

国防科技大学建校 70 周年专题

## 集成二维材料非线性光学特性研究进展

刘宁<sup>1)2)3)</sup> 刘肯<sup>1)2)3)†</sup> 朱志宏<sup>1)2)3)‡</sup>

1) (国防科技大学前沿交叉学科学院, 长沙 410073)

2) (国防科技大学, 新型纳米光电信息材料与器件湖南省重点实验室, 长沙 410073)

3) (国防科技大学, 南湖之光实验室, 长沙 410073)

(2023 年 5 月 5 日收到; 2023 年 6 月 11 日收到修改稿)

全光信号处理中具有优异非线性光学特性的光子平台对于提升器件的集成度、调制速度以及工作带宽等性能参数至关重要。成熟的硅、氧化硅以及氮化硅光子平台由于材料本身中心对称, 基于这些平台的集成光子器件可实现的非线性光学功能受限; 二维材料尽管有着优异的非线性光学特性, 但只有原子层厚, 其非线性潜能无法被充分利用。将二维材料与成熟的光子平台集成, 在充分利用光子平台成熟加工工艺的基础上, 可以显著提高光与二维材料的相互作用, 提升光子平台的非线性光学性能。基于以上背景, 本文总结了近年来在基于转移方法和直接生长法制备的多种异质集成二维材料光子器件中进行非线性光学特性研究的最新进展; 阐述了相较于传统转移方法, 基于直接生长方法进行集成二维材料非线性光学研究的优势以及未来需要解决的技术难点; 指明了该领域未来的研究发展趋势; 并指出直接在各种成熟的光子平台上生长二维材料进行集成非线性光学特性的研究会对未来光通信、信号处理、光传感以及量子技术等领域的发展产生深远影响。

**关键词:** 硅/氮化硅光子平台, 二维材料, 光子集成, 非线性增强, 材料生长**PACS:** 42.65.-k, 42.65.Ky, 78.67.-n, 81.07.-b**DOI:** 10.7498/aps.72.20230729

## 1 引言

集成光子学近来发展迅猛<sup>[1,2]</sup>, 是 5G 通信和信号处理等领域的一种关键技术<sup>[3-6]</sup>。集成光子芯片的数据传输容量以及调制速率等参数远优于传统的电子芯片<sup>[7,8]</sup>。借助材料的非线性光学特性可实现频率转换<sup>[9]</sup>、全光调制<sup>[10]</sup>以及光谱展宽<sup>[11]</sup>等多种功能, 因此芯片材料的非线性特性对提升器件集成度、调制速度及工作带宽等性能参数至关重要<sup>[12]</sup>。绝缘体上硅 (silicon-on-insulator, SOI) 制备工艺成熟, 与互补金属氧化物半导体 (complementary metal oxide semiconductor, CMOS) 工艺兼容, 同时具有较大的克尔非线性<sup>[13]</sup>, 在集成非线性领域具有广泛的应用<sup>[14-16]</sup>。虽然基于硅 (Si) 材料可以

制备出超低损耗的集成光学元件<sup>[17]</sup>, 但是在通信波段 Si 材料固有的双光子吸收 (two-photon absorption, TPA) 以及自由载流子吸收 (free-carrier absorption, FCA) 效应限制了 SOI 元件在光通信领域的应用<sup>[18,19]</sup>; 相比之下, 氮化硅 ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ ) 材料在通信波段的 TPA 效应基本可以忽略<sup>[20]</sup>, 加之其较强的克尔非线性、宽透明窗口、高折射率以及成熟的微纳加工工艺等优势<sup>[21-24]</sup>, 是通信波段一种较为理想的集成非线性光学平台。但是由于 Si 和  $\text{Si}_3\text{N}_4$  材料本身的中心对称性, 二者不具有二阶非线性, 集成光子平台的非线性功能受限<sup>[25]</sup>。在充分利用现有较为成熟的集成光子平台的基础上, 可以尝试在单一的光子平台中引入新的具有优异非线性光学特性的材料<sup>[26]</sup>, 在不破坏光学模式分布以及光传输特性的前提下, 提升集成平台的非线性光学表现。

† 通信作者. E-mail: liukener@163.com

‡ 通信作者. E-mail: zzhwcx@163.com

以石墨烯<sup>[27]</sup>为代表的多种二维材料<sup>[28–30]</sup>具有优异的非线性光学特性<sup>[31,32]</sup>,在频率转换、光调制以及光开关等非线性光学领域都有着广泛的应用<sup>[33–42]</sup>.然而,受限于其原子层厚度,光与二维材料之间的相互作用受限,其优异的非线性光学潜能无法被充分利用<sup>[43]</sup>.将二维材料与成熟的光子平台<sup>[44]</sup>集成是充分发挥二维材料优异非线性光学特性的一种理想解决方案<sup>[45]</sup>:首先,二维材料具有原子层厚度,与光子平台集成时不会破坏其中的光场分布以及光的传输特性;其次,二维材料表面自然钝化,没有悬空键,与光子结构集成时不用考虑晶格失配的问题;最后,集成平台中光与二维材料的相互作用增大,突破了二维材料原子层厚度的限制<sup>[46–49]</sup>,从而显著提升集成平台的非线性光学性能.

本综述从非线性光学的基本原理出发(第2节),总结了近年来在基于传统转移方法(第3节)和新兴的直接生长法(第4节)制备的多种集成二维材料-光子平台(谐振腔、超表面、光纤、片上波导等)中进行非线性光学特性研究的最新进展.直接在各种光子结构上生长二维材料克服了传统转移方法存在的各种弊端;但同时如何精确控制二维材料的生长位置,如何实现在纳米结构上均匀连续地生长二维材料等问题也亟待解决.相较于传统转移法,基于直接生长法还有很多领域亟待探索,如图1中红色字体部分所示.未来直接在各种成熟的

光子平台上直接生长二维材料进行集成光学非线性性的研究将是该领域的一个研究热点,持续深入的研究也会对光通信、信号处理、光传感以及量子技术等领域的发展产生深远影响.

## 2 非线性光学基本原理

非线性光学现象发生的一个前提条件是强光与非线性介质的相互作用<sup>[50]</sup>.由于激光的发现,1961年, Franken等<sup>[51]</sup>第一次在石英中发现了二次谐波的产生(second harmonic generation, SHG)现象,开启了非线性光学实验研究的大门.非线性光学过程可以通过材料的极化 $P(r, t)$ 相对于入射光场 $E(r, t)$ 的泰勒级数展开<sup>[52]</sup>来理解,其中 $P(r, t)$ 包括线性极化部分 $P_L(r, t)$ 和非线性极化 $P_{NL}(r, t)$ 部分:

$$P(r, t) = P_L(r, t) + P_{NL}(r, t), \quad (1)$$

$$P_L(r, t) = \chi^{(1)}E(r, t), \quad (2)$$

$$P_{NL}(r, t) = \chi^{(2)}E(r, t)^2 + \chi^{(3)}E(r, t)^3 + \dots + \chi^{(n)}E(r, t)^n, \quad (3)$$

其中,  $\chi^{(n)}$ 为 $n$ 阶电极化率.

当光强较弱时,非线性极化率部分可以忽略不计,只考虑线性光学过程.(2)式中 $\chi^{(1)}$ 决定材料的线性折射率,与材料的折射和吸收特性相关<sup>[53]</sup>.

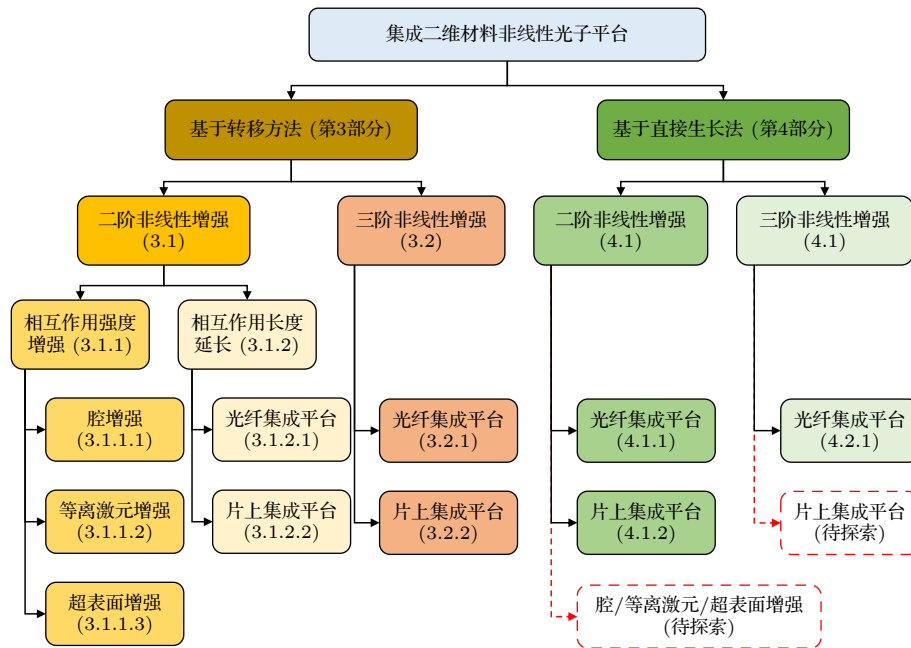


图1 集成二维材料非线性光子平台研究框架

Fig. 1. Research framework of nonlinear photonic platforms integrated with two-dimensional materials.

当光强较强时 ( $E(r, t)$ 一般需要在  $10^5$ — $10^8$  V/m 之间), 会发生非线性光学过程, (3) 式中的  $\chi^{(2)}$  与二阶非线性过程相关, 如 SHG, 和频产生 (sum frequency generation, SFG) 等.  $\chi^{(2)}$  在具有中心对称性的材料中数值为零, 常见的 Si, 氧化硅 ( $\text{SiO}_2$ ),  $\text{Si}_3\text{N}_4$  材料平台都因材料本身的中心对称性而不具有二阶非线性;  $\chi^{(3)}$  与材料的三阶非线性光学过程相关, 如三次谐波产生 (third harmonic generation, THG), 四波混频 (four wave mixing, FWM), 自发相位调制 (self phase modulation, SPM) 等. 所有材料都具有三阶非线性, 与材料是否具有中心对称性无关;  $\chi^{(n)}$  为高阶电极化率, 与高阶非线性过程相关. 以石英为例, 从理论上推算, 石英的  $\chi^{(3)}$  比其  $\chi^{(2)}$  低 11 个数量级 [54], 触发同一种材料平台中的高阶非线性过程所需场强要比触发低阶非线性过程高得多. 因此, 二阶和三阶非线性过程是研究最为广泛的非线性光学过程. 常见非线性过程的能量转变图如图 2 所示.

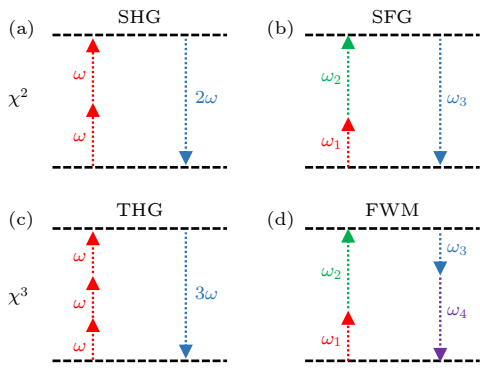


图 2 非线性光学过程中典型的频率转换过程能量示意图, 其中包括二阶非线性过程中的 SHG (a) 和 SFG (b) 以及三阶非线性过程中的 THG (c) 和 FWM (d)

Fig. 2. Typical energy diagrams of frequency conversion process in nonlinear optical processes, including SHG (a) and SFG (b) in second-order nonlinear process and THG (c) and FWM (d) in third-order nonlinear process.

### 3 基于转移方法制备的集成二维材料非线性光子器件

#### 3.1 二阶非线性过程增强的二维材料集成平台

二维材料中的二阶非线性光学过程 (主要包括 SHG 和 SFG 过程) 在许多经典和量子应用中扮演着十分重要的角色 [55]. 二维材料中二阶非线性过程增强的思路可分为两种: 一是使用各种光子

结构 (谐振腔、表面等离子激元、介质超表面等) 增大局域光场的强度, 将二维材料与上述光子结构集成, 提高光与二维材料相互作用的强度 (见 3.1.1 节); 二是将二维材料与微纳光纤 [56,57] 或片上微纳结构集成, 通过倏逝场与二维材料的相互作用增大光与二维材料的相互作用长度 (见 3.1.2 节).

#### 3.1.1 光与二维材料相互作用强度增强的集成平台

##### 3.1.1.1 二维材料中空增强的 SHG 过程

单层过渡金属硫族化合物 (transition metal chalcogenides, TMDCs) 为直接带隙半导体, 带隙覆盖可见光到近红外光谱范围, 具有很高的非线性, 是集成非线性光子器件研究中较为理想的一种二维材料 [58–63]. 将二维材料与各种光学微腔集成, 借助腔内光场的谐振增强效应可实现 SHG 的显著增强. 2016 年, Yi 等 [64] 基于微机电系统设计了一种可调谐的片上法布里-珀罗 (F-P) 谐振腔, 通过改变电压就可以调节 F-P 腔的长度, 进而改变谐振条件. 将单层硫化钼 ( $\text{MoS}_2$ ) 置于其中 (图 3(a)), 实现了 SHG 信号 3300 倍的增强; 2016 年, Day 等 [65] 将单层  $\text{MoS}_2$  转移至由分布式布拉格反射镜 (distributed Bragg reflector, DBR) 构成的 F-P 腔中间 (图 3(b)), 通过增强腔内泵浦光束与二维材料的相互作用强度实现 SHG 的增强.

然而, 上述两个工作中的 F-P 腔都是微米量级, 很难做到片上集成, 且腔的品质因子 (quality factor,  $Q$  值) 不够高, SHG 的触发需要较高的功率条件. 因此, 2017 年, Fryett 等 [66] 将机械剥离的单层硒化钨 ( $\text{WSe}_2$ ) 与 Si 光子晶体谐振腔集成 (图 3(c)), 通过在光子晶体腔模式附近泵浦, 借助泵浦光子与腔模式之间的耦合效应实现了 SHG 约 200 倍的增强; 然而, 上述基于腔增强的 SHG 过程使用的泵浦源都是脉冲激光器, 需要较高的峰值功率. 借助 GaSe 材料超高的二阶非线性 [67] 以及光子晶体腔中的局域模式谐振, 2018 年, Gan 等 [68] 将二维硒化镓 ( $\text{GaSe}$ ) 与 Si 光子晶体集成 (图 3(d)), 实现了在二维 GaSe 中低功率连续波激光器泵浦条件下的高效 SHG 过程.

2020 年, Han 等 [69] 提出了一种纳米颗粒置于镜面上的系统 (图 3(e)), 当此纳米腔的表面等离子激元共振波长与单层硫化钨 ( $\text{WS}_2$ ) 的二次谐波波长发生共振时, 就可以实现 SHG 的显著增强; 2022 年,

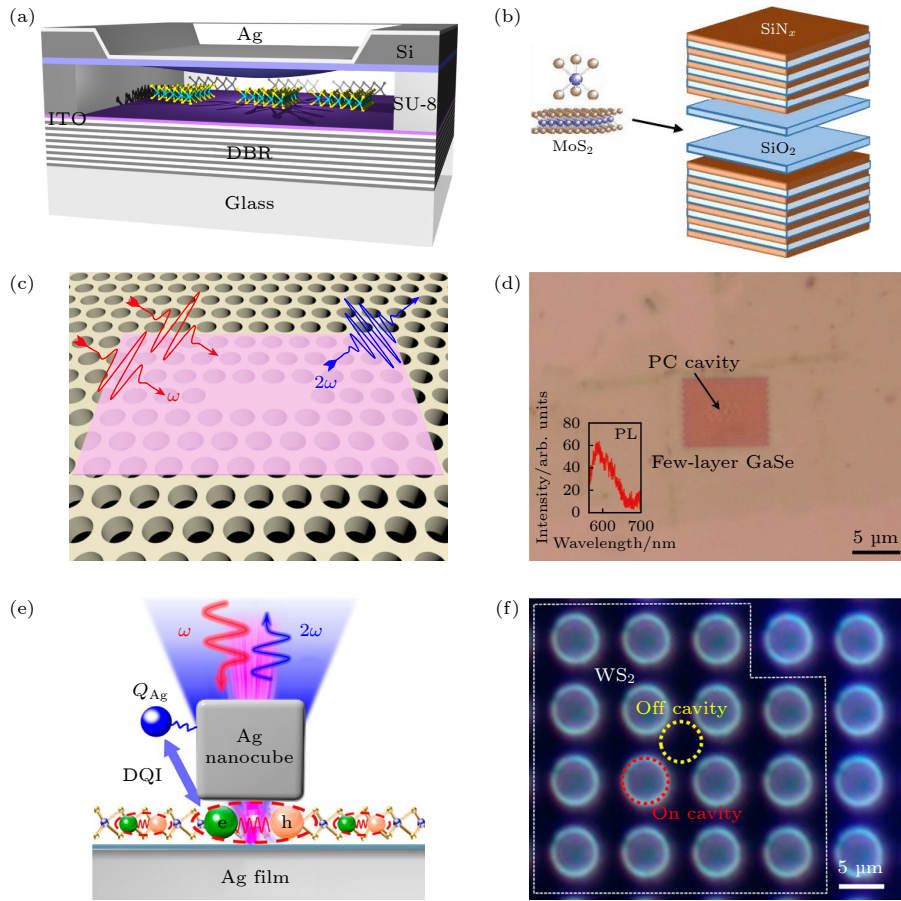


图3 二维材料中空腔增强的SHG过程研究进展 (a) 二维材料中SHG的光机械增强<sup>[64]</sup>; (b) 二维MoS<sub>2</sub>中空腔增强的SHG<sup>[65]</sup>; (c) 单层WSe<sub>2</sub><sup>[66]</sup>以及(d)层状GaSe<sup>[68]</sup>中Si光子晶体腔增强的SHG; (e) 单层WS<sub>2</sub>-Ag纳米腔中谐波谐振增强的SHG<sup>[69]</sup>; (f) 单层WS<sub>2</sub>置于Si基底上实现SHG的增强<sup>[70]</sup>

Fig. 3. Research progress on cavity-enhanced SHG process in 2D materials: (a) Optomechanical enhancement of SHG in 2D material<sup>[64]</sup>; (b) microcavity enhanced SHG in 2D MoS<sub>2</sub><sup>[65]</sup>; silicon photonic crystal cavity enhanced SHG from monolayer WSe<sub>2</sub><sup>[66]</sup> (c) and layered GaSe<sup>[68]</sup> (d); (e) harmonic resonance enhanced SHG in a monolayer WS<sub>2</sub>-Ag nanocavity<sup>[69]</sup>; (f) enhancement of SHG from monolayer WS<sub>2</sub> on Si substrate<sup>[70]</sup>.

Shi 等<sup>[70]</sup>将单层 WS<sub>2</sub> 置于 Si 的孔洞阵列上方, 借助 F-P 腔内电场的增强以及悬空二维材料中激子震荡强度的增强, 实现了 SHG 约 600 倍的增强; 该课题组还设计了一种简易的二次谐波信号放大器, 将 MoS<sub>2</sub>/WS<sub>2</sub> 异质结构悬空置于具有孔洞结构的 SiO<sub>2</sub>/Si 衬底上, 在 355—470 nm 波长范围内实现了高效的 SHG 过程<sup>[71]</sup>.

### 3.1.1.2 二维材料中等离激元增强的 SHG 过程

除了利用各种光学腔增强光与二维材料的相互作用强度外, 也可以利用表面等离子激元或介质超表面实现对泵浦光场的局域及增强, 从而实现 SHG 的增强.

图 4 所示为二维材料-金属表面等离子激元集成结构中 SHG 增强的研究进展. 2018 年, Wang 等<sup>[72]</sup>将单层 WSe<sub>2</sub> 转移到带有纳米沟槽的金 (Au) 薄膜上 (图 4(a)), 借助沟槽对外部激励场的局域增强作

用, 实现了可见光波段 SHG 信号约 7000 倍的增强; 类似地, 2018 年, Shi 等<sup>[73]</sup>将单层 WS<sub>2</sub> 与亚波长银 (Ag) 纳米槽光栅集成, 通过调谐表面等离激元模式与 WS<sub>2</sub> 的二次谐波频率共振, 实现了单层 WS<sub>2</sub> 中 SHG 约 400 倍的增强; 2018 年, Chen 等<sup>[74]</sup>将生长在蓝宝石衬底上单层 WS<sub>2</sub> 转移至预先制备的 Au 超表面上 (图 4(c)), 实现了可见光波段的有效非线性频率转换; 不同于以前报道的金属光栅结构, 2021 年 Leng 等<sup>[75]</sup>提出了一种单层 MoS<sub>2</sub> 置于悬空的穿孔 Ag 薄膜上的集成结构. 为了避免二维材料转移到金属薄膜上后材料损坏或者污染, 他们还在穿孔的 Ag 薄膜和二维材料界面处设计了 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 的薄膜结构 (图 4(d)). 当泵浦激光的中心波长与集成体系的表面等离激元模式共振时, 室温条件下该混合结构的 SHG 强度有超过 3 个数量级的增大.

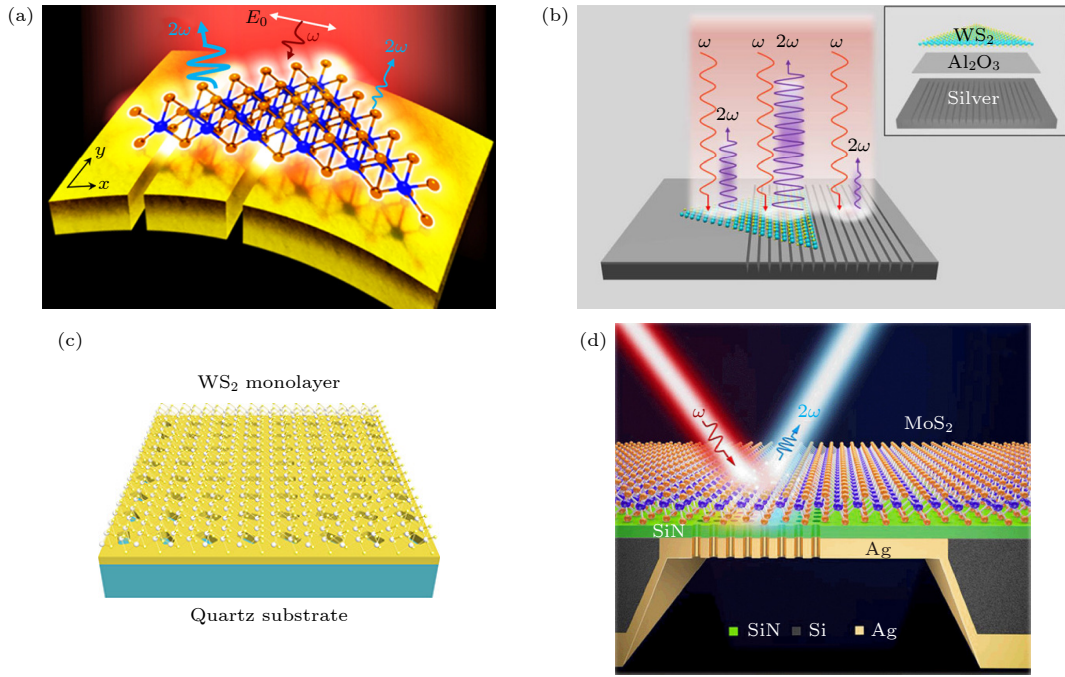


图 4 二维材料中等离激元增强的 SHG 过程研究进展 (a) 柔性衬底上单层 WS<sub>2</sub> 中等离激元增强的 SHG<sup>[72]</sup>; (b) 单层 WS<sub>2</sub> 中等离激元增强的光学非线性<sup>[73]</sup>; (c) WS<sub>2</sub>-Au 纳米孔洞集成超表面在可见光波段实现非线性超透镜<sup>[74]</sup>; (d) 单层 MoS<sub>2</sub> 置于悬空的金属纳米结构上通过等离子激元谐振效应实现 SHG 的增强<sup>[75]</sup>

Fig. 4. Research progress on plasmonic-enhanced SHG process in 2D materials: (a) Plasmon-enhanced SHG from monolayer WS<sub>2</sub> on flexible substrates<sup>[72]</sup>; (b) plasmonic enhancement of optical nonlinearity in monolayer WS<sub>2</sub><sup>[73]</sup>; (c) WS<sub>2</sub>-Au nanohole hybrid metasurface for nonlinear metalenses in the visible region<sup>[74]</sup>; (d) enhanced SHG in monolayer MoS<sub>2</sub> on suspended metallic nanostructures by plasmonic resonances<sup>[75]</sup>.

### 3.1.1.3 二维材料中介质超表面增强的 SHG 过程

除了金属表面等离子激元结构, 使用介质超表面结构增强二维材料中的 SHG 过程也有着广泛的研究. 与金属表面等离子激元相比, 介质超表面结构没有欧姆损耗, 有更高的激光损伤阈值, 预期可以实现高转换效率的 SHG 过程以及对非线性过程的灵活控制<sup>[76]</sup>. 2018 年, Gan 等<sup>[68]</sup>就在二维的 GaSe-Si 光子晶体腔集成系统中实现了低功率连续波激光器泵浦条件下的高效 SHG 过程. 2019 年, 该课题组将二维的 GaSe 纳米片与 Si 超表面集成 (图 5(a)), 实现了高效的频率上转换过程 (SHG 和 SFG)<sup>[77]</sup>; 2020 年, Bernhardt 等<sup>[78]</sup>设计了一种谐振的面内不对称介电超表面, 该超表面支持一种高 Q 值的光学谐振, 即连续束缚态 (bound states in the continuum, BIC). 将单层 WS<sub>2</sub> 与此超表面集成 (图 5(b)), 研究人员实现了单层 WS<sub>2</sub> 中 SHG 超 3 个数量级的增强; 2020 年, Zhang 等<sup>[79]</sup>设计了一种基于 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 结构的亚波长光栅结构, 将单层 MoS<sub>2</sub> 与该亚波长光栅结构集成 (图 5(c)), 通过调谐激光器的泵浦波长与该集成结构谐振, 实现了单层 MoS<sub>2</sub>

中 SHG 约 170 倍的增强; 为了推进二维材料-介电超表面的规模化制备, 2021 年, Löchner 等<sup>[80]</sup>将通过化学气相沉积 (chemical vapor deposition, CVD) 生长的单层 MoS<sub>2</sub> 与经过谐振设计优化的 Si 超表面集成 (图 5(d)), 在实验中实现了 SHG 近 40 倍的增强.

### 3.1.2 光与二维材料相互作用长度增加的集成平台

3.1.1 节中梳理的相关研究是利用谐振结构实现对泵浦光场的局域增强, 进而增强光与二维材料相互作用的强度实现集成平台中二阶非线性过程的增强. 此外, 将二维材料与光纤或片上微纳结构集成, 借助倏逝场与二维材料的相互作用, 可以延长光与二维材料的相互作用长度, 实现二阶非线性过程的增强.

#### 3.1.2.1 二维材料-光纤集成平台中的 SHG 增强

2019 年, Chen 等<sup>[81]</sup>利用转移的方法将单层 WS<sub>2</sub> 与微光纤 (microfiber) 集成 (图 6(a)), 借助微光纤中倏逝场与二维 WS<sub>2</sub> 的相互作用, 实现了 WS<sub>2</sub>-微光纤集成结构中 SHG 20 倍的增强.

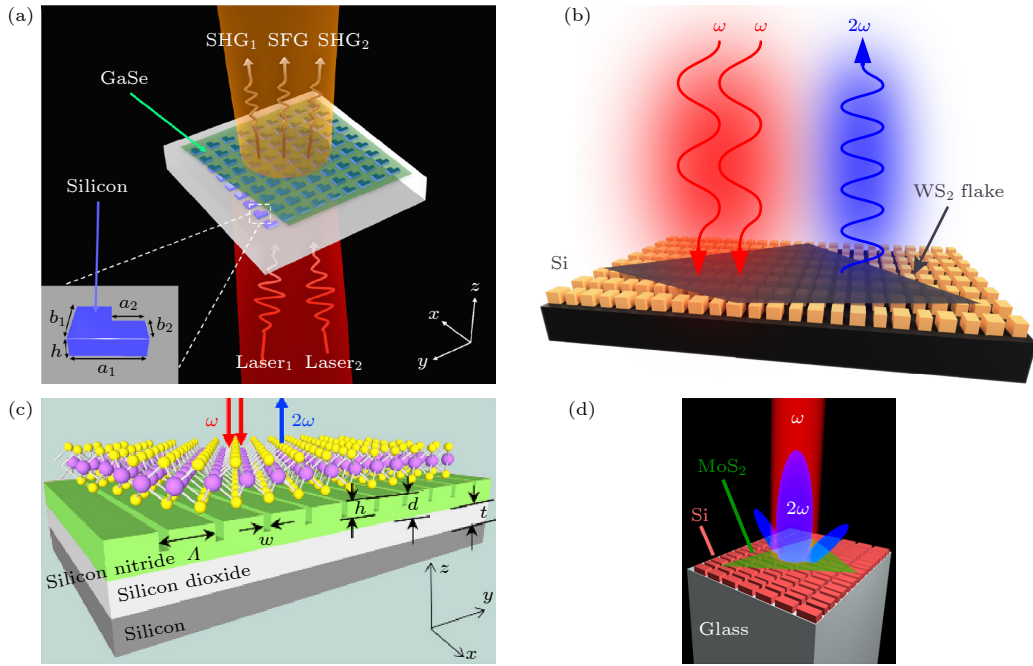


图 5 二维材料中介质超表面增强的 SHG 过程研究进展 (a) Si 超表面与二维 GaSe 集成实现 SHG 和 SFG<sup>[77]</sup>; (b) WS<sub>2</sub> 单层中准 BIC 谐振增强的 SHG<sup>[78]</sup>; (c) 借助 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 亚波长光栅结构实现单层 MoS<sub>2</sub> 中 SHG 的增强<sup>[79]</sup>; (d) 混合介电超表面上 MoS<sub>2</sub> 单层中 SHG 的增强<sup>[80]</sup>

Fig. 5. Research progress on SHG process enhanced by dielectric metasurface in 2D materials: (a) SHG and SFG from a Si metasurface integrated with 2D GaSe<sup>[77]</sup>; (b) quasi-BIC resonant enhancement of SHG in WS<sub>2</sub> Monolayers<sup>[78]</sup>; (c) enhancement of SHG in monolayer MoS<sub>2</sub> by a Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> subwavelength grating<sup>[79]</sup>; (d) hybrid dielectric metasurfaces for enhancing SHG in MoS<sub>2</sub> monolayers<sup>[80]</sup>.

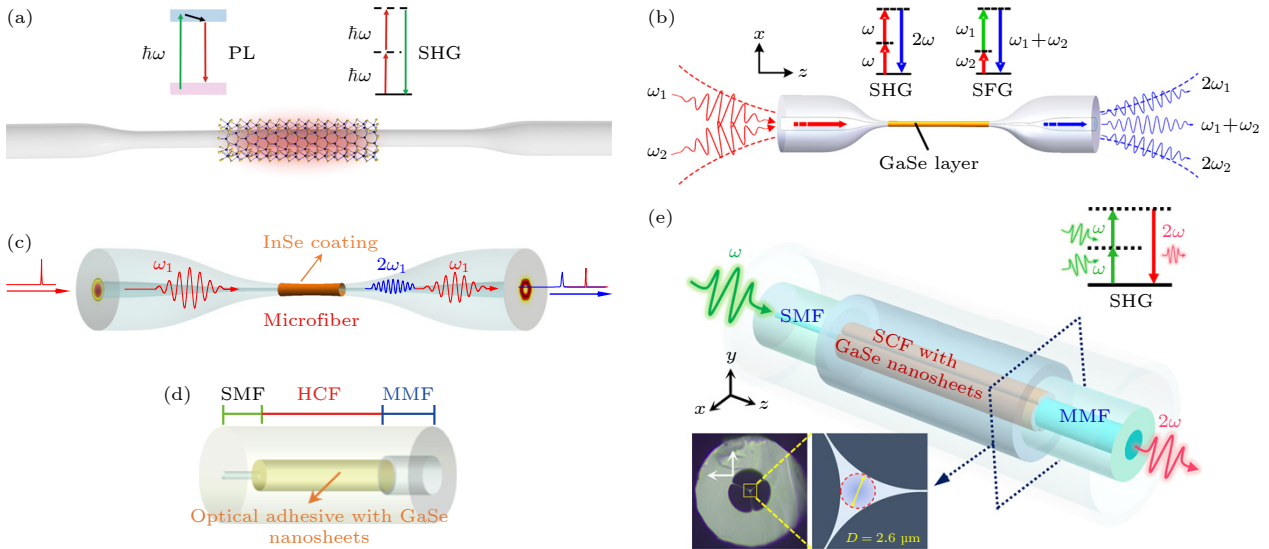


图 6 (a) 基于转移方法制备的单层 WS<sub>2</sub>-光纤纳米线混合结构实现 SHG 的增强<sup>[81]</sup>. (b)–(e) 基于溶液法制备的二维材料-光纤集成结构实现二阶非线性过程增强的研究进展 (b) 少层 GaSe 辅助光学微光纤实现高效的二阶非线性过程<sup>[82]</sup>; (c) 连续波泵浦的 InSe 集成的微光纤中频率上转换<sup>[84]</sup>; (d) 填充有 GaSe 纳米片的 HCF 结构示意图<sup>[85]</sup>; (e) GaSe 纳米片集成的 SCF 实现 SHG 过程<sup>[86]</sup>

Fig. 6. (a) Enhanced SHG in hybrid WS<sub>2</sub>-optical-fiber-nanowire structure prepared by transfer method<sup>[81]</sup>. (b)–(e) Research progress on enhancement of second-order nonlinear process of 2D material-optical fiber integrated structures prepared by solution methods: (b) High-efficiency second-order nonlinear processes in an optical microfiber assisted by few-layer GaSe<sup>[82]</sup>; (c) continuous-wave pumped frequency upconversions in an InSe-integrated microfiber<sup>[84]</sup>; (d) schematic of a HCF filled with GaSe nanosheets<sup>[85]</sup>; (e) SCF with embedded GaSe nanosheets for SHG<sup>[86]</sup>.

除了单层 TMDCs 具有优异的二阶非线性光学特性外, 层状的 GaSe 材料在二阶非线性领域也有着广泛的应用. 2020 年, Jiang 等<sup>[82]</sup> 利用滴覆技术将少层 GaSe 纳米片与微光纤集成 (图 6(b)), 借助 GaSe 材料超高的二阶非线性实现了集成结构中 SHG 的显著增强; 类似地, 2021 年该课题组利用热光沉积<sup>[83]</sup> 的方法将具有高二阶非线性系数的硒化铟 (InSe) 与微光纤集成 (图 6(c)), 在连续波激光器泵浦条件下实现了全光纤结构中的高效二阶非线性过程<sup>[84]</sup>.

上述 3 个工作中利用的都是微光纤, 但是由于微光纤的结构特性, 集成后二维材料都是直接暴露在空气中, 很容易受到周围环境因素如振动、灰尘以及氧气等影响. 因此需要寻找更加稳定的集成光纤平台. 2022 年该课题组将少层 GaSe 与空芯光纤 (hollow-core fiber, HCF)(图 6(d))<sup>[85]</sup> 以及悬芯光纤 (suspended core fiber, SCF)(图 6(e))<sup>[86]</sup> 集成, 同样实现了二维材料-光纤集成结构中高效的二阶非线性过程.

### 3.1.2.2 二维材料-光纤集成平台中的 SHG 增强

将二维材料与片上波导或微环谐振腔集成, 同样

可以增大光与二维材料的相互作用长度, 实现二阶非线性过程的增强. 2017 年, Chen 等<sup>[87]</sup> 将单层硒化钼 (MoSe<sub>2</sub>) 与 Si 波导集成 (图 7(a)), 借助 Si 平板波导中的倏逝场与二维材料的相互作用, 实现了单层 MoSe<sub>2</sub> 中 SHG 的 5 倍增强; 介电氧化钛 (TiO<sub>2</sub>) 纳米线在可见光波段有较高的折射率和较低的损耗, 是片上集成平台中一种较为理想的研究平台. 2019 年, Li 等<sup>[88]</sup> 将单层 MoS<sub>2</sub> 与单根 TiO<sub>2</sub> 纳米线集成 (图 7(b)), 实现了 MoS<sub>2</sub>/纳米线集成结构中 SHG 强度 2 个数量级的增强; 2022 年, Wang 等<sup>[89]</sup> 将少层 GaSe 纳米片与 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 微环谐振腔集成 (图 7(c)), 借助 GaSe 材料的超高二阶非线性特性以及微环腔中的谐振增强效应, 在连续波激光器泵浦的条件下实现了高效的倍频及和频转换过程; 2023 年哈尔滨工业大学 (深圳) 与香港理工大学合作, 将具有优异二阶非线性特性的层状 SnP<sub>2</sub>Se<sub>6</sub> 与 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 微环谐振腔集成 (图 7(d)), 实现了 SHG 的增强以及 SHG 辅助的通信波段高性能光电探测器<sup>[90]</sup>.

### 3.2 三阶非线性过程增强的二维材料集成平台

材料非线性折射率  $n_2$  是反映材料三阶非线性

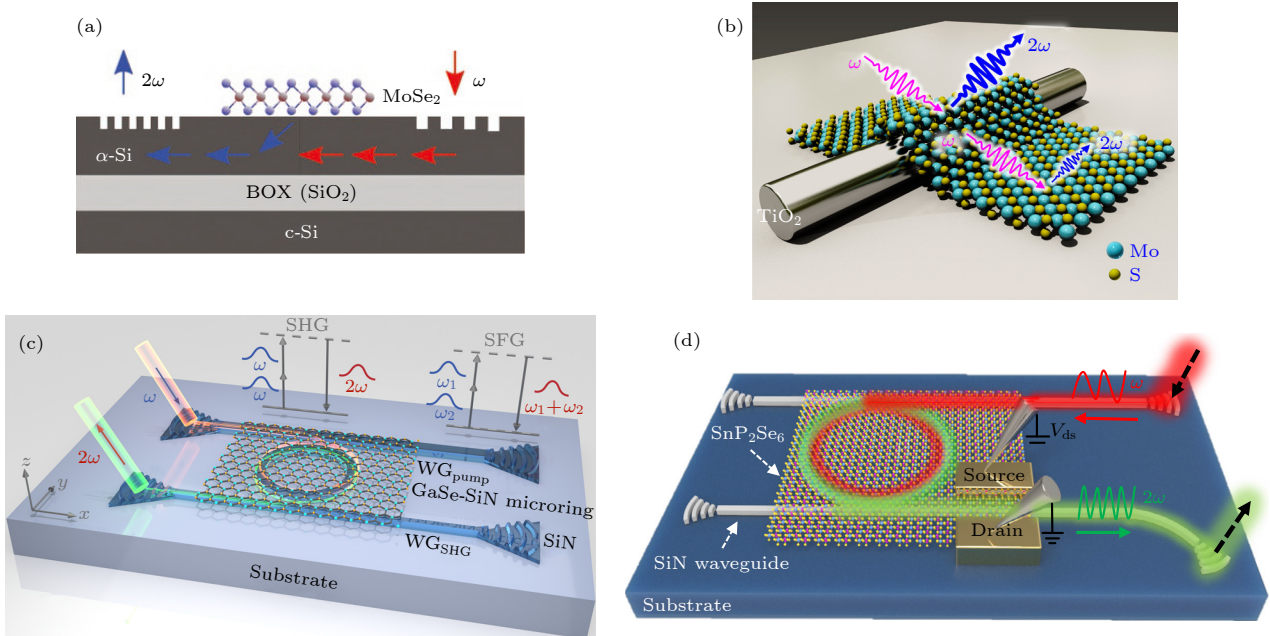


图 7 基于转移方法制备的二维材料-片上集成平台中二阶非线性增强的研究进展 (a) Si 波导上二维 MoSe<sub>2</sub> 中 SHG 的增强<sup>[87]</sup>; (b) 单层 MoS<sub>2</sub> 与 TiO<sub>2</sub> 纳米线集成实现 SHG 的增强<sup>[88]</sup>; (c) 少层 GaSe 与 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 微环集成实现高效的 SHG 和 SFG 过程<sup>[89]</sup>; (d) SHG 辅助的 SnP<sub>2</sub>Se<sub>6</sub> 光电探测器<sup>[90]</sup>

Fig. 7. Research progress on enhanced second-order nonlinear process enabled by integrated 2D material - on-chip integrated platforms prepared by transfer methods: (a) Enhanced SHG from two-dimensional MoSe<sub>2</sub> on a Si waveguide<sup>[87]</sup>; (b) enhancement of SHG in a TiO<sub>2</sub> nanowire integrated with monolayer MoS<sub>2</sub><sup>[88]</sup>; (c) high-efficiency SHG and SFG in a Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> microring integrated with few-layer GaSe<sup>[89]</sup>; (d) a schematic of the SHG-assisted SnP<sub>2</sub>Se<sub>6</sub> photodetector<sup>[90]</sup>.

的关键参数之一,即在强光条件下,反映光强导致的折射率的改变,也称为光学克尔效应. 非线性折射率  $n_2$  与三阶电极化率  $\chi^{(3)}$  直接相关:

$$n_2 = 3\text{Re} \left[ \frac{\chi^{(3)}}{4cn_0^2\varepsilon_0} \right], \quad (4)$$

其中,  $c$  为光速,  $n_0$  为线性折射率,  $\varepsilon_0$  为真空介电常数.

闭孔 (closed-aperture, CA) Z 扫描 (Z-scan) 是一种用来测量二维材料非线性折射率的典型方法<sup>[9]</sup>: 将二维材料置于泵浦脉冲激光器以及光阑-光功率计中间, 移动二维材料的位置 (沿  $Z$  轴) 得到透射光功率与二维材料所处  $z$  位置的关系. 然后对得到的曲线进行拟合就可以得到相应二维材料的非线性折射率. 表 1 为近年来基于 Z 扫描方法得到的常见二维材料 (石墨烯、氧化石墨烯、TMDCs、黑磷等) 的非线性折射率. 可以看出即使是同一种二维材料, 在不同的厚度及不同的泵浦波长条件下根据实验结果拟合出的非线性折射率都有一定的不

同. Si, SiO<sub>2</sub> 以及 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 材料在通信波段的非线性折射率在 10<sup>-18</sup>—10<sup>-19</sup> 量级, 表 1 中列出的不同二维材料的非线性折射率要比上述三种平台高出 2—8 个数量级. 因此, 将层状的二维材料与成熟的光子平台集成, 在不破坏集成平台光学模式分布以及光学传输特性的基础上, 还可以赋予平台更优异的三阶非线性光学特性.

### 3.2.1 二维材料-光纤集成平台中的三阶非线性增强

借助石墨烯在宽光谱范围内的超高三阶非线性, 2015 年 Wu 等<sup>[100]</sup> 在石墨烯包覆的微光纤 (graphene-coated microfiber, GCM) 结构中实现了级联的 FWM 过程. 图 8(a) 为 GCM 的结构示意图, 其中微光纤的制备是将标准单模光纤 (single-mode fiber, SMF) 浸泡在氢氟酸中经过化学刻蚀制成; 然后通过湿法转移的手段实现 CVD 生长的石墨烯对微光纤的包覆作用. 当微光纤上没有石墨烯材料时, 在较高的泵浦功率条件下

表 1 基于 Z 扫描法测量出的不同二维材料的非线性折射率  $n_2$   
Table 1. Nonlinear refractive index  $n_2$  of different 2D materials measured by Z-scan method.

二维材料	厚度	泵浦波长/nm	$n_2 / (\text{m}^2 \cdot \text{W}^{-1})$	参考文献	发表年度
气相生长的石墨烯	单层	1550	$-10^{-11}$	[92]	2012
	5—7层	1150—2400	$-(0.55-2.5) \times 10^{-13}$	[93]	2016
化学合成的氧化石墨烯	2 $\mu\text{m}$	800	$7.5 \times 10^{-13}$	[94]	2014
	1 $\mu\text{m}$	1550	$4.5 \times 10^{-14}$	[95]	2017
气相生长的硫化钼	25 $\mu\text{m}$	1064	$(1.88 \pm 0.48) \times 10^{-16}$	[96]	2016
气相生长的硫化钨	0.75 nm	1040	$(1.28 \pm 0.03) \times 10^{-14}$	[97]	2016
气相生长的硒化钨	11.4 nm	1040	$(-1.87 \pm 0.47) \times 10^{-15}$	[97]	2016
机械剥离的黑磷	15 nm	1030	$-1.64 \times 10^{-12}$	[98]	2018
气相生长的硒化钼	20 层	800	$-1.33 \times 10^{-15}$	[99]	2020

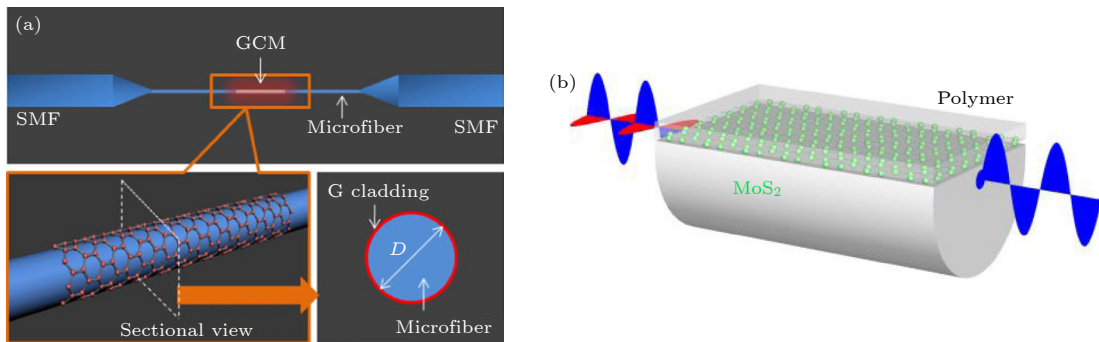


图 8 基于转移方法制备的三阶非线性增强的二维材料-光纤集成平台 (a) GCM 中实现级联四波混频过程<sup>[100]</sup>; (b) MoS<sub>2</sub> 覆盖的单模光纤示意图<sup>[101]</sup>

Fig. 8. 2D material-optical fiber integrated platforms with enhanced third-order nonlinear process based on transfer methods: (a) Generation of cascaded FWM with GCM<sup>[100]</sup>; (b) schematic of a MoS<sub>2</sub>-coated SMF<sup>[101]</sup>.

并未在微光纤中观察到四波混频现象. 但是在相同的泵浦功率条件下, GCM 中就可以在 1546—1558 nm 波段内观察到的级联四波混频现象.

2018 年, Zhang 等<sup>[101]</sup>提出了图 8(b) 所示的一种基于少层 MoS<sub>2</sub> 覆盖边侧抛光光纤的三阶非线性增强的集成平台, 其中使用了高折射率的聚合物 (polymer) 用于覆盖二维材料. 聚合物除了能起到提高器件稳定性和耐用性的作用外, 还可以提高二维材料的光学限制因子. 最终借助集成器件中三阶非线性的增强实现了对入射光谱的展宽.

### 3.2.2 二维材料-片上集成平台中的三阶非线性增强

由于 Si 材料具有较大的克尔非线性系数<sup>[102]</sup>, 所以在 Si 基集成平台中不引入新的高三阶非线性材料在一定入射光强条件下也可以观察到 THG 等三阶非线性光学效应<sup>[103]</sup>. 此外, 通过制备特殊的硅基光子结构, 如光子晶体波导<sup>[104,105]</sup>, 悬空薄膜波导<sup>[25]</sup>, 悬空的 Si 微环谐振腔<sup>[106]</sup>等, 也可以实现三阶非线性的增强.

石墨烯的克尔系数要比 Si 大 5—6 个数量级<sup>[107]</sup>, 将单层石墨烯与 Si 波导<sup>[108–110]</sup>或微环谐振腔<sup>[111]</sup>集成, 可以实现 SPM 或者 FWM 等三阶非线性效应的增强. 早在 2015 年, 笔者所在团队就

基于转移方法实现了石墨烯/Si 波导集成结构中三阶非线性过程的增强<sup>[108]</sup>. 图 9(a) 为飞秒激光脉冲在石墨烯/Si 集成波导中传播的示意图. 当 Si 脊形波导上无石墨烯覆盖时 (图 9(b-i)), 尽管 Si 具有较高的克尔非线性, 但在较高泵浦功率条件下并未观察到明显的光谱展宽效果 (图 9(b-ii)); 将单层石墨烯转移到 Si 波导上之后 (图 9(c-i)), 可以从图 9(c-ii) 看出, 在相同泵浦条件下, 由于集成波导三阶非线性的增强, 泵浦脉冲出现明显展宽; 但是由于单层石墨烯的厚度只有 0.34 nm, 将石墨烯转移到 Si 波导的上表面后, 光与二维材料只能通过较弱的倏逝场耦合, 相互作用受限<sup>[112]</sup>, 石墨烯超高的克尔非线性未得到充分利用; 因此笔者团队提出将石墨烯转移到 Si 波导上后, 再沉积 SiO<sub>2</sub> 和 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 来提高石墨烯层中的电场强度. 从图 9(d-ii) 中可以看出对于相同功率的类 TM 模, 沉积有 SiO<sub>2</sub> 和 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 的石墨烯/Si 混合波导中光谱展宽效果进一步提升.

此外, Ji 等<sup>[111]</sup>在 2015 年将单层石墨烯与半径为 10 μm 的 Si 微环谐振腔集成 (图 10(a)), 实现了 FWM 转换效率最大 6.8 dB 的增强; 2019 年 Feng 等<sup>[110]</sup>将单层石墨烯与 Si 波导集成 (图 10(b)), 实现了石墨烯/Si 集成波导中 SPM 效应的增强.

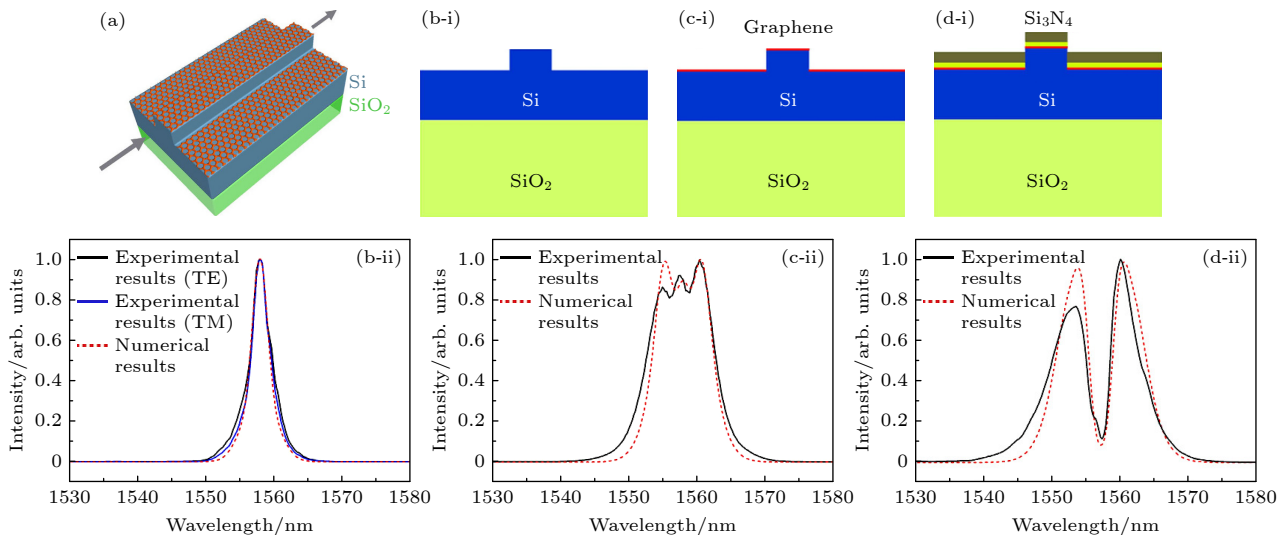


图 9 石墨烯/Si 非线性脊形波导中的超快脉冲传播<sup>[108]</sup> (a) 超快脉冲在石墨烯/Si 混合脊形波导中传播的示意图; Si 脊形波导 (b-i), 石墨烯/Si 脊形波导 (c-i) 以及石墨烯/Si 类狭缝波导 (d-i) 的示意图; 飞秒脉冲沿着 Si 脊形波导 (b-ii), 石墨烯/Si 脊形波导 (c-ii) 以及石墨烯/Si 类狭缝波导 (d-ii) 传播后的实验测得的以及数值计算的输出光谱

Fig. 9. Ultra-fast pulse propagation in nonlinear graphene/Si ridge waveguide<sup>[108]</sup>: (a) Schematic of ultra-fast pulse propagation along the hybrid graphene/silicon ridge waveguide; schematic of a Si ridge waveguide (b-i), a graphene/Si ridge waveguide (c-i) and a graphene/Si slot-like ridge waveguide (d-i); experimentally measured and numerically calculated output spectra of the femto-second pulses propagating along the Si ridge waveguide (b-ii), the graphene/Si ridge waveguide (c-ii) and the graphene/Si slot-like ridge waveguide (d-ii).

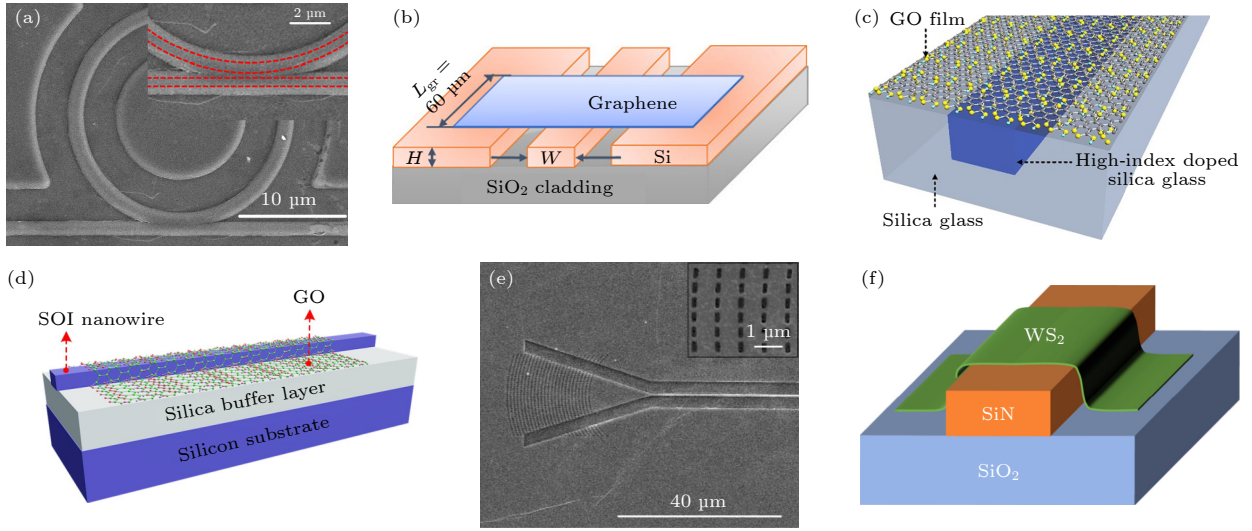


图 10 基于转移方法实现片上集成二维材料三阶非线性增强的研究进展 (a) Si-石墨烯微环谐振腔集成实现 FWM 的增强<sup>[111]</sup>; (b) Si/石墨烯混合波导实现 SPM 的增强<sup>[110]</sup>; (c) GO/Hydex 混合波导实现 FWM 的增强<sup>[122]</sup>; (d) 二维 GO 薄膜与 Si 纳米线集成实现 SPM 的增强<sup>[124]</sup>; (e) MoS<sub>2</sub> 置于 Si 上波导实现光学克尔非线性的增强<sup>[130]</sup>; (f) 少层 WS<sub>2</sub> 与 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 波导异质集成实现非线性的增强<sup>[132]</sup>

Fig. 10. Research progress on third-order nonlinear enhancement of on-chip integrated 2D materials based on transfer methods: (a) Enhanced FWM in a Si-graphene microring resonator<sup>[111]</sup>; (b) enhanced SPM of graphene/Si hybrid waveguide<sup>[110]</sup>; (c) enhanced FWM in GO/hydex hybrid waveguide<sup>[122]</sup>; (d) enhanced SPM in Si nanowires integrated with 2D GO Films<sup>[124]</sup>; (e) enhanced optical Kerr nonlinearity of MoS<sub>2</sub> on Si waveguides<sup>[130]</sup>; (f) enhancing Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> waveguide nonlinearity with heterogeneous integration of few-layer WS<sub>2</sub><sup>[132]</sup>.

与石墨烯相比,氧化石墨烯 (graphene oxide, GO)<sup>[113–115]</sup> 具有良好的线性和非线性光学特性,且兼具低的吸收损耗、大的可调带隙<sup>[116]</sup>、可大规模片上集成<sup>[117]</sup>等优势,在集成非线性光子学领域有着广泛的应用<sup>[118–121]</sup>.近年来, Moss 等<sup>[122–129]</sup>研发了一种在集成光子芯片上不需要转移的 GO 薄膜逐层覆盖技术,将 GO 薄膜与高折射率掺杂氧化硅 (hydex)<sup>[122,123]</sup> (图 10(c))、Si<sup>[124,125]</sup> (图 10(d)) 以及 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub><sup>[126–129]</sup> 微纳结构集成,显著提高了集成光子芯片的三阶非线性光学特性.

此外,借助 TMDCs<sup>[130–133]</sup> (图 10(e), (f))、硫化镓 (GaS)<sup>[134]</sup>、有机物<sup>[135]</sup>等材料与片上微纳结构的集成,也可以显著提高集成光子芯片的三阶非线性特性.

## 4 基于直接生长方法制备的集成二维材料非线性光子器件

### 4.1 二阶非线性过程增强的二维材料集成平台

#### 4.1.1 二维材料-光纤集成平台中的二阶非线性增强

图 6 和图 8 所示为在基于转移方法制备的二维

维材料-光纤集成平台中实现非线性增强的研究进展.但是,在将二维材料转移至光纤的过程中,无法规避二维材料受损、器件制备的可重复性以及可控性差等问题;基于溶液法实现的二维材料与光纤集成过程中也会不可避免地引入杂质,增加光传输过程中的散射和吸收损耗;此外,这种转移的方法无法实现二维材料对光纤内/外壁连续均匀包覆;且转移的方法只适用于实验室的研究,无法实现大规模制备.

针对传统基于转移方法将二维材料与光纤集成存在的上述弊端,研究人员开始提出使用直接生长的方法实现二维材料与光纤的集成. Chen 等<sup>[136]</sup>在 2019 年提出在光子晶体光纤 (photonic crystal fibre, PCF) 中直接生长石墨烯.在约 1100 °C 的生长条件下,该课题组实现了在 PCF 内/外壁中约 50 cm 长单层石墨烯的连续均匀生长,实现了光与物质相互作用的显著增强;对于 TMDCs, 2020 年该课题组提出了一种如图 11(a) 所示的两步化学气相沉积法<sup>[137]</sup>: 首先借助 HCF 毛细吸附作用在光纤内壁充满含有过渡金属元素的盐溶液作为后续生长的先驱物;然后在高温条件下在光纤内壁生长 TMDCs. 基于上述方法,研究人员在 HCF 中生长了长度约为 25 cm 的均匀连续单层 MoS<sub>2</sub>, MoS<sub>2</sub>/HCF 集成光纤也表现出二阶非线性的显著增强.

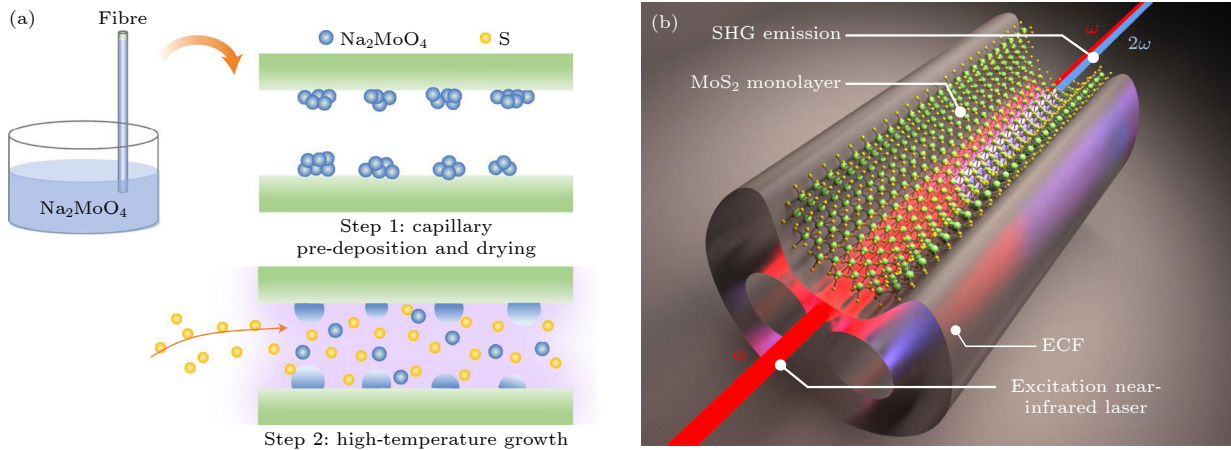


图 11 基于直接生长法制备的二阶非线性增强的二维材料-光纤集成平台 (a) 两步生长方法示意图<sup>[137]</sup>; (b) 光纤中嵌入二维材料实现 SHG<sup>[138]</sup>

Fig. 11. 2D material-optical fiber integrated platforms with enhanced second-order nonlinear process based on direct growth methods: (a) Schematic of the two-step growth method<sup>[137]</sup>; (b) in-fiber SHG with embedded 2D materials<sup>[138]</sup>.

然而,上述工作中使用的 HCF 光模场面积较大,泵浦光场与二维材料之间的模式重叠受限. 2022 年, Ngo 等<sup>[138]</sup> 提出使用如图 11(b) 所示的裸芯光纤 (exposed-core fibre, ECF) 作为集成平台, 利用一种修正的化学气相沉积法<sup>[139]</sup> (将硫源置于分区管式炉的低温区 (200 °C), 将金属氧化物 (氧化钼, MoO<sub>3</sub>) 置于分区管式炉的高温区 (770 °C), 在氩气环境内实现在裸露的光纤纤芯上直接生长单层 MoS<sub>2</sub>), 实现了二维材料-光纤集成结构中的高效 SHG 过程.

#### 4.1.2 二维材料-片上集成平台中的二阶非线性增强

图 7、图 9 和图 10 总结了在基于转移方法制备的二维材料-片上集成平台中实现非线性增强的研究进展. 基于转移方法实现二维材料与片上微纳结构的集成, 主要存在以下问题: a) 转移过程中会不可避免地造成二维材料的损伤, 如引入皱褶、应力、掺杂或造成二维材料断裂, 导致集成器件的性能下降, 工作寿命缩短<sup>[140,141]</sup>; b) 转移过程中需要借助一定的介质, 如干法转移通常需要借助 PDMS 等热释放材料, 湿法需要借助溶剂, 转移完成后通常会在二维材料与纳米结构的交界面处引入杂质, 光传播过程中的吸收损耗、散射损耗迅速增大<sup>[142]</sup>; c) 转移的二维材料一般只能在贴在纳米结构上表面, 无法在侧壁等位置紧密接触, 集成器件中光与二维材料的相互作用受限<sup>[143]</sup>; d) 转移过程中, 通常需要在显微镜下寻找二维材料与纳米结构的精确集成位置; 器件制备过程中一般也需要进行多次

光刻, 器件制备的简易度、可重复性及可控性较差<sup>[144]</sup>; e) 转移过程通常使用的是二维材料的碎片<sup>[145]</sup>, 很难实现大面积二维材料的一次性转移<sup>[146]</sup>, 这就将转移的方法局限在了实验室的研究层面, 限制了集成二维材料光子器件的规模化制备.

基于以上思考, 2021 年笔者所在团队<sup>[147]</sup> 提出在 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 波导上直接生长单层 WS<sub>2</sub>. 利用物理气相沉积 (physical vapor deposition, PVD) 的方法实现了在 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 波导上长度约为 400 μm 单层 WS<sub>2</sub> 的连续生长 (图 12(a)), 实现了 WS<sub>2</sub>/Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 混合波导中 SHG 的显著增强. 2022 年, Kuppadakkath 等<sup>[148]</sup> 提出在 Si 波导上直接生长单层 MoS<sub>2</sub> (图 12(b)), 并在 MoS<sub>2</sub>/Si 混合波导中探测到了二次谐波信号. 尽管该工作克服了传统基于转移方法制备二维材料集成器件的各种弊端, 但是并未实现二维材料对波导的连续覆盖; 且由于波导制备工艺的问题, Si 波导表面的粗糙程度超过了 TMDCs 单层的厚度, 高的波导粗糙度会明显增加光的散射损耗; 同时 Si 材料在 405 nm 附近有强烈的吸收效应, 严重限制了器件的实际应用.

## 4.2 三阶非线性过程增强的二维材料集成平台

### 4.2.1 二维材料-光纤集成平台中的三阶非线性增强

图 13 为近年来直接在微结构光纤中生长单层二维材料实现集成平台中三阶非线性增强的研究进展. 2020 年, Zuo 等<sup>[137]</sup> 提出一种两步生长法

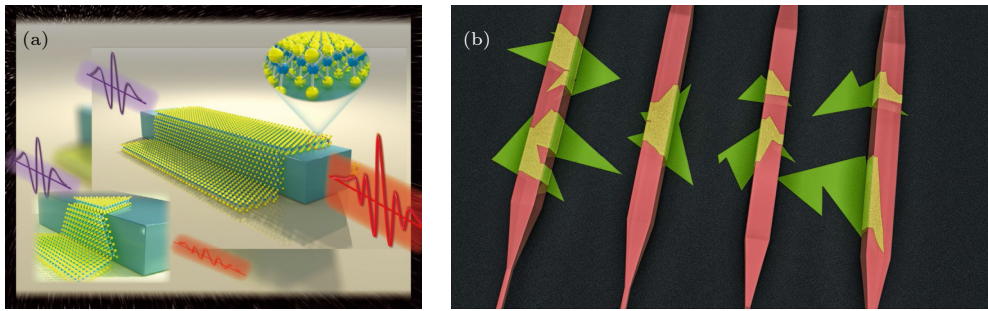


图 12 基于直接生长法制备的二阶非线性增强的二维材料-波导集成平台 (a)  $\text{Si}_3\text{N}_4$  波导上直接生长  $\text{WS}_2$  实现 SHG 增强的示意图<sup>[147]</sup>; (b) Si 波导上直接生长单层  $\text{MoS}_2$  的概念示意图<sup>[148]</sup>

Fig. 12. Enhanced second-order nonlinear process in 2D material-waveguides integrated platforms based on direct growth methods: (a) Schematic diagram of SHG enhancement of the  $\text{Si}_3\text{N}_4$  waveguides with directly grown  $\text{WS}_2$ <sup>[147]</sup>; (b) concept schematic of Si waveguides with directly grown monolayer  $\text{MoS}_2$ <sup>[148]</sup>.

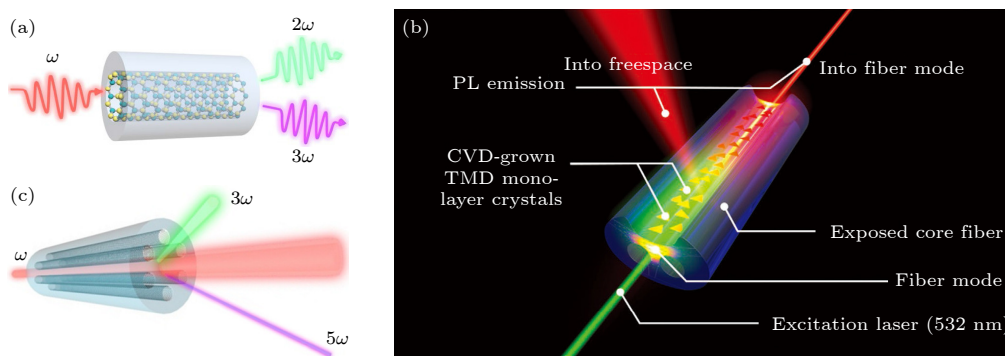


图 13 基于直接生长法制备的三阶非线性的增强二维材料-光纤集成平台 (a) 嵌入  $\text{MoS}_2$  的 HCF 中 SHG 和 THG 的示意图<sup>[137]</sup>; (b) 使用原子层厚度的半导体对光纤进行规模化的功能化<sup>[149]</sup>; (c) 石墨烯-PCF 中产生谐波的示意图<sup>[150]</sup>

Fig. 13. 2D material-fiber integrated platforms with enhanced third-order nonlinear process based on direct growth methods: (a) schematics of SHG and THG in  $\text{MoS}_2$ -embedded HCF<sup>[137]</sup>; (b) scalable functionalization of optical fibers using atomically thin semiconductors<sup>[149]</sup>; (c) schematic of harmonic generations in graphene-PCF<sup>[150]</sup>.

(图 11(a)) 在 HCF 中生长连续单层  $\text{MoS}_2$ , 在 1800 nm 激光泵浦条件下实现了 SHG 的显著增强. 此外, 在 2100 nm 激光泵浦的条件下, 该  $\text{MoS}_2$ -HCF 集成结构也表现出显著的 THG 增强现象 (图 13(a)).

2020 年, Ngo 等<sup>[149]</sup> 利用修正的化学气相沉积法在裸芯光纤上生长了高质量单层  $\text{MoS}_2$  (图 13(b)), 并且进行了 PL 和三阶非线性调控方面的研究; 2022 年, Chen 等<sup>[150]</sup> 在 2019 年在 PCF 中生长亚微米量级单层石墨烯的工作基础<sup>[136]</sup> 上, 提出了一种压力控制的 CVD 生长方法, 对 PCF 中生长的石墨烯的长度和厚度进行控制. 在权衡了石墨烯的非线性增强以及线性吸收损耗之后, 研究人员最终在 5 cm 长的单层石墨烯-PCF 集成结构中实现了 THG 和五次谐波产生的增强 (图 13(c)).

### 4.3 小结

本章梳理了近年来直接在光纤和片上集成平

台上生长二维材料进行非线性增强方面的研究.

1) 在微结构光纤方面, 国内的北京大学刘开辉课题组已经率先实现: a) PCF 中亚微米量级石墨烯的均匀连续生长<sup>[136]</sup> (2019 年); b) HCF 中 25 cm 长单层  $\text{MoS}_2$  的连续生长, 并实现了二维材料中非线性超百倍的增强<sup>[137]</sup> (2020 年); c) 在 PCF 中通过压力控制生长石墨烯的厚度以及长度, 实现了高阶非线性的增强<sup>[150]</sup> (2022 年). 国外该领域具有代表性的工作来自德国耶拿大学 Falk Eilenberger 博士课题组: a) 在裸芯光纤上直接生长单层  $\text{MoS}_2$ , 并进行了三阶非线性相关的研究<sup>[149]</sup> (2020 年); b) 在裸芯光纤上直接生长单层  $\text{MoS}_2$ , 并在  $\text{MoS}_2$ -ECF 中集成器件中实现了 SHG 显著增强<sup>[138]</sup> (2022 年).

2) 在片上波导方面, 笔者课题组已经实现了在  $\text{Si}_3\text{N}_4$  波导上约 400  $\mu\text{m}$  单层  $\text{WS}_2$  的连续生长, 并在  $\text{WS}_2/\text{Si}_3\text{N}_4$  集成波导中实现了 SHG 的显著增强<sup>[147]</sup> (2021 年); 德国耶拿大学的 Falk Eilenberger

博士课题组实现了 Si 波导上非连续单层 MoS<sub>2</sub> 的直接生长,并在集成波导中探测到了二次谐波信号<sup>[148]</sup> (2022 年).

相较于传统的转移集成方法,使用直接生长法制备的集成二维材料非线性光子器件主要有以下优势: a) 二维材料直接生长在光子平台表面,不存在转移过程中二维材料受损、褶皱以及材料断裂等问题; b) 不需要借助热释放材料或者溶剂等中间材料,避免了集成器件中杂质的引入; c) 二维材料可以在光纤或者波导表面保形生长,实现对光纤内/外壁以及波导侧壁均匀连续覆盖,增强光与二维材料的相互作用; d) 大大简化器件制备工艺,实验的可控性以及可重复性较好; e) 可以实现集成二维材料非线性光子器件的大规模制备.

直接生长法具有传统转移方法不具备的巨大优势,但是在实际的器件制备过程中,还有以下技术难点: a) 材料生长条件的严格把控. 在生长过程中,二维材料的生长温度、管式炉中惰性气体的流量、生长源与基片之间的距离、生长环境的纯净与否以及是否使用生长前驱体都决定着最终生长晶体的质量; b) 材料生长之前要保证光纤或波导表面亚纳米级别的粗糙度,这样才能保证原子层厚度的二维材料可以在光子平台上均匀连续生长; c) 材料生长之前要保证光纤或者波导平台的洁净. 如果生长前光子平台上有杂质,这些杂质就会成为二维材料生长的形核点,生长出非层状的枝晶纳米线或大的颗粒状晶体. 当光在二维材料集成平台中传输时遇到这些非层状晶体,光的传播损耗将急剧增加,导致器件无法正常使用; d) 二维材料在光子平台上生长位置的精确控制.

## 5 总结与展望

传统基于 Si, Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 以及 SiO<sub>2</sub> 等材料的光子平台加工工艺成熟,但是上述光学平台可实现的非线性功能受限;二维材料尽管具有优异的非线性光学特性,但只有原子层厚度,其优异的非线性光学特性无法充分发挥. 将二维材料与成熟的光子平台集成,在充分利用光子平台成熟加工工艺的基础上,可以显著提高光与物质的相互作用,充分发挥二维材料在非线性光学领域的潜能,提升集成平台的非线性光学性能.

基于以上思路,本文从非线性光学的基本原理

出发(第 2 节),梳理了传统基于转移方法(第 3 节)和近年来新兴的基于直接生长法(第 4 节)实现的多种集成二维材料非线性光子平台研究进展. 传统基于转移方法实现二维材料与光子平台的集成技术发展较为成熟,可以实现对二维材料与光子平台集成位置的精确控制;但是在二维材料转移过程中存在的杂质引入、材料褶皱破损、工艺繁琐、无法实现二维材料对光子结构的保形覆盖以及规模化制备受限等难以规避的问题;相比之下,近年来新兴的在各种光子平台上直接生长二维材料的方法克服了传统转移方法存在的各种弊端,在二维材料生长质量、工艺简化、保形覆盖以及规模化制备等方面表现出巨大技术优势. 但是由于该研究方向发展时间较短,还有一系列技术难点需要解决,如精确控制二维材料的生长条件,保证均匀连续层状二维材料对各种光子结构的保形覆盖等(详见 4.3 节).

二维材料与多种光子平台集成实现 SHG, THG, FWM 以及 SPM 等非线性光学过程增强的研究已经在二维晶体及其异质结构的对称性表征和晶向研究、宽带光源、全光计算<sup>[151]</sup>、量子技术、片内通信<sup>[152]</sup>等领域表现出巨大的应用前景. 图 1 中用红色虚线标记出了接下来基于直接生长法可以在集成二维材料非线性光学领域进行的研究: 如可以尝试在各种腔表面直接生长二维材料<sup>[153]</sup>进行二阶非线性增强<sup>[154]</sup>方面的研究;也可以尝试在片上波导或微环上直接生长二维材料进行三阶非线性增强方面的研究. 总体而言,直接在各种光子结构上直接生长二维材料进行集成非线性光学特性的研究已经引起了该领域研究人员极大的研究兴趣. 随着时间的推移,该领域将会继续取得突破性进展,微纳光子结构上高质量二维材料连续生长以及晶圆级规模化制备等技术问题将会被攻破,进一步提升芯片的集成度、调制速度以及工作带宽等,为光通信、信号处理、光传感及量子技术等领域打下良好基础.

## 参考文献

- [1] Atabaki A H, Moazeni S, Pavanello F, Gevorgyan H, Notaros J, Alloatti L, Wade M T, Sun C, Kruger S A, Meng H, Al Qubaisi K, Wang I, Zhang B, Khilo A, Baiocco C V, Popović M A, Stojanović V M, Ram R J 2018 *Nature* **556** 349
- [2] Ren T H, Loh K P 2019 *J. Appl. Phys.* **125** 230901
- [3] Thomson D, Zilkie A, Bowers J E, Komljenovic T, Reed G

- T, Vivien L, Marris-Morini D, Cassan E, Virot L, Fédéli J M, Hartmann J M, Schmid J H, Xu D X, Boeuf F, O'Brien P, Mashanovich G Z, Nedeljkovic M 2016 *J. Opt.* **18** 073003
- [4] Cheng Q, Bahadori M, Glick M, Rumley S, Bergman K 2018 *Optica* **5** 1354
- [5] Wang H M, Chai H Y, Lv Z R, Zhang Z K, Meng L, Yang X G, Yang T 2020 *J. Semicond.* **41** 101301
- [6] Sharma T, Wang J Q, Kaushik B K, Cheng Z Z, Kumar R, Wei Z, Li X J 2020 *IEEE Access* **8** 195436
- [7] Moss D J, Morandotti R, Gaeta A L, Lipson M 2013 *Nat. Photon.* **7** 597
- [8] Feldmann J, Youngblood N, Karpov M, Gehring H, Li X, Stappers M, Le Gallo M, Fu X, Lukashchuk A, Raja A S, Liu J, Wright C D, Sebastian A, Kippenberg T J, Pernice W H P, Bhaskaran H 2021 *Nature* **589** 52
- [9] Yuan S, Wu Y K, Dang Z Z, Zeng C, Qi X Z, Guo G C, Ren X F, Xia J S 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 153901
- [10] Yang S, Liu D C, Tan Z L, Liu K, Zhu Z H, Qin S Q 2018 *ACS Photonics* **5** 342
- [11] Wang C L, Li J, Yi A L, Fang Z W, Zhou L P, Wang Z, Niu R, Chen Y, Zhang J X, Cheng Y, Liu J Q, Dong C H, Ou X 2022 *Light Sci. Appl.* **11** 341
- [12] Markov I L 2014 *Nature* **512** 147
- [13] Gaeta A L, Lipson M, Kippenberg T J 2019 *Nat. Photon.* **13** 158
- [14] Lin G P, Coillet A, Chembo Y K 2017 *Adv. Opt. Photon.* **9** 828
- [15] Rahim A, Spuesens T, Baets R, Bogaerts W 2018 *Proc. IEEE* **106** 2313
- [16] Kippenberg T J, Gaeta A L, Lipson M, Gorodetsky M L 2018 *Science* **361** eaan8083
- [17] Bogaerts W, De Heyn P, Van Vaerenbergh T, De Vos K, Selvaraja S K, Claes T, Dumon P, Bienstman P, Van Thourhout D, Baets R 2012 *Laser Photon. Rev.* **6** 47
- [18] Tsang H K, Wong C S, Liang T K, Day I E, Roberts S W, Harpin A, Drake J, Asghari M 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 416
- [19] Jalali B 2010 *Nat. Photon.* **4** 506
- [20] Marpaung D, Yao J, Capmany J 2019 *Nat. Photon.* **13** 80
- [21] Luke K, Dutt A, Poitras C B, Lipson M 2013 *Opt. Express* **21** 22829
- [22] Pfeiffer M H P, Liu J, Raja A S, Morais T, Ghadiani B, Kippenberg T J 2018 *Optica* **5** 884
- [23] Liu J, Huang G, Wang R N, He J, Raja A S, Liu T, Engelsen N J, Kippenberg T J 2021 *Nat. Commun.* **12** 2236
- [24] Ye Z, Jia H, Huang Z, Shen C, Long J, Shi B, Luo Y H, Gao L, Sun W, Guo H, He J, Liu J 2023 *Photon. Res.* **11** 558
- [25] Zhang Y, Cheng Z, Liu L, Zhu B, Wang J, Zhou W, Wu X, Tsang H K 2016 *J. Opt.* **18** 055503
- [26] Li M, Zhang L, Tong L M, Dai D X 2018 *Photon. Res.* **6** B13
- [27] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, Jiang D, Zhang Y, Dubonos S V, Grigorieva I V, Firsov A A 2004 *Science* **306** 666
- [28] Loh K P, Bao Q, Eda G, Chhowalla M 2010 *Nat. Chem.* **2** 1015
- [29] Zhou J, Lin J, Huang X, Zhou Y, Chen Y, Xia J S, Wang H, Xie Y, Yu H, Lei J, Wu D, Liu F, Fu Q, Zeng Q, Hsu C H, Yang C, Lu L, Yu T, Shen Z, Lin H, Yakobson B I, Liu Q, Suenaga K, Liu G, Liu Z 2018 *Nature* **556** 355
- [30] Liu H, Neal A T, Zhu Z H, Luo Z, Xu X, Tománek D, Ye P D 2014 *ACS Nano* **8** 4033
- [31] Ma H, Liang J, Hong H, Liu K H, Zou D X, Wu M H, Liu K H 2020 *Nanoscale* **12** 22891
- [32] Wen X L, Gong Z B, Li D H 2019 *Infomat* **1** 317
- [33] Wang Q H, Kalantar-Zadeh K, Kis A, Coleman J N, Strano M S 2012 *Nat. Nanotechnol.* **7** 699
- [34] Xia F, Wang H, Xiao D, Dubey M, Ramasubramaniam A 2014 *Nat. Photon.* **8** 899
- [35] Sun Z, Martinez A, Wang F 2016 *Nat. Photon.* **10** 227
- [36] Liu C S, Chen H W, Wang S Y, Liu Q, Jiang Y G, Zhang D W, Liu M, Zhou P 2020 *Nat. Nanotechnol.* **15** 545
- [37] Bai R X, Yang J H, Wei D H, Wei Z M 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 186202 (in Chinese) [白瑞雪, 杨珏晗, 魏大海, 魏钟鸣 2021 物理学报 **70** 186202]
- [38] Wang S Y, Liu X X, Xu M S, Liu L W, Yang D R, Zhou P 2022 *Nat. Mater.* **21** 1225
- [39] Paras, Yadav K, Kumar P, Teja D R, Chakraborty S, Chakraborty M, Mohapatra S S, Sahoo A, Chou M M C, Liang C T, Hang D R 2023 *Nanomaterials* **13** 160
- [40] Healey A J, Scholten S C, Yang T, Scott J A, Abrahams G J, Robertson I O, Hou X F, Guo Y F, Rahman S, Lu Y Q, Kianinia M, Aharonovich I, Tetienne J P 2023 *Nat. Phys.* **19** 87
- [41] Du L, Molas M R, Huang Z, Zhang G, Wang F, Sun Z 2023 *Science* **379** eadg0014
- [42] Dogadov O, Trovattello C, Yao B C, Soavi G, Cerullo G 2022 *Laser Photon. Rev.* **16** 2100726
- [43] An J, Zhao X, Zhang Y, Liu M, Yuan J, Sun X, Zhang Z, Wang B, Li S, Li D 2022 *Adv. Funct. Mater.* **32** 2110119
- [44] Liu J, Bo F, Chang L, Dong C H, Ou X, Regan B, Shen X, Song Q, Yao B, Zhang W, Zou C L, Xiao Y F 2022 *Sci. China-Phys. Mech. Astron.* **65** 104201
- [45] Cheng Z, Cao R, Wei K, Yao Y, Liu X, Kang J, Dong J, Shi Z, Zhang H, Zhang X 2021 *Adv. Sci.* **8** 2003834
- [46] Li J, Liu C, Chen H, Guo J, Zhang M, Dai D 2020 *Nanophotonics* **9** 2295
- [47] Ma Q, Ren G, Mitchell A, Ou J Z 2020 *Nanophotonics* **9** 2191
- [48] Chen H T, Wang C, Ouyang H, Song Y F, Jiang T 2020 *Nanophotonics* **9** 2107
- [49] Wei G H, Stanev T K, Czaplewski D A, Jung I W, Stern N P 2015 *Appl. Phys. Lett.* **107** 091112
- [50] Zhou R, Krasnok A, Hussain N, Yang S, Ullah K 2022 *Nanophotonics* **11** 3007
- [51] Franken P A, Hill A E, Peters C W, Weinreich G 1961 *Phys. Rev. Lett.* **7** 118
- [52] Zhang J, Zhao W, Yu P, Yang G, Liu Z 2020 *2 D Mater.* **7** 042002
- [53] Leuthold J, Koos C, Freude W 2010 *Nat. Photon.* **4** 535
- [54] Ji J R, Feng Y, 2008 *Advanced Optics Course: Nonlinear Optics and Guided-Wave Optics* (Beijing: Science Press) (in Chinese) [季家镛, 冯莹 2008 高等光学教程: 非线性光学与导波光学 (北京: 科学出版社)]
- [55] Zhang X, Cao Q T, Wang Z, Liu Y X, Qiu C W, Yang L, Gong Q, Xiao Y F 2019 *Nat. Photon.* **13** 21
- [56] Hao Z, Jiang B, Ma Y, Yi R, Jin H, Huang L, Gan X T, Zhao J 2023 *Phys. Rev. Appl.* **19** L031002
- [57] Chen J H, Xiong Y F, Xu F, Lu Y Q 2021 *Light Sci. Appl.* **10** 78
- [58] Xiao J, Zhao M, Wang Y, Zhang X 2017 *Nanophotonics* **6** 1309
- [59] Autere A, Jussila H, Marini A, Saavedra J R M, Dai Y, Säynätjoki A, Karvonen L, Yang H, Amirsolaimani B, Norwood R A, Peyghambarian N, Lipsanen H, Kieu K, de Abajo F J G, Sun Z 2018 *Phys. Rev. B* **98** 115426
- [60] Tang B, Che B, Xu M, Ang Z P, Di J, Gao H J, Yang H,

- Zhou J, Liu Z 2021 *Small Struct.* **2** 2170012
- [61] Seyler K L, Schaibley J R, Gong P, Rivera P, Jones A M, Wu S, Yan J, Mandrus D G, Yao W, Xu X 2015 *Nat. Nanotechnol.* **10** 407
- [62] Fryett T, Zhan A, Majumdar A 2018 *Nanophotonics* **7** 355
- [63] Zhang M, Han N, Zhang J, Wang J, Chen X, Zhao J, Gan X T 2023 *Sci. Adv.* **9** eadf4571
- [64] Yi F, Ren M, Reed J C, Zhu H, Hou J, Naylor C H, Johnson A T C, Agarwal R, Cubukcu E 2016 *Nano Lett.* **16** 1631
- [65] Day J K, Chung M H, Lee Y H, Menon V M 2016 *Opt. Mater. Express* **6** 2360
- [66] Fryett T K, Seyler K L, Zheng J, Liu C H, Xu X, Majumdar A 2017 *2 D Mater.* **4** 015031
- [67] Jie W, Chen X, Li D, Xie L, Hui Y Y, Lau S P, Cui X, Hao J 2015 *Angew. Chem. Int. Ed.* **54** 1185
- [68] Gan X T, Zhao C Y, Hu S Q, Wang T, Song Y, Li J, Zhao Q H, Jie W Q, Zhao J L 2018 *Light Sci. Appl.* **7** 17126
- [69] Han X, Wang K, Persaud P D, Xing X, Liu W, Long H, Li F, Wang B, Singh M R, Lu P X 2020 *ACS Photonics* **7** 562
- [70] Shi J, Wu X, Wu K, Zhang S, Sui X, Du W, Yue S, Liang Y, Jiang C, Wang Z, Wang W, Liu L, Wu B, Zhang Q, Huang Y, Qiu C W, Liu X 2022 *ACS Nano* **16** 13933
- [71] Du J, Shi J, Li C, Shang Q, Liu X, Huang Y, Zhang Q 2023 *Nano Res.* **16** 4061
- [72] Wang Z, Dong Z, Zhu H, Jin L, Chiu M H, Li L J, Xu Q H, Eda G, Maier S A, Wee A T S, Qiu C W, Yang J K W 2018 *ACS Nano* **12** 1859
- [73] Shi J, Liang W Y, Raja S S, Sang Y, Zhang X Q, Chen C A, Wang Y, Yang X, Lee Y H, Ahn H, Gwo S 2018 *Laser Photon. Rev.* **12** 1800188
- [74] Chen J, Wang K, Long H, Han X, Hu H, Liu W, Wang B, Lu P X 2018 *Nano Lett.* **18** 1344
- [75] Leng Q, Su H, Liu J, Zhou L, Qin K, Wang Q, Fu J, Wu S, Zhang X 2021 *Nanophotonics* **10** 1871
- [76] Liu T, Xiao S, Li B, Gu M, Luan H, Fang X 2022 *Front. Nanotechnol.* **4** 891892
- [77] Yuan Q, Fang L, Fang H, Li J, Wang T, Jie W, Zhao J, Gan X T 2019 *ACS Photonics* **6** 2252
- [78] Bernhardt N, Koshelev K, White S J U, Meng K W C, Frösch J E, Kim S, Tran T T, Choi D-Y, Kivshar Y, Solntsev A S 2020 *Nano Lett.* **20** 5309
- [79] Zhang Z, Zhang L, Gogna R, Chen Z, Deng H 2020 *Solid State Commun.* **322** 114043
- [80] Löchner F J F, George A, Koshelev K, Bucher T, Najafidehaghani E, Fedotova A, Choi D-Y, Pertsch T, Staude I, Kivshar Y, Turchanin A, Setzpfandt F 2021 *ACS Photonics* **8** 218
- [81] Chen J H, Tan J, Wu G X, Zhang X J, Xu F, Lu Y Q 2019 *Light Sci. Appl.* **8** 8
- [82] Jiang B, Hao Z, Ji Y, Hou Y, Yi R, Mao D, Gan X T, Zhao J 2020 *Light Sci. Appl.* **9** 63
- [83] Luo Z, Liu M, Liu H, Zheng X, Luo A, Zhao C, Zhang H, Wen S, Xu W 2013 *Opt. Lett.* **38** 5212
- [84] Hao Z, Jiang B, Hou Y, Li C, Yi R, Ji Y, Li J, Li A, Gan X T, Zhao J 2021 *Opt. Lett.* **46** 733
- [85] Hao Z, Ma Y, Jiang B, Hou Y, Li A, Yi R, Gan X T, Zhao J 2022 *Sci. China Inf. Sci.* **65** 162403
- [86] Ma Y, Jiang B, Guo Y, Zhang P, Cheng T, Gan X T, Zhao J 2022 *Opt. Express* **30** 32438
- [87] Chen H T, Corbolio V, Solntsev A S, Choi D Y, Vincenti M A, de Ceglia D, de Angelis C, Lu Y Q, Neshev D N 2017 *Light Sci. Appl.* **6** e17060
- [88] Li D, Wei C, Song J, Huang X, Wang F, Liu K, Xiong W, Hong X, Cui B, Feng A, Jiang L, Lu Y Q 2019 *Nano Lett.* **19** 4195
- [89] Wang B B, Ji Y F, Gu L P, Fang L, Gan X T, Zhao J L 2022 *ACS Photonics* **9** 1671
- [90] Zhu C Y, Zhang Z, Qin J K, Wang Z, Wang C, Miao P, Liu Y, Huang P Y, Zhang Y, Xu K, Zhen L, Chai Y, Xu C Y 2023 *Nat. Commun.* **14** 2521
- [91] Sheik-Bahae M, Said A A, Wei T H, Hagan D J, Stryland E W V 1990 *IEEE J. Quantum Electron.* **26** 760
- [92] Zhang H, Virally S, Bao Q, Kian Ping L, Massar S, Godbout N, Kockaert P 2012 *Opt. Lett.* **37** 1856
- [93] Demetriou G, Bookey H T, Biancalana F, Abraham E, Wang Y, Ji W, Kar A K 2016 *Opt. Express* **24** 13033
- [94] Zheng X, Jia B, Chen X, Gu M 2014 *Adv. Mater.* **26** 2699
- [95] Xu X, Zheng X, He F, Wang Z, Subbaraman H, Wang Y, Jia B, Chen R T 2017 *Sci. Rep.* **7** 9646
- [96] Bikorimana S, Lama P, Walser A, Dorsinville R, Anghel S, Mitioglu A, Micu A, Kulyuk L 2016 *Opt. Express* **24** 20685
- [97] Dong N, Li Y, Zhang S, McEvoy N, Zhang X, Cui Y, Zhang L, Duesberg G, Wang J 2016 *Opt. Lett.* **41** 3936
- [98] Yang T, Abdelwahab I, Lin H, Bao Y, Rong Tan S J, Fraser S, Loh K P, Jia B 2018 *ACS Photonics* **5** 4969
- [99] Jia L, Wu J, Yang T, Jia B, Moss D J 2020 *ACS Appl. Nano Mater.* **3** 6876
- [100] Wu Y, Yao B C, Feng Q Y, Cao X L, Zhou X Y, Rao Y J, Gong Y, Zhang W L, Wang Z G, Chen Y F, Chiang K S 2015 *Photon. Res.* **3** A64
- [101] Zhang H, Healy N, Runge A F J, Huang C C, Hewak D W, Peacock A C 2018 *Opt. Lett.* **43** 3100
- [102] Dinu M, Quochi F, Garcia H 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 2954
- [103] Corcoran B, Monat C, Grillet C, Moss D J, Eggleton B J, White T P, O'Faolain L, Krauss T F 2009 *Nat. Photon.* **3** 206
- [104] Baba T 2008 *Nat. Photon.* **2** 465
- [105] Matsuda N, Kato T, Harada K-i, Takesue H, Kuramochi E, Taniyama H, Notomi M 2011 *Opt. Express* **19** 19861
- [106] Zhang Y J, Wang L, Cheng Z Z, Tsang H K 2017 *Appl. Phys. Lett.* **111** 041104
- [107] Hendry E, Hale P J, Moger J, Savchenko A K, Mikhailov S A 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 097401
- [108] Liu K, Zhang J F, Xu W, Zhu Z H, Guo C C, Li X J, Qin S Q 2015 *Sci. Rep.* **5** 16734
- [109] Ishizawa A, Kou R, Goto T, Tsuchizawa T, Matsuda N, Hitachi K, Nishikawa T, Yamada K, Sogawa T, Gotoh H 2017 *Sci. Rep.* **7** 45520
- [110] Feng Q, Cong H, Zhang B, Wei W Q, Liang Y Y, Fang S B, Wang T, Zhang J J 2019 *Appl. Phys. Lett.* **114** 071104
- [111] Ji M X, Cai H, Deng L K, Huang Y, Huang Q Z, Xia J S, Li Z Y, Yu J Z, Wang Y 2015 *Opt. Express* **23** 18679
- [112] Lin H T, Song Y, Huang Y Z, Kita D, Deckoff-Jones S, Wang K Q, Li L, Li J Y, Zheng H Y, Luo Z Q, Wang H Z, Novak S, Yadav A, Huang C C, Shiue R J, Englund D, Gu T, Hewak D, Richardson K, Kong J, Hu J J 2017 *Nat. Photon.* **11** 798
- [113] Compton O C, Nguyen S T 2010 *Small* **6** 711
- [114] Dreyer D R, Park S, Bielawski C W, Ruoff R S 2010 *Chem. Soc. Rev.* **39** 228
- [115] Dreyer D R, Todd A D, Bielawski C W 2014 *Chem. Soc. Rev.* **43** 5288
- [116] Yang Y, Lin H, Zhang B Y, Zhang Y, Zheng X, Yu A, Hong M, Jia B 2019 *ACS Photonics* **6** 1033
- [117] Wu J, Yang Y, Qu Y, Xu X, Liang Y, Chu S T, Little B E, Morandotti R, Jia B, Moss D J 2019 *Laser Photon. Rev.* **13**

- 1900056
- [118] Wu J, Jia L, Zhang Y, Qu Y, Jia B, Moss D J 2021 *Adv. Mater.* **33** 2006415
- [119] Jia L, Wu J, Zhang Y, Qu Y, Jia B, Moss D J 2023 *Micromachines* **14** 307
- [120] Zhang Y, Wu J, Jia L, Qu Y, Yang Y, Jia B, Moss D J 2023 *Laser Photon. Rev.* **17** 2200512
- [121] Wu J, Lin H, Moss D J, Loh K P, Jia B 2023 *Nat. Rev. Chem.* **7** 162
- [122] Yang Y, Wu J, Xu X, Liang Y, Chu S T, Little B E, Morandotti R, Jia B, Moss D J 2018 *APL Photonics* **3** 120803
- [123] Wu J, Yang Y, Qu Y, Jia L, Zhang Y, Xu X, Chu S T, Little B E, Morandotti R, Jia B, Moss D J 2020 *Small* **16** 1906563
- [124] Zhang Y N, Wu J Y, Yang Y Y, Qu Y, Jia L N, Moein T, Jia B H, Moss D J 2020 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **12** 33094
- [125] Zhang Y N, Wu J Y, Yang Y Y, Qu Y, Jia L N, Jia B H, Moss D J 2022 *Micromachines* **13** 756
- [126] Qu Y, Wu J, Zhang Y, Jia L, Liang Y, Jia B, Moss D J 2021 *J. Lightwave Technol.* **39** 2902
- [127] Qu Y, Wu J Y, Yang Y Y, Zhang Y N, Liang Y, El Dirani H, Crochemore R, Demongodin P, Sciancalepore C, Grillet C, Monat C, Jia B H, Moss D J 2020 *Adv. Opt. Mater.* **8** 2001048
- [128] Zhang Y, Wu J, Yang Y, Qu Y, Dirani H E, Crochemore R, Sciancalepore C, Demongodin P, Grillet C, Monat C, Jia B, Moss D J 2023 *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **29** 1
- [129] Zhang Y, Wu J, Yang Y, Qu Y, Jia L, Dirani H E, Kerdiles S, Sciancalepore C, Demongodin P, Grillet C, Monat C, Jia B, Moss D J 2023 *Adv. Mater. Technol.* **8** 2201796
- [130] Liu L H, Xu K, Wan X, Xu J B, Wong C Y, Tsang H K 2015 *Photon. Res.* **3** 206
- [131] Zhang Y J, Tao L, Yi D, Xu J B, Tsang H K 2020 *J. Opt.* **22** 025503
- [132] Wang Y, Pelgrin V, Gyger S, Uddin G M, Bai X, Lafforgue C, Vivien L, Jöns K D, Cassan E, Sun Z 2021 *ACS Photonics* **8** 2713
- [133] He J, Paradisanos I, Liu T, Cadore A R, Liu J, Churaev M, Wang R N, Raja A S, Javerzac-Galy C, Roelli P, Fazio D D, Rosa B L T, Tongay S, Soavi G, Ferrari A C, Kippenberg T J 2021 *Nano Lett.* **21** 2709
- [134] Deckoff-Jones S, Pelgrin V, Zhang J, Lafforgue C, Deniel L, Guerber S, Ribeiro-Palau R, Boeuf F, Alonso-Ramos C, Vivien L, Hu J, Serna S 2021 *J. Opt.* **23** 025802
- [135] Wang Y H, He S, Gao X Y, Ye P P, Lei L, Dong W C, Zhang X L, Xu P 2022 *Photon. Res.* **10** 50
- [136] Chen K, Zhou X, Cheng X, Qiao R, Cheng Y, Liu C, Xie Y, Yu W, Yao F, Sun Z, Wang F, Liu K H, Liu Z 2019 *Nat. Photon.* **13** 754
- [137] Zuo Y, Yu W, Liu C, Cheng X, Qiao R, Liang J, Zhou X, Wang J, Wu M, Zhao Y, Gao P, Wu S, Sun Z, Liu K H, Bai X, Liu Z 2020 *Nat. Nanotechnol.* **15** 987
- [138] Ngo G Q, Najafidehaghani E, Gan Z, Khazaei S, Siems M P, George A, Schartner E P, Nolte S, Ebendorff-Heidepriem H, Pertsch T, Tuniz A, Schmidt M A, Peschel U, Turchanin A, Eilenberger F 2022 *Nat. Photon.* **16** 769
- [139] George A, Neumann C, Kaiser D, Mupparapu R, Lehnert T, Hübner U, Tang Z, Winter A, Kaiser U, Staude I, Turchanin A 2019 *J. Phys. Mater.* **2** 016001
- [140] Chen H, Guo K, Yin J, He S, Qiu G, Zhang M, Xu Z, Zhu G, Yang J, Yan P 2021 *Laser Photon. Rev.* **15** 2000459
- [141] Wu J, Ma H, Yin P, Ge Y, Zhang Y, Li L, Zhang H, Lin H 2021 *Small Sci.* **1** 2000053
- [142] Wu S, Buckley S, Schaibley J R, Feng L, Yan J, Mandrus D G, Hatami F, Yao W, Vučković J, Majumdar A, Xu X 2015 *Nature* **520** 69
- [143] Ye Y, Wong Z J, Lu X, Ni X, Zhu H, Chen X, Wang Y, Zhang X 2015 *Nat. Photon.* **9** 733
- [144] Zhao L, Shang Q, Gao Y, Shi J, Liu Z, Chen J, Mi Y, Yang P, Zhang Z, Du W, Hong M, Liang Y, Xie J, Hu X, Peng B, Leng J, Liu X, Zhao Y, Zhang Y, Zhang Q 2018 *ACS Nano* **12** 9390
- [145] Feng J, Li Y, Zhang J, Tang Y, Sun H, Gan L, Ning C-Z 2022 *Sci. Adv.* **8** eabl5134
- [146] Ma R, Sutherland D S, Shi Y 2021 *Mater. Today* **50** 570
- [147] Liu N, Yang X, Zhu Z H, Chen F, Zhou Y B, Xu J P, Liu K 2022 *Nanoscale* **14** 49
- [148] Kuppadakkath A, Najafidehaghani E, Gan Z, Tuniz A, Ngo G Q, Knopf H, Löchner F J F, Abtahi F, Bucher T, Shradha S, Käsebier T, Palomba S, Felde N, Paul P, Ullsperger T, Schröder S, Szeghalmi A, Pertsch T, Staude I, Zeitner U, George A, Turchanin A, Eilenberger F 2022 *Nanophotonics* **11** 4397
- [149] Ngo G Q, George A, Schock R T K, Tuniz A, Najafidehaghani E, Gan Z, Geib N C, Bucher T, Knopf H, Saravi S, Neumann C, Lühder T, Schartner E P, Warren-Smith S C, Ebendorff-Heidepriem H, Pertsch T, Schmidt M A, Turchanin A, Eilenberger F 2020 *Adv. Mater.* **32** 2003826
- [150] Cheng Y, Yu W, Xie J, Wang R, Cui G, Cheng X, Li M, Wang K, Li J, Sun Z, Chen K, Liu K, Liu Z 2022 *ACS Photonics* **9** 961
- [151] Pelgrin V, Yoon H H, Cassan E, Sun Z 2023 *LAM* **4** 14
- [152] de Matos C J S, Rosa H G, Zapata J D, Steinberg D, Maldonado M, Thoroh de Souza E A, de Paula A M, Malard L M, Gomes A S L 2023 *J. Opt. Soc. Am. B* **40** C111
- [153] Liu N, Yang X, Zhang J, Zhu Z H, Liu K 2023 *ACS Photonics* **10** 283
- [154] Hu G, Hong X, Wang K, Wu J, Xu H X, Zhao W, Liu W, Zhang S, Garcia-Vidal F, Wang B, Lu P X, Qiu C W 2019 *Nat. Photon.* **13** 467

SPECIAL TOPIC—The 70th anniversary of National University of Defense Technology

# Research progress of nonlinear optical properties of integrated two-dimensional materials

Liu Ning<sup>1)2)3)</sup> Liu Ken<sup>1)2)3)†</sup> Zhu Zhi-Hong<sup>1)2)3)‡</sup>1) (*College of Advanced Interdisciplinary Studies, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China*)2) (*Hunan Provincial Key Laboratory of Novel Nano-Optoelectronic Information Materials and Devices, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China*)3) (*Nanhu Laser Laboratory, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China*)

( Received 5 May 2023; revised manuscript received 11 June 2023 )

## Abstract

Photonic platforms with excellent nonlinear optical characteristics are very important to improve the devices' performance parameters such as integration, modulation speeds and working bandwidths for all-optical signal processing. The traditional processing technology of photonic platforms based on silicon, silicon nitride and silicon oxide is mature, but the nonlinear function of these optical platforms is limited due to the characteristics of materials; Although two-dimensional (2D) materials possess excellent nonlinear optical properties, their nonlinear potentials cannot be fully utilized because of their atomic layer thickness. Integrating 2D materials with mature photonic platforms can significantly improve the interaction between light and matter, give full play to the potentials of 2D materials in the field of nonlinear optics, and improve the nonlinear optical performances of the integrated platforms on the basis of fully utilizing the mature processing technology of the photonic platforms. Based on the above ideas, starting from the basic principle of nonlinear optics (Section 2), this review combs the research progress of various nonlinear photonic platforms (resonators, metasurfaces, optical fibers, on-chip waveguides, etc.) heterogeneously integrated with 2D materials, realized by traditional transfer methods (Section 3) and emerging direct-growth methods (Section 4) in recent years, and the introduction is divided into second-order and third-order nonlinearity. Comparing with the transfer methods, the advantages of using direct-growth methods to realize the heterogeneous integration of 2D materials and photonic platforms for the study of nonlinear optics are expounded, and the technical difficulties to be overcome in preparing the actual devices are also pointed. In the future, we can try to grow 2D materials directly onto the surfaces of various cavities to study the enhancement of second-order nonlinearity; we can also try to grow 2D materials directly onto the on-chip waveguides or microrings to study the enhancement of third-order nonlinearity. Generally speaking, the research on integrated nonlinearity by directly growing 2D materials onto various photonic structures has aroused great interest of researchers in this field. As time goes on, breakthrough progress will be made in this field, and technical problems such as continuous growth of high-quality 2D materials onto photonic structures and wafer-level large-scale preparation will be broken through, further improving the performance parameters of chips and laying a good foundation for optical communication, signal processing, optical sensing, all-optical computing, quantum technology and so on.

**Keywords:** silicon/silicon nitride photonic platforms, two-dimensional materials, photonic integration, nonlinearity enhancement, growth of material

**PACS:** 42.65.-k, 42.65.Ky, 78.67.-n, 81.07.-b

**DOI:** 10.7498/aps.72.20230729

† Corresponding author. E-mail: [liukener@163.com](mailto:liukener@163.com)

‡ Corresponding author. E-mail: [zzhwcx@163.com](mailto:zzhwcx@163.com)



## 集成二维材料非线性光学特性研究进展

刘宁 刘肯 朱志宏

### Research progress of nonlinear optical properties of integrated two-dimensional materials

Liu Ning Liu Ken Zhu Zhi-Hong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 174202 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20230729

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230729>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

---

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

#### 二维材料热传导研究进展

Recent progresses of thermal conduction in two-dimensional materials

物理学报. 2020, 69(19): 196602 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200709>

#### 二维材料/铁电异质结构的研究进展

Research progress and device applications of multifunctional materials based on two-dimensional film/ferroelectrics heterostructures

物理学报. 2020, 69(1): 017301 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191486>

#### 基于二维材料的自旋-轨道矩研究进展

Research progress of spin-orbit torques based on two-dimensional materials

物理学报. 2021, 70(12): 127501 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210004>

#### 二维过渡金属硫化物二次谐波: 材料表征、信号调控及增强

Second harmonic generation of two-dimensional layered materials: characterization, signal modulation and enhancement

物理学报. 2020, 69(18): 184210 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200452>

#### 二维材料解理技术新进展及展望

New progress and prospects of mechanical exfoliation technology of two-dimensional materials

物理学报. 2022, 71(10): 108201 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220030>

#### 二维材料的转移方法

Methods of transferring two-dimensional materials

物理学报. 2021, 70(2): 028201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201425>