材料、结构及工艺

DOI：10.16818/j.issn1001－5868.2024031901

三维拓扑绝缘体超材料光电效应仿真

林宗凯[1]，孙仲恒[2]，杨知霖[2]，周　玥[2]，孙　逊[2]，俞金玲[1,2*]

（福州大学 1. 先进制造学院，福建 泉州 350116；2. 梅努斯国际工程学院，福州 350108）

摘　要： 提出了一种基于三维拓扑绝缘体 $Bi_{1.5}Sb_{0.5}Te_{1.8}Se_{1.2}$ 的周期性方环阵列超材料结构。仿真结果表明超材料结构的表面等离子体共振强度随阵列周期和方环内环尺寸的减小而增大，其中，当周期为 300 nm 或尺寸为 25 nm 时，可以限制 80％的电磁波在表面态上。此外，通过仿真正、斜圆偏振光入射下超材料和非超材料结构的表面电场随偏振态的变化关系，得到了两种结构正、斜入射下的圆二色性；结果表明，超材料结构圆二色性数值为 0.92，远大于非超材料结构，并且该超材料结构的圆偏振分量在总偏振光电流分量的占比有显著提升，这是因为有更多的自旋电子被圆偏振光从拓扑表面态激发到体导带上。

关键词： 拓扑绝缘体；超材料；圆二色性；表面等离子体共振

中图分类号： O469　**文章编号：** 1001－5868(2024)04－0618－06

Simulation of the Photoelectric Effect in Three-dimensional Topological Insulator Metamaterial

LIN Zongkai[1], SUN Zhongheng[2], YANG Zhilin[2], ZHOU Yue[2], SUN Xun[2], YU Jinling[1,2]

(1. College of Advanced Manufacturing, Fuzhou University, Quanzhou 350116, CHN;
2. Menus International College of Engineering, Fuzhou University, Fuzhou 350108, CHN)

Abstract: This paper proposes a metamaterial structure based on a periodic square-ring array of three-dimensional topological insulators ($Bi_{1.5}Sb_{0.5}Te_{1.8}Se_{1.2}$). Simulation results showed that the surface plasmon resonance intensity of the metamaterial structure was enhanced with decreases in the array period and size of the square ring, where 80% of the electromagnetic wave could be confined to the surface states when the period was 300 nm or the size was 25 nm. In addition, the circular dichroism of the metamaterial and non-metamaterial structures under the incidence of positive and oblique circularly polarized light were obtained by simulating the relationship between the variation of the surface electric field and polarization of the metamaterial and non-metamaterial structures under positive and oblique incidence. The circular dichroism of the metamaterial structure (0.92) was much larger than that of the non-metamaterial structure, and there was a significant increase in the ratio of the circularly polarized component to the total polarized component for this metamaterial structure, which was attributed to the fact that more spintronic electrons were excited by the circularly polarized light from the topological surface state to the body conduction band.

Key words: topological insulator; metamaterial; circular dichroism; surface plasmon resonance

收稿日期：2024－03－19.

基金项目：国家自然科学基金项目(61674038).

* **通信作者：**俞金玲

0 引言

超材料是在自然界固有的材料表面上人为刻蚀亚波长尺度的周期性图案后得到的一种人工材料[1]。设计合适的、与入射光波长相匹配的周期性结构超材料可以增强光与物质之间的相互作用，并且也可以按需求得到材料特定的光学特性[2]。近年来，具有线性能带结构的三维拓扑绝缘体(3D TI)材料逐渐引起研究者的注意。TI 的表面态具有自旋动量锁定性质的狄拉克锥，并且可以有效抑制电子受到来自材料中非磁性缺陷或杂质的背散射[3]。此外，基于拓扑绝缘体的等离子体器件也与 CMOS 器件相兼容[4]。基于以上特性，三维拓扑绝缘体超材料为微纳光子晶体学、自旋电子学和电子学三者相结合提供了一个独一无二的平台。

圆偏振光致电流效应(CPGE)是圆偏振光照射拓扑绝缘体薄膜后引发自旋极化载流子选择性跃迁，导致光生载流子在动量空间出现不对称分布而产生的净电流分量[5]。CPGE 技术是光学手性探测的一种简便、有效的方法，然而，当进行偏振探测时，不可避免地会引入不同偏振光所产生的光电流，此时，不仅会有额外的光电流出现，并且大部分材料产生的 CPGE 电流太小而无法被有效探测[6]。

表面等离子体共振(SPR)是指光入射导电材料时，表面态中载流子出现集体振荡，导致了表面电磁波增强[7-8]。TI 中的 SPR 和 CPGE 均由拓扑保护表面态和体态之间的带间跃迁产生[9-10]。为了在 TI 中探测到巨大的 CPGE 电流并排除额外的光电流分量，国内外研究团队提出了将 TI 构造成表面光栅的方案，以提升 SPR，从而达到提升表面电流强度的目的[11-12]。然而，目前对 TI 超材料的 SPR 和 CPGE 电流之间的关系进行系统研究仍未见报道。基于此，本文设计了一种基于 TI 的周期性阵列结构，通过改变结构的几何参数，不仅观察到了显著的 SPR，而且仿真结果表明该结构具有巨大的 CPGE 电流，这使得 TI 超材料在光学偏振探测领域具有巨大的应用价值。

1 结构与材料性质

本文设计的材料结构主要包括了厚度为 285 nm 的 SiO_2 绝缘衬底和厚度为 100 nm 的 3D TI：$Bi_{1.5}Sb_{0.5}Te_{1.8}Se_{1.2}$(BSTS)薄膜，其中，将薄膜表面刻蚀成具有固定周期的方环结构，如图 1 所示，BSTS 层为蓝色，衬底层为灰色。图 1 中，周期性阵列的单位方环的内环边长 $d=100$ nm，外环边长 $D=200$ nm，在 xOy 平面的方向上，两个相邻的方环中心的距离，即阵列的周期 $P=400$ nm。

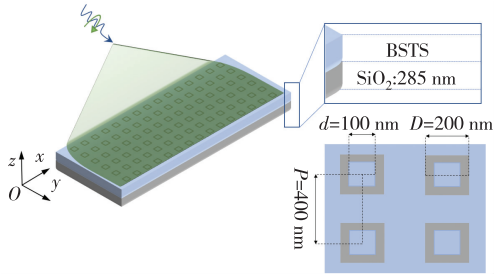


图 1 表面修饰 BSTS 材料的仿真模型

图 2 给出了 BSTS 薄膜的复折射率($\tilde{n}_{TI}=n+k$)，其中，n 为实部，k 为虚部。复折射率表示了入射光与材料的相互作用的情况。此外，当波长小于 670 nm 时，k 大于 n，TI 呈强吸收的类金属特性，材料表面有可能出现表面等离子体行为。相应地，当波长大于 600 nm 时，材料呈现强极化的特性，这可能是电子从拓扑保护表面态至更高能带的带间跃迁造成的[13]。

此外，使用品质因数(FOM)来评价材料的等离子体损耗情况。FOM 通常被定义为折射率的实部与虚部之间比值的绝对值[9,14]：

$$FOM=\frac{L_{spp}}{\lambda_{spp}}=\frac{\mathrm{Re}(K_{spp})}{2\pi\mathrm{Im}(K_{spp})} \tag{1}$$

$$K_{spp}=k_0\sqrt{\frac{\tilde{n}_{TI}\tilde{n}_{air}}{\tilde{n}_{TI}+\tilde{n}_{air}}} \tag{2}$$

式中，K_{spp} 是表面等离子体激元的复波矢，k_0 是其在真空中的波矢，L_{spp} 是传播距离，λ_{spp} 是波长。$\tilde{n}_{TI}$ 和 $\tilde{n}_{air}$ 分别为 TI 和空气的复折射率。如图 3 所示，在可见光至近红外光波段范围内，BSTS 的 FOM 均高于传统贵金属材料，表明在这个波长范围内 BSTS 的表面等离子体激元的传播距离是贵金属材料的 2～3 倍，本文仿真所使用的拓扑绝缘体在实际中是低损耗介质。

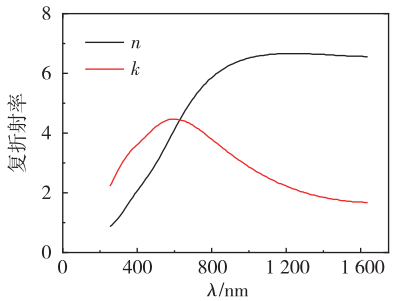


图 2 BSTS 材料的复折射率随波长的变化关系

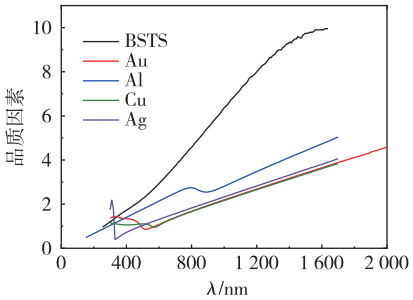


图 3　BSTS 材料与传统等离子体金属材料的 FOM 与波长的依赖关系

2　超材料的仿真与分析

2.1　不同周期大小的吸收率

如果纳米结构的阻抗与自由空间阻抗相匹配，此时入射光反射强度将会很弱，材料对光的吸收率（A）将会增大，SPR 强度增强[2]。将不同波长的圆偏振光垂直入射超材料模型中，得到吸收率与波长的依赖关系如图 4 所示。通过改变沿激光偏振方向的阵列周期尺寸，并保持其余参数与第一节所述相同，可以观察到不同周期结构吸收率随波长的变化而发生了不同的变化。从图 4 可以看到，在波长为 350～800 nm 的范围一阶和二阶吸收峰的形成和演化，证明材料表面出现了多阶等离子共振行为，验证了超材料结构在该波段具有多重 SPR 现象，当周期超过 500 nm 时，二阶吸收峰逐渐消失。随着 P 的增大，超材料的总体吸收率减小，表明了两个相邻的方环越近，SPR 越大，其中当 P＝300 nm 时，接近 80％的电磁波被限制在表面态上。此外，每个周期的最大吸收峰位置总结在表 1 中，可以发现最大的吸收峰随着周期的变化有着 20～30 nm 的峰位偏移行为，共振波长随着周期 P 单调递增，并且最大的吸收峰总体发生红移。

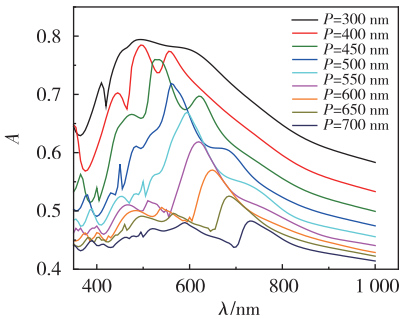


图 4　方环周期 P 为 300～700 nm 的吸收率随入射光波长的变化关系

2.2　不同超材料尺寸的吸收率

在激光垂直入射的条件下，将周期 P 固定为 400 nm，并保持其余优化参数不变，改变内环边长 d。图 5 显示了内环边长 d 在 25～150 nm 的范围内吸收率随波长的变化关系曲线，每个模型均有多个吸收峰存在，证明了不同尺寸大小的模型均具有 SPR 出现。当内环尺寸变大时，模型表面总体吸收率下降，验证了光的限制能力随尺寸的增大而减弱，特别地，当 d＝25 nm 时，接近 80％的光被限制在表面态上。

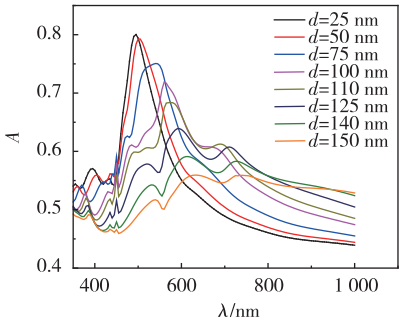


图 5　方环内环边长 d 为 25～150 nm 的吸收率随入射光波长的变化关系

此外，从表 1 中也可以看出，当内环尺寸不断变大，吸收峰的位置同样随着方环尺寸的增大而发生红移，即共振波长随内环边长单调增加，并且 $d \geqslant$ 140 nm 后，吸收峰逐渐变宽，出现两个几乎大小相同的吸收峰，这结果说明了 SPR 强度与内环尺寸有关，通过调整内环尺寸可以控制 SPR 的强度大小。当波长超过 670 nm 时，即复折射率实部大于虚部时，观察到二阶吸收峰，验证了拓扑表面导电态的等离子体行为。

表 1　不同周期和内环边长的最大吸收峰位置

周期 P/nm	一阶吸收峰位置/nm	边长 d/nm	一阶吸收峰位置/nm
300	495	25	495
350	500	50	505
400	535	75	540
450	565	100	560
500	595	110	575
550	625	125	595
600	655	140	615
650	685	150	635
700	730		

2.3　超材料的圆偏振光电效应仿真

通过建立 BSTS 超材料的电磁场模型来描述超材料的光电流行为。所产生的光电流与拓扑绝缘体的光吸收、载流子密度、迁移率和寿命成正比[11]。在构造 BSTS 薄膜的人工结构后其光学吸收强度增

加，而其余输运参数保持不变，载流子的各向异性可以映射到 BSTS 拓扑绝缘体晶体的各向异性光学模型中。

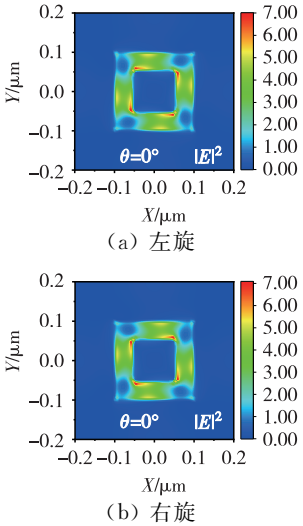
对非超材料和超材料结构进行了全波电磁模拟。结合实际实验室设备情况和上一节 SPR 的仿真结果，本仿真设定入射光波长为 532 nm，四分之一波片角 φ 为参数扫描变量，变化范围为 0°～360°，通过改变 φ 实现入射光偏振态从线偏振到圆偏振再到线偏振的周期性变化。设定该模型中 BSTS 薄膜厚度为 100 nm，衬底 SiO_2 厚度为 285 nm，周期为 400 nm，方环内环边长为 100 nm。并且材料的相对介电常数张量定义为各向异性。

CPGE 电流的宏观表达式为[5]：

$$J_{\mathrm{CPGE}}=\gamma \hat{e}_x P_{\mathrm{c}} \mid E_0 \mid^2 \tag{3}$$

$$P_{\mathrm{c}}=\frac{\mid I_{\sigma^+}-I_{\sigma^-} \mid}{\mid I_{\sigma^+}+I_{\sigma^-} \mid} \tag{4}$$

式中，γ 为与材料有关的二阶赝张量，$\hat{e}_x$ 为光沿 x 方向的单位向量，E_0 表示为材料表面电场振幅，I_{σ^+} 和 I_{σ^-} 分别表示左旋和右旋圆偏振光激发下产生的光电流值。P_{c} 表示圆二色性，通过圆二色性可以看出材料的 CPGE 电流占比大小。图 6 分别展示了左旋和右旋圆偏振光垂直入射超材料时的表面电场强度情况，可以看出超材料在左旋和右旋圆偏振光激发下分别有着逆和顺时针的电场响应，这也验证了该模型有外部手性响应。此外，从公式(3)可以看出，CPGE 电流的强度与表面电场成正比，所以可以通过研究表面电场强度随偏振光的变化关系来反映 CPGE 的变化情况。



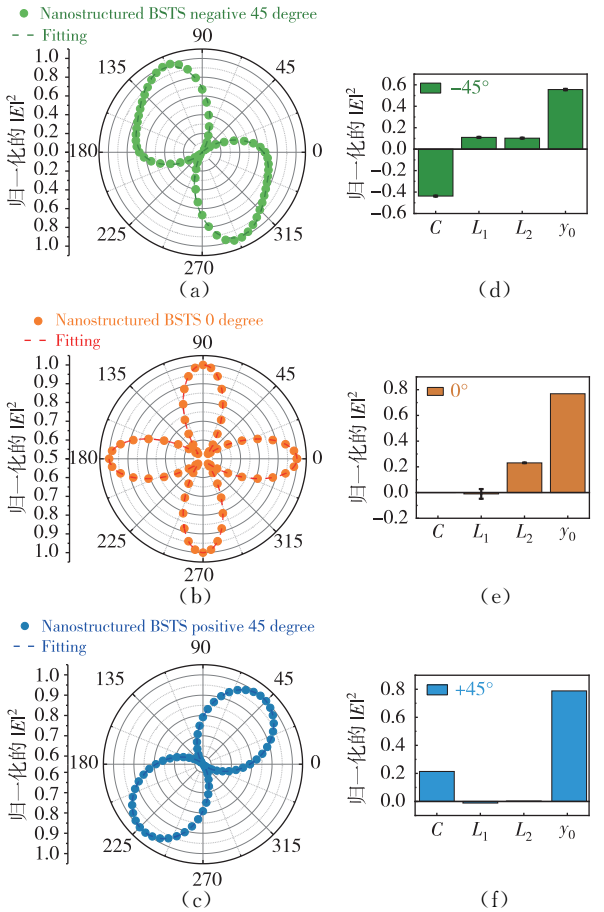
(a) 左旋　(b) 右旋

图 6　左旋和右旋圆偏振光分别在超材料单位阵列表面下 10 nm 处的电场强度 $|E|^2$ 映射图

图 7 和图 8 分别模拟了超材料和非超材料结构的表面电场 $|E|^2$ 随四分之一波片角的变化关系。其中，归一化的电场是通过对表面以下 10 nm 范围内的模型进行体积分所得到。图 7(a)～(c)展示了当入射角 $\theta=-45°$ 或 $+45°$ 时，超材料结构的光电流的极坐标形式呈现两个对称的瓣状结构，而当 $\theta=0°$ 时，则呈四个相同且对称的瓣状结构。将仿真得到的结果使用光电流的唯象公式进行拟合[15]：

$$J(\varphi)=C\sin(2\varphi)+L_1\sin(4\varphi)+L_2\cos(4\varphi)+y_0 \tag{5}$$

式中，C 项是圆偏振光电流分量，正比于 CPGE 电流值；L_1 和 L_2 表示线偏振相关光电流分量，y_0 表示偏振无关的背景光电流分量。将四个拟合参数总结在图 7(d)～(f)中，可以看出当激光以 $\pm45°$ 斜入射时，光电流中的圆偏振分量在总偏振相关分量的占比相较与正入射时有着显著提升。当改变入射角的符号时，圆偏振分量 C 的符号也随之反转，证明了外部手性的存在。



(a)　(b)　(c)　(d)　(e)　(f)

图 7　超材料结构的全波电磁模拟结果。(a)～(c)超材料结构在 $\theta=-45°$，0° 和 45° 时，归一化后的 $|E|^2$ 随四分之一波片角 φ 的极坐标图；(d)～(f)由公式(5)拟合得到的参数 C，L_1，L_2 和 D

图 8(a)～(c)展示了非超材料结构的光电流极坐标形式，图中均呈现为四个对称的瓣状结构结构。从图 8(d)～(f)中可以看出，其以±45°斜入射时产生的圆偏振光电流分量在总偏振分量的占比远小于线偏振光电流分量。此外，当激光以＋45°入射模型时，可以得到超材料的圆二色性 $P_c=0.92$，而非超材料结构的 $P_c=0.04$，由此可以看出构造人工手性结构的超材料可以显著提高 CPGE 电流振幅和圆二色性，这对手性偏振探测具有重要的实用意义。

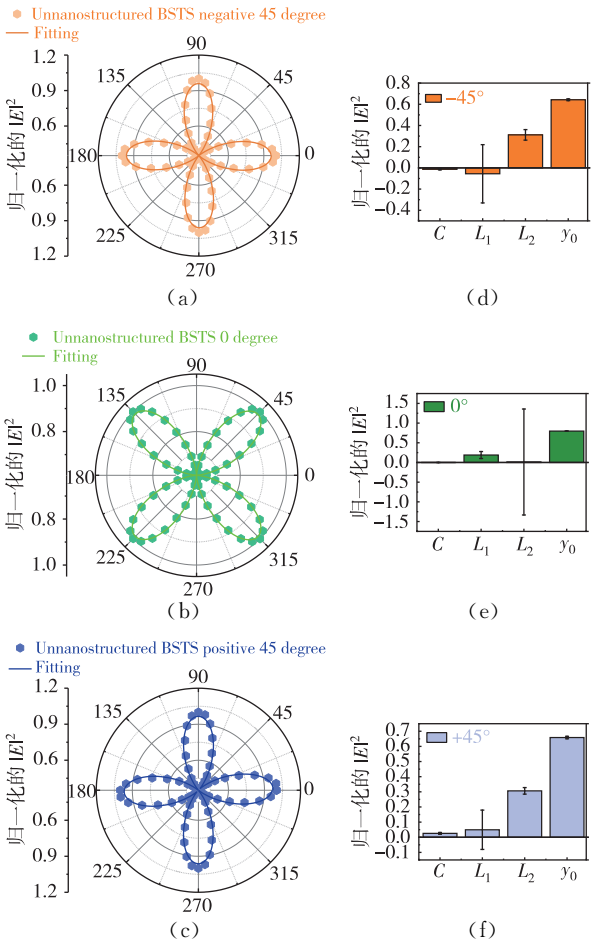


图 8　非超材料结构的全波电磁模拟结果。(a)～(c)非超材料结构在 $\theta=-45°$，0°和 45°时，归一化后的 $|E|^2$ 随四分之一波片角 φ 的极坐标图；(d)～(f)由公式(5)拟合得到的参数 C，L_1，L_2 和 D

在可见光至近红外光波段范围的 TI 表面等离子体行为是由大量电子在圆偏振光激发下出现从拓扑保护表面态至体导带的带间跃迁导致的，该能带跃迁机制也很好地解释了超材料的 CPGE 电流增强的原因。图 9(a)展示了在 n 型 BSTS 超材料中的能带跃迁机制，其中 BSTS 的能带结构由先前报道得到[16]。根据跃迁选择定则，自旋角动量为 $j=+1$ 的右旋圆偏振光将激发拓扑表面态 $j=+1/2$ 上的电子跃迁到 $j=-1/2$ 的更高能级体导带上，并且在表明态上留下相对应的空穴。因为空穴弛豫时间更快，故只考虑电子对光电流的影响。拓扑表面态是完全自旋极化的，因此，在 k 空间中体导带上由圆偏振光激发产生的电子会出现不对称分布，产生 CPGE 电流。由于超材料结构的 SPR 较强，有更多的电子吸收圆偏振光跃迁到导带上，从而产生更大的 CPGE 电流。相反地，图 9(b)展示了非超材料结构的能带跃迁情况，可见，由于非超材料结构的 SPR 较弱，更少的自旋电子被圆偏振光激发到导带上，所以产生相对较小的 CPGE 电流。

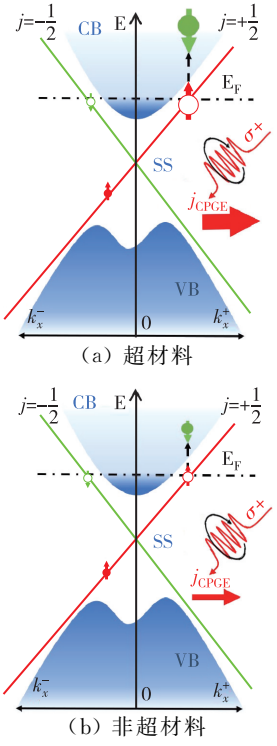


图 9　右旋圆偏振光斜 45°入射薄膜结构和超材料结构时，狄拉克表面态电子在 k 空间中能带跃迁示意图，其中，大的自旋电子表示电子数量较多

3　结论

本文提出了一种基于三维拓扑绝缘体 BSTS 的周期性方环阵列超材料结构，通过改变阵列周期和内环尺寸大小可以发现，总体吸收率随着周期的增大或尺寸的减小而增大，最高可以限制 80％的电磁波在表面态上，还观察到吸收峰随着阵列周期或方环尺寸增大而发生红移。仿真结果表明，超材料结构的圆二色性为 0.92，相较于非超材料结构，有着显著的提升。并且其圆偏振分量的占比也有明显提

高，这是因为超材料的构造使得更多的自旋电子被圆偏振光激发到导带，产生更大的圆偏振光致电流。由于本文所提出的超材料具有巨大的圆二色性，其在光学手性偏振探测领域具有巨大的应用潜力。

参考文献：

[1] Kadic M, Milton G W, Van Hecke M, et al. 3D metamaterials[J]. Nat. Rev. Phys., 2019, 1(3): 198-210.

[2] Di Pietro P, Ortonl M, Limaj O, et al. Observation of Dirac plasmons in a topological insulator[J]. Nat. Nanotechnol., 2013, 8(8): 556-560.

[3] Zhang H, Liu C, Qi X, et al. Topological insulators in Bi_2Se_3, Bi_2Te_3 and Sb_2Te_3 with a single Dirac cone on the surface[J]. Nat. Phys., 2009, 5(6): 438-442.

[4] Venuthurumilli P K, Wen X, Iyer V, et al. Near-field imaging of surface plasmons from the bulk and surface state of topological insulator Bi_2Te_2Se[J]. ACS Photonics, 2019, 6(10): 2492-2498.

[5] Ganichev S D, Prettl W. Spin photocurrents in quantum wells[J]. J. Phys.: Condens. Matter, 2003, 15(20): R935-R983.

[6] Huang S, Xu X. Optical chirality detection using a topological insulator transistor[J]. Adv. Opt. Mater., 2021, 9(10): 1-7.

[7] Dastmalchi B, Tassin P, Koschny T, et al. A new perspective on plasmonics: Confinement and propagation length of surface plasmons for different materials and geometries[J]. Adv. Opt. Mater., 2015, 4(1): 177-184.

[8] Guo B, Yao H, Zhan N, et al. Near-field strong plasmonic resonances in $Bi_{1.5}Sb_{0.5}Te_{1.8}Se_{1.2}$ topological insulator film[J]. Eur. Phys. J. Plus, 2022, 137(2): 206-215.

[9] Yin J, Krishnamoorthy H N S, Adamo G, et al. Plasmonics of topological insulators at optical frequencies[J]. NPG Asia Mater., 2017, 9(8): e425-e425.

[10] Krishnamoorthy H N S, Dubrovkin A M, Adamo G, et al. Topological insulator metamaterials[J]. Chem. Rev., 2023, 123(8): 4416-4442.

[11] Sun X, Adamo G, Eginligil M, et al. Topological insulator metamaterial with giant circular photogalvanic effect[J]. Sci. Adv., 2021, 7(14): eabe5748.

[12] Ou J Y, So J K, Adamo G, et al. Ultraviolet and visible range plasmonics in the topological insulator $Bi_{1.5}Sb_{0.5}Te_{1.8}Se_{1.2}$[J]. Nat. Commun., 2014, 5: 5139.

[13] Krishnamoorthy H N S, Adamo G, Yin J, et al. Infrared dielectric metamaterials from high refractive index chalcogenides[J]. Nat. Commun., 2020, 11(1): 1692.

[14] Cao T, Wang S. Topological insulator metamaterials with tunable negative refractive index in the optical region[J]. Nanoscale Res. Lett., 2013, 8(1): 526.

[15] Mciver J W, Hsieh D, Steinberg H, et al. Control over topological insulator photocurrents with light polarization[J]. Nat. Nanotechnol., 2011, 7(2): 96-100.

[16] Filianina M V, Klimovskikh I I, Shvets I A, et al. Spin and electronic structure of the topological insulator $Bi_{1.5}Sb_{0.5}Te_{1.8}Se_{1.2}$[J]. Mater. Chem. Phys., 2018, 207: 253-258.

作者简介：

俞金玲(1983—)，女，福建省福州市人，博士，教授，主要研究方向为半导体、拓扑绝缘体的自旋光电流及低维半导体材料平面光学各向异性；

林宗凯(1999—)，男，福建省福州市人，硕士研究生，主要研究方向为半导体微纳电子材料与器件。