利用：非线性 双原子 等离子体 超表面

实现：二次谐波 在实空间&倒空间的 图像编码

（独立控制二次谐波的相位、强度、偏振）

相位、强度、偏振、三独立；
离以 实空间、倒空间，两（但不独立）；

应实现了6种参数的独立控制，

但实空间与倒空间是有联系的，因此操控的自由度应该小于6？

等离子体超表面：金属 电介质复合材料，光入射到这种超材料后，转变成 波长比入射光波长短很多的表面等离子极化光，或者说转变成不同的电磁波-表面等离子极化子，它的波长比入射光的短。—— 这种性质来自复合材料的第一结构，其特点是超次波长（Subwavelength）距离所分开。

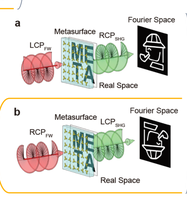
2 个 bug

1. 横坐标 SHG 与 FW 频率的图想表达的含义一样，但实际曲线不同
2. 可调制振幅 为什么 还说用 GS算法

Abstract

- 前人的局限
  - 在线性光学中，超表面是光学信息编码的理想平台，因为它具有利用空波长元原子，操纵光波的强度、偏振和相位的同时不有的能力。
  - 然而，在非线性光学中控制光的不同自由度仍然是难以捉摸的。
- 他们的优势
  - 在这里，我们提出一个非线性等离子体超表面，工作在近红外系统，可以同时编码光学图像在真实和傅里叶空间。
  - 这是通过设计一个双原子元分子来实现的，它能够独立控制非线性几何相位、极化和二次谐波的强度。
  - 所提出的非线性双原子超表面，为实现多维光信息编码提供了超小型的平台，在光信息安全和光学防伪应方面具有很大的潜力。

Introduction

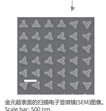
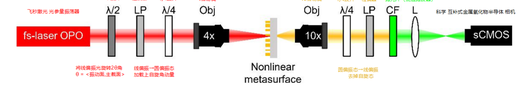
- 前人的工作
  - 利用超薄设备，对光学信息进行编码，将他广泛的 ...应用成为可能
    - 光学图像加密 optical image encryption
    - 光通信 optical communications
    - **多维光信息编码**
      - 在各种策略中，超表面技术，在多维光信息编码方面，已经显示出了很好的潜力。
        - 由亚波长元原子，构成的光子超表面，具有利用亚波长元原子，操纵 ...的优秀能力
          - 光强
          - 光的相位
          - 光的偏振
      - 在线性光学领域，超表面被广泛用于光学全息编码光学信息。
        - 虽然单层等离子体超表面，具有较深的亚波长厚度，并且与成熟的CMOS技术更兼容，但这技术仍遭受了巨大的约束。
        - 为了避免这些限制，研究者们广泛地探索了金属-电介质-金属(MIM)三层膜、和单层的全介电介质超表面，以至于实现了高效率的光束传输、光-全息、金属透镜。
  - 线性 和 非线性 几何 P-B 相位 在超表面中的应用
    - 在以前的超表面器件中，它们的光学响应主要是只限从相应特性来控制，比如通过 几何 Pancharatnam–Berry(P–B) 相位，或通过光的动力学相位 实现的。
      - 通过对元原子的合理设计，可以在一个元表面（超表面）装置可以涂满频率同的全息图像。
      - 此外，通过对光的振幅和相位信息的操纵，在每个质超表面平台上，实现了实像和傅里叶空间图像的同步加密。
    - 另一方面，超表面的非线性频率转换，可能为先进的信息编码技术开辟新的路线。
      - 与线性光学中控制光的强度、偏振和相位的既有能力相比，这三个自由度的同时控制具有挑战性。
        - 幸运的是，这个问题可以通过 非线性几何 Pancharatnam - Berry 相位来解决。
          - 通过使用原子和超基介质元表面，成功实现了
            - 自旋控制的非线性光学全息
            - 非线性自旋-轨道相互作用
          - 通过部署来自二原子元分子的非线性波的干涉效应，实现了
            - 振幅调制
        - **这样，就完成了实空间的几何相位调控的非线性图像加密。**
        - 然而，实空间和傅里叶空间的非线性光学编码仍未被探索。
- 他们的进步
  - 在此，我们提出利用非线性双原子元超表面，同时对真实空间和全息图像进行编码。
  - 元分子是由一对C旋转对称的金元原子组成。（Column 3：三重/度旋转轴，转360/3度与自身重合）
    - 对于一个旋转了特定角度的元原子，其作为次波源，所生成的二次谐波（SHG），表现出受自旋控制的几何相位
    - 元分子中，两个元原子所发出的SHG波之间的干涉叠加，将导致振幅被调制。
    - **因此，我们可以通过使用二原子元分子作为母杆，同时控制SHG波的强度和相位。**
  - 在自行开发的全自代码的基础上，我们利用二原子等离子体超表面，成功地编码了一个实空间图像和一个全息图像（图1a）。
    - 在图偏振基底(FW)的泵浦下，在非线性超表面上产生了一束与 FW 手性相反的SHG波。
    - 通过编码非线性超表面，以调控SHG波的相位、偏振和振幅，我们能够同时编码实空间中的 " META "图像，和傅里叶空间中描示摩斯肖像的全息图像。
    - 

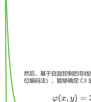
    - **改变 FW 的 自旋态（LCP 和 RCP 态），SHG 的自旋态 也被改变了，到傅里叶空间 的 摩尔摩斯肖像全息图像，呈现出中心对称的呼吸。**
      (LCP = Left Circular Polarization)
    - **非线性二原子超表面，为多维光学信息加密，复杂波前调制等，提供了重要的平台。**

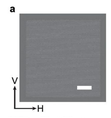
Results & Discussion

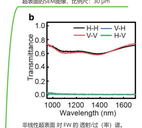
- 几何相位调控的 非线性超表面全息术
  - 首先，我们的元原子为C3金纳米结构
    - 众所周知，来自 C3 金元原子的SHG波的自旋状态与基波（FW）的自旋状态具有相反的手性。
    - 根据非线性光学中几何P-B相位的原理，SHG波在超表面某处的相位由 φ 是 该处 C3 元原子的取向角 θ 的函数。
      【对于逆时针方向旋转的元原子，其作为次波源，所生成的二次谐波（SHG）表现出受自旋控制的几何相位
      元分子是由一对C旋转对称的金元原子组成。（Column 3：三重/度旋转轴，转360/3度与自身重合）
      元分子中，两个元原子所发出的SHG波之间的干涉叠加，将导致振幅被调制。
      【对于逆时针方向旋转的元原子，其作为次波源，所生成的二次谐波（SHG）表现出受自旋控制的几何相位
      元分子是由一对C旋转对称的金元原子组成。（Column 3：三重/度旋转轴，转360/3度与自身重合）
      元分子中，两个元原子所发出的SHG波之间的干涉叠加，将导致振幅被调制。】
      $$\varphi = 3\sigma\theta = \begin{cases} 3\theta, LCP \\ -3\theta, RCP \end{cases}$$
      3 来源于 3重旋转轴
  - 展示使用 非线性 P-B 相位法，生成 相位调制了的 CGH 计算全息图 的步骤
    - LI 相振相型 "阴 - 阳 太极图" 为，倒空间中 RCP_SHG 所成的目标全息图
      $I_{target}(x, y)$

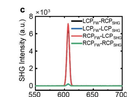
      二维 G - S 算法
      用二维的 G-S 算法，生成 在 -π ~ π 间有 16 阶相位分级的 相相位分布
      $\theta(x, y)$

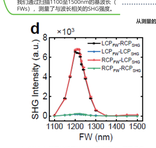
      然后，基于自旋控制的非线性几何相位的概念（即非线性 P-B 相位法，类比泛回相位编码法），能够操控 C3 金元原子的取向 θ(x,y)来 产 超表面上二维坐标 的函数。
      $$\varphi(x, y) = 3\sigma\theta(x, y) = \begin{cases} 3\theta(x, y), LCP \\ -3\theta(x, y), RCP \end{cases}$$
      
      金元超表面的纳米圆柱子阵列扫SEM图像。
      Scale bar: 500 nm
      

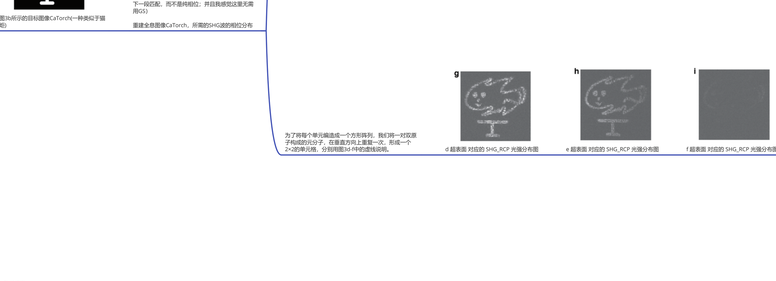
      用普通人影的飞秒激光照射等离子体超表面，来表征/查看双原子超表面全息图 的相位和非线性光学特性。
    - **方法在文末：**
      使用 电子束光刻技术 制造的非线性二原子元表面。
      电子抗蚀剂 的厚度为120纳米，涂在ITO玻璃上。
      之后在电子束光刻工艺过程中，将超表面的图案，写入抗蚀剂中。
      C3元原子的纳米球的长度和宽度约为180和80纳米。超表面的每个单元格元素一个500nm×500nm的正方形单元。
      将图案化的超表面器件先经分别溶入显影剂和异丙醇(IPA)溶液中，然后，使用电子束蒸发法镀一个30纳米厚的Au/Ti薄膜(99%纯度)。
      最后，将电子束抗蚀剂通过 lift-off 工艺，用丙酮进行除掉。
      

      然后，基于自旋控制的非线性几何相位的概念（即非线性 P-B 相位法，类比泛回相位编码法），能够操控 C3 金元原子的取向 θ(x,y)来 产 超表面上二维坐标 的函数。
      $$\varphi(x, y) = 3\sigma\theta(x, y) = \begin{cases} 3\theta(x, y), LCP \\ -3\theta(x, y), RCP \end{cases}$$
    - 展示使用 非线性 P-B 相位法，生成 相位调制了的 CGH 计算全息图 的步骤
      - 用 傅里叶（变换）红外光谱仪，查看了该超表面 对 FW 的透射率 随 波长的分布 和 产生的 SHG 强度 随波长的分布 (FTIR, Bruker: VERTEX V70, Hyperion 2000)
      - 

        超表面的SEM图像，比例尺：30 μm
      - 

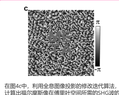
        非线性超表面 对 FW 的 透射 过（率）谱。
        较短波长的等离子共振点分别在 FW = 1126nm（H - H）和 1100nm（V - V）左右。
        较长的波长下，HH 和 VV 的两个共振点分别为 FW = 1376nm（H - H）和1382nm（V - V）左右。
        - H-H 和 V-V测量的谱线特征非常接近。
        - 可以预测，具有LCP和RCP状态的入射光将具有类似的共振行为。
        - FTIR的一个线性偏振器和一个分析器分别用于控制入射波和透射波的偏振。
          - H-H表示偏振器和分析器的透射轴（偏振方向）均沿水平（H）方向
          - V-V是指偏振片和分析仪的传输轴沿垂直（V）方向
          - H-V是指偏振片和分析仪的传输轴沿水平和垂直方向，V-H测量时反之。
        - 1100 和 1380 这两个等离子共振的本征值，所对应的本征振动模式，应分别属于 金 - 氧化铟锡 交界面（较短）和 金 - 空气 交界面（长波）
        - 然而，与参考文献 [35 - 这个南方科技大学的通讯作者的另一篇 2020 年的 nano letter] 中的结果相比，这两个共振谷要远得多（暗波到的热波的转换效率比较低）；因为GS算法算出来的相位分布很随机，以至于超表面全息图就是单C3元原子的取向方向是非常随机的排放。
        - 我们通过扫描1100至1500nm的激波长（FW），测量了该波长相对的SHG强度。
        - 

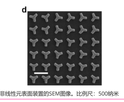
          前 - 和 非线性超表面所发出的SHG信号的光（强）谱（横坐标除了，但内容换了一个）。
          【FW 是发射的，SHG，横坐标是测量的】
          max SHG波 对应的波长 约为 605 nm。
          测量了FW和SHG波的四种不同的圆偏振状态组合。
        - 

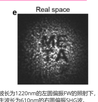
          从测量的偏振解析结果在图2中可以看到
          SHG波的最大强度出现在1210nm的波长，这归因于金-ITO混合等离子表面的 epsilon-near-zero 增强 非线性光学过程 [35]。
        - 利用他们为部自己开发的光学测量系统来测量元表面的非线性光学特性。
        - ---
        - 飞秒激光器的重复频率为80 MHz，脉冲持续时间为250 fs。
        - 圆形偏振的FW由4-物镜聚焦到光斑直径约20 μm的元表面上。
        - 然后，SHG波通过一个10-物镜（束扩展，NA = 0.25）和凸透镜的四分之一波板对线性偏振器，一个彩色滤波器（FESH800）是用来阻止修眼FW的，SHG波最终由Andor光谱仪检测。
        - 在非线性成像实验中，4-物镜被替换为焦距f= 250毫米的镜头。
        - 在实际和傅里叶空间的偏振分辨SHG图像是由一个sCMOS相机记录。
        - ---
        - 对于实空间测量，超表面安装在10-物镜的焦点。通过物镜后，SHG波最终由一个f=100毫米的透镜聚焦。
        - 在这种情况下，相机是在管镜头的焦平面，以捕捉真实的空间图像。
        - ---
        - 对于傅里叶空间测量，超表面和收集物镜的位置都是f1 ext。
        - 然后，物镜后焦平面上的图像可以由管透镜转发，通过移动CMOS相机到长于100毫米距离，我们能够记录在傅里叶平面的全息图像。
        - ---
        - 对于LCP态 的 FW 波，SHG波的 加权相位 和 相对相位 都可以对比 全息图像间给出，并结合二元一次方程，解出相应(x,y)处的，双原子的每个原子的取向角
        - 为了将每个单元编造成一个方形阵列，我们将一对双原子构成的分子，在垂直方向上重复一次，形成一个2×2的单元格，分别用图3d-f中的虚线说明。
        - 为了证明这种方法的有效性，我们设计了三个非线性元表面全息图，每个元表面都有不同的预设的SHG偏振。
        - 0 和0 之间的相关对应角differences分别为0、30和60°，这三个超表面。
        - 

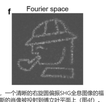
        - 在波长为1220nm的LCP FW的激发下，图3g -中所绘的右图偏振 SHG_RCP 全息图象强度与理论预测结果相一致（图S5）。
        - 1220nm 基波 IW下，一个单元中两对元原子的相对角度（从上到下）0°、60°、30°时，模拟的和不同偏振态的 SHG 的强度。
        - **在基波波长为 = 1200nm时(图S4)，在泵浦功率为4.77mW时，测得 Ca-A (在有限) 超表面的 SHG转换效率为 1.39×10 -5。**
        - **SHG强度基本正比于 FW 强度，斜率 1.93? 比理论值 2 稍微低了点。**

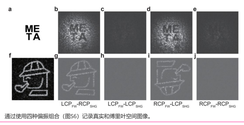
总结

- 相位、强度、偏振、三独立；
  离以 实空间、倒空间，两（但不独立）；
  应实现了6种参数的独立控制，
  但实空间与倒空间是有联系的，因此操控的自由度应该小于6？
- 等离子体超表面：金属 电介质复合材料，光入射到这种超材料后，转变成 波长比入射光波长短很多的表面等离子极化光，或者说转变成不同的电磁波-表面等离子极化子，它的波长比入射光的短。—— 这种性质来自复合材料的第一结构，其特点是超次波长（Subwavelength）距离所分开。
- 2 个 bug
  1. 横坐标 SHG 与 FW 频率的图想表达的含义一样，但实际曲线不同
  2. 可调制振幅 为什么 还说用 GS算法
- 为了进一步证明利用这原子元表面控制非线性波的自由度所带来的能力，我们探索了实空间和傅里叶空间图像的同步编码。
  - 实空间 和 傅里叶空间 的非线性图像编码
    - 如图4a、b所示，单源" META "光隔介质聚的肉像分别是实空间和傅里叶空间编码的目标图像。
      在FW的正入射下，由于SHG波的被环性干扰，META在二次谐波频率下的实空间图像可以从特殊的背景中辨别出来。
      —— 实空间图上不能大多数是黑的，而得是大多数是白的，所以 实空间的目标图像是经自设计的：用占少数的黑色来作为图像轮廓。
    - Input holographic image → Intensity: I
      Output A and φ after RMSE is converged ← IFKD → FKD
      Input real space image → Amplitude: A
      $$E(x, y) = \sqrt{I}e^{i\varphi} \qquad E(x, y) = Ae^{i\varphi}$$
      $$E(x, y) = \iint \frac{\exp(ikr)}{r}\frac{\cos\theta}{2}\frac{E(u, v)}{i\lambda}du$$
      $$r = \sqrt{z^2 + (x-u)^2 + (y-v)^2}$$
      $$\cos\theta = \frac{z}{r}$$
      CGH的设计原理是基于迭代算法和 Fresnel-Kirchhoff 衍射公式的结合（图S5）。
    - 在图4中，利用全息图像投影的修改迭代算法，计算出每个傅里叶空间的相位分布。
      其振幅分布是 严格的 白色背景下的黑色 " META"，因为是由 GS算法 每一遍都的演过的。
      - 相位用于 给出 每个 (x, y) 上的 相对角度（超表面不同位置单元内周围内元原子的）
      - 振幅用于 给出 每个 (x, y) 上的 加权角度
      - 

        非线性元表面装置的SEM图像。比例尺：500纳米
      - 

      - 

        在波长为1220nm的左圆偏振FW的照射下，可以产生波长为610nm的右圆偏振SHG波。
        图 4e 为 SHG 频率下的真实空间图像 " META "，通过实验观察到元表面平面上（后面）的图像。
      - 

        同时，一个清晰的右旋圆偏振SHG全息图像的福尔摩斯肖像被反射到傅里叶平面上（图4f）。
        这表明通过非线性光学过程对图像进行了良好的重建。如图4b所示（对比原图）。
      - 

        通过使用四种偏振组合（图S6）记录真实和傅里叶空间图像。
- 以上所述，我们提出了一种非线性的二原子元表面平台，它能够实现多维度的光信息编码。
  通过调整金C3元原子的旋转角度，可以控制来自二原子元分子的SHG波的相对相位和加权相位。
  通过这种方式，我们获得了同时操纵非线性波的相位、极化和振幅的能力，用一个新颖的简单的构件。
  通过设计一个工作在二次谐波频率的非线性二原子元表面，我们证明了偏振和振幅控制的非线性全息，以及在实数和傅里叶空间的非线性信息编码。
  通过明智地选择合适的对称性和元原子的材料，所提出的方法可以应用于其他非线性光学过程。
  超薄的非线性二原子元表面作为一个有趣的非线性波片上编码平台，可国在光学信息安全、信息处理等方面具有巨大的潜力。