Рассеяние света на диэлектрических метаповерхностях¹⁾

А. Д. Синельник⁺, К. Б. Самусев^{*×}, С. Ю. Лукашенко⁺, Ю. С. Кившарь^{+ ∇}, М. Ф. Лимонов^{*×}, М. В. Рыбин^{*× 2})

⁺Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики (Университет "ИТМО"), кафедра нанофотоники и метаматериалов, 197101 Санкт-Петербург, Россия

* Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики (Университет "ИТМО"), кафедра фотоники диэлектриков и полупроводников, 197101 Санкт-Петербург, Россия

 $^{\times} \Phi$ изико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, 194021 Санкт-Петербург, Россия

[∇]Nonlinear Physics Center and CUDOS@ANU, Australian National University, Canberra ACT 2601, Australia

Поступила в редакцию 14 февраля 2017 г.

Методом лазерной литографии созданы образцы "фотонного графена" – двумерные диэлектрические субмикронные структуры с решеткой типа пчелиных сот. В оптическом диапазоне экспериментально и теоретически исследован переход от режима рассеяния света на метаповерхности к режиму дифракции Лауэ на двумерной фотонной структуре. Картины оптической дифракции позволяют невооруженным глазом определять число элементарных ячеек микрообразца конечных размеров.

DOI: 10.7868/S0370274X17060029

Одним из многообещающих направлений современного материаловедения является создание метаповерхностей [1]. Эта тематика возникла как естественное развитие работ, связанных с метаматериалами [2], и направлена на дальнейшую миниатюризацию различных элементов современной фотоники. Метаповерхность представляет собой двумерную структуру наночастиц или микрочастиц, расположенных в пространстве по определенному закону на расстояниях, меньших, чем длина волны. Метаповерхности используют в фотонике для изменения фронта и фазы падающего электромагнитного излучения по заданному закону. Большой интерес представляют перестраиваемые метаповерхности [3], образованные частицами с показателем преломления, изменяющимся под внешним воздействием, роль которого может выполнять свет [4], магнитное поле [5], температура [6]. В качестве перспективного материала для создания перестраиваемых метаповерхностей рассматривается графен [1], оптические свойства которого меняются при приложении напряжения [7].

Целью данной работы был синтез и исследование оптических свойств фотонного аналога графена – *диэлектрических матаповерхностей* с кристаллической решеткой графена (гексагональная структура типа пчелиных сот) с постоянной решетки $a = \sqrt{3}w$, где w – сторона шестиугольной соты – варьировалась в широких пределах 0.3 мкм $\leq w \leq 1.5$ мкм (постоянная решетки истинного графена составляет *a* = 0.246 нм). Используя Nd-лазер с длиной волны $\lambda = 0.53$ мкм мы проследили переход от режима рассеяния света на метаповерхности ($a < \lambda$) к режиму дифракции Лауэ на двумерной фотонной структуре ($a \gtrsim \lambda$). Ранее мы синтезировали и исследовали двумерные структуры с квадратной, прямоугольной и треугольной решеткой [8]. В отличие от этих структур, графен обладает структурой, примитивная ячейка которой содержит два структурных элемента (или "метаатома"). При этом наблюдаются существенные различия в картинах дифракции на структурах с простой решеткой и сложных структурах, характеризуемых решеткой с базисом (более чем один метаатом в примитивной ячейке).

Диэлектрические метаповерхности со структурой фотонного графена изготавливали методом лазерной литографии [9–11]. Как и в предыдущих работах [8, 11], мы использовали установку фирмы Laser Zentrum Hannover (Германия). В изготовленных образцах число ячеек (пчелиных сот) варьировалось от 7 (рис. 1а) до нескольких сотен (рис. 1с). Форму образцов контролировали методом сканирующей электронной микроскопии. Было изготовлено два типа структур: в одних полностью воспроизводилась форма пчелиных сот (рис. 1а–с), в других каждая из сот

 $^{^{1)}\}mathrm{Cm.}$ дополнительные материалы к данной статье на сайте нашего журнала www.jetpletters.ac.ru.

²⁾e-mail: m.rybin@mail.ioffe.ru

Рис. 1. (Цветной онлайн) (a-d) – Изображения диэлектрических метаповерхностей со структурой графена, полученные методом SEM. (e, f) – Фотографии установки для исследования оптической дифракции и проекции дифракционных картин

формировалась шестью наночастицами с диаметром в латеральной плоскости от 100 до 300 нм (рис. 1d). Для сравнительного анализа в данной работе нами использованы образцы метаповерхностей с треугольной решеткой.

На рис. 1e, f приведены фотографии экспериментальной установки. Стеклянную подложку размером $\approx 1 \,\mathrm{cm}^2$ с набором образцов микронных размеров закрепляли в прецизионном держателе, который используют для изучения дифракции рентгеновских лучей. Дифракционные картины наблюдали визуально на плоском экране, расположенном за образцом перпендикулярно лазерному лучу (рис. 1e, f), и фотографировали камерой Olympus C-2040 Zoom. Несмотря на микронные размеры метаповерхностей и субмикронные размеры рассеивающих частиц, на полупрозрачном экране размером $\approx 50 \times 50$ см с обеих сторон наблюдались исключительно яркие и контрастные дифракционные картины (рис. 1e, f).

Рассеяние света, которое наблюдается при освещении образцов светом с длиной волны, удовлетворяющей условию $a \gtrsim \lambda$, соответствует дифракции Лауэ [12] на двумерной фотонной структуре. Интенсивность дифракции в борновском приближении [13] определяется квадратом модуля структурного фактора рассеяния $|S(\mathbf{q})|^2$, который имеет максимумы в направлениях \mathbf{k}_s , определяемых системой уравнений Лауэ: $\mathbf{q} \cdot \mathbf{a}_{1,2,3} = (\mathbf{k}_s - \mathbf{k}_i) \cdot \mathbf{a}_{1,2,3} = 2\pi n_{1,2,3}$. Здесь введены следующие обозначения: \mathbf{k}_i и \mathbf{k}_s – волновые вектора падающей и рассеянной волн, $\mathbf{q} = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_s$ – вектор рассеяния, \mathbf{a}_i – вектора трансляции решетки, n_i – целое число, определяющее порядок дифракции. В случае одномерной линейной цепочки, состоящей из N точечных рассеивателей, используется известная формула [12]:

$$|S(\mathbf{q})|^{2} = \frac{\sin^{2}(N\mathbf{qa}/2)}{\sin^{2}(\mathbf{qa}/2)}.$$
 (1)

Ранее мы изучали дифракцию Лауэ на диэлектрических микроструктурах, обладающих квадратной, прямоугольной и треугольной решеткой [8], каждую из которых можно представить как композицию из двух или трех наборов параллельных цепочек рассеивателей. Эксперименты показали, что рассеяние света на разных наборах цепочек происходит практически независимо и описывается формулой (1). При условии $\sin(\mathbf{qa}/2) \to 0$ структурный фактор $|S(\mathbf{q})|^2$ имеет интенсивные максимумы, которые будем называть "главными". Функция $|S(\mathbf{q})|^2$ обращается в ноль при $\sin(N\mathbf{qa}/2) = 0$, следовательно, в промежутке между двумя главными максимумами она имеет N-1 нулей и, соответственно, еще N-2"дополнительных" максимумов (рис. 2a). Условие появления главных максимумов $\mathbf{qa}/2 = n\pi$ $(n = 0, \pm 1,$ $\pm 2, \ldots$) преобразуется в выражение

$$\theta_s = \arccos\left(n\frac{\lambda}{a}\right),$$
(2)

где λ – длина волны падающего света, θ_s – угол рассеяния света на цепочке. Из формулы (2) следует, что нулевой порядок дифракции (n = 0) будет наблюдаться всегда, при этом $\theta_s = 90^\circ$, т.е. дифракция происходит в плоскости, перпендикулярной оси цепочки. Следующие порядки дифракции $(n = \pm 1, \pm 2, \pm 2)$...) возникают при выполнении соотношения $n\lambda < a$ и представляют собой пары конусов с углом при вершине θ_s и осью, совпадающей с осью цепочки **a**. При этом на экране, перпендикулярном лазерному лучу, наблюдаются прямые линии, обусловленные рассеянием нулевого порядка (две взаимно перпендикулярные линии в случае квадратной решетки и три – в случае треугольной, рис. 2b), а также гиперболы, которые образуются в результате пересечения конусов с плоским экраном. Дополнительную модуляцию





Рис. 2. (Цветной онлайн) (a) – Модуль квадрата структурного фактора $|S(\mathbf{q})|^2$ линейной цепочки рассеивателей, формирующих двумерную квадратную либо треугольную решетку. Число рассеивателей N = 10. (b) – Картина оптической дифракции на метаповерхности с треугольной решеткой. (c) – $|S(\mathbf{q})|^2$, вычисленный по формуле (3) для решетки с симметрией графена. Число рассеивателей N = 10. (d) – Картина оптической дифракции на структуре фотонного графена. $\lambda = 0.53$ мкм

вносят N-1 нулей функции $\sin(N\mathbf{qa}/2) = 0$, эта модуляция слабо различима при N > 10, т.е. прямые и гиперболы визуально кажутся непрерывными (рис. 2b). Основные результаты теоретического анализа вместе с результатами для треугольной решетки, представлены в Дополнительном материале к данной статье.

Расчет структурного фактора для решетки графена отличается от схемы, которая подходит для треугольной решетки, хотя обе двумерные структуры обладают гексагональной симметрией C_{6v} . Разница заключается в том, что решетка графена представляет собой наложение двух взаимопроникающих треугольных решеток Браве с базисом, содержащим в единичной ячейке два атома углерода (в случае графена) или два метаатома (в случае фотонного графена). Расчет структурного фактора графена представлен в Дополнительном материале к данной статье и приводит к следующему выражению:

$$|S(\mathbf{q})|^2 \approx 4N^2 \frac{\sin^2(2N\zeta)}{\sin^2(\zeta)} \cos^2\left(\frac{\zeta}{3}\right),\tag{3}$$

где $\zeta = |\mathbf{k}_s| \sin \varphi \sqrt{3}a/4, \varphi$ – угол между векторами \mathbf{k}_s и \mathbf{k}_j, N – число пчелиных сот на стороне образца правильной шестиугольной формы.

По сравнению с выражением $|S(\mathbf{q})|^2$ для треугольной решетки в (3) возникает дополнительный множитель $4\cos^2(\zeta/3)$, который существенным образом меняет картину дифракции. Обращение в ноль этого множителя выполняется при условии $\zeta/3 = \pi/2 + \pi m$ и приводит к гашению дифракции при некоторых углах рассеяния на плоскостях (гасится нулевой порядок рассеяния, n = 0) и на конусах ($n = \pm 1, \pm 2, ...$). Соответственно, на экране наблюдаются разрывы на прямых и гиперболах через каждые три главных максимума (рис. 2c, d). Такие разрывы обусловлены деструктивной интерференцией рассеянных волн на двух треугольных решетках, формирующих решетку графена.

На рис. 3 представлены результаты экспериментального и теоретического исследований эволюции картин дифракции на фотонном графене в зависимости от соотношения постоянной решетки *a* и длины волны λ , которая в экспериментах была фиксированной ($\lambda = 0.53$ мкм). Набор образцов, в которых постоянная решетки варьировалась от *a* = 0.5 мкм (меньше λ) до 2.6 мкм (больше λ), позволил проследить переход от режима рассеяния света на метаповерхности к режиму дифракции Лауэ на двумерной фотон-



Рис. 3. (Цветной онлайн) Верхняя строка – структурный фактор $|S(\mathbf{q})|^2$ в одной из трех плоскостей, перпендикулярных образцу и соответствующих нулевому порядку дифракции, расчитанный по формуле (3). Плоскость выделена пунктиром на картинах дифракции в средней строке. Средняя строка – экспериментальные картины дифракции на плоском экране. Нижняя строка – $|S(\mathbf{q})|^2$ для передней полусферы. (a–c) – a = 0.5 мкм. (d–f) – a = 0.9 мкм. (g–i) – a = 1.4 мкм. (j-l) – a = 2.6 мкм. $\lambda = 0.53$ мкм

ной структуре. В верхней строке рис. 3 представлены угловые зависимости $|S(\mathbf{q})|^2$ в одной из трех плоскостей, соответствующих нулевому порядку дифракции. Средняя строка содержит экспериментальные картины дифракции на плоском экране, расположенном за образцом (см. рис. 1е, f). Результаты расчета структурного фактора $|S(\mathbf{q})|^2$ при рассеянии света в переднюю полусферу содержатся в нижней строке.

Для образца с постоянной решетки $a < \lambda$ (см. рис. 3а–с) дифракция света сводится к рассеянию нулевого порядка (n = 0) в трех высокосимметричных плоскостях, определяющих гексагональную симметрию решетки C_{6v} . Рассеяние нулевого порядка наблюдается всегда, независимо от соотношения a и λ , таким образом этот образец фотонного графена представляет собой метаповерхность для света с длиной волны $\lambda \ge 0.53$ мкм. В картинах дифракции образца a = 0.9 мкм (см. рис. 3d–f) наблюдаются ненулевые дифракции Лауэ на фотонной структуре. Из формулы (2) следует, что при 0.53 < a < 1.06 мкм должны наблюдаться три пары конусов первого порядка дифракции $(n = \pm 1)$, при 1.06 <

a < 1.59 мкм – шесть пар $(n = \pm 1, \pm 2)$ и так далее. Именно такую эволюцию мы и видим: в картинах дифракции на образце a = 1.4 мкм экспериментально наблюдаются главные максимумы от 12 разорванных гипербол (см. рис. 3g-i), а на образце a = 2.6 мкм – от 24 гипербол (см. рис. 3j-l).

Выражение (3) для структурного фактора $|S(\mathbf{q})|^2$ содержит периодический множитель $\sin^2(2N\zeta)$, в который входит число сот на границе шестиугольника N. В результате появляется возможность определять число пчелиных сот в микронных образцах фотонного графена шестиугольной формы невооруженным глазом. На рис. 4 представлены картины дифракции и их увеличенные фрагменты, на которых четко видны поддающиеся подсчету отдельные дифракционные рефлексы. Легко убедиться в том, что для образца с четырьмя сотами на стороне шестиугольника (см. рис. 4а) число дифракционных рефлексов между двумя соседними главными максимумами (включая их самих) равно 8 (см. рис. 4i), для образца с N = 5 (см. рис. 4b) число максимумов равно 10 (см. рис. 4ј) и так далее. Следует также отметить, что в областях дифракционных полос и гипербол, где



Рис. 4. (Цветной онлайн) (a–d) – СЭМ-изображения образцов фотонного графена. (e–g) – Экспериментальные картины дифракции, соответствующие структурам из верхнего ряда. (i–k) – Фрагменты картин дифракций, представленных в среднем ряду

множитель $\cos(\zeta/3)$ обращается в ноль, это правило не выполняется, и наблюдаются нечеткие размазанные рефлексы, выделенные для примера на рис. 41 кружками. При возрастании числа ячеек отдельные рефлексы сливаются в непрерывные кривые, аналогично тому, как изолированные атомные уровни объединяются в энергетические зоны при формировании кристаллической решетки.

Таким образом, в данной работе исследовано рассеяние света на двумерных диэлектрических структурах с симметрией графена. Метаповерхности на основе фотонного графена представляются перспективным объектом для создания функциональных элементов планарной фотоники с топологическими свойствами и являются достаточно миниатюрными для интеграции в оптические чипы с целью обработки информации и телекоммуникаций.

Авторы благодарят П.А. Белова и А.А. Каплянского за поддержку и обсуждение результатов работы, которая выполнена при государственной финансовой поддержке Российского Научного Фонда (грант # 15-12-00040) и Australian Research Center.

- 1. N. Yu and F. Capasso, Nature Mater. 13, 139 (2014).
- N. Zheludev and Y.S. Kivshar, Nature Mater. 11, 917 (2012).

- S. Glybovski, S.A. Tretyakov, P.A. Belov, Y.S. Kivshar, and C. Simovski, Phys. Rep. 634, 1 (2012).
- I. V. Shadrivov, P. V. Kapitanova, S. I. Maslovski, and Y. S. Kivshar, Phys. Rev. Lett. **109**, 083902 (2012).
- X. Wang, A.A. Belyanin, S.A. Crooker, D.M. Mittleman, and J. Kono, Nature Phys. 6, 126 (2010).
- M.A. Kats, R. Blanchard, P. Genevet, Z. Yang, M.M. Qazilbash, D.N. Basov, S. Ramanathan, and F. Capasso, Opt. Lett. 38, 368 (2013).
- Y. Yao, M. A. Kats, P. Genevet, N. Yu, Y. Song, J. Kong, and F. Capasso, Nano Lett. 13, 1257 (2013).
- M. V. Rybin, K. B. Samusev, S. Y. Lukashenko, Y. S. Kivshar, and M. F. Limonov, Sci. Rep. 6, 30773 (2016).
- S. Kawata, H.-B. Sun, T. Tanaka, and K. Takada, Nature 412, 697 (2001).
- M. Farsari and B. N. Chichkov, Nature Photon. 3, 450 (2009).
- I.I. Shishkin, K.B. Samusev, M.V. Rybin, M.F. Limonov, Y.S. Kivshar, A. Gaidukeviciute, R.V. Kiyan, and B.N. Chichkov, JETP Lett. 95, 457 (2012).
- A. Guinier, X-Ray Diffraction, In Crystals, Imperfect Crystals, and Amorphous Bodies, W. H. Freeman and Co, San Francisco and London (1963).
- J. M. Ziman, Models of Disorder: the Theoretical Physics of Homogeneously Disordered Systems, Cambridge Univer. Press (1979).