

非线性光学超构表面

邓俊鸿 李贵新

Nonlinear photonic metasurfaces

Deng Jun-Hong Li Gui-Xin

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, **66**, 147803 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.147803

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.147803>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I14>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

复合结构螺旋超材料对光波前的高效调控

High-efficiency wavefront control with based on helical metamaterials

物理学报.2016, 65(21): 217802 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.217802>

宽入射角度偏振不敏感高效异常反射梯度超表面

Polarization-insensitive and broad-angle gradient metasurface with high-efficiency anomalous reflection

物理学报.2015, 64(23): 237802 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.237802>

工字形太赫兹超材料吸波体的传感特性研究

Study on sensing characteristics of I-shaped terahertz metamaterial absorber

物理学报.2015, 64(11): 117801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.117801>

用最小结构单元频率选择表面实现大入射角宽频带的透波材料

Wideband and large incident angle wave transparent material based on frequency selective surface with miniaturized elements

物理学报.2014, 63(13): 137803 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.137803>

基于加权实数编码遗传算法的超材料优化设计

Optimization of metamaterial based weighted real-coded genetic algorithm

物理学报.2014, 63(8): 087804 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.087804>

专题: 电磁波衍射极限

非线性光学超构表面

邓俊鸿 李贵新[†]

(南方科技大学材料科学与工程系, 深圳 518055)

(2017年5月15日收到; 2017年6月5日收到修改稿)

在线性光学范畴内, 人们已经通过亚波长尺度的超薄超构表面成功实现了对光的众多新颖特性的调控功能. 其主要理念是通过对具有亚波长尺度且空间方向变化的超构功能基元进行特定的排列, 从而实现对光的偏振、相位和振幅的有效控制. 近来, 超构表面上的非线性光学特性也引起了大家的广泛关注. 在本综述中, 我们对非线性光学超构表面的设计、超构功能单元的材料和对称性选择、非线性手性光学、非线性贝里几何相位和非线性波前整形等内容进行了总结; 最后对非线性光学超构表面在调控光与物质的相互作用中面临的挑战和前景进行了展望.

关键词: 超构表面, 非线性光学, 贝里几何相位, 超构材料**PACS:** 78.67.Pt, 81.05.Xj, 02.65.-k**DOI:** 10.7498/aps.66.147803

1 引言

光学超构材料可定义为人工设计的光学结构材料, 其功能基元或“超构原子”允许以天然材料不可能的方式来控制光的传播^[1-4]. 通过合理选择超构功能基元的材料和几何形状, 我们可以人为地设计超构材料的线性光学参数, 例如其有效介电常数、磁导率以及折射率等, 而且超构单元的电磁响应可以不受其化学成分的限制. 目前, 人们利用超构材料已经实现了许多新奇的光物理现象, 例如负折射、超分辨成像和光学隐身等^[1-4]. 然而, 在光学波段, 三维超构材料在纳米加工技术中面临的困难和不可避免的光损耗限制了其实际应用.

光学超构表面的出现为解决三维超构材料中所面临的困难提供了崭新的解决思路. 超构表面是一类由具有空间变化的超构功能基元组成的结构化界面. 通过在金属或介质材料构成的二维或准二维表面上引入光的相位突变, 可以在亚波长尺度下实现对光的偏振、振幅和相位的有效调控^[1-3,5-8]. 与三维超构材料相比, 超构表面的二维属性更容易实现体积更紧凑、损耗更低的光学器件的制备.

此外, 光通过亚波长厚度的超构表面不像其在三维超构材料中那样更依赖传播效应, 因此所带来的色散效应更弱. 此外, 超薄超构表面往往比三维的超构材料更易与现有的互补金属氧化物半导体 (CMOS) 技术兼容, 因此更容易集成到现有的光电技术中. 从某种意义上说, 超构表面的出现预示着“平面光学”时代的到来. 近几年, 人们利用超构表面实现了许多有趣的光学现象, 如异常反射和透射、平面透镜成像、光学全息显示、光自旋霍尔效应和涡旋光束等^[9-20]. 此前, 本领域多篇综述文章已经讨论了线性光学系统中超构表面光学器件的进展^[6-8]. 当前, 有关超构表面的研究逐渐转向以实际应用为主的相关领域. 例如, 利用超构表面可实现高效的全息成像^[21-24]、高数值孔径透镜^[25-27]、产生和测量光的自旋和轨道角动量^[28,29]. 众所周知, 将多种光学功能集成于微小尺寸的单一芯片上在光电集成领域是迫切需要解决的问题, 而光学超构表面的出现为未来设计新型光学元件提供了很好的契机. 另一方面, 非线性光学效应在频率转换、光开关设计等领域有着重要应用, 因而对于进一步拓展超构表面功能集成能力将起到至关重要的作用^[30,31].

[†] 通信作者. E-mail: ligx@sustc.edu.cn

非线性光学研究已经涵盖了从X-射线到微波波段, 在本综述中, 我们主要总结了近年来从可见光到红外光波长范围内的有关非线性光学超构表面研究的最新进展, 特别是非线性光学频率转换过程. 首先, 简单介绍了非线性光学频率转换的基本原理, 讨论了非线性超构功能基元的材料选择和对称性设计原理; 然后, 总结了非线性手性光学超构表面的设计思路; 介绍了非线性光学相位精确控制的新方法, 讨论了其在非线性光学自旋轨道相互作用、光束整形和波前调控中的应用; 最后展望了非线性光学超构表面所面临的挑战及未来发展前景.

2 非线性光学超构表面

在电偶极近似下, 材料对光的电场的非线性响应可以用材料的非线性极化强度来描述, 其表达式可描述为^[30,31]: $P^{NL} = \epsilon_0(\chi^{(2)}E^2 + \chi^{(3)}E^3 + \dots)$, 其中 ϵ_0 是真空介电常数, E 是电场, $\chi^{(2)}$ 和 $\chi^{(3)}$ 分别是二阶和三阶非线性极化率. 通过泵浦光的倍频、和频、三倍频(SHG和THG)和四波混频(FWM)等过程(图1), 可以在非线性光学材料中产生新频率的光. 这些过程已广泛应用于商用的激光系统中. 其中, 二倍频和三倍频过程是二阶非线性光学参量过程, 可以获得频率为基波频率的二倍或者三倍的非线性光波. 而四波混频是另外一种三阶非线性光学参量过程, 对非简并四波混频而言, 三个具有不同能量的基波光子在与非线性物质相互作用的过程中可以产生新频率的光子. 四波混频在光相位共轭^[32]、光开关和产生频率梳等领域具有广泛的应用^[33].

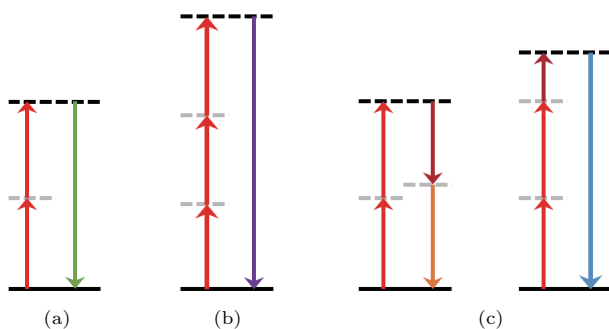


图1 非线性光学过程中的能级示意图 (a) SHG; (b) THG; (c) 非简并FWM; 实线和虚线分别表示电子能级以及材料极化对应的虚能级

Fig. 1. Schematic energy diagrams of important nonlinear optical processes: (a) Secondharmonic generation (SHG); (b) third harmonic generation (THG); (c) nondegeneratefour-wave mixing (FWM).

本部分将首先讨论表面等离激元共振结构中的非线性光学现象, 然后进一步扩展到非线性光学超构材料^[34,35]. 在非线性等离激元共振和超构表面器件的研究中, 一个关键问题是如何通过调控超构功能基元的排列、构成材料和几何形状来提高非线性光学过程的效率.

2.1 非线性光学材料的选择

等离激元超构材料的非线性效率应由超构原子的宏观极化率和构成材料在微观尺度下的极化率所共同决定. 利用局域表面等离激元共振, 可以极大地增强超构功能基元附近的电磁场强度. 由于局域电磁场强度对超构单元的几何形状极其敏感, 因此可以通过设计不同几何形状的超构功能基元来调控等离激元超构表面的非线性光学响应(图2). 由于光在三维等离激元超构材料的传播过程中, 能量会显著地被金属结构所散射、吸收而产生强烈的衰减, 因而限制了其在光频率转换过程的实际应用. 为解决此问题, 人们在不断探索各种物理机理以实现超构功能基元上非线性光学效率的提高. 例如, 利用等离激元共振的超构功能基元中的电、磁共振已被证明可用于提高倍频^[36-49]、三倍频^[50-57]和四波混频^[58-64]的效率. 此外, 通过将有机和无机半导体材料与等离激元共振超构单元结合构造出复合型超构表面, 也可极大地提高非线性光学效率^[55,65]. 例如, 将多重量子阱半导体异质结构的亚带间跃迁与超构功能基元的等离激元共振效应进行耦合, 可将金属/多重量子阱复合超构表面上产生的倍频效率比量子阱本身提高几个数量级^[65,66]. 另一种增强超构表面上非线性光学效率的方法是将超构表面与具有高的三阶非线性极化率的 π 共轭有机聚合物进行集成. 相比于单纯的金属超构表面, 这种金属有机复合超构表面可将产生三倍频的效率提高两个数量级^[55]. 以上提高非线性光学效率的方法主要通过增强超构功能基元的表面附近的局域光场, 实现在其邻近增益材料中产生高效率的非线性光学相互作用.

然而, 等离激元共振超构表面亦具有明显的缺点: 其较低的损伤阈值, 在强脉冲激光照射下易于损坏, 这极大地限制了其非线性光学转换效率的进一步提高. 为了避免这一限制, 一些课题组提出由电介质或半导体材料制成的非线性超构表面, 例如, 利用硅超构单元中电^[67]和磁的米氏共振, 可在硅基超构表面上(图2(b))产生高效率的三倍频信号^[68]. 另外, 在具有三阶极化率的非线性光学材料

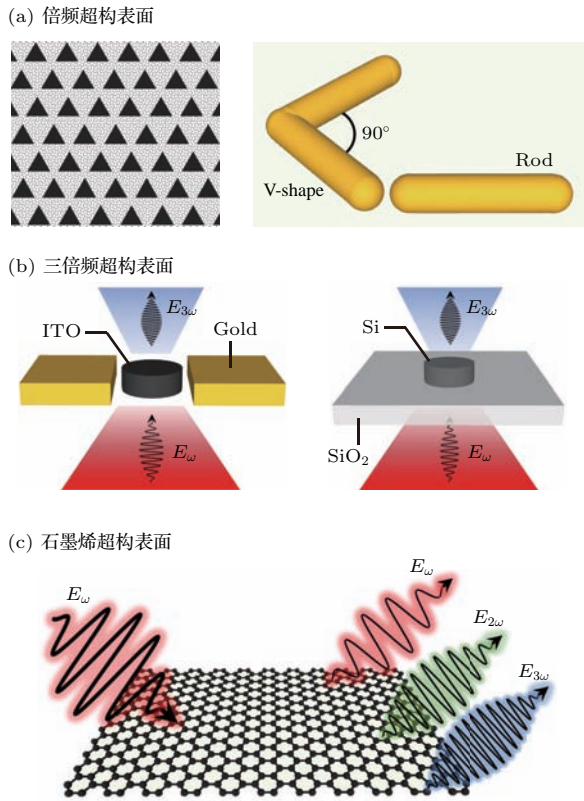


图2 非线性光学超构表面 (a) 等离子元共振超构表面上产生的SHG, 超构功能基元具有反演对称性破缺的几何结构 [43,46]; (b) 基于等离子元共振(左)和介质(右)超构表面可产生增强的THG [53,67]; (c) 石墨烯纳米岛上产生电致可调谐SHG和THG辐射 [75], 其中石墨烯膜单层结构即为超构功能基元; ω , 频率; E , 电场; ITO, 氧化铟锡

Fig. 2. Nonlinear photonic metasurfaces: (a) Examples of plasmonic metasurfaces for second harmonic generation (SHG) [43,46]; (b) plasmonic (left) and dielectric (right) metasurfaces for third harmonic generation (THG) [53,67]; (c) electrically tunable SHG and THG in graphene nanoislands [75]. ω , frequency; E , electric field; ITO, indium tin oxide.

中, 可以将外部电场与基波进行和频从而产生倍频光. 这种与三阶极化率相关的非线性效应称为电致倍频, 其物理机理不同于传统的与二阶极化率相关的倍频过程 [69,70]. 由于介质的空间对称性对三阶极化率的限制要比对二阶极化率的少, 所以电致倍频效应为电光非线性超构表面的发展提供了新的思路. 目前, 相关研究小组使用基于单层 WSe_2 的晶体管结构(文献 [71—74]) 中激子电荷效应, 可获得具有较大调制深度的电致倍频效应. 此外, 通过掺杂石墨烯超构表面 [75] 和纳米石墨烯表面 [76](图 2(c)) 上电可调谐等离子元共振效应, 可实现石墨烯结构与基波的强相互作用, 进而可高效地产生倍频和三倍频信号. 可以预测, 电致倍频效应和超构功能基元中的等离子元共振效应为可调

谐非线性超构表面器件的研发开辟出了新的思路. 除非线性谐波辐射外, 等离子元共振超构表面亦可用于实现四波混频过程 [58—64], 例如, 通过金属介电金属纳米光学微腔中的四波混频可实现非线性光学负折射效应 [60].

2.2 对称性

对称性在非线性谐波辐射中起着重要的作用. 在非线性光学中, 频率转换过程中的选择定则不仅由材料的化学成分所决定, 而且由晶体材料的空间对称性决定 [30,31]. 目前多数的研究所涉及的超构功能基元主要是多晶(金属)和无定形(聚合物)材料, 而不是单晶材料制成, 所以本文中我们不讨论微观晶体对称性对非线性光学响应的影响, 关于非线性光学的微观选择定则的研究在文献 [30,31] 有着更深入的讨论. 与微观对称性的选择定则相似, 超构表面的宏观对称性也在非线性光学过程中起着重要作用 [77,78]. 超构表面的宏观对称性由单个超构功能基元的局域对称性和超构功能基元晶格的全局对称性所共同决定. 因此, 我们可以通过合理设计超构功能基元的几何结构来调节其非线性光学响应. 例如, 由各向同性材料构成的超构功能基元上亦可产生二阶非线性过程(例如倍频), 尽管根据微观选择规则, 二阶非线性过程在各向同性材料中原则上是被禁止的. 表面等离子元共振超构表面上每个超构单元的光学响应对结构尺寸、形状和周围介电环境都非常敏感, 因此超构功能基元的局域对称性对于倍频的产生尤为重要. 因此, 针对具有局域反演对称性破缺的等离子元共振超构表面, 比如 U 形共振器 [36] 和 L 形超构功能基元等 [37,40], 有关倍频效应已经被广泛地研究. 在这些体系中, 结构表面对倍频的贡献是最重要的, 因此倍频对表面缺陷和粗糙度也会非常敏感. 当超构功能基元的尺寸不在深亚波长范围时, 需要考虑由延迟效应引起的与对称性相关的多极子的贡献 [37]. 此外, 通过对超构表面的局域和全局对称性的调控, 可以有效地操控倍频辐射的相位、振幅和偏振特性. 例如, 通过加入不产生倍频信号的无源超构单元, 可增强非中心对称的超构功能基元的倍频信号 [40]. 基于类似的概念, 通过控制邻近超构功能基元的集体相干辐射效应或单个超构功能基元的多级谐振效应 [46], 可极大地提高等离子元共振超构表面产生倍频的效率. 这些关于对称性的考虑也适用于

其他二阶非线性光学过程中,例如和频或参量下转换过程.

非线性光学研究中较多使用的是线偏振的泵浦源.然而在光的自旋轨道耦合相互作用这一新研究领域,与光子自旋相关的圆偏振态具有相当重要的作用.其实,在早期的非线性光学研究中,人们已经发现在圆偏振光泵浦条件下,非线性谐波产生的过程也遵循特定的选择定则,这些选择定则与非线性谐波辐射的级次和晶体的旋转对称性相关^[77,78].对于在非线性光学晶体中传播的圆偏振基波,入射光子和所产生的非线性谐波光子的自旋总角动量是不守恒的,自旋角动量的差值必须由晶体来提供.因此非线性晶体的旋转对称性具有重要的作用.对于 m 重对称的晶体,从晶体向产生的谐波光子传递的角动量 p 是旋转对称阶数的整数倍,即 $p = m\hbar$ (其中 \hbar 是约化普朗克常数).对于第 n 次非线性谐波辐射,入射光子的自旋角动量为 $n\hbar$,而产生的光子具有 $+\hbar$ (与入射光子相同的自旋)或 $-\hbar$ (与入射光子相反的旋转)的自旋角动量.因此,允许产生谐波辐射级数为 $n = l(m \pm 1)$,其中 l 是任意整数, $+$ 或 $-$ 符号对应于所生成的谐波与入射基波分别具有相同或相反的圆偏振态.这一选择定则已成功应用于具有各种旋转对称性的非线性光学超构表面研究中^[43,55].例如,具有三重和四重旋转对称性的超构表面上可产生与基波偏振态相反的圆偏振的倍频和三倍频信号^[43,55].有趣的是,圆偏振态的基波泵浦下,具有三重旋转对称性的结构不能产生三倍频^[43],然而在线偏振态的基波泵浦下却可以实现.

2.3 超构表面的优势

在非线性光学材料的设计过程中,相比于三维超构材料,二维元件的设计限制较少^[35,79-81].如同三维超构材料,只要能够选择合适的亚波长超构功能基元,超构表面可用于同时调节光的线性和非线性响应.通常情况下,相位匹配^[79-86]对于非线性谐波辐射和四波混频是至关重要的,但是对于超构表面而言对这一条件的要求可以大大放宽,因为有效的非线性光学过程仅发生在亚波长厚度的材料层中.在这种情况下,相位匹配条件的地位不再像在常规的非线性光学晶体中那样重要^[30,31].由于超构功能基元允许我们在亚波长尺度下进行局域控制非线性光学频率转换,并能够调制出射

非线性光的相位、振幅和偏振等参量,所以在非线性功能集成方面,超构表面已超越了过去研究中仅包含均匀排列的等离激元共振结构的传统超构材料.

3 手性非线性光学

如果物体的镜像不能与其本身重叠,我们就可以称物体具有手性特征.长期以来,人们已经广泛地使用手性光学技术来表征化学表面、生物分子和光学晶体的对称性.手性物质对左旋和右旋圆偏振光之间相位和吸收的差异表现为材料的光学活性和圆二向色性这两种手性光学特性.通常情况下,天然材料的手性光学效应是相当弱的^[87,88].利用人工手性超材料中的强等离激元共振效应,为获得强的手性光学响应开辟了新的途径^[89-97].手性超构材料已被用于实现光学负反射^[89]、红外圆偏振器^[93]和高灵敏度生物传感等^[94].利用对物理界面对称性的高度敏感性,基于倍频的非线性手性光学技术已经成为探测化学表面和生物分子手性的重要手段^[98-101].与线性圆二向色性类似,不同圆偏振态的基波产生的倍频信号的效率不同,由此可定义为非线性圆二向色性(图3(a)).近来,等离激元共振超构材料中的非线性手性光学效应引起了广泛的关注.在许多情况下,文献所报道的非线性手性光学响应一般是与下列两种性质密切相关:第一种源于超构材料(图3(b))的三维性质引起的内禀线性手性光学效应;另外一种来自于基波的倾斜入射引起的外禀结构手性^[63,102-107].

非线性手性光学超构表面在产生非线性光学的圆二向色性的研究中引起了广泛关注.它们不仅比三维超构材料更容易加工制备,而且更易与手性化学分子的物理界面相容.当然,超构功能基元两侧的不对称介电环境可以引起线性手性效应光学响应,但是线性光学手性通常很弱,所以在非线性光学过程中难以得到体现.下文中我们总结了近期在等离激元共振超构表面上实现非线性手性光学效应的研究中所取得的进展.例如通过调整超构功能基元之间的耦合效应,在具有手性的超构表面上实现了非线性倍频圆二向色性,其 CD 值高达52%^[108](如图3(c);其中倍频圆二向色性定义为 $(I_{LCP}^{2\omega} - I_{RCP}^{2\omega}) / (I_{LCP}^{2\omega} + I_{RCP}^{2\omega})$,其中 ω 是入射光的频率, I_{LCP} 和 I_{RCP} 分别是左和右旋圆偏振光的倍频信号的强度).利用金三角形等离激元共

振结构^[109]组成的非线性超构表面,能产生CD值高达37%的倍频圆二向色性信号,可用于非线性光学手性水印技术(图3(d)).此外,具有三重(trisceli型,图3(e))和四重(gammadion型)旋转对称性的非手性超构表面被证明可用于产生极强的非线性手性光学效应,测量所得的倍频圆二向色性和三倍频圆二向色性值分别高达98%和79%^[110].与之前的手性超构表面观察到的非线性圆二向色性效应相比^[108-110],垂直入射的基波在线性光学范畴下

几乎不产生圆二向色性.通过以上研究我们可以看出,要实现非常强的非线性光学圆二向色性,三维超构材料并不是必需的.此外,对于超构材料,将外禀手性与强烈的非线性光学效应相结合,可观察到极强的非线性光学活性^[111],例如U形超构表面上产生的非线性光学活性比碘酸锂晶体高出数百倍.具有强非线性手性光学效应的超构表面可为设计新型的手性光电子器件和手性生物传感器件提供新的发展方向^[99,100].

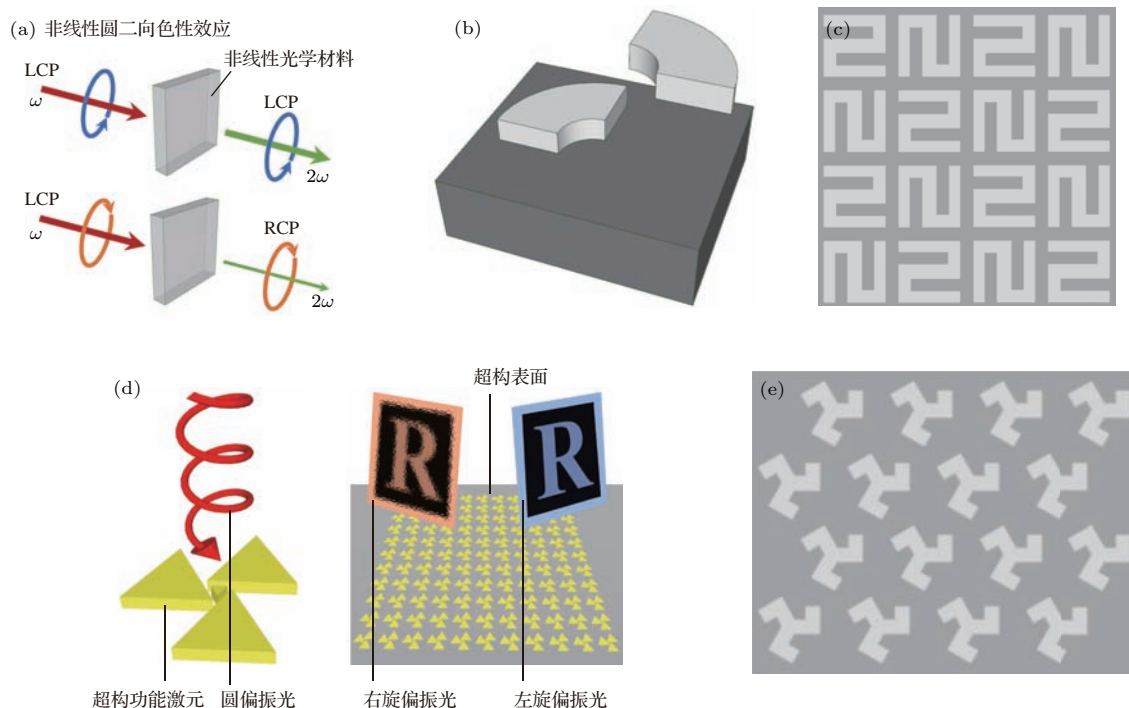


图3 非线性光学圆二向色性 (a) 在非线性手性材料中产生SHG的非线性圆二向色性的示意图(ω 为频率),例如,左旋圆偏振(LCP)强于右旋圆偏振(RCP)基波所产生的倍频信号; (b) 由于三维镜像的对称性破缺,三维非线性手性超构单元同时显示出强的线性和非线性手性光学响应^[107]; (c) 超手性光学超构表面示意图,其产生的线性圆二向色性很弱但是非线性手性效应非常强^[108]; (d) 用于非线性手性水印的等离子体共振超构表面:左右旋偏振光基波泵浦下获得倍频图像L/R,类似超构表面可用于将图像编码^[109]; (e) Trisceli型手性超构表面,基波在垂直入射时显示出极强的倍频光手性光学效应^[110]

Fig. 3. Nonlinear optical circular dichroism: (a) Schematic illustration of nonlinear circular dichroism for second harmonic generation (SHG) in a bulk nonlinear chiral material; (b) three-dimensional nonlinear chiral meta-atom displaying simultaneously strong linear and nonlinear chirality due to its broken 3D mirror symmetry^[107]; (c) scanning electron microscopy image of a chiral metasurface that gives rise to very strong nonlinear but weak linear circular dichroism^[108]; (d) a plasmonic metasurface for nonlinear chiral watermarking^[109]; (e) trisceli-type chiral metasurface showing strong SHG chirality for normal light incidence^[110].

4 非线性光学相位设计

常规介质中折射率的色散阻碍了基波向非线性谐波的有效转化,通过在人工微结构中引入非线性极化率的相位调制可以克服这一困难,因为用这种方式可以补偿由于色散效应导致基波和非线性谐波之间的相位失配,从而使非线性频率转化效率

获得显著提高^[30,31].因此,在非线性光学研究中,在局域空间上能控制非线性光学极化率相位的有效设计方法是非常令人期待的^[79-81].此前,最成功的设计空间非线性相位的方法是准相位匹配技术,例如,在铁电材料中的周期性电极化(即利用强电场使材料中的畴向发生定向偏转)已被广泛用于实现准相位匹配,从而获得高效率的倍频和参量下转换过程等^[82,83].

虽然传统的准相位匹配方案已经被成功地应用,但这一技术也有其缺陷.例如,电极化技术仅能在非线性极化率中用于产生二元相位状态(0和 π).然而,这种二进制相位态可能导致一些并不希望的非线性光学过程出现.此外,由于极化铁电材料的周期单元通常比光的波长大很多,这可能导致产生不需要的衍射级次.如果能克服二元相位和大的单元尺寸这两个问题,将可以通过准相位匹配技术实现更效率的非线性光学效率以及更好地控制非线性光学过程.而利用非线性超构表面可以在空间上连续地调控非线性光学极化率的相位(从0到 2π),它的出现为我们解决上述问题提供了新的

方案.

4.1 超构表面的人工极化

在非线性材料上用电极化的方式实现二元相位的概念最近已经被应用于设计非线性光学超构表面.例如,对于U形超构功能基元^[45],可以简单地通过反转U形结构的开口方向(图4(a))来使二阶非线性极化率携带0, π 的相位.这一概念可用于设计基于二元相位掩模的超构表面,从而可以控制倍频光的衍射和聚焦效应^[45].然而,对于非线性过程中更复杂的光束操控,在空间上能进行连续的相位调控是大家迫切希望看到的技术.

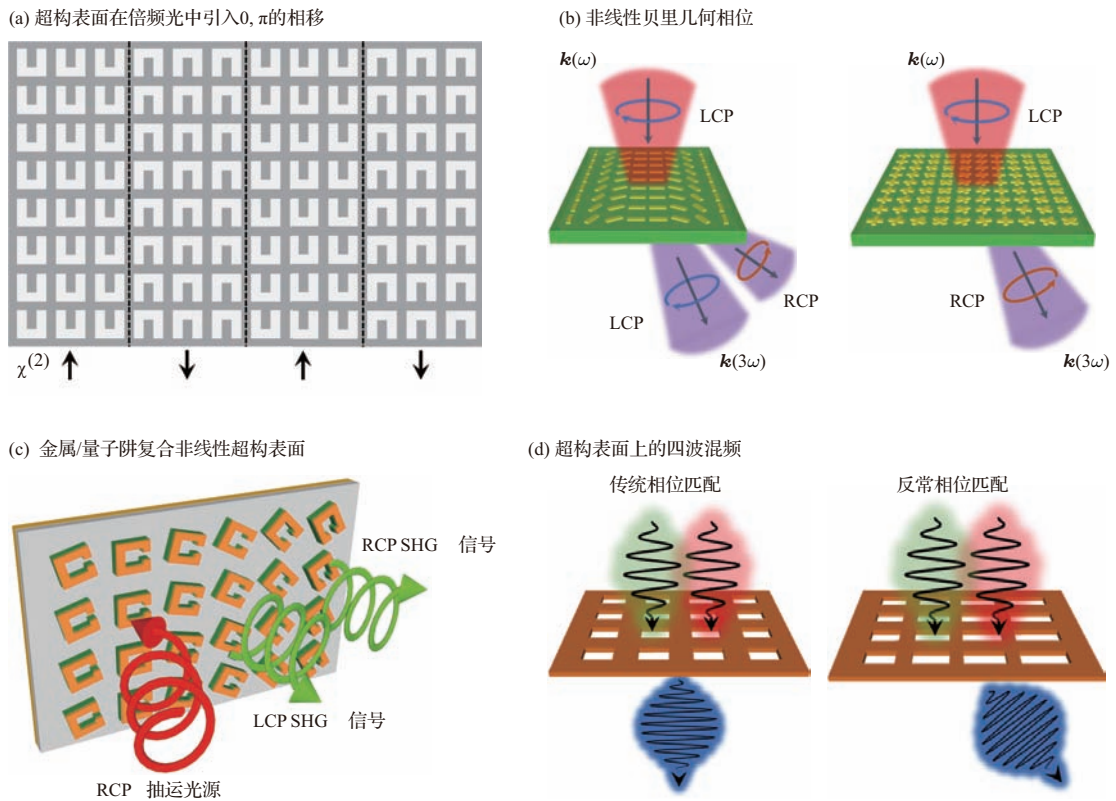


图4 用于相位控制的非线性光学超构表面 (a) U形超构功能基元组成的非线性光学超构表面^[45]; (b) 基于贝里几何相位超构功能基元的非线性超构表面可用于THG产生,超构功能基元的空间方向变化可对三倍频信号引入连续的梯度相位,从而导致THG光束的偏转;由 C_2 对称的超构功能基元所构成的超构表面可以将左旋圆偏振(LCP)和右旋圆偏振(RCP)的三倍频信号分别衍射到第一和第二级方向,而使用具有 C_4 对称的超构功能基元构成的超构表面仅可以将具有反向圆偏振态的三倍频信号衍射到第一级方向^[116]; (c) 基于贝里几何相位的金属/量子阱复合超构表面产生圆偏振倍频效应,并能带间跃迁与等离激元共振耦合可产生高效率的倍频辐射^[117]; (d) 通过调整超构功能基元的共振条件,对等离激元共振超构表面上的FWM过程进行相位控制^[118]; $\chi^{(2)}$, 等效非线性二阶极化率; ω , 频率; \mathbf{k} , 波矢

Fig. 4. Nonlinear metasurfaces for phase control: (a) Nonlinear photonic metasurface consisting of split-ring resonator meta-atoms^[45]; (b) THG from a nonlinear metasurface based on geometric Berry phase meta-atoms, the spatially varying orientation of the meta-atoms results in a continuous phase gradient for the THG signal, leading to a deflection of the nonlinear beam^[116]; (c) metal/quantum-well hybrid metasurface exhibiting a Berry phase for SHG^[117]; (d) phase control of FWM in plasmonic metasurfaces^[118]. $\chi^{(2)}$, effective nonlinear second-order susceptibility; ω , frequency; \mathbf{k} , wave vector.

4.2 非线性贝里几何相位

在线性光学系统中, 入射圆偏振光与各向异性的超构功能基元相互作用, 散射光中具有与入射光手性相反的圆偏振光并且携带了与超构功能基元的旋转角度有关的几何相位^[112,113], 即 Pancharatnam-Berry 几何相位(也称为贝里几何相位). 早期, 以色列科学家使用亚波长光栅实验验证了这一概念^[114,115]. 贝里几何相位的主要优点是它不依赖于结构的尺寸、光学共振或固有的材料色散. 类比于线性光学的贝里几何相位, 我们在超构表面上所引入的非线性光学几何相位已被证明能够连续控地局域控制有效非线性极化率的相位^[116] (图 4(b), (c)).

如文献^[116]中所描述, 可以通过简单的坐标变换来理解材料非线性极化率中的贝里几何相位. 对于沿着超构功能基元的旋转对称轴方向传播的圆偏振态基波, 局域的有效非线性偶极矩(极化强度)可以表示为 $\mathbf{P}_\theta^{n\omega} = \alpha_\theta(\mathbf{E}^\sigma)^n$, 其中 α_θ 是超构功能基元的第 n 次谐波的非线性极化率张量, θ 为超构原子的方位角, \mathbf{E}^σ 为基波的电场强度, $\sigma = \pm 1$ 分别表示左旋或右旋圆偏振. 对于与基波圆偏振态的旋向相同或相反的非线性谐波辐射, 超构功能基元的非线性极化率可以分别表示为 $\alpha_{\theta,\sigma,\sigma}^{n\omega} \propto e^{(n-1)i\theta\sigma}$ 和 $\alpha_{\theta,-\sigma,\sigma}^{n\omega} \propto e^{(n+1)i\theta\sigma}$, 从而得出非线性极化率的相位因子为: $(n-1)i\theta\sigma$ 和 $(n+1)i\theta\sigma$, 可见这是仅取决于超构原子旋转的几何方位角.

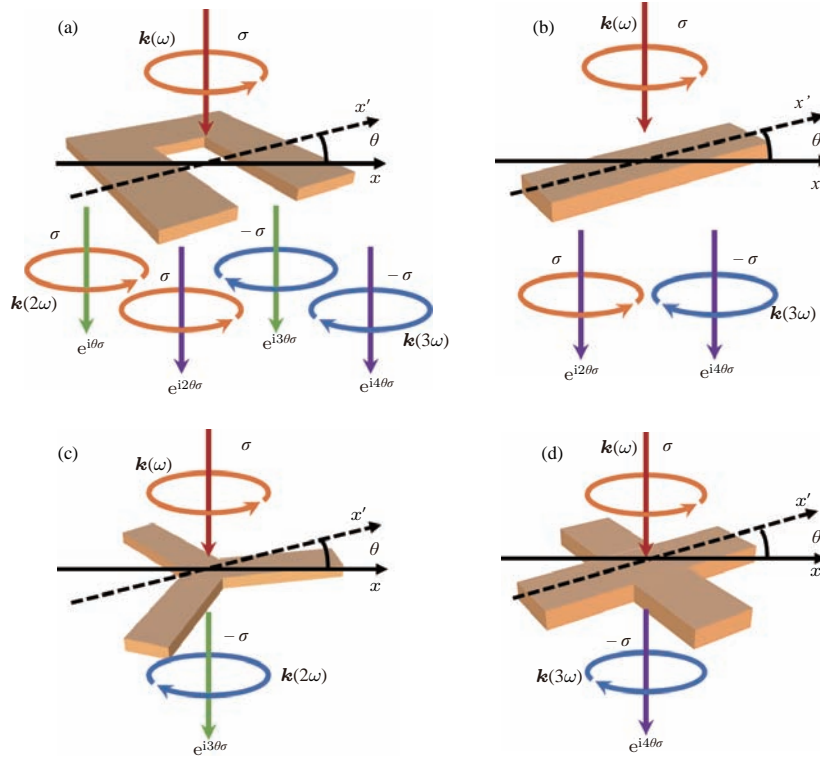


图 5 超构功能基元对应的非线性光学几何相位. 具有一、二、三和四重旋转对称性 (C_1 — C_4) 的非线性几何相位超构功能基元, 第 n 次非线性谐波对应的几何相位为 $(n-1)\theta\sigma$ 或 $(n+1)\theta\sigma$ (a) C_1 对称超构功能基元上产生的 SHG, ($n=2$) 对应的几何相位为 θ 和 3θ (绿色箭头), THG, ($n=3$) 对应的几何相位为 2θ 和 4θ (紫色箭头); (b) C_2 超构功能基元上禁止产生倍频信号, 与基波的圆偏振相同和相反的 THG 光对应的几何相位为 2θ 和 4θ ; (c) 在 C_3 超构功能基元中, 在圆偏振基波泵浦下, 三倍频辐射是被禁止的; 倍频光圆偏振态与基波相反, 对应的几何相位为 3θ ; (d) 在 C_4 超构功能基元中, 无法产生 SHG, THG 的圆偏振态与基波手性相反, 对应的几何相位为 4θ

Fig. 5. Nonlinear geometric phase elements Nonlinear phase elements with one-, two-, three- and four-fold rotational symmetry (C_1 — C_4): (a) The relative phases of the SHG, ($n=2$) waves from a C_1 symmetric meta-atom are θ and 3θ (green arrows), the relative phases of the THG, ($n=3$) waves are 2θ and 4θ (purple arrows); (b) SHG from a C_2 symmetric structure is forbidden, hence only the relative phases for the THG are observed, 2θ and 4θ ; (c) for a C_3 meta-atom the THG is forbidden, and the relative phase of SHG, with opposite circular polarization compared with the incoming wave, is 3θ ; (d) SHG from C_4 meta-atoms is forbidden, and the relative phase of the THG, with opposite circular polarization, is 4θ .

图5总结了圆偏振基波泵浦下非线性谐波辐射的选择定则, 具有 m 重旋转对称的单个超构功能基元仅允许特定级数的非线性谐波辐射. 因此通过选择超构功能基元的旋转对称性, 可以获得特定圆偏振态的非线性谐波辐射. 通过进一步旋转超构功能基元, 可以实现谐波辐射的非线性贝里几何相位从 $0-2\pi$ 连续可调(表1). 更重要的是, 具有旋转对称性 ($m \geq 3$) 的超构功能基元在线性光学中具有各向同性响应. 因此, 为得到某些谐波级次而调整超构功能基元的方位角进而控制的非线性相位的做法, 并不影响基波的线性光学响应的均匀性. 因此, 具有旋转对称性的超构功能基元的线性和非线性光学响应可以相互分离. 可以说, 基于贝里几何相位的超构表面为控制非线性光辐射提供了一种强大而简单的方法.

表1 非线性贝里几何相位(非线性谐波级次和超构功能基元的旋转对称性决定了谐波辐射过程中的非线性几何相位. n , 谐波振荡级数; C_1-C_4 , 一到四重旋转对称性的超构功能基元; θ , 超构功能基元相对于参考系的旋转角; σ , 光的圆偏振态)

Table 1. Nonlinear geometric Berry phase (n , order of harmonic generation; C_1-C_4 , one- to four-fold rotational symmetry of the meta-atom; θ , relative orientation angle of the meta-atom with respect to the reference system; σ , circular polarization state of the light).

谐波阶数	σ 的符号	C_1	C_2	C_3	C_4
$n = 1$	+				
	-	$2\theta\sigma$	$2\theta\sigma$		
$n = 2$	+	$\theta\sigma$			
	-	$3\theta\sigma$		$3\theta\sigma$	
$n = 3$	+	$2\theta\sigma$	$2\theta\sigma$		
	-	$4\theta\sigma$	$4\theta\sigma$		$4\theta\sigma$
$n = 4$	+	$3\theta\sigma$		$3\theta\sigma$	
	-	$5\theta\sigma$			
$n = 5$	+	$4\theta\sigma$	$4\theta\sigma$		$4\theta\sigma$
	-	$6\theta\sigma$	$6\theta\sigma$	$6\theta\sigma$	

此前, 我们通过具有三重和四重旋转对称性的超构功能基元组成的具有相位梯度的超构表面(图5(c), (d)), 从实验上已证明了可以连续控制倍频和三倍频辐射的非线性几何相位. 在这两种情况下, 倍频和三倍频的圆偏振态与基波的相反, 并且这两种非线性辐射分别具有 $3\theta\sigma$ 和 $4\theta\sigma$ 的非线性几何相位. 此外, 也可以使用具有较低旋转对称性的超构功能基元来获得非线性几何相位. 例如, 具有两重旋转对称性的纳米棒产生的三倍频的圆偏振分别与基波相同或者相反, 对应的非线性几何相位

分别为 $2\theta\sigma$ 和 $4\theta\sigma$ ^[116] (图5(b)). 类似地, 具有一重旋转对称性的U形超构功能基元, 可用于产生圆偏振态与基波相同或相反的倍频, 分别对应 $\theta\sigma$ 和 $3\theta\sigma$ 的贝里几何相位^[117] (图5(a)). 总体来看, 我们可以通过简单地旋转超构功能基元的方向, 实现对不同级次的非线性谐波辐射的贝里几何相位的连续可调.

4.3 非线性相位的突变

光通过线性超构表面时引入突变相位可用于操控基于线偏振基波引起的非线性谐波辐射和四波混频信号的非线性相位^[118]. 通过精确调整矩形纳米孔^[118] 或者纳米腔超构原子结构的长宽比, 可以实现对四波混频信号的非线性相位在 $0-2\pi$ 的连续调控(图4(d)). 虽然类似方法也可以对非线性谐波辐射中的光辐射相位进行连续控制, 然而这种方法的缺点是: 非线性极化率的相位和幅度同时依赖于每个超构功能基元的大小和形状, 不利于非线性光学器件复杂功能的设计.

4.4 非线性动态贝里相位

到目前为止, 我们讨论的非线性光学相位主要是与超构功能基元的几何性质有关. 其实, 旋转的超构表面中的时间效应也是相当有趣的. 我们首先回顾线性光学中的动态贝里几何相位. 具有自旋角动量 $\sigma\hbar$ 的光 ($\sigma = \pm 1$)^[119], 分别对应于左旋或右旋圆偏振态, 当其通过以角频率 Ω 旋转的半波片后, 其自旋会产生反转. 在这个过程中, 光波叠加了一个时间依赖的动态贝里几何相位 $\pm 2\Omega t$, 其中 t 是时间. 在这一过程中, 动态相位的变化会导致透射光产生 $\pm 2\Omega$ 的频移, 正号或负号表示相对于与基波的圆偏振光的旋转方向相同或者相反^[120-125], 该频移通常称为旋转多普勒频移.

尽管在线性光学中人们已经成功证明了动态贝里相位的存在, 研究者也在不断地探索这一现象在非线性光学过程中是否亦有对应. 在非线性光学范畴下, 根据旋转超构表面上非线性谐波辐射中的自旋角动量守恒定律和对称选择定则, 本文作者与合作者详细描述了非线性动态贝里相位的产生机理^[126]. 相关理论指出非线性谐波的动态贝里相位等于 $-(n \mp 1)s\sigma\Omega t$, 其中 $s = \pm 1$ 表示超构表面的旋转方向, \mp 符号对应于产生的 n 次谐波与基波具有相同或相反的圆偏振态. 实验上, 通过旋转具有三重旋转对称性的 β 硼酸钡晶体所产生的倍频信

号可观察到非线性旋转多普勒效应^[126]. 我们有理由认为, 在旋转超构表面产生的非线性谐波中可以以相同的方式产生旋转多普勒效应. 虽然关于超构表面的非线性光学相位的研究仍处于初期阶段, 但是近期的研究结果充分体现了超构表面在调控非线性光学过程的巨大潜力.

5 非线性光的波前调控

光的波前调控已经成功应用于超分辨率成像和高维度光子纠缠等领域. 虽然诸如透镜、衍射光学元件和空间光调制器等常规光学元件已被广泛用于光的波前整形, 然而, 这些常规的光学元件的厚度或像素尺寸通常远大于光的波长, 这不可避免地限制了光电子器件的进一步小型化. 相比之下, 具有亚波长分辨率的超薄光学超构表面在光的波前整形方面有着卓越的表现. 例如, 使用超构

表面可产生光学涡旋光束和艾里光束 (Airy beam) 等^[127,128]. 在可见光到近红外光波段, 等离子共振和介电超构表面已用于计算全息图像显示的研究^[13,14,19,21-24]. 超薄超构表面全息器件的光学效率已经高于 80%, 这已表明其具有很大的实际应用潜力^[21]. 此外, 通过单次的电子束曝光过程, 可以制备出具有对光自旋依赖的贝里几何相位涵盖 0 到 2π 范围的超构功能基元^[21,24]. 因此, 从制造成本的角度来看, 超构表面全息器件的成本要远低于具有相同相位阶数的传统衍射光学元件.

将用于线性光波前调控的相关技术推广到非线性光学过程, 并将它们与非线性光学中的概念结合起来, 将为设计集成型的超快光学器件开辟新途径. 例如, 利用超薄超构表面实现的非线性光学频率转换过程, 可为波前整形和模式转换提供更大的自由度.

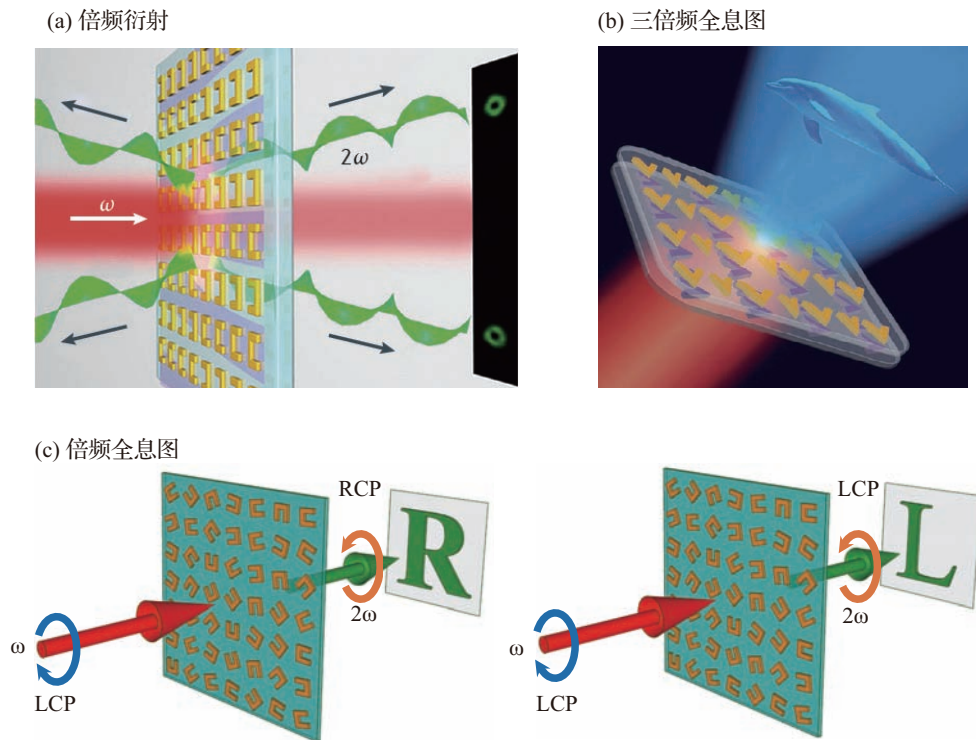


图 6 非线性光束整形和全息成像 (a) 由 U 形超构功能基元构成的超构表面上的倍频衍射, 控制 U 形结构的开口取向, 可以在材料的非线性极化率中引入 0 或 π 的离散相位^[137]; (b) 由 V 形超构功能基元构成的超构表面所产生的三倍频全息图^[138]; (c) 圆偏振基波泵浦下产生的非线性超构表面全息图, U 形超构功能基元的不同取向决定了产生不同贝里几何相位的非线性极化率, 这种技术利用不同圆偏振态的倍频光的相位不同, 从而可以将不同非线性图像编码在同一个超构表面上^[139]. ω , 频率; LCP, 左旋圆偏振态; RCP, 右旋圆偏振态

Fig. 6. Nonlinear beam shaping and holography: (a) Diffraction of second harmonic generated (SHG) signals from a metasurface made of split-ring resonator meta-atoms^[137]; (b) artistic depiction of a nonlinear THG hologram obtained using V-shaped meta-atoms^[138]; (c) nonlinear metasurface hologram for circularly polarized light, the local Berry phase in the nonlinear polarization results from the orientation of the split-ring resonator meta-atoms^[139]. ω , frequency; LCP, left circular polarization; RCP, right circular polarization.

5.1 二元非线性相位与光束整形

非线性光学领域中最著名的波前整形器件之一便是相位共轭反射镜,其主要功能是可以将入射光沿原入射方向反射回去,并且反射光与入射光与具有共轭相位^[129,130].自从相位共轭反射镜的概念提出之后,人们对非线性光束的波前整形的研究也取得了越来越多的进展.例如,通过电场极化方法对铁电晶体进行二元相位编码,实现对倍频光的非线性拉曼-奈斯衍射的控制^[131,132].利用非线性微结构材料中的二元非线性相位也可以产生非线性艾里光束^[133,134],这种光束在光镊和弯曲的等离子体通道的产生方面具有重要的应用.在金属有机复合光学微结构上可利用二元相位实现对 $\chi^{(3)}$ 的调制,从而产生三倍频涡旋光束^[135].此外,通过将U形超构功能基元与量子阱结合,可以实现两个亚波长光源的相干叠加进而可用于操控远场倍频辐射的偏振态及传播路径^[136].近来,基于U形超构功能基元的二元相位特性,非线性超构表面已被用于实现倍频信号的光学涡旋和艾里光束^[137](图6(a)).以上讨论的非线性光束整形器件中仅使用了二阶相位,因此会引入非线性光学极化率中高阶的傅里叶成分,从而将不可避免地产生高阶光衍射效应等,进而可能影响光束整形的效果和效率.

5.2 全息成像中的连续非线性相位

非线性超构表面的一个的强大应用是非线性全息成像.利用最近有关非线性超构表面的贝里几何相位和突变相位调控的研究结果,可实现对非线性谐波辐射和四波混频信号进行在 $0-2\pi$ 的连续相位控制^[116-118].非线性相位的连续调控不仅能够更好地控制非线性光束的辐射分布,还可以解决二元相位元件中的孪生图像问题.目前,人们已经从实验上验证了许多有趣的光学现象,例如:光的非线性自旋轨道相互作用、光束偏转和聚焦效应等.将非线性超构表面的概念与成熟的全息成像技术相结合,可以通过单个超构表面将一束基波转换为多个非线性光束或图像^[138,139](图6(b), (c)).此外,使用非线性几何相位元件,可实现自旋和波长多路复用编码技术的全息成像.这种与光自旋相关的非线性超构表面全息成像可为全息复用成像提供无光色散和无信号串扰的新解决方案,在多维光学数据存储和光学加密领域极具应用前景.

6 结束语

本文综述了近年来非线性光学超构表面及其各种光学功能的快速发展现状.可以看出,通过调控超构功能基元的局域和全局对称性,人们能够以前所未有的自由度对光学超构表面上非线性谐波辐射和四波混频过程进行有效控制.超构表面上所引入的非线性贝里几何相位和非线性突变相位,可用于非线性光束的波前整形以及全息成像中信息复用等.目前,由于非线性超构表面的光学转换效率仍然非常低,因此需要探索新的材料和系统,以提高非线性频率的转换效率.其中一种比较有效的方法是将超构功能基元的光学共振与半导体的子带间跃迁耦合^[65].随着非线性光学超构表面功能和性能的进一步发展,我们预计更多的应用及新物理现象会不断涌现.例如,非线性贝里几何相位的概念可以扩展到高次谐波产生的过程中^[140-145];通过控制超构表面的对称性与高次谐波级数,可以有效地操控高次谐波的偏振态和波前.随着太赫兹非线性光学技术的不断发展,结合半导体中丰富的元激发物理可能会为量子电子学的研究开辟出新的研究方向^[141,144].我们预计基于过渡金属二硫化物半导体薄膜或者其他二维材料等所制备而成的超构表面,在太赫兹光源泵浦下可借助带间跃迁和等离激元共振效应进而高效率地产生高次谐波.另一方面,光学超构表面也会在量子光学领域的应用获得更多关注.例如,非线性光学晶体在参量下转换过程中产生的纠缠光子对量子通信过程等起着关键作用.尽管人们可以使用各种相位匹配方案来操纵纠缠光子的偏振态,但是用于高维信息编码的光子波前整形仍然高度依赖光学空间光调制器,而目前空间光调制器的尺寸严重限制了量子芯片集成等应用.我们期望未来可能出现的集成了超构光学表面与传统量子光源的新型器件,即同时拥有操控光子偏振态和波前能力的非线性量子超构表面.

简而言之,非线性光学超构表面具有很好的应用潜力.将来,我们可以很容易地将多个非线性光学功能集成于超薄光学芯片上.这一新的研究领域涉及多个学科,它不仅为研究基础物理现象提供了一个新的平台,同时也有机会在诸如生物传感^[145]、成像、经典和量子光学信息处理中得到实际的应用^[146].

本文主要内容翻译自作者李贵新等于2017年为《自然综述: 材料学》撰写的英文版综述文章^[147], 中文翻译获得了Springer Nature出版集团的官方授权。作者对欧阳敏博士通读全文并提出宝贵修改意见表示由衷感谢。

参考文献

- [1] Soukoulis C M, Wegener M 2011 *Nat. Photon.* **5** 523
- [2] Hess O, Pendry J B, Maier S A, Oulton R F, Hamm J M, Tsakmakidis K L 2012 *Nat. Mater.* **11** 573
- [3] Zheludev N I, Kivshar Y S 2012 *Nat. Mater.* **11** 917
- [4] Pendry J B, Luo Y, Zhao R 2015 *Science* **348** 521
- [5] Yu N, Genevet P, Kats M A, Aieta F, Tetienne J, Capasso F, Gaburro Z 2011 *Science* **334** 333
- [6] Kildishev A V, Boltasseva A, Shalaev V M 2013 *Science* **339** 1232009
- [7] Meinzer N, Barnes W L, Hooper I R 2014 *Nat. Photon.* **8** 889
- [8] Yu N, Capasso F 2014 *Nat. Mater.* **13** 139
- [9] Ni X, Emani N K, Kildishev A, Boltasseva V A, Shalaev V M 2012 *Science* **335** 427
- [10] Sun S, He Q, Xiao S, Xu Q, Li X, Zhou L 2012 *Nat. Mater.* **11** 426
- [11] Chen X, Huang L, Mühlenbernd H, Li G, Bai B, Tan Q, Jin G, Qiu C W, Zhang S, Zentgraf T 2012 *Nat. Commun.* **3** 1198
- [12] Chen W T, Yang K Y, Wang C M, Huang Y W, Sun G, Chiang I D, Liao C Y, Hsu W L, Lin H T, Sun S, Zhou L, Liu A Q, Tsai D P 2013 *Nano Lett.* **14** 225
- [13] Ni X, Kildishev A V, Shalaev V M 2013 *Nat. Commun.* **4** 2807
- [14] Huang L, Chen X, Mühlenbernd H, Zhang H, Chen S, Bai B, Tan Q, Jin G, Cheah K W, Qiu C W, Li J, Zentgraf T, Zhang S 2013 *Nat. Commun.* **4** 2808
- [15] Li G, Kang M, Chen S, Zhang S, Pun E Y B, Cheah K W, Li J 2013 *Nano Lett.* **13** 4148
- [16] Yin X B, Ye Z L, Rho J, Wang Y, Zhang X 2013 *Science* **339** 1405
- [17] Lin D, Fan P, Hasman E, Brongersma M L 2014 *Science* **345** 298
- [18] Khorasaninejad M, Crozier K B 2014 *Nat. Commun.* **5** 5386
- [19] Huang Y W, Chen W T, Tsai W Y, Wu P C, Wang C M, Sun G, Tsai D P 2015 *Nano Lett.* **15** 3122
- [20] Chong K E, Staude I, James A, Dominguez J, Liu S, Campione S, Subramania G S, Luk T S, Decker M, Neshev D N, Brener I, Kivshar Y S 2015 *Nano Lett.* **15** 5369
- [21] Zheng G, Mühlenbernd H, Kenney M, Li G, Zentgraf T, Zhang S 2015 *Nat. Nanotechnol.* **10** 308
- [22] Arbabi A, Horie Y, Bagheri M, Faraon A 2015 *Nat. Nanotechnol.* **10** 937
- [23] Huang L, Mühlenbernd H, Li X, Song X, Bai B, Wang Y, Zentgraf T 2015 *Adv. Mater.* **27** 6444
- [24] Wen D, Yue F, Li G, Zheng G, Chan K, Chen S, Chen M, Li K F, Wong P W, Cheah K W, Pun E Y B, Zhang S, Chen X 2015 *Nat. Commun.* **6** 8241
- [25] Aieta F, Kats M A, Genevet P, Capasso F 2015 *Science* **347** 1342
- [26] Khorasaninejad M, Chen W T, Devlin R C, Oh J, Zhu A Y, Capasso F 2016 *Science* **352** 1190
- [27] Wang Q, Rogers, E T F, Gholipour B, Wang C M, Yuan G, Teng J, Zheludev N I 2016 *Nat. Photonics* **10** 60
- [28] Maguid E, Yulevich I, Veksler D, Kleiner V, Brongersma M L, Hasman E 2016 *Science* **352** 1202
- [29] Chen S, Cai Y, Li G, Zhang S, Cheah K W 2016 *Laser Photonics Rev.* **2** 322
- [30] Shen Y R 1984 *The Principles of Nonlinear Optics* (New York: John Wiley and Sons)
- [31] Boyd R W 2008 *Nonlinear Optics* (3rd Ed.) (Burlington: Academic)
- [32] Yariv A, Pepper D M 1997 *Opt. Lett.* **1** 16
- [33] Sefer G A, Kitayama K 1998 *J. Lightwave Technol.* **16** 1596
- [34] Kauranen M, Zayats A V 2012 *Nat. Photon.* **6** 737
- [35] Lapine M, Shadrivov I V, Kivshar Y S 2014 *Rev. Mod. Phys.* **86** 1093
- [36] Klein M W, Enkrich C, Wegener M, Linden S 2006 *Science* **313** 502
- [37] Kujala S, Canfield B K, Kauranen M, Svirko Y, Turunen J 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 167403
- [38] Zhang Y, Grady N K, Ayala-Orozco C, Halas N J 2011 *Nano Lett.* **11** 5519
- [39] Aouani H, Navarro-Cia M, Rahmani M, Sidiropoulos T P H, Hong M, Oulton R F, Maier S A 2012 *Nano Lett.* **12** 4997
- [40] Husu H, Siikanen R, Mäkitalo J, Lehtolahti J, Laukkanen J, Kuittinen M, Kauranen M 2012 *Nano Lett.* **12** 673
- [41] Linden S, Niesler F B P, Grynko Y, Meier T, Wegener M 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 015502
- [42] Czaplicki R, Husu H, Siikanen R, Mäkitalo J, Kauranen M 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 093902
- [43] Konishi K, Higuchi T, Li J, Larsson J, Ishii S, Kuwata-Gonokami M 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 135502
- [44] O'Brien K, Suchowski H, Rho J, Salandrino A, Kante B, Yin X, Zhang X 2015 *Nat. Mater.* **14** 379
- [45] Segal N, Keren-Zur S, Hendler N, Ellenbogen T 2015 *Nat. Photon.* **9** 180
- [46] Celebrano M, Wu X, Baselli M, Großmann S, Biagioni P, Locatelli A, de Angelis C, Cerullo G, Osellame R, Hecht B, Duò L, Ciccacci F, Finazzi M 2015 *Nat. Nanotechnol.* **10** 412
- [47] Kruk S, Weismann M, Bykov A Y, Mamonov E A, Kolmychek I A, Murzina T, Panoiu N C, Neshev D N, Kivshar Y S 2015 *ACS Photonics* **2** 1007
- [48] Sartorello G, Olivier N, Zhang J, Yue W, Gosztola D J, Wiederrecht G P, Wurtz G, Zayats A V 2016 *ACS Photonics* **3** 1517

- [49] Camacho-Morales R, Rahmani M, Kruk S, Wang L, Xu L, Smirnova D A, Solntsev A S, Miroshnichenko A, Yan H H, Kaouta F, Naureen S, Vora K, Carletti L, de Angelis C, Jagadish C, Kivshar Y S, Neshev D N 2016 *Nano Lett.* **16** 7191
- [50] Hanke T, Krauss G, Trautlein D, Wild B, Bratschitsch B, Leitenstorfer A 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 257404
- [51] Utikal T, Zentgraf T, Paul T, Rockstuhl C, Lederer F, Lippitz M, Giessen H 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 133901
- [52] Liu H, Li G X, Li K F, Chen S M, Zhu S N, Chan C T, Cheah K W 2011 *Phys. Rev. B* **84** 235437
- [53] Aouani H, Rahmani M, Navarro-Cía M, Maier S A 2014 *Nat. Nanotechnol.* **9** 290
- [54] Metzger B, Schumacher T, Hentschel M, Lippitz M, Giessen H 2014 *ACS Photon.* **1** 471
- [55] Chen S M, Li G, Zeuner F, Wong W H, Pun E Y B, Zentgraf T, Cheah K W, Zhang S 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 033901
- [56] Grinblat G, Li Y, Nielsen M P, Oulton R F, Maier S A 2016 *Nano Lett.* **16** 4635
- [57] Smirnova D A, Khanikaev A B, Smirnov L A, Kivshar Y S 2016 *ACS Photon.* **3** 1468
- [58] Renger J, Quidant R, van Hulst N, Novotny L 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 046803
- [59] Chen P Y, Alù A 2011 *Nano Lett.* **11** 5514
- [60] Palomba S, Zhang S, Park Y, Bartal G, Yin X, Zhang X 2012 *Nat. Mater.* **11** 34
- [61] Suchowski H, O'Brien K, Wong Z J, Salandrino A, Yin X, Zhang X 2013 *Science* **342** 1223
- [62] Zhang Y, Wen F, Zhen Y R, Nordlander P, Halas N J 2013 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **110** 9215
- [63] Rose A, Powell D A, Shadrivov I V, Smith D R, Kivshar Y S 2013 *Phys. Rev. B* **88** 195148
- [64] Simkhovich B, Bartal G 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 056802
- [65] Lee J, Tymchenko M, Argyropoulos C, Chen P, Lu F, Demmerle F, Boehm G, Amann M, Alù, A, Belkin M 2014 *Nature* **511** 65
- [66] Nookula N, Lee J, Tymchenko M, Gomez-Diaz J S, Demmerle F, Boehm G, Lai K, Shvets G, Amann M, Alu A, Belkin M 2016 *Optica* **3** 283
- [67] Shcherbakov M R, Neshev D N, Hopkins B, Shorokhov A S, Staude I, Melik-Gaykazyan E V, Decker M, Ezhov A A, Miroshnichenko A E, Brener I, Fedyanin A A, Kivshar Y S 2014 *Nano Lett.* **14** 6488
- [68] Yang Y, Wang W, Boulesbaa A, Kravchenko I I, Briggs D P, Poretzky A, Geohegan D, Valentine J 2015 *Nano Lett.* **15** 7388
- [69] Terhune R W, Maker P D, Savage C M 1962 *Phys. Rev. Lett.* **8** 404
- [70] Lee C, Chang R, Bloembergen N 1967 *Phys. Rev. Lett.* **18** 167
- [71] Cai W, Vasudev A P, Brongersma M L 2011 *Science* **333** 1720
- [72] Kang L, Cui Y, Lan S, Rodrigues S, Brongersma M L, Cai W 2014 *Nat. Commun.* **5** 4680
- [73] Lan S, Kang L, Schoen D T, Rodrigues S P, Cui Y, Brongersma M L, Cai W 2015 *Nat. Mater.* **14** 807
- [74] 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
- [75] Cox J D, Garcia de Abajo F J 2014 *Nat. Commun.* **5** 5725
- [76] Cox J D, Garcia de Abajo F J 2015 *ACS Photon.* **2** 306
- [77] Burns W K, Bloembergen N 1971 *Phys. Rev. B* **4** 3437
- [78] Bhagavantam S, Chandrasekhar P 1972 *Proc. Indian Acad. Sci. A* **76** 13
- [79] Zheludev N I, Emelyanov V I 2004 *J. Opt. A* **6** 26
- [80] Rose A, Huang D, Smith D R 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 063902
- [81] Rose A, Huang D, Smith D 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 063901
- [82] Armstrong J A, Bloembergen N, Ducuing J, Pershan P S 1962 *Phys. Rev.* **127** 1918
- [83] Patel C K N, Van Tran N 1969 *Appl. Phys. Lett.* **15** 189
- [84] Shelton J W, Shen Y R 1970 *Phys. Rev. Lett.* **25** 23
- [85] Fejer M M, Magel G A, Jundt D H, Byer R L 1992 *IEEE J. Quantum Electron.* **28** 2631
- [86] Zhu S N, Zhu Y, Qin Y, Wang H, Ge C, Ming N 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 2752
- [87] Hazen R M, Sholl D S 2003 *Nat. Mater.* **2** 367
- [88] Ernst K H 2012 *Phys. Status Solidi B* **249** 2057
- [89] Pendry J B 2004 *Science* **306** 1353
- [90] Kuwata-Gonokami M, Saito N, Ino Y, Kauranen M, Jefimovs K, Vallius Y, Turunen J, Svirko Y 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 227401
- [91] Rogacheva A V, Fedotov V A, Schwanecke A S, Zheludev N I 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 177401
- [92] Plum E, Fedotov V A, Zheludev N I 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 191911
- [93] Gansel J K, Thiel M, Rill M S, Decker M, Bade K, Saile V, Freymann G, Linden S, Wegener M 2009 *Science* **325** 1513
- [94] Hendry E, Carpy T, Johnston J, Popland M, Mikhaylovskiy R V, Laphthorn A J, Kelly S M, Barron L D, Gadegaard N, Kadodwala M 2010 *Nat. Nanotechnol.* **5** 783
- [95] Zhang S, Zhou J, Park Y S, Rho J, Singh R, Nam S, Azad A K, Chen H T, Yin X, Taylor A J, Zhang X 2012 *Nat. Commun.* **3** 942
- [96] Wu C, Arju N, Kelp G, Fan J A, Dominguez J, Gonzales E, Tutuc E, Brener I, Shvets G 2014 *Nat. Commun.* **5** 3892
- [97] Kan T, Isozaki A, Kanda N, Nemoto N, Konishi K, Takahashi H, Kuwata-Gonokami M, Matsumoto K, Shimoyama I 2015 *Nat. Commun.* **6** 8422
- [98] Verbiest T, Kauranen M, Persoons A 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 3601
- [99] Petralli-Mallow T, Wong T M, Byers J D, Yee H I, Hicks J M 1993 *J. Phys. Chem.* **97** 1383
- [100] Byers J D, Yee H I, Hicks J M 1994 *J. Chem. Phys.* **101** 6233

- [101] Maki J J, Kauranen M, Persoons A 1995 *Phys. Rev. B* **51** 1425
- [102] Verbiest T, Kauranen M, Rompaey Y V, Persoons A 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 1456
- [103] Valev V K, Smisdom N, Silhanek A V, de Clercq B, Gillijns W, Ameloot M, Moshchalkov V V, Verbiest T 2009 *Nano Lett.* **9** 3945
- [104] Valev V K, Silhanek A V, Verellen N, Gillijns W, Van Dorpe P, Aktsipetrov O A, Vandenbosch G A E, Moshchalkov V V, Verbiest T 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 127401
- [105] Belardini A, Larciprete M C, Centini M, Fazio E, Sibilica C 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 257401
- [106] Huttunen M J, Bautista G, Decker M, Linden S, Wegener M, Kauranen M 2011 *Opt. Mater. Express* **1** 46
- [107] Rodrigues S P, Lan S, Kang L, Cui Y, Cai W 2014 *Adv. Mater.* **26** 6157
- [108] Valev V K, Baumberg J J, de Clercq B, Braz N, Zheng X, Osley E J, Vandendriessche S, Hojeij M, Blejean C, Mertens J, Biris C G, Volskiy V, Ameloot M, Ekinci Y, Vandenbosch G A E, Warburton P A, Moshchalkov V V, Panoiu N C, Verbiest T 2014 *Adv. Mater.* **26** 4074
- [109] Kolkowski R, Petti L, Rippa M, Lafargue C, Zyss J 2015 *ACS Photon.* **2** 899
- [110] Chen S, Zeuner F, Weismann M, Reineke B, Li G, Valev V K, Cheah K W, Panoiu N C, Zentgraf T, Zhang S 2016 *Adv. Mater.* **28** 2992
- [111] Ren M, Plum E, Xu J, Zheludev N I 2012 *Nat. Commun.* **3** 833
- [112] Pancharatnam S 1956 *Proc. Indian Acad. Sci. A* **44** 247
- [113] Berry M V 1984 *Proc. R. Soc. A* **392** 45
- [114] Bornzon Z, Biener G, Kleiner V, Hasman E 2002 *Opt. Lett.* **27** 1141
- [115] Hasman E, Kleiner V, Biener G, Niv A 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 328
- [116] Li G, Chen S, Pholchai N, Reineke B, Wong P W H, Pun E Y B, Cheah K W, Zentgraf T, Zhang S 2015 *Nat. Mater.* **14** 607
- [117] Tymchenko M, Gomez-Diaz J S, Lee J, Nookala N, Belkin M A, Alù A 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 207403
- [118] Almeida E, Shalem G, Prior Y 2016 *Nat. Commun.* **7** 10367
- [119] Poynting J H 1909 *Proc. R. Soc. A* **82** 560
- [120] Beth R A 1936 *Phys. Rev.* **50** 115
- [121] Allen P J 1966 *Am. J. Phys.* **34** 1185
- [122] Garetz B A, Arnold S 1979 *Opt. Commun.* **31** 1
- [123] Garetz B A 1980 *J. Opt. Soc. Am.* **71** 609
- [124] Simon R, Kimble H J, Sudarshan E C G 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 19
- [125] Dholakia K 1988 *Am. J. Phys.* **66** 1007
- [126] Li G, Zentgraf T, Zhang S 2016 *Nat. Phys.* **12** 736
- [127] Li L, Li T, Wang S M, Zhang C, Zhu S N 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 126804
- [128] Dolev I, Epstein I, Arie A 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 203903
- [129] Gabor D 1948 *Nature* **161** 777
- [130] Pendry J B 2008 *Science* **332** 71
- [131] Berger V 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 4136
- [132] Broderick N G R, Ross G W, Offerhaus H L, Richardson D J, Hanna D C 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 4345
- [133] Ellenbogen T, Voloch-Bloch N, Ganany-Padowicz A, Arie A 2009 *Nat. Photon.* **3** 395
- [134] Hong X, Yang B, Zhang C, Qin Y Q, Zhu Y Y 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 163902
- [135] Li G, Chen S, Cai Y, Zhang S, Cheah K W 2014 *Adv. Opt. Mater.* **2** 389
- [136] Wolf O, Campione S, Benz A, Ravikumar A P, Liu S, Luk T S, Kadlec E, Shaner E A, Klem J F, Sinclair M B, Brener I 2015 *Nat. Commun.* **6** 7667
- [137] Keren-Zur S, Avayu O, Michaeli L, Ellenbogen T 2016 *ACS Photon.* **3** 117
- [138] Almeida E, Bitton O, Prior Y 2016 *Nat. Commun.* **7** 12533
- [139] Ye W, Zeuner F, Li X, Reineke B, He S, Qiu C W, Liu J, Wang Y, Zhang S, Zentgraf T 2016 *Nat. Commun.* **7** 11930
- [140] Zürich M, Kern C, Hansinger P, Dreischuh A, Spielmann C H 2012 *Nat. Phys.* **8** 743
- [141] Fleischer A, Kfir O, Diskin T, Sidorenko P, Cohen O 2014 *Nat. Photon.* **8** 543
- [142] Schubert O, Hohenleutner M, Langer F, Urbanek B, Lange C, Huttner U, Golde D, Meier T, Kira M, Koch S W, Huber R 2014 *Nat. Photon.* **8** 119
- [143] Hickstein D D, Dollar F J, Grychtol P, Ellis J L, Knut R, Hernández-García C, Zusin D, Gentry C, Shaw J M, Fan T, Dorney K M, Becker A, Jarof-Becker A, Kapteyn H C, Murnane M M, Durfee C G 2015 *Nat. Photon.* **9** 743
- [144] Hohenleutner M, Langer F, Schubert O, Knorr M, Huttner U, Koch S W, Kira M, Huber R 2015 *Nature* **523** 572
- [145] Baykusheva D, Ahsan M S, Lin N, Wörner H J 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 123001
- [146] Walmsley I A 2015 *Science* **348** 525
- [147] Li G, Zhang S, Zentgraf T 2017 *Nat. Rev. Mater.* **3** 17010

SPECIAL ISSUE—Diffraction limit of electromagnetic waves

Nonlinear photonic metasurfaces

Deng Jun-Hong Li Gui-Xin[†]

(Department of Materials Science and Engineering, Southern University of Science and Technology, Shenzhen 518055, China)

(Received 15 May 2017; revised manuscript received 5 June 2017)

Abstract

In linear optical regime, many novel optical functions have been demonstrated by using ultrathin photonic metasurfaces. The main concept of metasurface is to appropriately assembly the spatially variant meta-atoms on a subwavelength scale, and realize the manipulations of polarization, phase and amplitude of light. Recently, the nonlinear optical properties of photonic metasurfaces have attracted a lot of attention. In this review, we discuss the design, material selection, symmetry consideration of the meta-atoms, as well as the applications such as nonlinear chiral optics, nonlinear geometric Berry phase and nonlinear wavefront engineering. Lastly, we point out the challenges and potentials of nonlinear photonic metasurfaces for manipulating the light-matter interactions.

Keywords: metasurface, nonlinear optics, geometric berry phase, metamaterials

PACS: 78.67.Pt, 81.05.Xj, 02.65.-k

DOI: [10.7498/aps.66.147803](https://doi.org/10.7498/aps.66.147803)

[†] Corresponding author. E-mail: ligx@sustc.edu.cn