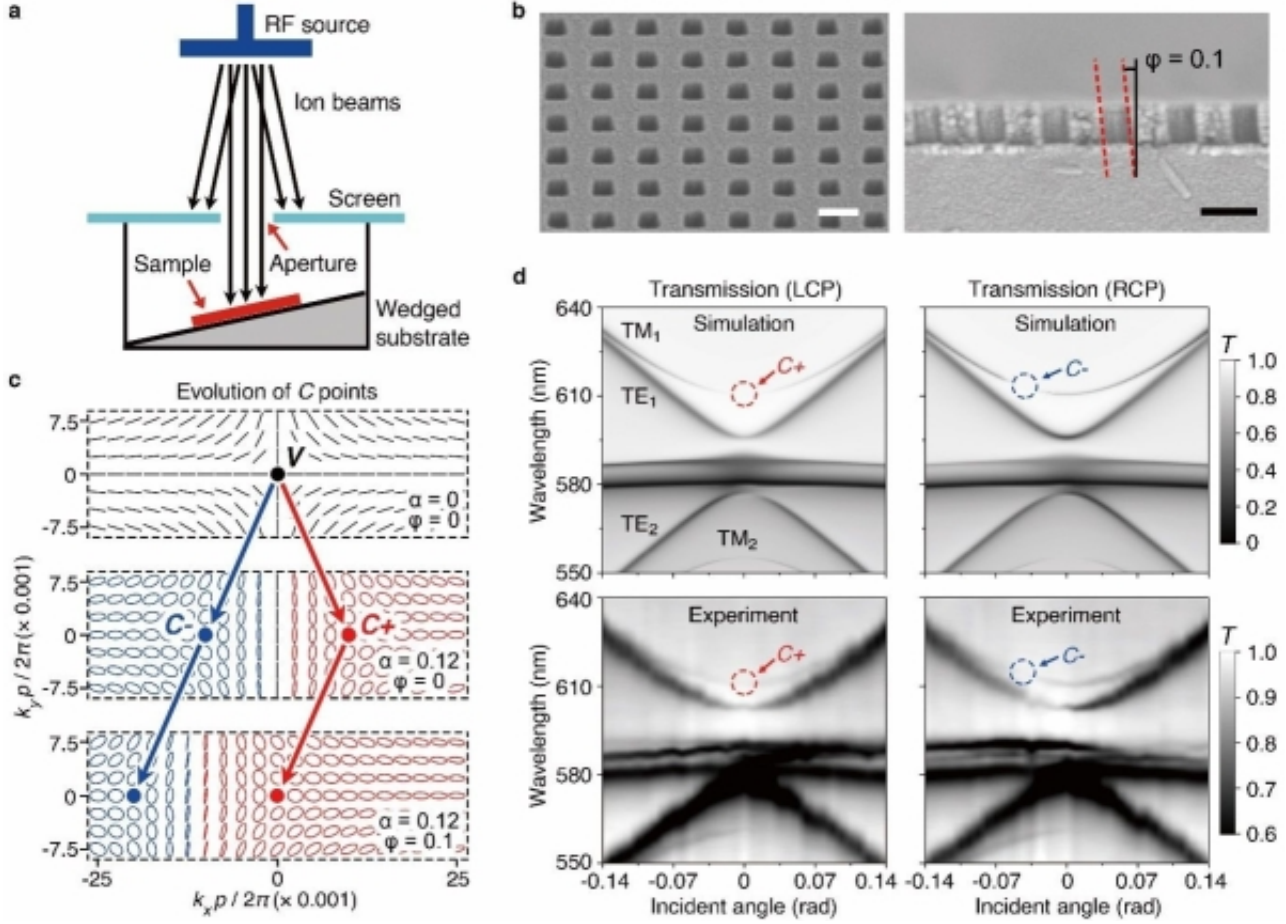


图2. (a) 倾斜RIE刻蚀装置示意图。(b) 超表面样品的侧视图和截面图，比例尺：300 nm。(c) C点在动量空间随面内和面外扰动引入的演化图。(d) 左圆偏光和右圆偏光入射时，超表面的角分辨透射谱（上：仿真结果，下：实验结果）。

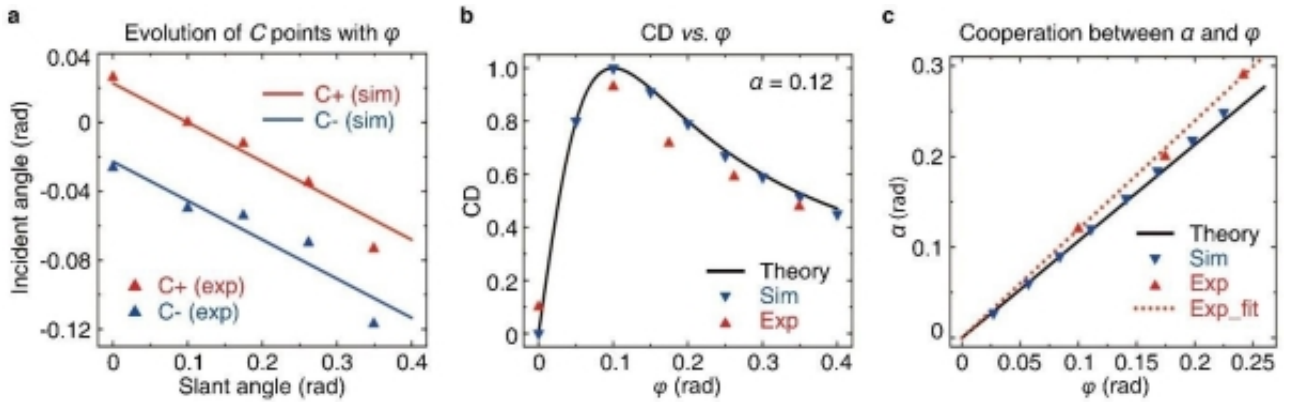


图3. (a) 超表面具有不同倾斜角时C+和C-点对应的圆偏光入射角度。(b) 当 α 固定时，CD值与 ϕ 之间的关系。(c) 最大化CD值需要满足的 α 和 ϕ 之间的关系。

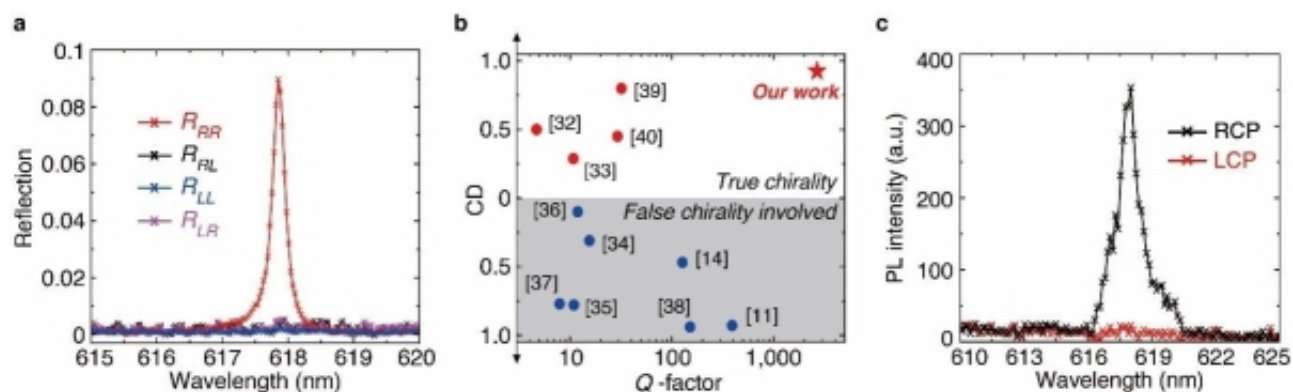


图4. (a) 实验测得超表面样品的圆偏振基反射谱。(b) 本工作得到的CD与Q值与现有其它工作的对比, 这些工作根据CD信号的来源分为两类。(c) 旋涂染料分子的超表面在光泵浦下的偏振分辨荧光发射谱。

研究团队单位：中国科学技术大学

更多 科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有, 请勿用于商业用途, [爱科学iikx.com](https://www.iikx.com)转发