

等离激元与介电常数近零模式强耦合超表面中线性和非线性 光学响应的主动调制研究*

秦宇航¹⁾ 梁世杰¹⁾ 谭家兴¹⁾ 王文静¹⁾ 霍燕燕¹⁾ 赵曰峰¹⁾ 蔡

阳健¹⁾ 宁廷银^{1†)}

1) (山东师范大学物理与光电学院, 山东省光场调控物理及应用重点实验室, 济南 250358)

摘 要

本工作数值研究了由超薄氧化铟锡 (indium tin oxide, ITO) 薄膜及置于其上的 U 型金纳米结构组成的超表面中的线性和非线性光学响应. 金纳米结构中的表面等离激元共振模式与 ITO 层中的介电常数近零 (ϵ -near-zero, ENZ) 模式之间存在强耦合. 通过调节 ITO 的载流子浓度 (N_{ITO}), 可以动态调控其 ENZ 波长, 从而有效控制共振模式的位置和线性透射强度, 由此实现了在特定波长下透射从"开启"到"关闭"的光开关功能. 除调控线性光学响应外, 改变 N_{ITO} 还可以调控非线性光学二次谐波产生 (second harmonic generation, SHG), 实现非线性光学响应调控. 研究发现 SHG 转换效率高度依赖于 ENZ 模式与表面等离激元共振的匹配, 通过优化 N_{ITO} 可以获得最大的 SHG 响应. 研究结果表明, 具有表面等离激元-ENZ 模式强耦合的超表面结构在可集成微纳光子学器件的线性和非线性光学动态调制方面具有卓越的能力和潜在的应用前景.

关键词: 超表面, 介电常数近零材料, 二次谐波产生

PACS: 42.56.Ky, 78.66.-w, 78.67.Pt

基金: 国家自然科学基金 (批准号: 12174228) 资助的课题.

† 通信作者. ningtingyin@sdu.edu.cn

第一作者. 2024213091@stu.sdu.edu.cn

1 引言

超表面通过亚波长人工微纳结构对光场的振幅、相位、偏振及轨道角动量有效调控,为实现光场多维操控与光子器件的小型化和可集成化提供了革命性的平台^[1-4]. 尤其主动光学调制在高性能可重构超表面发展中发挥着关键作用^[5-11]. 近年来,介电常数近零(ϵ -near-zero, ENZ)材料,如氧化铟锡(indium tin oxide, ITO),作为新型主动调控材料受到广泛关注. 此类材料的 ENZ 波长与其载流子浓度(N_{ITO})密切相关,可通过施加外部偏压^[12, 13]或光泵浦^[14, 15]对其进行动态调控,从而实现对其光学响应的主动调制. 值得注意的是,ENZ 材料在 ENZ 波长附近表现出独特的光学特性,如场增强、慢光效应和受限 ENZ 模式,使其成为增强非线性效应的理想平台^[16-18].

近年来,近零介电常数材料与金属纳米结构的复合体系成为研究的热点. 金属纳米结构能够激发表面等离激元共振(surface plasmon resonance, SPR)将光场局域在远小于波长的尺度内,产生显著的局域场增强效应,从而增强光与物质的相互作用,如增强金属纳米结构本身^[19-21]及周围介质^[22-24]的非线性光学效应,超灵敏表面增强拉曼散射光谱^[25-27],表面等离激元增强的光力及光镊效应^[28,29],高性能光电探测^[30]及等离激元纳米激光器^[31]等. ENZ 材料与金属纳米结构的耦合,既能产生等离子体的局域场增强,又能发挥 ENZ 材料出色的电磁调制能力,这种协同效应使其备受关注. 利用 SPR 与 ENZ 模式的耦合,可显著拓宽器件的工作带宽,实现超快响应及大幅增强非线性过程. 例如,王等人通过金属-绝缘体-金属(metal-insulator-metal, MIM)结构中 SPR 与 ENZ 模式的耦合,实现了中红外波段 470 nm 的宽带吸收特性^[32]; Kuttruff 等人则通过 MIM 纳米腔中 ENZ 模式对线性光子吸收的调制,成功实现了非简并全光超快调制^[33]; Alam 等人通过将金纳米棒天线的偶极共振模式与 ITO 结合,实现了宽带且超快的非线性响应^[34];

此外,郭等人在 MIM 结构中通过间隙表面等离子激元与 ENZ 模式的强耦合,实现了宽波段、低功率下的非线性折射率调制^[35]. 进一步的,研究者们利用复合体系中 ENZ 材料的载流子浓度调控,还实现了对超表面透射、反射相位及振幅的动态控制. 例如,Zhang 等人在金与 ENZ 材料多层薄膜中利用载流子浓度调控设计了一种可调谐光开关^[9]; Xie 等人在“+”型金与 ITO 复合超表面结构中通过电控 ITO 载流子浓度实现电光效应^[36]; Huang 等人在金光栅与 ITO 复合超表面结构中通过电调控 ITO 的载流子浓度来调节其介电常数,从而有效控制超表面反射光的相位和振幅^[37]; Park 等人在 MIM 结构中通过电调控 ITO 载流子浓度,实现了从弱耦合到强耦合的状态转变及相位调制^[38].

非线性谐波产生作为基本光学非线性过程之一,在新型短波长激光源、非线性光学成像和表界面探测等领域具有重要应用^[39]. 传统非线性材料的谐波产生是固定的,难以实现动态调控,限制了片上非线性光子器件应用的灵活性. 在金属-ENZ 复合体系中通过调控 ENZ 材料的载流子浓度来主动控制非线性光学谐波产生是一个重要途径. 目前近零介电常数材料与金属纳米结构复合体系的光学性质研究更多集中于对线性光学响应的调控及非线性折射率的增强与调制,对非线性谐波产生的调制研究较少且没有考虑 ENZ 材料载流子浓度改变对谐波产生的主动调控^[40-42]. 此外,在该复合体系中,当 ENZ 材料的载流子变化时,从微观角度研究载流子浓度改变对谐波产生的影响还鲜有报道.

本研究通过数值模拟,在由 U 型金阵列与 ITO 层构成的超表面中,研究了 ITO 载流子浓度改变对其线性光学响应的调制,尤其从微观角度研究了 ITO 载流子浓度对其非线性二次谐波产生(second harmonic generation, SHG)的影响. 研究观察到 SPR 与 ENZ 模式之间的强耦合效应,并可通过调节 ITO 的载流子浓度改变其 ENZ 波长,从而实现对耦合效应的有效调制. 超表面在特定波长处的透射

率变化可作为光学开关的工作机制,同时 SHG 转换效率也得到了显著调控. 研究表明, 等离激元-ENZ 强耦合超表面能够实现动态的线性与非线性光学调制, 为未来小型化可调谐微纳光子学器件的开发提供了坚实的技术路径和理论依据.

2 设计的超表面和理论模型

本工作所设计超表面的结构示意图如图 1 所示. 该超表面由沉积在二氧化硅 (SiO_2) 基底上的 ITO 薄膜及置于其上的 U 型金阵列组成 (图 1(a)). 超表面周期性单元示意图如图 1(b)所示. 单元的顶视图和侧视图分别显示在图 1(c)和图 1(d)中. 一个单元的周期为 $P_x = 500 \text{ nm}$ 和 $P_y = 600 \text{ nm}$. U 型金的尺寸为 $L_x = 320 \text{ nm}$ 、 $L_y = 440 \text{ nm}$ 、 $W = 100 \text{ nm}$, $h_{\text{Au}} = 30 \text{ nm}$. ITO 薄膜的厚度为 $h_{\text{ITO}} = 20 \text{ nm}$.

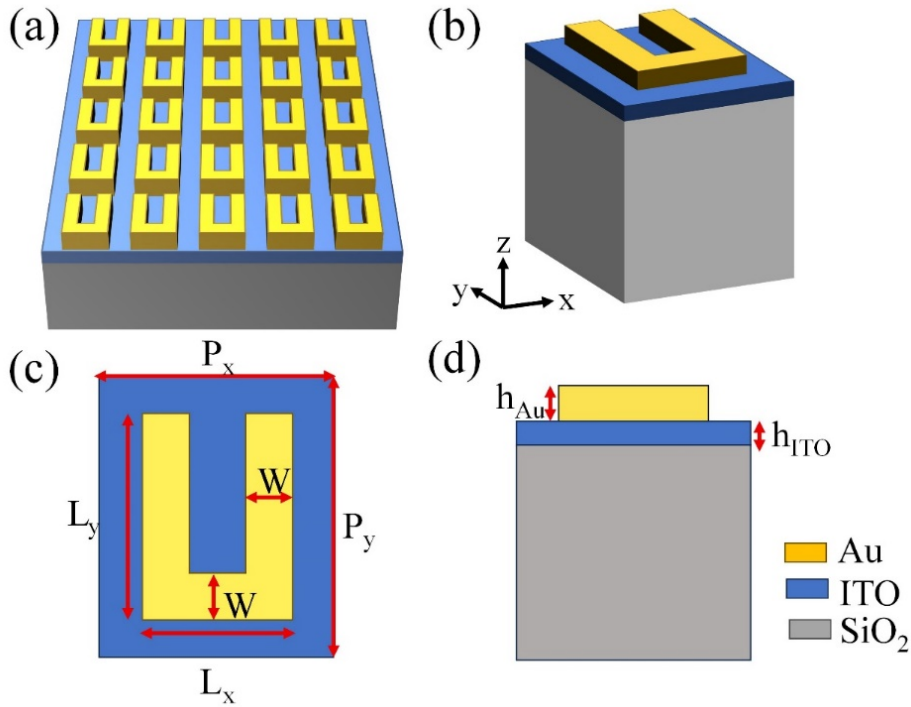


图 1 (a) 所设计超表面的结构示意图; (b) 超表面一个单元的三维示意图; 单元的 (c) 顶部视图和 (d) 侧面视图

Fig. 1. (a) Schematic diagram of the designed metasurface, Schematic of (b) 3D, (c) top and (d) side view of one unit cell of the metasurface, respectively

上述所设计的超表面结构在实验上是可制备的. 首先, 20 nm 厚的 ITO 薄膜层可在 SiO_2 基底上采用磁控溅射法、电子束溅射或原子层沉积法等制备. 然后, 在已制备的 ITO 层上旋涂电子束胶, 利用电子束曝光技术结合显影工艺得到所设计 U 型孔结构. 由于所设计 U 型结构线宽为 100 nm, 远大于电子束曝光可实现的分辨率, 因此微纳加工制备是可行的. 随后, 利用电子束溅射或者热蒸镀工艺沉积 30 nm 厚的金, 最后将未曝光的电子束胶溶掉, 即可得到置于 ITO 层上 U 型金阵列.

超表面的光学响应可通过数值求解光学波动方程得到, 基频波在频域中的波动方程如下^[39]:

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}_1 - k_1^2 \mathbf{E}_1 = \mu_0 \omega^2 \mathbf{P}_1 \quad (1)$$

其中, $\mathbf{E}_1$ 表示基频 ω 处的电场强度, $k_1 = \omega/c$ 为波矢, c 为真空中的光速, μ_0 为真空磁导率. $\mathbf{P}_1 = \epsilon_0(\epsilon_r - 1)\mathbf{E}_1$ 表示基频处的极化强度, 其中 ϵ_0 为真空介电常数, ϵ_r 为材料的相对介电常数.

在自由电子或载流子材料 (如金属、掺杂半导体) 中, 非线性谐波产生可以从麦克斯韦方程组及流体模型中推导得出. 考虑三阶及以上项公式变的非常复杂, 我们只考虑 SHG 响应. 在时域中, 麦克斯韦方程组的二阶形式可以表示为^[43,44]:

$$\nabla \times \mathbf{E}_2 = -\frac{\partial \mathbf{B}_2}{\partial t} \quad (2)$$

$$\frac{\partial \mathbf{E}_2}{\partial t} = c^2 \nabla \times \mathbf{B}_2 - \frac{1}{\epsilon_0} \mathbf{j}_2 \quad (3)$$

$$\frac{\partial \mathbf{j}_2}{\partial t} = -\gamma \mathbf{j}_2 + \epsilon_0 \omega_p^2 \mathbf{E}_2 + \mathbf{S}_2 \quad (4)$$

其中, $\mathbf{B}_2$ 和 $\mathbf{E}_2$ 分别是 SHG 频率 2ω 处的磁场和电场, $\mathbf{j}_2$ 是二次谐波频 2ω 处的电流密度, γ 是电子碰撞率, $\omega_p = \sqrt{n_0 e^2 / \epsilon_0 m_e^*}$ 是金属或掺杂半导体的等离子体共

振频率, 其中 n_0 是平衡电荷密度, e 是电子电荷, m_e^* 是电子的有效质量. 非线性源项 $\mathbf{S}_2$ 可表示为^[43,44]:

$$\mathbf{S}_2 = \sum_k \frac{\partial}{\partial r_k} \left(\frac{\mathbf{j}_1 \mathbf{j}_{1k}}{en_0} \right) - \frac{e}{m_e} [\varepsilon_0 (\nabla \cdot \mathbf{E}_1) \mathbf{E}_1 + \mathbf{j}_1 \times \mathbf{B}_1] \quad (5)$$

其中, 第一项为载流子 (电子) 对流项, 第二项为电洛伦兹力项, 第三项为磁洛伦兹力项. k 代表 x 、 y 和 z 坐标. $\mathbf{j}_1 = \dot{\mathbf{P}}_1$ 是基频 ω 处的电流密度, $\mathbf{j}_{1k}$ 为基频电流密度在不同坐标 $k=x, y, z$ 轴上的分量, $\mathbf{B}_1$ 是基频磁场.

金和 ITO 的相对介电常数可描述为 Drude 模型 $\varepsilon_{Au,ITO} = \varepsilon_\infty - \omega_p^2 / (\omega^2 + i\gamma\omega)$. 对于金, $\varepsilon_\infty = 1$, $\gamma = 1.075 \times 10^{14} \text{ s}^{-1}$, $m_e^* = m_e$, $n_0 = 5.98 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$; 对于 ITO, $\varepsilon_\infty = 3.8055$, $\gamma = 0.0468\omega_p$, $m_e^* = 0.35m_e$, 并且载流子浓度 n_0 (即 N_{ITO}) 可根据不同的原子组分、制备方法或外加电压等进行调节. SiO_2 基底的折射率取为 1.45.

方程 (2) - (4) 可以在谐波框架下根据傅里叶变换写为频域形式. 上述耦合方程利用有限元法 (Comsol Multiphysics) 进行数值求解, 以获得纳米结构的线性光学响应和 SHG 响应. 详细设置可参考文献^[20]. 简而言之, 计算时选取超表面的单个元胞作为仿真模型. U 型金纳米结构与 ITO 层置于 SiO_2 基底上, 其上面为空气域. 在空气域和基底域分别设置端口 1 和端口 2, 端口外侧附加完美匹配层 (PML) 以消除非物理反射. 其中端口 1 用于平面波激励, 入射光采用垂直入射且偏振方向沿 x 轴, 端口 2 用于收集透射光信号. 计算区域四周采用周期性边界条件, 以模拟无限周期阵列. 在 SHG 转换效率很低 ($<10^{-2}$) 时, 可采用小信号近似, 即基频光强度变化可忽略, 且 SHG 电场不会与基频电场耦合产生其他非线性过程. 模拟过程分为两个步骤. 首先, 利用频域电磁场求解器计算超表面的线性光学响应, 可得透射率、电场 $\mathbf{E}_1$ 、磁场 $\mathbf{B}_1$ 及表面电流 $\mathbf{j}_1$ 等. 然后, 利用上述得到 $\mathbf{E}_1$ 、 $\mathbf{B}_1$ 及 $\mathbf{j}_1$ 计算非线性源 $\mathbf{S}_2$ 作为 SHG 的产生源, 求解二阶形式的麦克斯韦方程组, 可获得二次谐波电场 $\mathbf{E}_2$ 及对应的 SHG 辐射功率等.

3 结果和讨论

图 2(a)所示为 ENZ 波长位于 1240 nm 处的 ITO 的介电常数 ($N_{ITO} = 0.97 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$)。U 型金阵列直接置于 SiO_2 基底和置于该 ITO 层上的线性透过谱如图 2(b) 所示。可以看到, ITO 薄膜会导致 U 型金纳米结构在 1200 nm 处的 SPR 模式分裂为两个分支, 即位于 1085 nm 处的上极化激元 (UP) 共振模式和位于 1440 nm 处的下极化激元 (LP) 模式。该分裂源于金纳米结构的表面等离激元共振与 ITO 层的 ENZ 模式之间的强耦合。拉比分裂能 $\hbar\Omega$ 为 281.2 meV。图 2(c)展示了超表面共振波长随 L_y 值的变化。根据耦合模理论^[35,45], 该耦合系统的色散关系可以表达为

$$E_{coupled}^{UP,LP}(k_x) = \frac{E_1(k_x) + E_2(k_x)}{2} \pm \frac{1}{2} [(\hbar\Omega)^2 + (E_1(k_x) - E_2(k_x))^2]^{1/2} \quad (6)$$

其中, $E_{coupled}^{UP,LP}(k_x)$ 为耦合上支和下支的色散关系, $E_1(k_x)$, $E_2(k_x)$ 分别为耦合前两种模式的色散关系。图 2(c)可以看到, 当 SPR 和 ENZ 模式相互靠近并交叉时, 发生强耦合。此时, 耦合系统满足强耦合条件 $g > |\gamma_{SPP} - \gamma_{ENZ}|/2$ 和 $g > \sqrt{\gamma_{SPP}^2 + \gamma_{ENZ}^2}/4$, 其中变量的数值为: $\hbar\Omega = 268.2 \text{ meV}$, 耦合强度 $g = 135.4 \text{ meV}$, SPR 模式的阻尼率 $\gamma_{SPR} = 113.7 \text{ meV}$, ITO 薄膜的阻尼率 $\gamma_{ENZ} = 76 \text{ meV}$ 。两模式的阻尼率由它们各自的半宽高计算所得, 耦合强度由公式 $g = \sqrt{(\hbar\Omega)^2 + (\gamma_{SPP} - \gamma_{ENZ})^2}/2$ 计算得来。图 2(d)所示为三个共振波长及 ENZ 波长 (见图 2(b)) 处的电场 E_z 分布, 这些分布图绘制于 U 型金结构 L_x 中心的 xz 平面上。值得注意的是, 在未引入 ITO 层时, 电场局域在金属棒的两端; 引入 ITO 层后, ENZ 波长处 (1240 nm) 的电场局域在 ITO 层内, 呈现出典型的 ENZ 模式特征; 而 UP 和 LP 两个共振模式的电场则泄漏进入 ITO 层, 这同样表明在该区域 SPP 模式与 ENZ 模式之间存在耦合。

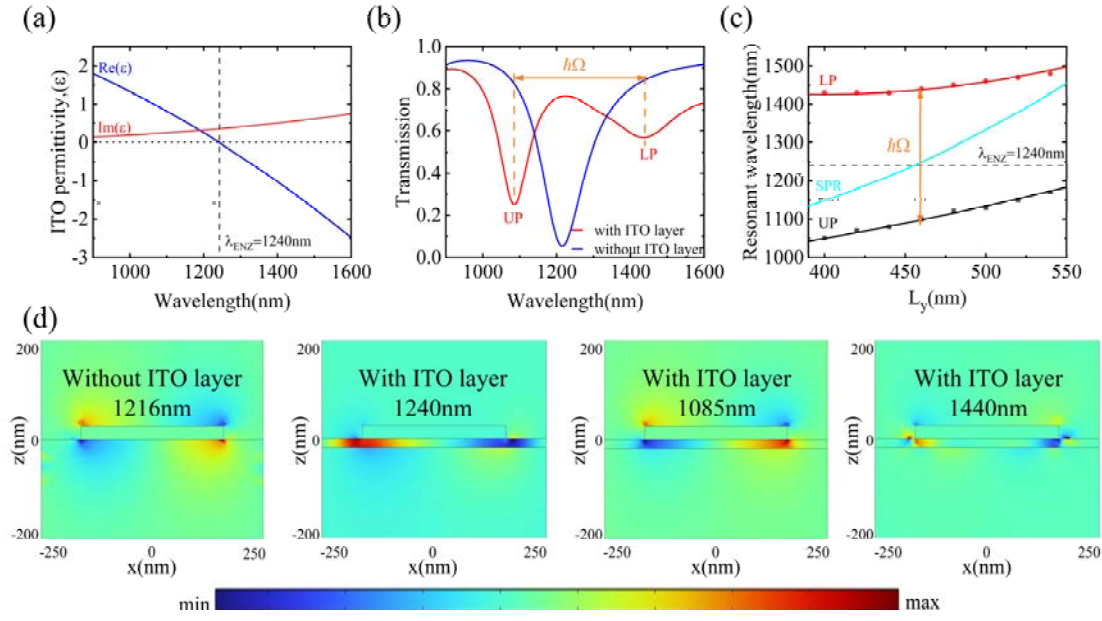


图 2 (a) $N_{ITO} = 0.97 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ 时 ITO 的介电常数谱; (b) 超表面的线性透射; (c) 不同 L_y 值下超表面的共振波长; (d) 超表面在共振波长及 ENZ 波长处的电场 E_z 分布 (xz 平面)

Fig. 2. (a) Dielectric constant of ITO; (b) Linear transmission of the metasurface; (c) Resonant wavelength under different L_y of metasurfaces; (d) Electric field E_z distribution at the resonance and ENZ wavelengths of the metasurface (xz -plane)

ITO 的介电常数可以通过改变其载流子浓度进行调制. 图 3(a)和 3(b)分别为 ITO 介电常数实部和虚部与其载流子浓度的关系, 实验上电控 ITO 载流子浓度范围可达到 10^{19} 到 10^{21} cm^{-3} [46], 因此本文所设置的载流子浓度调制范围是可行的. 图 3(a)中标记的蓝线对应 ITO 的 ENZ 波长, 随着 N_{ITO} 的增加, 该波长向短波方向移动 (蓝移). 因此, 可以通过改变 ITO 的 N_{ITO} 来调节其 ENZ 波长, 从而调制超表面的线性和非线性光学响应, 此即为基于 ITO 超表面的主动型光子器件的工作原理. 值得注意的是, 本论文只考虑载流子浓度均匀时的简单情形, 以此表明 ITO 载流子浓度可实现对超表面线性和非线性光学响应的调控, 从而得到主动型光子学器件. 当考虑实际载流子浓度随深度变化的不均性时, 其介电常数实虚部会发生变化, 在一定程度上会影响线性和非线性响应, 但不影响该论文的主要结论.

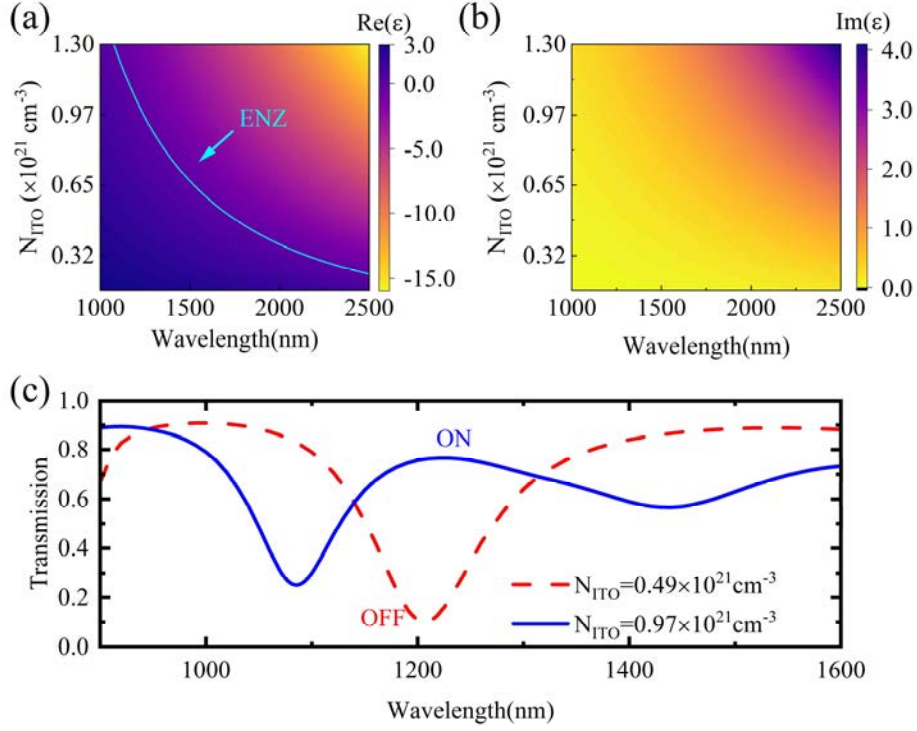


图 3 (a)和(b) ITO介电常数的实部和虚部随 N_{ITO} 的变化，蓝线为ENZ的位置； (c) 可调谐透射谱实现电光开关

Fig. 3. (a) and (b) Variation of the real and imaginary parts of the dielectric constant of ITO as a function of the carrier concentration N_{ITO} , with the blue line indicating the corresponding ENZ position; (c) Tunable transmission to realize electro-optic switching

我们首先探究超表面中可调谐的线性光学响应. 图 3(c)展示了当 ITO 层具有不同载流子浓度时超表面的线性透射光谱. 如果选择一个特定波长作为工作波长, 例如 1200 nm, 这种可调谐的线性透射表现出光开关行为. 当 $N_{ITO} = 0.97 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ 时, ITO 的 ENZ 波长约为 1240 nm, 超表面的透射率约为 0.76, 对应于“ON”态. 而当 $N_{ITO} = 0.49 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ 时, ITO 的 ENZ 波长变为 1755 nm, 超表面的透射率降至 0.11, 将处于“OFF”态. 表明基于 N_{ITO} 调控超表面的透射谱实现主动调控的光开关器件是可行的. 图 4(a)详细研究了不同 N_{ITO} 时超表面的透射谱. 如前文所述, 随着载流子浓度 N_{ITO} 的增加, ITO 的 ENZ 波长发生蓝移. 分裂出的 UP 和 LP 模式也发生蓝移, 同时 UP 和 LP 处的透射率分别变大和变小. 由 N_{ITO} 的改

变引起的超表面透射调制深度可以使用消光比 (ER) 来表征, 如图 4(b)所示. 其定义为 $ER = 10 \log T_1/T_0$ ^[47], 其中 T_0 和 T_1 分别代表 $N_{ITO} = 0.97 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ 时和其他 N_{ITO} 对应的超表面透射率. 当 $N_{ITO} = 0.49 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ 时, 在 1084 nm 波长处实现了 5.15 dB 的调制深度, 在 1203 nm 波长处实现了 -8.63 dB 的调制深度. 因此, 该相应波段可选用为光开关的工作波长. 相应的“ON”状态附近的插入损耗 ($IL = 10 \log(1/T_0)$) 与开关的品质因数 ($FOM = |ER/IL|$) 如图 4(c)与 4(d)所示. 在波长 1203 nm 处, 插入损耗和品质因数分别为 1.19 dB 和 7.25. 因此, 通过调节 ITO 的载流子浓度, 可以调制超表面的透射光谱的振幅和共振波长位置, 从而实现光开关效应.

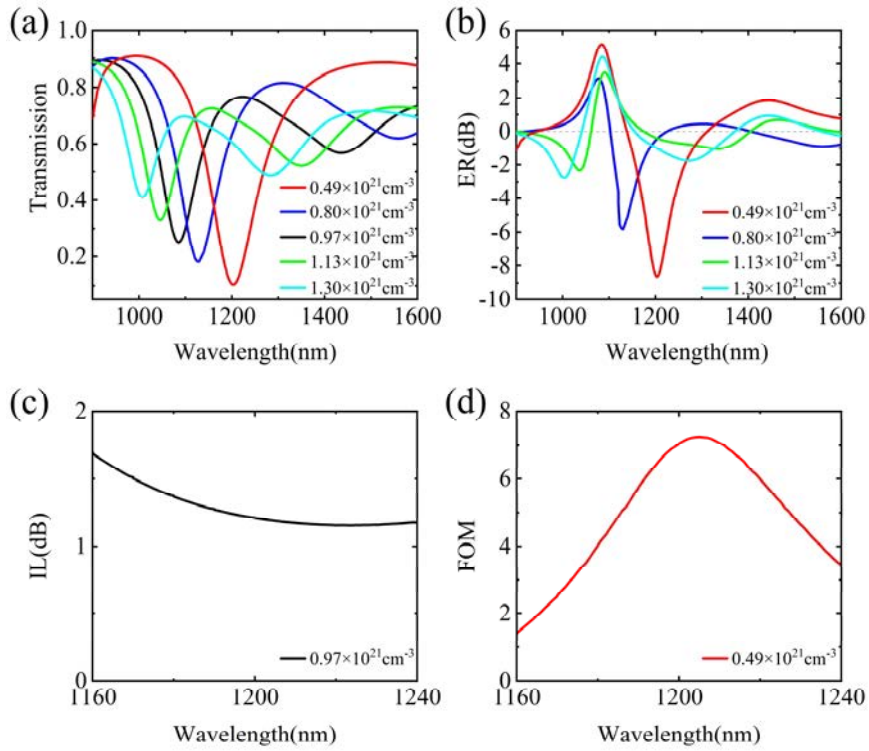


图 4 (a) 不同 N_{ITO} 值下超表面的透射光谱; (b) 相应的消光比; (c)和(d)分别为最大调制深度处“ON”状态附近的插入损耗与品质因数

Fig. 4. (a) Transmission spectra and (b) the corresponding extinction ratio of the metasurface at different N_{ITO} values; (c) the insertion loss and the figure of merit at the maximum modulation depth around the “ON” state

进一步地,我们研究了超表面中的SHG调制. 泵浦光强度设定为 10 MW/cm^2 . SHG 转换效率定义为 $\eta = P_{\text{SHG}}/P_{\text{in}}$, 其中 P_{in} 和 P_{SHG} 分别是基频入射光的平均功率和 SHG 的功率. 图 5(a)展示了不同 N_{ITO} 值下的 SHG 转换效率. 当 $N_{\text{ITO}} = 1.12775 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ 时, SHG 转换效率在 657 nm 波长处的二次谐波波长处达到最大值, 数值为 6.43×10^{-7} . 在相同的载流子浓度下, SiO_2 基底上的裸 ITO 层和单独的 U 型金纳米结构产生的 SHG 转换效率分别为 1.79×10^{-18} 和 1.08×10^{-10} . 这表明, U 型金结构中的 SPR 模式与 ITO 层中的 ENZ 模式之间的耦合, 显著增强了裸 ITO 层和金纳米结构的 SHG 转换效率, 分别增强了 10 个数量级和 3 个数量级. 而在 U 型金与 ITO 层形成的超表面结构中, 整体的 SHG 响应主要来自于 SPR 局域电场增强的 ITO 层, 而局域电场增强的 U 型金自身的 SHG 相对较弱. 对于 ITO 层的 SHG 产生源, 我们分别单独计算了对流项、电洛伦兹力项及磁洛伦兹力项的贡献. 结果表明对流项占主导地位, 其次是电洛伦兹力项, 而磁洛伦兹力项最弱. 但考虑三者是相互耦合且相干的, SHG 贡献并不能简单地拆分成三者的单独贡献. 图 5(a)的插图展示了当 $N_{\text{ITO}} = 1.12775 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ 时, UP 和 LP 共振模式下 xy 平面处的二次谐波电场 $|\mathbf{E}_2|$ 的分布图. UP 共振模式的最大 SHG 场为 $4.89 \times 10^6 \text{ V/m}$, 而 LP 共振模式的最大 SHG 场略大, 为 $9.84 \times 10^6 \text{ V/m}$.

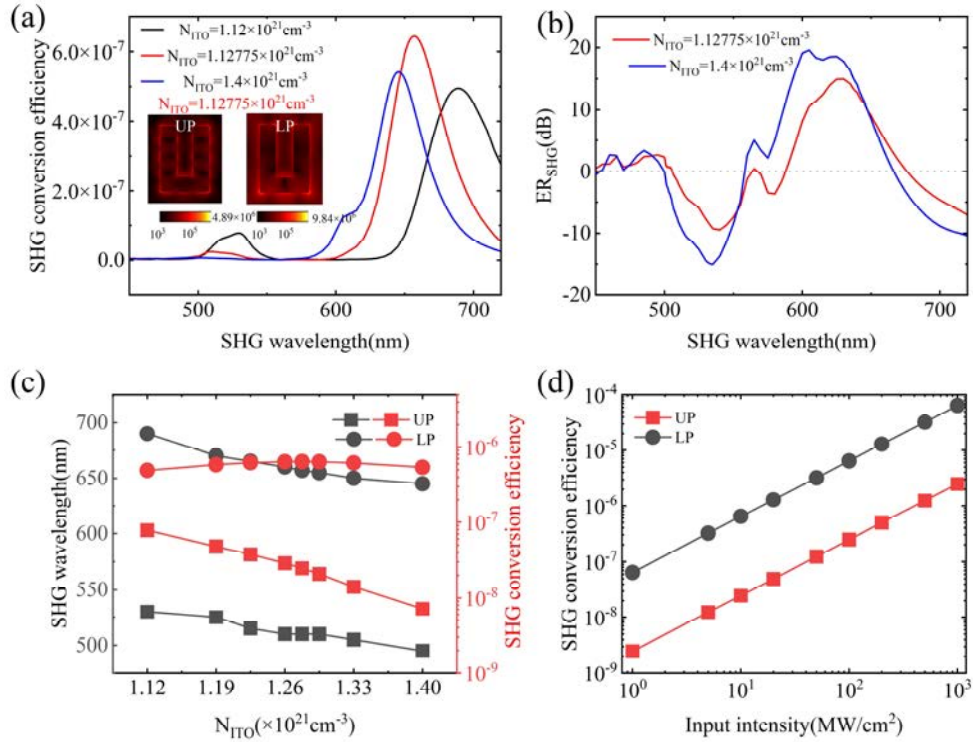


图 5 不同 N_{ITO} 值下的 SHG 调制. (a) 不同 N_{ITO} 值下超表面的 SHG 转换效率随 SHG 波长的变化关系及 (b) 相应的调制情况; (c) 不同 N_{ITO} 值下的 UP 和 LP 处的 SHG 转换效率 (红色部分) 及其对应的 SHG 波长 (黑色部分); (d) 在固定 $N_{\text{ITO}} = 1.12775 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ 时, 超表面在不同入射光强度下 UP 和 LP 处的 SHG 转换效率

Fig. 5. SHG modulation at different N_{ITO} values: (a) SHG conversion efficiency of the metasurface as a function of SHG wavelength at different N_{ITO} values and (b) corresponding modulation; (c) SHG conversion efficiency (red part) and its corresponding SHG wavelength (black part) at UP and LP modes with different N_{ITO} values; (d) SHG conversion efficiency of the metasurface at UP and LP modes under different incident light intensities with a fixed

$$N_{\text{ITO}} = 1.12775 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$$

超表面 SHG 的调制深度也可以用与线性响应相似的方式来定义. SHG 的消光比 (ER_{SHG}) 可以定义为 $ER_{\text{SHG}} = 10 \log P_{\text{SHG1}} / P_{\text{SHG0}}$, 其中 P_{SHG0} 和 P_{SHG1} 分别代表 $N_{\text{ITO}} = 1.12 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ 时和改变 N_{ITO} 后的 SHG 转换效率. 图 5(b) 展示了超表面 ER_{SHG} 值. 可见, 随着 N_{ITO} 的增加, SHG 调制深度增大. 当 $N_{\text{ITO}} = 1.4 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$

时, SHG 调制深度在 605 nm 的 SHG 波长处达到最大值, 为 19.6 dB; 在 SHG 波长 535 nm 处达到最小值, 为 -15.1 dB. 图 5(c)展示了在不同 N_{ITO} 值下, UP 和 LP 共振模式处的 SHG 转换效率 (红色) 及其对应的 SHG 波长 (黑色). 方形虚线代表 UP 共振模式, 圆形虚线代表 LP 共振模式. 可以看出, 随着 N_{ITO} 的增加, UP 共振模式的峰值 SHG 转换效率降低, 峰值对应的 SHG 波长发生蓝移. LP 共振模式的峰值 SHG 转换效率先增大后减小, 在 $N_{\text{ITO}} = 1.12775 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ 时达到最大值. 同样, LP 共振模式对应 SHG 转换效率最大值的 SHG 波长也向短波方向移动. 图 5(d)展示了在固定载流子浓度 $N_{\text{ITO}} = 1.12775 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ 时, UP 和 LP 共振模式在不同入射光强度下的 SHG 转换效率峰值. 在对数图中, 两条虚线的斜率均为 1, 这表明该过程确实是 SHG 过程. 此外, 在 10^3 MW/cm^2 的入射光强度下, LP 共振模式的 SHG 转换效率最高可达 6.43×10^{-5} . 该入射光强对应 U 型金纳米结构和 ITO 薄膜中的最大局域光强 (U 型金下端与 ITO 接触的两个外拐角处) 均约为 1 TW/cm^2 , 都低于文献报道中实验测量的金和 ITO 薄膜的激光损伤阈值^[48,49]. 与典型超表面中的 SHG 转换效率相比, 如表 1 所示, 这一转换效率介于典型纯金属超表面^[20,21,50]和纯介质超表面^[51,52]共振模式下得到 SHG 转换效率, 大于目前实验上得到的金属纳米结构与 ENZ 复合超表面中的 SHG 转换效率^[41,42]. 该转换效率表明超表面中增强且可调的 SHG 响应在主动型非线性光子器件中具有潜在的应用价值.

表 1 不同超表面光学 SHG 转换效率比较

Table 1. Comparison of SHG conversion efficiency in different metasurfaces

结构类型	入射光强	SHG 转换效率
金双间隙开口环超表面 ^[20]	10 GW/cm^2	10^{-6}
U 型金阵列超表面 ^[21]	55 MW/cm^2	6.9×10^{-10}

竖直 U 型金等离激元超表面 ^[50]	1 GW/cm ²	10 ⁻⁸
非对称 LiNbO ₃ 超表面 ^[51]	3.3 KW/cm ²	0.49%
非对称 AlGaAs 超表面 ^[52]	1.6 GW/cm ²	1.6×10 ⁻⁵
SiN 共振光栅波导 ^[53]	1 GW/cm ²	1×10 ⁻⁷
AlGaAs+ENZ 材料超表面 ^[54]	1.6 GW/cm ²	10 ⁻³
C3 对称性金+ENZ 材料超表面 ^[41]	95.5 MW/cm ²	5×10 ⁻¹⁰
U 型金阵列+ENZ 材料超表面 ^[42]	4.6 GW/cm ²	2.3×10 ⁻⁷
本工作	10 ³ MW/cm ²	6.43×10 ⁻⁵

我们将本工作与其他已报道的典型超表面结构中的调控方式及性能做了对比，如表 2 所示. 可以看出，我们设计的金属-ENZ 材料结构在线性光学和 SHG 方面具有明显的协同调控优势.

表 2 不同超表面光学调控方式与性能比较

Table 2. Comparison of modulation methods and performances in different metasurfaces

结构类型	调控方式	线性调制深度	SHG 调制深度
金与 ITO 多层膜结构 ^[9]	电压调控	ER=13.44 dB	无
“十”字型金+ITO 层超表面 ^[36]	电压调控	ER=17.58 dB	无
金栅压可调超表面 ^[37]	电压调控	$\Delta R/R=30\%$	无
MIM 谐振器阵列 ^[38]	电压调控	ER=1.7 dB	无
MIM 纳米腔 ^[33]	全光调控	ER=3.34 dB	无
C3 对称性金+ITO 层超表面 ^[55]	全光调控	$\Delta T/T=1\%$	$ \Delta I_{\text{SHG}}/I_{\text{SHG}} = 50\%$
C3 对称性金+ITO 层超表面 ^[56]	全光调控	无	97%
液晶层+C3 对称性金+ITO 层超表面 ^[11]	电压调控	无	ER _{SHG} = 25 dB
本工作	电压调控	ER=8.63 dB	ER _{SHG} = 19.6 dB

4 结 论

本文研究了在 SPR 与 ENZ 模式强耦合的超表面中，对线性和非线性光学响应的主动调制. 通过改变 ITO 的载流子浓度调制其 ENZ 波长，实现对 SPR-ENZ 强耦合超表面的线性和非线性光学响应的有效控制. 在线性光学响应区域，实现

了对 UP/LP 模式波长位置和透射率的显著调制，为电控光开关奠定了基础。在非
线性光学响应区域，实现了对 SHG 效率的动态控制，并发现当 ENZ 模式与等离
激元共振最优匹配时，可获得最大的非线性转换效率。这项工作展示了等离激元
与 ENZ 材料耦合在光调制方面的优势，为设计开发先进的可调谐线性和非线性
光子器件提供了坚实的理论支撑。

参考文献

- [1] Yu N F, Genevet P, Kats M A, Aieta F, Tetienne J P, Capasso F, Gaburro Z 2011
Science **334** 333
- [2] Genevet P, Capasso F, Aieta F, Khorasaninejad M, Devlin R 2017 *Optica* **4** 139
- [3] Guo Y H, Zhang S C, Pu M B, He Q, Jin J J, Xu M F, Zhang Y X, Gao P, Luo X G
2021 *Light Sci. Appl.* **10** 1
- [4] Pu M B, Li X, Ma X L, Wang Y Q, Zhao Z Y, Wang C T, Hu C G, Gao P, Huang C,
Ren H R, Li X P, Qin F, Yang J, Gu M, Hong M H, Luo X G 2015 *Sci. Adv.* **1**
e1500396
- [5] Abdelraouf O A M, Wang Z Y, Liu H L, Dong Z G, Wang Q, Ye M, Wang X R,
Wang Q J, Liu H 2022 *ACS Nano* **16** 13339
- [6] Xiao S Y, Wang T, Liu T T, Zhou C B, Jiang X Y, Zhang J F 2020 *J. Phys. D: Appl.
Phys.* **53** 503002
- [7] Zou C J, Sautter J, Setzpfandt F, Staude I 2019 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **52** 373002
- [8] Ma W B, Zhou C B, Chen D L, You S J, Wang X F, Wang L Y, Jin L, Huang L J,
Wang D Q, Miroshnichenko A E 2023 *Opt. Express* **31** 13125
- [9] Zhang B W, Liu F, Ma Y X, Huang H, Chen Z D, Zhang A L 2025 *Opt. Commun.*

- [10] Carletti L, Gandolfi M, Rocco D, Tognazzi A, de Ceglia D, Vincenti M A, De Angelis C 2021 *Nanophotonics* **10** 4209
- [11] Sharma M, Tal M, McDonnell C, Ellenbogen T 2023 *Sci. Adv.* **9** eadh2353
- [12] Kim S J, Brongersma M L 2017 *Opt. Lett.* **42** 5
- [13] Forouzmand A, Salary M M, Inampudi S, Mosallaei H 2018 *Adv. Opt. Mater.* **6** 1701275
- [14] Alam M Z, De Leon I, Boyd R W 2016 *Science* **352** 795
- [15] Forouzmand A, Mosallaei H 2019 *ACS Photonics* **6** 2860
- [16] Wu J Y, Xie Z T, Sha Y H, Fu H Y, Li Q 2021 *Photonics Res.* **9** 1616
- [17] Silveirinha M G, Engheta N 2007 *Phys. Rev. B* **76** 245109
- [18] Edwards B, Alù A, Young M E, Silveirinha M, Engheta N 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 033903
- [19] Kauranen M, Zayats A V 2012 *Nat. Photonics* **6** 737
- [20] Liu D, Ren Y Y, Huo Y Y, Cai Y J, Ning T Y 2023 *Opt. Express* **31** 23127
- [21] Ciraci C, Poutina E, Scalora M, Smith D R 2012 *Phys. Rev. B* **86** 115451
- [22] Pu Y, Grange R, Hsieh C L, Psaltis D 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 207402
- [23] Lee J, Tymchenko M, Argyropoulos C, Chen P Y, Lu F, Demmerle F, Boehm G, Amann M C, Alu A, Belkin M A 2014 *Nature* **511** 65
- [24] Zhu B H, Wang F F, Zhang K, Ma G H, Guo L J, Qian S X 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 4025 (in Chinese) [朱宝华, 王芳芳, 张琨, 马国宏, 郭立俊, 钱士雄 2007 *物理学报* **56** 4025]
- [25] Albrecht M G, Creighton J A 1977 *J. Am. Chem. Soc.* **99** 5215

- [26] Ding S Y, Yi J, Li J F, Ren B, Wu D Y, Panneerselvam R, Tian Z Q 2016 *Nat. Rev. Mater.* **1** 16021
- [27] Yang H Y, Mo H R, Zhang J Z, Hong L H, Li Z Y 2024 *Photonix* **5** 3
- [28] Juan M L, Righini M, Quidant R 2011 *Nat. Photonics* **5** 349
- [29] Gao D, Ding W, Nieto-Vesperinas M, Ding X, Rahman M, Zhang T, Lim C, Qiu C W 2017 *Light Sci. Appl.* **6** e17039
- [30] Berini P 2013 *Laser Photonics Rev.* **8** 197
- [31] Ma R M, Wang S Y 2021 *Nanophotonics* **10** 3623
- [32] Wang D, Xu J, Chen Y H 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 207301 (in Chinese) [王栋, 许军, 陈溢杭 2018 物理学报 **67** 207301]
- [33] Kuttruff J, Garoli D, Allerbeck J, Krahne R, De Luca A, Brida D, Caligiuri V, Maccaferri N 2020 *Commun. Phys.* **3** 114
- [34] Alam M Z, Schulz S A, Upham J, De Leon I, Boyd R W 2018 *Nat. Photonics* **12** 79
- [35] Guo Q Q, Chen Y H 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 187303 (in Chinese) [郭绮琪, 陈溢杭 2021 物理学报 **70** 187303]
- [36] Xie Z T, Wu J Y, Fu H Y, Li Q 2020 *IEEE Photonics J.* **12** 1
- [37] Huang Y W, Lee H W H, Sokhoyan R, Pala R A, Thyagarajan K, Han S, Tsai D P, Atwater H A 2016 *Nano Lett.* **16** 5319
- [38] Park J, Kang J H, Kim S J, Liu X G, Brongersma M L 2017 *Nano Lett.* **17** 407
- [39] Boyd R W 2020 *Nonlinear Optics* (Amsterdam: Elsevier)
- [40] Dass C K, Kwon H, Vangala S, Smith E M, Cleary J W, Guo J P, Alu A, Hendrickson J R, 2020 *ACS Photonics* **7** 174

- [41] Deng J, Tang Y, Chen S, Li K, Zayats A V, Li G 2020 *Nano Lett.* **20** 5421
- [42] Liu A Y, Tseng C H, Lin K I, Hsiao H H 2025 *Nanophotonics* **13** 3337
- [43] Zeng Y, Hoyer W, Liu J J, Koch S W, Moloney J V 2009 *Phys. Rev. B* **79** 235109
- [44] De Luca F, Ortolani M, Ciraci C 2021 *Phys. Rev. B* **103** 115305
- [45] Liu X Z, Galfsky T, Sun Z, Xia F N, Lin E C, Lee Y H, Kéna-Cohen S, Menon V M 2015 *Nat. Photonics* **9** 30
- [46] Feigenbaum E, Diest K, Atwater H A 2010 *Nano Lett* **10** 2111
- [47] Tavana S, Bahadori-Haghighi S, Sheikhi M H 2022 *Opt. Express* **30** 9269
- [48] Wang Z B, Kan Z, Shen M Y 2023 *AIP Adv.* **13** 125204
- [49] Ashkenasi D, Rosenfeld A 2003 *Appl. Phys. A* **77** 303
- [50] Liang S J, Wang W J, Qin Y H, Huo Y Y, Cai Y J, Ning T Y 2026 *Phys. Rev. B* **113** 205428
- [51] Han Z H, Ding F, Cai Y J, Levy U 2021 *Nanophotonics* **10** 1189
- [52] Rocco D, Gigli C, Carletti L, Marino G, Vincenti M A, Leo G, De Angelis C 2020 *IEEE Photonics J.* **12** 4500507
- [53] Ning T Y, Li X, Zhao Y, Yin L Y, Huo Y Y, Zhao L N, Yue Q Y 2020 *Opt. Express* **28** 34024
- [54] Rocco D, Vincenti M A, De Angelis C 2018 *Appl. Sci.* **8** 2212
- [55] Bykov A Y, Deng J H, Li G X, Zayats A V 2024 *Nano Lett.* **24** 3744
- [56] Wang H, Hu Z X, Deng J H, Zhang X C, Chen J F, Li K F, Li G X 2024 *Sci. Adv.* **10** eadk3882

Active modulation of linear and nonlinear optical responses in metasurfaces of strong coupling between plasmon resonance and epsilon-near-zero modes*

Qin Yuhang¹⁾ Liang Shijie¹⁾ Tan Jiaxing¹⁾ Wang Wenjing¹⁾ Huo Yanyan¹⁾ Zhao

Yuefeng¹⁾ Cai Yangjian¹⁾ Ning Tingyin¹⁾†

1) (Shandong Provincial Key Laboratory of Light Field Manipulation Physics and Applications & School of Physics and Optoelectronics, Shandong Normal University, Jinan 250358, China)

Abstract

Active optical modulation plays a pivotal role in the development of high-performance reconfigurable metasurfaces. The hybrid system of plasmonic nanostructures and epsilon-near-zero (ENZ) materials, which leverages both the near-field localization effect of plasmons and the tunable carrier concentration of ENZ materials, can serve as the key platform for realizing on-chip reconfigurable nanophotonic devices. In this study, we employ the finite element method (COMSOL Multiphysics) to numerically investigate the linear and nonlinear optical responses of a metasurface composed of an ultrathin indium tin oxide (ITO) film and U-shaped gold nanostructures placed atop it. A strong coupling exists between the SPR modes in the gold nanostructures and the ENZ modes in the ITO layer. By tuning the carrier concentration of ITO (N_{ITO}), the ENZ wavelength can be dynamically adjusted, thereby effectively controlling the resonance positions and linear transmission intensity. This enables an optical switching functionality in which the transmission can be modulated from "ON" to "OFF" at specific wavelengths. When the N_{ITO} is modulated from $9.7 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ to $4.9 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$, the extinction ratio (ER) is up to 5.15 dB and -8.63 dB at the wavelength 1084 nm and 1203 nm, respectively. Beyond the modulation of linear optical responses, varying the N_{ITO} also allows control over the generation of second harmonic signals (SHG), achieving tunable nonlinear optical responses. The hydrodynamic model of metal and ITO is employed for the simulation of SHG responses. It is found that the SHG response is dominantly from the

ITO layer and the conversion efficiency strongly depends on the matching between the ENZ modes and the surface plasmon resonances. The maximum SHG response can be obtained by optimizing N_{ITO} . When the N_{ITO} is changed from $1.12 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ to $1.4 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$, the ER of SHG is up to 19.6 dB and -15.1 dB at the SHG wavelength 605 nm and 535 nm, respectively. These results demonstrate that metasurfaces based on plasmon–ENZ strong coupling offer a robust platform for dynamically modulating both linear and nonlinear optical responses in integrated nanophotonic devices.

Keywords: metasurface, epsilon-near-zero material, second harmonic generation

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12174228) .

† Corresponding author. ningtingyin@sdu.edu.cn
The first author. 2024213091@stu.sdu.edu.cn