

基于介电常数近零模式与间隙表面等离激元强耦合的增强非线性光学效应

郭绮琪 陈溢杭

**Enhanced nonlinear optical effects based on strong coupling between epsilon-near-zero mode and gap surface plasmons**

Guo Qi-Qi Chen Yi-Hang

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 187303 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20210290

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210290>

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

介电常数近零模式与表面等离激元模式耦合实现宽带光吸收

Broadband absorption caused by coupling of epsilon-near-zero mode with plasmon mode

物理学报. 2018, 67(20): 207301 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181106>

基于超表面的Tamm等离激元与激子的强耦合作用

Strong coupling between metasurface based Tamm plasmon microcavity and exciton

物理学报. 2020, 69(1): 010201 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191225>

基于等离激元纳米结构非线性响应的超快光开关及脉冲激光器

Ultrafast optical switches and pulse lasers based on strong nonlinear optical response of plasmon nanostructures

物理学报. 2020, 69(18): 189101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200456>

基于开口环阵列结构的表面晶格共振产生及二次谐波增强

Conditions for surface lattice resonances and enhancement of second harmonic generation based on split-ring resonators

物理学报. 2021, 70(5): 054206 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201424>

低维半导体材料在非线性光学领域的研究进展

Research progress of low-dimensional semiconductor materials in field of nonlinear optics

物理学报. 2020, 69(18): 184211 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200206>

微纳光子结构中光子和激子相互作用

Interactions between photons and excitons in micro-nano photonic structures

物理学报. 2019, 68(14): 144201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190269>

# 基于介电常数近零模式与间隙表面等离子激元强耦合的增强非线性光学效应\*

郭绮琪 陈溢杭†

(华南师范大学物理与电信工程学院, 广东省量子调控工程与材料重点实验室, 广州 510006)

(2021 年 2 月 7 日收到; 2021 年 4 月 30 日收到修改稿)

非线性光学效应在光通信、光探测、量子信息等领域发挥着举足轻重的作用, 然而天然材料的光学非线性响应通常很弱. 本文利用氧化铟锡 (ITO) 薄膜激发的介电常数近零模式, 与金属-介质-金属结构激发的间隙表面等离子激元发生强耦合, 在近红外波段实现宽带 (约 1000 nm) 的增强非线性光学效应, 其非线性折射率  $n_2$  的最大值可达  $3.02 \text{ cm}^2/\text{GW}$ , 与之前报道的单层 ITO 薄膜的非线性折射率相比, 增大了接近 3 个数量级. 因此, 可在低功率光照下得到显著的折射率变化, 可望应用于全光存储、全光开关等纳米光子器件的设计.

**关键词:** 介电常数近零材料, 强耦合, 非线性光学**PACS:** 73.40.Rw, 78.66.-w, 52.35.Mw, 42.65.Hw**DOI:** 10.7498/aps.70.20210290

## 1 引言

非线性光学现象具有广泛的应用前景, 包括全光信息处理与存储、量子信息技术等. 然而, 大多数材料在低功率光照下, 通常表现出极弱的非线性光学响应. 因此, 非线性光学领域发展与应用的關鍵是寻找具有强非线性响应的材料, 这些材料制备的光学器件的光学性质在低功率光场照射下也可产生显著的变化. 以往的研究已提出了各种结构和机制以通过光场局域实现非线性光学响应的增强, 包括复合结构<sup>[1–3]</sup>产生的局部场增强、等离激元结构<sup>[4–5]</sup>和超材料<sup>[6–8]</sup>等. 然而, 这些技术对非线性响应的幅度 (和符号) 仅能产生有限的调控, 而且在大多情况下还需要在非线性和非线性响应峰值的光谱位置之间进行权衡, 比如说贵金属结构非线性较强的光谱位置一般在可见光波段.

最近, 研究表明当材料的介电常数接近为零时, 非线性光学效应将显著增强, 这些材料通常被称为介电常数近零 (ENZ) 材料<sup>[9–11]</sup>. 目前对于 ENZ

材料的研究, 主要聚焦在简并半导体 (即掺杂浓度较高的半导体), 在近红外波段实现光学非线性响应的增强. 2015 年, 美国波士顿大学 Dal Negro 课题组<sup>[12]</sup>通过实验证明, 在通信波长下, 氧化铟锡 (ITO) 纳米层能产生三次谐波效应增强, 其转换效率大约是晶体硅的 600 倍, 实验得到的三阶有效极化率为  $\chi^{(3)} = 3.5 \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{V}^2$ . 同年, 该课题组还对具有 ENZ 特性的 ITO 纳米薄膜在近红外光谱激发的二次谐波产生 (SHG) 效应进行了研究<sup>[13]</sup>, 实验表明, 在 ITO 纳米层中, 选用 ENZ 波长进行共振泵浦, 比选用远离 ENZ 波长位置进行泵浦时, SHG 效应可增强约 4 个数量级. 选用更低损耗的介电常数近零材料, 在其介电常数近零波段附近, 能实现更大的非线性折射率变化. 2016 年, Caspani 等<sup>[14]</sup>在氧化铝锌 (AZO) 薄膜上进行实验, 结果显示在其 ENZ 波长 1300 nm 处, 克尔非线性折射率 ( $n_2 = 3.5 \times 10^{-17} \text{ m}^2/\text{W}$ ) 增大了 6 倍. Boyd 课题组<sup>[15]</sup>在玻璃基底上镀一层 310 nm 厚的 ITO 薄膜, 采用 150 fs 的激光脉冲进行 z-scan 测量中发现, 在零介电常数波长下观察到了较大的非线性

\* 广东省自然科学基金 (批准号: 2015A030311018, 2017A030313035) 和广州市科技计划 (批准号: 2019050001) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yhchen@scnu.edu.cn

折射率  $n_2$  ( $2.6 \times 10^{-16} \text{ m}^2/\text{W}$ ). 该值比远离 ENZ 波段处测量的值大 40 倍以上. 但是, 该研究结果存在一个局限, 是仅在相对较窄的 ENZ 波段范围内, 材料才具有较大的非线性响应. 研究表明, 通过激发一种特殊的表面波模式——ENZ 模式可望克服这一局限性<sup>[16–18]</sup>. 但是 ENZ 模式只有当 ENZ 材料足够薄时才能被激发, 因此, 一般来说材料厚度会选择小于或等于 ENZ 波长的 1/50. 由于 ENZ 模式有非常大的态密度, 因此可以增强光和物质的相互作用. 然而, ENZ 模式的电场分布垂直于薄膜表面, 因此不能直接通过激光垂直入射来激发, 需要通过光栅耦合、棱镜耦合等方式进行激发.

本文的研究发现, 若将 ITO 薄膜置于金属-介质-金属结构的间隙, 可以激发 ENZ 模式. 利用 ENZ 模式和间隙表面等离激元的强耦合作用, 可在宽波段范围内实现较强的非线性响应, 可望应用于低功率非线性纳米光子器件的设计.

## 2 结构设计及理论研究

### 2.1 结构设计

图 1(a) 为激发间隙表面等离激元共振的结构, 由周期性银圆盘、用于激发 ENZ 模式的 ITO 纳米薄膜、二氧化硅电解质间隔层和光学厚度的银层构成. 其中, 结构的晶格常数为  $a$ , 银圆盘半径为  $r$ , 厚度为  $h_1$ , ITO 薄膜厚度为  $h_2$ , 二氧化硅厚度为  $h_3$ , 银层厚度为  $h_4$ , 如图 1(b) 所示. 通过改变圆盘的半径  $r$ , 可以调节间隙表面等离激元的共振位置, 使其可以扫过 ENZ 共振波长, 当模式匹配时可实现 ENZ 模式与间隙表面等离激元的强耦合. 同时

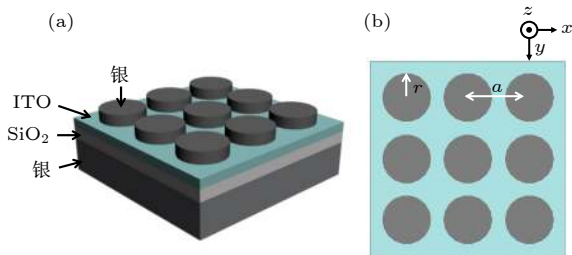


图 1 器件结构设计图, 包含银圆盘、ITO 材料层、二氧化硅介质层、银膜层以及硅基底 (未画出) (a) 三维结构图; (b) 平面结构图及对应参数的示意图

Fig. 1. Design of the device, including the silver disc, the ITO material layer, the  $\text{SiO}_2$  dielectric spacer layer, the silver film layer, and the silicon substrate (not drawn in the figure): (a) Three-dimensional structure; (b) the planar graph and parameter of the structure.

可以通过改变圆盘半径来控制 ENZ 模式与间隙表面等离激元之间的失谐情况.

### 2.2 ENZ 材料的线性响应

对于 ENZ 材料, 根据电位移矢量在界面的连续性条件, 得到垂直于界面的场分量有:  $E_{\perp, \text{ENZ}} = \varepsilon_0 E_{\perp, 0} / \varepsilon_{\text{ENZ}}$ , 即当材料介电常数在零附近时, 可以产生强场增强, 因此, 可以有效增强光学非线性响应. 目前研究感兴趣的透明导电氧化物材料, 例如锡掺杂的氧化铟 (ITO) 和铝掺杂的氧化锌 (AZO), 它们在近红外区域可以实现介电常数为零, 且在其 ENZ 光谱区域内<sup>[12,14,15,19,20]</sup> 非线性光学响应得到了巨大的增强.

本文选取的 ENZ 材料为 ITO 薄膜, 由于其较大的掺杂浓度, ITO 在近红外的波段的光学性质可以近似用自由电子气模型进行描述. ITO 材料的介电常数满足 Drude-Lorentz 模型<sup>[21]</sup>:

$$\varepsilon = \varepsilon_{\infty} + \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty}) \omega_t^2}{\omega_t^2 - \omega^2 - i\Gamma_0 \omega} - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\Gamma_d \omega}, \quad (1)$$

式中,  $\omega$  为角频率,  $\omega = 2\pi c/\lambda$ , 选用文献<sup>[22]</sup> 的 ITO 实验参数进行计算, 其中, 高频介电常数  $\varepsilon_{\infty} = 3.1178$ ,  $\varepsilon_s = 3.846698$ ,  $\varepsilon_{\infty} - \varepsilon_s$  可理解为权重因子, 等离子体频率  $\omega_p = 2.6594 \times 10^{15} \text{ rad/s}$ , Lorentz 共振频率  $\omega_t = 7.42969 \times 10^{15} \text{ rad/s}$ , Lorentz 阻尼项  $\Gamma_0 = 0.534217 \times 10^{15} \text{ rad/s}$ , Drude 阻尼项  $\Gamma_d = 0.231806 \times 10^{15} \text{ rad/s}$ .

图 2 为利用 Drude-Lorentz 模型计算得到的 ITO 介电常数的实部  $\text{Re}(\varepsilon)$  和虚部  $\text{Im}(\varepsilon)$ , 在波长为 1415 nm 处 ITO 材料的介电常数实部为零, 此波长被称为 ENZ 波长.

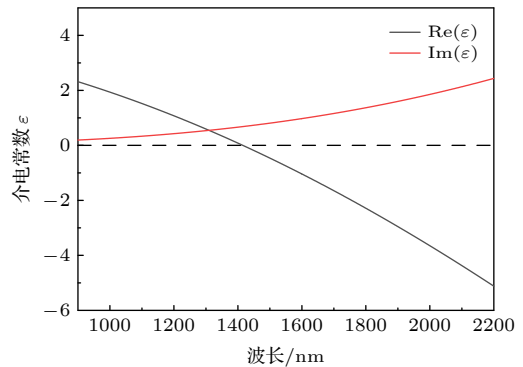


图 2 ITO 材料的介电常数的实部 (黑色线) 与虚部 (红色线)  
Fig. 2. Real part (black line) and the imaginary part (red line) of permittivity of the ITO.

## 2.3 增强非线性响应的理论机制

ITO 材料在 ENZ 波段的三阶自聚焦非线性响应可以近似认为是自由电子响应引起的. 为更好地描述超快光学非线性的响应过程, 可采用双温模型<sup>[23]</sup>进行分析. 对于超短激光脉冲, 能引起电子与电子及电子与晶格两种不同的相互作用过程. 根据双温模型, 当激光照射在 ITO 材料表面时, 可认为是经历了 3 个阶段: 1) 由于激光能量被 ITO 材料吸收, 将一些在费米能级以下的自由电子提升到费米能级以上未被占据的能级上, 这可以理解为能量转移到非热电子上, 因而引起电子温度的迅速升高. 而此时晶格温度几乎不变, 这主要是因为电子热容很小, 电子与电子相互作用的时间远短于电子系统和晶格系统之间的能量交换时间, 因此会出现强烈的非热平衡状态. 2) 电子和晶格相互作用完成能量传递, 此时电子温度迅速降低, 晶格温度逐渐升高. 3) 晶格与晶格之间建立热平衡, 此时晶格的温度稍有上升. 据此, 可以列出电子与晶格的温度变化微分方程组:

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = -g_{ep}(T_e - T_l) + \frac{N}{2\tau_{ee}}, \quad (2)$$

$$C_l \frac{\partial T_l}{\partial t} = g_{ep}(T_e - T_l) + \frac{N}{2\tau_{ep}}, \quad (3)$$

$$\frac{\partial N}{\partial t} = -\frac{N}{2\tau_{ee}} - \frac{N}{2\tau_{ep}} + P, \quad (4)$$

式中,  $T_e$ ,  $T_l$  分别为电子温度与晶格温度;  $N$  为非热电子密度;  $\tau_{ee}$ ,  $\tau_{ep}$  分别为电子与电子及电子与声子的弛豫时间;  $P$  为吸收功率密度,

$$P = (1 - R - T)I_0\alpha \exp\left[-2\left(\frac{t}{\tau_p}\right)^2\right], \quad (5)$$

其中,  $R$ ,  $T$ ,  $\alpha$  分别为随波长变化的反射率、透射率和吸收系数,  $\tau_p$  为激光脉冲迟豫时间.

通过求解双温模型微分方程组, 可以得到在响应过程中电子温度升高的最大值, 此时通过 (6) 式可求出 ITO 材料在高电子温度下的等离子体频率:

$$\omega_p^2(T_e) = \frac{e^2}{3m\varepsilon_0\pi^2} \int_0^\infty dE(1 + 2CE)^{-1} \times \left[ \frac{2m}{\hbar^2}(E + CE^2) \right]^{\frac{3}{2}} \left( -\frac{\partial f_{FD}(E, \mu(T_e), T_e)}{\partial E} \right), \quad (6)$$

其中,  $m = 0.4m_e$ ,  $C = 0.4191 \text{ eV}^{-1}$ . 将求出的等离子体频率代入 Drude-Lorentz 模型中可求出 ITO 材料在电子温度升高时的介电常数.

## 2.4 强耦合理论

当两个谐振系统的共振频率非常接近, 且在空间中重叠时, 两种模式之间会发生强相互作用, 进而产生耦合效应. 此时, 耦合系统将会保留原有的两种模式的光学特性, 同时由于产生了新的混合模式, 耦合系统会有与原来单个系统不同的光学特性产生. 一般普遍认为, 一旦拉比频率  $\Omega_R$  与单个系统共振频率  $\omega_0$  的比值超过 0.1, 就进入强耦合状态. 在这种状态下, 两个系统之间会在拉比频率处进行能量交换, 在色散光谱中表现存在于两种模式之间的反交叉曲线, 这是由于两个模式耦合后, 产生劈裂而成的上支 (UB) 和下支 (LB). 同时, 在强耦合系统中, 反交叉的位置出现在两种模式光谱交点的地方. 这种强耦合的现象, 可以用耦合谐振波振荡器模型进行计算<sup>[24,25]</sup>:

$$E_{\text{coupled}}^{\text{UB,LB}}(k_x) = \frac{E_1(k_x) + E_2(k_x)}{2} \pm \frac{1}{2} \left[ (2\Omega_R)^2 + (E_1(k_x) - E_2(k_x))^2 \right]^{1/2}, \quad (7)$$

其中,  $E_{\text{coupled}}^{\text{UB,LB}}$  为耦合上支和下支的色散关系;  $E_1$ ,  $E_2$  分别为耦合前的两种模式. 本文将主要研究 ENZ 模式和间隙表面等离激元 (GPP) 的强耦合作用.

## 3 结果与讨论

### 3.1 强耦合系统的光谱

本文设计的器件结构如图 1(a) 所示, 其中, 选用晶格常数  $a$  为 800 nm, 银圆盘厚度  $h_1 = 60 \text{ nm}$ , ITO 的 ENZ 纳米薄膜厚度  $h_2 = 20 \text{ nm}$ , 二氧化硅介质层厚度  $h_3 = 30 \text{ nm}$ , 以及  $h_4 = 100 \text{ nm}$  厚的银层. 通过有限时域差分 (FDTD) 法进行计算, 银圆盘、二氧化硅以及银层材料的折射率通过查阅文献<sup>[26]</sup>而得, 以平面波作为激励源时, 通过周期性边界条件, 可以扫描计算出耦合结构的反射率随银圆盘半径的变化关系, 如图 3(a) 和图 3(b) 所示, 将耦合系统的光谱与仅激发间隙表面等离激元共振的参考样品进行比较, 参考样品除了不包含 ITO 薄膜外, 所有其他参数保持相同. 由图 3(a) 可知, 间隙表面等离激元共振位置随圆盘半径增加而发生红移, 且在半径约为 160 nm 处, 共振位置扫过 ITO 材料介电常数近零的波段. 与其对比, 从图 3(b) 可以看出, 加入 ITO 薄膜后, 耦合系统的光谱发生了明显的变化, 当圆盘半径从 80—280 nm 范围内进行调节时, 可以观察到谱线表现



出清晰的反交叉现象,这是由于 ENZ 模式与间隙表面等离激元共振模式发生强耦合引起的劈裂现象. 根据耦合谐振波振荡器模型理论,由 ENZ 模式色散关系和间隙表面等离激元色散关系,可求出耦合系统色散曲线,如图 3(c) 所示. 在该色散曲线中,可以作进一步的分析,当圆盘半径  $r = 157 \text{ nm}$  时,可观察到  $2\Omega_R = 569 \text{ nm}$  的最小劈裂,

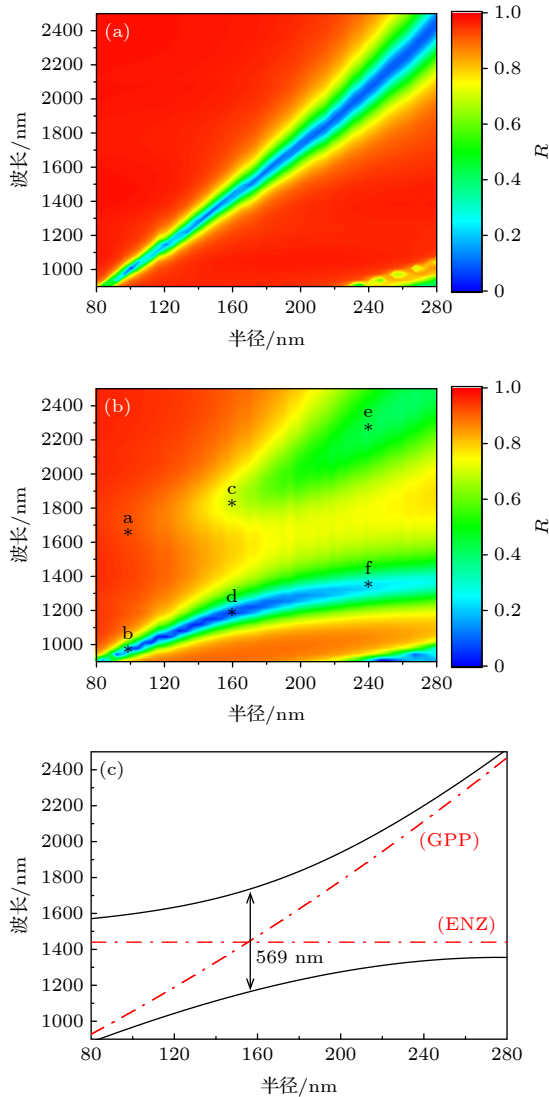


图 3 FDTD 模拟扫描计算得到的耦合结构的反射率随银圆盘半径的变化 (a) 无 ITO 材料层; (b) 有 ITO 材料层; (c) 由单独 ENZ 模式与单独间隙表面等离激元的色散曲线 (红色点划线) 得到的强耦合作用产生的上支和下支色散曲线 (黑色实线)

Fig. 3. Reflectance of the coupled structure vs. the radius of the silver disc by using FDTD solutions: (a) Without ITO material layer; (b) with ITO material layer; (c) theoretical dispersion curves of coupled upper branch and lower branch (black solid lines) resulting from strong coupling obtained by the bare ENZ mode and GPP dispersion curves (red dot dash lines).

在此位置两个共振位置在波长为  $1415 \text{ nm}$  附近对称,也就是说该位置为 ENZ 模式与间隙表面等离激元共振模式的零失谐位置. 此时拉比劈裂值达到  $20.11\%$ .

### 3.2 强耦合系统的电磁场分布模拟

对于强耦合系统,在零失谐位置两种模式不能独立开来,也就是说在该位置表现为一种混合模式,而当处于失谐状态时两种模式则会恢复,并能区分开来. 为了研究强耦合系统引起的场分布规律,选取图 3(b) 中上下分支上 a—f 六个点,其圆盘半径依次为  $100 \text{ nm}$ ,  $160 \text{ nm}$  以及  $240 \text{ nm}$ ,此时分别对应于负失谐、零失谐和正失谐位置,使用 FDTD 可模拟它们的光学模式和电磁场分布,如图 4 所示.

当圆盘半径为  $100 \text{ nm}$  时,如图 4(a)—(d) 所示,在短波段即  $970 \text{ nm}$  处,电场渗透到整个二氧化硅间隔层中,且磁场分布显示出强局域的效果,对应间隙表面等离激元的特征,而在长波段即  $1602 \text{ nm}$  处,电场局域在 ITO 薄膜层,对应于 ENZ 模式特征. 而当圆盘半径调节至  $240 \text{ nm}$  时,如图 4(i)—(l) 所示,则反映出相反的结果,在短波段即  $1320 \text{ nm}$  处,电场局域在 ITO 薄膜中,表现为 ENZ 模式,而在长波段即  $2250 \text{ nm}$  处则表现为间隙表面等离激元模式.

值得关注的是,当圆盘半径为  $160 \text{ nm}$  时,如图 4(e)—(h) 所示,此时处于零失谐状态,不管是短波段或是长波段,均在 ITO 薄膜层表现出了强电场局域,且在金属圆盘下方出现较强的磁共振现象,此时电磁场的分布是 ENZ 模式与间隙表面等离激元发生强耦合后共同作用的结果,既保留了 ENZ 模式特征,也保留了间隙表面等离激元的特征.

### 3.3 数值模型计算非线性折射率变化

图 5(a) 为耦合结构在低功率激光照射 (线性光学) 条件下的反射谱,可以看出,ENZ 模式与间隙表面等离激元耦合后产生劈裂,形成两个共振谷,其中一个是在  $\lambda = 1180 \text{ nm}$  处的主共振,另一个是在  $\lambda = 1750 \text{ nm}$  处的弱共振,对应于图 4(e)—(h) 的电磁场分布. 此时两个共振位置之间相隔约  $570 \text{ nm}$ ,这对于宽带光学非线性增强带来了强有力的优势.

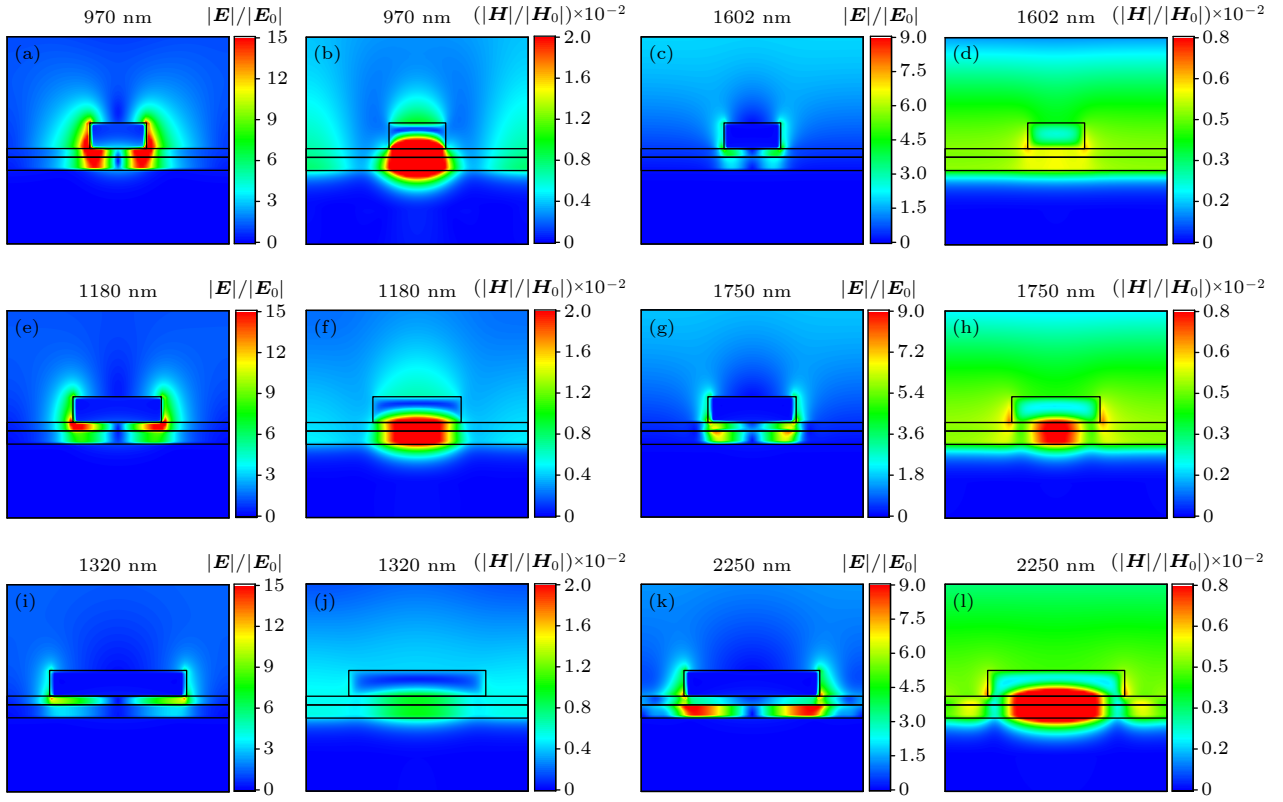


图 4 ITO 中激发的 ENZ 模式与间隙表面等离子极化激元强耦合的电磁场分布图 (a)—(d) 负失谐; (e)—(h) 零失谐; (i)—(l) 正失谐

Fig. 4. Electric and magnetic field distribution of the strong coupling between the ENZ mode that excited in the ITO film and the GPP: (a)–(d) Negative detuning; (e)–(h) zero detuning; (i)–(l) positive detuning.

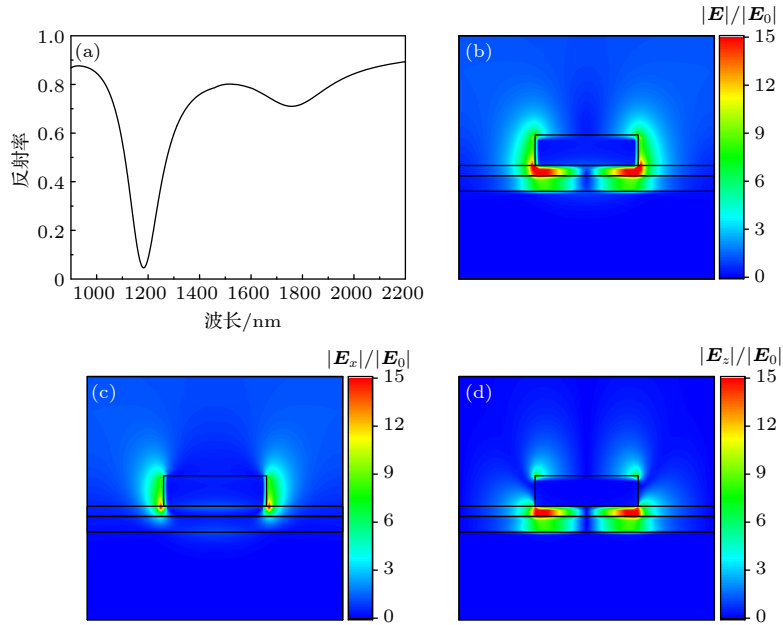


图 5 (a) 耦合结构的反射谱; (b)—(d) 主共振位置 (1180 nm) 处总电场、电场  $x$  分量以及  $z$  分量分布

Fig. 5. (a) Reflectance spectrum of the coupled structure; (b)–(d) the total electric field, the  $x$ -component, the  $z$ -component distribution at the main resonance (1180 nm) respectively.

下面将选用脉冲宽度为 150 fs, 入射光功率为  $I_0 = 0.15 \text{ GW/cm}^2$  的激光进行模拟计算. 由图 5(b)

可知, 对于本文选用的耦合结构, 电场可以局域在 ITO 结构内部, 从而实现场增强效应. 对比图 5(c)

与图 5(d) 可知, ITO 薄膜中的电场增强主要存在于  $z$  方向上. 根据场增强情况, 计算在 ITO 薄膜中入射光功率的增强倍数, 并将其代入双温模型中, 可计算出电子温度的变化规律, 如图 6(a) 所示. 此时电子温度迅速升高, 据此可以求得 ITO 薄膜在电子温度升高时的等离子体频率, 将其代入 Drude-Lorentz 模型中可求得非线性条件下 ITO 薄膜的介电常数变化规律.

在 FDTD solutions 中可以通过  $S$  矩阵提取耦合结构的等效折射率 [27]. 将线性和非线性条件下 ITO 薄膜的介电常数导入材料库中, 可求出耦合结构等效折射率的变化  $\Delta n$ . 非线性折射率  $n_2 = \Delta n/I$ , 可通过折射率变化除以入射光强度求得, 如图 6(b) 所示.  $n_2$  的大小在  $\lambda = 1058$  nm 时达到负最小值,  $\lambda = 1135$  nm 时达到正最大值, 最

大的光学非线性响应可以达到  $n_2 = 3.02 \text{ cm}^2/\text{GW}$ . 图 6(b) 红点数值为 Alam 课题组 [15] 研究单层 ITO 薄膜非线性折射率  $n_2$  的值, 与此相比, 本文中所用的强耦合系统的非线性折射率最大值可增大 3 个数量级. 且在近红外波段感兴趣的区域,  $950 \text{ nm} \leq \lambda \leq 2450 \text{ nm}$ , 都存在一定的光学非线性响应增强, 其中  $|n_2| > 1 \text{ cm}^2/\text{GW}$  的区域占比大于 20%. 非线性折射率的符号取决于所在波长的耦合结构谐振特性, 在  $1000 \text{ nm} \leq \lambda \leq 1400 \text{ nm}$  之间非线性折射率的变化以及出现的极值, 与耦合系统的主共振 ( $\lambda = 1180 \text{ nm}$ ) 相关. 而在  $1600 \text{ nm} \leq \lambda \leq 2400 \text{ nm}$  之间非线性折射率的变化, 则与耦合系统的弱共振 ( $\lambda = 1750 \text{ nm}$ ) 相关.

## 4 结 论

非线性光学研究属于目前微纳光电子领域的前沿热点. 本文验证了在金属-介质-金属结构中嵌入 ENZ 材料, 适用于实现光学非线性的增强. 通过 ENZ 材料激发 ENZ 模式与间隙表面等离子激元发生强耦合作用, 在零失谐位置处可以产生一种混合模式, 实现电场、磁场的增强. 本文利用双温模型解释了脉冲激光照射下, ITO 薄膜的非线性响应过程, 通过电子温度的升高可计算出等离子体频率的变化, 进而求出耦合结构的等效折射率变化. 结果表明, 本文提出的强耦合系统可以实现光学非线性响应的增强, 在非线性折射率达到最大时, 比以往研究的单层 ITO 薄膜结构的  $n_2$  值要增大 3 个数量级. 且在近红外区域, 可以实现宽波段 (约  $1000 \text{ nm}$ ) 的非线性折射率的增加. 这将会在制作全息存储、全光开关等光子学器件中显示出优异的性能.

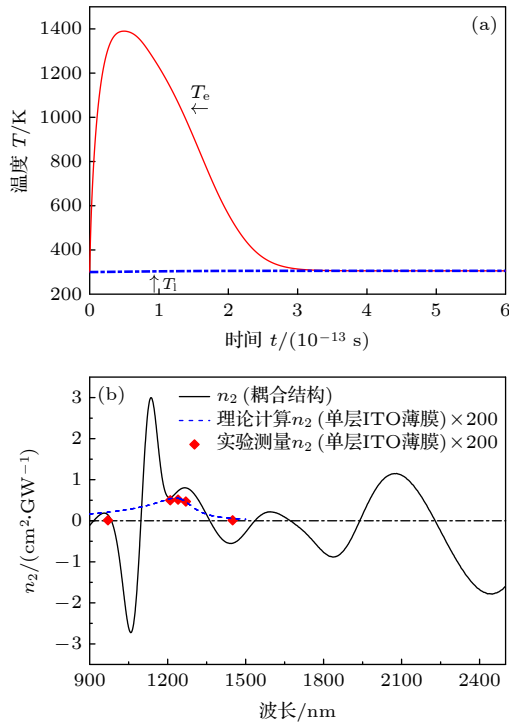


图 6 (a) 通过双温模型计算得到的电子温度  $T_e(t)$  和晶格温度  $T_l(t)$ ; (b) 非线性折射率  $n_2$ , 黑线为文中结构的非线性折射率, 红点为文献 [15] 报道的单层 ITO 薄膜的  $n_2$  值乘以 200 倍, 蓝色点线为文献 [15] 单层 ITO 薄膜结构通过双温模型理论计算得到的  $n_2$  值乘以 200 倍

Fig. 6. (a) Calculated electron temperature and lattice temperature through the two-temperature model; (b) nonlinear refractive index  $n_2$ , where the black line represents the  $n_2$  of the coupled structure, the red dots represent 200 times of the  $n_2$  of bare ITO film reported in Ref. [15], the blue dot line represents 200 times of the calculated theoretical value of  $n_2$  of bare ITO film reported in Ref. [15] by two-temperature model.

## 参考文献

- [1] Boyd R W, Gehr R J, Fischer G L, Sipe J E 1996 *Pure Appl. Optics J. European Optical Society Part A* **5** 505
- [2] Boyd R W, Sipe J E 1994 *J. Opt. Soc. Am. B* **11** 297
- [3] Sarychev A K, Shalaev V M 2000 *Phys. Rep.* **335** 275
- [4] Abb M, Albella P, Aizpurua J, Muskens O L 2011 *Nano Lett.* **11** 2457
- [5] Abb M, Wang Y, De Groot CH, Muskens O L 2014 *Nat. Commun.* **5** 4869
- [6] Lee J, Tymchenko M, Argyropoulos C, Chen P Y, Lu F, Demmerle F, Boehm G, Amann MC, Alù A, Belkin M A 2014 *Nature* **511** 65
- [7] Yang Y, Wang W, Boulesbaa A, Kravchenko I I, Briggs D P,

- Puretzky A, Geohegan D, Valentine J 2015 *Nano Lett.* **15** 7388
- [8] Alexander E M, Andrey E M, Anton Y B, Tatiana V M, Dragomir N N, Yuri S K 2015 *Laser Photonics Rev.* **9** 195
- [9] Engheta N 2013 *Science* **340** 286
- [10] Liberal I, Mahmoud A M, Li Y, Edwards B, Engheta N 2017 *Science* **355** 1058
- [11] Maas R, Parsons J, Engheta N, Polman A 2013 *Nat. Photonics* **7** 907
- [12] Capretti A, Wang Y, Engheta N, Dal Negro L 2015 *Opt. Lett.* **40** 1500
- [13] Capretti A, Wang Y, Engheta N, Dal Negro L 2015 *Acs Photonics* **2** 1584
- [14] Caspani L, Kaipurath R, Clerici M, Ferrera M, Roger T, Kim J, Kinsey N, Pietrzyk M, Falco AD, Shalaev V 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 233901
- [15] Alam M Z, Leon I D, Boyd R W 2016 *Science* **352** 795
- [16] Vassant S, Hugonin J P, Marquier F, Greffet J J 2012 *Opt. Express* **20** 23971
- [17] Campione S, Brener I, Marquier F 2015 *Phys. Rev. B* **91** 121408
- [18] Hendrickson J R, Vangala S, Dass C K, Gibson R, Goldsmith J, Leedy K D, Walker D, Cleary J, Kim W, Guo J 2018 *ACS Photonics* **5** 776
- [19] Luk T S, Ceglia D D, Liu S, Keeler G A, Prasankumar R P, Vincenti M A, Scalora M, Sinclair M B, Campione S 2015 *Appl. Phys. Lett.* **106** 151103
- [20] Zhou Y, Alam M Z, Karimi M, Upham J, Boyd R W 2020 *Nat. Commun.* **11** 2180
- [21] Vial A, Grimault A S, Macias D, Barchiesi D, Chapelle M L D L 2005 *Phys. Rev. B* **71** 85416
- [22] Alam M Z, Schulz S A, Upham J, De Leon I, Boyd R W 2018 *Nat. Photonics* **12** 79
- [23] Carpenne E 2006 *Phys. Rev. B* **74** 4301
- [24] Törmäl P, Barnes W L 2015 *Rep. Prog. Phys.* **78** 013901
- [25] Runnerstrom E L, Kelley K P, Folland T, Nolen J R, Engheta N, Caldwell J D, Jon-Paul M 2019 *Nano Lett.* **19** 948
- [26] Palik, Edward D 1985 *Handbook of optical constants of solids* (Academic Press) pp350, 749
- [27] Smith D R, Vier D C, Koschny T, Soukoulis C M 2005 *Phys. Rev. E: Stat. Nonlinear, Soft Matter Phys.* **72** 036617



# Enhanced nonlinear optical effects based on strong coupling between epsilon-near-zero mode and gap surface plasmons<sup>\*</sup>

Guo Qi-Qi    Chen Yi-Hang<sup>†</sup>

(Guangdong Provincial Key Laboratory of Quantum Engineering and Quantum Materials, School of Physics and Telecommunication Engineering, South China Normal University, Guangzhou 510006, China)

( Received 7 February 2021; revised manuscript received 30 April 2021 )

## Abstract

Optical nonlinear effect plays an important role in optical communication, optical detection, quantum information and other areas. However, it is constrained by the weakness of the nonlinear optical response of the common materials. The enhancement of the optical nonlinear response on a nanoscale becomes a critical challenge. Over the years, several ways to enhance the optical nonlinear effects have been suggested. In fact, these technologies can slightly enhance the optical nonlinear response. Recently, some research groups focused on the materials with vanished permittivity, which is called epsilon-near-zero (ENZ) material, showing that it can exhibit large optical nonlinearity due to the field enhancement in the material of this type. However, the ENZ material only holds a large optical nonlinear response in a limited spectral range. In order to overcome this limitation, here in this paper we report the ENZ mode which is excited by the ITO film and strongly coupled to the gap surface plasmons excited by the metal-dielectric-metal structure. To acquire the nonlinear refractive index  $n_2$ , we first calculate the ITO permittivity through the Drude-Lorentz model and find the wavelength of the ENZ material. Then we calculate the time-dependent electron temperature and lattice temperature of ITO by the two-temperature model. According to the elevated electron temperature, we can calculate the plasma frequency  $\omega_p$ , and by taking it into the Drude-Lorentz model, we can obtain a new permittivity of ITO compared with the initial one. Finally, we can calculate the variation of the refractive index  $\Delta n$ , and the nonlinear refractive index  $n_2 = \Delta n/I_0$ . In this paper, our coupled structure exhibits a broadband ( $\sim 1000$  nm bandwidth) enhancement of the nonlinear optical effect in the near-infrared spectrum, a maximum nonlinear refractive index  $n_2$  as large as  $3.02 \text{ cm}^2\text{-GW}^{-1}$ , which is nearly 3 orders larger than the previously reported nonlinear refractive index of bare ITO film. As a result, it is possible to realize a dramatically large variation of nonlinear refractive index under a low-power optical field. It is expected to be used in the nano photonic devices such as optical storage, all-optical switches, etc.

**Keywords:** epsilon-near-zero material, strong coupling, nonlinear optics

**PACS:** 73.40.Rw, 78.66.-w, 52.35.Mw, 42.65.Hw

**DOI:** 10.7498/aps.70.20210290

<sup>\*</sup> Project supported by the Natural Science Foundation of Guangdong Province, China (Grant Nos. 2015A030311018, 2017A030313035) and the Science and Technology Program of Guangzhou, China (Grant No. 2019050001).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [yhchen@scnu.edu.cn](mailto:yhchen@scnu.edu.cn)