



南京大學

研究生畢業論文
(申請博士學位)

論文題目: 基于超微腔陣列的多自由度紅外熱輻射調控

作者: 褚琮琮

專業: 物理學

研究方向: 紅外熱輻射調控

指導老師: 劉輝教授

2023 年 8 月 日

学 号： **DG1922008**

论文答辩日期： **2023 年 8 月 23 日**

指 导 老 师： **刘辉教授**

基于超微腔阵列的多自由度红外热 辐射调控

作 者： 褚琼琼
专 业： 物理学
指导老师： 刘辉教授

南京大学物理学院
固体微结构国家重点实验室

南京大学研究生毕业论文
(申请博士学位)

2023 年 09 月

Infrared radiation tuning with multi-degree of freedom based on meta-cavity array

Author: Qiongqiong Chu

Major: Physics

Supervisor: Prof. Hui Liu

**Department of Physics, Nanjing University
National Laboratory of Solid State Microstructures**

September, 2023

南京大學研究生畢業論文中文摘要首頁用紙

畢業論文題目： 基于超微腔陣列的多自由度紅外熱輻射調控

物理學院 院系 物理學 專業 2019 級博士生姓名： 褚琮琮

指導教師（姓名、職稱）： 劉輝教授

摘要

傳統熱輻射源所發出的輻射通常是寬帶，非極化且在各個方向上近乎各向同性的非相干光，很難實現對紅外熱輻射特性的靈活調控。近些年，隨着納米光子學研究和微納加工工藝的飛速發展，基于超表面，超材料等人工微結構實現在波長或亞波長尺度下對光學性質的靈活調控已成為可能，這為熱輻射研究提供了多自由度調控的研究平台。通過合理的單元結構設計，窄帶，極化，定向的相干輻射光研究已被提出，促進了多種紅外領域應用的發展，如紅外輻射源，紅外傳感，氣體探測和表面熱管理等應用。然而目前紅外熱輻射調控研究在其調控自由度以及實際應用上仍有待解決的研究難題，比如：在熱輻射光譜調控研究中的紅外光源應用缺乏具有高空間分辨率的多波段熱輻射芯片研究；在紅外光譜探測應用研究中缺乏小型集成化，無需額外紅外光源與光譜儀，低成本且可重復使用的紅外吸收光譜探測方法；在微區熱管理應用研究中缺乏在波長，極化，時間以及空間上的多自由度動態熱輻射調控研究。

針對上述問題，我們通過超微腔陣列結構設計，基于超表面的靈活可調性實現了對紅外熱輻射的多自由度調控以及更進一步基于激光調制實現了對紅外熱輻射的多自由度動態調控，并針對現存的紅外應用需求給出了合理的解決方案。本論文主要取得如下成果：

1. 在熱輻射光譜調控方面，本文展示了一種基于超微腔陣列實現的，具有高空間分辨率的多波段集成熱輻射芯片。超微腔陣列由納米孔超表面陣列與 FP 腔組成，此芯片設計可實現覆蓋紅外雙波段 $7-9\mu\text{m}$ 和 $10-14\mu\text{m}$ 的多波長熱輻射陣列，可用作小型集成化紅外光源。基于納米孔圖案設計，我們還在實驗上實現了極化，波長和空間上的多路復用熱輻射。

2. 在红外光谱探测研究中, 本文基于像素化超微腔阵列, 提出了一种基于热成像实现的紧凑型集成化的, 无需额外红外光源与光谱仪, 低成本且可重复使用的微区红外吸收光谱探测方法。由超微腔阵列构成的热辐射芯片可同时用作红外辐射源和光谱芯片, 此集成方法为片上红外光谱探测, 微区红外分子传感等研究提供了新的研究思路。
3. 在光控热辐射研究中, 本文提出了一种新型超微腔结构, 由上层纳米孔超表面, 底层光栅超表面以及中间介质层组成, 可同时实现对可见至近红外波段的光吸收调控, 以及对红外波段的表面热辐射调控。基于激光调制, 此设计可实现在波长, 极化, 时间以及空间上的多自由度动态热辐射调控, 为微区光控热辐射研究的相关热管理应用提供了新的设计思路。

综上所述, 本论文提出的超微腔阵列设计展现出了多自由度热辐射调控在红外领域的广泛应用前景, 可为推动当前红外研究与应用的发展做出贡献。

关键词: 超表面, 超微腔, 热辐射多自由度调控, 红外辐射源, 红外吸收光谱探测, 光控热辐射;

南京大學研究生畢業論文英文摘要首頁用紙

THESIS: Infrared radiation tuning with multi-degree of freedom based on meta-cavity array

SPECIALIZATION: Physics

POSTGRADUATE: Qiongqiong Chu

MENTOR: Prof. Hui Liu

Abstract

The thermal radiation emitted from conventional thermal sources is usually broadband, un-polarized, incoherent and nearly isotropic in all directions, making it difficult to achieve flexible tuning of thermal radiation properties in the infrared domain. With the rapid development of nanophotonics research and the nanofabrication processes, it has become possible to achieve flexible tuning of optical properties at wavelength or sub-wavelength scales based on metasurface and metamaterial designs, providing multiple degrees of freedom for thermal radiation manipulation. Through rational unit cell design of metasurface/metamaterial, the realization of narrowband, polarized, directional and coherent thermal radiation has been proposed, facilitating the development of a variety of infrared applications such as thermal infrared light sources, infrared spectrum detecting, gas sensing and surface thermal regulation. However, there are still some challenges in thermal radiation manipulation, such as: multiband thermal radiation microchip with high spatial resolution is strongly needed for infrared sensing application; Integrated compact, low-cost and repeatable infrared absorption spectrum measurement technique requiring neither an external infrared radiation source nor a infrared spectrometer, has not yet been reported. The simultaneously dynamic tuning of thermal radiation under multiple degrees of freedom in wavelength, polarization, space and time, is intensely demanded for thermal management applications and has not been investigated.

For the spectral manipulation of thermal radiation, an integrated thermal radiation microchip with high spatial resolution near wavelength scale is demonstrated based on a meta-cavity array. The meta-cavity array is composed of a nanohole metasurface array and an FP cavity. This microchip design can realize multiband thermal radiation covering the infrared range of 7-9 μm and 10-14 μm , which can be utilized as a miniaturized and integrated infrared light source. Based on the nanohole pattern design, we have also experimentally realized

multiplexed thermal radiation in polarization, wavelength and space.

For infrared spectrum measurement applications, we proposed an integrated compact low-cost and repeatable infrared absorption spectrum measurement technique based on a pixelated meta-cavity array and the thermal imaging approach. The pixelated meta-cavity array forms a thermal radiation microchip. Designed microchip can simultaneously act as an efficient infrared radiation source and the spectroscopic chip. This novel technique opens a new avenue for the development of the integrated infrared spectroscopy applications and microscale infrared molecular sensing.

For the photocontrolled thermal radiation researches, a novel meta-cavity design composed of upper nanohole metasurface, the bottom grating and the dielectric layer sandwiched between them is demonstrated to realize simultaneous tuning of the light absorption in the visible to near-infrared domain and manipulation of the thermal radiation in the infrared domain. Based on laser modulation, this design enables multi-degree-of-freedom dynamic thermal radiation tuning in wavelength, polarization, time and space, providing a new platform for the development of the photocontrolled thermal radiation tuning related thermal management applications and thermoelectric devices.

In summary, proposed meta-cavity array design shows the promise of multi-degree-of-freedom thermal radiation tuning for infrared applications and can contribute to the advancement of current research and potential infrared applications.

Keywords: metasurface, meta-cavity, multi-degree-of-freedom thermal radiation tuning, infrared radiation source, infrared absorption spectrum measurement technique, photocontrolled thermal radiation.

目 录

目 录.....	I
第一章 绪论.....	1
1.1 红外表面热辐射调控的研究进展.....	1
1.1.1 表面热辐射的光谱, 极化与角度调控.....	2
1.1.2 表面热辐射的动态调控.....	7
1.2 红外表面热辐射调控应用的研究进展.....	10
1.2.1 表面热辐射调控在红外光源领域的应用.....	10
1.2.2 表面热辐射调控在红外光谱探测领域的应用.....	12
1.2.3 表面热辐射调控在热管理领域的应用.....	16
1.3 本论文的研究内容.....	20
1.3.1 研究目的与意义.....	20
1.3.2 论文的主要工作与创新点.....	20
参考文献.....	23
第二章 表面热辐射调控的研究方法.....	33
2.1 理论分析方法.....	33
2.1.1 黑体辐射.....	33
2.1.2 表面热辐射的调控方法.....	34
2.2 实验加工与表征.....	36
2.2.1 微纳样品加工技术.....	36
2.2.2 微纳样品表征方法.....	37
2.3 本章小结.....	40
参考文献.....	41
第三章 基于超微腔阵列的热辐射芯片.....	42
3.1 引言.....	42
3.2 超微腔阵列结构设计思路与方法.....	43
3.3 热辐射芯片的光谱测量与热成像实验.....	48
3.4 高空间分辨的多路复用热辐射.....	53
3.5 本章小结与展望.....	57
参考文献.....	58
第四章 基于热辐射芯片的新型红外吸收光谱探测方法.....	62
4.1 引言.....	62

4.2 有机分子样品制备与光谱测量.....	63
4.3 红外吸收光谱探测理论与方法.....	64
4.3.1 基于热辐射芯片的集成化红外源设计.....	64
4.3.2 红外等效吸收率计算方法.....	66
4.4 红外吸收光谱探测实验与结果分析.....	66
4.4.1 PDMS 分子红外吸收光谱探测.....	66
4.4.2 多种分子的红外吸收光谱探测.....	70
4.5 本章小结与展望.....	74
参考文献.....	75
第五章 多自由度光控热辐射动态调控研究.....	78
5.1 引言.....	78
5.2 超微腔结构设计思路与方法.....	79
5.3 光谱仿真与理论分析.....	81
5.3.1 可见光至近红外波段的光吸收调控.....	81
5.3.2 长波红外波段的表面热辐射调控.....	84
5.4 样品制备与实验测量.....	84
5.4.1 可见光至近红外以及长波红外波段的吸收谱测量.....	85
5.4.2 激光调制下的动态热辐射调控.....	85
5.5 本章小结与展望.....	95
参考文献.....	96
第六章 总结与展望.....	99
博士期间发表的论文和成果.....	101
致 谢.....	102

第一章 绪论

热辐射研究起源于 19 世纪,最早于 1800 年, W. Herschel 在观察太阳光谱的热效应时首次发现了红外辐射。1859 年, G. R. Kirchhoff 提出了热辐射定律,在热力学平衡的条件下,不同物体于同一波长处的辐射出射度与吸收的比值都相等,与辐射物体的性质无关,只与波长和温度有关,并于 1860 年提出了理想黑体的概念。所谓黑体,就是一个可以将所有照射其上的电磁波能量全部吸收的物体,同时也以电磁波的形式进行能量辐射,并最终达到热力学平衡。黑体的表面辐射率为 1,其辐射强度只与波长和温度有关。1879 年, J. Stefan 提出黑体热辐射能量与黑体温度的四次方成正比, L. E. Boltzmann 从热力学理论出发,验证了此关系的成立,后称之为 Stefan-Boltzmann 定律。1893 年, W. Wien 从理论上推出辐射能量分布定律 (Wien 位移定律):黑体辐射的光谱强度的峰值波长与自身温度之间成反比关系。1896 年, W. Wien 从热力学的普适理论出发得到维恩近似,此公式在高频段与实验中的黑体能谱较为符合,但在低频范围内符合得并不好。后续, J. W. S. Rayleigh 和 J. H. Jeans 根据电动力学和统计物理学推导出 Rayleigh-Jeans 公式,此公式在 ν 趋近于 0 时与实际测量结果较为符合,在 ν 趋近于 ∞ 时,结果则不太相符,后称之为紫外灾难。随后, Planck 为了协调理论公式与实验观测到的黑体辐射能谱之间的区别,对维恩近似进行了修正,于 1900 年给出了 Planck 公式,此式在全波段与黑体能谱相符合。黑体辐射理论为后续的热辐射研究与红外技术发展,如辐射测温,红外遥感等提供了理论支撑。

1.1 红外表面热辐射调控的研究进展

热辐射在自然界中无处不在,任何温度高于绝对零度的物体都会由于粒子或准粒子的热运动而发出热辐射。日常生活中常见的热辐射源有,太阳(6000K),白炽灯(3000K),人体(310K)和宇宙(3K)。热辐射过程通常被认为在空间和时间上都是不相干的,导致向远场辐射出宽带,全向的电磁辐射。根据普朗克定律,我们知道辐射光谱与物体温度和材料辐射率有关,调控材料辐射率则是调控红外热辐射的直接手段。在过去的 20 年里,随着纳米光子学和纳米加工工艺的快速发展,对波长或亚波长尺度下的超表面/超材料的研究与探索打破了传统热辐射研究的困境。基于超表面,超材料等人工微结构的可调光学模式来实现可控的辐射率,进而调控红外热辐射的技术已得到了广泛的研究,目

前已经实现了在光谱，方向性以及偏振选择上对红外表面热辐射的灵活调控，为红外传感、热成像和热光伏等领域的发展带来了新的助力。通过合理地设计周期单元结构，可对热辐射光谱的共振波长、线宽和角度特性进行人为塑造。本章节主要介绍了目前，超表面，超材料，光子晶体等人工微结构在远场调控热辐射的研究进展，分别从光谱，极化和辐射角度三个方面进行阐述。

1.1.1 表面热辐射的光谱，极化与角度调控

在微纳结构研究中，当结构特征尺寸与光的波长相当时，波的干涉效应可以用来调控它们的光学响应。其中超表面，超材料设计得益于其灵活的调控能力与多自由度调控范围已广泛应用于多种光学性质的研究中，包括自旋霍尔效应[1-3]、负折射[4-6]、超透镜[7-10]和完美吸收[11-13]等。当前，超表面/超材料也已成为热辐射光谱调控的常用有效手段，根据不同的应用需求，可实现宽带或窄带红外热辐射调控。调控红外热辐射的原理是基于基尔霍夫定律，该定律说明了在热平衡条件下，物体在给定频率、极化和方向下的辐射率等于其吸收率。超表面/超材料设计可以实现可控的有效介电常数和磁导率，通过对应的磁共振与电共振增强与光与物质相互作用，从而实现可调的吸收与辐射。其中，宽带吸收器/辐射器在红外应用领域中引起了越来越多的关注，如太阳能[14-17]、热光伏[18-21]、热伪装[22-27]和辐射制冷[28-33]等，如图 1.1 所示。

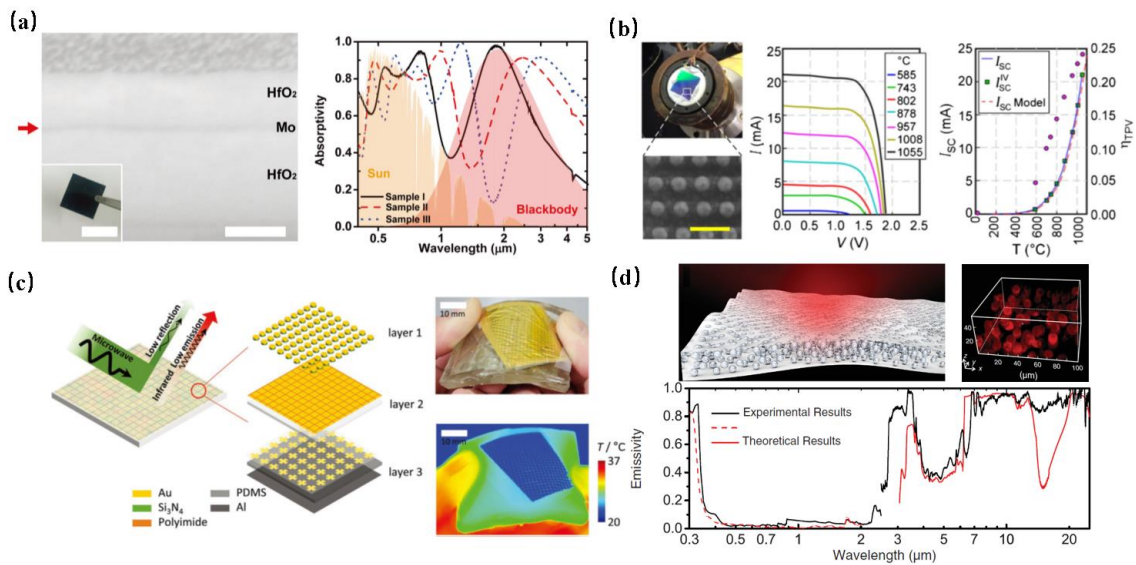


图 1.1 宽带吸收器/辐射器在红外领域的应用: (a) 基于相干增强吸收的太阳能吸收体/辐射体[16]; (b) 基于选择性超材料辐射器实现的高效热光伏能量转换[19]; (c) 柔性超材料用于实现红外和微波范围的伪装[26]; (d) 包含有随机分布的 SiO₂ 微球的聚合物混合超材料, 用于大规模辐射制冷[33]。

金属/介质/金属[34-39]结构和介质超表面[40-44]结构是红外吸收/辐射器的常用设计，将多个不同的谐振单元集成于同一周期元胞内，可以通过多重共振[34, 39, 45-48]实现宽带的吸收与辐射，如图 1.2 所示。除此之外，通过锯齿结构[49]，梯形结构[50, 51]和金字塔形结构[52, 53]等同样支持多重共振的结构也可实现宽带吸收与辐射。然而，在需要大面积制造的应用需求中，上述结构设计由于需要昂贵的二维或三维纳米加工过程而变得不再适用。多层膜超材料设计可以解决此问题，通过对多层膜的周期分布与层厚的优化，可在宽带内提升其阻抗匹配度[54-56]以实现红外波段内的宽带吸收与辐射；或者，通过多层膜超材料结构实现阶梯 ENZ（介电常数近 0）[57-59]，也可达成宽带吸收与辐射的目标。

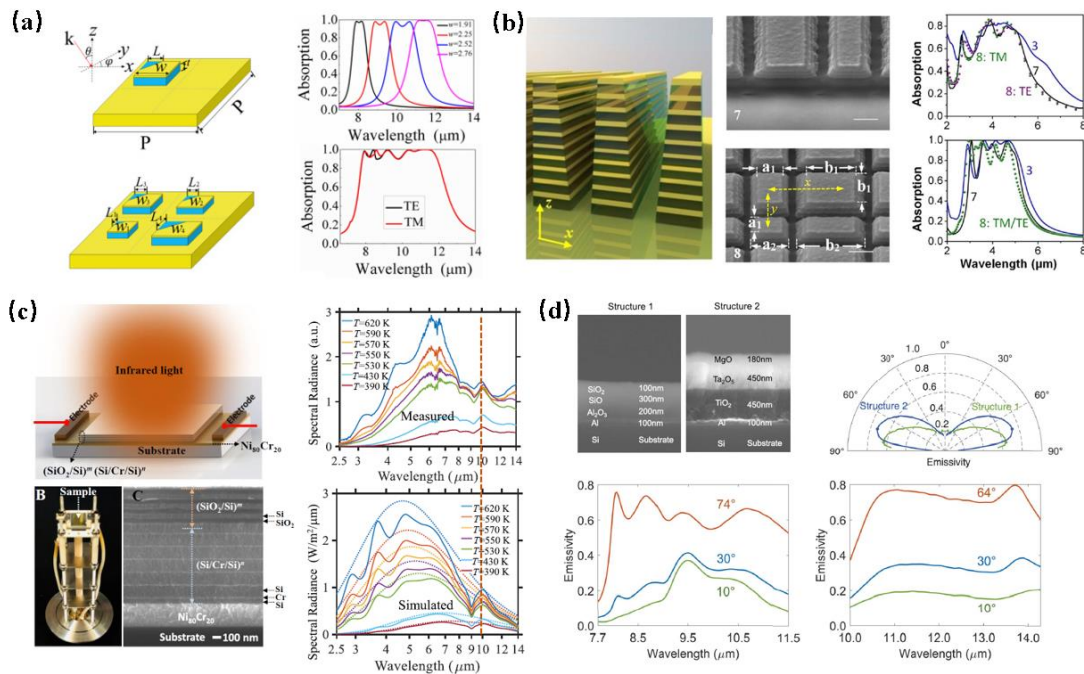


图 1.2 红外宽带吸收/辐射调控：(a) 红外超宽带多共振组合超表面吸收器[46]；(b) 基于双曲超材料波导锥形阵列实现宽带吸收[50]；(c) 通过多层超材料结构在宽带内提升其阻抗匹配度，实现的集成光谱选择热辐射体[55]；(d) 通过多层膜超材料结构带来的阶梯 ENZ 效果实现宽带，定向热辐射[57]。

除了增强热辐射之外，人们还可以通过各种微纳结构在一定波长范围内强烈抑制材料的辐射率，只在特定窄带范围内保持较高的辐射率。目前，窄带吸收/辐射器已经在多个红外应用领域中引起了大家的关注，包括光学传感器[60-63]，光电探测器[64-67]和光调制器[68-70]等。

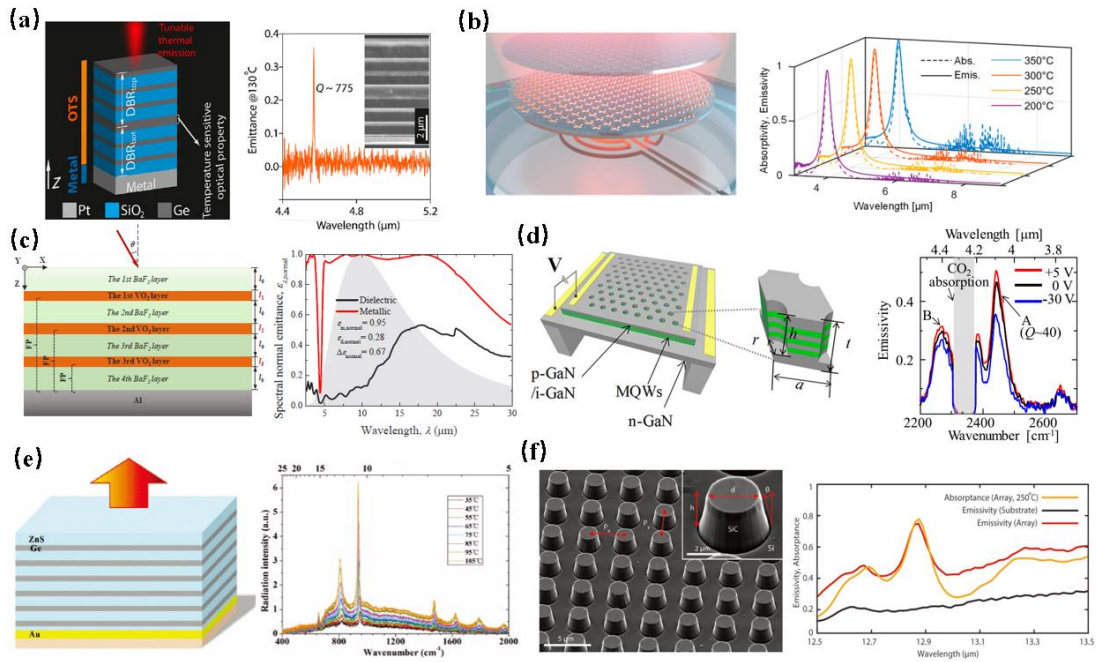


图 1.3 红外窄带吸收/热辐射调控: (a) 基于光学 Tamm 结构实现红外窄带且波长可调的红外热辐射[72]; (b) 基于金属超表面阵列实现的片上窄带红外热辐射并用于 CO₂ 气体探测应用[62]; (c) 基于 VO₂ 叠层形成的 FP 腔实现的窄带可调辐射光谱[81]; (d) 基于 GaN/AlGaN 量子阱光子晶体实现的可电调制窄带中红外热辐射器[84]; (e) 基于光子晶体结构实现的大面积、无需光刻、窄带和高度定向的热辐射[86]; (f) 基于 SiC 电介质超表面, 通过在长波红外波段中使用两个正交损耗 Mie 共振模式进行光谱重叠, 实现辐射率近 1 的窄带热辐射[91]。

实现窄带吸收/辐射的方法有多种, 如图 1.3 所示, 如: 1. 基于 Tamm 等离激元结构 [71-76]: 结合金属薄膜与分布式布拉格反射器 (DBR) 可以实现窄带热辐射。Tamm 等离激元波 (TPPs), 存在于金属层和 DBR 之间的界面上, 可由自由空间中传播的光 (TE 和 TM 波均可) 激发, 无需使用纳米结构来进行耦合光。2. 基于 MIM 金属等离激元超表面结构[62, 77-81]: 在共振波长下, 顶部谐振器和底部金属层中诱导出反平行电流, 二者形成了一个开口谐振环 (SRR), 以此可实现高 Q 的窄带热辐射。3. 基于 FP 腔模式 [82, 83]: 通过光学微腔对共振模式进行筛选, 在相位满足谐振条件时, 可以在共振波长处实现窄带的吸收与辐射。4. 基于量子阱设计[84, 85]: 通过在掺杂半导体量子阱中利用子带跃迁机制 (ISB-T) 并结合光子晶体板可以实现高 Q (Q>100) 窄带单峰辐射。5. 基于光子晶体结构[86-89]: 光子晶体的带隙可以抑制带隙内的热辐射, 同时位于带边缘的共振模式可以增强光与物质的相互作用, 形成增强的窄带吸收与辐射。6. 基于电介质

超表面[90-93]: 电介质材料本身无损耗或损耗很小, 有利于实现高 Q 共振。通过 Mie 共振或通过 BIC (连续体中的束缚态) 模式可实现红外波段的窄带吸收与辐射。

热辐射光谱调控可以实现在辐射带宽以及辐射波长上的精准调制, 另外基于超表面结构同样可以在极化方面对热辐射进行调控, 如图 1.4 所示。例如, 金属纳米天线结构和纳米孔结构可以分别实现极化方向与纳米天线平行和与纳米孔长轴方向垂直的热辐射。Makhsiyani 等人提出一种非均匀分布的光学纳米天线超表面[94], 可以在波长尺度下, 实现对热辐射在空间上以及极化上的调控。进一步, 通过对纳米天线辐射单元的组合, 可实现远场多光谱和极化选择成像。更进一步, Liu 等人证明了纳米尺度天线的偏振选择热辐射总是可以通过调节天线的波导损耗或弯曲结构将其最大化[95]。除去上述线偏振热辐射研究, 基于手性光子结构也可实现具有圆偏振的热辐射。在平面超表面结构中, 如果周期单元不具有任何镜面对称性, 则可以对电磁场具有手性响应, 因此可以使用这样的超表面结构实现对一种圆偏振的强吸收与辐射。Kong 等人基于等离激元手

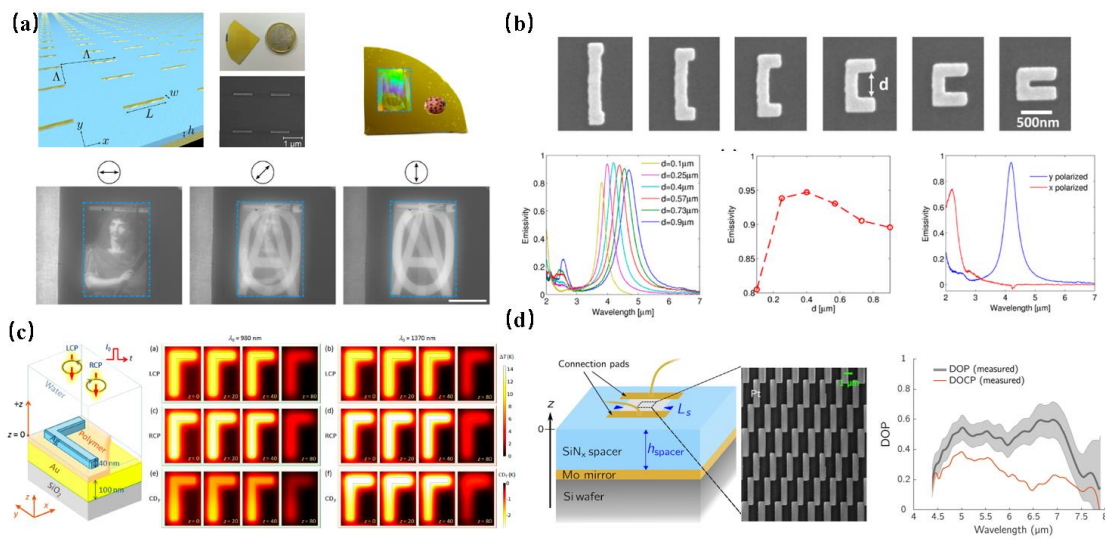


图 1.4 红外热辐射极化调控: (a) 一种非均匀分布的光学纳米天线超表面, 在波长尺度上实现对热辐射在空间上以及极化上的调控[94]; (b) 一种基于纳米尺度天线谐振器对偏振选择热辐射最大化的研究方法, 具体可通过调节谐振器的波导损耗或弯曲结构来实现 [95]; (c) 基于等离激元手性超表面实现了手性光谱-光热圆二色性[96]; (d) 一种可以产生圆偏振中红外热辐射的白炽手性超表面[97]。

性超表面实现了一种手性光热圆二色性[96]。在手性光照射下, 此手性超表面结构能够产生具有显著非对称性的局部温度分布, 展示了其手性光热效应。Nguyen 等人提出了

一种可快速调制的白炽手性超表面[97]，可以从中产生具有圆偏振的中红外热辐射。此超表面厚度为 700nm，通过焦耳效应加热，其辐射调制速度可超过 10MHz。

上述内容介绍了热辐射光谱特性与极化方面的调控，除此之外，辐射角度与方向性的调控对于热辐射研究也十分重要。热源的辐射光通常是不相干的，且其辐射强度为不同点的辐射强度之和，因此通常不具有定向性。通过表面波模式的激发，如极化材料中的表面声子激元和金属表面等离激元，可提高热辐射光的空间相干性，从而实现定向热辐射，如图 1.5 所示。Greffet 等人于 2002 年，提出了一项开创性的工作，通过 SiC 光栅结构实现了相干且具有角度选择的热辐射[98]。与 SiC 光栅匹配的波矢可以在界面上共振激发这种表面声子激元，从而产生具有角度依赖性质的吸收与辐射。然而，SiC 光栅的周期性不可避免地增加了热辐射的角度色散（即随频率变化的辐射角度变化）。因此，大多数现有的基于表面声子激元实现的热辐射器要么呈现宽带色散辐射，要么呈现单色定向辐射。Inampudi 等人提出了对应的解决方案，通过将可补偿材料色散的石墨烯

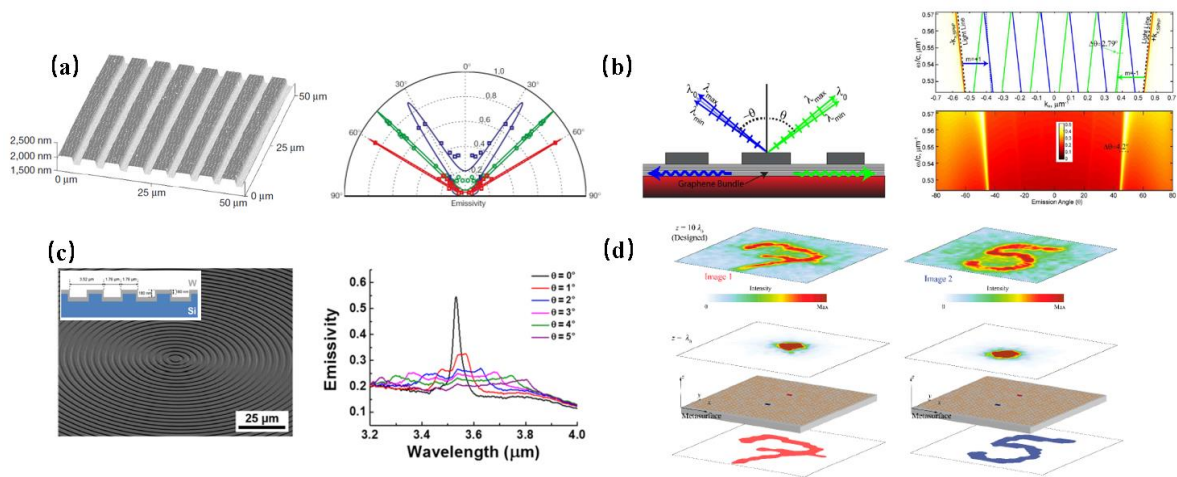


图 1.5 红外热辐射角度调控：(a) 基于 SiC 光栅结构支持的面声子极化激元，实现相干且具有角度选择的热辐射[98]；(b) 结合 SiC 衍射光栅和石墨烯层，实现对热辐射器的角度色散的最小化[99]；(c) 通过牛眼结构，实现高度定向的热辐射[100]；(d) 一种理论框架用于研究微观热辐射体的耦合光学性质，实现了热辐射自聚焦以及热辐射全息成像 [101]。

层与 SiC 衍射光栅相结合可解决此问题，实现相干热辐射的角度色散最小化[99]，在表面声子激元的波长范围（11-12μm）内，可将热辐射的角度色散从30°降至4°。另外，通过牛眼、钨光栅结构和光子晶体也可用于实现定向热辐射。如：Park 等人通过牛眼结构

(钨和钼薄膜上的一系列圆形同心槽)上的表面等离子激元共振,实现了高度定向的热辐射[100]。加热至 900°C时,此设计在垂直于结构平面的方向上可辐射出窄带且高度定向的红外辐射光束。调控超薄光学谐振阵列中每个元素的相位和振幅响应是波前调控的常用手段。然而目前,由于热辐射器的辐射特性由其主导的特定光学模式所决定,大多局限于定向辐射和光谱选择辐射研究,所以热辐射研究在波前调控方面存在根本性的困难。针对此问题,Zhou 等人利用微观热辐射体之间的光学耦合在理论上实现了热辐射自聚焦与热辐射全息成像[101]。这些辐射体的尺寸在数十到数百个波长范围内,辐射的热光子通过光学耦合实现了对热辐射的波前控制,此理论框架可用来描述热辐射现象中丰富的光学性质。

1.1.2 表面热辐射的动态调控

超表面,超材料结构通过对光与物质相互作用的精确控制,创造了多种实用的光学应用,如光学隐身,超透镜和红外光电探测等。然而,大多数超表面设计都是静态的,其光学性质由结构固定,这限制了它们在可调光子器件上的应用。通过在超表面结构中

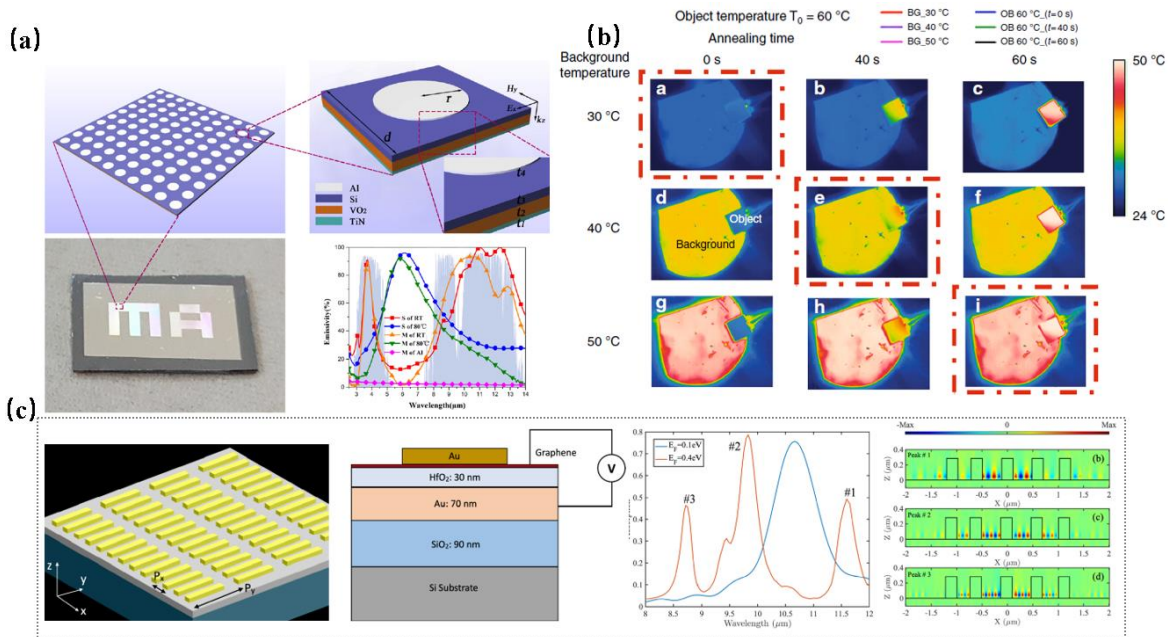


图 1.6 基于相变材料和石墨烯实现的红外热辐射动态调控: (a) 基于 VO₂ 相变材料实现的宽带大气窗口热开关[93]; (b) 基于 GST 相变材料实现的, 30°C到 50°C温度范围的大角度包容的热伪装[97]; (c) 基于纳米线阵列和石墨烯相耦合的等离子激元超表面, 实现可电调控的光谱辐射率[89]。

添加光学性质可调的材料或结合外部调控机制，可以实现对结构光学性质的实时调节。常用的可调材料包括石墨烯[102-105]和相变材料 VO_2 [106-109], $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ [110-114]等。目前可选的动态调控机制也包含多种，如电调制[55, 68, 84, 115-117]、入射光的极化调控[118, 119]、机械应变[120-122]、紫外线照射[123, 124]、飞秒激光脉冲激发和加热[125-128]。接下来，本文对这些可调材料以及多种调控机制在辐射/吸收调控中的应用进行介绍：

1. 二氧化钒 (VO_2) 材料，因其在温度超过 68°C 时能够从绝缘态转变为金属态的可逆相变已经引起了广泛的研究关注。这种结构变化可以导致其光学性质的显著变化，使得 VO_2 在动态热辐射控制方面具有极大的吸引力。如：Sun 等人通过将金属圆盘超材料结构与 VO_2 相结合，在温度调控下实现了宽带的热开关效果[106]，如图 1.6(a) 所示。在室温下，该辐射器在 $3\text{-}5\mu\text{m}$ 和 $8\text{-}14\mu\text{m}$ 的大气透明窗口中产生辐射光；在高温下，其辐射峰值则会移出大气窗口，在 $5\text{-}8\mu\text{m}$ 处产生强烈的热辐射。 VO_2 材料的调控手段不局限于温度调控，还包括电调控。在应用上，由于 VO_2 材料的相变点接近室温，所以可以应用于航空电子设备和类似的电子元件中。另外，通过掺杂 VO_2 与钨，可以降低其相变温度。
2. $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ (GST) 是另一种相变材料，其慢速结晶过程需要 500K ，快速结晶过程需要 750K 才能从无定形相向晶态相转变，不同状态具有不同的红外特性。GST 薄膜一旦完成晶化或非晶化，除非满足相变条件即使在室温下也能保持在某个相（结构）中，这个特性使其对具有零静态功率的节能光电器件极具吸引力。如：西湖大学的仇旻教授课题组基于相变材料 GST 实现了一种热伪装装置[110]，如图 1.6(b) 所示；通过温控 GST 的相变过程，可以在背景温度从 30°C 到 50°C 变化时实现近乎完美的热伪装，并且在观察角度从 0° 到 60° 改变时，热伪装效果依然稳定。GST 材料的调控手段有温度调控，激光调控等。
3. 石墨烯是由碳原子组成的蜂窝晶格二维晶体，具有非常高的光与物质相互作用效率，可展现超快的光调谐性能。单层石墨烯的光吸收率为 2.3% ，这在单层材料中算是相当大的，但通常不足以达到有效的光与物质相互作用以进行光调制、光传感等目的。通过将石墨烯与微纳结构相结合，可以在纳米尺度下增强其光响应。由于其较快的调制速度，较大的调制深度以及高温稳定性好的优势，石墨烯材料对于热辐射的动态调控来说也是非常有应用前景的。如：Li 等人提出了一种纳米

线阵列和石墨烯相耦合的等离激元超表面[102]，如图 1.6(c) 所示。纳米线阵列可以使得等离激元模式局域化，允许自由空间内的激发。该结构中单层石墨烯通过电调控，可以实现光谱辐射率调控近 90%。石墨烯材料的调控手段包括温度调控，电调控，磁控，光控等。

除去上述的电调制与温度调制之外，机械应变、紫外线照射、飞秒激光脉冲激发也是常用的光学响应的调控方法，如：Liu 等人将微纳电子机械系统（MEMS）与超材料相结合，基于可重构的设备实现了对热辐射能量的控制[120]，如图 1.7(a) 所示。基于 MEMS 系统，此设计通过改变结构的几何参数，实现了对辐射光谱以及表面辐射能量的动态调制。此电驱动机械应变调控过程无需改变结构的温度或化学成分，所以具有高调制速率的优势。紫外线照射方法也是常用的外部调控手段，此方法无需复杂的电路设计，可将红外热辐射调控转移至点对点的照射源控制，提升其调控自由度，如：Coppens 等人设计和制造一种大面积的红外超材料[123]，通过紫外（UV）光调制，实现了同时在

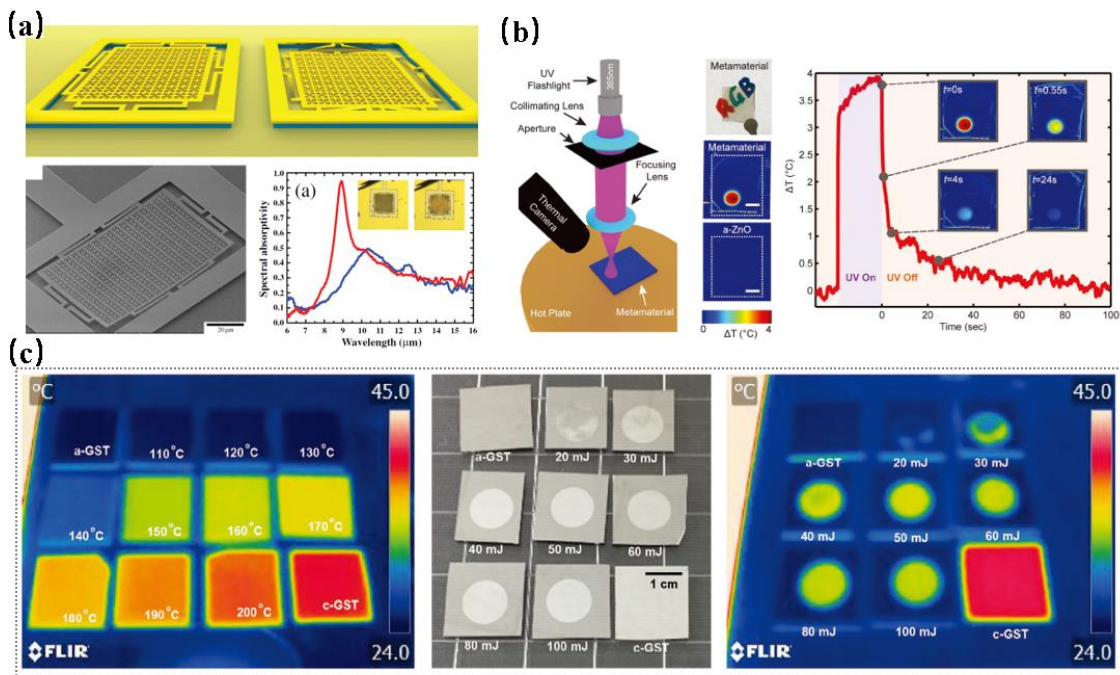


图 1.7 基于机械应变、紫外线照射、飞秒激光脉冲激发实现的红外热辐射动态调控：(a) 将 MEMS 系统与超材料相结合，实现对辐射能量的控制[120]；(b) 基于紫外光照射，在感光 ZnO 间隔层中产生自由载流子，改变了超材料的光学特性，实现局部辐射率的动态调控[123]；(c) 基于激光照射和热处理方法，实现了基于 GST 相变带来的空间上可选择可调辐射率[125]。

时间与空间上对辐射率的控制,如图 1.7(b) 所示。紫外光在感光 ZnO 间隔层中产生自由载流子,改变了超材料的光学特性,并导致其局部辐射率的增加。通过热成像可以直接观测到其因辐射率变化而出现的温度上升。此调控方法可简化样品制造与辐射调控过程,提供低功率和大面积可控的优势。飞秒激光脉冲激发调控同样具有大面积可控与简化设计的优势,如: Kim 等人提出了一种结合激光照射和热处理的混合方法[125],基于 GST 相变材料实现了空间上的可控辐射率,如图 1.7(c) 所示。在 400 nm 厚的非晶 GST 薄膜的近表面区域形成的激光诱导晶化层可以作为异质晶核,在膜随后的退火过程中促进 GST 薄膜的晶化,从而增加辐射率的差异,通过调节退火温度可以调控其辐射率差异。这里激光调控的优势并未得到全面的开发,通过合理的结构设计,可进一步拓展激光调控在热辐射应用中的调控自由度。

1.2 红外表面热辐射调控应用的研究进展

红外热辐射调控方面的研究进展已经带来了许多新的红外领域的应用,包括高效红外源,红外光谱探测和热管理应用等。在本节中,我们将具体讨论其中的几个例子,包括窄带红外辐射源、红外光谱探测、辐射制冷织物以及其他热管理相关应用。这些应用都广泛利用了 1.1 章节中讨论的超表面,超材料等调控热辐射性能的基本能力,特别是光谱方面的特性。

1.2.1 表面热辐射调控在红外光源领域的应用

中红外光源从简单的白炽灯到发光二极管(LEDs)和高端的量子级联激光器(QCLs)都有涵盖。白炽灯作为红外辐射光源,价格便宜,但它们发出的辐射光是宽带的,大部分辐射能量会流入不需要的辐射波段内,导致其工作效率很低。在可见光范围,LEDs 可用作单色光源,但其工作范围不能扩展到红外波段,因为在红外范围内它们的光功率受限。QCLs 具有高光谱密度和波长可调的优势,但其复杂的设备和昂贵的制造成本限制了它们在未来红外传感中的应用。为了克服这些限制,热辐射器件作为高效且成本低廉的红外源已成为研究热点。传统黑体热辐射体提供的宽带辐射模式在环境照明和傅里叶变换红外(FTIR)光谱学等应用中具有优势,然而其辐射的宽带、非偏振和全向的特性对于许多应用而言并不太有用,例如非色散型红外气体传感器。通过选择特定的自然材料,可以在所需波长范围内产生辐射,但是辐射波长和带宽受固有材料属性的限制而无

法调节。为了解决上述问题，波长选择性热辐射器应运而生，近年来由于其窄带辐射特性而备受关注，可用作高效红外源[73, 97, 129-134]，应用于红外分子传感 [135, 136]和气体探测[61-63,130, 137]等领域。

目前基于 Tamm 等离子激元结构，金属/电介质超表面，光子晶体等均可以实现窄波长可选热辐射。Wang 等人通过在典型 TPP 结构中的分布式布拉格反射镜 (DBR) 和金属反射镜之间放置一个光学谐振腔，实现了谐振腔模式与 TPP 模式的耦合[129]，如图 1.8(a) 所示。在实验中，此设计可以在 4.731 μm 波长处实现窄带 ($Q=88$) 热辐射。这种易于制造的高性能红外热辐射器非常适用于需要窄带红外光源的应用，如红外传感和气体探测等。在红外应用研究方面，Lochbaum 等人通过将超材料辐射源和超材料探测器集成于同一小型化设备中，提出了一种紧凑且高效的气体探测器[130]，如图 1.8(b)所示。

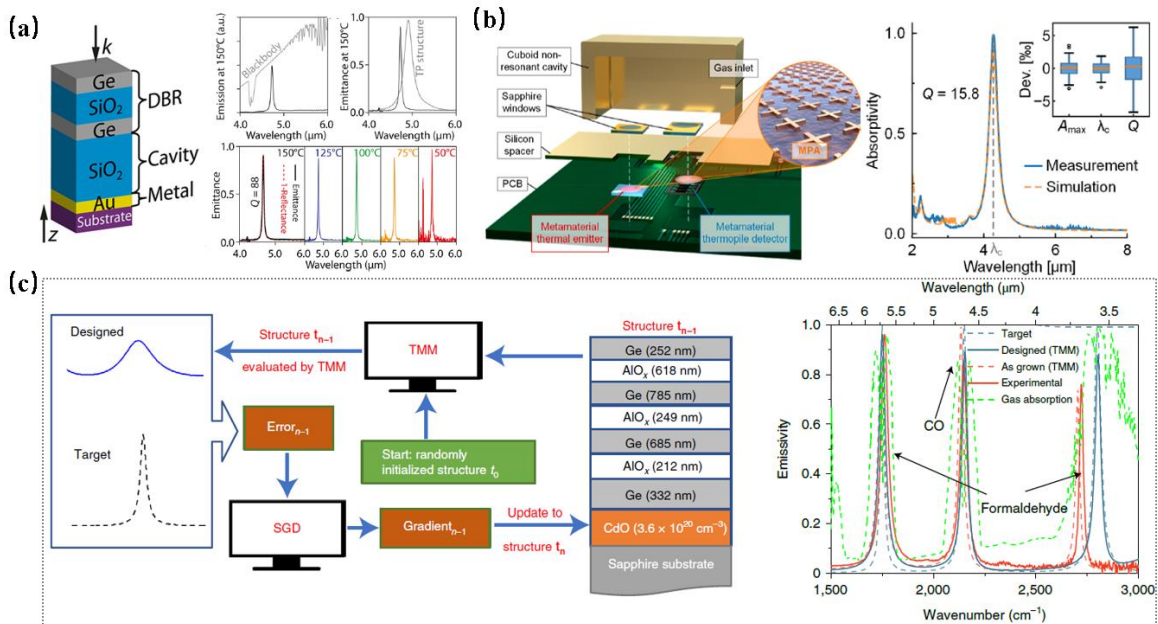


图 1.8 可用作红外源的波长选择性热辐射器研究：(a) 基于谐振腔模式与 Tamm 等离子激元模式的耦合，在 4.731 μm 波长处实现窄带热辐射[129]；(b) 将超材料辐射源和探测器集成于同一 PCB 板上，实现的一种紧凑且高效的 CO₂ 气体传感器[130]；(c) 基于随机梯度下降算法优化由掺杂 CdO 薄膜和不规则分布的布拉格反射镜组成的 TPP 辐射源，实现波长，线宽和振幅可定制的单个或多个辐射带[73]。

超材料辐射源可提供针对特定气体吸收波段的红外辐射信号，经待测气体吸收后，再由超材料探测器转换成电信号，由此达到气体浓度探测效果。此气体传感器，将超材料结构作为光学滤波器，与传统气体传感器相比，体积减少了 30 倍，能量损耗降低了 80%。

中红外光学气体传感器的微型化具有巨大潜力，可以推进从医疗技术到大气传感的各种应用的小型集成化。当前，多数窄带热辐射研究多为单波段或双波段，而对于实际的红外辐射源应用来说，多波段窄带热辐射器件由于其实用性更具吸引力。对于此需求，He 等人通过随机梯度下降算法，同时优化 TPP 辐射源设计中的众多结构参数，实现了可设计波长、线宽和振幅的单个或多个辐射带[73]，如图 1.8(c)所示。此 TPP 辐射源由掺杂氧化镉（CdO）薄膜和不规则分布的布拉格反射镜组成，其样品加工流程中无需光刻，并且此晶圆大小的结构设计互补金属-氧化物-半导体（CMOS）半导体工艺兼容，适用于自由空间通信和气体传感等应用。

综上所述，多波段热辐射器件是多波长，低成本红外辐射源的有利候选者，然而目前所提出的热辐射器件的辐射波长覆盖范围有限，且在长波红外波段的窄带，多波长热辐射红外光源的研究较少。对于实际红外应用来说，比如红外光谱探测，红外传感等，覆盖长波红外（8-14 μm ）的多波段集成热辐射芯片研究十分重要，还需进一步的研究与完善。

1.2.2 表面热辐射调控在红外光谱探测领域的应用

红外光谱可以对有机/无机化合物中存在的键类型、结构和官能团进行识别，是广泛应用于生物医学、环境监测等领域的检测和分析工具，其可靠、快速的特性使其成为从复杂样本中识别和鉴别特定生化分子的理想选择。当分子受到红外光照射时，与照射光同频的分子键或官能团由于振动会产生对应的红外吸收。这些共振模式对于每个特定的化合物都是独特的，并包含有关化学组成和结构的信息，通过将实验获得的红外光谱与数据库进行对比，可以快速识别材料，这是分析化学、生物学和医学中常见的探测流程。

其中，基于超表面实现的表面增强红外吸收光谱（SEIRA）的探测方法[138-143]已经取得了令人瞩目的成果，通过纳米尺度的近场增强效果，可以有效地将分子共振吸收效果在红外光谱中放大，以提高检测技术的灵敏度。此方法得益于其优异的灵敏度和非破坏性操作，非常适用于微量分子的无标记实时检测。例如，等离激元超表面已经实现了在中红外波段对单层物质的识别以及与生物分子的实时相互作用，这在传统的红外吸收光谱学中是难以实现的。因此，SEIRA 技术为开发高灵敏度、低成本、实时无标记、非破坏性检测的新型红外传感方法提供了有效途径。如：Xu 等人采用低温异质薄膜直接键合技术开发出了基于蓝宝石（ Al_2O_3 ）的中红外混合纳米流体-SEIRA 平台[138]，基

于红外反射光谱测量，实现了液态传感，如图 1.9(a)所示。通过毛细管作用力，液态分

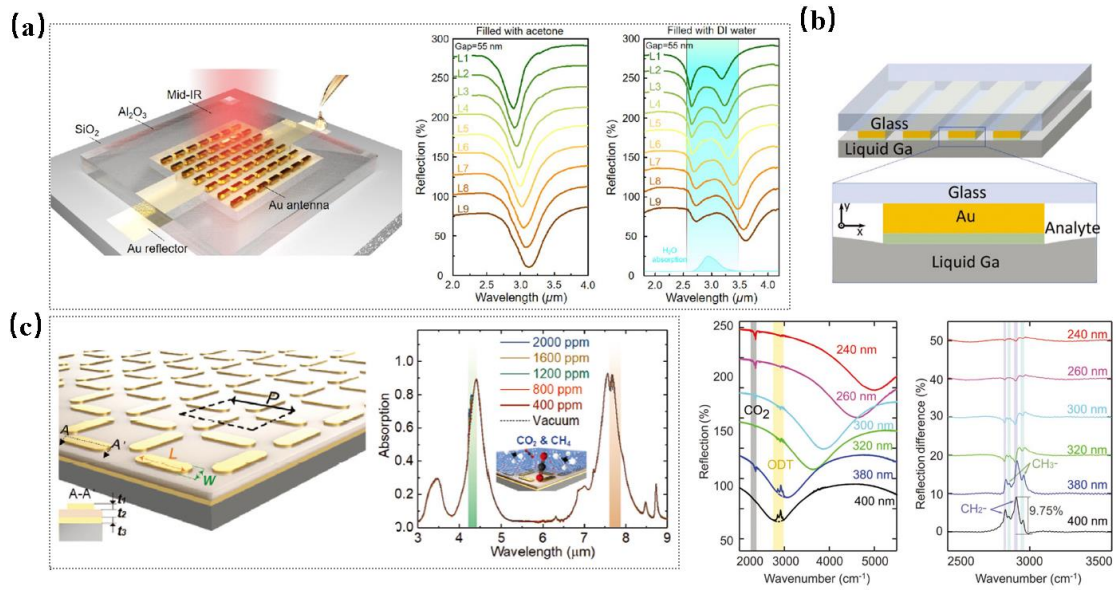


图 1.9 基于表面增强红外吸收 (SEIRA) 实现的红外分子传感/气体探测：(a) 基于中红外混合纳米流体-SEIRA 平台，实现的液态传感[138]；(b) 基于液态镓与纳米贴片天线的组合结构，实现的红外分子传感，此方法可以方便、高效地将分析物输送到纳米级热点中[139]；(c) 通过将 MOFs 集成到多共振 SEIRA 平台中，实现了快速且具有高准确性的片上气体探测，可同时探测 CO₂ 和 CH₄ [140]。

析物可以被驱动进入感应热点，无需外部激励系统，并解决了传统红外液体传感器中的水吸收问题，可用于定量分子鉴定和化学生物反应过程的动态分析。

再如，Miao 等人提出了一种高性能 SEIRA 传感器[139]，由底层液态镓与上层纳米贴片天线组成，不仅实现了超强的场增强和场束缚，而且还可以方便、高效地将分析物输送到纳米级热点中，如图 1.9(b) 所示。由于被分析物的分子振动模式对反射光谱的调制，该传感器在中红外反射光谱中表现出卓越的灵敏度，可探测单层 ODT(1-十八硫醇)。对于气体探测研究，Zhou 等人将 MOFs(金属-有机框架)集成到多共振 SEIRA 平台中，克服了多气体传感中选择性差的缺点，通过红外吸收光谱变化表征实现了同时片上探测 CO₂ 和 CH₄ 气体 [140]，如图 1.9(c) 所示。

上述基于 SEIRA 方法实现的分子传感/气体探测可以通过超表面带来的纳米尺度的近场增强效果来实现高灵敏度探测。此方法虽然可以减少传感过程中的所需分子量，但是其光谱探测过程中通常需要复杂的光谱仪设备和昂贵的红外光源。近几年，有研究提出通过像素化超表面阵列[144-147]，可实现无需光谱设备或通过简化光谱测量设备的条

件下，实现对有机分子的指纹光谱探测。如：洛桑联邦理工学院的 Altug 教授课题组于 2018 年提出了一种二维像素化介质超表面阵列[145]，可实现一系列窄带（平均 $Q \sim 115$ ）共振峰，基于此设计可从共振波长处读出待测分子的吸收光谱特征，并将所得信息转换为类似条形码的空间吸收信息进行成像，如图 1.10(a) 所示。此方法，可以高灵敏地检测生物、聚合物和农药分子的光谱特征，可用于生物传感和环境监测等应用领域。并且得益于超表面阵列设计，该传感器的光谱探测过程无需光谱仪和可移动机械设备。同一课题组于 2019 年基于对单个锗超表面的 BIC 模式的调控，提出了一种角分辨分子传感方法[146]，此超表面能够在 1100 到 1800 cm^{-1} 之间提供窄带角分辨光谱选择，如图 1.10(b) 所示。结合角度扫描装置和宽带非相干光源，此设计通过简化的光谱测量设备对红外反

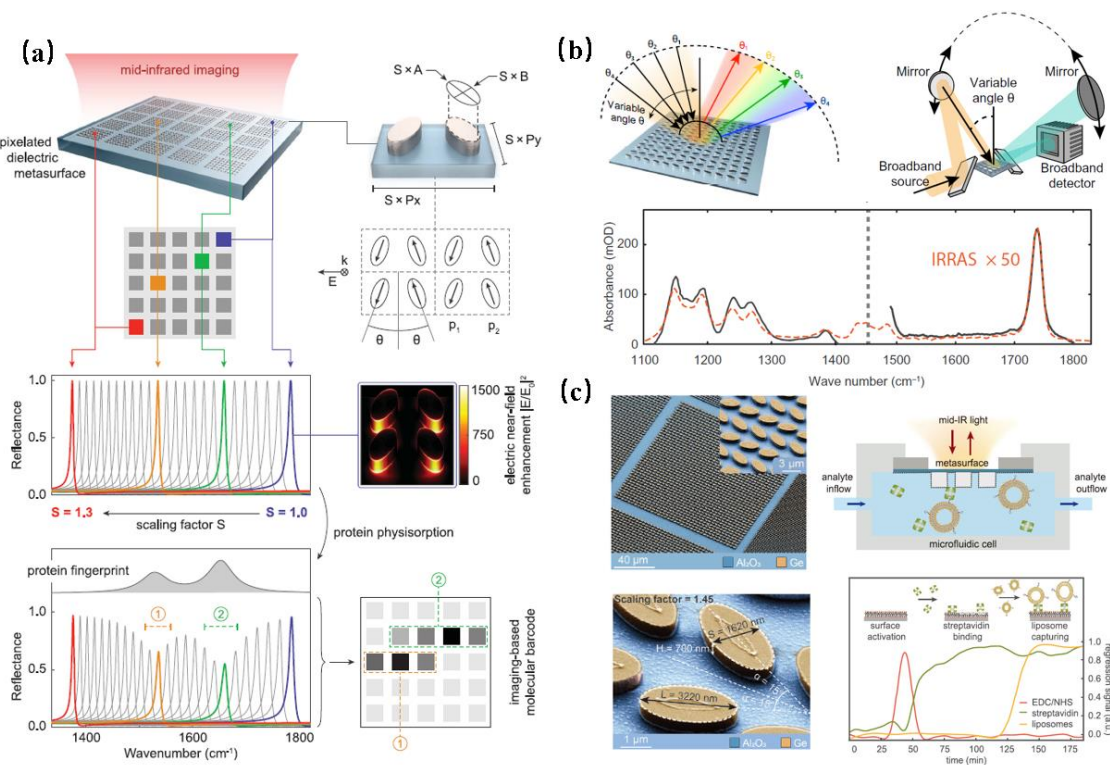


图 1.10 基于像素化超表面实现的红外分子探测：(a) 基于像素化介质超表面和红外成像实现的有机分子探测[145]；(b) 基于介质超表面中 BIC 模式的角分辨光谱特性实现的红外分子探测[146]；(c) 采用 CMOS 兼容制造技术，实现大面积的超表面结构制造，通过将超表面设计集成到微流体系统中，可以实现蛋白质和脂质囊泡的实时无标记中红外生物传感[147]。

射谱进行测量，进而实现了对 PMMA 分子以及蛋白质、寡核苷酸和聚赖氨酸的红外光谱探测。超表面技术转化为实际应用需要低成本，高通量的制造方法，由于具有适当光

学特性材料的选择有限,在中红外范围内制造超表面尤其具有挑战性。针对此问题,Altug 教授课题组于 2021 年,通过在几乎完全透明的自支撑金属氧化物薄膜上实现功能性超表面阵列克服了这一困难[147]。该方法采用了 CMOS 兼容制造技术,在实验中实现了大面积超透镜以及具有高转换效率的双折射超表面。更进一步,将超表面设计集成到微流体系统中,通过红外光谱响应追踪可以实现蛋白质和脂质囊泡的实时无标记中红外生物传感,如图 1.10(c) 所示。这种方法的多功能性和与大规模生产过程的兼容性将红外超表面带到了商业应用领域,如热成像、光谱学和生物传感。

上述基于像素化超表面阵列的传感方法可实现无需光谱仪或仅需简化光谱设备的光谱探测过程,但仍需要额外的红外光源。基于热辐射器件可实现无需额外红外光源的分子传感研究,但仍需光谱仪或简化光谱设备进行红外光谱测量(透射或辐射谱)来分辨分子的共振吸收模式。如: Barho 等人提出了一种基于 III-V 半导体超表面热辐射的表面增强光谱技术,用于实现更加紧凑、低成本的中红外分子传感方法[135],如图 1.11(a) 所示。与 SEIRA 方法类似,通过表面增强热辐射 (SETES) 光谱方法,也可实现对附着在表面上的分子进行探测。由于超表面同时用作辐射源和传感芯片,此方法无需额外的红外源,有利于分子传感器设备的小型集成化。再如: Nakagawa 等人提出了一种基于多层

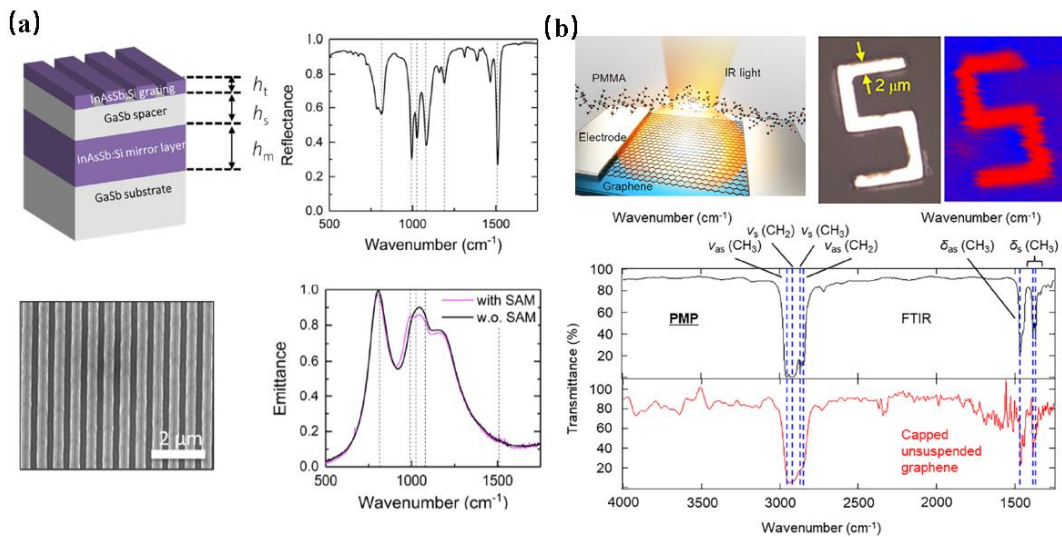


图 1.11 将热辐射器作为红外辐射源实现的红外分子传感: (a) 基于 III-V 半导体超表面的 SETES 技术, 实现更加紧凑、低成本的中红外分子传感方法[135]; (b) 基于多层石墨烯微辐射器的红外光谱和成像技术, 实现红外分子光谱探测以及可视化化学信息分布的高空间分辨 ($\sim 1\mu\text{m}$) 二维红外成像[136]。

石墨烯微辐射器的红外光谱探测和成像技术[136]，该平面设计具有高亮度、小面积（微米平方级别）和高调制速度（>50 kHz）的显著特点。此设计将多层石墨烯微辐射器作为红外辐射源，通过红外透射光谱测量实现分子探测，也可实现可视化化学信息分布的二维红外成像，如图 1.11(b) 所示。此外，该化学成像技术具有远高于衍射极限的高空间分辨率（约为 $1\mu\text{m}$ ）。

通过对上述多种红外传感方法的总结与研究，可以看出红外光谱探测对于传感应用的重要性。目前对于既不需要红外光源也无需红外光谱仪的，成本低廉、可重复探测的高度集成化红外光谱探测方法还未有人提出，仍需进行探索，这对于红外传感，材料分析等应用的小型集成化发展至关重要。

1.2.3 表面热辐射调控在热管理领域的应用

在红外范围内的热辐射调控可应用于热管理[23, 25, 28, 29, 113, 148-151]领域中的多种应用，包括辐射制冷[28, 29]、个人热管理[29, 152-154]、红外热伪装[25]和信息加密[113, 148, 155]等。这里，我们首先介绍下辐射制冷技术的发展现状。传统的冷却系统消耗了大量能源，从而加剧了温室效应。辐射制冷是一种新兴技术，可以在不使用电力或制冷剂的情况下降低环境温度，是一种有望缓解或逆转全球变暖的有效方法。这种辐射冷却方法是透过在 $8\text{-}14\mu\text{m}$ 之间的大气透明窗口，将不需要的热量从地球辐射至温度约为 3K 的超低温外太空中实现的。为了实现高效冷却性能，选择性热辐射体的设计和制造至关重要，合适的光谱选择应该在将热辐射集中于大气透明窗口的同时，抑制其余波段的热辐射。目前，辐射制冷相关的热辐射调控研究已经得到了广泛的探讨，其可行性已经被研究人员证明。如：南京大学的朱嘉教授，朱斌副教授，斯坦福大学的范汕洄教授及其合作者通过一种可扩展的静电纺丝工艺生产的分层设计聚合物纳米纤维薄膜，实现了选择性中红外辐射以及有效的太阳光反射，因此具有优异的全天辐射制冷性能[28]，如图 1.12(a) 所示。该设计在夜间通过辐射制冷可改善约 3°C ，在阳光下可达到 5°C 的温度冷却。

通过对辐射制冷材料的合理选择与设计，比如选择透气性，柔软度较好的材料，可以提升整体设计的可穿戴性，将此技术用于个人热管理（PTM）应用中。作为保护皮肤免受外部环境侵害的主要媒介，服装是实现日间辐射制冷功能的一个很好的选择。PTM 技术基于辐射制冷的原理，可以高效地为人体提供舒适的温度环境，以抵御日益严重的

全球气候变化。如：华中科技大学陶光明教授和浙江大学马耀光教授及其合作者提出了一种可大规模编织的，分层形态设计含有随机分散散射体的辐射制冷织物[29]，如图 1.12(b) 所示。该织物展现出了商业服装所需的理想机械强度、防水性和透气性。根据实

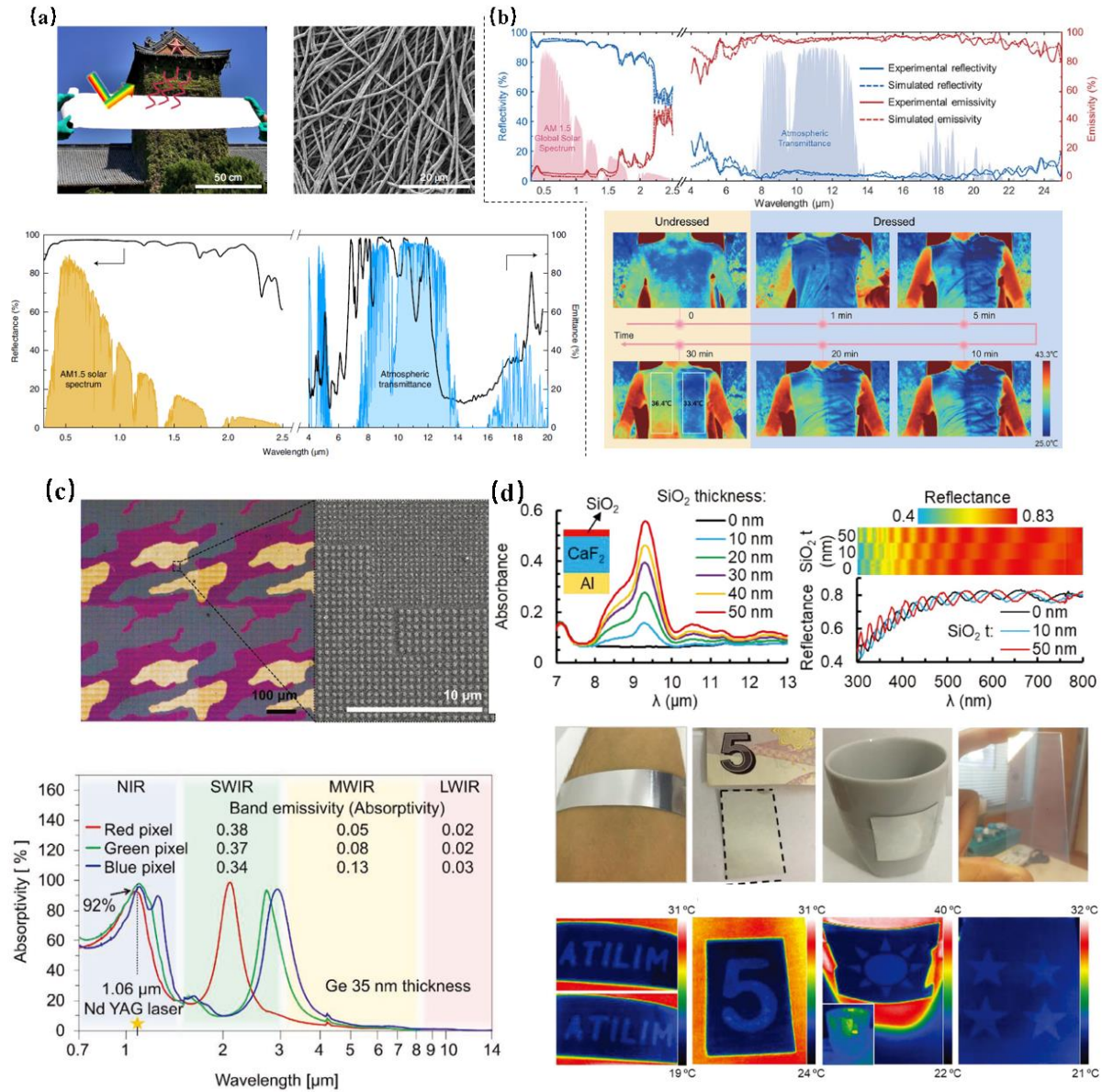


图 1.12 基于热辐射调控的热管理应用研究：(a) 通过一种可扩展的静电纺丝工艺生产的分层设计聚合物纳米纤维薄膜，基于其选择性中红外辐射以及对太阳光有效地反射，实现优异的全天辐射制冷性能[28]；(b) 一种可大规模编织的，具有随机分散散射体的分层形态设计的辐射制冷织物，用于个人热管理应用[29]；(c) 基于金属-半导体-金属 (MSM) 超表面的 FP 模式以及多个等离激元共振模式，实现的一种多波段隐身技术[25]。(d) 一种基于纳米厚度介质 (SiO_2) 的热辐射图案实现的光学安全加密[148]。

际应用测试,人体由该织物覆盖并与商业棉织物进行对比,人体可实现约 4.8°C的降温。

随着红外技术的进步,各种高灵敏度、具有宽红外光谱工作范围的探测器已经被广泛开发和应用于军事侦测和监视领域。与之对应的,宽谱红外隐身技术(热伪装)也逐渐得到重视。“伪装”意味着现有物体的热红外图案与背景融为一体,就像物体不存在一样。红外探测器通过从物体中得到的热辐射信号的大小来确定物体的存在,红外隐身技术则需要降低热辐射信号的大小。在近红外(0.75-1.4 μm)和短波红外(1.4-3.0 μm)范围内,由于物体的热辐射很弱,大多数军用设备中的红外成像探测器通常会测量常规操作温度范围内物体的反射信号。因此,为了实现从近红外到长波红外的宽光谱范围内的

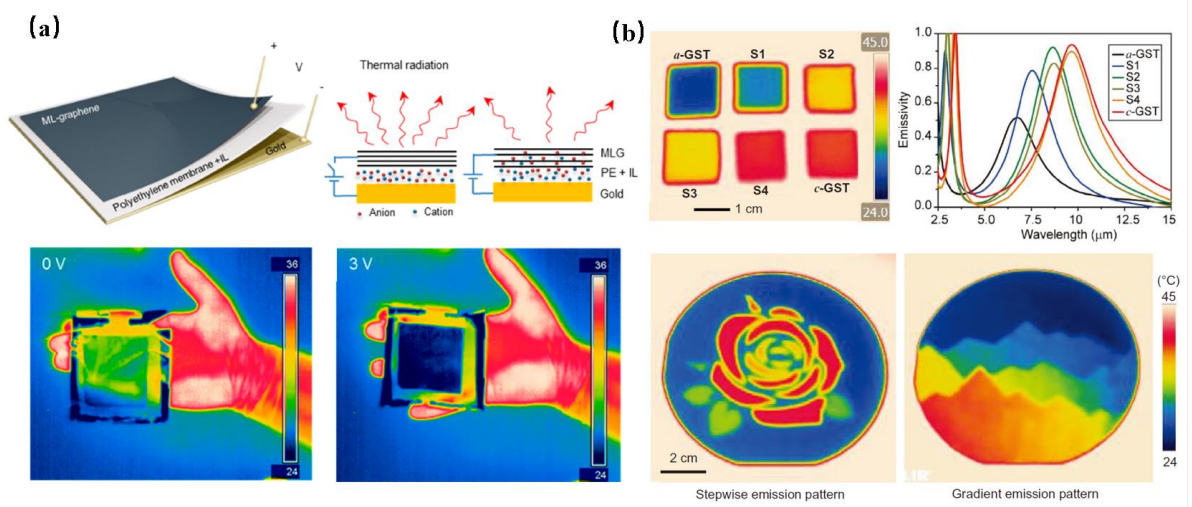


图 1.13 基于热辐射动态调控的热管理应用研究: (a) 通过非挥发性离子液体的可逆插层实现对多层石墨烯的红外吸收率和辐射率的电调制,即实现高效实时的电控红外热辐射[23]; (b) 基于激光印刷方法,实现空间调控热辐射,以逐层方式实现了阶梯热辐射模式,可以将特定位置的辐射率调整为 0.26 到 0.8 之间[113]。

隐身效果,物体的表面必须同时抑制近红外和短波红外范围内的反射光以及中红外(3-8 μm)和长波红外(8-14 μm)范围内的热辐射。Kim 等人基于金属/半导体/金属(MSM)超表面的 FP 模式以及多个等离激元共振模式,提出了一种多波段隐身技术[25],如图 1.12(c) 所示。Ge 层的 FP 共振可带来强烈的吸收(>92%),减弱了红外激光制导探测器的引导信号,同时通过 MSM 超表面中的等离激元共振,可在短波、中波和长波红外波段分别实现>34%, >94.4%和>97.7%的红外信号减弱。

基于红外表面热辐射调控产生的特殊光学特征,可以用于鉴别产品的真伪,打击对商品、书籍和有价值文件等物品的伪造。基于人为设计的吸收/辐射层,创建肉眼或相机

无法察觉的图案，需通过检测热辐射信号得到真实图案的设计方法，可为光学加密解密应用提供独特的方法。Bakan 等人提出了一种通过具有纳米厚度的介质 (SiO_2) 热辐射图案实现的光学安全加密方法[148]，如图 1.12(d) 所示。通过在可见光透明但在热像仪波长范围内表现出强烈红外辐射的超薄介质上制造图案实现了可见光范围内隐形但通过热成像可以显示图案的效果。该设计可以将检测热辐射的最低温度降至约 30°C ，且可在大面积柔性基板上进行图案加工，提高了其实用性，方便利用人体这样普遍存在的热源进行成像鉴别。

基于热辐射调控实现的热管理应用大多是静态，不可实时调控的。为了进一步提升热管理相关应用的适用范围，基于热辐射动态调控机制实现动态热管理应用的研究具有重要意义。通过光学性质可调的特殊材料，如石墨烯，相变材料 VO_2 ，GST 等可以达到对材料热辐射的动态调控。如：Salihoglu 等人通过非挥发性离子液体的可逆插层对多层石墨烯的红外吸收率和辐射率的电调制，在不改变表面温度的情况下，可以在全红外光谱内实现高效实时的电控热辐射[23]，如图 1.13(a) 所示。通过将可调热辐射表面与反馈机制相结合，作者还展示了一个自适应热伪装系统，它可以在几秒钟内重新配置其热外观，并与不断变化的热背景融合。另外，通过紫外线照射和飞秒激光脉冲激发等外部调制手段，也可实现对局部表面热辐射的动态调控。如：1.2.2 章节提到的 Coppens 等人所提出的，可同时在空间和时间对辐射率进行调制的新型热管理设计。该设计的调控机制来自于紫外线照射带来的材料光学特性的改变，通过对紫外照射源照射区域的控制实现对表面热辐射的点对点局部调控，可用于自适应热管理与可调红外显示应用。再如：Kim 等人提出了一种基于激光印刷方法，实现的红外伪装与信息加密技术。通过在空间上调节 GST 平面腔体的热辐射[113]，实现了阶梯相变热像显示，如图 1.13(b) 所示。具体是通过空间调制的脉冲激光束对 GST 膜进行晶化处理，以逐层的方式实现了阶梯热辐射模式。

目前已提出的关于热辐射动态调控的研究，大多集中于时间与空间上的表面热辐射调控或在辐射波长，带宽以及极化上的辐射光谱调控，更多自由度的动态调控可以进一步开拓热管理研究的应用前景，目前相关研究还较少，还需进一步地探索。

1.3 本论文的研究内容

1.3.1 研究目的与意义

传统热辐射源所发出的辐射通常是，宽带，非极化，在各个方向上近乎各向同性的非相干光，因此很难实现灵活调控。近些年，随着微纳光学的研究与进步，波长或亚波长尺度下的超表面/超材料研究打破了这一困境，使得实现窄带，具有极化性，定向的相干辐射光已成为可能，为多种红外领域应用，比如，红外辐射源、红外光谱探测、红外传感和热管理等提供了新的研究思路与平台。然而目前所实现的红外热辐射研究在其调控自由度以及实际应用上仍有待解决的研究难题，比如：

1. 随着片上红外应用，如集成红外光源，红外传感等应用的快速发展，对于包含多个特征辐射波长的集成热辐射芯片的需求日益增长。然而目前，虽然基于超表面/超材料设计实现了对红外热辐射光谱的窄带多波段调控，但是其表面热辐射的空间分辨率一般不高，且辐射波长的覆盖范围有限。因此，对具有高空间分辨率的小型集成化多波段热辐射芯片的研究具有十分重要的意义。
2. 目前常用的红外光谱测量手段，如 FTIR（傅里叶变换光谱仪），在光谱探测过程中通常需要昂贵的红外源以及复杂的光谱仪设备。基于热辐射器件研究，无需额外红外光源的吸收光谱表征方法已被提出，其探测设备成本可大大降低，但其光谱探测过程仍需要光谱仪或简化的光谱探测设备。高度小型集成化的，无需额外红外光源和光谱仪，低成本且可重复使用的红外吸收光谱探测方法对于片上红外光谱探测，红外传感，材料分析和环境监测等应用的发展至关重要。
3. 红外表面热辐射的精确控制对于热光伏以及自适应热管理应用十分重要。基于超表面，超材料等微纳结构已实现了对红外热辐射波长，极化以及辐射角度的灵活调控，但是目前，微区红外热辐射在波长，极化，时间以及空间上的多自由度动态调控研究方面还有待探索，这对于微区热管理，热伪装以及热电探测应用十分重要。

1.3.2 论文的主要工作与创新点

本论文以红外表面热辐射的调控方法及其应用为研究对象，探究了基于超微腔阵列实现的多自由度热辐射调控以及激光调制引入下的多自由度热辐射动态调控。同时，针对目前存在的热辐射调控的研究空缺以及应用需求，给出了合理的设计方案。本论文的

创新点在于，以超表面的多自由度调控能力为基础，通过超微腔阵列设计实现了对红外热辐射的多自由度调控，并通过引入激光动态调控机制，进一步实现了对红外热辐射的多自由度动态调控，此多功能热辐射调控设计大大提升了此研究的实用性与适用范围。全文总共六章，具体的章节安排如下：

第一章：介绍了热辐射调控的研究背景和意义。首先介绍了表面热辐射在光谱，极化和辐射角度方面调控的研究进展以及动态热辐射调控的研究现状，随后介绍了基于目前的热辐射调控方法在红外辐射源、红外光谱探测以及热管理方面的应用研究。

第二章：介绍了红外热辐射调控的研究方法，实验样品的加工与表征。研究方法指基于光学谐振模型，转移矩阵以及多重干涉理论等调控机制，通过超表面，超材料设计对热辐射特性进行精准调控。实验加工工艺以及样品表征包括，镀膜工艺（电子束蒸镀，磁控溅射，等离子体增强化学气相沉积）和微纳结构加工（光刻，电子束光刻，聚焦离子束刻蚀）以及样品表征手段（光谱表征：红外傅里叶光谱仪 FTIR，角分辨光谱仪 ARM；红外热辐射特性表征：长波热像仪；）。

第三章：提出了一种具有高空间分辨率的多波段热辐射芯片。结合纳米孔超表面与 FP 腔，我们设计了一种超微腔结构，并进一步通过超微腔阵列实现了辐射波长覆盖 7-9 μm 和 10-14 μm 的多波段热辐射芯片。此超微腔阵列集合了 FP 腔带来的窄带辐射效应和纳米孔超表面带来的多自由度调控优势。纳米孔作为辐射单元，可实现接近波长量级的高空间分辨率，且通过纳米孔图案设计，我们还可进一步实现极化，波长和空间上的多路复用热辐射。此芯片设计可用作低成本的微区集成红外辐射源，可用于微区红外分子探测，材料分析和环境监测等应用。

第四章：基于热辐射芯片设计与热成像技术，提出了一种紧凑集成化的，无需额外红外光源与光谱仪、低成本且可重复使用的红外吸收光谱探测方法。热辐射芯片可提供覆盖长波红外 7.6-12 μm 波段的热辐射峰，可同时用作红外辐射源与光谱芯片，此集成一体化设计，在对探测系统大幅度简化的同时也实现了设备成本的大幅降低。此集成方法为小型集成化微区红外光谱探测设备研究，比如片上集成有机分子传感，生物技术和材料分析等提供了新的研究平台。

第五章：提出了一种基于新型超微腔结构实现的在波长、极化、时间以及空间上的多自由度动态热辐射调控方法。此新型超微腔结构由光栅超表面/Si 层/纳米孔超表面构成，可同时实现对可见至近红外波段的光吸收调控以及对长波红外波段的热辐射调控。

在激光调制下，超微腔结构将随激光波长，极化，功率以及加热时间变化带来的不同光吸收能量通过光热效应转换为对应的热量变化，进而对纳米孔超表面的红外热辐射产生了多自由度动态调控效果。此光控热辐射方法为新一代的微区热管理和热电器件的发展提供了新的研究思路。

第六章：总结了本文的研究内容及创新点，并为超微腔阵列多自由度调控红外热辐射的应用发展前景做出了展望。

参考文献

- [1] M. Onoda, S. Murakami and N. Nagaosa. Hall effect of light. *Physical Review Letters*, **93**, 083901 (2004).
- [2] K. Y. Bliokh, F. J. Rodriguez-Fortuno, F. Nori and A. V. Zayats. Spin-orbit interactions of light. *Nature Photonics*, **9**, 796 (2015).
- [3] Y. Yu, F. Zhong, X. Jiang, Q. Q. Chu, S. N. Zhu and H. Liu. Dynamical optical beam produced in rotational metasurface based on coherent spin hall effect. *Chinese Optics*, **14**, 927 (2021).
- [4] N. F. Yu, P. Genevet, M. A. Kats, F. Aieta, J. P. Tetienne, F. Capasso, et al. Light Propagation with Phase Discontinuities: Generalized Laws of Reflection and Refraction. *Science*, **334**, 333 (2011).
- [5] R. Fleury, D. L. Sounas and A. Alu. Negative Refraction and Planar Focusing Based on Parity-Time Symmetric Metasurfaces. *Physical Review Letters*, **113**, 023903 (2014).
- [6] A. M. Shaltout, V. M. Shalaev and M. L. Brongersma. Spatiotemporal light control with active metasurfaces. *Science*, **364**, 648 (2019).
- [7] X. Z. Chen, L. L. Huang, H. Muhlenbernd, G. X. Li, B. F. Bai, Q. F. Tan, et al. Dual-polarity plasmonic metalens for visible light. *Nature Communications*, **3**, 1198 (2012).
- [8] K. Chen, Y. J. Feng, F. Monticone, J. M. Zhao, B. Zhu, T. Jiang, et al. A Reconfigurable Active Huygens' Metalens. *Advanced Materials*, **29**, 1606422 (2017).
- [9] W. T. Chen, A. Y. Zhu, V. Sanjeev, M. Khorasaninejad, Z. J. Shi, E. Lee, et al. A broadband achromatic metalens for focusing and imaging in the visible. *Nature Nanotechnology*, **13**, 220 (2018).
- [10] M. Y. Pan, Y. F. Fu, M. J. Zheng, H. Chen, Y. J. Zang, H. G. Duan, et al. Dielectric metalens for miniaturized imaging systems: progress and challenges. *Light: Science & Applications*, **11**, 195 (2022).
- [11] C. Zhang and X. H. Hu. Three-Dimensional Single-Port Labyrinthine Acoustic Metamaterial: Perfect Absorption with Large Bandwidth and Tunability. *Physical Review Applied*, **6**, 64025 (2016).
- [12] W. R. Zhu, F. J. Xiao, M. Kang and M. Premaratne. Coherent perfect absorption in an all-dielectric metasurface. *Applied Physics Letters*, **108**, 121901 (2016).
- [13] Y. Li, J. Lin, H. J. Guo, W. J. Sun, S. Y. Xiao and L. Zhou. A Tunable Metasurface with Switchable Functionalities: From Perfect Transparency to Perfect Absorption. *Advanced Optical Materials*, **8**, 1901548 (2020).
- [14] W. Wang, S. M. Wu, K. Reinhardt, Y. L. Lu and S. C. Chen. Broadband Light Absorption Enhancement in Thin-Film Silicon Solar Cells. *Nano Letters*, **10**, 2012 (2010).
- [15] A. Lenert, D. M. Bierman, Y. Nam, W. R. Chan, I. Celanovic, M. Soljacic, et al. A nanophotonic solar thermophotovoltaic device. *Nature Nanotechnology*, **9**, 126 (2014).
- [16] Y. Wang, L. Zhou, Y. Zhang, J. Y. Yu, B. L. Huang, Y. X. Wang, et al. Hybrid Solar Absorber-Emitter by Coherence-Enhanced Absorption for Improved Solar Thermophotovoltaic Conversion. *Advanced Optical Materials*, **6**, 1800813 (2018).
- [17] M. A. Abbas, J. Kim, A. S. Rana, I. Kim, B. Rehman, Z. Ahmad, et al. Nanostructured chromium-based broadband absorbers and emitters to realize thermally stable solar thermophotovoltaic systems. *Nanoscale*, **14**,

6425 (2022).

- [18] D. M. Bierman, A. Lenert, W. R. Chan, B. Bhatia, I. Celanovic, M. Soljacic, et al. Enhanced photovoltaic energy conversion using thermally based spectral shaping. *Nature Energy*, **1**, 16068 (2016).
- [19] D. N. Woolf, E. A. Kadlec, D. Bethke, A. D. Grine, J. J. Nogan, J. G. Cederberg, et al. High-efficiency thermophotovoltaic energy conversion enabled by a metamaterial selective emitter. *Optica*, **5**, 213 (2018).
- [20] D. J. Fan, T. Burger, S. McSherry, B. Lee, A. Lenert and S. R. Forrest. Near-perfect photon utilization in an air-bridge thermophotovoltaic cell. *Nature*, **586**, 237 (2020).
- [21] M. Suemitsu, T. Asano, T. Inoue and S. Noda. High-Efficiency Thermophotovoltaic System That Employs an Emitter Based on a Silicon Rod-Type Photonic Crystal. *ACS Photonics*, **7**, 80-87 (2020).
- [22] S. Chandra, D. Franklin, J. Cozart, A. Safaei and D. Chanda. Adaptive Multispectral Infrared Camouflage. *ACS Photonics*, **5**, 4513 (2018).
- [23] O. Salihoglu, H. B. Uzlu, O. Yakar, S. Aas, O. Balci, N. Kakenov, et al. Graphene-Based Adaptive Thermal Camouflage. *Nano Letters*, **18**, 4541 (2018).
- [24] H. Z. Zhu, Q. Li, C. N. Tao, Y. Hong, Z. Q. Xu, W. D. Shen, et al. Multispectral camouflage for infrared, visible, lasers and microwave with radiative cooling. *Nature Communications*, **12**, 1805 (2021).
- [25] J. Kim, C. Park and J. W. Hahn. Metal-Semiconductor-Metal Metasurface for Multiband Infrared Stealth Technology Using Camouflage Color Pattern in Visible Range. *Advanced Optical Materials*, **10**, 2101930 (2022).
- [26] N. Lee, J. S. Lim, I. Chang, H. M. Bae, J. Nam and H. H. Cho. Flexible Assembled Metamaterials for Infrared and Microwave Camouflage. *Advanced Optical Materials*, **10**, 2200448 (2022).
- [27] J. G. Zhang, Z. J. Wen, Z. J. Zhou, D. J. Zhou, Q. L. Qiu, J. Ge, et al. Long-wavelength infrared selective emitter for thermal infrared camouflage under a hot environment. *Optics Express*, **30**, 24132 (2022).
- [28] D. Li, X. Liu, W. Li, Z. Lin, B. Zhu, Z. Li, et al. Scalable and hierarchically designed polymer film as a selective thermal emitter for high-performance all-day radiative cooling. *Nature Nanotechnology*, **16**, 153 (2021).
- [29] S. N. Zeng, S. J. Pian, M. Y. Su, Z. N. Wang, M. Q. Wu, X. H. Liu, et al. Hierarchical-morphology metafabric for scalable passive daytime radiative cooling. *Science*, **373**, 692 (2021).
- [30] S. C. Wang, T. Y. Jiang, Y. Meng, R. G. Yang, G. Tan and Y. Long. Scalable thermochromic smart windows with passive radiative cooling regulation. *Science*, **374**, 1501 (2021).
- [31] S. H. Fan and W. Li. Photonics and thermodynamics concepts in radiative cooling. *Nature Photonics*, **16**, 182 (2022).
- [32] D. Y. Miao, N. B. Cheng, X. F. Wang, J. Y. Yu and B. Ding. Integration of Janus Wettability and Heat Conduction in Hierarchically Designed Textiles for All-Day Personal Radiative Cooling. *Nano Letters*, **22**, 680 (2022).
- [33] Y. Zhai, Y. Ma, S. N. David, D. Zhao, R. Lou, G. Tan, et al. Scalable-manufactured randomized glass-polymer hybrid metamaterial for daytime radiative cooling. *Science*, **355**, 1062 (2017).
- [34] X. L. Liu, T. Tyler, T. Starr, A. F. Starr, N. M. Jokerst and W. J. Padilla. Taming the Blackbody with Infrared

- Metamaterials as Selective Thermal Emitters. *Physical Review Letters*, **107**, 045901 (2011).
- [35] H. Wang and L. P. Wang. Perfect selective metamaterial solar absorbers. *Optics Express*, **21**, A1078 (2013).
- [36] A. E. Cetin, S. Korkmaz, H. Durmaz, E. Aslan, S. Kaya, R. Paiella, et al. Quantification of Multiple Molecular Fingerprints by Dual-Resonant Perfect Absorber. *Advanced Optical Materials*, **4**, 1274 (2016).
- [37] Q. Q. Shi, T. U. Connell, Q. Xiao, A. S. R. Chesman, W. L. Cheng, A. Roberts, et al. Plasmene Metasurface Absorbers: Electromagnetic Hot Spots and Hot Carriers. *ACS Photonics*, **6**, 314 (2019).
- [38] C. Park, J. Kim and J. W. Hahn. Integrated Infrared Signature Management with Multispectral Selective Absorber via Single-Port Grating Resonance. *Advanced Optical Materials*, **9**, 2002225 (2021).
- [39] Z. Qin, X. Y. Shi, F. M. Yang, E. Z. Hou, D. J. Meng, C. F. Sun, et al. Multi-mode plasmonic resonance broadband LWIR metamaterial absorber based on lossy metal ring. *Optics Express*, **30**, 473 (2022).
- [40] N. Zhang, P. H. Zhou, D. M. Cheng, X. L. Weng, J. L. Xie and L. J. Deng. Dual-band absorption of mid-infrared metamaterial absorber based on distinct dielectric spacing layers. *Optics Letters*, **38**, 1125 (2013).
- [41] C. J. Zou, G. H. Ren, M. M. Hossain, S. Nirantar, W. Withayachumnankul, T. Ahmed, et al. Metal-Loaded Dielectric Resonator Metasurfaces for Radiative Cooling. *Advanced Optical Materials*, **5**, 1700460 (2017).
- [42] J. Bohn, T. Bucher, K. E. Chong, A. Komar, D. Y. Choi, D. N. Neshev, et al. Active Tuning of Spontaneous Emission by Mie-Resonant Dielectric Metasurfaces. *Nano Letters*, **18**, 3461 (2018).
- [43] X. Y. Ruan, W. Dai, W. Q. Wang, C. H. Ou, Q. Q. Xu, Z. J. Zhou, et al. Ultrathin, broadband, omnidirectional, and polarization-independent infrared absorber using all-dielectric refractory materials. *Nanophotonics*, **10**, 1683 (2021).
- [44] J. Wu and Y. M. Qing. Wide-angle and broadband nonreciprocal thermal emitter with cascaded dielectric and Weyl semimetal grating structure. *Applied Physics Letters*, **122**, 012203 (2023).
- [45] J. A. Bossard, L. Lin, S. Yun, L. Liu, D. H. Werner and T. S. Mayer. Near-Ideal Optical Metamaterial Absorbers with Super-Octave Bandwidth. *ACS Nano*, **8**, 1517 (2014).
- [46] W. L. Guo, Y. X. Liu and T. C. Han. Ultra-broadband infrared metasurface absorber. *Optics Express*, **24**, 20586 (2016).
- [47] Q. H. Pan, J. R. Hong, S. D. Xu, Y. Shuai and H. P. Tan. Theoretical Analysis of a Hyperbolic Metamaterial for Harvesting Visible and Infrared Light. *Heat Transfer Engineering*, **40**, 410 (2019).
- [48] X. H. Wu and C. J. Fu. Ultra-Broadband Perfect Absorption with Stacked Asymmetric Hyperbolic Metamaterial Slabs. *Nanoscale and Microscale Thermophysical Engineering*, **22**, 114 (2018).
- [49] Y. Cui, K. H. Fung, J. Xu, H. Ma, Y. Jin, S. He, et al. Ultrabroadband Light Absorption by a Sawtooth Anisotropic Metamaterial Slab. *Nano Letters*, **12**, 1443 (2012).
- [50] D. Ji, H. Song, X. Zeng, H. Hu, K. Liu, N. Zhang, et al. Broadband absorption engineering of hyperbolic metafilm patterns. *Scientific Reports*, **4**, 4498 (2014).
- [51] B. Zhao and Z. M. Zhang. Perfect Absorption With Trapezoidal Gratings Made of Natural Hyperbolic Materials. *Nanoscale and Microscale Thermophysical Engineering*, **21**, 123 (2017).

- [52] A. Kong, B. Cai, P. Shi and X. C. Yuan. Ultra-broadband all-dielectric metamaterial thermal emitter for passive radiative cooling. *Optics Express*, **27**, 30102 (2019).
- [53] A. Mayer, H. Bi, S. Griesse-Nascimento, B. Hackens, J. Loicq, E. Mazur, et al. Genetic-algorithm-aided ultra-broadband perfect absorbers using plasmonic metamaterials. *Optics Express*, **30**, 1167 (2022).
- [54] M. Aalizadeh, A. Khavasi, B. Butun and E. Ozbay. Large-Area, Cost-Effective, Ultra-Broadband Perfect Absorber Utilizing Manganese in Metal-Insulator-Metal Structure. *Scientific Reports*, **8**, 9162 (2018).
- [55] Y. Gong, K. Li, N. Copner, H. Liu, M. Zhao, B. Zhang, et al. Integrated and spectrally selective thermal emitters enabled by layered metamaterials. *Nanophotonics*, **10**, 1285 (2021).
- [56] F. Yang, R.-H. Li, S.-L. Tan, J.-W. Dong and S.-J. Jiang. Visible-mid infrared ultra-broadband and wide-angle metamaterial perfect absorber based on cermet films with nano-cone structure. *Nanophotonics*, (2023).
- [57] J. Xu, J. Mandal and A. P. Raman. Broadband directional control of thermal emission. *Science*, **372**, 393 (2021).
- [58] Y. Ying, B. Ma, J. Yu, Y. Huang, P. Ghosh, W. Shen, et al. Whole LWIR Directional Thermal Emission Based on ENZ Thin Films. *Laser & Photonics Reviews*, **16**, 2200018 (2022).
- [59] Z. Zhang and L. Zhu. Broadband Nonreciprocal Thermal Emission. *Physical Review Applied*, **19**, 014013 (2023).
- [60] A. Tittl, P. Mai, R. Taubert, D. Dregely, N. Liu and H. Giessen. Palladium-Based Plasmonic Perfect Absorber in the Visible Wavelength Range and Its Application to Hydrogen Sensing. *Nano Letters*, **11**, 4366 (2011).
- [61] H. T. Miyazaki, T. Kasaya, M. Iwanaga, B. Choi, Y. Sugimoto and K. Sakoda. Dual-band infrared metasurface thermal emitter for CO₂ sensing. *Applied Physics Letters*, **105**, 121107 (2014).
- [62] A. Lochbaum, Y. Fedoryshyn, A. Dorodnyy, U. Koch, C. Hafner and J. Leuthold. On-Chip Narrowband Thermal Emitter for Mid-IR Optical Gas Sensing. *ACS Photonics*, **4**, 1371 (2017).
- [63] A. Livingood, J. R. Nolen, T. G. Folland, L. Potechin, G. Lu, S. Criswell, et al. Filterless Nondispersive Infrared Sensing using Narrowband Infrared Emitting Metamaterials. *ACS Photonics*, **8**, 472 (2021).
- [64] W. Li and J. Valentine. Metamaterial Perfect Absorber Based Hot Electron Photodetection. *Nano Letters*, **14**, 3510 (2014).
- [65] J. W. Stewart, J. H. Vella, W. Li, S. H. Fan and M. H. Mikkelsen. Ultrafast pyroelectric photodetection with on-chip spectral filters. *Nature Materials*, **19**, 158 (2020).
- [66] Z. Chen, Y. D. Weng, J. K. Liu, N. Guo, Y. L. Yu and L. Xiao. Dual-band perfect absorber for a mid-infrared photodetector based on a dielectric metal metasurface. *Photonics Research*, **9**, 27 (2021).
- [67] J. W. Stewart, N. C. Wilson and M. H. Mikkelsen. Nanophotonic Engineering: A New Paradigm for Spectrally Sensitive Thermal Photodetectors. *ACS Photonics*, **8**, 71 (2021).
- [68] V. W. Brar, M. C. Sherrott, M. S. Jang, S. Kim, L. Kim, M. Choi, et al. Electronic modulation of infrared radiation in graphene plasmonic resonators. *Nature Communications*, **6**, 7032 (2015).
- [69] Y. Miyoshi, Y. Fukazawa, Y. Amasaka, R. Reckmann, T. Yokoi, K. Ishida, et al. High-speed and on-chip

- graphene blackbody emitters for optical communications by remote heat transfer. *Nature Communications*, **9**, 1279 (2018).
- [70] E. Sakat, L. Wojszwyk, J. P. Hugonin, M. Besbes, C. Sauvan and J. J. Greffet. Enhancing thermal radiation with nanoantennas to create infrared sources with high modulation rates. *Optica*, **5**, 175 (2018).
- [71] Z. Y. Yang, S. Ishii, T. Yokoyama, T. D. Dao, M. G. Sun, P. S. Pankin, et al. Narrowband Wavelength Selective Thermal Emitters by Confined Tamm Plasmon Polaritons. *ACS Photonics*, **4**, 2212 (2017).
- [72] Z. Y. Wang, J. K. Clark, Y. L. Ho, S. Volz, H. Daiguji and J. J. Delaunay. Ultranarrow and Wavelength-Tunable Thermal Emission in a Hybrid Metal-Optical Tamm State Structure. *ACS Photonics*, **7**, 1569 (2020).
- [73] M. Z. He, J. R. Nolen, J. Nordlander, A. Cleri, N. S. McIlwaine, Y. C. Tang, et al. Deterministic inverse design of Tamm plasmon thermal emitters with multi-resonant control. *Nature Materials*, **20**, 1663 (2021).
- [74] Z. Y. Yang, S. Ishii, T. Yokoyama, T. D. Dao, M. G. Sun, T. Nagao, et al. Tamm plasmon selective thermal emitters. *Optics Letters*, **41**, 4453 (2016).
- [75] Z. Y. Yang, S. Ishii, A. T. Doan, S. L. Shinde, T. D. Dao, Y. P. Lo, et al. Narrow-Band Thermal Emitter with Titanium Nitride Thin Film Demonstrating High Temperature Stability. *Advanced Optical Materials*, **8**, 1900982 (2020).
- [76] M. Z. He, J. R. Nolen, J. Nordlander, A. Cleri, G. Y. Lu, T. Arnaud, et al. Coupled Tamm Phonon and Plasmon Polaritons for Designer Planar Multiresonance Absorbers. *Advanced Materials*, **35**, 2209909 (2023).
- [77] C. Chen, G. Wang, Z. Y. Zhang and K. Zhang. Dual narrow-band absorber based on metal-insulator-metal configuration for refractive index sensing. *Optics Letters*, **43**, 3630 (2018).
- [78] D. Costantini, A. Lefebvre, A. L. Coutrot, I. Moldovan-Doyen, J. P. Hugonin, S. Boutami, et al. Plasmonic Metasurface for Directional and Frequency-Selective Thermal Emission. *Physical Review Applied*, **4**, 014023 (2015).
- [79] S. H. Kang, Z. Y. Qian, V. Rajaram, S. D. Caliskan, A. Alu and M. Rinaldi. Ultra-Narrowband Metamaterial Absorbers for High Spectral Resolution Infrared Spectroscopy. *Advanced Optical Materials*, **7**, 1801236 (2019).
- [80] B. Z. Ma, Y. Huang, W. Y. Zha, B. Qin, R. Qin, P. Ghosh, et al. Narrowband diffuse thermal emitter based on surface phonon polaritons. *Nanophotonics*, **11**, 4115 (2022).
- [81] D. Thang Duy, S. Ishii, D. Anh Tung, Y. Wada, A. Ohi, T. Nabatame, et al. An On-Chip Quad-Wavelength Pyroelectric Sensor for Spectroscopic Infrared Sensing. *Advanced Science*, **6**, 1900579 (2019).
- [82] X. Bowei, Z. Wenjie, Z. Junming and L. Linhua. VO₂-based superposed Fabry-Perot multilayer film with a highly enhanced infrared emittance and emittance tunability for spacecraft thermal control. *Optics Express*, **30**, 34314 (2022).
- [83] R. Duggan, Y. Ra'di and A. Alu. Temporally and Spatially Coherent Emission from Thermal Embedded Eigenstates. *ACS Photonics*, **6**, 2949 (2019).
- [84] D. D. Kang, T. Inoue, T. Asano and S. Noda. Electrical Modulation of Narrowband GaN/AlGaIn Quantum-Well Photonic Crystal Thermal Emitters in Mid-Wavelength Infrared. *ACS Photonics*, **6**, 1565 (2019).

- [85] T. Inoue, M. De Zoysa, T. Asano and S. Noda. Realization of dynamic thermal emission control. *Nature Materials*, **13**, 928 (2014).
- [86] X. Liu, Z. Li, Z. Wen, M. Wu, J. Lu, X. Chen, et al. Large-area, lithography-free, narrow-band and highly directional thermal emitter. *Nanoscale*, **11**, 19742 (2019).
- [87] L. X. Zhu and S. H. Fan. Near-complete violation of detailed balance in thermal radiation. *Physical Review B*, **90**, 220301 (2014).
- [88] R. J. Shiue, Y. D. Gao, C. Tan, C. Peng, J. B. Zheng, D. K. Efetov, et al. Thermal radiation control from hot graphene electrons coupled to a photonic crystal nanocavity. *Nature Communications*, **10**, 109 (2019).
- [89] S. McSherry, M. Webb, J. Kaufman, Z. H. Deng, A. Davoodabadi, T. Ma, et al. Nanophotonic control of thermal emission under extreme temperatures in air. *Nature Nanotechnology*, **17**, 1104 (2022).
- [90] T. Wang, P. N. Li, D. N. Chigrin, A. J. Giles, F. J. Bezares, O. J. Glembocki, et al. Phonon-Polaritonic Bowtie Nanoantennas: Controlling Infrared Thermal Radiation at the Nanoscale. *ACS Photonics*, **4**, 1753 (2017).
- [91] A. Howes, J. R. Nolen, J. D. Caldwell and J. Valentine. Near-Unity and Narrowband Thermal Emissivity in Balanced Dielectric Metasurfaces. *Advanced Optical Materials*, **8**, 1901470 (2020).
- [92] G. Y. Lu, C. R. Gubbin, J. R. Nolen, T. Folland, M. J. Tadjer, S. De Liberato, et al. Engineering the Spectral and Spatial Dispersion of Thermal Emission via Polariton-Phonon Strong Coupling. *Nano Letters*, **21**, 1831 (2021).
- [93] J. B. Yu, B. Z. Ma, A. Ouyang, P. Ghosh, H. Luo, A. Pattanayak, et al. Dielectric super-absorbing metasurfaces via PT symmetry breaking. *Optica*, **8**, 1290 (2021).
- [94] M. Makhsiyani, P. Bouchon, J. Jaeck, J. L. Pelouard and R. Haider. Shaping the spatial and spectral emissivity at the diffraction limit. *Applied Physics Letters*, **107**, 251103 (2015).
- [95] B. A. Liu, W. Gong, B. W. Yu, P. F. Li and S. Shen. Perfect Thermal Emission by Nanoscale Transmission Line Resonators. *Nano Letters*, **17**, 666 (2017).
- [96] X. T. Kong, L. K. Khorashad, Z. M. Wang and A. O. Govorov. Photothermal Circular Dichroism Induced by Plasmon Resonances in Chiral Metamaterial Absorbers and Bolometers. *Nano Letters*, **18**, 2001 (2018).
- [97] A. Nguyen, J. P. Hugonin, A. L. Coutrot, E. Garcia-Caurel, B. Vest and J. J. Greffet. Large circular dichroism in the emission from an incandescent metasurface. *Optica*, **10**, 232 (2023).
- [98] J. J. Greffet, R. Carminati, K. Joulain, J. P. Mulet, S. P. Mainguy and Y. Chen. Coherent emission of light by thermal sources. *Nature*, **416**, 61 (2002).
- [99] S. Inampudi and H. Mosallaei. Tunable wideband-directive thermal emission from SiC surface using bundled graphene sheets. *Physical Review B*, **96**, 125407 (2017).
- [100] J. H. Park, S. E. Han, P. Nagpal and D. J. Norris. Observation of Thermal Beaming from Tungsten and Molybdenum Bull's Eyes. *ACS Photonics*, **3**, 494 (2016).
- [101] M. Zhou, E. Khoram, D. J. Liu, B. Y. Liu, S. H. Fan, M. L. Povinelli, et al. Self-Focused Thermal Emission and Holography Realized by Mesoscopic Thermal Emitters. *ACS Photonics*, **8**, 497 (2021).
- [102] J. Y. Li, Z. Li, X. Liu, S. Maslovski and S. Shen. Active control of thermal emission by graphene-nanowire

- coupled plasmonic metasurfaces. *Physical Review B*, **106**, 115416 (2022).
- [103] O. Ilic, M. Jablan, J. D. Joannopoulos, I. Celanovic, H. Buljan and M. Soljagic. Near-field thermal radiation transfer controlled by plasmons in graphene. *Physical Review B*, **85**, 155422 (2012).
- [104] J. Yang, W. Du, Y. S. Su, Y. Fu, S. X. Gong, S. L. He, et al. Observing of the super-Planckian near-field thermal radiation between graphene sheets. *Nature Communications*, **9**, 4033 (2018).
- [105] F. Luo, Y. S. Fan, G. Peng, S. G. Xu, Y. P. Yang, K. Yuan, et al. Graphene Thermal Emitter with Enhanced Joule Heating and Localized Light Emission in Air. *ACS Photonics*, **6**, 2117 (2019).
- [106] R. Z. Sun, P. H. Zhou, W. S. Ai, Y. N. Liu, Y. Li, R. M. Jiang, et al. Broadband switching of mid-infrared atmospheric windows by VO₂-based thermal emitter. *Optics Express*, **27**, 11537 (2019).
- [107] H. Kocer, S. Butun, B. Banar, K. Wang, S. Tongay, J. Q. Wu, et al. Thermal tuning of infrared resonant absorbers based on hybrid gold-VO₂ nanostructures. *Applied Physics Letters*, **106**, 161104 (2015).
- [108] F. Z. Shu, L. H. Zhang, J. N. Wang, R. W. Peng, R. H. Fan, D. X. Qi, et al. Dynamically tunable bowtie nanoantennas based on the phase transition of vanadium dioxide. *Optics Letters*, **44**, 2752 (2019).
- [109] Z. Q. Xu, Q. Li, K. K. Du, S. W. Long, Y. Yang, X. Cao, et al. Spatially Resolved Dynamically Reconfigurable Multilevel Control of Thermal Emission. *Laser & Photonics Reviews*, **14**, 1900162 (2020).
- [110] Y. Qu, Q. Li, L. Cai, M. Pan, P. Ghosh, K. Du, et al. Thermal camouflage based on the phasechanging material GST. *Light:Science & Applications*, **7**, 209 (2018).
- [111] K. Du, L. Cai, H. Luo, Y. Lu, J. Tian, Y. Qu, et al. Wavelength-tunable mid-infrared thermal emitters with a non-volatile phase changing material. *Nanoscale*, **10**, 4415 (2018).
- [112] Y. Qu, Q. Li, K. Du, L. Cai, J. Lu and M. Qiu. Dynamic Thermal Emission Control Based on Ultrathin Plasmonic Metamaterials Including Phase-Changing Material GST. *Laser & Photonics Reviews*, **11**, 1700091 (2017).
- [113] Y. Kim, C. Kim and M. Lee. Parallel Laser Printing of a Thermal Emission Pattern in a Phase-Change Thin Film Cavity for Infrared Camouflage and Security. *Laser & Photonics Reviews*, **16**, 2100545 (2022).
- [114] X. Jiang, Z. Zhang, H. Ma, T. Du, M. Luo, D. Liu, et al. Tunable mid-infrared selective emitter based on inverse design metasurface for infrared stealth with thermal management. *Optics Express*, **30**, 18250 (2022).
- [115] J. Park, J. H. Kang, X. G. Liu, S. J. Maddox, K. C. Tang, P. C. McIntyre, et al. Dynamic thermal emission control with InAs-based plasmonic metasurfaces. *Science Advances*, **4**, eaat3163 (2018).
- [116] D. G. Baranov, Y. Z. Xiao, I. A. Nechepurenko, A. Krasnok, A. Alu and M. A. Kats. Nanophotonic engineering of far-field thermal emitters. *Nature Materials*, **18**, 920 (2019).
- [117] S. Abdollahramezani, O. Hemmatyar, M. Taghinejad, H. Taghinejad, A. Krasnok, A. A. Eftekhar, et al. Electrically driven reprogrammable phase-change metasurface reaching 80% efficiency. *Nature Communications*, **13**, 1696 (2022).
- [118] C. Khandekar and Z. Jacob. Circularly Polarized Thermal Radiation From Nonequilibrium Coupled Antennas. *Physical Review Applied*, **12**, 014053 (2019).

- [119] W. Streyer, K. Feng, Y. Zhong, A. J. Hoffman and D. Wasserman. Selective absorbers and thermal emitters for far-infrared wavelengths. *Applied Physics Letters*, **107**, 081105 (2015).
- [120] X. Liu and W. J. Padilla. Reconfigurable room temperature metamaterial infrared emitter. *Optica*, **4**, 430 (2017).
- [121] A. Krishna, J. M. Kim, J. Leem, M. C. Wang, S. Nam and J. Lee. Ultraviolet to Mid-Infrared Emissivity Control by Mechanically Reconfigurable Graphene. *Nano Letters*, **19**, 5086 (2019).
- [122] H. M. Fang, W. R. Xie, X. Q. Li, K. B. Fan, Y. T. Lai, B. W. Sun, et al. A Triple-Mode Midinfrared Modulator for Radiative Heat Management of Objects with Various Emissivity. *Nano Letters*, **21**, 4106 (2021).
- [123] Z. J. Coppens and J. G. Valentine. Spatial and Temporal Modulation of Thermal Emission. *Advanced Materials*, **29**, 1701275 (2017).
- [124] W. M. Wilson, J. W. Stewart and M. H. Mikkelsen. Surpassing Single Line Width Active Tuning with Photochromic Molecules Coupled to Plasmonic Nanoantennas. *Nano Letters*, **18**, 853 (2018).
- [125] C. Kim, Y. Kim and M. Lee. Laser-Induced Tuning and Spatial Control of the Emissivity of Phase-Changing Ge₂Sb₂Te₅ Emitter for Thermal Camouflage. *Advanced Materials Technologies*, **7**, 2101349 (2022).
- [126] D. D. Yuan, J. Li, J. X. Huang, M. Wang, S. L. Xu and X. W. Wang. Large-Scale Laser Nanopatterning of Multiband Tunable Mid-Infrared Metasurface Absorber. *Advanced Optical Materials*, **10**, 2200939 (2022).
- [127] Z. Q. Xu, H. Luo, H. Z. Zhu, Y. Hong, W. D. Shen, J. P. Ding, et al. Nonvolatile Optically Reconfigurable Radiative Metasurface with Visible Tunability for Anticounterfeiting. *Nano Letters*, **21**, 5269 (2021).
- [128] L. Conrads, N. Honne, A. Ulm, A. Hessler, R. Schmitt, M. Wuttig, et al. Reconfigurable and Polarization-Dependent Grating Absorber for Large-Area Emissivity Control Based on the Plasmonic Phase-Change Material In₃SbTe₂. *Advanced Optical Materials*, **11**, 2202696 (2023).
- [129] Z. Y. Wang, J. K. Clark, Y. L. Ho, B. Vilquin, H. Daiguji and J. J. Delaunay. Narrowband Thermal Emission Realized through the Coupling of Cavity and Tamm Plasmon Resonances. *ACS Photonics*, **5**, 2446 (2018).
- [130] A. Lochbaum, A. Dorodnyy, U. Koch, S. M. Koepfli, S. Volk, Y. Fedoryshyn, et al. Compact Mid-Infrared Gas Sensing Enabled by an All-Metamaterial Design. *Nano Letters*, **20**, 4169 (2020).
- [131] S. Enoch, J. J. Simon, L. Escoubas, Z. Elalmy, F. Lemarquis, P. Torchio, et al. Simple layer-by-layer photonic crystal for the control of thermal emission. *Applied Physics Letters*, **86**, 261101 (2005).
- [132] C. M. Wang and D. P. Tsai. Lambertian thermal emitter based on plasmonic enhanced absorption. *Optics Express*, **24**, 18382 (2016).
- [133] C. Shi, N. H. Mahlmeister, I. J. Luxmoore and G. R. Nash. Metamaterial-based graphene thermal emitter. *Nano Research*, **11**, 3567 (2018).
- [134] L. Wojszwyk, A. Nguyen, A. L. Coutrot, C. Zhang, B. Vest and J. J. Greffet. An incandescent metasurface for quasimonochromatic polarized mid-wave infrared emission modulated beyond 10MHz. *Nature Communications*, **12**, 1492 (2021).
- [135] F. B. Barho, F. Gonzalez-Posada, M. Bomers, A. Mezy, L. Cerutti and T. Taliercio. Surface-Enhanced

- Thermal Emission Spectroscopy with Perfect Absorber Metasurfaces. *ACS Photonics*, **6**, 1506 (2019).
- [136] K. Nakagawa, Y. Shimura, Y. Fukazawa, R. Nishizaki, S. Matano, S. Oya, et al. Microemitter-Based IR Spectroscopy and Imaging with MultilayerGraphene Thermal Emission. *Nano Letters*, **22**, 3236 (2022).
- [137] N. X. Li, H. Y. Yuan, L. F. Xu, Y. Q. Zeng, B. Qiang, Q. J. Wang, et al. Tailorable infrared emission of microelectromechanical system-based thermal emitters with NiO films for gas sensing. *Optics Express*, **29**, 19084 (2021).
- [138] H. Zhou, X. D. Hui, D. X. Li, D. L. Hu, X. Chen, X. M. He, et al. Metal-Organic Framework-Surface-Enhanced Infrared Absorption Platform Enables Simultaneous On-Chip Sensing of Greenhouse Gases. *Advanced Science*, **7**, 2001173 (2020).
- [139] X. L. Miao, T. S. Luk and P. Q. Liu. Liquid-Metal-Based Nanophotonic Structures for High-Performance SEIRA Sensing. *Advanced Materials*, **34**, 2107950 (2022).
- [140] J. K. Xu, Z. H. Ren, B. W. Dong, X. M. Liu, C. X. Wang, Y. H. Tian, et al. Nanometer-Scale Heterogeneous Interfacial Sapphire Wafer Bonding for Enabling Plasmonic-Enhanced Nanofluidic Mid-Infrared Spectroscopy. *ACS Nano*, **14**, 12159 (2020).
- [141] M. Najem, F. Carcenac, T. Taliercio and F. Gonzalez-Posada. Aluminum Bowties for Plasmonic-Enhanced Infrared Sensing. *Advanced Optical Materials*, **10**, 2201025 (2022).
- [142] Y. B. Zhu, Z. Y. Li, Z. Hao, C. Dimarco, P. Maturavongsadit, Y. F. Hao, et al. Optical conductivity-based ultrasensitive mid-infrared biosensing on a hybrid metasurface. *Light: Science & Applications*, **7**, 67 (2018).
- [143] X. D. Hui, C. Yang, D. X. Li, X. M. He, H. Huang, H. Zhou, et al. Infrared Plasmonic Biosensor with Tetrahedral DNA Nanostructure as Carriers for Label-Free and Ultrasensitive Detection of miR-155. *Advanced Science*, **8**, 2100583 (2021).
- [144] A. Aigner, A. Tittl, J. Wang, T. Weber, Y. Kivshar, S. A. Maier, et al. Plasmonic bound states in the continuum to tailor light-matter coupling. *Science Advances*, **8**, eadd4816 (2022).
- [145] A. Tittl, A. Leitis, M. K. Liu, F. Yesilkoy, D. Y. Choi, D. N. Neshev, et al. Imaging-based molecular barcoding with pixelated dielectric metasurfaces. *Science*, **360**, 1105 (2018).
- [146] A. Leitis, A. Tittl, M. K. Liu, B. H. Lee, M. B. Gu, Y. S. Kivshar, et al. Angle-multiplexed all-dielectric metasurfaces for broadband molecular fingerprint retrieval. *Science Advances*, **5**, eaaw2871 (2019).
- [147] A. Leitis, M. L. Tseng, A. John-Herpin, Y. S. Kivshar and H. Altug. Wafer-Scale Functional Metasurfaces for Mid-Infrared Photonics and Biosensing. *Advanced Materials*, **33**, 2102232 (2021).
- [148] G. Bakan, S. Ayas, M. Serhatlioglu, C. Elbuken and A. Dana. Invisible Thin-Film Patterns with Strong Infrared Emission as an Optical Security Feature. *Advanced Optical Materials*, **6**, 1800613 (2018).
- [149] W. Li, Y. Shi, Z. Chen and S. H. Fan. Photonic thermal management of coloured objects. *Nature Communications*, **9**, 4240 (2018).
- [150] W. L. Jin, W. Li, C. Khandekar, M. Orenstein and S. H. Fan. Laser Cooling Assisted Thermal Management of Lightsails. *ACS Photonics*, **9**, 3384 (2022).

- [151] C. J. Lin, J. Hur, C. Y. H. Chao, G. Z. Liu, S. H. Yao, W. H. Li, et al. All-weather thermochromic windows for synchronous solar and thermal radiation regulation. *Science Advances*, **8**, eabn7359 (2022).
- [152] H. Luo, Y. N. Zhu, Z. Q. Xu, Y. Hong, P. T. Ghosh, S. Kaur, et al. Outdoor Personal Thermal Management with Simultaneous Electricity Generation. *Nano Letters*, **21**, 3879 (2021).
- [153] L. Li, W. D. Liu, Q. F. Liu and Z. G. Chen. Multifunctional Wearable Thermoelectrics for Personal Thermal Management. *Advanced Functional Materials*, **32**, 2200548 (2022).
- [154] L. Fei, Z. Y. Zhang, Y. S. Tan, T. Ye, D. F. Dong, Y. J. Yin, et al. Efficient and Robust Molecular Solar Thermal Fabric for Personal Thermal Management. *Advanced Materials*, **35**, 2209768 (2023).
- [155] G. Bakan, S. Ayas, M. Serhatlioglu, A. Dana and C. Elbuken. Reversible decryption of covert nanometer-thick patterns in modular metamaterials. *Optics Letters*, **44**, 4507 (2019).

第二章 表面热辐射调控的研究方法

2.1 理论分析方法

2.1.1 黑体辐射

黑体辐射特性遵循普朗克公式，维恩位移定律以及斯蒂芬-玻尔兹曼定律。普朗克公式揭示了黑体辐射的基本规律，在给定热平衡温度 T 的条件下，可以计算得出黑体随波长变化的辐射光谱，如图 2.1 所示：

$$M_{bb} = \frac{2\pi hc^2}{\lambda^5} \cdot \frac{1}{e^{hc/\lambda k_B T} - 1} \quad (2.1)$$

其中， λ 代表波长， c 代表光速， $h = 6.63 \times 10^{-34} \text{ J} \cdot \text{s}$ 是普朗克常数， $k_B = 1.38 \times 10^{-23} \text{ J/K}$ 为玻尔兹曼常数。

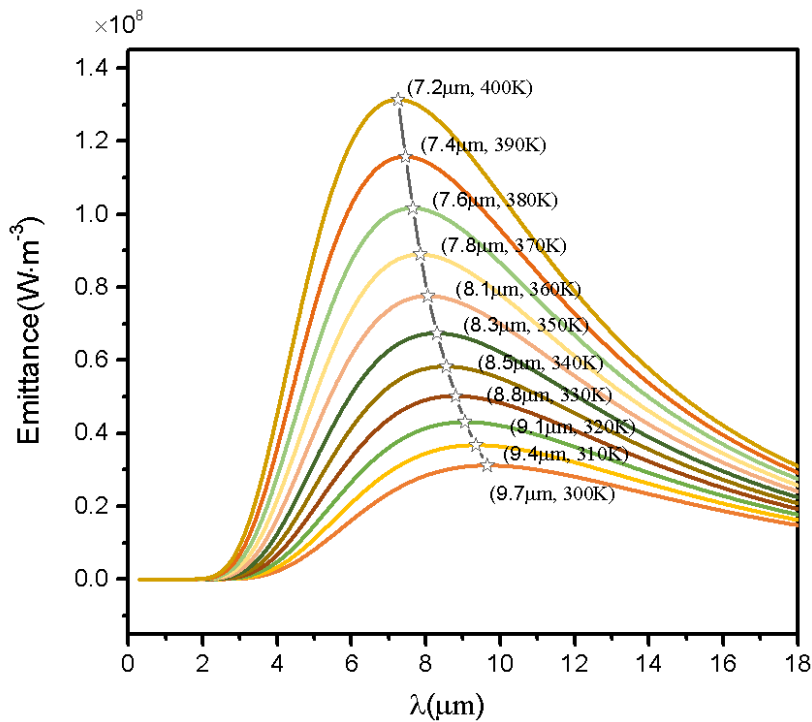


图 2.1 随温度变化的黑体辐射出射度；随温度变化的辐射峰值采用灰色星号标出。

从图中可以看出，黑体辐射出射度随着温度的增加，其峰值逐渐增大并逐渐向短波偏移，也就意味着随着温度的升高，黑体辐射中短波成分比例增大。具体的，维恩位移定律可以用来描述黑体辐射的峰值 λ_m 和温度 T 之间的关系： $\lambda_m T = b, b=2897.756 \mu\text{m} \cdot$

K 为常数。黑体辐射光只与温度有关，具有宽带，全向和非极化，非相干的特点。斯蒂芬-玻尔兹曼定律则给出了黑体辐射的热辐射能量与温度之间的关系：

$$I_{bb} = \int_0^{\infty} M_{bb}(\lambda, T) d\lambda = \int_0^{\infty} \frac{2\pi hc^2}{\lambda^5} \cdot \frac{1}{e^{hc/\lambda K_B T} - 1} d\lambda = \left(\frac{2\pi^5 K_B^4}{15c^2 h^3} \right) T^4 = \sigma T^4 \quad (2.2)$$

$\sigma = 5.67051 \times 10^{-8} W/(m^2 \cdot K^4)$ 是斯蒂芬-玻尔兹曼常数。对于具有一定辐射率 $\varepsilon(\lambda, T)$ 的非黑体物体，其热辐射能量可由下式进行计算：

$$I_{bb} = \int_0^{\infty} \varepsilon(\lambda, T) M_{bb}(\lambda, T) d\lambda = \int_0^{\infty} \varepsilon(\lambda, T) \frac{2\pi hc^2}{\lambda^5} \cdot \frac{1}{e^{hc/\lambda K_B T} - 1} d\lambda \quad (2.3)$$

一般我们将光谱辐射率 $\varepsilon(\lambda, T, \theta, \varphi)$ 定义为在温度为 T 、波长为 λ ，方向角度在 θ, φ 处的实际物体的辐射与黑体辐射的比值。但在大多数实际情况下，热辐射是非定向热辐射，因此上式中，我们可以将表面辐射率简化为 $\varepsilon(\lambda, T)$ 。

2.1.2 表面热辐射的调控方法

随着纳米光子学的发展，具有亚波长尺度的微纳结构设计打破了传统热辐射研究的困境。通过微纳结构的人为设计，如等离激元超表面、介质超表面、FP腔和 Tamm 等离激元等结构实现波长选择，具有极化性，定向的相干辐射光已成为可能。对于超表面热辐射调控，周期性谐振单元起到了关键作用。根据耦合模式理论[1-4]，对于一个单模谐振器耦合到单个外部入射波通道的情况，该通道的吸收光谱以及对应的辐射光谱具有洛伦兹线型。其光谱辐射率 ε 和吸收率 A 为：

$$\varepsilon = A = \frac{4\gamma_1\gamma_2}{(\omega - \omega_0)^2 + (\gamma_1 + \gamma_2)^2} \quad (2.4)$$

其中 ω_0 是谐振频率， γ_1 是谐振器的材料损耗带来的内在损耗项， γ_2 是来自于共振与输出通道的耦合产生的外部泄漏项。从这个公式中，我们可以看到，在内在损耗项与外部泄漏项相等时 ($\gamma_1 = \gamma_2$)，吸收率与辐射率在谐振频率 ω_0 处达到峰值 1。我们将 $\gamma_1 = \gamma_2$ 这个条件称之为临界耦合条件，此时共振线宽为 $2\gamma_1$ 。通过调控结构尺寸参数可以逐渐靠近并达到临界耦合点，总的来说，式 (2.4) 给出了共振调控吸收，辐射光谱的依据。

另外，对于 FP 腔和 Tamm 等离激元等多层膜结构，我们可以通过转移矩阵或多层

膜干涉理论对其辐射谱和吸收谱进行分析与计算。接下来我们对两种方法进行分别介绍：

1. 转移矩阵方法（TMM）[5-8]：此理论方法常被用来研究多层膜结构中的光传播。根据麦克斯韦方程组和电磁场的边界条件，多层膜结构的传输矩阵方程可以描述为：

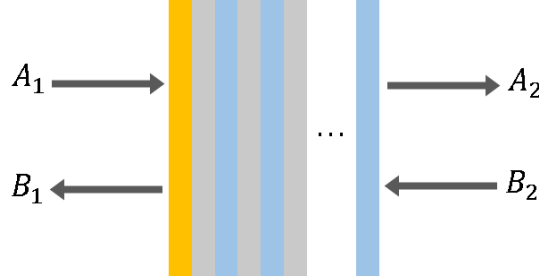


图 2.2 转移矩阵计算示意图。

$$\begin{bmatrix} A_1 \\ B_1 \end{bmatrix} = M_1 P_1 M_2 P_2 \cdots M_m \begin{bmatrix} A_2 \\ B_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} D_{11} & D_{12} \\ D_{21} & D_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_2 \\ B_2 \end{bmatrix} \quad (2.5)$$

$$M_j = \frac{1}{2n_{j-1}\cos\theta_{j-1}} \begin{pmatrix} n_{j-1}\cos\theta_j + n_j\cos\theta_{j-1} & n_{j-1}\cos\theta_j - n_j\cos\theta_{j-1} \\ n_{j-1}\cos\theta_j - n_j\cos\theta_{j-1} & n_{j-1}\cos\theta_j + n_j\cos\theta_{j-1} \end{pmatrix} \quad (2.6)$$

$$P_j = \begin{pmatrix} \exp(-i2\pi d_j n_j \cos\theta_j / \lambda) & 0 \\ 0 & \exp(i2\pi d_j n_j \cos\theta_j / \lambda) \end{pmatrix} \quad (2.7)$$

如图 2.2 所示， A_1 和 B_1 分别代表多层膜结构顶部的入射和反射的光场， A_2 和 B_2 分别代表多层膜结构底部的入射和反射的光场。对于 TM 极化的入射光， M_j ($j=1,2, \dots,m$) 和 P_j ($j=1,2, \dots,m$) 为多层膜结构的传输矩阵。该结构的透射率为 $T = \left| \frac{1}{D_{11}} \right|^2$ ，反射率为 $R = \left| \frac{D_{21}}{D_{11}} \right|^2$ ，那么对应的吸收率 $A = 1 - T - R$ 。通过公式可以看出，多层膜结构中不同材料的选取以及膜厚的选择可以对样品辐射谱进行灵活的光谱调控。

2. 多层膜干涉理论[9-12]：此理论常用于分析 FP 腔中光的共振模式，如图 2.3 所示。根据光的传播，FP 腔的反射和透射系数， r_{to} 和 t_{to} 的计算公式如下：

$$r_{to} = r_{12} + \frac{t_{12}t_{21}r_{23}e^{-2i\varphi}}{1-r_{21}r_{23}e^{-2i\varphi}} \quad (2.8)$$

$$t_{to} = \frac{t_{12}t_{21}e^{-i\varphi}}{1-r_{21}r_{23}e^{-2i\varphi}} \quad (2.9)$$

其中， $r_{12}(t_{12})$ ， $r_{21}(t_{21})$ 和 $r_{23}(t_{23})$ 均为界面上的反射（透射）系数，可由菲涅尔公式得到。其中 $\varphi = nkdsin\theta'$ 代表介质中的传播相位， d 和 n 分别是中间层的厚度与折射率， k 为真空下的波矢。根据公式，可以看出通过对传播相位 φ 以及各界面透反射系数的调控，可以直接实现对透反射谱以及吸收，辐射谱的光谱调控。

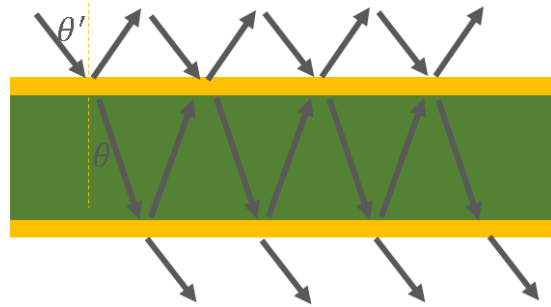


图 2.3 光在 FP 腔中的传播示意图。

2.2 实验加工与表征

2.2.1 微纳样品加工技术

随着微加工技术的发展与进步，目前已有成熟的工艺可以制造人工设计的亚波长周期性结构，即人工超材料和超表面。根据加工需求，有多种微纳加工工艺可供选择，比如：光刻技术，EBL（电子束光刻），FIB（聚焦离子束刻蚀）和激光加工技术。另外，镀膜工艺也包含多种，如：电子束蒸镀和磁控溅射金属镀膜工艺，PECVD（等离子体增强化学气相沉积）介质，氧化物镀膜工艺等。接下来对文中所用到的加工工艺进行详细介绍：

金属薄膜我们采用 KJL PVD75 型电子束蒸发机进行蒸镀，制备原理是：利用电子束将所要蒸镀的材料加热到熔化温度并使其蒸发，在真空中到达并附着在样品表面。当对金属薄膜致密性要求较高时，可以选择 KJL PVD75 型磁控溅射机进行薄膜制备。具体原理是：利用直流或射频技术在真空中形成等离子体轰击靶材表面，溅射出的靶材粒子到达并附着在样品表面。

介质薄膜我们通过 OXFORD 100 型 PECVD 进行制备，具体原理是：射频电源在局部形成等离子体，等离子体促进含有薄膜成分的气体电离而产生系列化学反应，在样品表面形成固态薄膜。此系统适用于生长氧化硅、氮化硅、非晶硅和非晶碳化硅等薄膜。

电子束刻蚀（EBL）是一种无需使用掩膜的刻蚀技术，适用于加工微米及纳米尺度的微观结构。加工流程包括：EBL 加工预处理，对衬底片进行清洗；在衬底片上旋涂一层电子束敏感物质（光刻胶）；电子束曝光；使用显影剂溶解掉上述暴露于电子束下的光刻胶；接着，沉积目标材料后，再进行剥离；或者通过刻蚀后，再进行洗胶。

FIB 双束（电子束/离子束）系统：包括聚焦离子束和扫描电子显微镜。聚焦离子束是将一束离子聚焦到纳米量级并对样品表面进行扫描加工，离子束通过对样品表面进行轰击，可以实现高精度微纳结构的无掩模加工。扫描电镜则是用聚焦电子束扫描样品表面，电子束和样品表面作用后能产生二次电子和背散射电子，再通过探测器收集二次电子或背散射电子进行成像，可以对加工后的区域进行表征。双束系统能实现离子束对样品进行加工，同时通过电子束进行实时成像。



图 2.4 (a) KJL PVD75 型电子束蒸发机和磁控溅射机仪器示意图；(b) OXFORD 100 型 PECVD 设备示意图；(c) 电子束曝光设备示意图；(d) FIB 双束电镜设备示意图。

2.2.2 微纳样品表征方法

我们采用傅里叶红外光谱仪 FTIR 对红外热辐射的光谱特性进行表征。FTIR 主要由光源和迈克尔逊干涉仪组成。由连续波长光源发出的光经过干涉仪转变成干涉光，遇到

样品后由于红外吸收产生干涉图，通过傅里叶变换可将干涉图转换为吸收谱或透射谱等随波长变化的光谱图。FTIR 的优点是分辨率高，灵敏度高和较宽的光谱范围。

文中使用的 FTIR 系统为 Bruker Vertex 70 与 Hyberion 2000 显微镜的组合，可以对微区进行区域选择测量也适用于大面积测量。光源信号经过样品的反射/透射后，其信号由配制有液氮冷却的 HgCdTe (MCT) 探测器的红外显微镜收集。测量的光谱可通过归一化处理，得到透射谱 (T) 或反射谱 (R)，吸收谱可通过 $A=1-R-T$ 得到。另外，加热后的样品也可以作为辐射源，在 FTIR 收集辐射信号后通过黑体辐射谱进行归一化，可以得到样品的热辐射谱。

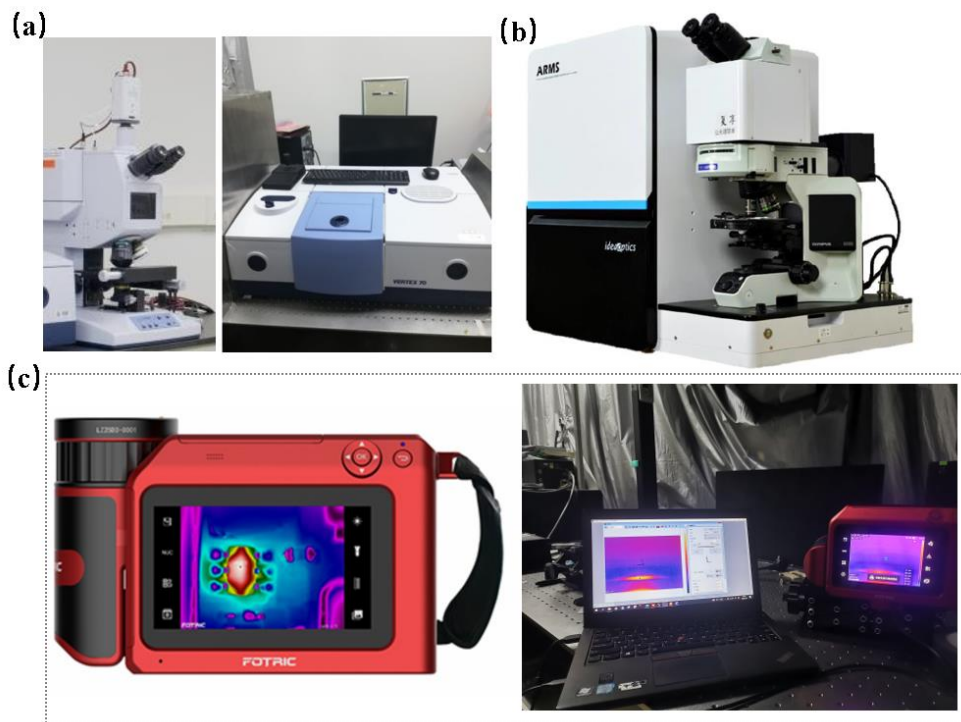


图 2.5 (a) 傅里叶红外光谱仪 FTIR 和红外显微镜 Hyberion 2000 的设备示意图；(b) ARM 显微角分辨光谱仪；(c) 长波热像仪 Fotric 设备示意图。

我们采用 ARM 显微角分辨光谱仪对样品在可见光至近红外范围的光谱特性进行表征。此设备主要由两部分组成：显微镜以及角分辨光路机箱。显微镜内置 100W 卤素灯泡，提供反射光路的科勒 (Kohler) 照明。确认显微镜调至最佳状态，通过 CCD 观测到样品区域后选择需要测量的区域，再进行角分辨测量。同样的，测量的光谱可通过归一化处理，以此得到透射谱 (T) 或反射谱 (R)。

针对所设计结构的红外热辐射性质，可以通过热像仪来进行表征。红外光根据不同的应用领域可划分为四个波段，近红外线波段：0.75-3 μm ，中红外线波段：3-6 μm ，远

红外线波段：6-15 μm ，极远红外线波段：15-1000 μm 。因此，针对不同波段的红外信号进行探测也要选择不同工作波长的热像仪。目前商业领域中常用的热成像仪有 7.6-14 μm 的长波热像仪和 3-5 μm 的短波热像仪以及一些针对特殊应用的热像仪。热像仪要做这样的红外波段划分是由于有大气窗口的存在。太阳辐射通过大气层时，未被反射、吸收和散射的那些透射率高的光辐射波段范围，我们称之为“大气窗口”。太阳辐射透过大气窗口传输到地球上，地球上的生命才会存在。红外波段的大气窗口包括 1-3 μm ，3-5 μm 和 7-14 μm 范围，在这些波段内使用红外热像技术测量的效果也是最明显的。本文中我们采用的是 Fortic 长波热像仪 (7.6-14 μm)，其对应波段内的大气透明窗口透射谱如图 2.6 所示。红外热像仪可将物体辐射出的红外能量转变为可以分析的热像图，通常情况下，热像图上的温度高低代表了被测物体表面温度的高低。热像仪接收的红外辐射包括被测物体本身发出的辐射，环境辐射的反射以及透射能量，然而只有被测物体自身发出的热辐射能量才能真实反应目标表面的真实温度。所以热像图中的温度并不是被测物体的真实温度，我们在后续论文中称之为“辐射温度”。根据辐射温度反映出的热辐射能量大小，我们可以对样品的红外特性进行表征与分析。

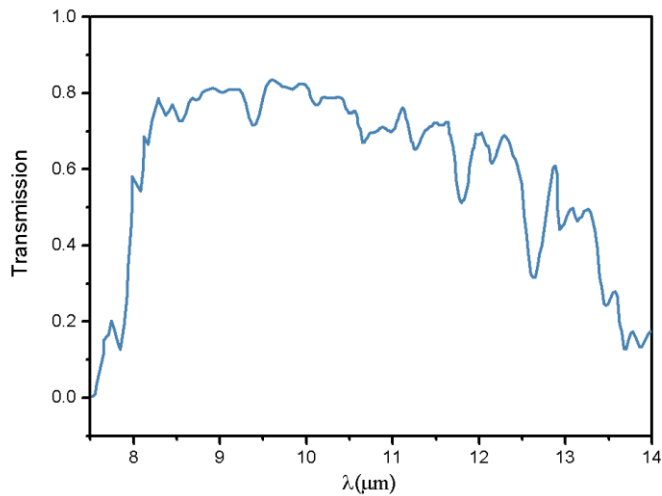


图 2.6 长波红外波段 7.6-14 μm 内的大气透明窗口。

热像仪能探测到的热辐射信号包括三种：1. 来自周围的辐射($Pb_{Surrounding}$)，经由物体表面反射到相机中；2. 物体本身的辐射(Pb_{Sample})；3. 大气的辐射($Pb_{Atmosphere}$)。因此，在 7.6-14 μm 长波红外范围内，热像仪接收的总辐射能量为 [35]：

$$Pb_{TO} = rtPb_{Surrounding} + \epsilon tPb_{Sample} + (1 - t)Pb_{Atmosphere} \quad (2.10)$$

其中， r 表示物体表面对周围辐射的反射率， t 表示大气窗口的透射率， ϵ 代表待测物体的

辐射率。当物体升温后，随着温度的上升， Pb_{Sample} 逐渐占领主导地位， $Pb_{Surrounding}$ 和 $Pb_{Atmosphere}$ 相对来说可以忽略。此时， $Pb_{TO} \approx Pb_{Sample}$ ， Pb_{TO} 被热像仪探测到，转换为对应的辐射温度 $T_{emission}$ ，这也就意味着待测物体的热辐射能量 Pb_{Sample} 与 $T_{emission}$ 成正比，我们可以通过分析热像图中的辐射温度来判断待测物体的热辐射强度。

2.3 本章小结

本章主要介绍了红外热辐射调控的研究基础，研究方法以及实验样品的加工与表征。首先，我们介绍了热辐射的研究基础，黑体辐射以及更进一步的对红外热辐射的调控方法。基于光学谐振模型，转移矩阵以及多重干涉理论，我们可以遵循其调控原理对微纳结构进行合理设计以达到对热辐射特性的精准调控。接下来，我们介绍了本文实验中涉及到的加工工艺以及对加工样品的表征流程，包括：镀膜工艺（电子束蒸镀，磁控溅射，PECVD）和微纳结构加工工艺（光刻，EBL，FIB）以及样品表征手段（光谱表征：红外傅里叶光谱仪 FTIR，角分辨光谱仪 ARM；红外热辐射特性表征：长波热像仪；）。

参考文献

- [1] S. Fan, W. Suh and J. D. Joannopoulos. Temporal coupled-mode theory for the Fano resonance in optical resonators. *J. Opt. Soc. Am. A*, **20**, 569 (2003).
- [2] Y. Guo and S. Fan. Narrowband thermal emission from a uniform tungsten surface critically coupled with a photonic crystal guided resonance. *Optics Express*, **24**, 29896 (2016).
- [3] T. Inoue, M. De Zoysa, T. Asano and S. Noda. High-Q mid-infrared thermal emitters operating with high power-utilization efficiency. *Optics Express*, **24**, 15101 (2016).
- [4] J. R. Piper and S. Fan. Total Absorption in a Graphene Monolayer in the Optical Regime by Critical Coupling with a Photonic Crystal Guided Resonance. *ACS Photonics*, **1**, 347 (2014).
- [5] M. Kaliteevski, I. Iorsh, S. Brand, R. A. Abram, J. M. Chamberlain, A. V. Kavokin, et al. Tamm plasmon-polaritons: Possible electromagnetic states at the interface of a metal and a dielectric Bragg mirror. *Physical Review B*, **76**, 165415 (2007).
- [6] H. Lu, X. Gan, B. Jia, D. Mao and J. Zhao. Tunable high-efficiency light absorption of monolayer graphene via Tamm plasmon polaritons. *Optics Letters*, **41**, 4743 (2016).
- [7] H. Lu, X. Gan, D. Mao, Y. Fan, D. Yang and J. Zhao. Nearly perfect absorption of light in monolayer molybdenum disulfide supported by multilayer structures. *Optics Express*, **25**, 21630 (2017).
- [8] A. Berkhout and A. F. Koenderink. A simple transfer-matrix model for metasurface multilayer systems. *Nanophotonics*, **9**, 3985 (2020).
- [9] H. T. Chen, J. F. Zhou, J. F. O'Hara, F. Chen, A. K. Azad and A. J. Taylor. Antireflection Coating Using Metamaterials and Identification of Its Mechanism. *Physical Review Letters*, **105**, 073901 (2010).
- [10] L. L. Sanchez-Soto, J. J. Monzon and G. Leuchs. The many facets of the Fabry-Perot. *European Journal of Physics*, **37**, 064001 (2016).
- [11] H. T. Chen. Interference theory of metamaterial perfect absorbers. *Optics Express*, **20**, 7165 (2012).
- [12] A. Berkhout and A. F. Koenderink. Perfect Absorption and Phase Singularities in Plasmon Antenna Array Etalons. *ACS Photonics*, **6**, 2917 (2019).

第三章 基于超微腔阵列的热辐射芯片

可波长选择的小型集成化红外热辐射器件在微区生物化学传感、热光伏和热电路等各个研究领域具有重要的研究价值。本章节从实验与理论两方面，展示了一种基于超微腔阵列实现的，具有高空间分辨率的集成热辐射芯片。此芯片设计可实现覆盖红外双波段（7-9 μm , 10-14 μm ）的多波长热辐射阵列，可用作小型集成化的红外光源。此超微腔阵列由纳米孔超表面阵列与 FP 腔组合而成，通过不同尺寸的纳米孔阵列对 FP 腔模式的灵活调控，我们可实现对芯片中各个超微腔的辐射波长的连续调控。得益于金属纳米孔的共振模式与 FP 腔模式之间的相互作用，超微腔结构可以实现相较于仅基于金属超表面的热辐射器件更高的 Q 值。此外，基于纳米孔超表面的极化选择特性，我们还在实验上实现了极化，波长和空间上的多路复用超微腔热辐射和极化选择热成像。基于以上所述优势，此热辐射芯片将来可用于微区有机分子传感和微区热成像研究。

3.1 引言

中红外光源在光谱学[1-3]，红外分子探测[4, 5]等领域中起着至关重要的作用。目前常用的半导体中红外光源主要包括两种：发光二极管 (LEDs) [6, 7]和量子级联激光器 (MIR-QCLs) [8, 9]，但是它们分别具有辐射效率低和复杂设备的成本较昂贵的缺点。与上述两种光源相比，还有一种较为简单的白炽灯红外辐射光源，价格便宜，但它们发出的辐射光是宽带的，大部分辐射能量会流入不需要的辐射波段内，导致其工作效率很低。因此，可用作高效廉价的红外辐射光源的可波长选择热辐射器件的研究是十分有意义的。

目前，红外波长选择热辐射器作为低成本的红红外光源已被重点研究，为大量的红外应用，如生物化学传感[10, 11]、热成像[12-15]、热光伏[16, 17]、辐射冷却[18-21]、超普朗克近场热辐射[22]和光谱学表征[23, 24]等提供了一个新的研究平台。基于各种光学结构设计，如光栅[25-29]、FP 腔[30-32]、塔姆等离激元 (TPPs) [33-35]、光子晶体 [36, 37]，超材料[38-40]，金属[41-48]/电介质超表面[49-52]，光学特性可灵活调控的热辐射器件已被提出。然而上述研究中，大多数为单波段或双波段的热辐射研究，随着红外传感应用的快速发展，对于包含多个特征辐射波长的传感应用的需求日益增长，因此多波段热辐射集成芯片的研究具有重要意义。

另外，较高的空间分辨率也可提高芯片的信息存储量，有利于实现微区红外探测以

及微区红外热成像，因此这也是研究热辐射芯片的一个要点。基于 MIM 等离子激元超表面可以实现多波段热辐射，但目前已提出的相关研究中在样品被加热后，除去金属谐振器所携带的需求辐射信号，露出的中间介质层也会产生背景辐射信号，他们之间的辐射信号对比度会大大降低，无法实现较高的空间分辨率。另外，基于 Tamm 等离子激元的多层膜结构也可实现多波段热辐射，但其工作波长较为固定，且无法对其表面热辐射进行空间调控。迄今为止，对同时拥有多波段热辐射峰和高空间分辨率的集成热辐射芯片的研究很少有报道。

3.2 超微腔阵列结构设计思路与方法

传统 FP 腔模式可以看作是多次反射光干涉形成的驻波。在此过程中，腔壁的反射相位与腔介质内部的传播相位之和应满足条件 $\varphi_{T0} = 2m\pi$ ($m = 1, 2, \dots$)。这意味着一个传统 FP 腔的共振主要是由光在一个振荡周期内的相位积累决定的。因此，我们可以通过控制腔内振荡光的累积相位来控制其谐振模式。如图 3.1(a) 所示，传统 FP 腔的电磁特性可通过多重干涉理论[53, 54]来进行描述，其反射率计算公式如下所示：

$$R = \left| r_{12} + \frac{t_{12}t_{21}r_{23}e^{(-2i\varphi)}}{r_{21}r_{23}e^{(-2i\varphi)}} \right|^2 \quad (3.1)$$

其中 $\varphi = nkdsin\theta'$ 代表介质中的传播相位， d 和 n 分别是中间介质层的厚度与折射率， k 为真空下的波矢。这里， $r_{12}(t_{12})$ 和 $r_{21}(t_{21})$ 是指不同材料之间的界面反射（透射）系数。 r_{23} 表示底部金镜反射界面的反射系数。相应地， φ_{r12} ， φ_{r21} ， φ_{r23} ， φ_{t12} 和 φ_{t21} 代表对应的反射和透射系数的相位。由于整体结构的透射率几乎为 0，FP 腔的吸收率可由式 $A = 1 - R$ 来进行计算。这里，如果 FP 腔上下两金属层是一样的，那么有 $|r_{12}| \approx |r_{21}| = |r_{23}|$ ，这也就意味着调控传统 FP 模式谐振波长的唯一方法是改变中间介质层的厚度。

二维亚波长纳米结构，超表面[55-59]，已被广泛用于操纵电磁波的特性，如振幅、相位和极化。通过将 FP 腔上层金属反射面替换为超表面，我们提出了一种新型 FP 腔，称之为‘超微腔’。人为设计超表面可提供灵活可调的 $r_{12}(t_{12})$ 和 $r_{21}(t_{21})$ ，这为调控 FP 共振模式带来了更多的自由度。通过对超表面的结构参数进行连续调控，超微腔结构可以在长波红外范围内实现对辐射波长的连续线性调控。

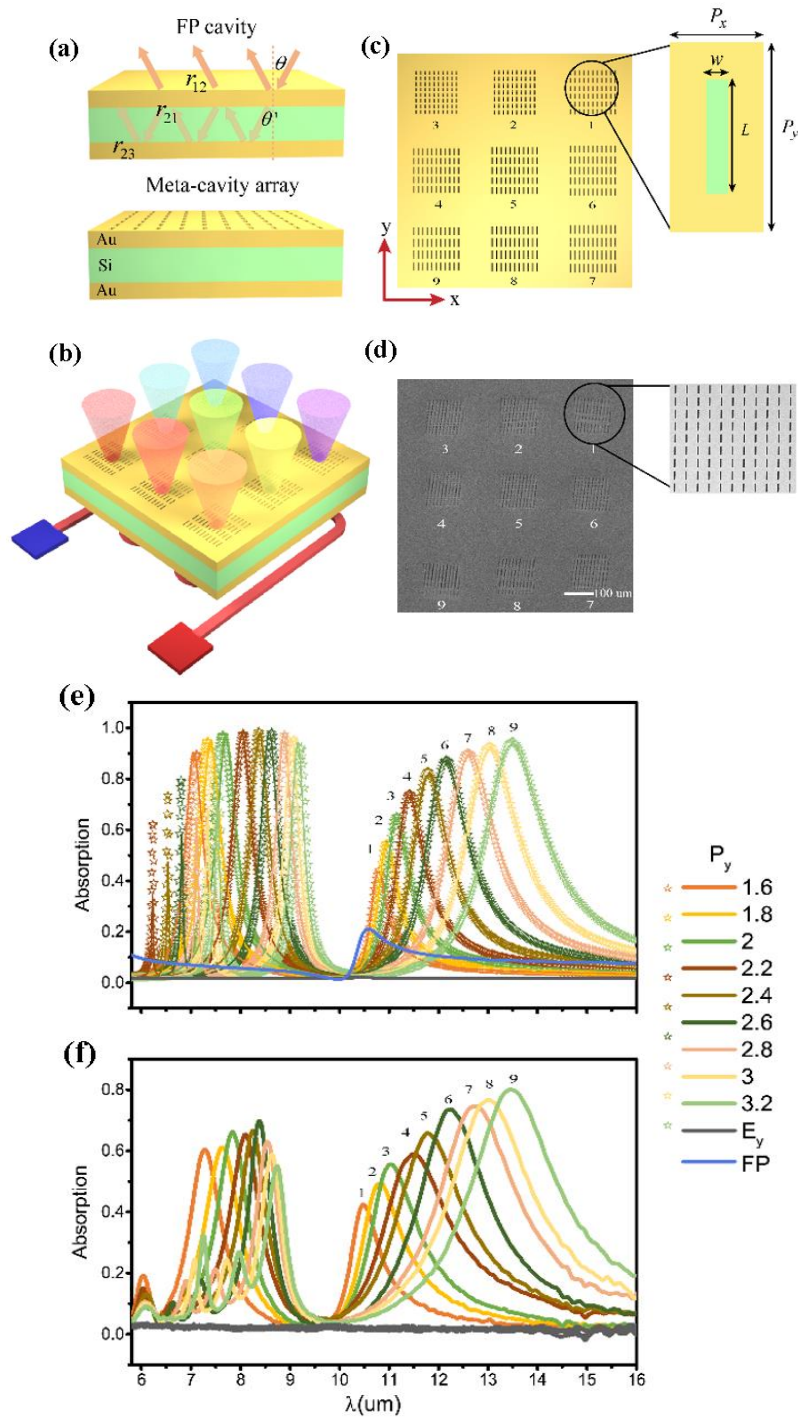


图 3.1 基于超微腔阵列的多波段热辐射芯片：(a) 传统的 FP 腔和超微腔的示意图；(b) 所设计的多波段热辐射芯片示意图，辐射光的颜色从紫色到红色代表了热辐射的波长从短波到长波波段的变化；(c) 理论设计的热辐射芯片的俯视图；(d) 实验加工的热辐射芯片的俯视图；(c) 和 (d) 的插图展示了超微腔阵列的单元结构和加工的 1 号超微腔腔的放大 SEM 图像；(e) 超微腔阵列在 X 极化光入射下的仿真吸收光谱（实线）和理论计算（星号标记线）的吸收光谱；灰色线条表示超微腔阵列在 Y 极化光入射下的仿真吸收光谱；蓝线表示单个 FP 腔的仿真吸收光谱；(f) 测量所得的超微腔阵列的吸收光谱。

基于超微腔阵列，我们设计并实现了具有多波段辐射峰的热辐射芯片，此芯片由上层 3×3 纳米孔超表面阵列，底部的金镜和夹在它们之间的硅层组成，如图 3.1(b) 所示。这里每个超表面均都由人为设计的纳米孔单元组成，以获得所需的辐射波长。对于单元结构的设计，我们将沿 x 轴方向的单元周期和纳米孔的宽度固定为 $P_x=1.56\mu\text{m}$, $w=0.2\mu\text{m}$ 。纳米孔的长度取决于沿 y 轴方向的单元周期，设置为 $L=Py*0.7$ 。这里 Py 的变化范围为 $1.6-3.2\mu\text{m}$ ，以 $0.2\mu\text{m}$ 为步长，对应九种不同的超表面，其俯视示意图如图 3.1(c)所示。

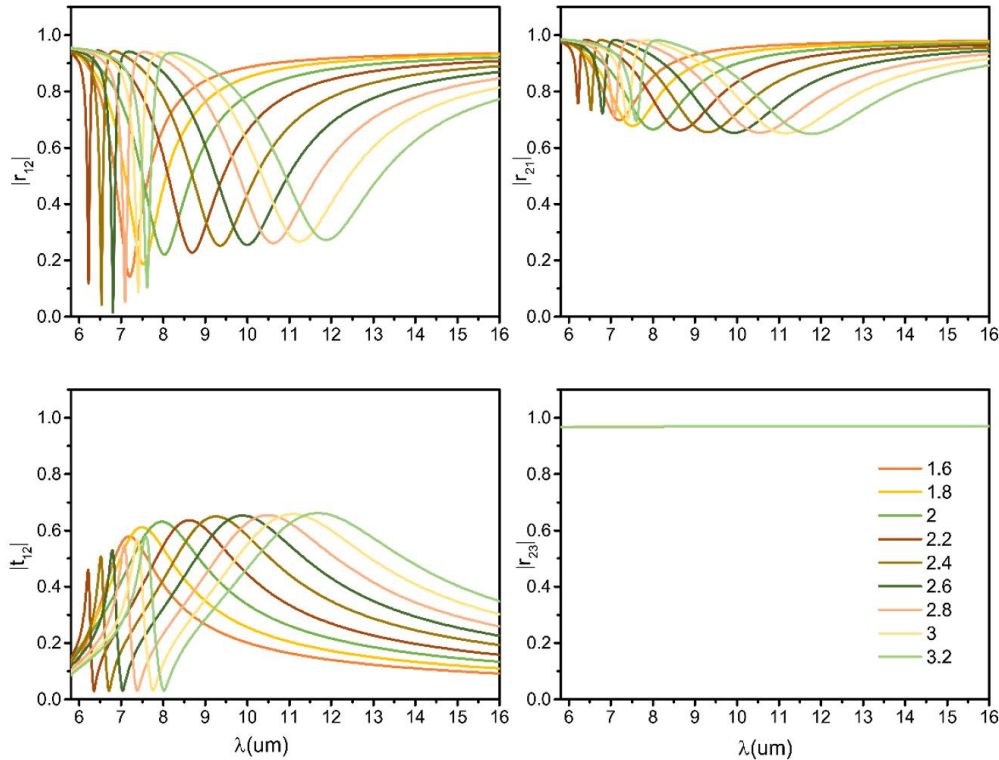


图 3.2 仿真所得的 S 参数的振幅：在 x 极化光入射下，每个单独的超表面的反射系数 r_{12} (a) 和 r_{21} (b) 以及透射系数 t_{12} (c) 的振幅；(d)平面无孔金板的反射系数 r_{23} 的振幅。

首先，我们对单独纳米孔超表面的电磁特性进行理论分析。由于纳米孔的极化电场方向垂直于它们的长轴，因此每一个纳米孔单元都可以看作是一个 x 方向极化的电偶极子。通过使用商业软件 FDTD 进行数值模拟，我们可以得到每个单独纳米孔超表面的 S 参数。在模拟中， x 极化光入射条件下，每个超表面以及无孔金板的透射和反射系数（均为复数）的幅值，相位结果分别展示在图 3.2 和图 3.3 中。由于 $t_{12} = t_{21}$ ，这里只展示 t_{12} 的相位和幅值。从图 3.2 中我们可以看到，当入射光为 x 极化光时，每个超表面可以激发出两个共振模式，并随着纳米孔长度的增加而逐渐红移到长波波段。

同样的在图 3.3 中，超表面 S 参数的相位随着纳米孔长度的增加会产生与其振幅的变化相同的趋势，并在共振波长处展现出具有洛伦兹线型的相位突变。那么，通过人为地设计超表面，我们就可以得到目标共振波长所需的相位变化，这与普通无孔金板相比，

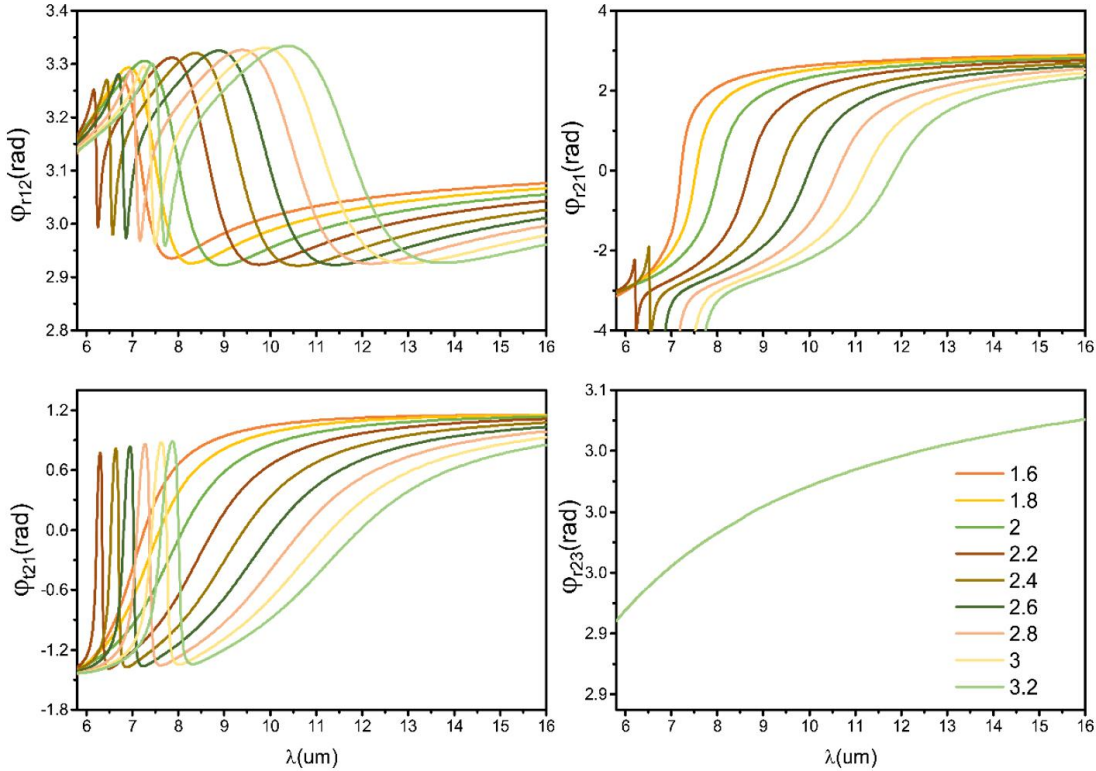


图 3.3 仿真所得的 S 参数的相位: 在 x 极化光入射下, 每个单独的超表面的反射系数 r_{12} (a) 和 r_{21} (b) 以及透射系数 t_{12} (c) 的相位; (d) 平面的无孔金板的反射系数 r_{23} 的相位。

大大提升了其调控自由度。另外需要注意的是，当入射光是 y 极化光时，纳米孔超表面不会被激发，也就会失去对 S 参数的调控作用，等同于金板的效果。

如图 3.3 (d) 所示，普通金属板的反射相位近似为常数 π ，但是结合纳米孔超表面带来的相位突变，超微腔结构就可以对普通 FP 腔模式进行调控，以获得目标谐振波长。基于超表面带来的相位变化，我们可以预测超微腔结构的共振波长位置。首先，对于由两层金板和中间间隔层构成的一个普通 FP 腔，其谐振模式满足以下条件：

$$2\varphi_{Au} + 2\varphi_p = 2m\pi \quad (m = 1, 2 \dots) \quad (3.2)$$

这里， φ_{Au} 是平面金板的反射相位， φ_p 则是传播相位。当我们用纳米孔超表面代替上层金板，形成新的反射界面，其谐振模式的累积相位 P_{total} 可以由下式进行计算：

$$P_{total} = \varphi_{Au} + \varphi_{r21} + 2\varphi_p = 2m\pi \quad (m = 1, 2 \dots) \quad (3.3)$$

其中, φ_{r21} 代表单独超表面的反射相位。我们将式 (3.3) 的左边项(超微腔阵列的 P_{total}) 和式 (3.3) 的右边项 ($2m\pi$), 同时绘制在图 3.4 中, 如下所示。 P_{total} 与 4π 和 6π 的交点分布在 $7-9\mu\text{m}$ 和 $10-14\mu\text{m}$ 波段内, 这些交点则代表了超微腔阵列的谐振波长。

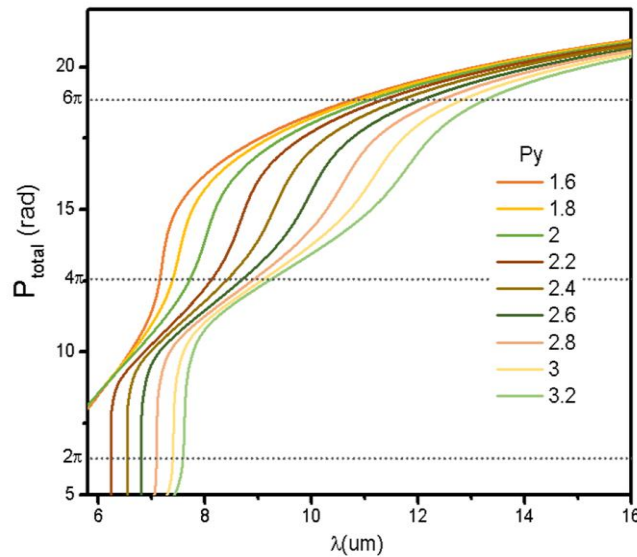


图 3.4 超微腔阵列内的累积相位示意图; P_{total} 和 $2m\pi$ 的交点代表了谐振波长位置。

根据上述超表面带来的相位突变和振幅变化, 超微腔阵列的吸收谱可以根据公式 (3.1) 计算得到 (星号标记线), 如图 3.1(e) 所示。为了进一步验证计算结果的准确性, 我们仿真计算了, x 极化光激发下超微腔阵列的吸收光谱 (实线), 同时展示在图 3.1(e) 中。为了与传统 FP 腔模式进行对比, 我们还计算了将超表面替换为厚度为 10nm 的无孔金板后的吸收谱结果。从图中可以看到, 理论计算结果与仿真结果保持一致。基于超表面带来的两处相位突变, 可以实现分别将 FP 模式分别红移和蓝移至两个波段的效果, 具体表现为 LWIR (长波红外) 范围的两个吸收峰。随着 P_y 和 L 的增加, 超微腔的两个吸收峰逐渐红移到长波范围并伴随着吸收强度的增加。超微腔阵列整体可实现吸收峰覆盖 $7-9\mu\text{m}$ 和 $10-14\mu\text{m}$, 吸收峰波长可与图 3.4 中的交点一一对应。得益于超表面和 FP 腔之间的相互作用, 超微腔结构的共振波长越接近普通 FP 腔模式, 其吸收峰的 Q 值就越高。另外, 当 P_y 增加到 $2.2\mu\text{m}$ 时, 在短波波段第三个吸收峰将会出现。然而由于这些超微腔的第三个吸收峰大多位于大气吸收窗口内且吸收率较低, 这里不做进一步分析。

相反的，由于纳米孔超表面的偏振选择性，当入射光为 y 极化光时，超微腔结构的吸收率几乎为 0。

3.3 热辐射芯片的光谱测量与热成像实验

实验中，我们首先通过磁控溅射将金（70nm）/硅（ $1.36\mu\text{m}$ ）/金（100nm）三层材料依次沉积在硅衬底上。然后通过聚焦离子束（FIB 双束 FEI Helios 600i，30 keV，100 pA）在上层金层上刻蚀出了 3×3 的纳米孔超表面阵列，其扫描电子显微镜（SEM）俯视图如图 3.1(d) 所示。通过调整刻蚀参数，纳米孔的加工长度可以从 $1.12\mu\text{m}$ 调整到 $2.24\mu\text{m}$ ，其蚀刻深度被设定为 70nm。这里超微腔阵列中每个超表面的尺寸为 $120\mu\text{m}\times 120\mu\text{m}$ ，加工样品的 SEM 图展示在图 3.5 中。

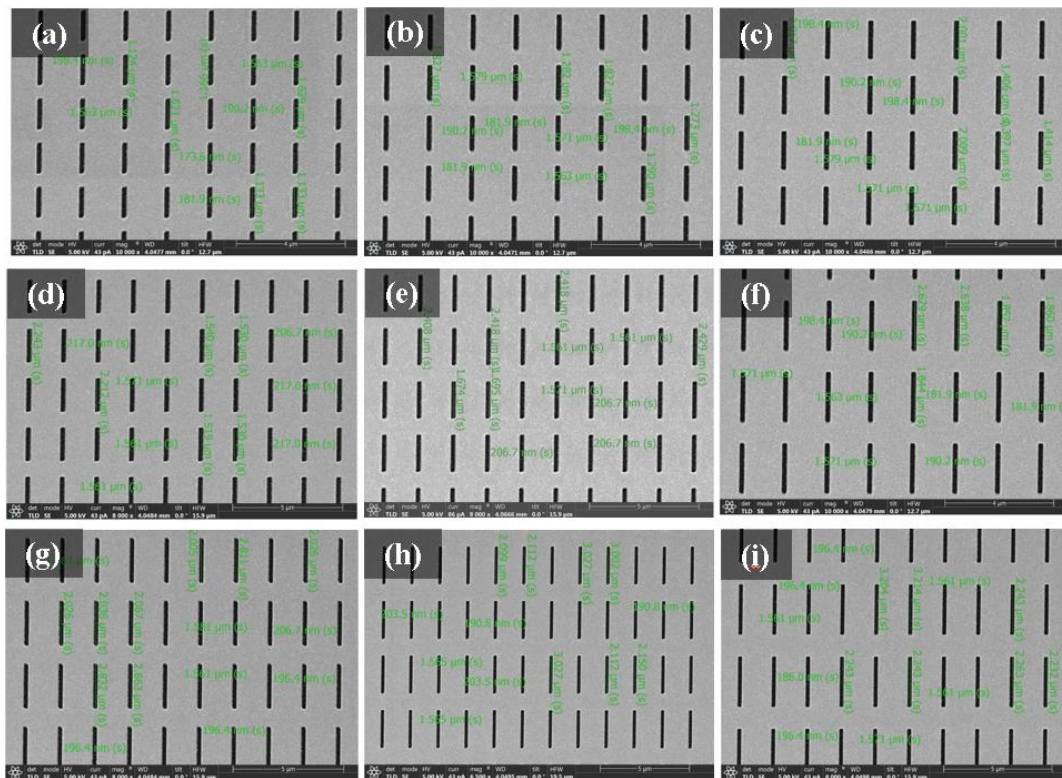


图 3.5 超微腔阵列样品俯视 SEM 图：(a-i) 分别代表 1-9 号超微腔结构。

接下来，我们通过实验来验证所提出的热辐射芯片的红外光谱特性。图 3.1(f) 展示了在室温下采用 FTIR 光谱仪测量所得的超微腔阵列在 x 极化光激发下的红外吸收谱。可以看到，测量的吸收谱结果与仿真计算结果一致。同样的，当 P_y 和 L 增加时，超微腔阵列在 LWIR 双波段内展现出了线性可调的共振峰与逐步增大的吸收强度，体现了超

微腔阵列作为多波段芯片的优势。实验结果和仿真结果在 $10\sim 14\mu\text{m}$ 范围内匹配良好，而在 $7\sim 9\mu\text{m}$ 范围内，二者有轻微的差异，这些差异可能是由于硅的实际折射率和仿真过程中设置的值之间的微小差异引起的。此外，由于加工误差的存在，实验结果的 Q 值与仿真结果相比略有下降。实验中，入射光为 y 极化光时超微腔阵列的吸收率与仿真结果一致，同样几乎为 0。

根据基尔霍夫定律，在热平衡条件下，超微腔的热辐射率可认为与其吸收率对等。因此，我们可以通过超微腔阵列的吸收谱来计算其对应的热辐射谱。在这里，我们采用长波热像仪来研究超微腔阵列的热辐射特性。每个超微腔结构的热辐射强度可通过拍摄所得热像图中的温度大小来展示。需要注意的是，热像图中呈现的温度不等于样品的绝对温度，所以我们在下文中称其为辐射温度。在热成像实验中，我们在超微腔样品和热像仪之间放置了一个偏振片，通过将偏振片从 0 到 2π 旋转，可以用来实现对样品热辐

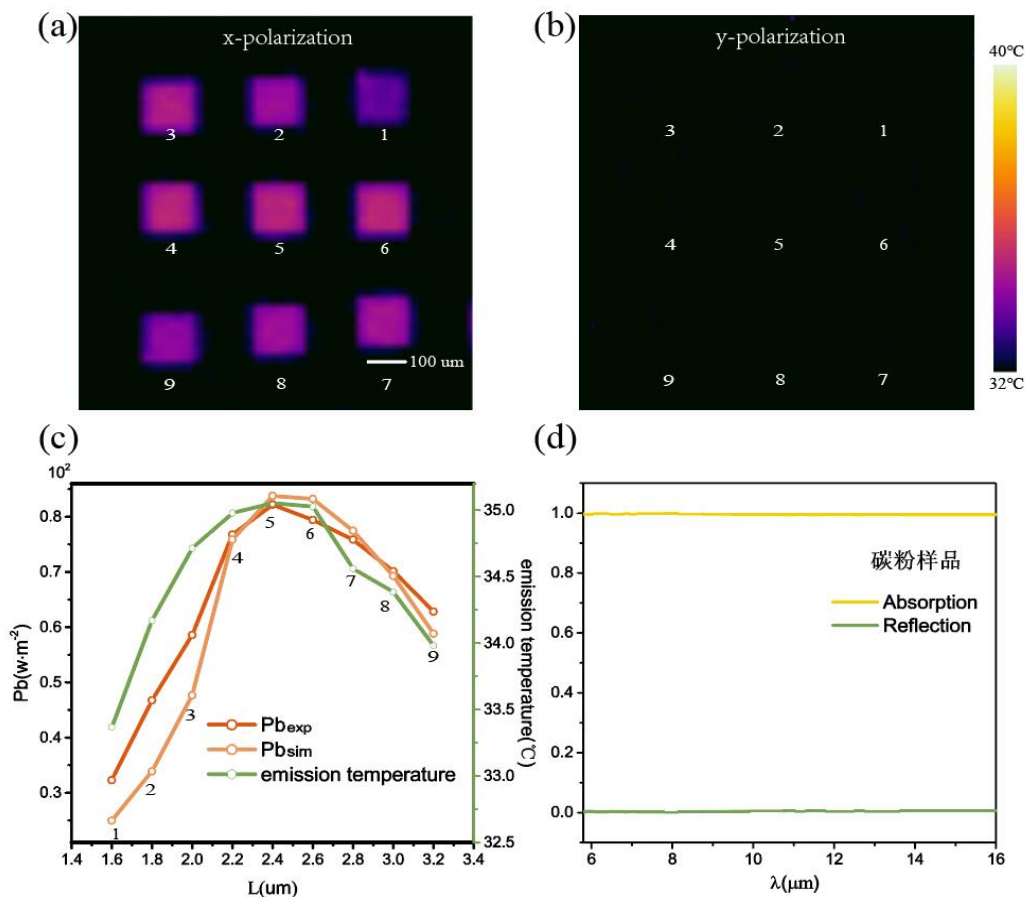


图 3.6 基于超微腔阵列的热辐射芯片在加热至 100°C 后的热像图：在 x 偏振选择下 (a) 和 y 偏振选择下 (b) 下拍摄的热像图；(c) 计算出的热辐射能量以及每个超微腔结构在 X 偏振选择下的平均辐射温度；(d) FTIR 测量得到的碳粉样品的红外吸收与反射谱。

射的动态偏振选择。在将样品加热到 100°C 后，分别在 x 偏振和 y 偏振选择下拍摄所得的热像图展示在图 3.6 (a, b) 中。

从图 3.6 (a) 中我们可以看到，x 偏振选择下，每个超微腔都显示出比其周围背景区域更高的辐射温度，表明它们有很强的 x 极化热辐射。根据每个超微腔的热辐射强度的不同，热像图中的辐射温度分布也随之不同，体现出了多个热辐射器的集成。然而在图 3.6 (b) 中，y 偏振选择下，各个超微腔的热辐射强度非常弱，表明了超微腔阵列对热辐射信号的偏振选择性，这与图 1 中的吸收谱结果相符合。目前为止，我们已经同时从实验和理论上验证了所设计的热辐射芯片在长波红外领域对表面热辐射率操纵的可行性。与已报道的可见光到近红外波段的多波长光芯片相比，我们所设计的无需激光激发的热辐射芯片可以大大降低设备成本，在红外波段找到许多潜在应用。

我们知道，黑体的热辐射能量可以用 Stefan-Boltzmann ($Pb_{blackbody} = \epsilon\sigma T^4$) 定律来描述，其中 ϵ 和 T 分别是样品的辐射率和温度， σ 是 Stefan-Boltzmann 常数。我们在实验中所用的红外热像仪是通过测量样品表面 7.6-14 μm 范围内的热辐射信号，然后基于 Steven-Boltzmann 定律和对应软件的内部算法来得到样品表面的辐射温度分布。为了更好地理解热像图中辐射温度分布和各个超微腔结构的热辐射谱之间的关系，我们分别根据实验和仿真所得的辐射谱 ϵ_{exp} 和 ϵ_{sim} 计算了各个超微腔结构的热辐射能量 Pb_{exp} 和 Pb_{sim} ，计算公式如下：

$$Pb = \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} \epsilon(\lambda) M_{bb}(\lambda, T) d\lambda \quad (3.4)$$

这里， ϵ 是超微腔的热辐射率 ($\epsilon_{exp} = \frac{\epsilon_{sample}}{\epsilon_{blackbody}} = \frac{A_{sample}}{A_{blackbody}}$, $\epsilon_{sim} = \frac{A_{sim}}{A_{blackbody}} = A_{sim}$)，根据实验上测得的超微腔样品的吸收率 A_{sample} 和碳粉样品 (近似黑体) 的吸收率 $A_{blackbody}$ ，可以求得实验辐射率 ϵ_{exp} 。碳粉样品在长波红外波段的吸收谱如图 3.6 (d) 所示。仿真计算中，我们设置 $A_{blackbody} = 1$ ，那么通过仿真所得的吸收率即为仿真辐射率 ϵ_{sim} 。 M_{bb} 则是根据普朗克定律计算得到的黑体辐射。接下来，我们将基于 ϵ_{exp} 和 ϵ_{sim} 计算所得的每个超微腔的热辐射能量和热像图上的对应的平均辐射温度均画在图 3.6 (c) 中。很明显，超微腔结构的热辐射能量与热像图中的辐射温度成正比。尽管热辐射能量 Pb_{exp} 和 Pb_{sim} 与平均辐射温度略有差异，但三条曲线随着纳米孔孔长的增加而逐渐趋同，这说

明了热像图可以用来直接表征超微腔阵列的热辐射能量分布。而图中计算所得的热辐射能量与平均辐射温度的差异来源于热像仪实际探测到的热辐射信号与理论计算结果的差异。至此，我们直观地在实验和理论两方面同时验证了所设计超微腔热辐射芯片的可行性及其热辐射效果。

通过上述结果，我们证明了热辐射的波长和强度可以通过超微腔结构设计来调控。

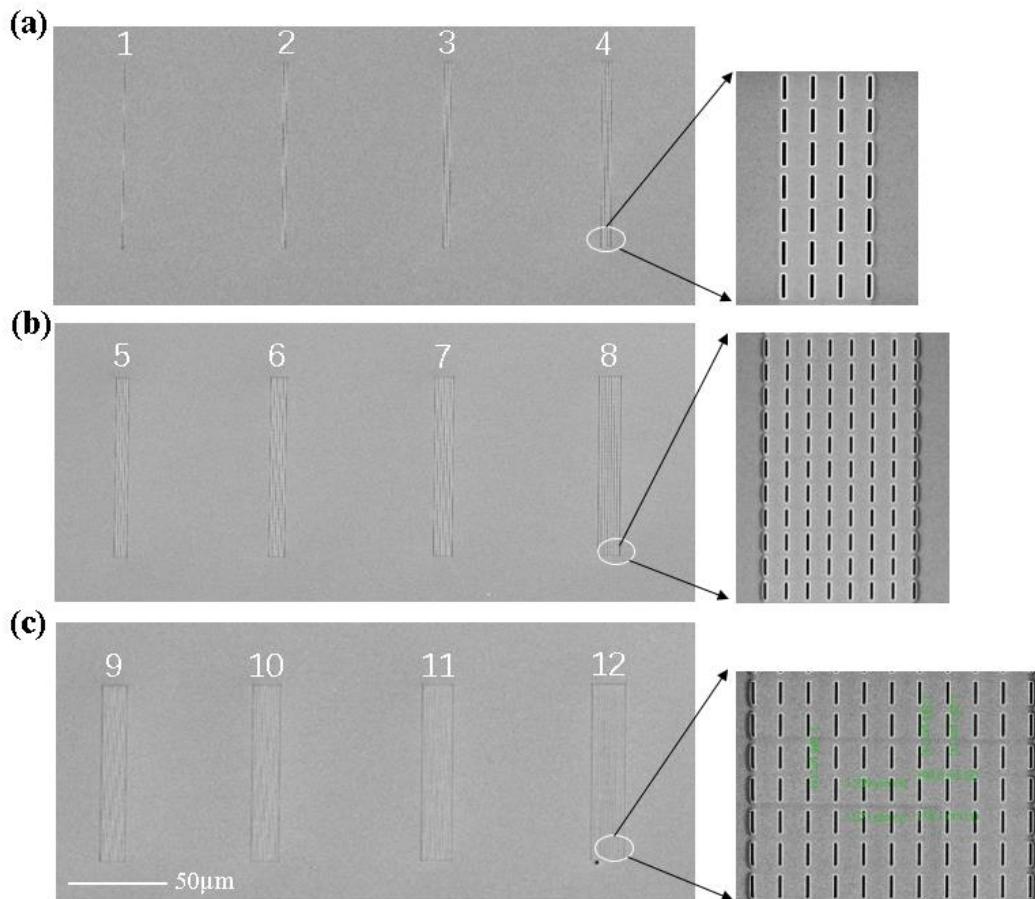


图 3.7 基于线状超微腔图案加工样品示意图：(a) 由 1、2、3、4 列纳米孔组成的线状超微腔图案及放大 SEM 俯视图；(b) 由 5、6、7、8 列纳米孔组成的线状超微腔图案及放大 SEM 俯视图；(c) 由 9、10、11、12 列纳米孔组成的线状超微腔图案及放大 SEM 俯视图。

在下文中，我们将证明，热辐射的空间分布也可以通过设计纳米孔图案来控制，并将需求热辐射信息编码到所设计的图案中。首先，我们设计并加工了分别由 1、2、3、4 列，5、6、7、8 列和 9、10、11、12 列纳米孔 ($P_y=1.8\mu\text{m}$) 组成的线型超微腔图案，如图 3.7

所示。线型超微腔图案的长度均为 $220\mu\text{m}$ ，两两图案之间的间隔为 $80\mu\text{m}$ 。

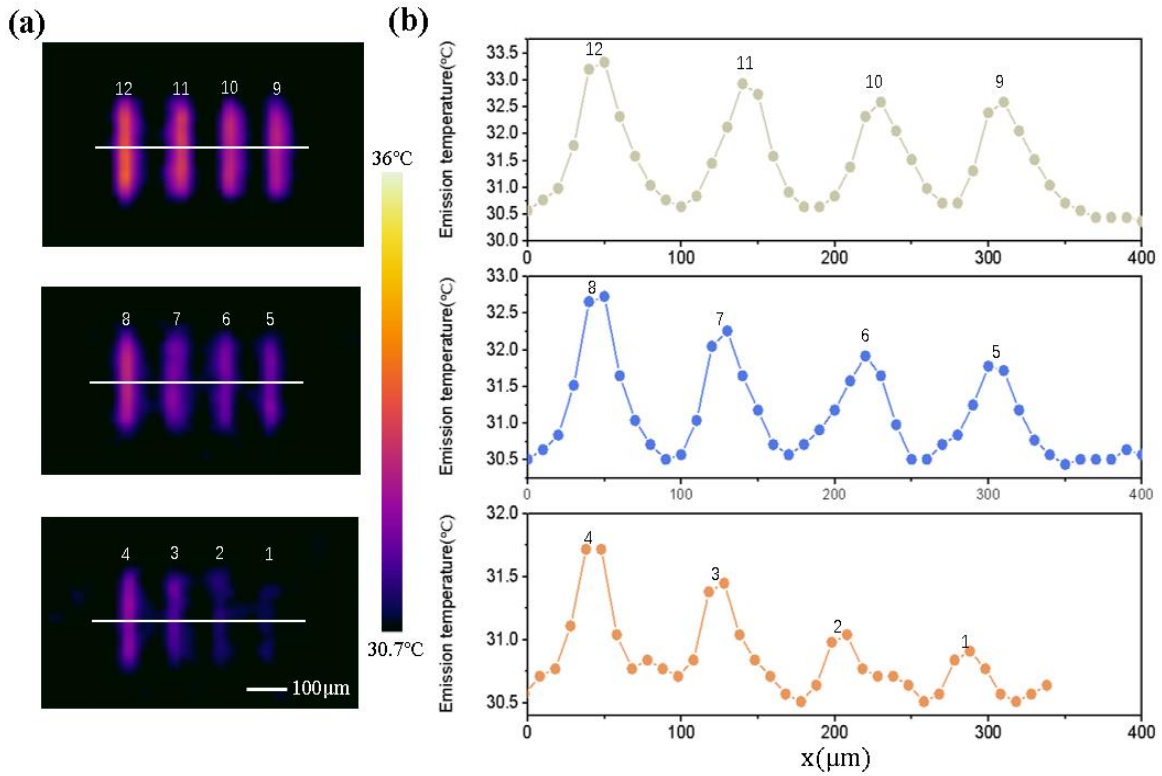


图 3.8 基于线状超微腔图案的空间调控热辐射：(a) 在 100°C 下拍摄的各个超微腔图案的热像图；(b) 超微腔图案中心的辐射温度分布。

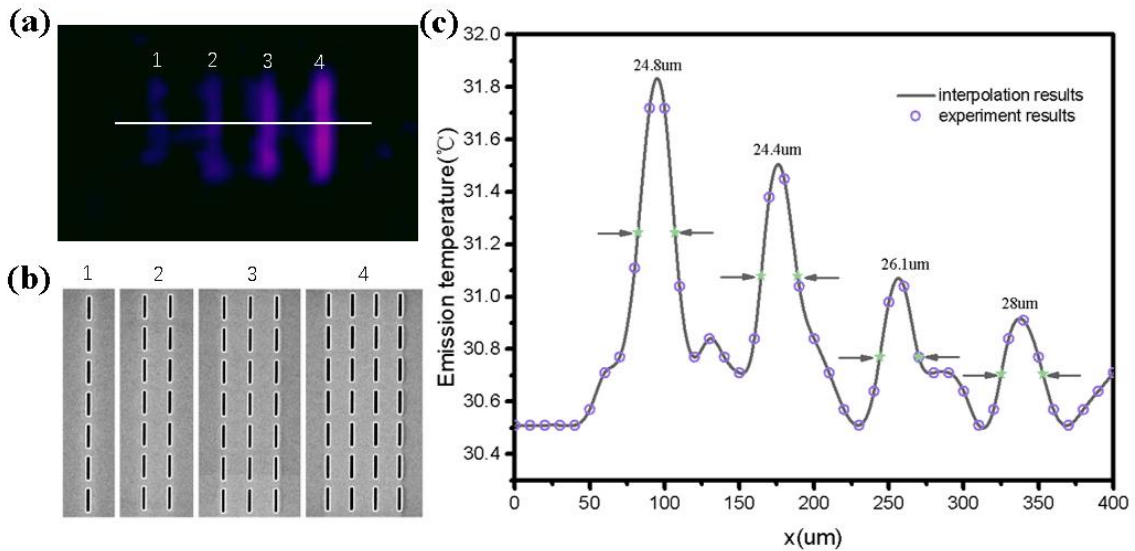


图 3.9 具有高空间分辨率的线状超微腔图案热成像：(a) 由 1、2、3、4 列纳米孔组成的线状超微腔图案的热像图；(b) 超微腔样品的细节 SEM 图；(c) 热像图中超微腔图案中心的辐射温度分布。

图 3.8 (a) 则展示了这些线型超微腔图案在 100°C 下拍摄的热像图。可以观察到，由 5-12 列纳米孔组成的超微腔图案在热像图中清晰可见，含有 3、4 列纳米孔的超微腔图案在热像图中较为清晰，而含有 1、2 列纳米孔的超微腔图案则不够清晰，无法辨别。这是因为较少的纳米孔数量会产生较弱的热辐射信号，导致成像不清晰。图 3.8 (b) 具体展示了这些超微腔图案中心的辐射温度分布，可以看到随着纳米孔列数的增多，超微腔图案的辐射温度逐步上升。具体的，1 到 12 列纳米孔超微腔图案的辐射温度逐渐从 30.9°C 增加至 33.35°C，其热成像也随之逐渐清晰。

基于纳米孔图案可实现的最优空间分辨率可从 1、2、3、4 列纳米孔超微腔热像图中得到，如图 3.9 所示。根据从热像图中得到的辐射温度数据（紫色圆圈），通过插值法（灰色实线）可得到每个辐射温度峰的线宽，如图 3.9 (c) 所示。可以看到，当超微腔图案由 3 列纳米孔组成时可以实现 24.4 μm 的线宽。这种高空间分辨率是通过金属层抑制背景辐射温度，提高辐射温度对比度中获得的。基于集成微孔设计，这种热辐射芯片可以促进紧凑型集成高分辨红外热辐射器件的发展。在我们的实验中，热成像的空间分辨率受限于所使用热像仪的空间分辨率（10 μm ）。如果将来使用分辨率更高的热像仪，我们可以进一步获得更高的热辐射空间分辨率。

3.4 高空间分辨的多路复用热辐射

上面我们讨论的超微腔图案都是空间上单独分布，单一极化选择下的单通道热辐射。

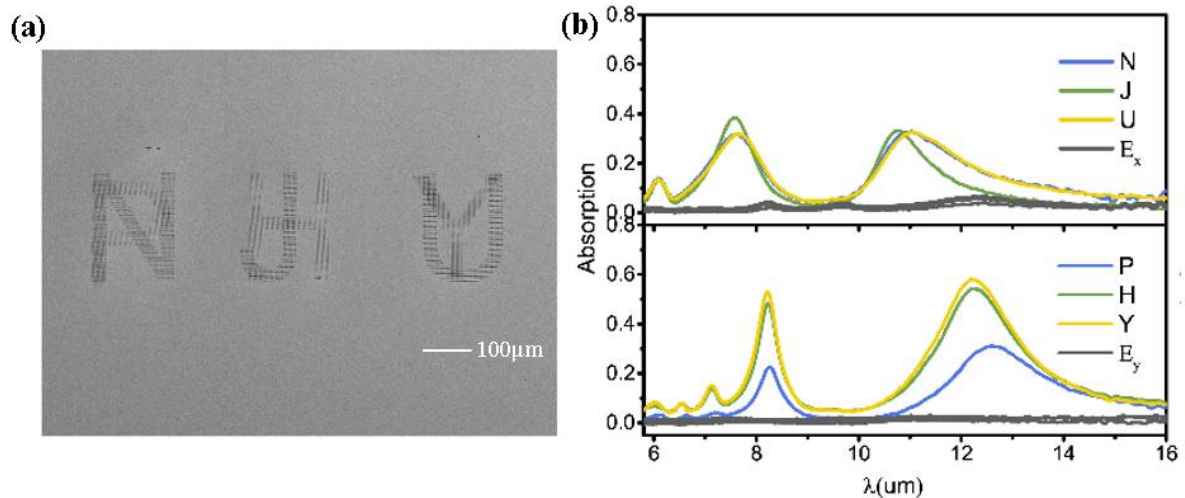


图 3.10 复杂超微腔图案设计：(a) 超微腔图案加工样品的 SEM 俯视图；(b) 在 y 极化光和 x 极化光入射下测量的 NJU(PHY) 字母的吸收光谱。

其实基于纳米孔的各向异性，我们可以通过设计更复杂的超微腔图案，来实现极化，波长和空间上的多路复用热辐射。这里我们针对两种垂直极化设计了两种超微腔图案，分别是“NJU”和“PHY”，如图 3.10 (a) 所示。

这里我们选择了 $P_y=1.8\mu\text{m}$ 和 $P_y=2.6\mu\text{m}$ 两种尺寸的单元纳米孔来分别填充两个图案。对于“NJU”图案，我们将 $P_y=1.8\mu\text{m}$ 的纳米孔阵列的长轴沿 x 轴方向摆放。对于“PHY”图案，我们将 $P_y=2.6\mu\text{m}$ 的纳米孔阵列的长轴沿 y 轴方向摆放。这样 x, y 偏振就会分别选择出两种纳米孔对应的热辐射。通过 FTIR 光谱仪可以测得每个字母在两种极化下的吸收谱，如图 3.10 (b) 所示。可以看到在 x 极化光的激发下，PHY 字母超微腔会出现对应的吸收峰，而 y 极化光激发下，字母超微腔的吸收率几乎为 0；相反的，在 y 极化光的激发下，NJU 字母超微腔会出现吸收峰，而 x 极化光的激发下，其吸收率几乎为 0；理论上，PHY (NJU) 三个字母的吸收谱应与周期超微腔结构 $P_y=1.8\mu\text{m}$ ($P_y=2.6\mu\text{m}$) 的吸收谱相同，但是实验中我们进行选区测量时，不同字母的选区会略有不同，所以 PHY

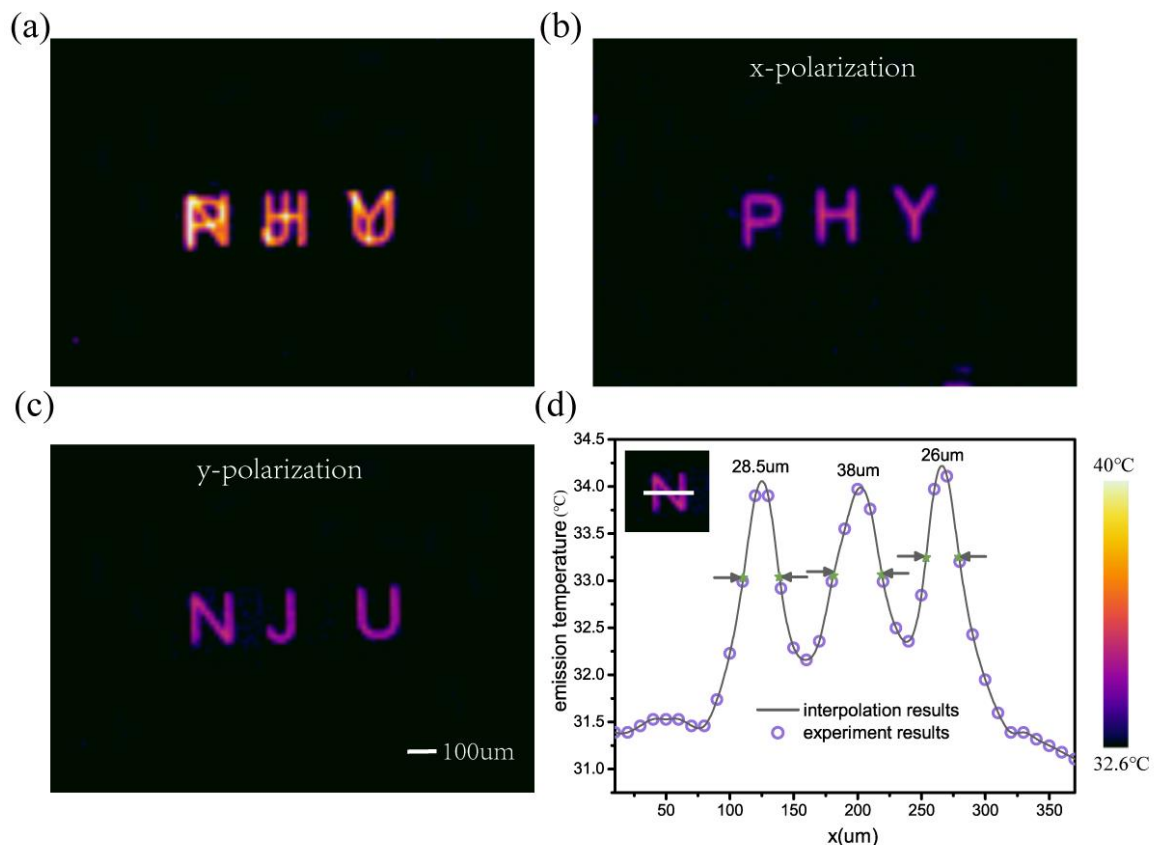


图 3.11 基于复杂超微腔图案的多路复用热辐射：在 100°C 下拍摄的，(a) 无偏振选择时的超微腔图案的热像图；(b) y 偏振选择下的超微腔图案的热像图；(c) x 偏振选择下的超微腔图案的热像图；(d) 沿着字母 N 的中心线的辐射温度分布曲线。

(NJU) 字母超微腔的吸收谱之间会有差异。在相同的测量环境下，字母 P 的吸收率（辐射率）要比字母 H 和 Y 小，这是因为字母 P 的辐射面积较小，导致其辐射信号比其他字母弱。字母 N, U 和字母 J 的吸收谱在线宽上的差异则是由 FIB 实验加工误差引起的。

为了更直观地体现热辐射多路复用的效果，我们将样品加热至 100°C，在不加偏振片，加 x 偏振和加 y 偏振条件下分别拍摄了热像图，如图 3.11 (a-c)所示。通过两个不同的偏振通道可以将两个独立的信息编码到同一个超微腔图案中，然后再通过在热像仪前旋转偏振片进行解码。不加偏振片时，两图案均可见，叠加出现在同一区域；加 x 偏振时，同一区域仅“PHY”图案可见；加 y 偏振时，同一区域仅“NJU”图案可见。为了探究上述超微腔图案热成像的空间分辨率，我们选取字母 N 并在字母中央测得了其线温分布，如图 3.11 (d) 所示。从曲线上可以观察到，超微腔图案可以达到约 30 μm 的空间分辨率。此外，我们可以做出进一步的展望，如果在样品和热像仪之间添加一个合适的滤

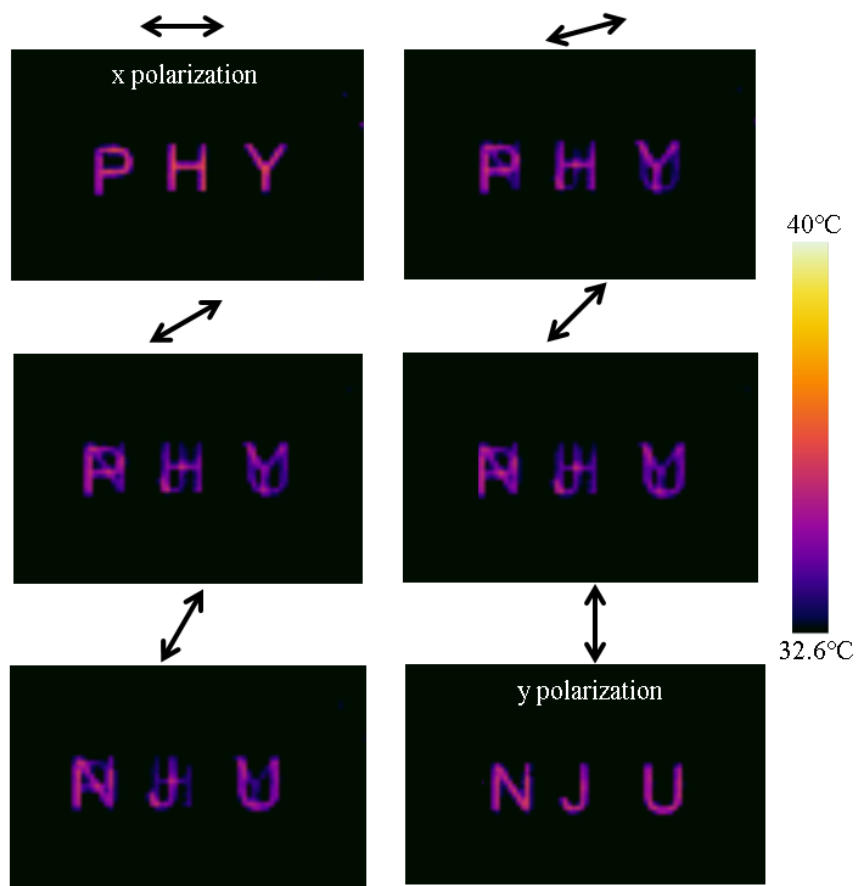


图 3.12 旋转偏振片对多路复用热辐射进行连续偏振选择过程：当偏振选择从 x 极化逐渐向 y 极化方向偏转时，超微腔图案逐渐由 PHY 向 NJU 进行转换；黑色箭头代表极化选择方向。

光片，就可以同时实现波长、极化和空间上的多路复用热成像。虽然在热成像实验中没有反映出波长的选择性，但根据图 3.10 (b) 所示的两个超微腔图案的吸收光谱，我们可以合理地推断这个方案是可行的。此设计可用于光存储和防伪设备中，进一步体现了所设计超微腔热辐射芯片的多功能性和实用性。同时，通过旋转偏振片对多路复用热辐射进行偏振连续选择的过程，我们也通过录制热像视频进行了验证，如图 3.12 所示。当偏振片逐渐从 x 极化方向向 y 极化方向转动时，超微腔图案从 PHY 逐渐转换为 NJU，体现了超微腔图案极化选择特性的灵活可调性。

以上是对超微腔结构法线方向上的热辐射结果分析。在非法线方向上，我们也从实验与理论两方面对超微腔图案的热辐射特性进行了研究。这里我们选择了两种超微腔结构 $P_y=1.8\mu\text{m}$ 和 $P_y=2.6\mu\text{m}$ 进行了广角热辐射研究，并计算了它们在斜入射($0^\circ - 80^\circ$)条件下的吸收光谱，如图 3.13 所示。可以看出，超微腔结构在 7.6-14 μm 波段内的吸收峰

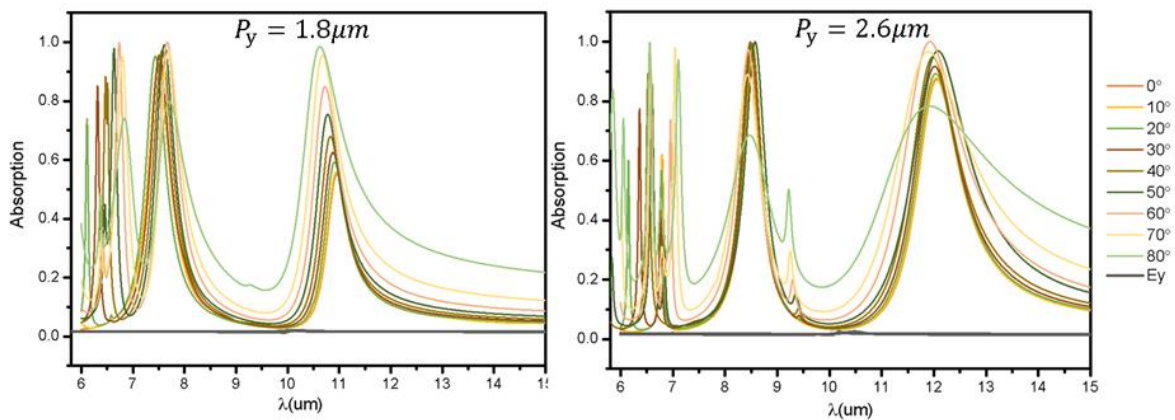


图 3.13 斜入射条件下的两种超微腔的吸收光谱。

具有广角特性，在小入射角度激发下几乎没有变化，这说明超微腔结构的热辐射在广角范围内也能保持其热辐射特性。在实验中，我们拍摄了字母 U ($P_y=1.8\mu\text{m}$) 和 Y ($P_y=2.6\mu\text{m}$)

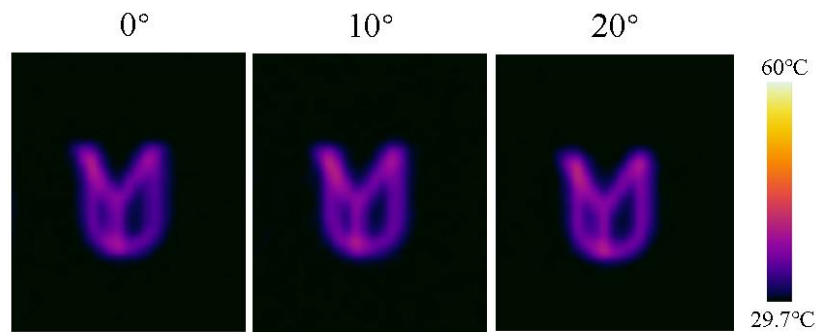


图 3.14 加热至 100°C 时，小角度下拍摄的字母 U 和 Y 的热像图。

在辐射角范围为 $0^\circ - 20^\circ$ 时, 在 100°C 下的热像图, 如图 3.14 所示。我们可以看到, 三幅热像图中的辐射温度基本一致, 说明超微腔图案在小辐射角度下的热辐射是稳定的, 这与理论计算结果一致。由于热像仪的微距镜头的成像距离有限, 我们只能拍摄小角度下的热像图。但基于理论结果, 我们可以合理地推断, 基于广角吸收光谱实现广角热成像(热辐射)是可行的。上述结果表明, 超微腔结构对角度的依赖性很低, 即使在非常倾斜的角度, 我们依然可以获得稳定的热辐射特性, 这种广角的热辐射特性使得超微腔结构设计在微区热成像和微区热传感方面很有应用前景。

3.5 本章小结与展望

综上所述, 我们提出了一种基于超微腔阵列实现的热辐射芯片, 此芯片可提供覆盖长波红外范围 $7-9\mu\text{m}$ 和 $10-14\mu\text{m}$ 的多波段热辐射, 并实现近波长尺度的高空间分辨率。通过人工设计的纳米孔超表面, 可以获得所需的热辐射波长。除超微腔阵列外, 我们还进一步研究了从简单的线状到复杂的字母超微腔图案, 并展示了极化、波长和空间上多路复用的高分辨热辐射。

所设计的热辐射芯片在较大的红外波长范围内具有强大的广角热辐射调控能力, 另外实验中证明的高空间分辨率特性和多路复用能力可以大大增加超微腔设计的红外信息存储能力, 使其成为紧凑型集成红外应用的一个有力候选者, 如微区指纹光谱探测。通过集成超微腔辐射阵列, 这种设计可望通过热像图中的像素模块的热辐射信息获得指纹光谱, 为有机分子传感提供了一种新的设计思路。此外, 由于不需要昂贵的红外光源, 所提出的无需激光激发的热辐射芯片的成本很低, 使其对所提到的潜在红外应用更具吸引力。

参考文献

- [1] R. Salzer and H. W. Siesler. *Infrared and Raman Spectroscopic Imaging*. Wiley-VCH: Weinheim, 2009.
- [2] P. R. Griffiths and J. A. de Haseth. *Fourier Transform Infrared Spectrometry*, 2nded. Wiley-Interscience: New York, 2007.
- [3] L. V. Brown, K. Zhao, N. King, H. Sobhani, P. Nordlander and N. J. Halas. Surface-Enhanced Infrared Absorption Using Individual Cross Antennas Tailored to Chemical Moieties. *Journal of the American Chemical Society*, **135**, 3688 (2013).
- [4] K. Ataka, S. T. Stripp and J. Heberle. Surface-enhanced infrared absorption spectroscopy (SEIRAS) to probe monolayers of membrane proteins. *Biochimica Et Biophysica Acta Biomembranes*, **1828**, 2283 (2013).
- [5] T. Wang, Z. G. Dong, E. H. H. Koay and J. K. W. Yang. Surface-Enhanced Infrared Absorption Spectroscopy Using Charge Transfer Plasmons. *ACS Photonics*, **6**, 1272 (2019).
- [6] M. K. Haigh, G. R. Nash, S. J. Smith, L. Buckle, M. T. Emeny and T. Ashley. Mid-infrared AlxIn1-xSb light-emitting diodes. *Applied Physics Letters*, **90**, 231116 (2007).
- [7] G. R. Nash, H. L. Forman, S. J. Smith, P. B. Robinson, L. Buckle, S. D. Coomber, et al. Mid-Infrared AlxIn1-xSb Light-Emitting Diodes and Photodiodes for Hydrocarbon Sensing. *IEEE Sensors Journal*, **9**, 1240 (2009).
- [8] R. Szedlak, A. Harrer, M. Holzbauer, B. Schwarz, J. P. Waclawek, D. MacFarland, et al. Remote Sensing with Commutable Monolithic Laser and Detector. *ACS Photonics*, **3**, 1794 (2016).
- [9] Y. Yao, A. J. Hoffman and C. F. Gmachl. Mid-infrared quantum cascade lasers. *Nature Photonics*, **6**, 432 (2012).
- [10] P. T. Lin, S. W. Kwok, H. Y. G. Lin, V. Singh, L. C. Kimerling, G. M. Whitesides, et al. Mid-Infrared Spectrometer Using Opto-Nanofluidic Slot-Waveguide for Label-Free On-Chip Chemical Sensing. *Nano Letters*, **14**, 231 (2014).
- [11] F. B. Barho, F. Gonzalez-Posada, M. Bomers, A. Mezy, L. Cerutti and T. Taliercio. Surface-Enhanced Thermal Emission Spectroscopy with Perfect Absorber Metasurfaces. *ACS Photonics*, **6**, 1506 (2019).
- [12] M. Makhsiyani, P. Bouchon, J. Jaeck, J. L. Pelouard and R. Haider. Shaping the spatial and spectral emissivity at the diffraction limit. *Applied Physics Letters*, **107**, 251103 (2015).
- [13] G. Bakan, S. Ayas, M. Serhatlioglu, C. Elbuken and A. Dana. Invisible Thin-Film Patterns with Strong Infrared Emission as an Optical Security Feature. *Advanced Optical Materials*, **6**, 1800613 (2018).
- [14] O. Salihoglu, H. B. Uzlu, O. Yakar, S. Aas, O. Balci, N. Kakenov, et al. Graphene-Based Adaptive Thermal Camouflage. *Nano Letters*, **18**, 4541 (2018).
- [15] J. Wang, F. B. Yang, L. J. Xu and J. P. Huang. Omnithermal Restructurable Metasurfaces for Both Infrared-Light Illusion and Visible-Light Similarity. *Physical Review Applied*, **14**, 014008 (2020).
- [16] R. Sakakibara, V. Stelmakh, W. R. Chan, M. Ghebrehan, J. D. Joannopoulos, M. Soljacic, et al. Practical emitters for thermophotovoltaics: a review. *Journal of Photonics for Energy*, **9**, 032713 (2019).
- [17] D. N. Woolf, E. A. Kadlec, D. Bethke, A. D. Grine, J. J. Nogan, J. G. Cederberg, et al. High-efficiency thermophotovoltaic energy conversion enabled by a metamaterial selective emitter. *Optica*, **5**, 213 (2018).

- [18] H. Z. Zhu, Q. Li, C. N. Tao, Y. Hong, Z. Q. Xu, W. D. Shen, et al. Multispectral camouflage for infrared, visible, lasers and microwave with radiative cooling. *Nature Communications*, **12**, 1805 (2021).
- [19] S. N. Zeng, S. J. Pian, M. Y. Su, Z. N. Wang, M. Q. Wu, X. H. Liu, et al. Hierarchical-morphology metafabric for scalable passive daytime radiative cooling. *Science*, **373**, 692 (2021).
- [20] X. B. Yin, R. G. Yang, G. Tan and S. H. Fan. Terrestrial radiative cooling: Using the cold universe as a renewable and sustainable energy source. *Science*, **370**, 786 (2020).
- [21] D. Li, X. Liu, W. Li, Z. H. Lin, B. Zhu, Z. Z. Li, et al. Scalable and hierarchically designed polymer film as a selective thermal emitter for high-performance all-day radiative cooling. *Nature Nanotechnology*, **16**, 153 (2021).
- [22] J. Yang, W. Du, Y. S. Su, Y. Fu, S. X. Gong, S. L. He, et al. Observing of the super-Planckian near-field thermal radiation between graphene sheets. *Nature Communications*, **9**, 4033 (2018).
- [23] F. Zhong, K. Ding, Y. Zhang, S. Zhu, C. T. Chan and H. Liu. Angle-Resolved Thermal Emission Spectroscopy Characterization of Non-Hermitian Metacrystals. *Physical Review Applied*, **13**, 014071 (2020).
- [24] F. Zhong, Y. Zhang, S. N. Zhu and H. Liu. Probing mid-infrared surface interface states based on thermal emission. *Optics Express*, **29**, 35216 (2021).
- [25] X. Zhang, Z. G. Zhang, Q. Wang, S. N. Zhu and H. Liu. Controlling Thermal Emission by Parity-Symmetric Fano Resonance of Optical Absorbers in Metasurfaces. *ACS Photonics*, **6**, 2671 (2019).
- [26] X. Zhang, H. Liu, Z. G. Zhang, Q. Wang and S. N. Zhu. Controlling thermal emission of phonon by magnetic metasurfaces. *Scientific Reports*, **7**, 41858 (2017).
- [27] K. Ikeda, H. T. Miyazaki, T. Kasaya, K. Yamamoto, Y. Inoue, K. Fujimura, et al. Controlled thermal emission of polarized infrared waves from arrayed plasmon nanocavities. *Applied Physics Letters*, **92**, 021117 (2008).
- [28] C. M. Wang, Y. C. Chang, M. W. Tsai, Y. H. Ye, C. Y. Chen, Y. W. Jiang, et al. Reflection and emission properties of an infrared emitter. *Optics Express*, **15**, 14673 (2007).
- [29] S. An, W. Shang, M. Jiang, Y. Luo, B. Fu, C. Song, et al. Human hand as a powerless and multiplexed infrared light source for information decryption and complex signal generation. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, **118**, e2021077118 (2021).
- [30] Z. Wang, T. S. Luk, Y. Tan, D. Ji, M. Zhou, Q. Gan, et al. Tunneling-enabled spectrally selective thermal emitter based on flat metallic films. *Applied Physics Letters*, **106**, 101104 (2015).
- [31] L. P. Wang, S. Basu and Z. M. Zhang. Direct Measurement of Thermal Emission From a Fabry-Perot Cavity Resonator. *Journal of Heat Transfer-transactions Of The Asme*, **134**, 072701 (2012).
- [32] D. Franklin, S. Modak, A. Vazquez-Guardado, A. Safaei and D. Chanda. Covert infrared image encoding through imprinted plasmonic cavities. *Light: Science & Applications*, **7**, 93 (2018).
- [33] Z.-Y. Yang, S. Ishii, T. Yokoyama, D. Thang Duy, M.-G. Sun, P. S. Pankin, et al. Narrowband Wavelength Selective Thermal Emitters by Confined Tamm Plasmon Polaritons. *ACS Photonics*, **4**, 2212 (2017).
- [34] Z. Wang, J. K. Clark, Y.-L. Ho, B. Vilquin, H. Daguji and J.-J. Delaunay. Narrowband Thermal Emission Realized through the Coupling of Cavity and Tamm Plasmon Resonances. *ACS Photonics*, **5**, 2446 (2018).

- [35] M. He, J. R. Nolen, J. Nordlander, A. Cleri, N. S. McIlwaine, Y. Tang, et al. Deterministic inverse design of Tamm plasmon thermal emitters with multi-resonant control. *Nature Materials*, **20**, 1663 (2021).
- [36] T. Inoue, M. De Zoysa, T. Asano and S. Noda. Realization of dynamic thermal emission control. *Nature Materials*, **13**, 928 (2014).
- [37] X. X. Liu, Z. W. Li, Z. J. Wen, M. F. Wu, J. L. Lu, X. Chen, et al. Large-area, lithography-free, narrow-band and highly directional thermal emitter. *Nanoscale*, **11**, 19742 (2019).
- [38] Y. K. Gong, K. Li, N. Copner, H. Liu, M. Zhao, B. Zhang, et al. Integrated and spectrally selective thermal emitters enabled by layered metamaterials. *Nanophotonics*, **10**, 1285 (2021).
- [39] J. Xu, J. Mandal and A. P. Raman. Broadband directional control of thermal emission. *Science*, **372**, 393 (2021).
- [40] Z. J. Coppens and J. G. Valentine. Spatial and Temporal Modulation of Thermal Emission. *Advanced Materials*, **29**, 1701275 (2017).
- [41] A. Lochbaum, Y. Fedoryshyn, A. Dorodnyy, U. Koch, C. Hafner and J. Leuthold. On-Chip Narrowband Thermal Emitter for Mid-IR Optical Gas Sensing. *ACS Photonics*, **4**, 1371 (2017).
- [42] X. Liu, T. Tyler, T. Starr, A. F. Starr, N. M. Jokerst and W. J. Padilla. Taming the Blackbody with Infrared Metamaterials as Selective Thermal Emitters. *Physical Review Letters* **107**, 045901 (2011).
- [43] X. Xie, X. Li, M. Pu, X. Ma, K. Liu, Y. Guo, et al. Plasmonic Metasurfaces for Simultaneous Thermal Infrared Invisibility and Holographic Illusion. *Advanced Functional Materials*, **28**, 1706673 (2018).
- [44] T. Cao, X. Zhang, W. Dong, L. Lu, X. Zhou, X. Zhuang, et al. Tuneable Thermal Emission Using Chalcogenide Metasurface. *Advanced Optical Materials*, **6**, 1800169 (2018).
- [45] L. Wojszwyk, A. Nguyen, A. L. Coutrot, C. Zhang, B. Vest and J. J. Greffet. An incandescent metasurface for quasimonochromatic polarized mid-wave infrared emission modulated beyond 10MHz. *Nature Communications*, **12**, 1492 (2021).
- [46] T. Yokoyama, T. D. Dao, K. Chen, S. Ishii, R. P. Sugavaneshwar, M. Kitajima, et al. Spectrally Selective Mid-Infrared Thermal Emission from Molybdenum Plasmonic Metamaterial Operated up to 1000 degrees C. *Advanced Optical Materials*, **4**, 1987 (2016).
- [47] B. A. Liu, W. Gong, B. W. Yu, P. F. Li and S. Shen. Perfect Thermal Emission by Nanoscale Transmission Line Resonators. *Nano Letters*, **17**, 666 (2017).
- [48] P. Bouchon, C. Koechlin, F. Pardo, R. Haidar and J. L. Pelouard. Wideband omnidirectional infrared absorber with a patchwork of plasmonic nanoantennas. *Optics Letters*, **37**, 1038 (2012).
- [49] G. Y. Lu, C. R. Gubbin, J. R. Nolen, T. Folland, M. J. Tadjer, S. De Liberato, et al. Engineering the Spectral and Spatial Dispersion of Thermal Emission via Polariton-Phonon Strong Coupling. *Nano Letters*, **21**, 1831 (2021).
- [50] S. A. Dyakov, V. A. Semenenko, N. A. Gippius and S. G. Tikhodeev. Magnetic field free circularly polarized thermal emission from a chiral metasurface. *Physical Review B*, **98**, 235416 (2018).
- [51] Y. Yang, S. Taylor, H. Alshehri and L. P. Wang. Wavelength-selective and diffuse infrared thermal emission

- mediated by magnetic polaritons from silicon carbide metasurfaces. *Applied Physics Letters*, **111**, 051904 (2017).
- [52] Z. Q. Xu, H. Luo, H. Z. Zhu, Y. Hong, W. D. Shen, J. P. Ding, et al. Nonvolatile Optically Reconfigurable Radiative Metasurface with Visible Tunability for Anticounterfeiting. *Nano Letters*, **21**, 5269 (2021).
- [53] H.-T. Chen. Interference theory of metamaterial perfect absorbers. *Optics Express*, **20**, 7165 (2012).
- [54] R. Alaei, M. Farhat, C. Rockstuhl and F. Lederer. A perfect absorber made of a graphene micro-ribbon metamaterial. *Optics Express*, **20**, 28017 (2012).
- [55] T. Qiao, M. Y. Hu, X. Jiang, Q. Wang, S. N. Zhu and H. Liu. Generation and Tunability of Supermodes in Tamm Plasmon Topological Superlattices. *ACS Photonics*, **8**, 2095 (2021).
- [56] Q. Wang, M. Xiao, H. Liu, S. N. Zhu and C. T. Chan. Measurement of the Zak phase of photonic bands through the interface states of a metasurface/photonic crystal. *Physical Review B*, **93**, 041415 (2016).
- [57] M. S. Bin-Alam, O. Reshef, Y. Mamchur, M. Z. Alam, G. Carlow, J. Upham, et al. Ultra-high-Q resonances in plasmonic metasurfaces. *Nature Communications*, **12**, 974 (2021).
- [58] Y. Deng, C. Wu, C. Meng, S. I. Bozhevolnyi and F. Ding. Functional Metasurface Quarter-Wave Plates for Simultaneous Polarization Conversion and Beam Steering. *ACS Nano*, **15**, 18532 (2021).
- [59] A. Leitis, M. L. Tseng, A. John-Herpin, Y. S. Kivshar and H. Altug. Wafer-Scale Functional Metasurfaces for Mid-Infrared Photonics and Biosensing. *Advanced Materials*, **33**, 2102232 (2021).

第四章 基于热辐射芯片的新型红外吸收光谱探测方法

红外光谱作为红外分子传感，材料分析，环境监测领域中最常用的分析手段，通常需要复杂的光谱设备和昂贵的红外光源。本章节中，我们通过可设定辐射波长的多波段像素化超微腔阵列，提出了一种基于热成像实现的，高度小型集成化且无需额外红外光源与光谱仪，低成本且可重复使用的微区红外吸收光谱探测方法。上述超微腔阵列结构由纳米孔超表面阵列和 FP 腔组成，可以提供覆盖长波红外 7.6-12 μm 波段的热辐射峰。这里，我们选择有机分子作为吸收层，对所提出的微区红外吸收光谱探测方法进行验证。根据有无有机分子时，热辐射芯片中像素化辐射模块的热辐射信号变化，我们可以得到有机分子在探测波段内的等效吸收谱。集成一体化的片上红外辐射源与光谱芯片可以简化测量系统并大大降低探测设备的运作成本，此集成设计方法为小型集成化微区探测设备研究，比如片上集成有机分子传感，生物科技和材料分析等提供了新的研究平台。

4.1 引言

红外光谱[1-3]，如傅里叶变换红外光谱 (FTIR)，已被广泛用于物质的成分定量测定，因为红外吸收的能量与分子内官能团的每个振动转变的能量相对应。随着超表面研究的发展，基于光谱仪对红外光谱的测量，通过金属等离子超表面或介质超表面实现的表面增强红外吸收[4-12]方法已经成为了探测分子振动吸收模式的有力工具。然而此方法的光谱探测过程虽然可以减少探测所需的分子量，但仍需要复杂的光谱仪设备和额外的红外光源。更进一步地，通过像素化超表面阵列结构[13-16]可实现无需光谱仪或仅需简化光谱设备的红外吸收光谱表征，然而此光谱表征过程仍需要额外的红外光源，且待探测分子与超表面传感器需要直接接触，不利于多次重复使用。

目前常用的红外光源包含有，宽带的白炽灯光源，发光二极管 (LEDs)和窄带波长可调的量子级联激光器 (QCLs)，前两者的辐射效率较低且无法实现对辐射波长的灵活调控，后者设备复杂价格昂贵且无法对辐射源的极化特性进行调控。近些年，基于微纳结构实现的波长选择热辐射器件 [17-27] 作为成本低廉且高效的红外光源已成为研究热点，为多种红外设备的研究与发展提供了新的研究平台[28-35]。其中，基于热辐射器件的有机分子传感研究[36, 37]已被提出，由于无需额外的红外光源，其探测设备成本可大大降低，但其红外光谱（如吸收谱或辐射谱）探测过程中仍需要光谱仪或简化光谱探

测设备。高度集成小型化的低成本红外吸收光谱探测方法对于实际传感应用的发展至关重要。这里，基于前期关于超微腔结构的研究[38]，我们设计了一种基于超微腔辐射阵列实现的，可对辐射波长与极化特性进行灵活调控的热辐射芯片。此多波段热辐射芯片作为集成小型化的红外辐射源，可提供覆盖 7.6-12 μm 红外波段的辐射峰。在此芯片设计的基础上，我们提出了一种新型，基于热成像技术实现的，无需额外红外光源与光谱仪且可重复使用的片上小型集成化微区红外吸收光谱探测方法。通过热辐射芯片中像素化辐射模块的热辐射信号透过其上方的分子吸收层前后的辐射强度变化，我们可快速分析得到吸收层在探测波段内的等效吸收谱。基于像素化超表面阵列设计[38, 39]，此低成本红外吸收光谱探测方法实现了红外辐射源与光谱芯片的集成一体化，很大程度上简化了红外光谱探测所需的测量系统且无需探测样品与光谱芯片直接接触，可用于多种紧凑型红外探测设备领域，如有机分子传感，生物科技和材料分析等。

4.2 有机分子样品制备与光谱测量

我们选择有机分子作为吸收样品来进行红外吸收光谱探测，有机分子共有四种，分别是 PTFE（聚四氟乙烯），ETFE（乙烯-四氟乙烯共聚物），PDMS（聚二甲基硅氧烷）

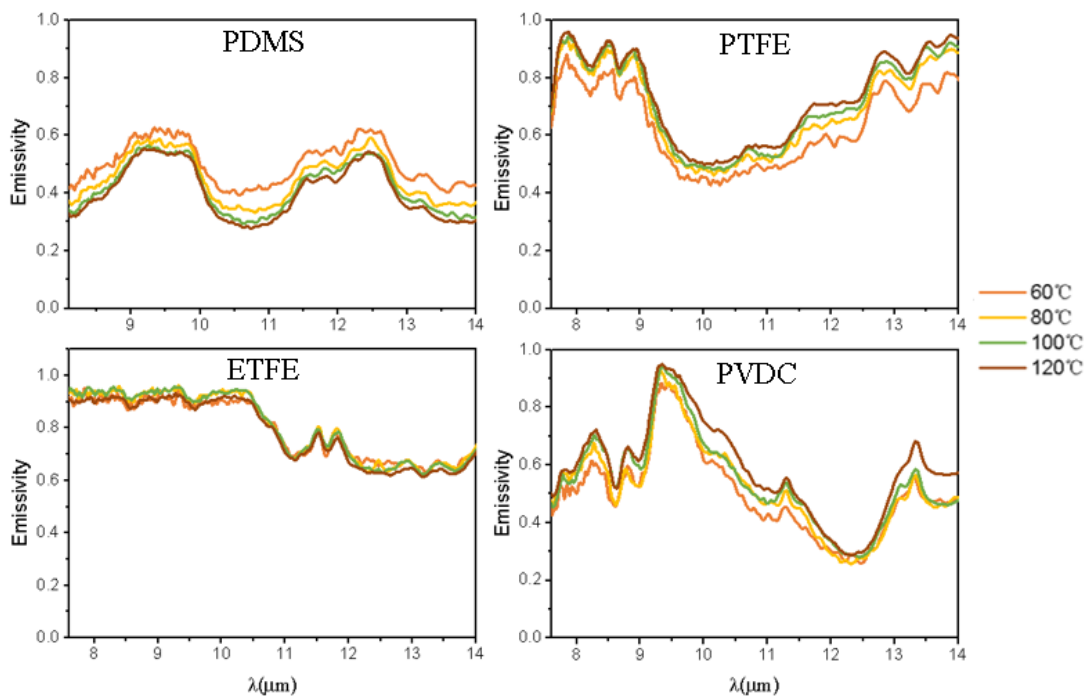


图 4.1 四种有机分子的辐射谱（标准吸收谱）：(a) PDMS 有机分子的辐射谱；(b) PTFE 有机分子的辐射谱；(c) ETFE 有机分子的辐射谱；(d) PVDC 有机分子的辐射谱。

和 PVDC (聚偏二氯乙烯)。其中, PTFE, ETFE 和 PVDC 是购买的人工薄膜, 厚度分别为 $30\mu\text{m}$, $25\mu\text{m}$ 和 $10\mu\text{m}$ 。PDMS 分子层是通过将配制的 PDMS 溶液旋涂于 KBr 红外窗片上得到的。将 1ml 的 PDMS 原液溶于 8ml 的甲苯溶液中进行稀释, 可得到合适浓度的 PDMS 溶液进行旋涂, 以 1200 rpm 的转速旋涂 2 分钟, 即可得到均匀分布的 PDMS 分子层, 厚度大致为 $2\mu\text{m}$ 。这里所使用的 KBr 红外窗片厚度为 2mm, 在 $6\text{-}14\mu\text{m}$ 内对红外光透明, 平均透过率大于 90%。

接下来我们通过 FTIR 红外光谱仪, 分别在 60°C , 80°C , 100°C 和 120°C 的温度条件下对四种有机分子的红外辐射谱进行测量, 结果如图 4.1 所示。根据基尔霍夫热辐射定律, 有机分子的辐射谱与其吸收谱对等, 所以后文中我们将辐射谱用作有机分子的标准吸收谱。PTFE 分子的需求吸收探测波段为 $7.9\text{-}9\mu\text{m}$, ETFE 分子的需求吸收探测波段为 $7.6\text{-}10.2\mu\text{m}$, PDMS 分子的需求吸收探测波段为 $9\text{-}10\mu\text{m}$, PVDC 分子的需求吸收探测波段为 $9.2\text{-}9.8\mu\text{m}$ 。

4.3 红外吸收光谱探测理论与方法

4.3.1 基于热辐射芯片的集成化红外源设计

这里, 我们基于超微腔阵列设计了一种热辐射芯片, 其中每个超微腔结构可提供一个辐射峰。通过集成超微腔设计, 该芯片可用作集成的红外辐射源与红外光谱仪, 并提供像素化的光谱分析。此热辐射芯片具体由上层的 Au 纳米孔超表面阵列, 中间 Si 介质层以及底部的 Au 镜组成, 如图 4.2 (a)所示。每个超表面结构都由人为设计的纳米孔单元组成, 以获得所需的特定辐射波长。对于单元结构的设计, 我们将沿 x 轴方向的单元周期和纳米孔的宽度固定为 $P_x=1.6\mu\text{m}$, $w=0.2\mu\text{m}$ 。纳米孔的长度取决于沿 y 轴方向的单元周期, 定义为 $L=P_y*0.5$ 。我们将 P_y 分别设置为 2, 2.2, 2.4, 2.6, 3, 3.4, 3.8, 4.2, 4.6 和 $5\mu\text{m}$, 对应九种不同的超表面, 如图 4.2 (b)所示。中间介质层 Si 的厚度, 我们设置为 $0.96\mu\text{m}$, 此时无孔结构的 FP 腔模式的共振波长位于 $7.2\mu\text{m}$ 左右。通过对纳米孔参数的连续调控, 超微腔辐射阵列可以实现将 FP 模式向长波波段逐渐红移。

由于纳米孔的极化方向垂直于它们的长轴, 因此每一个纳米孔单元都可以看作是一个 x 极化的电偶极子。这里我们使用商业软件 COMSOL 进行数值模拟, 计算了 x 极化光垂直入射下, 超微腔阵列的红外吸收谱, 如图 4.2 (c)所示。

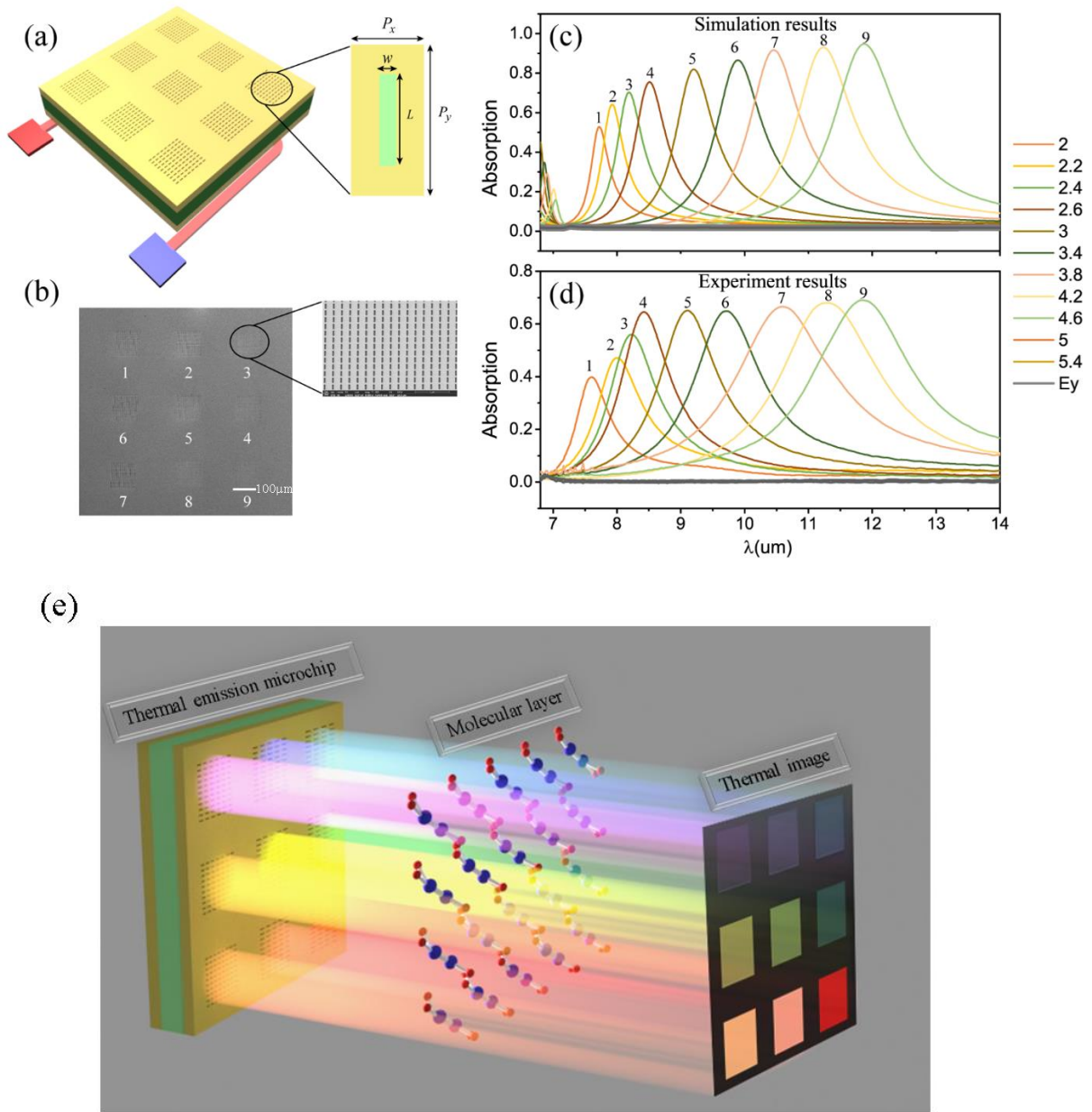


图 4.2 基于超微腔阵列实现的热辐射芯片：(a) 超微腔辐射阵列结构示意图；(b) 超微腔阵列加工样品的俯视图；(c) 超微腔阵列的仿真吸收谱；(d) 超微腔阵列的实验测量吸收谱；(e) 热辐射芯片用于红外吸收光谱探测的示意图。

从图中我们可以看到，基于纳米孔超表面阵列对 FP 腔模式的调控，所设计的 1-9 号超微腔提供的吸收峰随着孔长的增加可基本覆盖 7.6-12 μm 波段，可以满足多波段长波红外吸收光谱探测功能。超微腔阵列的辐射峰 Q 值随着共振波长的增加会逐渐降低，这是由于长波红外波段金属损耗增大的原因。当 y 极化光为入射光时，纳米孔超表面阵列无法被激发，整体结构吸收（灰线）近似为 0。此极化选择特性可通过调整纳米孔的长轴

方向进行灵活调控。

4.3.2 红外等效吸收率计算方法

根据基尔霍夫定律，热平衡条件下，我们所设计的超微腔阵列的热辐射率 ε 与吸收率 A 对等 ($\varepsilon = A$)。因此，可通过超微腔阵列的红外吸收谱来分析其热辐射谱及热辐射能量。通过对有无吸收层存在于热辐射芯片上方时，超微腔阵列的热辐射信号强度变化进行分析，可计算得到待测吸收样品层的等效吸收谱。其中，超微腔阵列的热辐射信号强度变化可由其热辐射能量变化来体现。首先，无吸收层时，单独超微腔阵列的热辐射能量可由下式进行计算：

$$PB_i = \varepsilon_i M_{bb}(\lambda_i, T)(\Delta\lambda_i) \quad (i = 1, 2, 3 \dots) \quad (4.1)$$

其中 ε_i 是超微腔的辐射率， M_{bb} 是根据普朗克公式计算的黑体辐射， T 为芯片的温度， $\Delta\lambda_i$ 代表无穷小的辐射波长区间， i 代表无穷小辐射波长区间的数目。当吸收层存在于热辐射芯片上方时，超微腔阵列的热辐射信号透过吸收层后的热辐射能量大小可由下式进行计算：

$$PB_i' = (1 - A_i)\varepsilon_i M_{bb}(\lambda_i, T)(\Delta\lambda_i) \quad (i = 1, 2, 3 \dots) \quad (4.2)$$

这里， A_i 表示吸收层的待测吸收率。此时，式 (4.2) 除以式 (4.1)，我们可以得到待测吸收层的等效吸收率：

$$A_i = 1 - \frac{PB_i'}{PB_i} \quad (4.3)$$

然后通过整合各个辐射波长区间内的等效吸收率，我们就可以得到待测吸收层在 7.6-12 μm 波段内的红外等效吸收谱。

4.4 红外吸收光谱探测实验与结果分析

4.4.1 PDMS 分子红外吸收光谱探测

为了验证所设计热辐射芯片的红外波长选择效果，我们在实验中加工了所设计的像素化超微腔阵列。具体加工流程如下：首先通过磁控溅射将金（70nm）/硅（0.96 μm ）/

金（100nm）三层材料依次沉积在硅衬底上，然后通过聚焦离子束（FIB 双束 FEI Helios 600i, 30 keV, 100 pA）在上层金层上刻蚀出 3×3 的纳米孔超表面阵列，其 SEM 俯视图如图 4.3 所示。通过调整刻蚀参数，纳米孔的加工长度可以从 1μm 调整到 2.5μm，其刻蚀深度被设定为 70nm。这里超微腔阵列中每个纳米孔超表面的尺寸为 100μm × 100μm。接下来，通过 FTIR 光谱仪，我们在常温下测得到了超微腔阵列在 x 极化光激发下的红外吸收谱，如图 4.2 (d)所示，可以看到实验结果与仿真结果可以完美符合。随着周期 Py 与孔长 L 的增加，超微腔结构的吸收峰从 7.6μm 逐渐红移至 12μm，验证了热辐射芯片的红外光谱特性及作为多波长，极化选择红外辐射源的可行性。另外，实验中超微腔阵列的吸收峰的 Q 值与仿真结果相比较低，这是由于实验加工误差引起的。

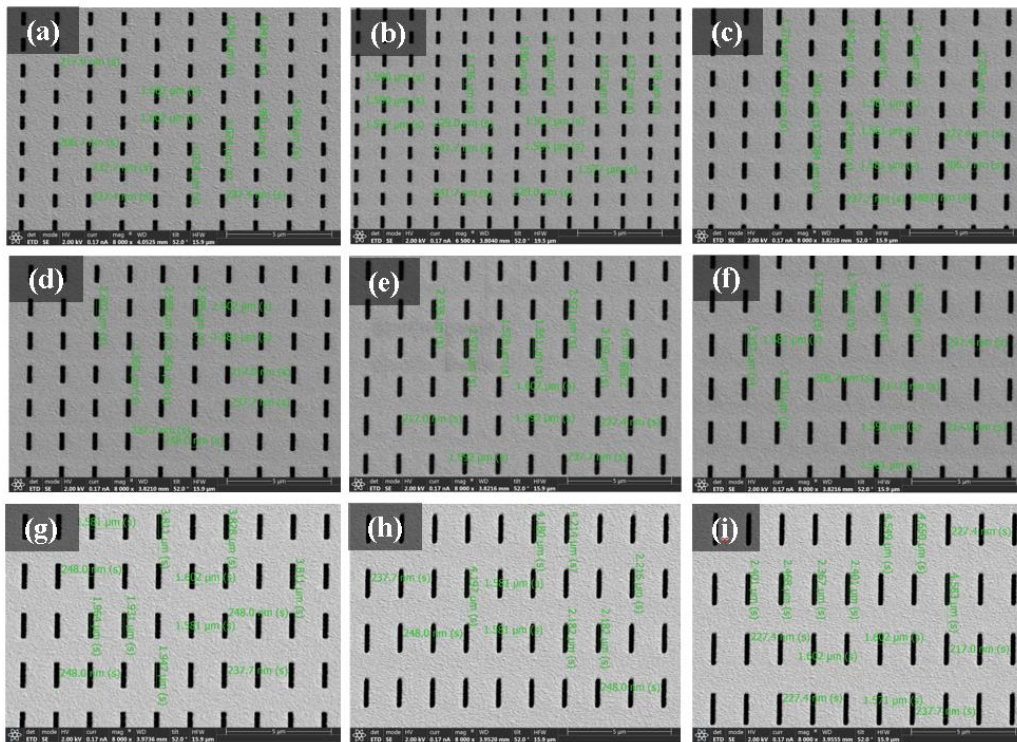


图 4.3 超微腔辐射阵列样品俯视 SEM 图：(a-i) 分别代表 1-9 号超微腔结构。

更进一步，我们采用长波红外热像仪(7.6-14μm)对热辐射芯片的红外热辐射特性进行了研究。这里，有机分子层被用作待测吸收层对红外吸收光谱探测方法进行实验验证。整体测量体系主要包括，电热台与热像仪，设备示意图如图 4.4 所示。电热台可对热辐射芯片进行均匀地电加热。热像仪则可将探测到的芯片热辐射信号转换为热像图以供分析。具体探测过程分为以下步骤：第一步，将电热台放置在样品升降台上，用于调整其

高度；再将热辐射芯片使用夹具固定在金属加热台上，将其均匀电加热至 100°C。然后通过升降架将热像仪的探测器置于热辐射芯片正上方，在垂直方向上拍摄单独超微腔阵列的热像图。第二步，将有机分子薄膜通过可移动支架固定于热辐射芯片的正上方，再次通过红外热像仪探测器对红外辐射信号进行探测，得到有机分子存在时超微腔阵列的热像图。此时，有机分子层与热辐射芯片并无直接接触，所以此探测过程可重复使用。上述两热像图中，超微腔阵列的辐射温度差异包含了有机分子的共振吸收光谱信息，通过量化地表征各个超微腔结构的辐射温度变化即可得到待测有机分子的等效吸收谱，探

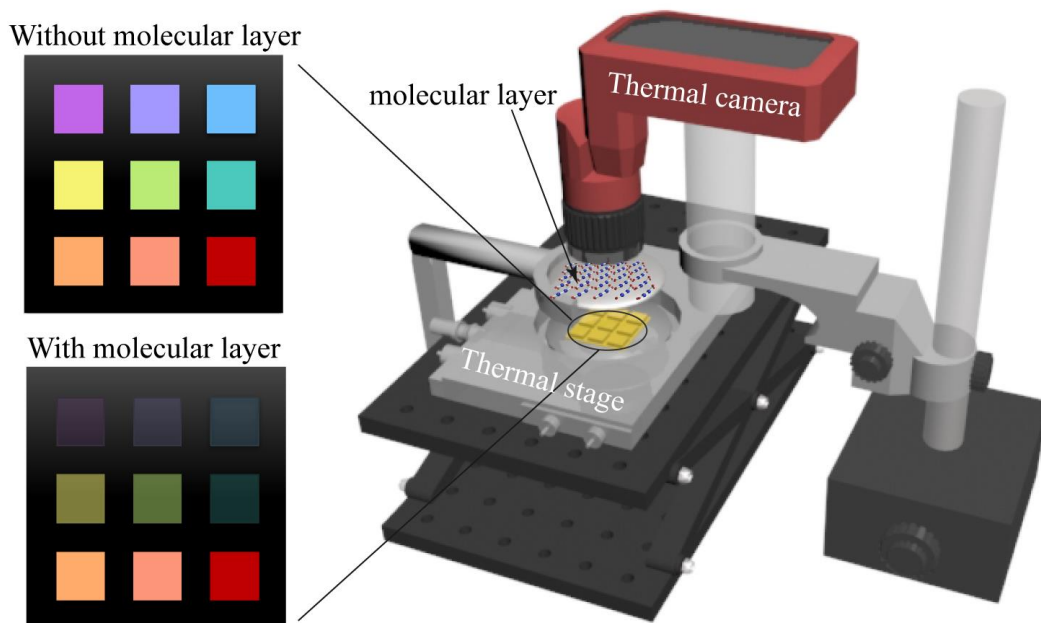


图 4.4 红外吸收光谱探测设备示意图：整体探测系统包括，热像仪与电加热台以及其他支撑设备；不同颜色的光，从紫色到红色代表了超微腔阵列的红外辐射波长从短波到长波的变化。

测示意图如图 4.2(e)所示。此设计得益于集成一体化的红外辐射源与光谱芯片，整体测量系统相较于传统红外光谱测量设备已大大简化，为片上传感器件设计提供了新思路。

首先，我们选择探测 PDMS 有机分子，其标准吸收谱如图 4.5 (e) 所示。基于 PDMS 分子层的标准吸收谱与图 4.2 (d)中的实验吸收谱，我们计算了 100°C加热条件下，超微腔阵列上方有无 PDMS 分子层时的热辐射能量，如图 4.5 (c)所示。两条曲线进行对比，可以看到当 PDMS 分子层放置于芯片上方时，由于有机分子层对热辐射信号的吸收，5-

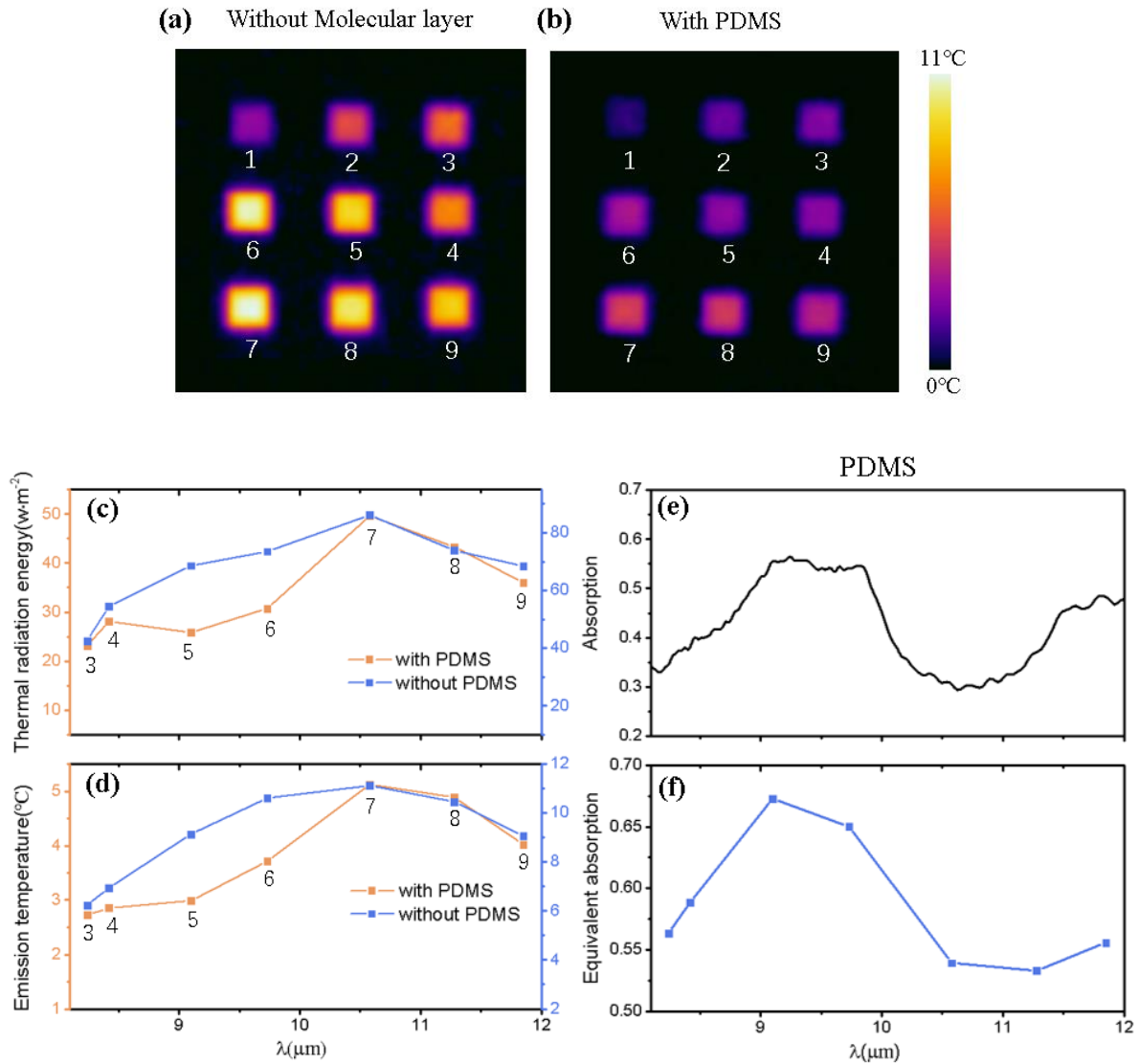


图 4.5 100°C下 PDMS 分子探测实例：(a) 无 PDMS 时的分子探测热像图；(b) 有 PDMS 时的分子探测热像图；(c) 有无 PDMS 分子时超微腔阵列的热辐射能量变化；(d) 有无 PDMS 分子时超微腔阵列的辐射温度变化；(e) 100°C下探测区间内 PDMS 分子的标准吸收谱；(f) PDMS 分子的等效吸收谱。

6号超微腔的热辐射能量有明显的降低。各个超微腔辐射模块的热辐射能量变化与有机分子在各个辐射波段内的共振吸收可一一对应。根据热像仪的成像原理，热像图中超微腔的辐射温度与其热辐射能量成正比。对应的，我们可通过热像图中超微腔阵列的辐射温度变化来解读其热辐射能量变化。那么待测有机分子在各个超微腔的辐射波长区间内的实验等效吸收率可由下式计算得到：

$$A = 1 - \frac{T_{em'}}{T_{em}} \quad (4.4)$$

这里, Tem' 和 Tem 分别为有无 PDMS 分子时, 超微腔辐射模块的辐射温度。在热成像实验中, 我们先将芯片置于热台上并加热至 100°C , 然后分别在热辐射芯片上方有无有机分子层时进行拍摄, 所得热像图分别如图 4.5 (a, b)所示。图 4.5 (a)中, 无 PDMS 分子层时, 具有不同辐射能力的超微腔辐射模块展现出对应的不同辐射温度。超微腔的热辐射能量越高, 其辐射温度也就越高。图 4.5 (b)中, 有 PDMS 分子层时, 我们可以看到, 超微腔阵列的辐射温度整体有所下降, 这是由于有机分子层除去特征吸收峰外在其余长波红外波段也存在部分吸收所导致的。其中 5, 6 号超微腔辐射模块的辐射温度与图 4.5 (a)中的辐射温度相比较, 下降得更为明显一点, 这意味着这两个超微腔辐射模块的辐射波段与 PDMS 分子的吸收共振波段相重合。根据上述两热像图, 我们可直观且快速地对 PDMS 分子的红外吸收谱进行大致的判断。为了得到更精确的数据, 我们分别提取出有无 PDMS 分子时对应的两热像图中, 每个超微腔辐射模块的平均辐射温度 Tem' 和 Tem , 如图 4.5 (d)所示。为了直观地体现超微腔阵列在不同辐射波段的探测作用, 我们分别将各个超微腔的平均辐射温度与其对应的中心辐射波长分别作为 y 和 x 轴。需要注意的是, 图中所示的辐射温度为减去背景辐射温度后的结果, 此数据处理办法可以去除超微腔结构外热像仪探测器探测范围内的有机分子层的自身辐射效果以及环境辐射。通过对比图 4.5 (c)和图 4.5 (d), 我们可以看到超微腔阵列的辐射温度与其热辐射能量的变化趋势在有无 PDMS 分子层时均保持一致, 验证了二者之间的正比关系。

根据式 (4.4), 我们可计算得到 PDMS 分子的实验等效吸收谱, 如图 4.5 (f)所示。可以看到, 实验上得到的 PDMS 等效吸收谱与 PDMS 标准吸收谱基本吻合, $9\text{-}10\mu\text{m}$ 的特征吸收波段在 PDMS 等效吸收谱中可以清晰地看到。而二者之间的差异主要来源于辐射模块的数量不足导致的光谱探测分辨率有限。进一步增加超微腔辐射模块的数量可以改善此问题。上述红外吸收光谱探测实验验证了所提出的探测方法的可行性, 通过热成像探测手段可以有效地还原有机分子共振吸收的分布情况以达到红外吸收光谱探测的目的。

4.4.2 多种分子的红外吸收光谱探测

为了体现所提出的红外吸收光谱探测方法的普适性, 我们还探测了其他三种不同的有机分子, ETFE, PTFE 和 PVDC, 具体探测结果分别如图 4.6-4.9 所示。图 4.6 (a-d)所示分别为无有机分子层, 有 ETFE 分子层, PTFE 分子层和 PDVC 分子层时, 拍摄所得

的热像图。将有无 ETFE 分子层时的两热像图进行对比,可以看出 ETFE 分子层存在时,1-6 号超微腔的辐射温度大幅下降,表明 1-6 号超微腔的辐射波长区间与 ETFE 分子特征吸收波段相重合。根据 ETFE 分子层的标准吸收谱,我们也计算了有无 ETFE 分子层时,超微腔辐射阵列的热辐射能量变化,如图 4.7(a)所示。同样的,1-6 号超微腔的热辐射能量在 ETFE 分子层置于热辐射芯片上方后,产生大幅下降,这与辐射温度变化相对应。根据 4.7(b)中各个超微腔的辐射温度变化,我们可以计算得到 ETFE 分子的等效吸收谱,如图 4.7(d)所示。ETFE 等效吸收谱中,7.6-10.2 μm 的吸收波段与标准吸收谱中的特征吸收波段相吻合。

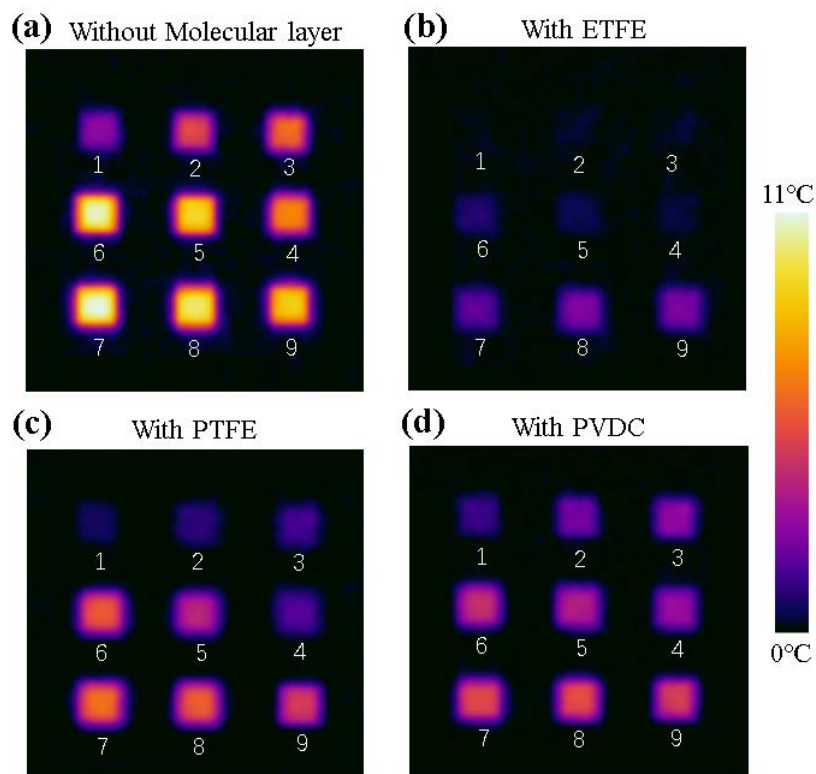


图 4.6 100 $^{\circ}\text{C}$ 下有机分子探测热像图: (a) 无有机分子层时的超微腔辐射阵列热像图; (b) 有 ETFE 时的超微腔辐射阵列热像图; (c) 有 PTFE 时的超微腔辐射阵列热像图; (d) 有 PVDC 时的超微腔辐射阵列热像图。

图 4.6 (a, c)所示为有无 PTFE 分子层时拍摄所得的热像图,其中 2-5 号超微腔的辐射温度由于 PTFE 分子层的吸收而降低,说明 2-5 号超微腔的辐射波段与分子吸收波段 7.9-9 μm 相重合。根据 PTFE 分子层的标准吸收谱,我们还计算了有无 PTFE 分子层时,超微腔辐射阵列的热辐射能量变化,如图 4.8 (a) 所示。2-5 号超微腔的热辐射能量在

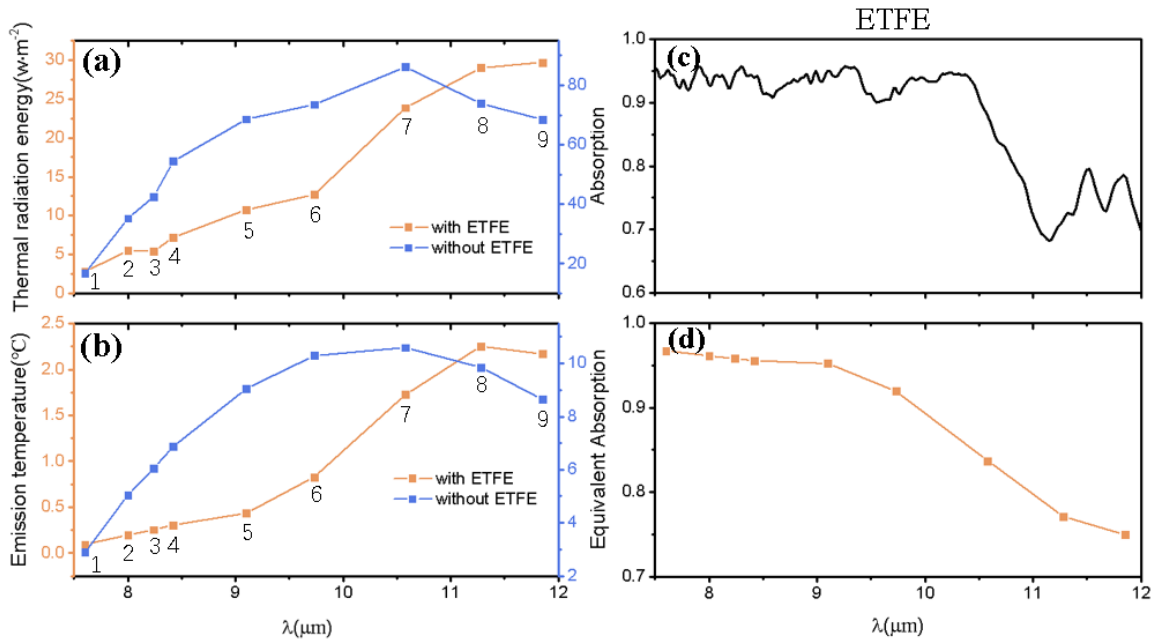


图 4.7 100°C下 ETFE 分子探测实例：(a) 有无 ETFE 分子时超构微腔阵列的热辐射能量变化；(b) 有无 ETFE 分子时超构微腔阵列的辐射温度变化；(c) 100°C下探测波段内的 ETFE 分子的标准吸收谱；(d) ETFE 分子的等效吸收谱。

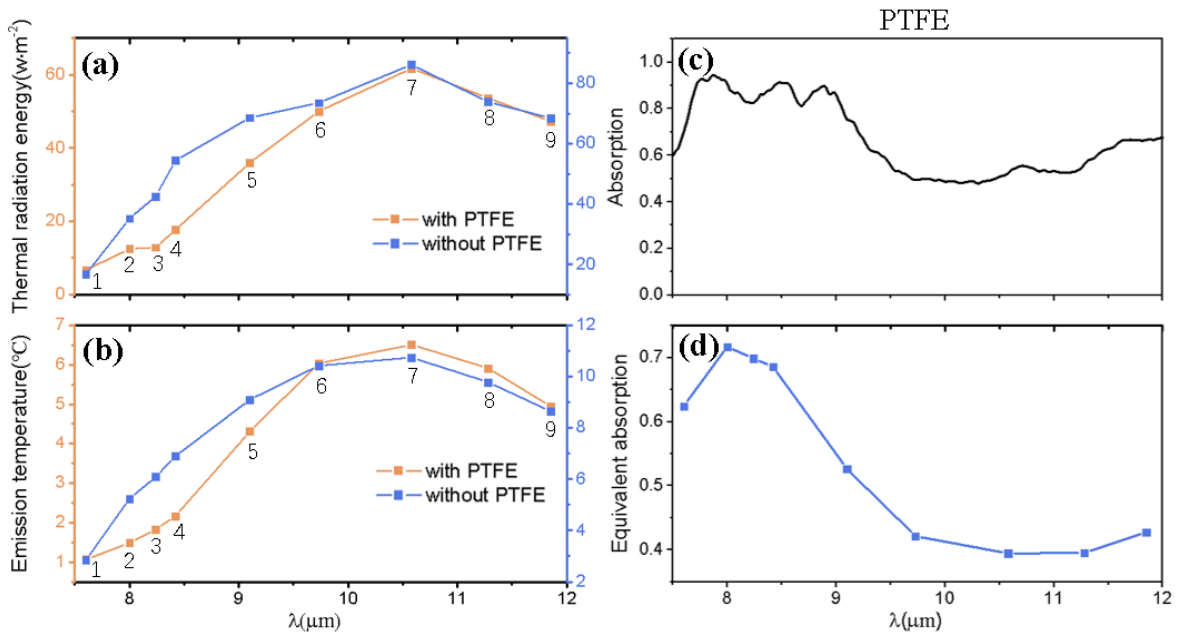


图 4.8 100°C下 PTFE 分子探测实例：(a) 有无 PTFE 分子时超构微腔阵列的热辐射能量变化；(b) 有无 PTFE 分子时超构微腔阵列的辐射温度变化；(c) 100°C下探测波段内的 PTFE 分子的标准吸收谱；(d) PTFE 分子的等效吸收谱。

PTFE 分子层置于热辐射芯片上方后，产生大幅下降，这与辐射温度变化一致。根据 4.8

(b) 中各个超微腔的辐射温度变化，我们可以计算得到 PTFE 分子的实验等效吸收谱，如图 4.8 (d)所示，此有机分子在 7.9-9 μm 的特征吸收波段可以清晰地展现。

图 4.6 (a, d)所示为有无 PVDC 分子时拍摄所得的热像图，其中 5-6 号超微腔的辐射温度由于 PVDC 分子的吸收而略有降低。根据 PVDC 分子层的标准吸收谱，我们计算了有无 PVDC 分子层时，超微腔辐射阵列的热辐射能量，如图 4.9 (a)所示。5-6 号超微腔的热辐射能量在 PVDC 分子层置于热辐射芯片上方后，产生小幅度下降，与辐射温度变化一致。根据 4.9 (b) 中各个超微腔的辐射温度变化，我们可以计算得到 PVDC 分子的实验等效吸收谱，如图 4.9 (d)所示。PVDC 分子的等效吸收谱与 PVDC 分子的标准吸收谱相吻合。从探测波段内的多种有机分子的等效吸收谱结果中，我们均可清晰地对应

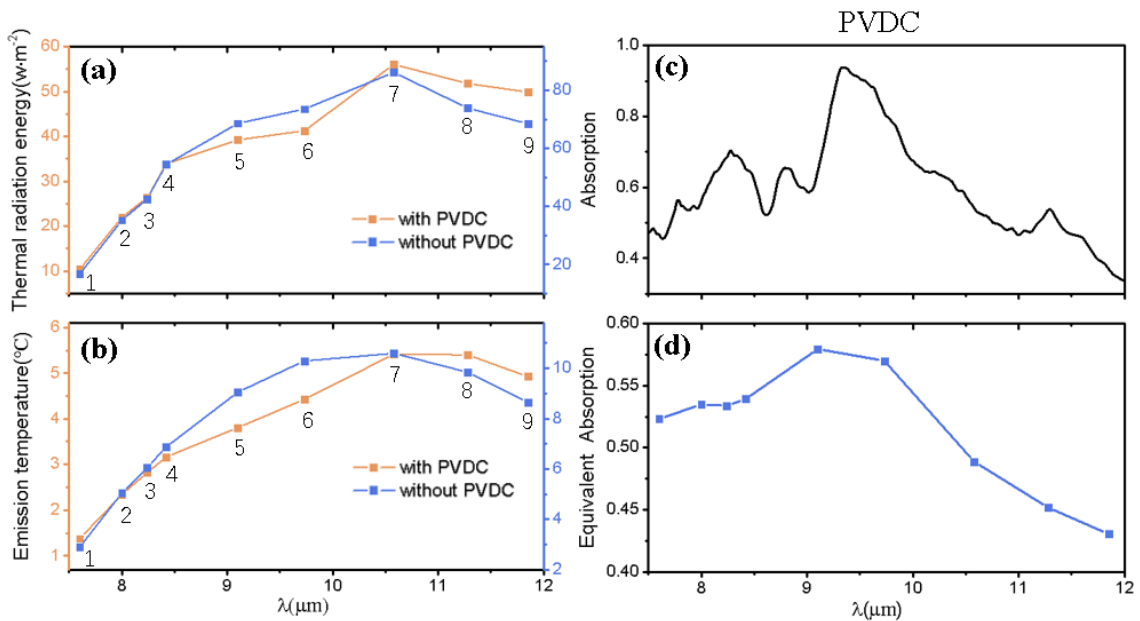


图 4.9 100 $^{\circ}\text{C}$ 下 PVDC 分子探测实例：(a) 有无 PVDC 分子时超构微腔阵列的热辐射能量变化；(b) 有无 PVDC 分子时超构微腔阵列的辐射温度变化；(c) 100 $^{\circ}\text{C}$ 下探测波段内的 PVDC 分子的标准吸收谱；(d) PVDC 分子的等效吸收谱。

出待测有机分子的共振吸收波段位置，验证了此红外吸收光谱探测方法的普适性。

另外需要注意的是，所提出的探测方法由于超微腔阵列的辐射峰在长波红外区域受限于金属的损耗，无法实现较高的 Q 值，所以探测的光谱分辨率有限。比如图 4.7 中，ETFE 分子在 11.5 μm 附近的线宽较窄的分子共振，无法通过热成像方法探测到。未来基于更高 Q 值的设计，比如基于电介质超表面的多 BIC 阵列，有望将此吸收光谱探测方法的光谱分辨率进行提升。综上所述，此基于热成像实现的小型集成化，低成本红外吸

收光谱探测方法可高效快速地提供待测样品的共振吸收光谱信息。另外，得益于大大简化的测量设备，此设计可灵活应用于多种片上探测场景，比如微区集成分子传感，环境监测和定点微区治疗等。

4.5 本章小结与展望

我们基于超微腔热辐射芯片提出了一种基于热成像实现的紧凑型集成化，低成本微区红外吸收光谱探测方法。通过采用长波热像仪，在有无有机分子层存在时，我们实现了对超微腔阵列的像素化热辐射性能分析，并基于此得到了待测有机分子的等效吸收谱。实验上，基于热成像我们成功实现了对多种有机分子的红外吸收光谱探测，探测结果均与理论预测相符合。这里，热辐射芯片可同时用作红外辐射源与光谱芯片，实现了探测设备的高度小型集成化，此方法在大大降低探测设备成本的同时也可实现对测量系统的大幅度简化。另外，探测样品无需与所设计的光谱芯片进行接触，所以光谱探测过程可重复进行。尽管所提出方法能实现的探测光谱分辨率有限，但未来通过优化等离子体结构或介质超表面设计可进一步改善此问题。基于上述探测优势，此集成红外吸收光谱探测方法有望用于片上小型集成化的有机分子探测，环境监测，食品安全监测与定点微区治疗等领域。

参考文献

- [1] P. R. Griffiths and J.A. de Haseth. *Fourier Transform Infrared Spectrometry*. John Wiley & Sons, UK, 2007.
- [2] B. H. Stuart. *Infrared Spectroscopy: Fundamentals and Applications*. John Wiley & Sons, New York, 2004.
- [3] H. Yang, S. Yang, J. Kong, A. Dong and S. Yu. Obtaining information about protein secondary structures in aqueous solution using Fourier transform IR spectroscopy. *Nature Protocols*, **10**, 382 (2015).
- [4] G. Dayal, X. Y. Chin, C. Soci and R. Singh. High-Q Plasmonic Fano Resonance for Multiband Surface-Enhanced Infrared Absorption of Molecular Vibrational Sensing. *Advanced Optical Materials*, **5**, 1600559 (2017).
- [5] F. Neubrech, C. Huck, K. Weber, A. Pucci and H. Giessen. Surface-Enhanced Infrared Spectroscopy Using Resonant Nanoantennas. *Chemical Reviews*, **117**, 5110 (2017).
- [6] Z. W. Long, Y. Z. Liang, L. Feng, H. Zhang, M. Z. Liu and T. Xu. Low-cost and high sensitivity glucose sandwich detection using a plasmonic nanodisk metasurface. *Nanoscale*, **12**, 10809 (2020).
- [7] J. K. Xu, Z. H. Ren, B. W. Dong, X. M. Liu, C. X. Wang, Y. H. Tian, et al. Nanometer-Scale Heterogeneous Interfacial Sapphire Wafer Bonding for Enabling Plasmonic-Enhanced Nanofluidic Mid-Infrared Spectroscopy. *ACS Nano*, **14**, 12159 (2020).
- [8] G. Palermo, M. Rippa, Y. Conti, A. Vestri, R. Castagna, G. Fusco, et al. Plasmonic Metasurfaces Based on Pyramidal Nanoholes for High-Efficiency SERS Biosensing. *ACS Applied Materials & Interfaces*, **13**, 43715 (2021).
- [9] H. Zhou, D. X. Li, X. D. Hui and X. J. Mu. Infrared metamaterial for surface-enhanced infrared absorption spectroscopy: pushing the frontier of ultrasensitive on-chip sensing. *International Journal of Optomechatronics*, **15**, 97 (2021).
- [10] X. D. Hui, C. Yang, D. X. Li, X. M. He, H. Huang, H. Zhou, et al. Infrared Plasmonic Biosensor with Tetrahedral DNA Nanostructure as Carriers for Label-Free and Ultrasensitive Detection of miR-155. *Advanced Science*, **8**, 2100583 (2021).
- [11] A. John-Herpin, A. Tittl, L. Kühner, F. Richter, S. H. Huang, G. Shvets, et al. Metasurface-Enhanced Infrared Spectroscopy: An Abundance of Materials and Functionalities. *Advanced Materials*, 2110163 (2022).
- [12] X. L. Miao, T. S. Luk and P. Q. Liu. Liquid-Metal-Based Nanophotonic Structures for High-Performance SEIRA Sensing. *Advanced Materials*, **34**, 2107950 (2022).
- [13] A. Tittl, A. Leitis, M. K. Liu, F. Yesilkoy, D. Y. Choi, D. N. Neshev, et al. Imaging-based molecular barcoding with pixelated dielectric metasurfaces. *Science*, **360**, 1105 (2018).
- [14] A. Aigner, A. Tittl, J. Wang, T. Weber, Y. Kivshar, S. A. Maier, et al. Plasmonic bound states in the continuum to tailor light-matter coupling. *Science advances*, **8**, eadd4816 (2022).
- [15] V. Di Meo, A. Crescitelli, M. Moccia, A. Sandomenico, A. M. Cusano, M. Portaccio, et al. Pixelated metasurface for multiwavelength detection of vitamin D. *Nanophotonics*, **9**, 3921 (2020).
- [16] X. C. Tan, H. Zhang, J. Y. Li, H. W. Wan, Q. S. Guo, H. B. Zhu, et al. Non-dispersive infrared multi-gas sensing via nanoantenna integrated narrowband detectors. *Nature Communications*, **11**, 5245 (2020).

- [17] Z.-Y. Yang, S. Ishii, T. Yokoyama, D. Thang Duy, M.-G. Sun, P. S. Pankin, et al. Narrowband Wavelength Selective Thermal Emitters by Confined Tamm Plasmon Polaritons. *Acs Photonics*, **4**, 2212 (2017).
- [18] T. D. Dao, S. Ishii, A. T. Doan, Y. Wada, A. Ohi, T. Nabatame, et al. An On-Chip Quad-Wavelength Pyroelectric Sensor for Spectroscopic Infrared Sensing. *Advanced Science*, **6**, 1900579 (2019).
- [19] Z. Wang, J. K. Clark, Y.-L. Ho, B. Vilquin, H. Daiguji and J.-J. Delaunay. Narrowband Thermal Emission Realized through the Coupling of Cavity and Tamm Plasmon Resonances. *Acs Photonics*, **5**, 2446 (2018).
- [20] M. He, J. R. Nolen, J. Nordlander, A. Cleri, N. S. McIlwaine, Y. Tang, et al. Deterministic inverse design of Tamm plasmon thermal emitters with multi-resonant control. *Nature Materials*, **20**, 1663 (2021).
- [21] M. Makhsiyani, P. Bouchon, J. Jaeck, J. L. Pelouard and R. Haider. Shaping the spatial and spectral emissivity at the diffraction limit. *Applied Physics Letters*, **107**, 251103 (2015).
- [22] J. Xu, J. Mandal and A. P. Raman. Broadband directional control of thermal emission. *Science*, **372**, 393 (2021).
- [23] Y. K. Gong, K. Li, N. Copner, H. Liu, M. Zhao, B. Zhang, et al. Integrated and spectrally selective thermal emitters enabled by layered metamaterials. *Nanophotonics*, **10**, 1285 (2021).
- [24] Z. J. Coppens and J. G. Valentine. Spatial and Temporal Modulation of Thermal Emission. *Advanced Materials*, **29**, 1701275 (2017).
- [25] A. Lochbaum, Y. Fedoryshyn, A. Dorodnyy, U. Koch, C. Hafner and J. Leuthold. On-Chip Narrowband Thermal Emitter for Mid-IR Optical Gas Sensing. *Acs Photonics*, **4**, 1371 (2017).
- [26] X. Zhang, H. Liu, Z. G. Zhang, Q. Wang and S. N. Zhu. Controlling thermal emission of phonon by magnetic metasurfaces. *Scientific Reports*, **7**, 41858 (2017).
- [27] X. Zhang, Z. G. Zhang, Q. Wang, S. N. Zhu and H. Liu. Controlling Thermal Emission by Parity-Symmetric Fano Resonance of Optical Absorbers in Metasurfaces. *Acs Photonics*, **6**, 2671 (2019).
- [28] F. Zhong, K. Ding, Y. Zhang, S. Zhu, C. T. Chan and H. Liu. Angle-Resolved Thermal Emission Spectroscopy Characterization of Non-Hermitian Metacrystals. *Physical Review Applied*, **13**, 014071 (2020).
- [29] J. Yang, W. Du, Y. S. Su, Y. Fu, S. X. Gong, S. L. He, et al. Observing of the super-Planckian near-field thermal radiation between graphene sheets. *Nature Communications*, **9**, 4033 (2018).
- [30] D. Li, X. Liu, W. Li, Z. H. Lin, B. Zhu, Z. Z. Li, et al. Scalable and hierarchically designed polymer film as a selective thermal emitter for high-performance all-day radiative cooling. *Nature Nanotechnology*, **16**, 153 (2021).
- [31] X. B. Yin, R. G. Yang, G. Tan and S. H. Fan. Terrestrial radiative cooling: Using the cold universe as a renewable and sustainable energy source. *Science*, **370**, 786 (2020).
- [32] H. Z. Zhu, Q. Li, C. N. Tao, Y. Hong, Z. Q. Xu, W. D. Shen, et al. Multispectral camouflage for infrared, visible, lasers and microwave with radiative cooling. *Nature Communications*, **12**, 1805 (2021).
- [33] S. N. Zeng, S. J. Pian, M. Y. Su, Z. N. Wang, M. Q. Wu, X. H. Liu, et al. Hierarchical-morphology metafabric for scalable passive daytime radiative cooling. *Science*, **373**, 692 (2021).
- [34] D. Franklin, S. Modak, A. Vazquez-Guardado, A. Safaei and D. Chanda. Covert infrared image encoding

- through imprinted plasmonic cavities. *Light: Science & Applications*, **7**, 93 (2018).
- [35] H. Yuan, H. Zhang, K. W. Huang, Y. Cheng, K. Wang, S. T. Cheng, et al. Dual-Emitter Graphene Glass Fiber Fabric for Radiant Heating. *ACS Nano*, **16**, 2577 (2022).
- [36] F. B. Barho, F. Gonzalez-Posada, M. Bomers, A. Mezy, L. Cerutti and T. Taliercio. Surface-Enhanced Thermal Emission Spectroscopy with Perfect Absorber Metasurfaces. *ACS Photonics*, **6**, 1506 (2019).
- [37] K. Nakagawa, Y. Shimura, Y. Fukazawa, R. Nishizaki, S. Matano, S. Oya, et al. Microemitter-Based IR Spectroscopy and Imaging with Multilayer Graphene Thermal Emission. *Nano Letters*, **22**, 3236 (2022).
- [38] Q. Chu, F. Zhang, Y. Zhang, T. Qiao, S. Zhu and H. Liu. Integrated thermal emission microchip based on meta-cavity array. *Nanophotonics*, **11**, 4263 (2022).
- [39] M. Song, L. Feng, P. Huo, M. Liu, C. Huang, F. Yan, et al. Versatile full-colour nanopainting enabled by a pixelated plasmonic metasurface. *Nature Nanotechnology*, **18**, 71 (2023).

第五章 多自由度光控热辐射动态调控研究

红外表面热辐射的精确控制对于红外探测以及热管理应用至关重要。基于超表面，对红外热辐射特性的灵活调控已经得到了广泛的研究。然而，目前已提出的热辐射器件设计尚未实现对微区表面热辐射在极化，波长，时间与空间上的多自由度动态调控，这对于自适应热管理和热电探测应用很重要。本章节提出了一种新型超微腔结构，通过在前两章的超微腔结构设计中添加光栅结构，使光栅与纳米孔超表面之间形成一种新型超微腔。此设计可同时实现可见至近红外波段的光吸收调控，以及红外波段的表面热辐射调控。通过激光调制，红外热辐射调控可转移至可见至近红外波段的光吸收调控上，实现光控热辐射动态调控，可大幅度提升其调控自由度。光吸收带来的光热效应使得超微腔结构可用作微型加热器，实现快速且均匀的升温，为上层纳米孔超表面的红外热辐射提供了可调的热源。在激光加热实验中，纳米孔超表面在动态热像图中展示了其随时间逐渐变化的辐射温度，也对应着随之调控的热辐射强度，展现了激光调控热辐射的快速时间响应。通过对激光波长，功率，极化以及时间上的调控，此设计实现了多自由度调控下的微区红外光控热辐射，为新一代的光控热辐射研究以及相关热管理应用和热电器件的发展提供了新的研究平台。

5.1 引言

近年来，等离激元超表面[1-6]由于其对光学性能的出色调控已获得了极大关注。当受到入射光激发时，等离激元共振可以看做是金属与周围境界面上自由电子的集体振荡，其能量通过辐射和非辐射通道转化为散射光和热能。等离激元结构中的热能来源于非弹性电子-电子和电子-声子碰撞，基于其光热效应[7-9]（热等离激元效应），纳米尺度下的微型加热器研究已被提出。通过等离激元吸收超表面[16-18]的设计，局域共振结构可通过吸收电磁波从而产生局部热源，提供需求热梯度，这在光热治疗[10-12]和热光电器件[13-15]等领域中具有较高的应用价值。另外，根据基尔霍夫热辐射定律[19]，在热平衡状态下，材料的辐射率等于其吸收率。因此，等离激元超表面吸收器也常用于各种红外应用，如热辐射器[20-25]、太阳能电池[26-28]和光电探测器[29-31]。

虽然等离激元超表面在可见光和红外领域产生了很多应用，如完美吸收器[32, 33]和红外传感[34, 35]，但是在微区红外热辐射调控方面的应用还有待探索，其中精准控制材

料表面热辐射和对热辐射的动态调控对于自适应热管理[36, 37]和热伪装应用[38]的发展十分重要。目前常用的动态调控手段主要包括, 1. 通过 VO_2 和 GST 等相变材料或石墨烯材料实现对材料自身性质的电调控或温控, 以此实现对光学性能的动态调控; 2. 通过机械应变、紫外线照射和飞秒激光脉冲激发等外部手段来实现对光学响应的动态调控。基于上述调控手段, 尚未实现对微区表面热辐射在波长, 极化, 时间和空间上的多自由度动态调控。针对此研究需求, 我们在超微腔结构[39]的基础上添加光栅结构, 通过底层的光栅实现对激光波长和极化的筛选。同时调控激光的波长, 极化, 功率以及照射时间可以实现对超微腔结构在可见至近红外波段的光吸收调控, 进而通过光热效应对红外表面热辐射进行动态调控。基于激光调制, 此设计可以将红外热辐射调控转移至可见至近红外的光吸收调控维度上, 大幅提升了调控自由度, 实现了对微区表面热辐射在波长、极化、时间和空间上的多自由度动态调控。通过多帧热像视频可以观测到激光调制下的快速光响应以及热辐射随时间变化的动态调控过程。此设计为微区动态热管理, 微区光热治疗等研究领域的发展提供了新的思路。

5.2 超微腔结构设计思路与方法

所提出的新型超微腔结构中的上层纳米孔超表面可对红外波段的 FP 腔模式进行调控从而实现红外热辐射调控。此超微腔结构中的下层光栅超表面则可实现对可见至近红外波段的 FP 腔模式的调控, 以达到对光栅方向入射光的激发极化方向与共振吸收波长的选择效果。具体的, 新型超微腔结构由上层纳米孔超表面, 中间的 Si 层以及底部的 Au 光栅超表面组成, 如图 5.1(a)所示。对于上层纳米孔超表面, 我们将沿 x 轴方向的单元周期和纳米孔的宽度固定为 $P_x=1.5\mu\text{m}$, $w=0.2\mu\text{m}$ 。纳米孔的长度取决于沿 y 轴方向的单元周期, 定义为 $L=P_y*0.6$, $P_y=2.6\mu\text{m}$ 。此纳米孔设计是为了实现在长波红外波段的共振辐射。对于下层的光栅超表面, 我们将单元周期 P_g 设置为 400nm, 空气间隙宽度 W_g 与金属宽度 W_m 分别设置为 100nm 和 300nm, 以实现可见至近红外波段(0.6~1 μm)的极化选择光吸收效果, 如图 5.1(b)所示。中间层 Si 的厚度设置为 0.96 μm 。我们选择石英片(厚度为 500 μm)作为衬底, 对 0.6~1 μm 波段的光具有良好的透光性。

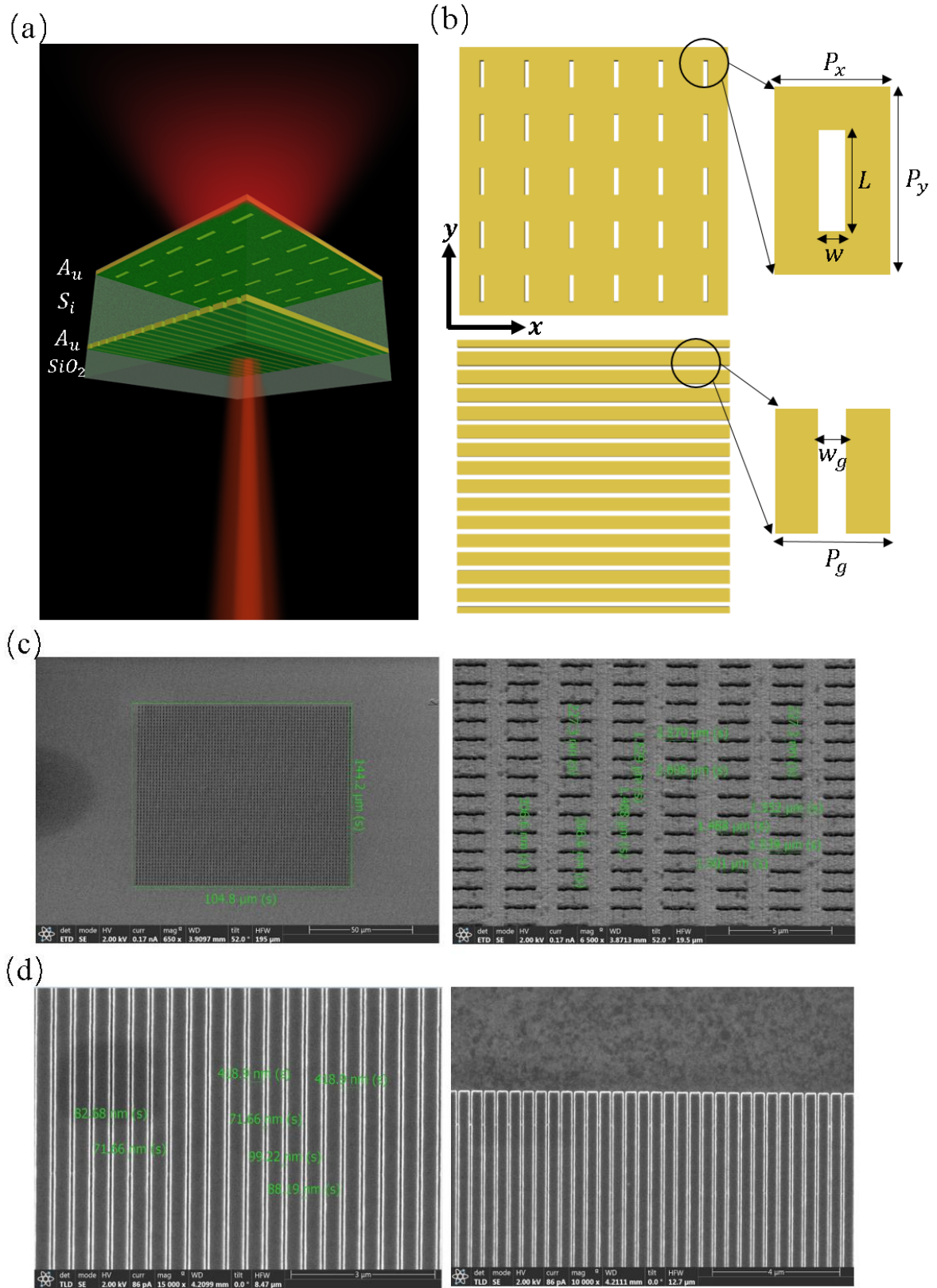


图 5.1 新型超微腔结构的多自由度热辐射调控示意图：(a) 基于激光调制的热辐射调控示意图；(b) 上层红外纳米孔超表面以及底层光栅超表面的结构示意图；(c) 红外纳米孔超表面的俯视 SEM 图及放大的细节图；(d) 光栅结构的俯视 SEM 图及放大的细节图。

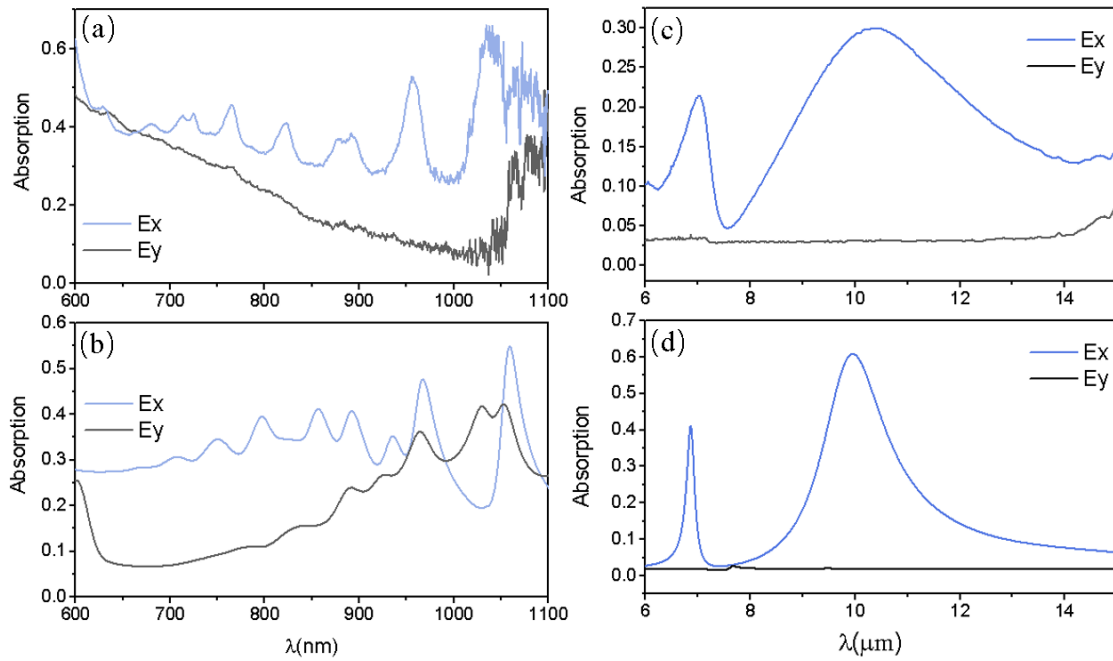


图 5.2 超微腔结构在可见至近红外以及长波红外波段的光谱调控：(a) 0.6~1.1 μm 波段内的光从底层光栅入射时，样品的实验光吸收谱；(b) 0.6~1.1 μm 波段内的光从底部光栅入射时，样品的仿真吸收谱；(c) 6~16 μm 波段内的光从上层纳米孔超表面入射时，样品的实验红外吸收谱；(d) 6~16 μm 波段内的光从上层纳米孔超表面入射时，样品的仿真红外吸收谱。

5.3 光谱仿真与理论分析

如图 5.1(a)所示，底层光栅超表面与上层纳米孔超表面之间形成了一个 FP 腔，光分别从上下两表面入射时，可分别在可见至近红外波段和长波红外波段对 FP 腔模式进行调控，从而同时实现 0.7~1 μm 波段内的可调的光吸收与 7.6~14 μm 波段内可调的红外吸收（热辐射）。我们分别对所设计超微腔结构在可见至近红外波段的光吸收特性，光热转换效果和长波红外波段的热辐射特性通过 COMSOL 进行了数值模拟。这里，仿真计算包括两部分：1. 0.7~1 μm 波段内，光从底部光栅超表面入射时的吸收谱仿真和共振波长处的热传递仿真；2. 7.6~14 μm 波段内，光从顶部纳米孔超表面入射时的吸收谱仿真。

5.3.1 可见光至近红外波段的光吸收调控

首先对于可见至近红外波段，当 x 极化光从底部金光栅入射时，其极化方向与光栅平行，可以激发光栅结构，从而在 0.7~1 μm 波段内产生光吸收。此波段内多个共振吸收峰的出现则是由于光栅对于 FP 模式的调控，其共振峰的波长由 FP 腔的厚度以及底层

光栅结构的尺寸来共同决定，如图 5.2(b)所示。随着共振波长向长波区域移动，超微腔结构的光吸收基本呈逐步增强的趋势。然而，当 y 极化光从底部金光栅入射时，其极化方向与光栅垂直，底层光栅无法被激发，所以超微腔结构在 $0.7\sim 1\mu\text{m}$ 波段内的吸收率较低。

当 $0.7\sim 1\mu\text{m}$ 波段内的光入射到底层金光栅上时，入射光的能量被超微腔结构所吸收，由于材料中光损耗的存在，通过有效的光热转换超微腔结构成为了一个极化与波长可控的微型热源。通过每单位体积的平均耗散能量密度可以对其热分布进行计算与分析，具体可由下式进行计算[40-43]：

$$Qh = \frac{1}{2} \varepsilon_0 w \text{Im}\varepsilon(w) |E|^2 \quad (5.1)$$

其中 E 是电场， $\text{Im}\varepsilon(w)$ 是材料的虚部， Qh 与电场，谐振角频率 w 和虚部 $\text{Im}\varepsilon(w)$ 成正比。将 Qh 作为热传递方程中的热源，我们可对超微腔结构进行热传递分析：

$$C_p \rho \partial T / \partial t + \nabla \cdot (-k_c \nabla T) = Qh \quad (5.2)$$

其中， C_p 、 ρ 、 k_c 分别是材料的比热容、密度和热导率。此方程已被证明适用于纳米尺度的材料体系，其中薄膜的热导率参数需要进行相应地修改。以往的理论和实验研究表明，纳米尺度下薄膜的热导率会显著降低，因为结构内不同材料之间的界面散射效应阻碍了振动能量在界面间的传递[44]。在仿真计算中为简化问题，材料的比热容和密度仍设置与块状材料相同，本研究使用的热参数展示在表 5.1 中。这里我们选择 720nm 的入射光为示例来分析其热分布。热源 Qh 与电场强度成正比，所以我们首先仿真计算了在此波长下， x 极化光激发下的电场分布，如图 5.3(a) 所示，其中光栅区域的电场强度较强，其余在 Si 层中分布较为均匀。为了简化热传递分析过程，我们通过 COMSOL 软件进行了稳态热传递仿真，以求解超微腔结构中的热分布。这里，我们在单元结构的 x 和 y 方向上均设置周期边界，并在衬底的底部设置常温条件 $T = T_0$ ，其中 T_0 为 300K 的室温。当 x 极化光为入射光，入射光功率设置为 $10\mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ 时，超微腔结构中的平均耗散能量密度与温度分布的结果分别如图 5.3(b, c) 所示。可以看到， Au 光栅中的平均耗散能量密度较大，其余的均匀地分布在 Si 材料中，与电场强度分布一致。材料中的光损耗带来了升温效果，温度分布从光栅至 Si 层较为均匀，理论上超微腔结构可实现 36.2K 的升温。 y

极化光激发下的电场分布，如图 5.3(d) 所示，入射光基本被全反射，超微腔中的电场强度很弱，对应的平均耗散能量密度也较低，如图 5.3(e) 所示。当 y 极化入射光功率为 $10\mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ 时，此时理论上超微腔可实现仅 4.9K 的升温，如图 5.3(f) 所示。不同极化下的升温效果与图 5.2(b) 的光吸收结果一致。其余共振波长的光也会产生与 720nm 波长的光类似的热分布，随着其吸收强度的增强，其最终稳态下的升温效果也越好。当超微腔结构作为热源工作时，由于其温度的升高，顶部纳米孔超表面受热则会产生相应的红外热辐射，其热辐射强度与超微腔的升高温度成正比。

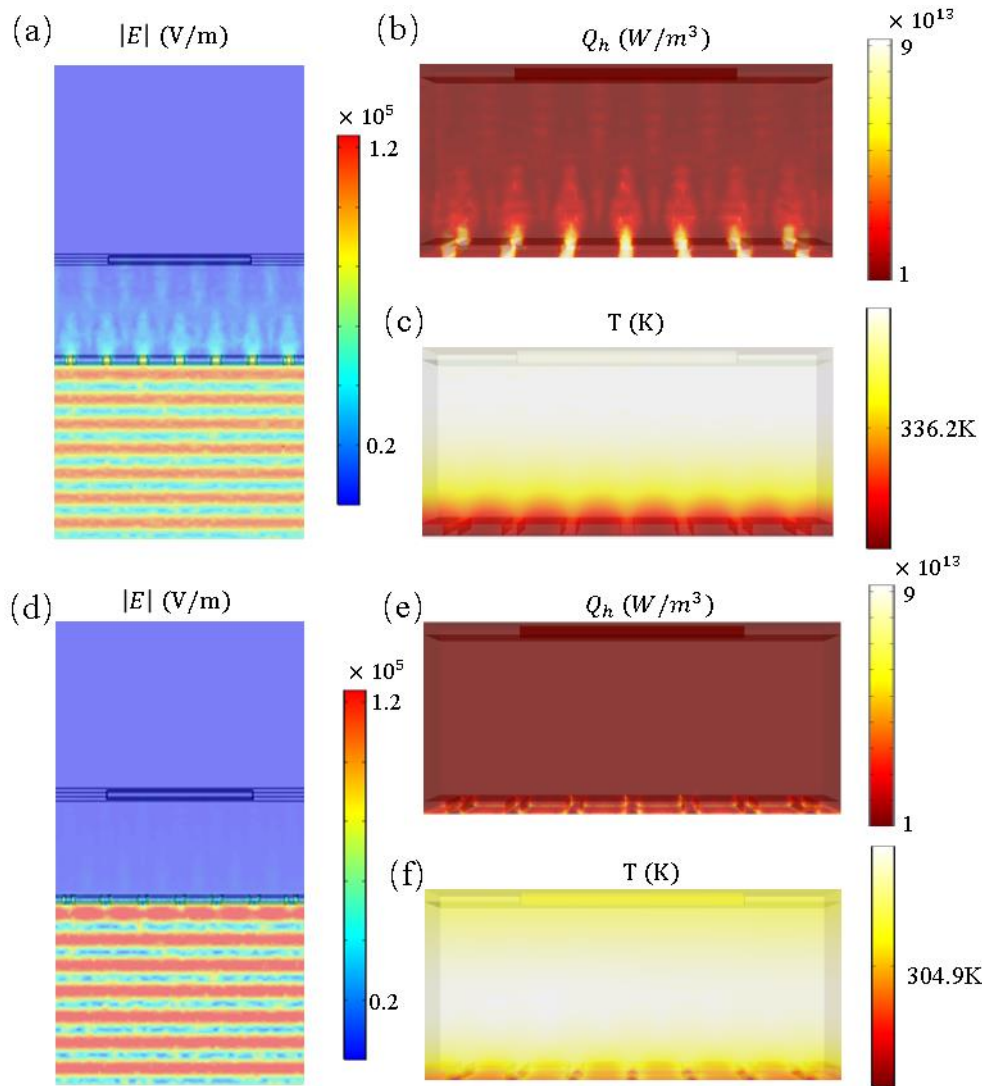


图 5.3 入射光波长为 720nm，入射功率为 $10\mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ 时，超微腔结构的热分布研究：(a) x 极化波激发下超微腔中的电场分布；(b) x 极化波激发下超微腔中的平均耗散能量密度分布；(c) x 极化波激发下超微腔中的温度分布示意图；(d) y 极化波激发下超微腔中的电场分布；(e) y 极化波激发下超微腔中的平均耗散能量密度分布；(f) y 极化波激发下超微腔中的温度分布示意图。

	$\rho(Kg/m^3)$	$C_p(J/(Kg \cdot K))$	$k_c(W/(m \cdot K))$
Gold	19300	129	139
Silicon	2330	712	148
Silica	2200	741	1
Air	1	353[K]/T	0.03

表 5.1 在传热模型中使用的材料热性能参数；

5.3.2 长波红外波段的表面热辐射调控

接下来针对红外波段7.6~14 μ m，当 x 极化光从顶层纳米孔超表面入射时，其极化方向与纳米孔短轴方向一致，纳米孔的谐振模式被激发，从而实现对 FP 腔模式的调控。无结构普通 FP 模式共振于 7.2 μ m，在纳米孔的调控下，超微腔结构可实现在 7 μ m和 10.2 μ m处的两个共振吸收峰，如图 5.2(d)所示。当 y 极化光从顶层纳米孔超表面入射时，其极化方向与纳米孔长轴方向一致，纳米孔的谐振模式不会被激发，那么对应的吸收也近乎为 0。这里，纳米孔长轴方向与光栅超表面垂直，这样可以把二者之间的相互影响降到最小。

5.4 样品制备与实验测量

超微腔样品制备包含多步工艺：首先使用电子束蒸发（KJLPVD75）在 SiO₂ 衬底上依次沉积 5nm 厚的 Ti 粘附层和 70nm 厚的 Au 层；再结合电子束光刻（EBL）和物理刻蚀技术制备了金光栅超表面；使用电子束蒸发沉积 5nm 厚的 Ti 粘附层于金光栅结构上；再使用等离子体增强化学气相沉积（PECVD）法沉积 0.96 μ m厚的 Si 层；使用电子束蒸发再次沉积 5nm 厚的 Ti 粘附层于 Si 层上；使用电子束蒸发沉积 70nm 厚的 Au 层于 Ti 粘附层上；最后通过聚焦离子束（FIB 双束 FEI Helios 600i，30 keV，100 pA）在最上层的 Au 表面上刻蚀出纳米孔超表面，刻蚀深度为 70nm。其中 EBL 流程具体包含以下步骤：1. 通过丙酮，乙醇，去离子水的清洗流程去除镀膜后样品上的附着杂质，再通过 HMDS 对样品表面进行 EBL 预处理；2. 光刻胶（正胶）旋涂；3. 进行 EBL 曝光处理；4. 曝光后的光刻胶显影；5. IBE 物理刻蚀；6. 去胶；图 5.1(c, d)分别是纳米孔超表面和金光栅超表面的 SEM 图，二者加工面积大小分别是300 μ m \times 300 μ m和100 μ m \times 150 μ m。

5.4.1 可见光至近红外以及长波红外波段的吸收谱测量

我们通过 ARM 角分辨光谱仪对所设计超微腔结构在可见至近红外波段的吸收光谱进行了测量,结果如图 5.2(a)所示。x 极化光激发下,超微腔结构在 700nm~950nm 波段范围内产生共振吸收,吸收共振峰的波长分别是, 720nm, 768nm, 826nm, 891nm 和 957nm。与之不同,在 y 极化光激发下,超微腔的吸收率较小,这与理论仿真结果相吻合。需要注意的是,共振吸收峰的位置在理论与实验结果中略有不同,这是因为仿真中 SiO₂ 衬底厚度设置与实际实验中 SiO₂ 衬底的厚度有差异且材料设置参数与实际参数略有差别。另外, y 极化光激发下的实验吸收结果与仿真吸收结果有所不同,原因来自于测量过程中偏振选择方向与 y 轴有所偏差,后续可以优化测量结果。接下来,我们使用 FTIR 光谱仪对所设计超微腔结构在长波红外波段的吸收光谱进行了测量,结果如图 5.2(c)所示。x 极化光激发下,超微腔结构在 7 μ m 和 10.2 μ m 波长处产生共振吸收,同时在 y 极化光激发下,吸收整体较小,这与理论仿真结果相符合。

5.4.2 激光调制下的动态热辐射调控

根据以上章节对超微腔结构光学性质的分析,我们接下来通过激光加热实验来验证激光动态调控红外热辐射的可行性。实验中,我们选择了波长为 720nm, 768nm, 826nm, 891nm 和 957nm 的激光,从底部金光栅垂直入射,同时通过长波热像仪对上层纳米孔超表面进行垂直拍摄。激光功率设置为 50mW,光斑直径约为 160 μ m。基于金光栅的极化选择特性,我们对不同波长的激光在 x, y 两种极化下分别对红外表面热辐射的调控进行了研究。这里,我们以 2s 为间隔,对热辐射调控的时间响应进行了实验测试,具体由热像图中的辐射温度变化来进行表征,具体结果如图 5.4 所示。对于各个波长, x 极化光激发下的稳定辐射温度均高于 y 极化光激发下的稳定辐射温度,这与图 5.2(a)的吸收谱结果相符合。当入射激光为 x 极化光时, 720nm, 768nm, 826nm, 891nm 和 957nm 波长的激光,可分别使超微腔结构实现, 1.4 $^{\circ}$ C, 1 $^{\circ}$ C, 1.2 $^{\circ}$ C, 2.5 $^{\circ}$ C 和 4 $^{\circ}$ C 的升温效果。具体的,超微腔结构的稳定辐射温度与光吸收效果随波长的变化展示在图 5.5 中,二者的变化趋势基本一致,验证了超微腔结构的光热转换效应与热辐射调控之间的直接关系。其中, 891nm 波长处升温效果比 826nm 要好,这是由于实验激光波长选择中存在 20nm 左右的峰宽,在以 891nm 为中心波长的波段内超微腔整体的光吸收较强。然而当入射激光为 y 极化光时,各个波长的激光,可使超微腔结构仅实现约 0.6~0.8 $^{\circ}$ C 的升温,这与 y

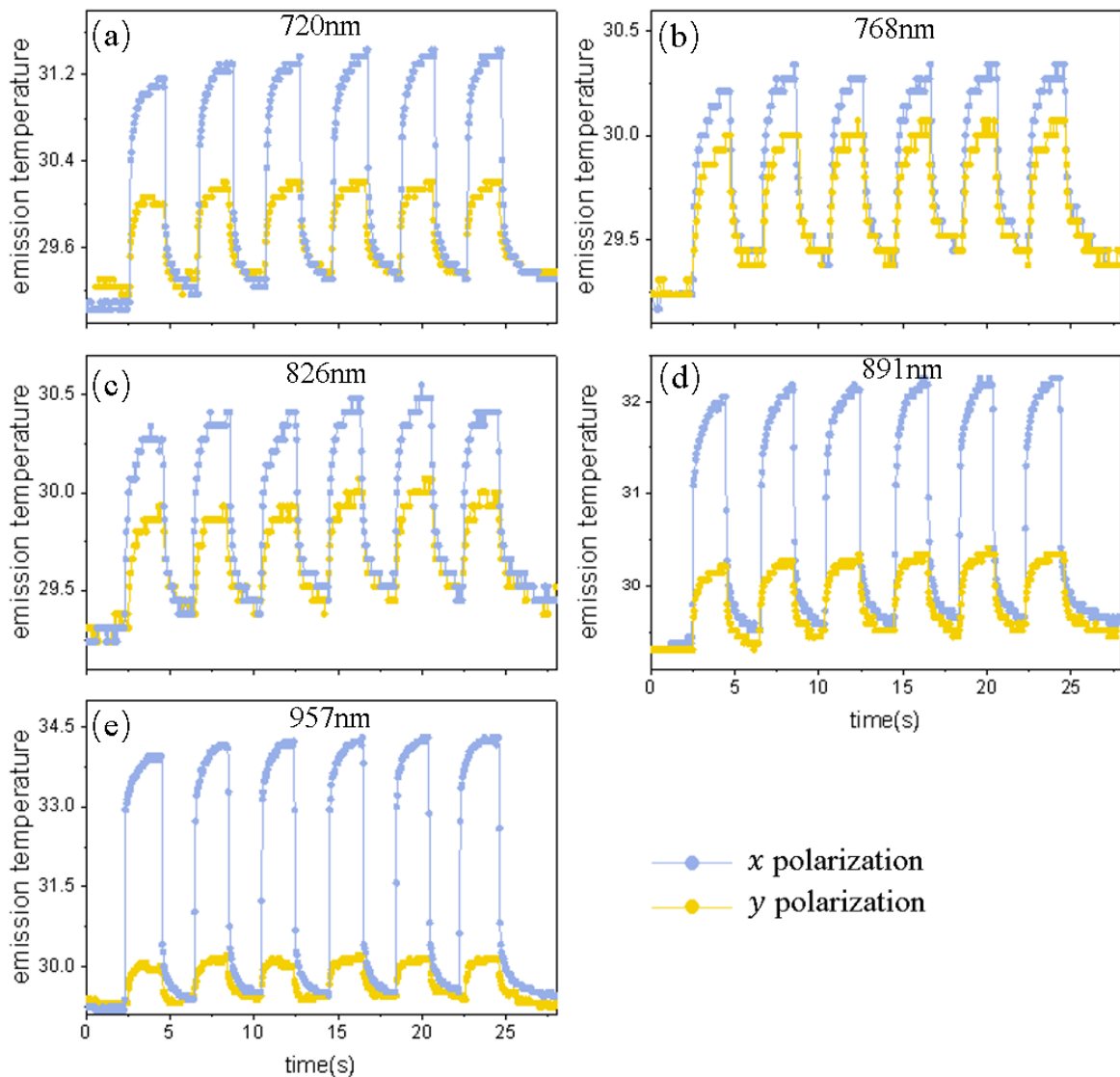


图 5.4 两种极化选择下，50mW 激光调控红外热辐射：(a) 入射光波长为 720nm 时，超微腔结构随时间的辐射温度变化；(b) 入射光波长为 768nm 时，超微腔结构随时间的辐射温度变化；(c) 入射光波长为 826nm 时，超微腔结构随时间的辐射温度变化；(d) 入射光波长为 891nm 时，超微腔结构随时间的辐射温度变化；(e) 入射光波长为 957nm 时，超微腔结构随时间的辐射温度变化。

极化光激发下的较低光吸收相对应。另外每个波长的激光激发下，超微腔结构均可实现快速升温，其快速的时间响应效果，可以通过随时间变化的热像图来观测，如图 5.6-5.10 所示。720nm 激光（x 极化）的激发下，超微腔结构可以在 0.047s（2.632s~2.679s）内完成快速升温，然后逐渐趋于稳定。在停止激光加热后，在 0.047s（4.698s~4.745s）内完成快速降温并趋于平稳。受限于热像仪的探测时间分辨率，实验中能够观测到的升降

温时间 (0.047s) 是有限的, 将来如果使用具有更高时间分辨率的热像仪, 有望进一步观测到更迅速的升降温效果。在 768nm 和 826nm 激光 (x 极化) 的激发下, 由于超微腔结构此时的吸收略低一些, 所以升温过程稍慢一些。768nm 激光加热下, 从 2.516s 到 2.8s, 纳米孔超表面逐渐在热像图中显露出来。826nm 激光加热下, 从 2.379s 到 2.629s, 纳米

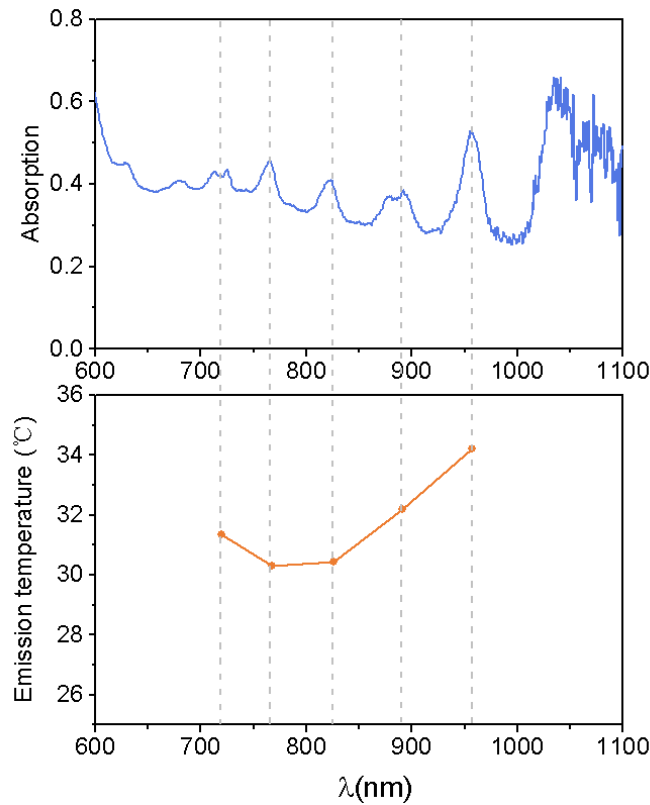


图 5.5 x 极化选择下, 50mW 激光调控下, 超微腔光吸收与稳定辐射温度随波长的变化。

孔超表面逐渐显露出其形状来。在 891nm 和 957nm 激光 (x 极化) 的激发下, 由于超微腔结构的吸收较高, 所以升温过程比 720nm 波长的激光加热过程要更迅速, 纳米孔超表面可以很快在热像图中显示出矩形辐射图案并稳定下来。不同激光波长选择下的降温过程较为类似, 需要 0.5~0.7s 的时间将温度降至室温。纳米孔超表面在热像图中的辐射温度的大小与其红外热辐射强度成正比。那么综上所述, 通过对激光极化, 波长以及加热时间的控制, 我们可通过纳米孔超表面对红外热辐射进行极化, 波长, 时间以及空间上的多自由度灵活调控。激光调制下的快速热响应效果, 可用于热开关等微区热管理应用。

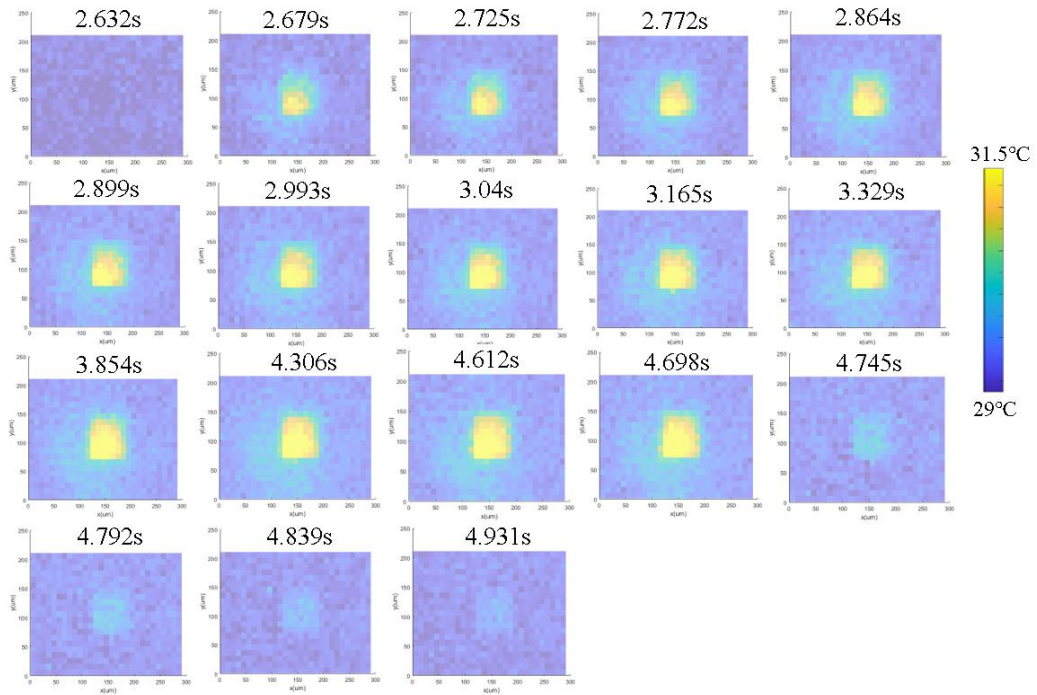


图 5.6 50mW, 720nm 波长激光 (x 极化) 加热下, 红外热像图随时间的变化。

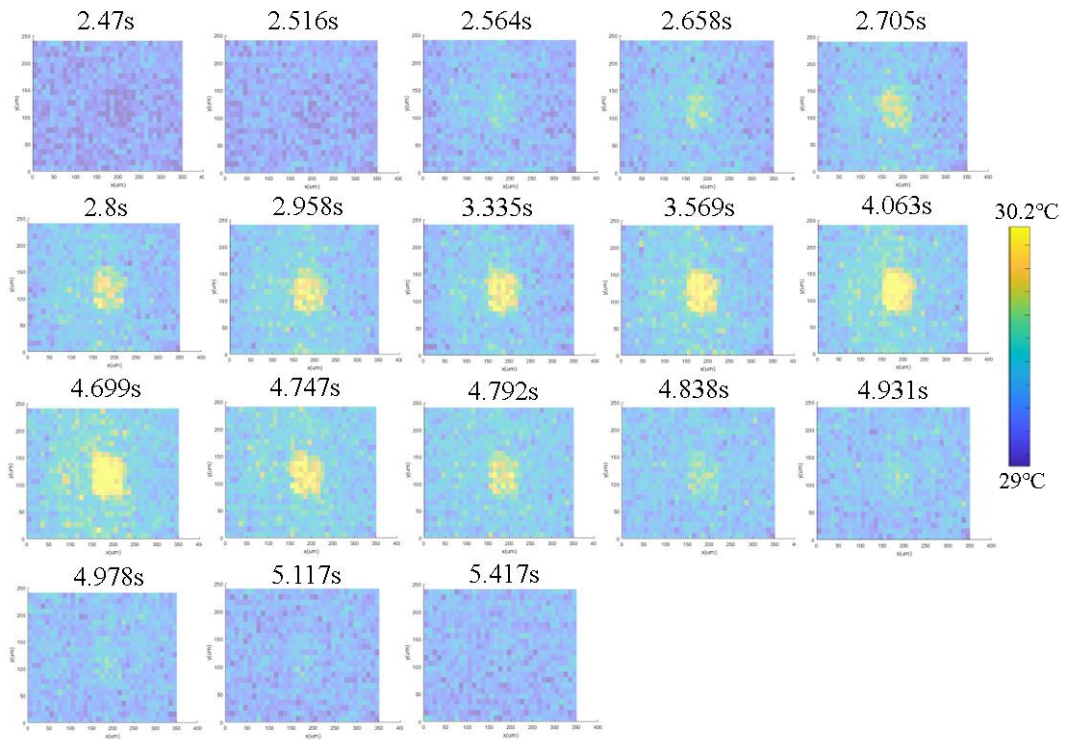


图 5.7 50mW, 768nm 波长激光 (x 极化) 加热下, 红外热像图随时间的变化。

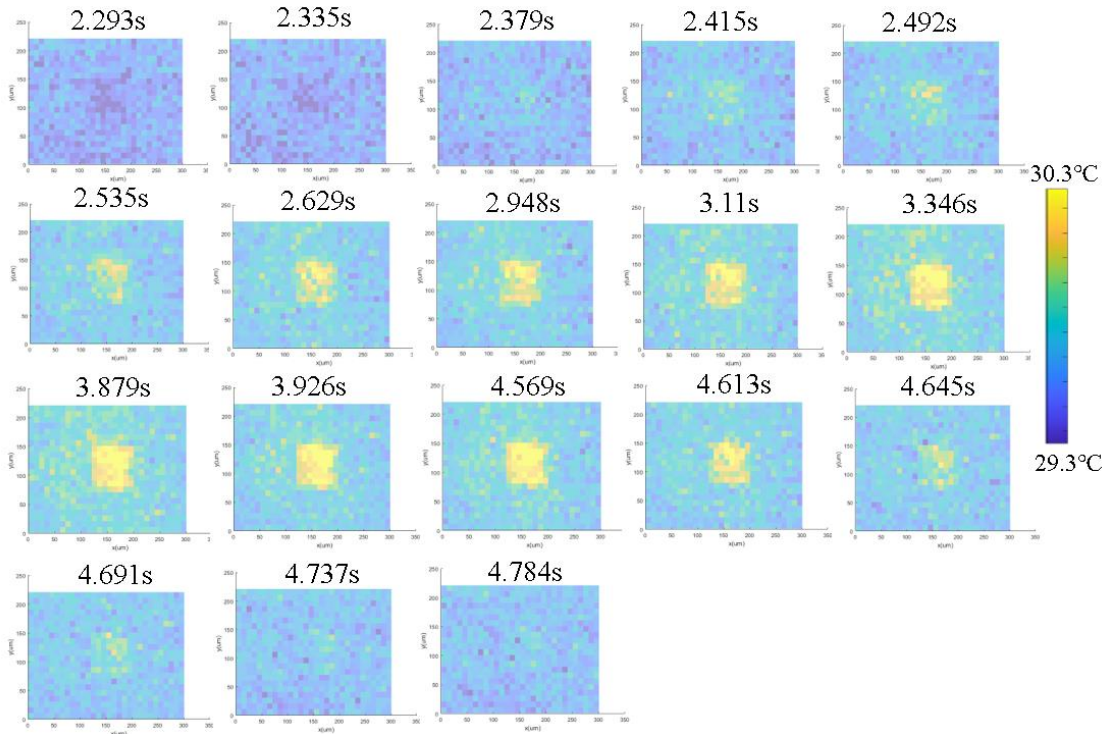


图 5.8 50mW, 826nm 波长激光 (x 极化) 加热下, 红外热像图随时间的变化。

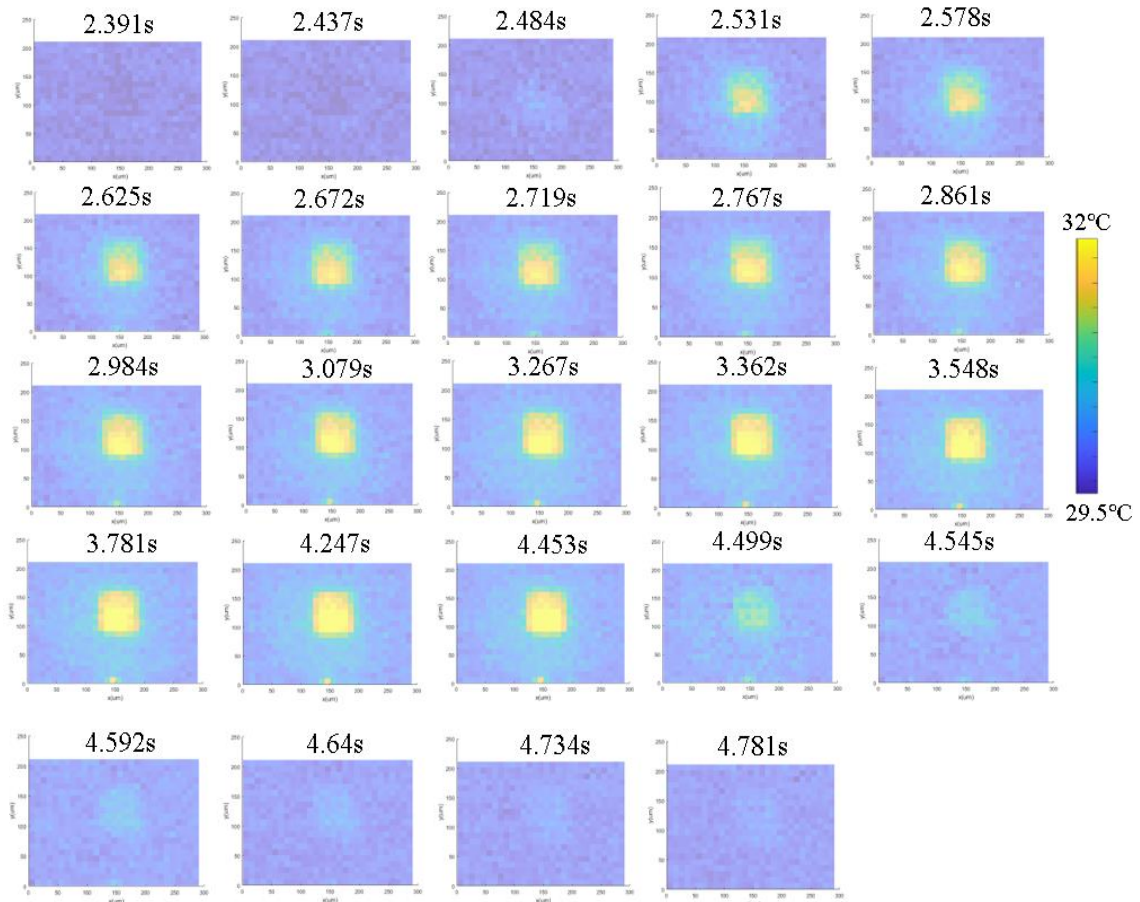


图 5.9 50mW, 891nm 波长激光 (x 极化) 加热下, 红外热像图随时间的变化。

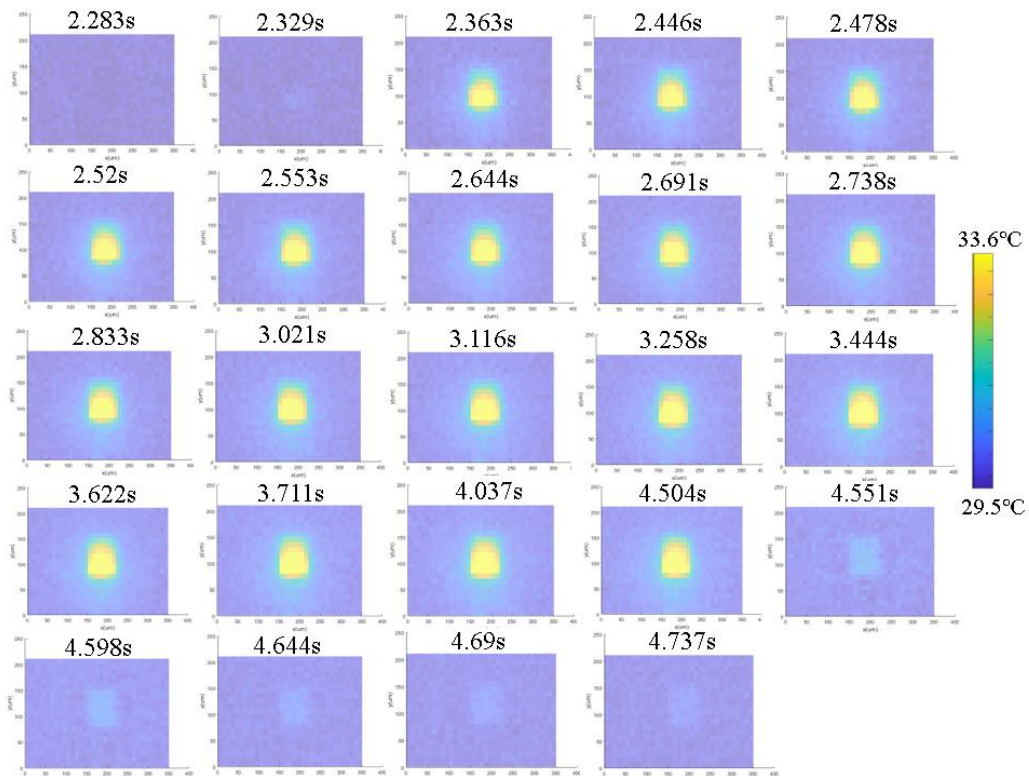


图 5.10 50mW, 957nm 波长激光 (x 极化) 加热下, 红外热像图随时间的变化。

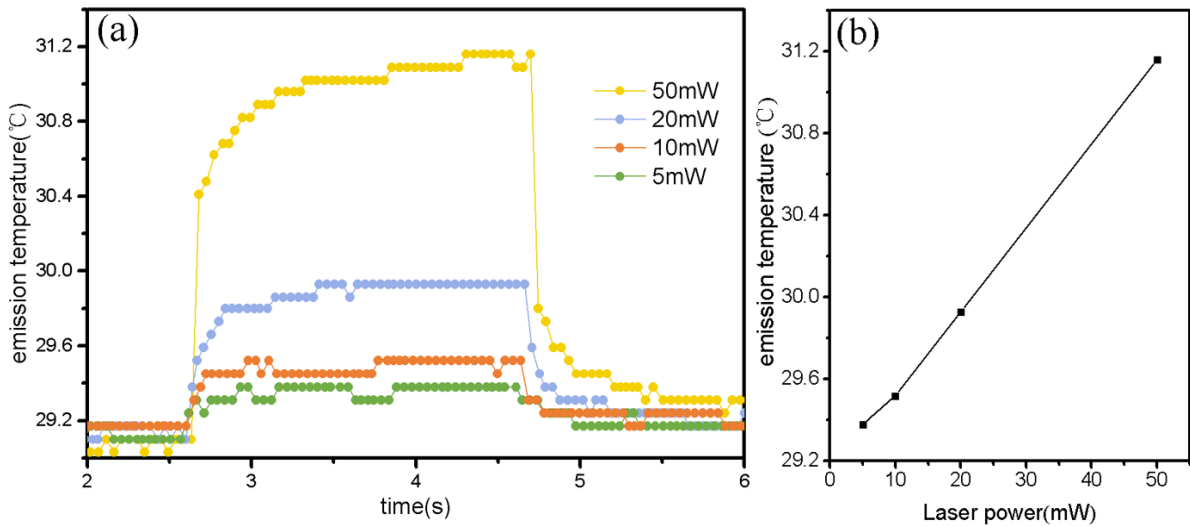


图 5.11 激光功率调制下的红外热辐射调控: (a) 入射激光波长为 720nm 时, 激光功率分别为 5 mW, 10mW, 20mW 和 50mW 时, 超微腔结构的辐射温度变化; (b) 超微腔的稳定辐射温度随入射激光功率增长的变化。

除去激光的波长, 极化与时间调控, 激光功率的调制也可用于调控热辐射响应。这里, 我们选定 720nm 为激光波长, 分别在 5mW, 10mW, 20mW 和 50mW 功率下对纳

米孔超表面进行激光调制实验,结果如图 5.11 所示,可以看到激光功率与纳米孔超表面的稳定辐射温度基本呈线性关系,随着激光功率的增加,纳米孔的红外辐射强度也随之增加。那么通过激光功率调制,也可实现对纳米孔红外热辐射的灵活调控。

更进一步,为了探究激光调制下超微腔热辐射调控的详细过程,我们降低激光功率至 20mW,再次进行了波长极化选择下的激光加热实验,结果如图 5.12 所示。同时,我们对无结构区域的背景热辐射也进行了热成像实验,并与样品区域进行了对比。

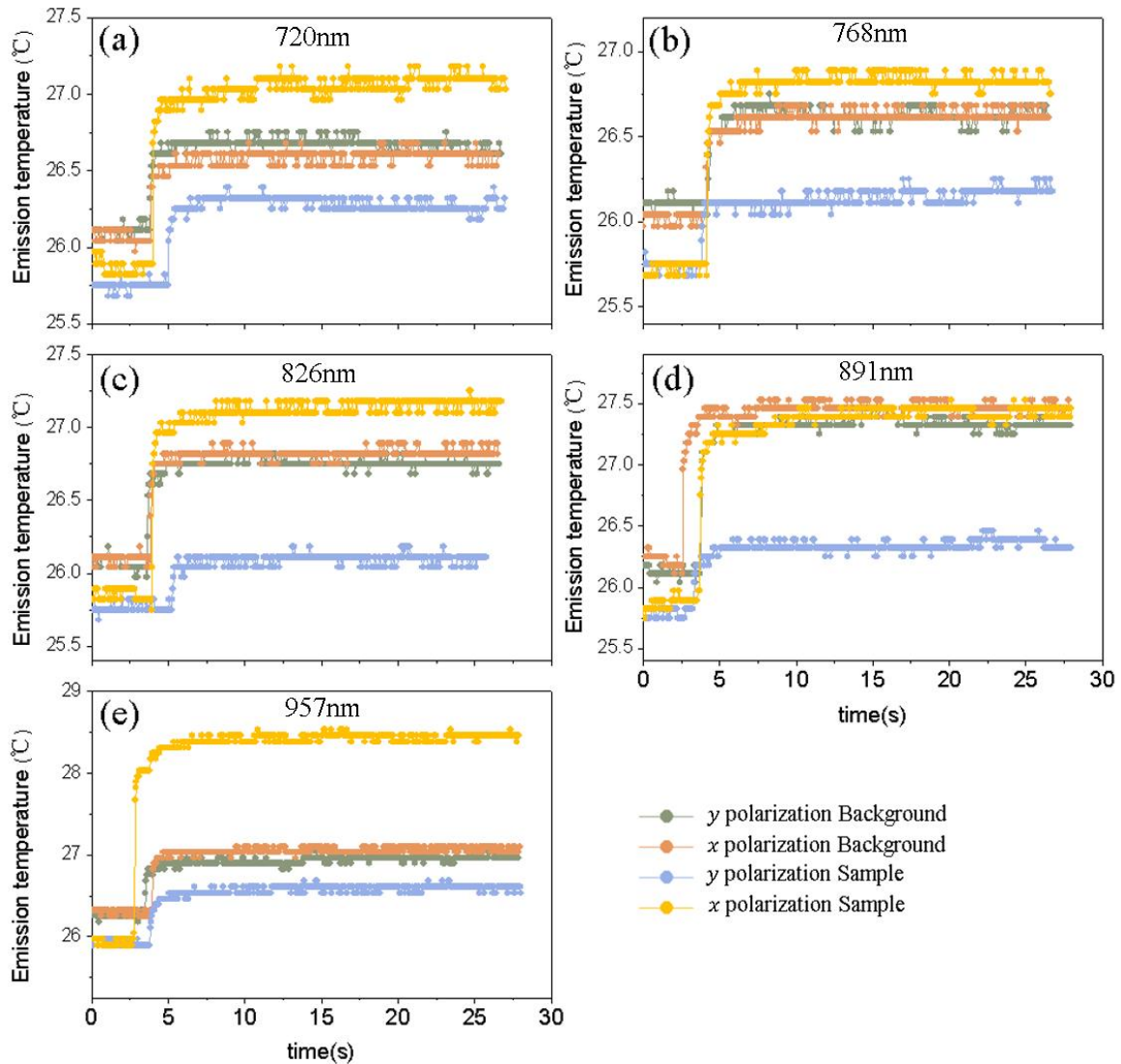


图 5.12 20mW 激光调控红外热辐射: (a) 入射光波长为 720nm 时,超微腔结构与背景区域随时间的辐射温度变化; (b) 入射光波长为 768nm 时,超微腔结构与背景区域随时间的辐射温度变化; (c) 入射光波长为 826nm 时,超微腔结构与背景区域随时间的辐射温度变化; (d) 入射光波长为 891nm 时,超微腔结构与背景区域随时间的辐射温度变化; (e) 入射光波长为 957nm 时,超微腔结构与背景区域随时间的辐射温度变化。

当激光功率降低, 在各个波长的激光激发下, 超微腔结构的稳定辐射温度值也会有所降低, 但与 50mW 功率下激光加热的结果保持了一致的变化趋势。无结构区域即是普通 FP 腔 (Au/Si/Au), 由于存在光的谐振吸收也会产生一定的升温效果。根据图中的数据, 我们可以总结出稳定辐射温度的大致趋势: x 极化光激发下的超微腔升温 > 背景区域升温 (两极化方向) > y 极化光激发下的超微腔升温。背景区域对激光无极化选择性, 所以两极化方向激发下, 其稳定辐射温度基本无差异。背景区域稳定辐射温度高于 y 极化光激发下的超微腔的稳定辐射温度, 是由于激光在无结构 FP 腔中可以反复振荡。另外, 在 891nm 激光激发下, 背景辐射温度升温与 x 极化光激发下的超微腔升温效果相差无几, 这是由于这个波长靠近无孔 FP 腔的共振吸收波长。根据上述结果, 我们可以得出结论, 光栅超表面与纳米孔超表面组成的超微腔结构可以通过激光的极化方向实现对红外热辐射的灵活调控, 以背景区域辐射温度为参照, 在 x 极化激光激发时实现辐射增强, 同时在 y 极化激光激发时实现辐射减弱。需要注意的是, 此实验中与激光功率调控实验的激光光斑大小和背景温度略有区别, 所以 20mw 功率, 720nm 波长的激光激发下, 超微腔的最终稳定温度在两个实验中有所不同, 但这并不影响我们研究激光调制下的热辐射调控趋势。

低功率激光加热条件下, 超微腔热辐射调控过程相对放慢, 更有利于我们对此现象进行观测和研究。具体 720nm, 768nm, 826nm, 891nm 和 957nm 波长下, 纳米孔超表面热辐射随时间调控的过程如图 5.13-5.17 所示。

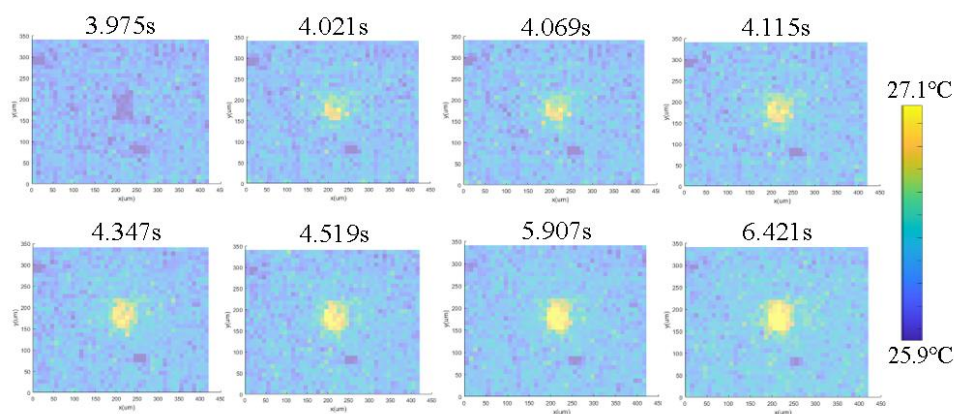


图 5.13 20 mW, 720nm 波长激光 (x 极化) 加热下, 红外热像图随时间的变化。

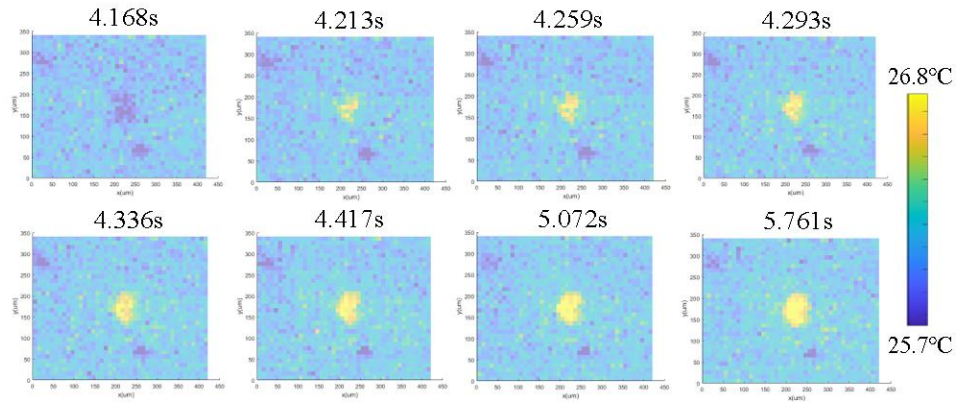


图 5.14 20 mW，768nm 波长激光 (x 极化) 加热下，红外热像图随时间的变化。

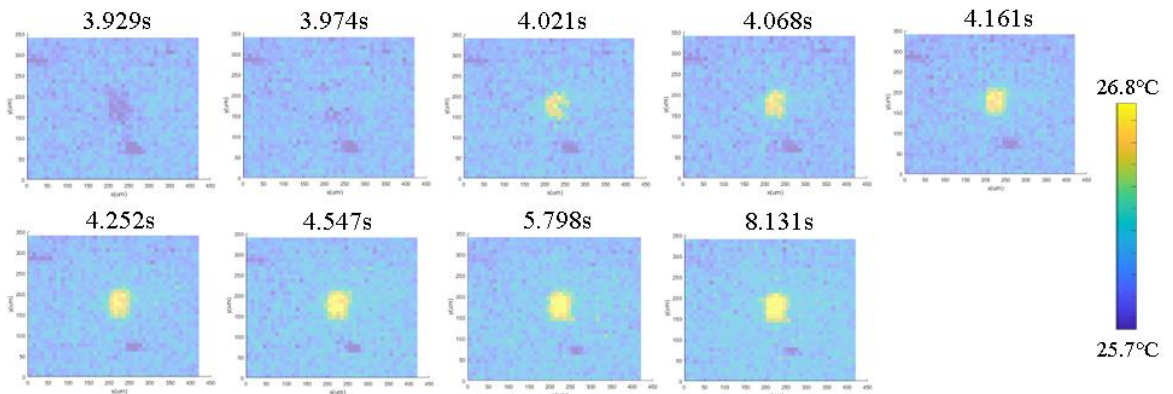


图 5.15 20 mW，826nm 波长激光 (x 极化) 加热下，红外热像图随时间的变化。

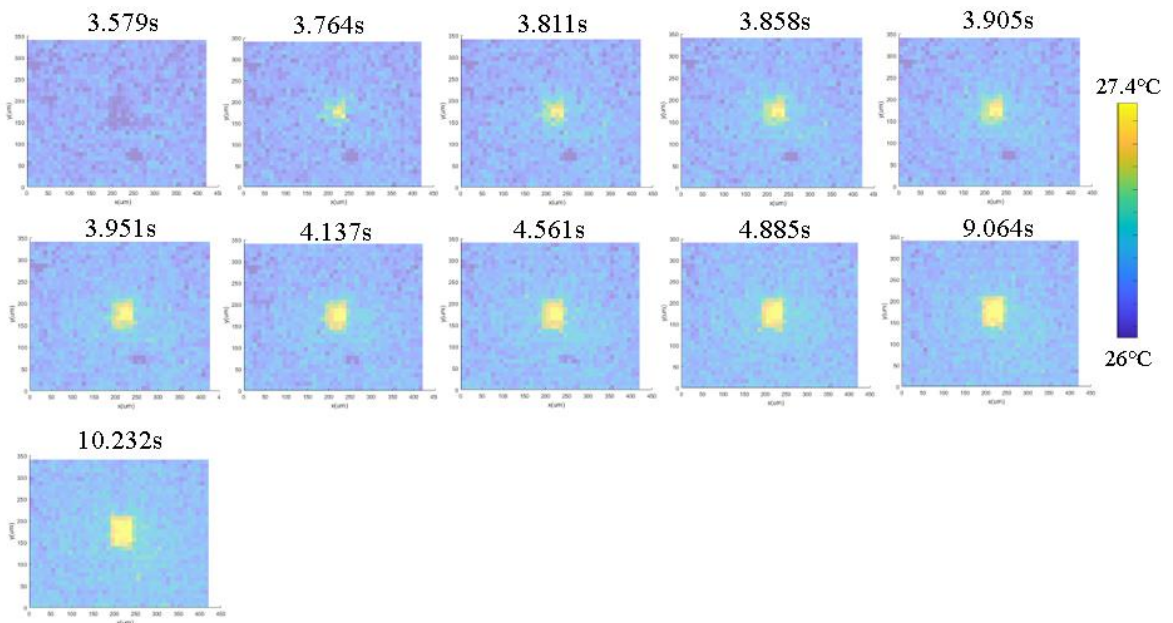


图 5.16 20 mW，891nm 波长激光 (x 极化) 加热下，红外热像图随时间的变化。

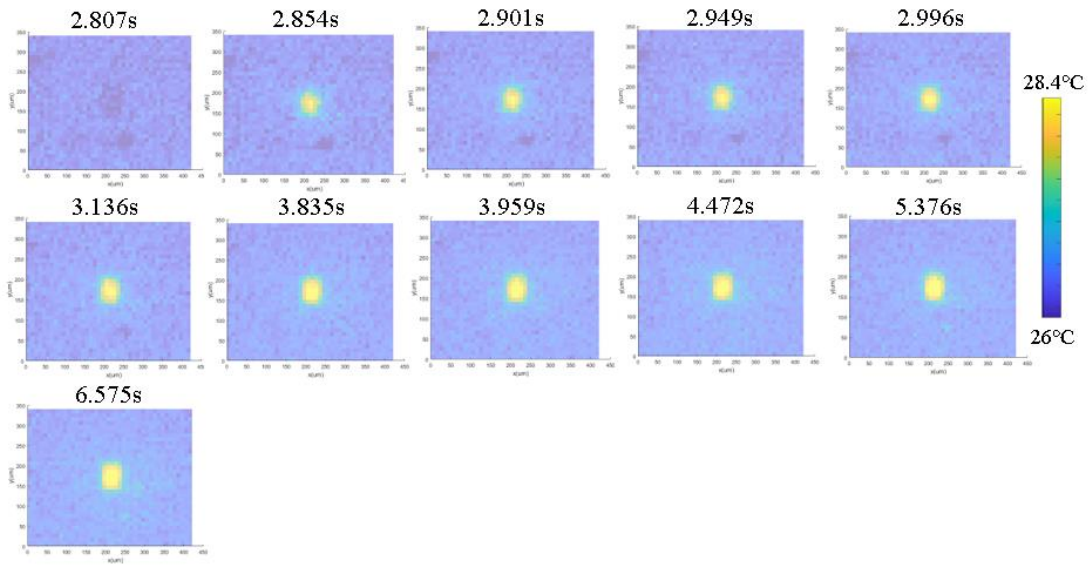


图 5.17 20 mW，957nm 波长激光（x 极化）加热下，红外热像图随时间的变化。

720nm 激光（x 极化）的激发下，超微腔结构在 3.975s ~ 4.519s 时间间隔内实现快速升温，然后在 6.421s 逐渐稳定于 27.1°C。纳米孔图案的热辐射信号在激光调制的光热转换效应作用下，随时间逐步增强，在热像图中体现为逐渐亮起的矩形辐射图案。768nm 激光加热条件下，从 4.168s 到 5.761s，纳米孔超表面的辐射温度逐渐增加并稳定至 26.83°C。826nm 激光加热条件下，从 3.974s 到 4.547s，纳米孔超表面的辐射温度逐渐趋于稳定并于 8.131s 达到 27.1°C。在 891nm 和 957nm 激光（x 极化）的激发下，升温过程较迅速，纳米孔超表面可以很快在热像图中显示出矩形辐射图案并稳定下来。891nm 激光加热下，从 3.579s 到 4.137s，纳米孔超表面的辐射温度逐步增加并于 10.232s 达到 27.46°C。957nm 激光加热下，从 2.807s 到 3.136s，纳米孔超表面的辐射温度逐步趋于稳定并于 6.575s 达到 28.47°C。低功率激光调制可以相对放慢红外热辐射的调控速率，展现红外热辐射的逐步调控过程，为局部或定点热辐射调控提供研究思路。总的来说，通过激光波长选择，不同功率下均可以实现对红外热辐射的动态调控。激光功率为 20mW 时，随激光波长变化的热辐射动态调控趋势与激光功率为 50mW 时的趋势一致。

上述三个实验，分别展现了，1. 不同波长，极化选择下的高功率激光激发下，超微腔结构的快速热辐射调控；2. 激光功率调制下的热辐射调控；3. 不同波长，极化选择下的低功率激光激发下，随时间可控的红外热辐射调控过程。这些热成像实验结果验证了基于激光调制实现对红外热辐射在极化，波长，时间和空间上多自由度动态调控的可行性，为片上光控热管理体系，光热治疗，光电探测和中红外检测等研究领域的发展提供

了新的思路。

5.5 本章小结与展望

综上所述,我们基于新型超微腔结构提出了一种基于激光调制实现的,波长,极化,时间以及空间上的多自由度动态红外表面热辐射调控方法。基于添加的光栅超表面,新型超微腔结构可以实现对可见至近红外波段的光吸收调控,从而作为可调微型加热器为上层纳米孔超表面提供可控热源并基于光热效应实现对红外热辐射的多自由度动态调控。通过长波热像仪,我们记录了不同波长,极化和功率选择下的激光入射时,超微腔结构随时间逐渐变化的热辐射强度。不同波长,极化的激光根据其吸收强度的不同,可带来不同的升温效果,此动态热成像实验展现了激光调制下,光控热辐射的快速时间响应,可用作集成的红外热辐射开关。另外,与无结构的背景区域相比,x极化激光加热下超微腔结构可以实现热辐射强度增强,而y极化激光加热下超微腔结构可以实现热辐射强度减弱,这展现了极化可控的热辐射调制效果。所提出的光控热辐射调制方法将对红外波段的热辐射调控转移到了对可见至近红外波段的光吸收调控,为表面热辐射调控提供了更多的自由度与灵活度,为集成红外光电设备以及微区光控热管理应用提供了新的调控思路。

参考文献

- [1] F. J. Garcia-Vidal, E. Moreno, J. A. Porto and L. Martin-Moreno. Transmission of light through a single rectangular hole. *Physical Review Letters*, **95**, 103901 (2005).
- [2] R. N. Ji, S. W. Wang, X. X. Liu, X. S. Chen and W. Lu. Broadband circular polarizers constructed using helix-like chiral metamaterials. *Nanoscale*, **8**, 14725 (2016).
- [3] Y. H. Ling, L. R. Huang, W. Hong, T. J. Liu, J. Luan, W. B. Liu, et al. Polarization-controlled dynamically switchable plasmon-induced transparency in plasmonic metamaterial. *Nanoscale*, **10**, 19517 (2018).
- [4] S. A. Jalil, K. M. Awan, I. A. Ali, S. Rashid, J. Baxter, A. Korobenko, et al. Controlling the polarization and phase of high-order harmonics with a plasmonic metasurface. *Optica*, **9**, 987 (2022).
- [5] Y. C. Wang, K. L. Chen, Y. S. Lin and B. R. Yang. Plasmonic metasurface with quadrilateral truncated cones for visible perfect absorber. *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures*, **139**, 115140 (2022).
- [6] F. Qin, L. Ding, L. Zhang, F. Monticone, C. C. Chum, J. Deng, et al. Hybrid bilayer plasmonic metasurface efficiently manipulates visible light. *Science Advances*, **2**, e1501168 (2016).
- [7] G. Palermo, U. Cataldi, L. De Sio, T. Burgi, N. Tabiryan and C. Umeton. Optical control of plasmonic heating effects using reversible photo-alignment of nematic liquid crystals. *Applied Physics Letters*, **109**, 191906 (2016).
- [8] H. Kang, G. H. Lee, H. Jung, J. W. Lee and Y. Nam. Inkjet-Printed Biofunctional Thermo-Plasmonic Interfaces for Patterned Neuromodulation. *ACS Nano*, **12**, 1128 (2018).
- [9] G. Baffou, F. Cichos and R. Quidant. Applications and challenges of thermoplasmonics. *Nature Materials*, **19**, 946 (2020).
- [10] T. A. Larson, J. Bankson, J. Aaron and K. Sokolov. Hybrid plasmonic magnetic nanoparticles as molecular specific agents for MRI/optical imaging and photothermal therapy of cancer cells. *Nanotechnology*, **18**, 325101 (2007).
- [11] J. Lin, S. J. Wang, P. Huang, Z. Wang, S. H. Chen, G. Niu, et al. Photosensitizer-Loaded Gold Vesicles with Strong Plasmonic Coupling Effect for Imaging-Guided Photothermal/Photodynamic Therapy. *ACS Nano*, **7**, 5320 (2013).
- [12] M. A. Behnam, F. Emami, Z. Sobhani, O. Koochi-Hosseinabadi, A. R. Dehghanian, S. M. Zebarjad, et al. Novel Combination of Silver Nanoparticles and Carbon Nanotubes for Plasmonic Photo Thermal Therapy in Melanoma Cancer Model. *Advanced Pharmaceutical Bulletin*, **8**, 49 (2018).
- [13] Y. J. Xiong, R. Long, D. Liu, X. L. Zhong, C. M. Wang, Z. Y. Li, et al. Solar energy conversion with tunable plasmonic nanostructures for thermoelectric devices. *Nanoscale*, **4**, 4416 (2012).
- [14] W. Kubo, M. Kondo and K. Miwa. Quantitative Analysis of the Plasmonic Photo-Thermoelectric Phenomenon. *Journal of Physical Chemistry C*, **123**, 21670 (2019).
- [15] K. Miwa, H. Ebihara, X. Fang and W. Kubo. Photo-Thermoelectric Conversion of Plasmonic Nanohole Array. *Applied Sciences-Basel* **10**, 2681 (2020).
- [16] X. T. Kong, L. Khosravi Khorashad, Z. Wang and A. O. Govorov. Photothermal Circular Dichroism Induced

- by Plasmon Resonances in Chiral Metamaterial Absorbers and Bolometers. *Nano Letters* **18**, 2001 (2018).
- [17] Z. Li, L. Stan, D. A. Czaplewski, X. Yang and J. Gao. Wavelength-selective mid-infrared metamaterial absorbers with multiple tungsten cross resonators. *Optics Express* **26**, 5616 (2018).
- [18] S. Katsumata, T. Tanaka and W. Kubo. Metamaterial perfect absorber simulations for intensifying the thermal gradient across a thermoelectric device. *Optics Express* **29**, 16396 (2021).
- [19] J. Wang, F. B. Yang, L. J. Xu and J. P. Huang. Omnithermal Restructurable Metasurfaces for Both Infrared-Light Illusion and Visible-Light Similarity. *Physical Review Applied*, **14**, 014008 (2020).
- [20] M. W. Tsai, T. H. Chuang, C. Y. Meng, Y. T. Chang and S. C. Lee. High performance midinfrared narrow-band plasmonic thermal emitter. *Applied Physics Letters*, **89**, 173116 (2006).
- [21] X. Liu, T. Tyler, T. Starr, A. F. Starr, N. M. Jokerst and W. J. Padilla. Taming the Blackbody with Infrared Metamaterials as Selective Thermal Emitters. *Physical Review Letters*, **107**, 045901 (2011).
- [22] C. Argyropoulos, K. Q. Le, N. Mattiucci, G. D'Aguzzo and A. Alu. Broadband absorbers and selective emitters based on plasmonic Brewster metasurfaces. *Physical Review B*, **87**, 205112 (2013).
- [23] D. Costantini, A. Lefebvre, A. L. Coutrot, I. Moldovan-Doyen, J. P. Hugonin, S. Boutami, et al. Plasmonic Metasurface for Directional and Frequency-Selective Thermal Emission. *Physical Review Applied*, **4**, 014023 (2015).
- [24] T. Yokoyama, T. D. Dao, K. Chen, S. Ishii, R. P. Sugavaneshwar, M. Kitajima, et al. Spectrally Selective Mid-Infrared Thermal Emission from Molybdenum Plasmonic Metamaterial Operated up to 1000 degrees C. *Advanced Optical Materials*, **4**, 1987 (2016).
- [25] A. Lochbaum, Y. Fedoryshyn, A. Dorodnyy, U. Koch, C. Hafner and J. Leuthold. On-Chip Narrowband Thermal Emitter for Mid-IR Optical Gas Sensing. *ACS Photonics*, **4**, 1371 (2017).
- [26] K. Aydin, V. E. Ferry, R. M. Briggs and H. A. Atwater. Broadband polarization-independent resonant light absorption using ultrathin plasmonic super absorbers. *Nature Communications*, **2**, 517 (2011).
- [27] J. B. Chou, Y. X. Yeng, Y. E. Lee, A. Lenert, V. Rinnerbauer, I. Celanovic, et al. Enabling Ideal Selective Solar Absorption with 2D Metallic Dielectric Photonic Crystals. *Advanced Materials*, **26**, 8041 (2014).
- [28] B. Yang, C. Y. Li, Z. F. Wang and Q. Dai. Thermoplasmonics in Solar Energy Conversion: Materials, Nanostructured Designs, and Applications. *Advanced Materials*, **34**, 2107351 (2022).
- [29] E. Panchenko, J. J. Cadusch, T. D. James and A. Roberts. Plasmonic Metasurface-Enabled Differential Photodetectors for Broadband Optical Polarization Characterization. *ACS Photonics*, **3**, 1833 (2016).
- [30] T. D. Dao, S. Ishii, A. T. Doan, Y. Wada, A. Ohi, T. Nabatame, et al. An On-Chip Quad-Wavelength Pyroelectric Sensor for Spectroscopic Infrared Sensing. *Advanced Science*, **6**, 1900579 (2019).
- [31] M. Oshita, H. Takahashi, Y. Ajiki and T. Kan. Reconfigurable Surface Plasmon Resonance Photodetector with a MEMS Deformable Cantilever. *ACS Photonics*, **7**, 673 (2020).
- [32] A. Tittl, A. K. U. Michel, M. Schaferling, X. H. Yin, B. Gholipour, L. Cui, et al. A Switchable Mid-Infrared Plasmonic Perfect Absorber with Multispectral Thermal Imaging Capability. *Advanced Materials*, **27**, 4597 (2015).

- [33] D. X. Li, H. Zhou, X. D. Hui, X. M. He, H. Huang, J. J. Zhang, et al. Multifunctional Chemical Sensing Platform Based on Dual-Resonant Infrared Plasmonic Perfect Absorber for On-Chip Detection of Poly(ethyl cyanoacrylate). *Advanced Science*, **8**, 2101879 (2021).
- [34] G. Dayal, X. Y. Chin, C. Soci and R. Singh. High-Q Plasmonic Fano Resonance for Multiband Surface-Enhanced Infrared Absorption of Molecular Vibrational Sensing. *Advanced Optical Materials*, **5**, 1600559 (2017).
- [35] Y. Hui, J. S. Gomez-Diaz, Z. Y. Qian, A. Alu and M. Rinaldi. Plasmonic piezoelectric nanomechanical resonator for spectrally selective infrared sensing. *Nature Communications*, **7**, 11249 (2016).
- [36] X. Y. Liu and W. J. Padilla. Thermochromic Infrared Metamaterials. *Advanced Materials*, **28**, 871 (2016).
- [37] J. Guo, G. Q. Xu, D. Tian, Z. G. Qu and C. W. Qiu. A Real-Time Self-Adaptive Thermal Metasurface. *Advanced Materials*, **34**, 2201093 (2022).
- [38] H. Z. Zhu, Q. Li, C. N. Tao, Y. Hong, Z. Q. Xu, W. D. Shen, et al. Multispectral camouflage for infrared, visible, lasers and microwave with radiative cooling. *Nature Communications*, **12**, 1805 (2021).
- [39] Q. Chu, F. Zhang, Y. Zhang, T. Qiao, S. Zhu and H. Liu. Integrated thermal emission microchip based on meta-cavity array. *Nanophotonics*, **11**, 4263 (2022).
- [40] X. Chen, Y. T. Chen, M. Yan and M. Qiu. Nanosecond Photothermal Effects in Plasmonic Nanostructures. *ACS Nano*, **6**, 2550 (2012).
- [41] Z. Chen, Y. D. Weng, J. K. Liu, N. Guo, Y. L. Yu and L. Xiao. Dual-band perfect absorber for a mid-infrared photodetector based on a dielectric metal metasurface. *Photonics Research*, **9**, 27 (2021).
- [42] M. S. Mahmud, D. Rosenmann, D. A. Czaplewski, J. Gao and X. D. Yang. Chiral plasmonic metasurface absorbers in the mid-infrared wavelength range. *Optics Letters*, **45**, 5372 (2020).
- [43] L. X. Ouyang, W. Wang, D. Rosenmann, D. A. Czaplewski, J. Gao and X. D. Yang. Near-infrared chiral plasmonic metasurface absorbers. *Optics Express* **26**, 31484 (2018).
- [44] R. M. Costescu, D. G. Cahill, F. H. Fabreguette, Z. A. Sechrist and S. M. George. Ultra-low thermal conductivity in W/Al₂O₃ nanolaminates. *Science*, **303**, 989 (2004).

第六章 总结与展望

红外热辐射研究在红外光谱学、红外辐射源、红外探测器以及军用技术中的红外制导、红外追踪、红外热成像、热伪装等领域占有重要的地位。红外热辐射在光谱调控，空间辐射率调制以及表面热辐射的多自由度动态调控方面的研究，随着微纳科技的推进变得更加的丰富多元化，为红外领域应用的发展增添了一大助力。通过超表面，超材料等人工结构已经可以实现在亚波长尺度下对红外表面热辐射在波长，极化以及辐射角度方面的调控。本文仔细探究了目前热辐射调控的研究方法与进展，并进一步介绍了与之相关的热辐射应用的研究与需求。本论文的创新在于，通过超微腔阵列实现了对表面红外热辐射的多自由度调控并基于激光调制，进一步实现了对表面红外热辐射在波长，极化，时间以及空间上的多自由度动态调控。具体的创新点如下：

1. 通过超微腔阵列结构设计，结合纳米孔阵列超表面的连续可调光学性质与窄带 FP 模式，实现了具有高空间分辨率的多波段热辐射芯片，可覆盖长波红外波段 $7-9\mu\text{m}$ 和 $10-14\mu\text{m}$ 。纳米孔作为辐射单元，受益于周围金属对背景辐射信号的抑制，可提升需求热辐射信号的空间分辨率至波长量级。另外，通过纳米孔图案设计，超微腔结构也可以实现极化，波长以及空间上的多路复用热辐射，提升了热辐射芯片设计的信息存储容量及其实用性。此设计未来可用作低成本的集成红外辐射源。
2. 基于热辐射芯片设计与热成像技术，提出了一种小型集成化的，无需额外光谱仪与红外光源，低成本且可重复使用的红外吸收光谱探测方法。热辐射芯片由超微腔阵列构成，可实现覆盖长波红外波段 $7.6-12\mu\text{m}$ 的多波段辐射峰。在光谱探测过程中，热辐射芯片可同时用作红外辐射源与光谱芯片，此集成一体化设计，大大简化了光谱探测系统的同时也降低了设备的运作成本。并且，在探测过程中，待测样品与热辐射芯片无需直接接触，所以此探测方法可以重复使用。此集成红外吸收光谱探测方法，可应用于多种片上探测研究，如微区红外分子探测和材料分析等。
3. 基于光栅超表面/Si 层/纳米孔超表面结构，我们提出了一种新型超微腔设计，并通过激光调制实现了对红外热辐射同时在波长，极化，时间以及空间上的多自由度动态调控。此设计可同时实现对可见至近红外波段的光吸收调控以及长波红外波段的热辐射调控。不同波长，极化，功率的激光激发下，超微腔结构通过光热效应可将光吸收转化为热量，进而对上层纳米孔超表面的红外热辐射进行调控。通过双超表

面设计，红外热辐射调控可以转移到激光调制下的光吸收调控维度上，实现快速的热响应。此光控热辐射调控方法可提供更多的调控自由度，可用于热开关等微区热管理应用中。

为了进一步推广热辐射调控研究至实际应用领域，未来通过高质量人工超表面和更多可选光学材料，上述研究有望进一步推进。比如：未来基于电介质超表面的 Mie 共振或 BIC 共振模式的阵列化设计，有望改善热辐射芯片的辐射峰 Q 值，并细化辐射阵列，使其更适合用作多波段的窄带红外辐射源。那么同样的，基于窄带辐射阵列，所提出的红外吸收光谱探测方法的光谱分辨率也可得到进一步的提升，使其更贴近实际红外光谱探测应用需求。对于激光调制下的多自由度动态热辐射调控研究，未来通过结合超微腔阵列设计与高精度位移台或可移动的照射源，在多自由度调控机制下，还可实现多功能，点对点的多波长，光控热辐射调控平台。

热辐射器件的小型集成化以及调控机制的多元化为新一代的红外领域应用带来了蓬勃发展。我们相信，随着科学研究的不断推进与完善，热辐射调控在红外光源、红外光谱探测、隐身、热成像、红外有机分子传感、热光伏乃至更多的应用领域都会有更大的拓展空间，可为人们的生活带来更多的便利。

以上就是我对本论文研究工作的总结和展望。

博士期间发表的论文和成果

已发表与待发表论文

第一作者论文：

1. Q. Q. Chu, F. Y. Zhang, Y. Zhang, T. Qiao, S. N. Zhu and H. Liu, "Integrated thermal emission microchip based on meta-cavity array." *Nanophotonics*, 11(18), 4263-4271, 2022.
2. Q. Q. Chu, F. Y. Zhang, Y. Zhang, S. N. Zhu and H. Liu., " Measuring infrared absorption spectrum through thermal emission of meta-cavity array." (Submitted)

共同一作论文：

3. F. Y. Zhang, Q. Q. Chu, Q. Wang, S. N. Zhu and H. Liu, "Multiple symmetry protected BIC lines in two dimensional synthetic parameter space." *Nanophotonics*, 12(13), 2405-2413, 2023.

致 謝

时光荏苒，岁月如梭，四年的博士生活即将结束。一路走来，我收获了丰富的科研方法、学到了扎实的知识，提升了我的科研能力、开阔了视野，也带给了我无论何时都能重新开始的勇气。在此感谢每一个在我读博路上给予我鼓励支持的老师、亲人与朋友，感恩你们在我迷茫时，曾为我点明前路。

首先我要特别感谢祝世宁院士。祝老师为我们提供了国际一流的科研平台让我们能够不遗余力地去探究最前沿的科研领域。祝老师渊博的学识、严谨的科研态度、以及豁达的生活态度，对我影响深远。祝老师与大家在职会上的交流，在拓宽了我们对于前沿物理的眼界的同时也让我深刻领会到了以及如何做顶天立地的科研，带给了我很大的启发和帮助，对我的科研之路产生了深远的影响。

我要特别感谢我的导师刘辉教授。刘老师热爱科研、学识渊博，有着敏锐的物理直觉和孜孜不倦的科研精神。在这四年的时光里，刘老师用他深厚的学识、逻辑缜密的学术思维以及严谨求实的科研态度教会了我如何思考，如何做科研，如何做有用的科研，我所有的科研成果都离不开刘老师的指导。在实验和讨论中，刘老师开阔的眼界和对创新的不断追求与探索，总能让我有所感悟，收获颇丰。刘老师提升了我独立思考与解决问题的能力，这将使我终身受用。感谢刘老师的帮助与指导，在此论文完成之际，向刘老师表示最诚挚的谢意和崇高的敬意。

接下来我要感谢本课题组的盛冲老师、王强老师和仲帆老师在科研上给予我的帮助。感谢师弟张丰源，尚效合，李新慧师姐以及组内各位师姐妹和师兄弟们对我在科研和生活上的帮助，与你们在一起度过的这段忙碌而充实的时光将使我终身受益。

最后我要感谢我的家人，感谢他们对我的理解与支持。正因为有家人作为坚实的后盾才能够让我不惧未来、直面困难、砥砺前行，感谢你们在我最迷茫、最困难时候给予我的安慰和鼓励，让我跨越难关，迎来希望。

最后，再次衷心感谢以上提及和因疏忽未提及的所有关心和帮助我的人们，祝福你们四

时如意，万事遂心！

谨以此文纪念我即将结束的博士时光。

褚琼琼

二零二三年九月

版权及论文原创性说明

任何收存和保管本论文的单位和个人，未经作者本人授权，不得将本论文转借他人并复印、抄录、拍照或以任何方式传播，否则，引起有碍作者著作权益的问题，将可能承担法律责任。

本人郑重声明：所呈交的学位论文，是本人在导师的指导下，独立进行研究工作所取得的成果。除文中已经注明引用的内容外，本论文不包含其他个人或集体已经发表或撰写的作品成果。本文所引用的重要文献，均已在文中以明确方式标明。本声明的法律结果由本人承担。

作者签名：

日 期： 年 月 日

附件二

《学位论文出版授权书》

本人完全同意《中国优秀博硕士学位论文全文数据库出版章程》（以下简称“章程”），愿意将本人的学位论文提交“中国学术期刊（光盘版）电子杂志社”在《中国博士学位论文全文数据库》、《中国优秀硕士学位论文全文数据库》中全文发表。《中国博士学位论文全文数据库》、《中国优秀硕士学位论文全文数据库》可以以电子、网络及其他数字媒体形式公开出版，并同意编入《中国知识资源总库》，在《中国博硕士学位论文评价数据库》中使用和在互联网上传播，同意按“章程”规定享受相关权益。

作者签名： _____
_____年____月____日

论文题名					
研究生学号		所在院系		学位年度	
论文级别	<input type="checkbox"/> 硕士 <input type="checkbox"/> 博士 (请在方框内画钩)		<input type="checkbox"/> 硕士专业学位 <input type="checkbox"/> 博士专业学位		
作者 Email					
导师姓名					

论文涉密情况：

不保密

保密，保密期（_____年____月____日至_____年____月____日）

注：请将该授权书填写后装订在学位论文最后一页（南大封面）。

附件二