



上海交通大学博士学位论文

基于表面等离激元非线性光学特性的超快光调制

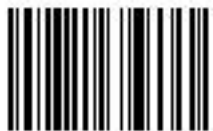
论文作者 王 魁 东

学 号 0140729004

导 师 陈 洁

专 业 物 理 学

答辩日期 2018 年 5 月 28 日



14007181



Submitted in total fulfilment of the requirements for the degree of Doctor of
Philosophy in Optics

Ultrafast optical modulation based on the optical nonlinearities of surface plasmon polariton

KUIDONG WANG

Advisor

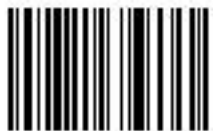
Dr. JIE CHEN

SCHOOL OF PHYSICS AND ASTRONOMY

SHANGHAI JIAO TONG UNIVERSITY

SHANGHAI, P.R.CHINA

May 28th, 2018



14007181



基于表面等离激元非线性光学特性的超快光调制

摘 要

金属中的超快光调制是实现高速主动光子器件的有效手段。实际应用中需要此类光调制器具有尽可能短的响应时间、较高的调制深度 (>7 dB)、尽可能低的能量损耗及微小的尺寸等特点, 这些特点分别取决于光与金属相互作用的非线性过程的驰豫时间、金属光学非线性效应的强弱和光在金属表面的局域化程度。虽然超短脉冲激光与金属相互作用时非线性过程的响应时间可达到飞秒量级, 然而其光学非线性效应非常弱, 因此极大的制约了高调制深度的获得。此外, 光信号在金属表面传播时尺寸受衍射极限的限制也使其很难集成到芯片级光子回路中。由于表面等离激元有两种增强光学非线性的方式: 1. 金属-介质表面极小的外界激发能量可导致表面等离激元强度的很大改变; 2. 表面等离激元产生的强局域场可极大增强结构体系的光学非线性效应, 因此本文应用此两种非线性增强方式和其能将光限制在纳米尺寸的局域场特性研究了金属表面超快光调制的增强机理和特性, 并讨论了其可能的应用。

第一部分: 飞秒级光调制增强的研究 (第四、五章)。文中应用飞秒级泵浦 (控制)-探测 (信号) 技术结合表面等离激元增强光学非线性的第一种方式对铝光栅表面传播的光信号进行超快调制, 发现调制过程中含有一个 70 fs 的飞秒级过程和一个皮秒级过程。此飞秒级过程的调制深度由表面等离激元相关的相干非线性过程主导, 其调制时间分别由控制光脉冲宽度和信号光激发的等离激元脉冲宽度共同贡献, 更快的调制时间可由更短的控制光脉冲得到, 但此时间不能短于表面等离激元的退相时间。应用表面等离激元的第二种非线性增强方式, 在同样的控制光强度下进一步将飞秒级光调制深度增强了 7 倍, 研究发现此增强与等离激元的场增强因子相关, 故对于高场增强因子的纳米结构, 此调制深度会增强更大。



第二部分：紫外波段皮秒级调制增强的研究（第六章）。金属铝在紫外波段的非线性响应极低，这限制了其作为紫外光器件的应用。本文利用光学泵浦探测技术研究了铝纳米条带上表面等离子体共振对紫外光信号超快调制的增强作用。一方面调制深度比无表面等离子体共振时增强了 55 倍，另一方面等离子体共振的出现改变了光调制随时间变化的趋势。通过理论分析得到此增强导致了信号光对晶格温度变化的敏感性的提高，进而应用表面等离子体共振作用探测了铝中声学声子的动力学过程。

关键词：超快光调制，金属光学非线性效应，表面等离激元，飞秒级泵浦-探测技术，场增强因子，紫外光信号，表面等离子体共振，晶格温度



Ultrafast optical modulation based on the optical nonlinearities of surface plasmon polariton

ABSTRACT

Ultrafast optical modulation in metals is an efficient way to realize high-speed active photonic devices. For practical applications, this modulation should be characterized by an extremely short response time, a high modulation depth (>7 dB), a low energy consumption and a small footprint, which are determined by the relaxation time of nonlinear optical processes in light-metal interaction, the nonlinear optical effects of metals and the optical localization on metal surface, respectively. Although the response time of nonlinear optical processes induced by the interaction between ultrashort optical pulse and metal could be shortened to femtoseconds, the weak optical nonlinear effects on metals are detrimental to the realization of high modulation depth. Besides, the large size of the traditional optical modulation makes it difficult to integrate into chip-scale photonic circuits. Thanks to the optical nonlinear enhancements of surface plasmon polariton (SPP), i.e., one type is that plasmonic signal could be significantly changed by minor external excitations on metal-dielectric interface, the other type is that plasmon induced strong localized field could remarkably boosts optical nonlinear effects of metals. By combining these optical nonlinear enhancement effects and the ability of plasmonics which could manipulate light beyond the diffraction limit, we mainly focus on the mechanisms and enhancements of ultrafast optical modulation on metal in this thesis, and discuss its applications. This thesis consists of two parts.

Part I. Studies on enhancement of the femtosecond optical modulation. Using femtosecond optical pump-probe technique and the first type of optical nonlinear enhancement of SPP, we studied the ultrafast optical modulation on an aluminum coated grating, and found an 70-fs femtosecond process followed by a picosecond process. The modulation depth of the femtosecond modulation is primarily determined by a coherent nonlinearity that is related to surface plasmon polariton, and the modulation time results from the pulse durations of the control light and signal SPP. A shorter laser pulse width can lead to a faster modulation speed, which is eventually limited by the SPP dephasing time.



Applying the second type of optical nonlinear enhancement of SPP, the modulation depth of the femtosecond component could be enhanced about 7 times under the same control intensity compared that without SPP-enhancement effect. Further investigation revealed that this modulation enhancement is associated with the localized field enhancement factor of SPP, a larger local field enhancement factor could result in a higher modulation depth.

Part II. Studies on enhancement of the picosecond optical modulation in UV region. The optical nonlinear effects of aluminum is very small in UV region, this impedes the application of aluminum in active UV devices. We studied the enhancement of surface plasmon resonance (SPR) on ultrafast control of UV light on aluminum nanostripes in Chapter 6. Compared with non-SPR condition, the modulation depth was enhanced ~ 55 times at the SPR condition, meanwhile the temporal evolution of ultrafast control was also modified prominently. Further analysis showed that such enhancement mainly resulted from a significant boost in the response of the signal light to the lattice thermal variation at the SPR condition. This improvement in the probing sensitivity could serve as an effective approach to resolve the dynamics of lattice vibrations in metals.

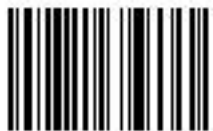
Key words: ultrafast optical modulation, optical nonlinear effects in metals, surface plasmon polariton, optical pump-probe technique, localized field enhancement factor, UV light, surface plasmon resonance, lattice temperature.



9 787309 040071

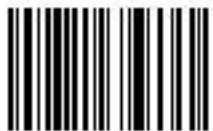
目 录

摘 要.....	i
ABSTRACT.....	iii
符号对照表.....	ix
缩略语-全称对照表.....	x
第一章 超快光调制.....	1
1.1 光调制及其分类.....	1
1.1.1 光调制及其品质因子.....	1
1.1.2 光调制的分类.....	3
1.2 超快光调制的原理.....	5
1.3 超快光调制的调制增强.....	6
1.3.1 利用光学微环形腔增强光学非线性.....	7
1.3.2 利用光子晶体结构增强光学非线性.....	7
1.3.3 利用表面等离子体共振增强光学非线性.....	9
1.4 本章小结.....	10
第二章 非线性表面等离激元光子学.....	13
2.1 表面等离激元光子学.....	13
2.1.1 表面等离激元简介.....	13
2.1.2 表面等离激元的性质.....	14
2.1.3 表面等离激元的光激发.....	17
2.2 非线性光学.....	20
2.2.1 非线性光学概述[1, 63].....	20
2.2.2 非线性光学现象的分类.....	22
2.2.3 强光引起的折射率改变.....	24
2.2.4 非线性表面等离激元光子学的特性.....	27
第三章 超快光调制的测量和金属铝中的超快过程.....	31
3.1 超短脉冲激光技术的发展.....	31
3.2 泵浦探测技术.....	32
3.3 超快光调制的测量.....	33
3.4 金属铝中的超快过程.....	35



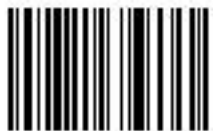
4007181

第四章 铝光栅表面的飞秒级光调制	39
4.1 研究背景与意义.....	39
4.2 实验条件.....	40
4.3 结果与分析.....	40
4.3.1 表面等离激元的静态激发.....	41
4.3.2 应用表面等离激元非线性效应的动态光调制.....	42
4.3.3 皮秒级过程讨论.....	43
4.3.4 飞秒级过程调制机制讨论.....	44
4.3.5 飞秒级快过程调制时间讨论.....	47
4.4 本章小结.....	50
第五章 应用表面等离激元增强光学非线性实现飞秒级全光开关	51
5.1 研究背景.....	51
5.2 实验条件.....	53
5.3 实验结果及分析.....	54
5.3.1 实验结果.....	54
5.3.2 飞秒级过程调制增强机制分析.....	57
5.3.3 不同入射光强下等离激元场增强因子的讨论.....	59
5.4 研究意义.....	60
5.5 本章小结.....	61
第六章 利用 SPR 提高铝纳米条带在紫外波段的非线性响应	63
6.1 研究背景.....	63
6.2 实验条件.....	64
6.2.1 样品制备.....	64
6.2.2 实验装置.....	65
6.3.1 静态实验.....	66
6.3.2 紫外光信号的超快调制.....	67
6.3.3 改进的双温度模型.....	68
6.3.4 纳米条带几何形状改变的贡献.....	70
6.3.5 调制增强机制的讨论.....	71
6.3.6 调制增强在声学声子探测中的应用.....	73
6.4 本章小结.....	74

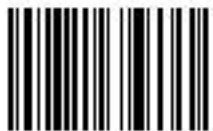


14007181

第七章 总结及展望.....	77
7.1 研究内容总结.....	77
7.2 展望	79
参考文献.....	81
攻读博士期间已发表论文列表.....	92
致 谢.....	93



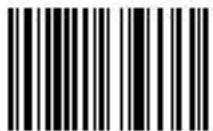
14007181



14007181

符号对照表

符号	名称	符号	名称
n_0	线性折射率	\hbar	Planck 常量
n_2	二阶非线性折射率	$p^{(2)}$	倍频辐射电偶极矩
$E(\omega)$	光场振幅	Λ	光栅常数
I	光强	Γ_l	表面等离子体共振线宽
$\chi^{(1)}$	线性光学极化率	θ_{SPR}	表面等离子体共振角
$\chi^{(2)}$	二阶非线性光学极化率	F	光能量密度
$\chi^{(3)}$	三阶非线性光学极化率	δ	金属的光学穿透深度
c	真空中光速	λ_b	电子弹道范围
ω	光频率	τ_0	激光脉冲宽度
Γ	电子碰撞频率	C_e	电子热容
ω_p	等离子体频率	C_l	晶格热容
n	自由电子数密度	γ	电子热容常数
e	电子电荷	K	电子热导率
m_e	电子质量	G	电-声耦合系数
ϵ_0	真空中介电常数	T_e	电子温度
ϵ_m	金属复介电常数	T_l	晶格温度
ϵ_d	介质介电常数		



4007181

缩略语-全称对照表

缩略语	英文全称	中文全称
SPR	Surface Plasmon Resonance	表面等离子体共振
SPP	Surface Plasmon Polariton	表面等离激元
ENZ	Epsilon Near Zero	介电常数近零
FMM	Fourier Model Method	Fourier 模型法
SHG	Second Harmonic Generation	二次谐波
THG	Third Harmonic Generation	三次谐波
SFG	Sum Frequency Generation	和频
DFG	Difference Frequency Generation	差频
OPA	Optical Parametric Amplification	光学参量放大
FWM	Four Wave Mixing	四波混频
TTM	Two-temperature Model	双温度模型
SEM	Scanning Electron Microscope	扫描电子显微镜



第一章 超快光调制

1.1 光调制及其分类

1.1.1 光调制及其品质因子

光调制 (Optical Modulation) 是将携带信息的光信号的一些参数如振幅、频率、相位、偏振态或持续时间等以特定规律变化的方法, 其是研制光调制器与开发大规模集成全光芯片的基础, 亦是光子学与光电子学领域中最重要课题之一。当光波与材料相互作用时, 光场能量将引起物质中电子云的畸变或电子能级布局数等一系类的改变, 并引起电磁波频率、介质折射率或材料吸收特性的改变, 进而影响信号光的传输特性[1, 2]。光调制被广泛的应用于光学互联、光学信息处理、光计算与光学神经网络系统、集成光电子器件、环境监测、生物传感、医学及安全等领域。

光调制器的特性 (如图 1.1 所示) 可由其品质因子 (Figures of merit) 描述。主要包括调制速度 (modulation speed)、调制深度 (modulation depth)、工作波长范围 (operation wavelength range)、插入损耗 (insertion loss)、能量损耗 (energy consumption) 及空间大小 (footprint) 等[3, 4]。

调制速度 (或带宽) 是光调制器最为重要的品质因子之一。调制带宽由工作频率描述, 即调制降低到其最大值一半处对应的频率。对于不同工作原理的光调制器, 调制带宽的决定因素有所不同。如对于电光调制, 调制带宽由元件的 RC 延迟定义[5], 即 $B_{mod} = \frac{1}{R_z C}$, 其中 R_z 为阻抗, C 为电容, 后者与元件的特征长度成正比。若 R_z 一定, 元件尺寸越小, 对应的带宽越宽, 则电光调制器的调制速度越快。对于全光调制, 调制速度取决于材料的非线性光学性响应时间[1]。当材料给定, 不同的物理过程对应不同的响应时间。比如金属中电子云畸变导致的非线性过程弛豫时间短于飞秒量级, 而热效应过程大都长于皮秒甚至纳秒量级。一般情况下调制速度可由其在特定数据传输速率处调制光信号的能力测得 (bit/s)。绝大多数的数据传输应用 (如光学互联) 都需要高速的光调制, 然而对于诸如传感类应用一般速度即可。

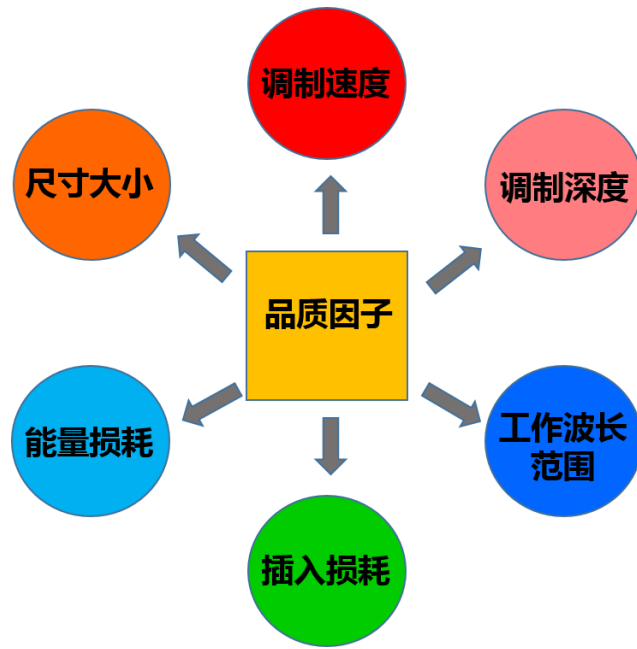


图 1.1 各品质因子示意图。

Fig. 1.1 Schematic of each figures of merit.

调制深度常对应于消光比，由材料的光学非线性效应决定。对于透射式调制器，其调制深度为最大透射率和最小透射率之比 T_{\max}/T_{\min} （对应的消光比为 $10 \times \log(T_{\max}/T_{\min})$ ），而反射式调制器的调制深度为最大反射率和最小反射率之比 R_{\max}/R_{\min} （同样对应的消光比为 $10 \times \log(R_{\max}/R_{\min})$ ）。消光比 >7 dB 是大多数应用如高速数据互联和高精度传感所需要的，而 4-5 dB 对于某些特定的应用如被动锁模、短距离数据传输也足够。这是因为光学互连系统的品质因子之间有较简单的关系，可以在某个区域不用考虑平衡其它参数而仅优化这一参数；而其它一些应用需考虑到整个系统的联系及其中各个参数的平衡。所以对于特定的应用，光调制器调制深度这一参数的要求与优化跟此系统中其它参数的权重相关。

另一个重要参数为工作波长范围，对于光学数据传输系统，调制器通常需工作在三个主要通信波段（ $0.85 \mu\text{m}$ ， $1.3 \mu\text{m}$ 和 $1.5 \mu\text{m}$ ）中的一个或多个，或可见光无线通信的可见光波段。而中红外波段的光调制是遥感、自由空间传输及国防应用的重要内容[6]。

插入损耗指当光调制器集成到光子回路中额外损耗的光功率。其是由反射、吸收以及模式耦合组成的被动损耗，由于其对系统的链路预算（通信系统中对发送端、通信链路、



传播环境和接收端所有增益和衰减的核算)及端对端损耗有贡献,故也是光调制器中需要考虑的重要参数。

能量损耗为产生每比特数据所需要的能量,其在光学互联中显得尤为重要。未来能量高效利用的可用于芯片上连接的光调制器的能量损耗目标大概为几个 fJ/bit[7],相比于如今电子元件的 2-3 pJ/bit,此类低能量损耗及高速数据连接特性使得光学元件(包括光调制器)很有希望代替相应的电子元件。

光调制器尺寸的大小也影响着其它参数。如基于 Mach-Zehnder 干涉仪的调制器光透射率在最大值和最小值间切换完成需要较长的作用长度(毫米量级)[8],这导致其切换速度较慢,且插入损耗和能量损耗都很大。对于一些有共振特性的元件,其尺寸往往可达到 10 微米量级[9, 10],这种小尺寸一方面降低了损耗,另一方面使其功能集成到微型光子回路中成为可能。这为将来的高速集成光子器件提供了有利条件。

此外,其它一些因素如稳定性、与其它元件(如光波导等)的兼容性以及制作成本等都需要在实际研究相应的光调制器中需要考虑的。在本文中,我们主要讨论光开关调制速度和调制深度的提高,并讨论不同工作波长下如何提高这两个重要的品质因子。

1.1.2 光调制的分类

目前为止,有多种多样的光调制方式,如热-光调制(thermo-optic modulation)、声-光调制(acousto-optic modulation)、电-光调制(electro-optic modulation)及全光调制(all-optical modulation)。这些调制的原理类似,即通过外界的热、声、电和光激发,使波导材料的折射率发生改变,进而改变信号光在波导上的传播特性。不同调制的最短响应时间各异,如图 1.2 所示。

热光调制主要是利用材料温度改变导致折射率改变的热光效应实现的,通常应用在硅光子回路中[11, 12]。在此类应用中,用一个电驱动的加热器加热光波导,使其折射率发生改变,一方面可导致光传播路程发生变化,另一方面可引起相位的调制[13]。对于特定

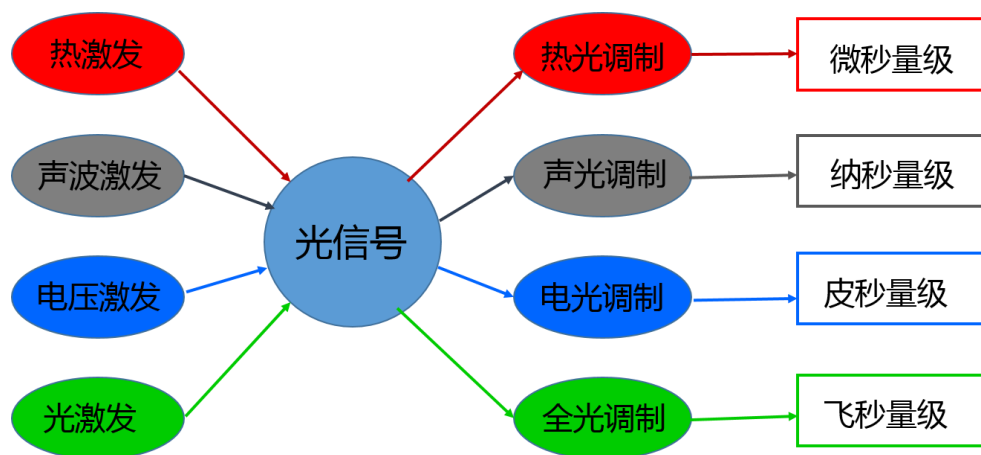


图 1.2 不同光调制的激发源和其响应时间。

Fig 1.2 Excitations and response time of different optical modulation.

的材料，热扩散与其热导率有关，一般来说都很缓慢，在毫秒到微秒量级，得到的热光调制器带宽仅能达到 MHz 量级。故热光调制适用于对调制速度要求较低的应用。

声光调制主要应用声学波在材料中的传播改变其折射率，进而改变材料对光的反射率和透射率特性。声光调制器常用在诸如调 Q 激光的脉冲产生、光通信的信号调制等领域。

电光调制是如今光调制中研究最多也是应用最广泛的一种，其可由不同的物理效应引起，常见的电光调制有 Pockels 效应及 Kerr 电光效应[13]。Pockels 效应是电场引起折射率改变的二阶非线性效应，其折射率与外加电场强度成正比；而 Kerr 电光效应为电场引起折射率改变的三阶非线性效应，其折射率与外加电场强度的平方成正比。此两个效应可改变金属或半导体复折射率的实部，进而改变了光传播的相位。电光调制的速度由其 RC 时间常数限制，对于一些材料，如石墨烯，其电光调制器在可见光和近红外的调制速度可达几十 GHz 量级 [14, 15]。此类调制的速度远高于热光调制，且其是电子信息和光信息的转换点，故其是光学互联的基本元件之一。

全光调制即用一束控制光（强光）改变材料的折射率，进而调制另一束信号光（弱光）的振幅、频率、相位或偏振态等参量[1]。由于全光调制使得信号处理在纯光子间进行，不涉及电子，调制可在光纤、波导等系统上发生，故其是集成光子器件中最重要且最基本的功能之一。因为光脉冲可以有非常宽的带宽，这使在较简单的结构上进行超快的光信号



处理成为可能。此种光调制由于损耗低、带宽宽等优点近些年受到很多研究者的关注。其最大的优势——超快的调制速度（超过 THz 带宽）使其很有希望成为未来超高速信号处理的有效手段之一。

由于全光调制可达到最高速的光调制（皮秒甚至飞秒级的调制时间），故本文主要研究超快全光调制。

1.2 超快光调制的原理

全光调制即通过一束控制光改变材料的三阶非线性光学极化率 $\chi^{(3)}$ 而调制信号光的传输特性，如使材料对信号光的反射率、透射率或吸收率发生改变。对于一定能量的入射光，所引起的 $\chi^{(3)}$ 越大，则可得到的对信号光的调制深度越大。当控制光为超短脉冲激光时（脉宽为皮秒量级甚至更短），照射到材料表面引起材料表面折射率改变的时间响应与激光脉宽相当，此时折射率可由光 Kerr 效应表示为[1]

$$n = n_0 + n_2 I, \quad (1.1)$$

其中 n_0 为线性折射率， n_2 为二阶非线性折射率， I 为控制光强度。当材料确定时（即特定频率的入射光 n_0 一定），则 n_2 与三阶非线性光学极化率成正比。非共振作用条件下材料的三阶非线性光学极化率一般都非常小，如表 1.1 所示[1]

表 1.1 各类典型材料的 n_0 ， $\chi^{(3)}$ 和 n_2 ，其中 Au 的值参考[16, 17]。

材料	n_0	$\chi^{(3)}(\text{m}^2/\text{V}^2)$	$n_2(\text{cm}^2/\text{W})$
真空	1	3.4×10^{-41}	1.0×10^{-34}
空气	1.0003	1.7×10^{-25}	5.0×10^{-19}
熔融石英	1.47	2.5×10^{-22}	3.2×10^{-16}
硅	3.4	2.8×10^{-18}	2.7×10^{-14}
金	$0.45 + 2.42i$	$(-76.8 + 4.3i) \times 10^{-20}$	$3.4i \times 10^{-16}$



对于非线性光学的研究和应用来说，如何增强材料的光学非线性效应，实现以较低的能量损耗获得尽可能大的折射率改变，这对于实现低能耗、高集成度的光子学系统有着重要的意义。因此，需采用适当的共振增强措施，如 Fano 共振[18, 19]增强材料的光学非线性效应。此外一些特殊结构的应用，如光学微腔（optical micracavity）[20]、光子晶体（photonic crystal）[21, 22]、表面等离子体共振（surface plasmon resonance, SPR）结构[23]等也可有效的增强三阶非线性光学极化率。

当飞秒级激光脉冲（尤其对于小于 100 飞秒的脉冲）与金属相互作用时，除了上述普遍的光 Kerr 效应外，还会引发一系列次级超快物理过程，包括电子升温过程、电声耦合过程、晶格的膨胀收缩过程及热扩散过程。这些过程都对应着金属表面折射率的改变，其相应的物理量及响应时间如表 1.2 所示。由于金属的三阶非线性极化率非常小，如金在 630 纳米、100 飞秒脉冲光作用下 $\chi^{(3)}$ 为 $(-76.8 + 4.28i) \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{V}^2$ ，故其引起的一系列次级过程导致的表面折射率的改变应同样很小。此亦可通过应用一些共振增强效应增强金属的一系列非线性效应并提高相应过程对信号光的调制深度。

表 1.2 Δn 的物理起因及对应的响应时间

Δn 的物理起因	物理量	响应时间
光致光 Kerr 效应	二阶非线性折射率 n_2 (对应于 $\chi^{(3)}$)	控制光的脉宽
电子和晶格升温	电子体系温度 T_e 和晶格温度 T_l	几个皮秒
晶格膨胀收缩	声学声子振荡	几百皮秒至纳秒
热扩散	材料表面温度	大于纳秒

1.3 超快光调制的调制增强

对于信号光的超快光调制，其调制深度取决于控制光引起材料折射率变化的大小，一定的控制光能量引起的折射率改变越大，则调制深度越高。由上节内容知材料的三阶非线性光学极化率越大，对应越大的二阶非线性折射率，则其在特定光能量的激发下折射率变



化越大。然而材料的光学非线性效应一般情况下都是非常小的，这需要特定的条件去增强其非线性极化率。对于已有的利用传统共振激发增强三阶非线性光学极化率的方法，响应时间会随着非线性折射率的增大而变慢[24, 25]，这非常不利于同时具备超快响应时间及大调制深度的光调制器的获得。因而各式各样的方法被用来在超快响应时间的基础上提高材料体系的光学非线性效应，其中主要有三类：1. 合成新颖的复合材料，无需特殊的结构材料本身就表现出非常大的三阶非线性光学特性[26]；2. 构建新结构，如近来研究较多的超材料（metamaterial）可增强光学非线性效应；3. 探寻新的物理机制，如介电常数近零（epsilon-near-zero, ENZ）材料亦可极大增强材料对特定波段的光学非线性响应[27-29]。近些年，构建新结构尤其得到了广泛研究，除了应用超材料外，通过用光学微腔、光子晶体、表面等离子体共振等手段亦可有效增强对光信号的调制。这些方法在保持了超快时间响应的基础上极大的提高了材料的非线性效应，进而使超快全光开关从理论到实际应用迈出了巨大的一步[30]。

1.3.1 利用光学微环形腔增强光学非线性

一个直的信号光波导可通过耦合一个介质环微腔进行光调制，如图 1.2 (a) 和 (b) 所示[31]。从直光波导入的信号光其能量可通过倏逝波有效的耦合进微环中。当信号光的频率对应腔的相位匹配条件时，此微环形腔可将大部分光能量耦合并存储进腔内[31]，此频率为微腔的共振频率。无控制光激发此微环形腔时，信号光处于腔共振峰中心，此时耦合效率最大，直波导传来的信号光被耦合进腔内无法透射到另一端。当有控制光激发此微环形腔时，腔的共振模式被改变了，此时不在共振峰处的信号光无法耦合进腔内则透射到直波导另一端。由于光学微环形腔的共振峰可以非常窄，故在一定控制光能量下可有效的调制信号光的透射率。2004 年，Almeida 等人[20]利用硅制作的微环形腔进行光调制，其以 25 pJ 的控制光能量得到了调制深度为 94% 的光调制器。虽然硅的非线性效应被极大的提高了，然而此类环形微腔的尺寸却限制在微米量级，这也影响了其在芯片级尺寸的光子回路中的应用。

1.3.2 利用光子晶体结构增强光学非线性

光子晶体是介电常数在空间周期性分布的人工微结构，如图 1.2 (c) [22]。由于其折射率随空间的周期分布对入射光的特殊调制特性产生了光子带隙（photonic bandgap），



入射光在两个不同组分处相互干涉的强 Bragg 散射和相消干涉形成了光子带隙。当信号光的频率在阻带 (stop band) 中时, 光子晶体则可完全反射掉信号光。通过在理想的光子晶

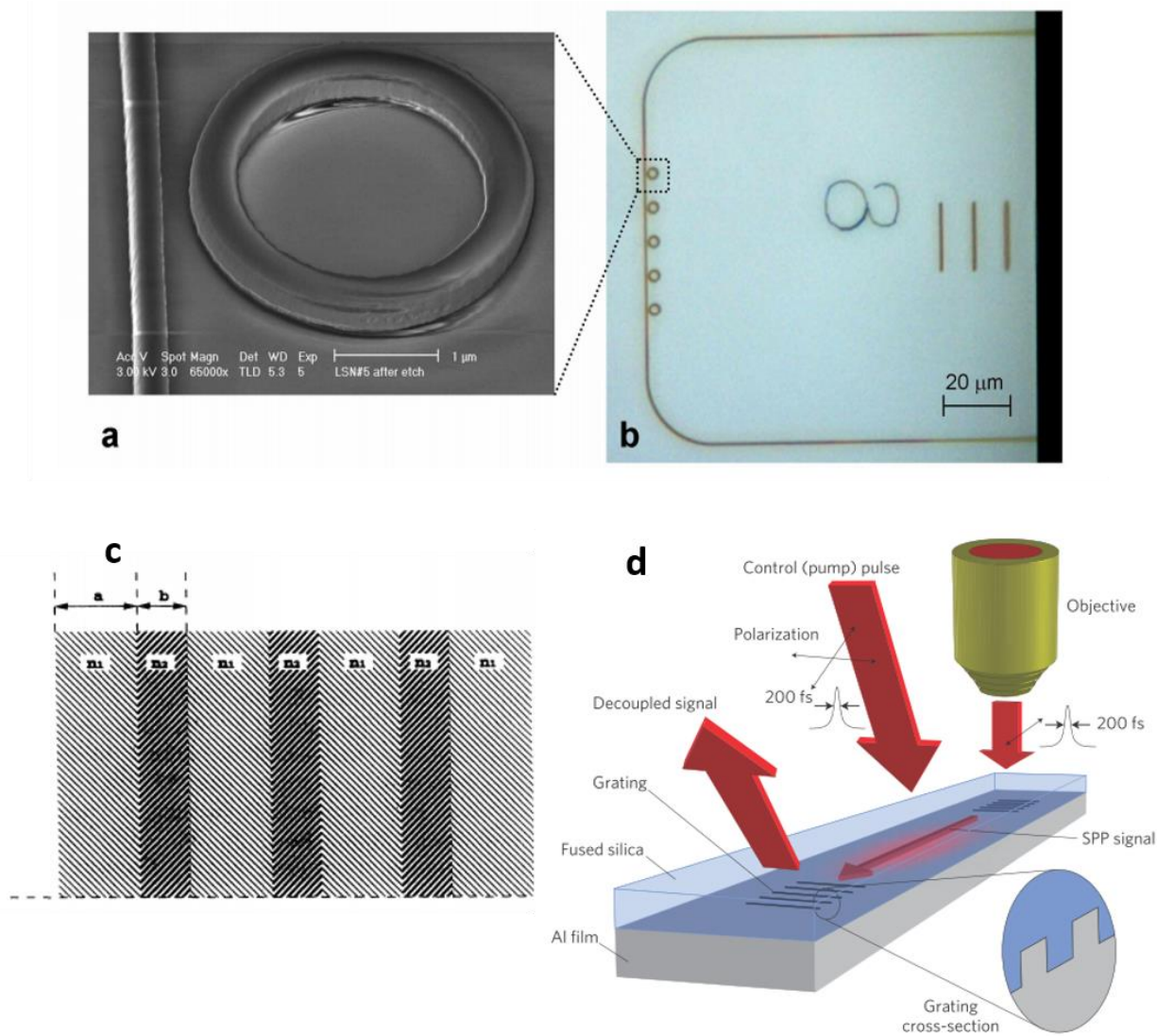


图 1.3 (a) 为直径 1.5 微米的微环形腔与一直线波导耦合的扫描电子显微镜图像; (b) 级联的微环形腔耦合到芯片边沿的 U 型波导的微观图像[31]; (c) 一维周期性光子晶体示意图[22]; (d) 表面等离激元增强铝表面非线性效应[43]。

Fig. 1.3 (a) An SEM picture of the microring resonator with 1.5- μm radius coupled to a waveguide. (b) A microscope picture of the cascaded microring resonators coupled to a U-shaped waveguide at the edge of the chip [31]. (c) A one-dimensional periodic photonic crystal [22]. (d) Plasmon-enhanced optical nonlinear effects on aluminum surface in femtosecond optical modulation [43].



体中引入晶格缺陷可得到光子晶体纳米腔，当纳米腔模式的共振波长在光子带隙中时，光子晶体对相应波长的信号光表现出高透射。在强控制光激发光子晶体材料的情况下，其介电常数发生了改变，同时其折射率的空间周期性分布亦发生变化，进而导致了光子带结构的改变。此带结构的改变相应使光子带隙和光子晶体纳米腔模式发生了移动[22]，由于光子晶体纳米腔模式的线宽很窄，所以微小的移动可引起信号光透射率极大的改变。此即利用光子晶体纳米腔模式的移动增强了组成其材料的光学非线性效应[32]。

光致阻带移动和纳米腔模式的移动最初分别由 Scalora 等人[22]和 Tran 等人[32]从实验上实现，这些结构主要应用二维光子晶体和缺陷结构产生共振模式进而增强光调制的深度。此后出现一系列利用光子晶体实现全光调制研究，典型的有 Hu 等人[21]利用有机生色团和聚合物组成的复合材料作为光子晶体材料，在控制光激发下其非线性光学极化率比单纯聚合物的高两个数量级，同时激发态的电子转移确保了超快的时间响应（1.2 ps）。其利用非常低的功率密度（0.1 MW/cm²）得到了很高的信号光调制深度（80%）。此外，Nozaki 等人[33]利用双耦合光子晶体腔结合 Fano 共振，以飞焦量级的控制光能量得到了超过 10 dB 的消光比。虽然利用光子晶体可得到明显的光学非线性增强效应，然而其较大的空间尺寸（微米量级）限制了其在芯片级光子回路中的应用。

1.3.3 利用表面等离子体共振增强光学非线性

相比于其它增强光学非线性效应的方法，利用表面等离子体共振除了泵浦引起共振峰的移动外，其显著的局域场增强特性可进一步增强材料的三阶非线性光学极化率。而且其可将光场局域到纳米尺寸，甚至小于光的衍射极限，这使得全光调制器件的尺寸大大减小，为未来大规模全光信息处理芯片中纳米量级处理单元的获得奠定了理论基础，如图 1.2 (d) 所示。由表面等离子体共振引起的光学非线性增强主要表现在两方面。一方面表面等离子体共振模式对材料的介电常数非常敏感，外界控制光引起介电常数的微小改变可极大的改变其共振模式[34, 35]。在反射式光调制中，将信号光波长选至表面等离子体共振峰中心，此时信号光被耦合进表面等离激元（surface plasmon polariton, SPP）中，显示反射率最小；控制光激发该等离激元结构可引起表面等离子体共振峰的移动，故而同样的信号光无法再充分的耦合进表面等离激元中，显示反射率变大。另一方面，表面等离子体共振的发生导致了材料表面很小的区域内产生极强的光场，此光场可增强一系列光学非线性过程[23]。



当控制光波长在表面等离子体共振峰中心时，极强的局域电场增强了信号光所感受到的共振峰偏移量，从而可额外增强对信号光的调制深度。此外，表面等离子激元的衰减时间一般在几十飞秒以内[36]，这使得其非常适于光信号的超快调制。

应用表面等离子体共振效应增强材料的非线性光学效应有着广泛的研究。在局域等离子体共振波长处激发金属纳米颗粒或掺纳米颗粒的块状材料可使此类复合结构的有效非线性极化率强于各个独立材料的数值[37, 38]，类似的将金属纳米球或纳米棒阵列覆盖在非金属材料表面亦可增强此材料的非线性光学响应[39]。在光调制中，调制光信号主要是通过外界控制光激发引起金属或其临近介质的介电函数的实部和虚部的改变导致的。利用表面等离子激元提高超快时间响应的光调制首先是在金-介质周期性结构表面进行的[40-42]，几乎同时在铝光栅表面得到了更快的调制过程[43]，虽然调制速度可达到飞秒量级，然而这些调制都是在几十 GW/cm^2 控制光强度下得到了不足 10% 的调制深度。2011 年 Zayats 组利用金纳米阵列内增强的非线性局域场在 $10 \text{ GW}/\text{cm}^2$ 强度下实现了 80% 的透射率调制深度[44]。除了金属外，半导体及二维材料亦被用于增强非线性光学效应并提高信号光的调制深度，如利用 InAs [45]、 ITO [46, 47] 及石墨烯[48] 等在中红外波段可有效的增强材料的非线性光学效应。

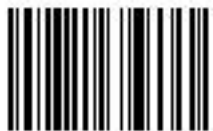
此外还有利用一些特殊材料如超材料[49]、相变材料[50]、有机-无机复合材料[51] 等增强非线性光学效应。本文中主要研究金属-介质界面产生的表面等离子体共振（包含传播的表面等离子激元和局域表面等离子体）对金属非线性效应的增强，通过在不同纳米结构下，对比了是否有表面等离子体共振时对非线性效应的增强探讨了增强机制。并在此基础上讨论了其潜在的应用。

1.4 本章小结

本章介绍了光调制的品质因子及其分类，并引出了超快光调制这一核心内容，除了介绍超快全光调制的原理外，还列举了一些重要的增强非线性光学效应的方法与国内外此领域相应的一些重要进展。



第二章为基础理论部分，通过介绍表面等离激元光子学与非线性光学内容论述了非线性表面等离激元对金属-介质表面光学非线性效应的增强特性。第三章介绍了超快光调制的测量及本文所用材料——铝在与超短脉冲激光相互作用时的一系列动力学过程，这些过程都可引起铝表面折射率的改变并调制信号光强度。第四章通过分析铝光栅表面飞秒级光调制的机制得到此超快调制的调制深度由表面等离激元引起的非线性相干过程主导，并给出了可能最快的调制速度。第五章在第四章基础上，利用表面等离激元的局域电场增强铝的三阶非线性效应以继续提高飞秒级过程的调制深度。第六章讨论了表面等离子体共振对铝纳米条带光学非线性的增强效应，并发现 **SPR** 条件下信号光对晶格温度更加敏感，这使得探测铝的声学声子振荡变得更加容易。第七章总结了四至六章的研究内容，并展望了其它可行的用于增强三阶非线性光学效应的方法及表面等离激元可能增强的其它光学非线性过程，且描述了下一步实验的内容。



14007181



第二章 非线性表面等离子激元光子学

2.1 表面等离子激元光子学

2.1.1 表面等离子激元简介

等离子激元 (plasmon polariton) 是指自由电子体系与入射电磁波相互作用形成的电子集体振荡模式, 其是与等离子体振荡相联系的一类元激发[52]。根据边界条件的不同, 金属中的等离子体振荡可以分为体等离子体振荡、传播的表面等离子体振荡和局域表面等离子体振荡三种形式。体等离子体振荡产生纯纵向激发, 其不和光波耦合, 实验上可通过电子能量损失谱来观测; 而后两个振荡可与光波耦合形成等离子激元。

表面等离子激元是光子与金属表面自由电子集体振荡的一个耦合态, 其是沿金属表面传播的一种电磁波。本质上是光波由于与金属表面自由电子的相互作用而被束缚到表面。在两者相互作用时, 自由电子与光波共振产生集体振荡, 此种表面电子的振荡和入射光电磁场的共振作用形成了表面等离子激元[53, 54]。其电磁场可由求解特定边界条件的 Maxwell 方程获得。

根据 Drude 模型, 金属中存在大量自由电子, 在外电场的作用下金属中的电子分布发生改变, 其复介电函数可表示为

$$\varepsilon_m(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\Gamma\omega}, \quad \omega_p = \left(\frac{ne^2}{\varepsilon_0 m_e}\right)^{1/2} \quad (2.1)$$

其中 ω 为入射光频率, Γ 为电子碰撞频率, ω_p 为等离子体频率, n 、 e 、 m_e 和 ε_0 分别为自由电子数密度、电量、电子质量和真空中介电常数。由上式知, 当入射光频率 ω 小于等离子体振荡频率 ω_p 时, 自由电子在电场分量诱导下产生作用以屏蔽入射光场, 致使入射光场不能在金属中传播而被反射。相反的, 当入射光频率大于等离子体振荡频率时, 由于电子来不及对快速变化的振荡做出反应以屏蔽入射电磁场, 因而入射光将透射进入金属内部并可在金属内部传播。



2.1.2 表面等离子激元的性质

1. 色散关系

考虑一个无限大介质-金属平坦界面上表面等离子激元的电磁场，可通过求解一定边界条件下的 Maxwell 方程得到表面等离子激元的色散关系，对于 p 偏振光，SPP 的复波矢 k_{SPP} 与频率 ω 的关系为[53, 55]:

$$k_{SPP} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_d \epsilon_m}{\epsilon_d + \epsilon_m}}, \quad (2.2)$$

其中 ϵ_d 为介质的介电常数，为实数， ϵ_m 为金属的复介电函数， c 为真空中光速。SPP 的复波矢由其实部和虚部组成，可表达为 $k_{SPP} = k'_{SPP} + ik''_{SPP}$ ，其中

$$k'_{SPP} = \frac{\omega}{c} \left(\frac{\epsilon_m' \epsilon_d}{\epsilon_m' + \epsilon_d} \right)^{1/2}, \quad (2.3a)$$

$$k''_{SPP} = \frac{\omega}{c} \left(\frac{\epsilon_m' \epsilon_d}{\epsilon_m' + \epsilon_d} \right)^{3/2} \frac{\epsilon_m''}{2(\epsilon_m')^2}, \quad (2.3b)$$

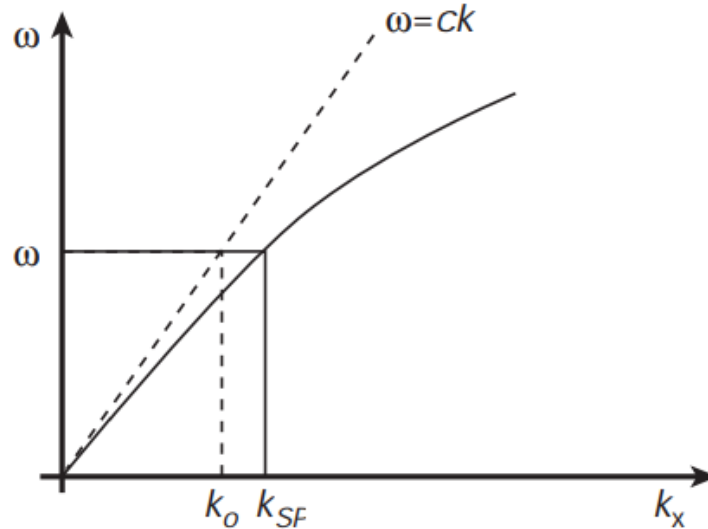


图 2.1 平坦的金属-介质表面 SPP 的色散曲线[53]。

Fig. 2.1 Dispersion relation of SPPs at a flat metal/dielectric interface [53].



ϵ_m' 和 ϵ_m'' 分别为金属复介电函数的实部和虚部。表面等离激元的实部和虚部分别对应于其传播项和衰减项，后者决定了 SPP 在金属-介质表面的传播长度。

如图 2.1 所示[53]，SPP 的色散曲线（此处仅为实部）总是位于真空中光波色散曲线的右边，即在某一特定频率下，SPP 的波矢大于同样频率的自由空间光的波矢，这意味着光动量和 SPP 动量失配，光波无法在平坦界面上直接耦合进 SPP。故若要激发表面等离激元，需要提供额外的波矢以达到波矢匹配。这里需要指出的是，图 2.1 所表示的色散关系曲线是最简单的理想界面，即不考虑金属吸收损耗的平坦单一金属-介质界面。对于无损耗多层薄膜体系，色散曲线会劈裂；如果考虑到金属的吸收项，则色散关系比较复杂，具体可见文献[56]的 2.2 和 2.3 节讨论。对于金属-介质的光栅结构，由于界面的周期性结构可使 SPP 色散曲线产生带隙而更加复杂，具体可见文献[54]的第五部分内容。

2. 空间局域长度

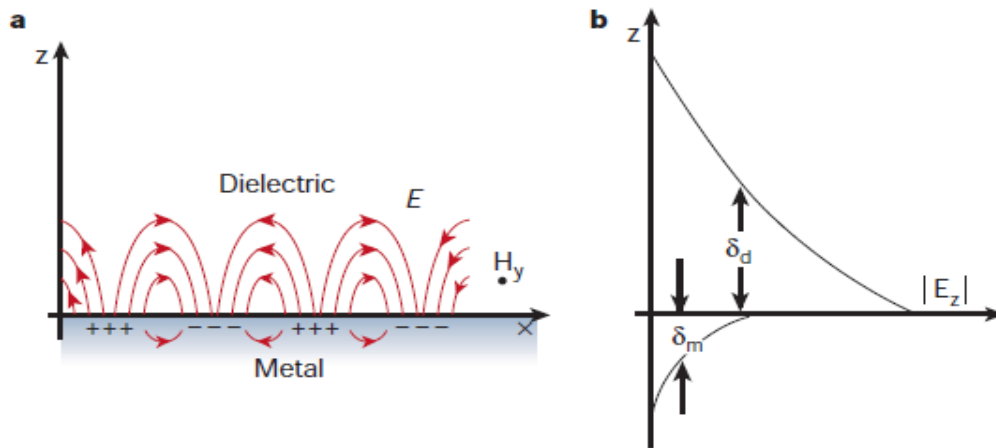


图 2.2 (a) 表面等离激元是横磁波，表面电荷的产生需要一个垂直于表面的电场。(b) SPP 场在垂直于金属表面是倏逝波，其表现出束缚的、非辐射的性质，并防止场功率传播出表面 [53]。

Fig. 2.2 (a) SPPs are transverse magnetic in character (H is in the y direction), and the generation of surface charge requires an electric field normal to the surface. (b). SPP field in this perpendicular direction is said to be evanescent, reflecting the bound, non-radiative nature of SPPs, and prevents power from propagating away from the surface [53].



表面等离子激元最显著的性质是其表面的局域性，在垂直于界面的方向上随与表面距离的增加而指数衰减，其是倏逝波，即是束缚的、非辐射的。在介质与导体中，表面等离子激元的衰减长度（场衰减至 $1/e$ 倍处）取决于入射光波长、介质与导体的介电常数，分别可表示为[55]

$$z_d = \frac{\lambda_0}{2\pi} \left(\frac{\epsilon'_m + \epsilon_d}{\epsilon_m''} \right)^{1/2}, \quad (2.4)$$

$$z_m = \frac{\lambda_0}{2\pi} \left(\frac{\epsilon'_m + \epsilon_d}{\epsilon_m'^2} \right)^{1/2}, \quad (2.5)$$

其中 z_d 和 z_m 为介质和导体内表面等离子激元的衰减长度， λ_0 为入射光波长。图 2.2 分别是金属-介质界面表面等离子激元示意图和界面两侧的衰减长度图[53]。

由上述公式可知，同一金属对不同波长入射光的衰减长度不同，对于空气-铝界面，800 nm 波长产生的 SPP 在空气和铝中衰减长度分别为 1 μm 和 16 nm，400 nm 波长产生的 SPP 在空气和铝中衰减长度仅为 300 nm 和 12.9 nm；而对于同一波长，不同金属也有不同的衰减长度，如对 800 nm 波长，空气-金表面的 SPP 在空气和金中衰减长度分别为 600 nm 和 24 nm。

3. SPP 的传播长度与波长

由于金属本身的欧姆损耗，当表面等离子激元在金属-介质表面传播时，其强度会慢慢衰减。此传播长度（强度衰减至 $1/e$ 倍处） δ_{SPP} 与表面等离子激元波矢的虚部相关，并取决于金属和介质在等离子激元频率处的介电常数。其可表示为[55]

$$\delta_{SPP} = \frac{c}{\omega} \left(\frac{\epsilon'_m + \epsilon_d}{\epsilon'_m \epsilon_d} \right)^{3/2} \frac{(\epsilon'_m)^2}{\epsilon_m''}, \quad (2.6)$$

其中 ω 为表面等离子激元的振荡频率。 δ_{SPP} 决定了等离子激元元件和光子回路的最大尺寸上限。对于空气-铝界面，当 800 nm 光入射时，产生的 SPP 传播长度为 10.6 μm ，当 400 nm 光入射时，激发的 SPP 传播长度为 6.8 μm 。

根据表面等离子激元的色散关系，其波长可由波矢的实部得到，为



$$\lambda_{SPP} = \frac{2\pi}{k_{SPP'}} = \lambda_0 \sqrt{\frac{\epsilon_m' + \epsilon_d}{\epsilon_m' \epsilon_d}}, \quad (2.7)$$

如果在金属表面上加工各种周期调制结构以实现对其 SPP 的控制，那么这个结构周期必须与 λ_{SPP} 同一量级。

2.1.3 表面等离子激元的光激发

根据 Maxwell 方程及其在金属-介质界面的边界条件，只有 p 偏振光才能激发表面等离子激元。故若想入射到平坦金属界面上的光激发 SPP，需满足入射光频率等于 SPP 的频率，且入射光平行于金属表面的波矢分量等于 SPP 的波矢，即

$$k_x = k_{SPP}, \text{ 亦即 } \sqrt{\epsilon_d} \frac{\omega}{c} \sin\theta = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_d \epsilon_m(\omega)}{\epsilon_d + \epsilon_m(\omega)}}. \quad (2.8)$$

第一个条件容易实现，然而根据 SPP 色散关系，在同一频率下 SPP 波矢大于自由空间光波波矢，故光直接入射到平坦的金属表面无法激发 SPP。然而特殊的实验装置可用于提供入射波矢的补偿。主要有两种方法用以提供补偿波矢，即衰减全反射法（Attenuated Total Reflection, 即棱镜补偿，如 Kretschmann-Räther 装置[57]和 Otto 装置[58]耦合）和衍射补偿法（如光栅耦合[55]、近场耦合[59]等）[56]。

1. Kretschmann-Raether 装置

如图 2.3(a)，利用较高的折射率的棱镜进行波矢补偿。由于棱镜是光密介质，故光波矢在棱镜中大于在空气中，在某个入射角处平面内的波矢分量等于空气-金属界面 SPP 波矢，则光被耦合到 SPP 中。

光波以角度 θ 从棱镜入射到棱镜与金属薄膜的交界面，此时发生全反射从而产生倏逝波，由于选取的金属薄膜厚度小于倏逝波的穿透深度，在棱镜和金属薄膜交界面处产生的倏逝波可以穿透金属薄膜，从而在金属和介质（如空气）的交界面处依然有倏逝波，其波矢在平行于界面方向的分量为 $k_x = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_{prism}} \sin\theta$ ，根据色散关系，金属-介质表面 SPP 波矢为 $k_{SPP} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_d \epsilon_m(\omega)}{\epsilon_d + \epsilon_m(\omega)}}$ ，其中 ϵ_{prism} 为棱镜的相对介电常数， θ 为入射角。当频率为 ω 的光以特定的角度 θ 入射时，其波矢沿金属-空气界面方向的分量满足波矢匹配条件



$$k_{SPP} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_{prism}} \sin\theta, \quad (2.9)$$

满足时，即能激发金属-空气界面上的 SPP。

2. Otto 装置

对于厚金属膜，Kretschmann-Raether 装置不能激发 SPP，可用 Otto 装置[58]（图 2.3(b)）激发，这里棱镜被放在金属表面附近，在棱镜与金属薄膜之间有一厚度约为光波波长的间隙，介质（如空气）就位于间隙中，并且间隙的厚度要小于波长，这样倏逝波在电介质与金属薄膜界面处可激发出表面等离子激元，共振条件类似于 Kretschmann-Raether 装置。

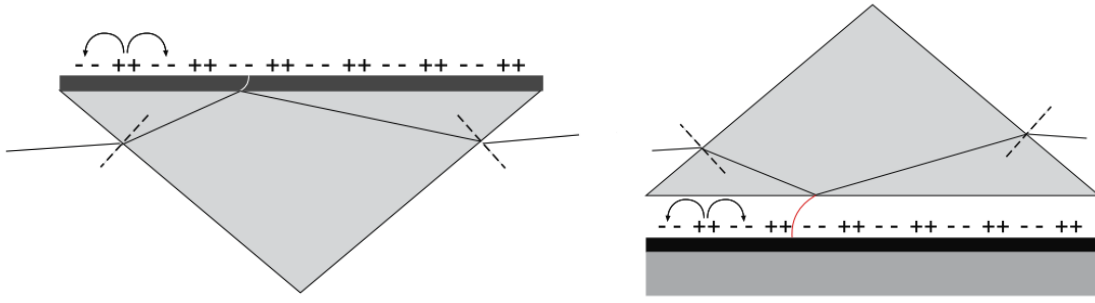


图 2.3 (a) Kretschmann-Raether 装置；(b) Otto 装置[56]。

Fig. 2.3 (a) Kretschmann-Raether configuration. (b) Otto configuration [56].

3. 光栅激发

提供波矢补偿的另一种方法是利用光栅的衍射效应[60]。如图 2.4 (a) 中，由于光栅的衍射会给入射光平行于表面的波矢分量提供整数倍的补偿波矢，即是 $2\pi/\Lambda$ 的整数倍，故衍射光的波矢分量刚好等于 SPP 波矢时产生表面等离子体共振。在周期性结构上的衍射提供的补偿波矢使入射光耦合到 SPP 中的条件为

$$k_{SPP} = \frac{\omega}{c} n_s \sin\theta \delta_p \pm m \frac{2\pi}{\Lambda}, \quad (2.10)$$



其中对于 p 偏振入射光, $\delta_p = 1$, 对于 s 偏振入射光, $\delta_p = 0$; n_s 是介质的折射率, Λ 是光栅常数, m 为正整数。

图 2.4 (b) 将光栅耦合的基本原理作一说明[55], 上图中实线圆表示等离激元波矢在 xOy 面内的绝对值 $|k| = \sqrt{k_x^2 + k_y^2}$, 虚线表示频率为 ω 的自由空间光波矢在平面内的绝对值; 下图为 SPP 色散关系曲线。其中入射光为 1, 通过吸收动量 Δk_x 转化为 SPP; $1 \rightarrow 3$ 是由于表面粗糙导致的光散射; $4 \rightarrow 5$ 表示 SPP 退耦成自由空间光子, 是 $1 \rightarrow 2$ 的逆过程。激发 SPP 所需要的波矢失配量 Δk_x 为矢量 $1 \rightarrow 2$, 其由平坦表面的某一扰动提供。在反射率实验中, 当反射极小出现时, 可观察到等离子体共振现象。而 SPP 沿光栅或者粗糙表面传播时, 沿表面的波矢分量会减小, 从而退耦成光波辐射出表面, 这是 SPP 耦合光波的逆过程。

在实验中, 我们对镀有铝膜的光栅分别用连续光和飞秒激光测试波矢匹配角, 结果都与式 (2.10) 的计算结果相符合。这说明波矢匹配关系与入射光是否为脉冲光无关。

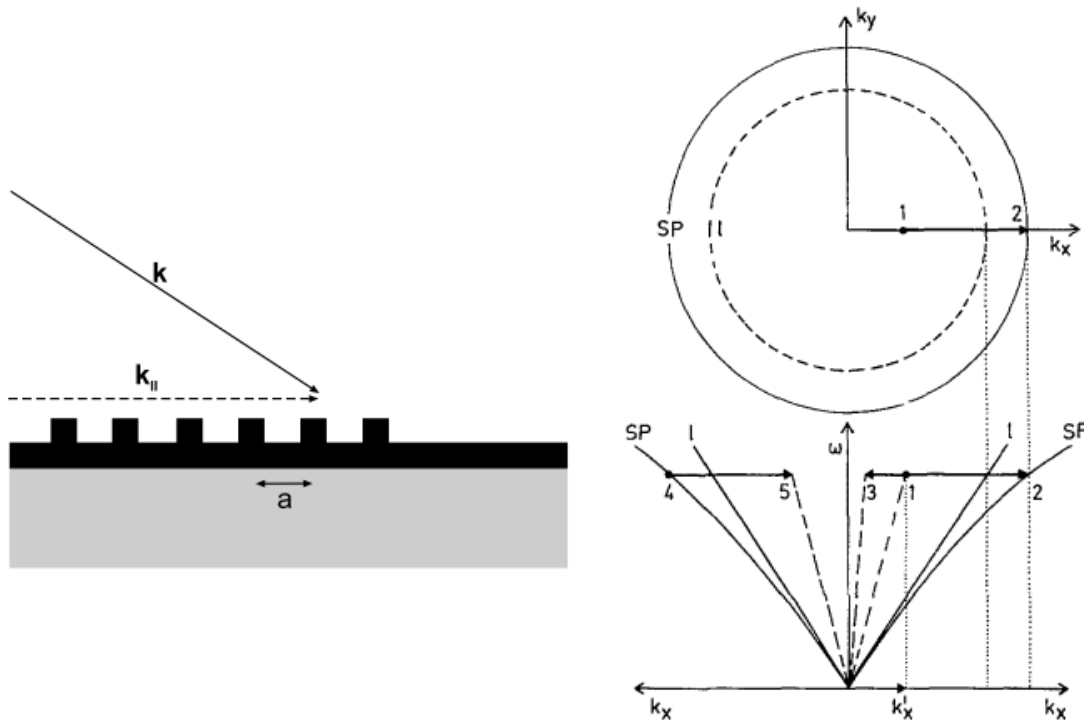


图 2.4 (a) 光栅激发示意图[56]; (b) 光栅耦合表面等离激元的原理图[55]。

Fig. 2.4 (a) Phase matching of light to SPPs using a grating. (b) Principle of the grating coupler [55].



4. 复杂结构的光激发

上述光栅激发 SPP 的公式是在均匀金属-介质体系下推导而来，且相位匹配条件仅考虑了结构的周期性，结构本身如结构元形状、光栅深度和填充因子等都未考虑。对于较复杂的纳米结构，如平面介质上的金属纳米条带、多层纳米复合结构、超材料与超表面（metasurface）等激发的表面等离子体共振，无法依赖上述简单的公式计算其共振峰位置，故需要利用 Maxwell 方程结合特定的边界条件进行数值求解。常用来计算复杂结构共振峰位置的模拟方法有时域有限差分法（finite-difference time-domain）[61]、Fourier 模型法（Fourier Model Method, FMM）[62]及解决多场耦合问题的 COMSOL Multiphysics 仿真等。

2.2 非线性光学

2.2.1 非线性光学概述[1, 63]

非线性光学是研究光致材料体系的光学性质改变的现象。一般来说只有强光场才能引起与其相互作用的材料光学性质的改变。随着 1960 年第一台红宝石激光器的发明（图 2.5(a)）[64]，强光场的获得成为了可能，随后人们意识到非线性光学现象可能会被观察

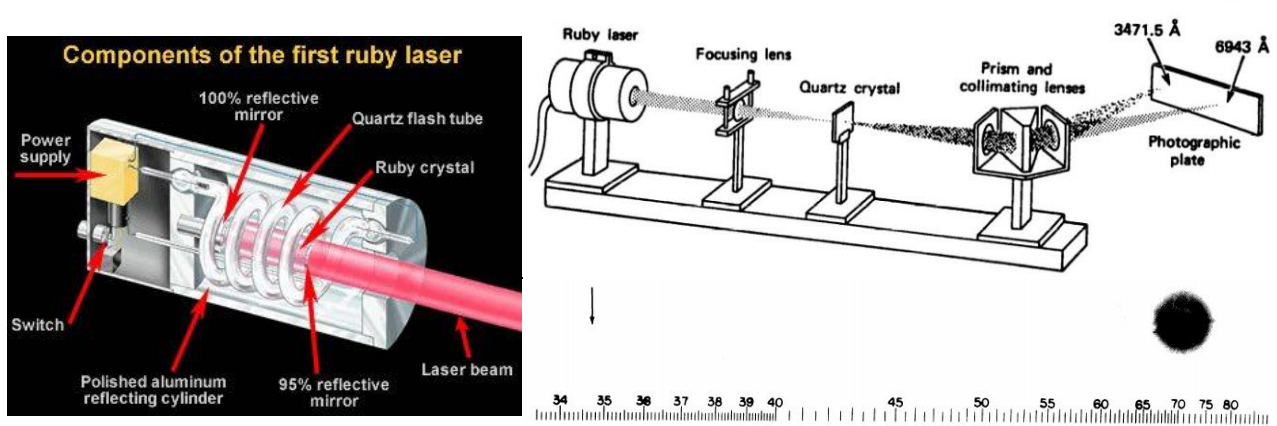


图 2.5 (a) 第一台红宝石激光器结构图；(b) 红宝石激光器通过石英晶体和棱镜分光后发现二阶非线性光学现象[65]。

Fig. 2.5 (a) Components of the first ruby laser. (b) The discovery of second-order nonlinear optical phenomenon using a ruby laser [65].



到。1961 年 Franken 等人用红宝石激光照射石英晶体并分析透射光谱，首次发现了二次谐波（Second Harmonic Generation, SHG）现象（图 2.5(b)）[65]。Bloembergen 等人得到 Franken 的实验结果后对一些基本的非线性光学问题做了严格的理论分析，从而奠定了非线性光学的理论基础[66]。

二次谐波、激光和频（Sum Frequency Generation, SFG）以及光学参量放大（Optical Parametric Amplification, OPA）等现象是激光器发明后最初发现的一些非线性光学现象。此外受激 Raman 散射的发现也为不同频率相干光源的产生提供了有效途径[67]，而自聚焦和自相位调制的发现大大的扩展了激光在科技领域的应用[68, 69]。随着超短脉冲激光技术的发展，包括激光光谱学在内越来越多的非线性光学领域被研究，一方面极大的增加了人们对非线性光学现象的认知，另一方面也使得很多现象被应用于其他领域。

为了清楚的描述光学非线性效应，考虑材料体系的电极化强度 $P(t)$ 与外加电场强度 $E(t)$ 的关系。对于传统的线性光学，光致电极化强度与电场强度呈线性关系，即

$$P(t) = \epsilon_0 \chi^{(1)} E(t), \quad (2.11)$$

其中 $\chi^{(1)}$ 为线性光学极化率。与上述基本假设相联系，描述光在介质中传播与相互作用的宏观 Maxwell 方程组也是一组线性微分方程组，即方程中只含场强的一次方项。依此假设，单一频率的光入射到非吸收介质中，其频率不发生任何变化；不同频率的光同时入射，彼此间不发生相互耦合作用，亦不产生新频率的光。对于非线性光学作用，材料体系的电极化强度可以级数展开成

$$P(t) = \epsilon_0 [\chi^{(1)} E(t) + \chi^{(2)} E^2(t) + \chi^{(3)} E^3(t) + \dots], \quad (2.12)$$

这里 $\chi^{(2)}$ 和 $\chi^{(3)}$ 分别为二阶和三阶非线性光学极化率。一般情况下，极化率都表现为张量形式，将上述表达式带入 Maxwell 方程组可得到一组包含场强高次项的非线性电磁波动方程组，此方程组可解释一种单频率光入射到特定介质中时产生的倍频效应，以及多种不同频率的光同时入射到介质中发生耦合并在新的频率组合处产生相干混频发射等现象。此外，在强光场作用下，光束在介质中单位传输距离上的光强衰减不再是简单正比于该处光强 I ，而由更加普遍的公式



$$\frac{dI}{dz} = -\alpha I - \beta I^2 - \gamma I^3 - \dots, \quad (2.13)$$

上式中等号右边第一、第二和第三项分别表示单光子、双光子和三光子吸收，相应的比例因子 α 、 β 和 γ 分别为单光子、双光子和三光子吸收系数。

通过非线性光学极化率，亦可解释在强光场作用下光学介质折射率的改变。此时折射率是入射光强 I 的函数，表示为 $n = n_0 + n_2 I$ ，其中 n_2 与三阶非线性光学极化率成正比[1]。此外由光致折射率改变引起的一系列非线性光学效应，如自聚焦、自相位调制、自光谱加宽、光学相位共轭、光学双稳态与光开关等都可很好的用非线性电极化效应描述。

材料体系中非线性电极化强度由一系列物理机制引起，主要有电子云畸变、核运动的贡献、液体中各向异性分子的再取向贡献、感应声学运动的贡献、热效应及粒子数按能级分布变化的贡献[2]。在不同的实验条件下及对于不同的非线性效应，上述各物理机制的贡献亦不同。电子云畸变几乎存在于各种类型的非线性光学过程中，尤其在光学混频过程中（包括 SHG、三次谐波（Third Harmonic Generation, THG）、和频和差频（Difference Frequency Generation, DFG）等）只需考虑电子云畸变的贡献。当作用光场持续时间远大于透明光学介质内通过电致伸缩效应产生的感应超声波变化周期时，如在受激 Brillouin 散射、自聚焦及光学击穿等过程中，感应声学运动贡献为主要贡献。在金属或一些半导体中，由光导致的电子体系及晶格的温度变化引起的折射率变化主要是热效应贡献的[1]。在本文的研究中，等离激元增强光学非线性效应主要为电子云畸变和热效应引起。

2.2.2 非线性光学现象的分类

强光场与材料相互作用时可引起一系列的非线性现象，大部分非线性光学现象都是由二阶和三阶非线性极化率引起的。

对于二阶电极化强度

$$P^{(2)}(t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2(t), \quad (2.14)$$

当改变电场强度的符号（正变负）时，其所激发的中心对称材料的电极化强度也应当改变符号（正变负）。然而由（2.14）式知等式右侧值不变，则 $P^{(2)}(t)$ 须等于 $-P^{(2)}(t)$ ，因而



$\chi^{(2)} = 0$ 。故二阶非线性光学作用仅发生在非中心对称晶体中，如双折射晶体或金属表面等。而液体、气体和中心对称晶体中无二阶非线性过程。常见的二阶非线性过程有[63]：

二次谐波：具有一定频率 ν 的单色相干光场入射到任意二阶非线性介质后在 2ν 频率处产生新的相干辐射的现象。

光学和频：两种不同频率 ν_1 和 ν_2 的单色相干光场入射到非线性晶体介质中，在介质上产生 $\nu_3 = \nu_1 + \nu_2$ 的和频相干光。

光学差频：两种不同频率 ν_1 和 ν_2 的单色相干光场入射到非线性晶体介质中，在介质上产生 $\nu_3 = |\nu_1 - \nu_2|$ 的差频相干光。

光学参量放大：一种频率较低的弱信号光束与另一种频率较高的强泵浦光束同时通过非线性介质后，弱的入射信号得到放大，强的泵浦光有所减弱；同时非线性介质还辐射出频率等于两束入射光频率之差的第三种相干光（闲频光）。

电光效应 (Pockels 效应)：在二阶非线性晶体中，折射率的改变与外加电场强度成线性关系的现象。

对于三阶非线性光学作用，其既可发生在中心对称晶体中也可发生在非中心对称晶体中，其不依赖于介质的种类（固体、液体、气体）、入射光场的振幅和相位等，故三阶非线性光学过程更加普遍。比较重要的三阶非线性光学过程有[1, 63]：

三次谐波：具有一定频率 ν 的单色光场入射到非线性介质后在 3ν 频率处产生新的辐射的现象。

四波混频 (Four Wave Mixing, FWM)：两个不同频率的光入射到非线性介质中产生两个新的频率分量，或三个频率的光在非线性介质中相互作用产生一个新的频率的光。

受激光散射：不同于弱光入射下散射过程的规律性和入射光光子简并度或光强无关，在强光作用下，光散射过程发生的规律性与入射光光子简并度、光强等参数有密切的关系，由



于受激散射有明显的阈值性，其只能在较高的入射光强下产生。常见的受激光散射过程有受激 Raman 散射、受激 Brillouin 散射、受激 Rayleigh 散射和受激 Rayleigh-Wing 散射等。

强光引起材料折射率的改变：强激光经过光学材料时会引起其介电常数的改变，除了电光效应属于二阶非线性极化率引起的外，其它绝大多数现象，如光 Kerr 效应、热效应、液体中各向异性分子的趋向非线性效应及半导体带间跃迁导致的非线性效应等都属于三阶非线性效应。

除了常见的二阶和三阶非线性过程外，还有高阶非线性过程，如高次谐波（High Harmonic Generation, HHG）等。本文主要讨论强光引起的三阶非线性效应。

2.2.3 强光引起的折射率改变

在本文中，激光与金属相互作用时引起金属表面折射率的改变与非线性光 Kerr 效应及热效应有关，故这里主要介绍这两种非线性效应。

1. 光 Kerr 效应引起的折射率改变

当一束强光入射到光学材料上并与其相互作用时，其所感受的折射率 n 一般可表示为

$$n = n_0 + \Delta n = n_0 + 2\bar{n}_2 |E(\omega)|^2, \quad (2.15a)$$

其中 \bar{n}_2 描述折射率随光强增加的比率， $E(\omega)$ 为光场振幅。此式所描述的折射率改变被称为光 Kerr 效应。此效应亦可由非线性极化系数描述，结合有效非线性极化系数有

$$\bar{n}_2 = \frac{3\chi^{(3)}}{4n_0}. \quad (2.15b)$$

而对于两束非共线的光束，其中一束强光用于引起折射率改变而另一束弱光用于探测折射率的改变，此时探测光感知的非线性极化强度是单束光影响其自身非线性极化强度的两倍 [1]，探测光感受到的折射率为

$$n = n_0 + \Delta n = n_0 + 2\bar{n}_2^{(\text{cross})} |E(\omega)|^2, \quad (2.16a)$$

$$\text{其中 } \bar{n}_2^{(\text{cross})} = \frac{3\chi^{(3)}}{2n_0}, \quad (2.16b)$$



因而强光束导致与其同频率的弱光束感应到的折射率改变亦是其感应到自身折射率改变的两倍[70]。

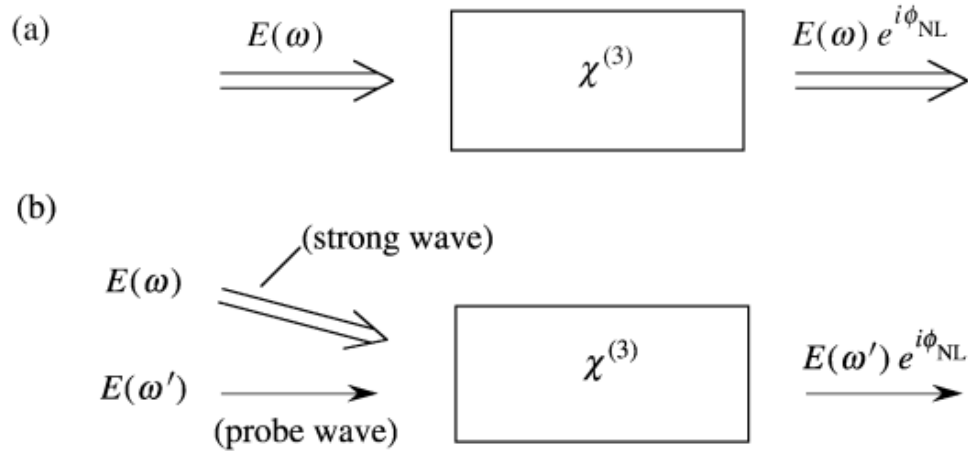


图 2.6 测量强度依赖的折射率的两种方式[1]。(a) 一束强光改变其自身的传播；(b) 一束强光影响另一束弱光的传播。

Fig. 2.6 Two ways of measuring the intensity-dependent refractive index [1]. In part (a), a strong beam of light modifies its own propagation, whereas in part (b), a strong beam of light influences the propagation of a weak beam.

上述表达式将光场振幅和非线性折射率联系了起来，然而一般在实际问题的处理中都涉及到光场强度，时间平均的光场强度可表示为 $I = 2n_0\epsilon_0c|E(\omega)|^2$ ，代入式 (2.16) 可得

$$n = n_0 + n_2 I, \quad (2.17a)$$

$$n_2 = \frac{3\chi^{(3)}}{2n_0^2\epsilon_0c}. \quad (2.17b)$$

即二阶非线性折射率正比于三阶非线性光学极化率。对某些具体的材料，不同波长或偏振的泵浦光引起的 $\chi^{(3)}$ 都是不同的，故探测光测得的折射率改变亦不同。

光 Kerr 效应引起折射率改变的物理机制主要是由电子云畸变贡献的，其响应时间极快（小于飞秒量级[1, 63]），可通过共振增强（如双光子共振及表面等离子体共振等）效应获得可控的折射率变化。



2. 热效应引起的折射率改变[1]

通常在光与非线性材料相互作用时，一部分光能量被材料热吸收，光辐射区域材料的温度进而升高，因而引起了材料折射率的改变。在热效应下，材料折射率可表示为

$$n = n_0 + \Delta n = n_0 + \left(\frac{dn}{dT}\right) T_1, \quad (2.18)$$

其中 (dn/dT) 表示对于给定材料折射率随温度的变化率， T_1 为入射光导致材料温度的改变。假定 T_1 遵循热传导方程

$$(\rho_0 C) \frac{\partial T_1}{\partial t} - \kappa \nabla^2 T_1 = \alpha I(r), \quad (2.19)$$

其中 $\rho_0 C$ 为单位体积热容， κ 为热传导系数， $I(r)$ 为光场强度随空间的分布。上式可在任意物理条件下作为边值问题求解，进而可得到材料中任一点处的折射率。对于连续光（CW laser）入射情况，上式右侧由其功率获得，即为强度值；而对于脉冲光（pulsed laser），则需换成能量密度。因为本论文中所用激光为超短脉冲激光，所以这里仅考虑与脉冲激光作用下的非线性效应。

一般情况下，脉冲光的热效应导致的材料的折射率改变正比于单脉冲能量 $Q = \int P(t)dt$ 或能量密度 $F = \int I(t)dt$ ，而非瞬时的峰值功率 $P(t)$ 和脉冲强度 $I(t)$ ，因此不可能像光学 Kerr 效应那样用 $n_2^{(th)}$ 这样的参数描述折射率的改变。而且随着脉冲宽度的变长， Δn 的值单调递增。非线性折射率可表示为

$$\Delta n^{(th)} = \left(\frac{dn}{dT}\right) T_1^{(max)}, \quad (2.20)$$

其中 $T_1^{(max)}$ 为材料最大温度改变。对于超短脉冲，其脉冲宽度 τ_0 远小于热响应时间 τ_{th} ，上面的热传递方程可近似写成

$$(\rho_0 C) \frac{\partial T_1}{\partial t} = \alpha F, \quad (2.21)$$

并假设 $\partial T_1 / \partial t$ 等于 $T_1^{(max)} / t_p$ 得到

$$T_1^{(max)} = \frac{\alpha F \tau_0}{\rho_0 C}. \quad (2.22)$$



进而可计算非线性折射率数值。

在一些情况下（如金属和一些半导体中），非线性折射率由电子温度主导，电子温度改变的时间响应远小于晶格温度改变的时间尺度，虽然到目前为止金属中电子温度主导的折射率改变是否属于光 Kerr 效应还没有完全的定论，但由于其不是光场直接诱导的非线性而是通过电子行为的次级效应，故严格来说其不属于光 Kerr 效应，因而不可用式(2.17)描述其折射率改变。此时可先通过超短脉冲激光与金属相互作用时的双温度模型（Two-temperature Model, TTM）计算出电子最高温度[71, 72]，进而可以电子的温度改变计算金属等离子体频率（plasma frequency）的改变，并结合金属的 Drude-Sommerfeld 模型计算折射率的改变，详见参考文献[27]的补充材料。

除了电子和晶格引起的热效应外，金属薄膜中的声子振荡也会引起表面温度的涨落，此温度涨落同样会引起折射率的改变。不过此 Δn 对应的反射率改变一般非常小（ $<10^{-3}$ ），很难观测到，需要借助如表面等离子体共振效应等灵敏探测手段才能探测到[73]。

2.2.4 非线性表面等离激元光子学的特性

1. 非线性表面等离激元光子学的基本概念[23]

当电子在强电磁场中的运动为非谐运动时可导致非线性光学效应的产生。等离激元结构主要以两种方式增强光学非线性效应。一种是此种金属-介质结构由于表面等离激元或局域等离子体的产生使表面电场增强[74-76]，可由频率相关的局域场增强因子描述

$$L(\omega, \mathbf{r}) = |E_{\text{loc}}(\omega, \mathbf{r})/E_0(\omega)|, \quad (2.23)$$

其中 \mathbf{r} 为位置矢量， $E_{\text{loc}}(\omega, \mathbf{r})$ 和 $E_0(\omega)$ 分别为频率为 ω 的表面等离激元的局域场强度和入射电场强度。通过设计特定的纳米结构，光场会被耦合到纳米尺寸产生极大的场增强因子，局域电场的增强可极大的增强非线性光学过程。一个极为重要的例子是表面增强 Raman 散射，即粗糙表面或周期性界面产生的表面等离激元可将本来非常弱的 Raman 过程增强几个数量级，这使单分子探测成为可能[77]。另一种是等离激元的参数，如 SPP 波矢、局域等离子体或超材料的共振频率对界面附近金属和介质的外界激发非常敏感[35, 78]，即非常微弱的外界激发能量都会导致等离激元共振的极大改变，进而引起折射率的极大改变，



实验中表现出光的反射率、透射率或吸收的巨大改变。在非线性光学领域，可应用一束控制光改变材料的折射率，进而改变表面等离子体共振条件，可用于光场的调控。

非线性效应由材料的对称性限制，所有材料都可以产生三阶非线性效应，然而仅有非中心对称材料在光与物质相互作用下的电偶极近似时才产生二阶非线性效应[1]，这是传统非线性光学的结果。虽然理论上磁效应和电四极效应可在中心对称材料中产生二阶非线性，但是这种现象即便是局域场增强的条件下也很难在实验中实现。故在非线性等离激元光子学中，二阶非线性效应的产生也受限于材料对称性。

2. 等离激元结构中的波混频

表面等离激元的产生引起金属-介质表面电场的增强可增强很多非线性过程。首先是对二次谐波增强的研究。1981年沈元壤组利用粗糙银表面研究表面增强 SHG 现象，虽然在实验中所得到的谐波信号是发散的，然而将所有方向的信号积分后得到了谐波强度比平坦银表面提高了四个量级[74]，这是由于纳米表面结构产生的局域等离子体共振增强了倍频信号；随后有很多组用各种各样的纳米结构来增强 SHG 的信号强度，如金属光栅[79]、L 型纳米颗粒阵列[80]和开口谐振环[81]等；此外不同探测手段如近场二次谐波测量[82]和远场二次谐波测量[83]也用于研究所得倍频信号的性质，发现即便是光场被局域到亚波长尺寸倍频信号也与入射光的偏振态相关。倍频信号的强度与金属微结构内部产生的倍频辐射电偶极矩 $p^{(2)}$ 强度有关，可表示为

$$p^{(2)} = \int L(2\omega, \mathbf{r}) \chi_s^{(2)} [E_{\text{loc}}(\omega, \mathbf{r})]^2 ds, \quad (2.24a)$$

由于倍频非线性主要来源于金属表面的贡献，故积分是金属表面作用面积的计算。

除了二次谐波外，等离激元结构也可增强三阶及高阶非线性过程，如三次谐波[84]、四波混频[85, 86]和高次谐波[87]等。对于 n 阶非线性过程的增强效应的计算，可用 n 阶非线性电偶极矩

$$p^{(n)} = \int L(n\omega, \mathbf{r}) \chi_s^{(n)} [E_{\text{loc}}(\omega, \mathbf{r})]^n ds, \quad (2.24b)$$

其中 $L(n\omega, \mathbf{r})$ 为 n 阶辐射波的增强因子。



3. 利用等离激元结构调控光场

应用等离激元结构提高光信号的调制主要是通过增强金属或相邻介质的三阶非线性效应实现的，等离激元的上述两种增强光学非线性效应都会提高光信号的调制深度。由表面等离激元对金属-介质界面性质非常敏感导致的非线性增强主要是由于外界激发导致的表面等离子体共振峰的移动贡献的。对于特定能量密度的光激发，共振峰在谱图中偏移量一定，则对于品质因子越高的共振（线宽越窄，峰越尖锐）光信号的调制深度越高，这对应于更大的非线性效应。另一方面，由表面等离激元的局域场增强效应引起的三阶非线性光学效应的增强则与场增强因子相关，此结论于 1998 年由 Ma 等人使用平均长近似理论在多种材料组成的复合结构中得到[88]。

微结构系统的有效介电常数 ϵ_{eff} 和有效三阶非线性光学极化率 $\chi_{\text{eff}}^{(3)}$ 可用电位移矢量 \mathbf{D} 的空间平均定义为

$$\frac{1}{V} \int dV \mathbf{D} = \frac{1}{V} \int dV [\epsilon \mathbf{E}_{\text{loc}} + \chi^{(3)} |\mathbf{E}_{\text{loc}}|^2 \mathbf{E}_{\text{loc}}] = \epsilon_{\text{eff}} \mathbf{E}_0 + \chi_{\text{eff}}^{(3)} |\mathbf{E}_0|^2 \mathbf{E}_0, \quad (2.25)$$

式中， $\mathbf{E}_0 = \frac{1}{V} \int dV \mathbf{E}$ 为外加至体系上的平均电场， \mathbf{E}_{loc} 为体系内局域场分布。系统的有效三阶非线性光学极化率可写成

$$\chi_{\text{eff}}^{(3)}(\omega, r) = \frac{\frac{1}{V} \int \chi^{(3)}(\omega, r) |\mathbf{E}_{\text{loc}}|^2 \mathbf{E}_{\text{loc}}^2 dV}{|\mathbf{E}_0|^2 \mathbf{E}_0^2}, \quad (2.26a)$$

其中 $\chi_{\text{eff}}^{(3)}(\omega, r)$ 为复合体系随空间分布的三阶非线性光极化率。在一般情况下，金属和邻近介质都对有效极化率有贡献，则

$$\chi_{\text{eff}}^{(3)}(\omega, r) = \chi_m^{(3)} \frac{\frac{1}{V} \int_m |\mathbf{E}_{\text{loc}}|^2 \mathbf{E}_{\text{loc}}^2 dV}{|\mathbf{E}_0|^2 \mathbf{E}_0^2} + \chi_d^{(3)} \frac{\frac{1}{V} \int_d |\mathbf{E}_{\text{loc}}|^2 \mathbf{E}_{\text{loc}}^2 dV}{|\mathbf{E}_0|^2 \mathbf{E}_0^2}, \quad (2.26b)$$

其中 $\chi_m^{(3)}$ 和 $\chi_d^{(3)}$ 分别为金属和介质的三阶非线性光学极化率。上述积分为控制光激发区域内进行。在某些特殊情况下，如介质为空气或者石英玻璃（这也是本论文中所用到的介质），则此类介质的 $\chi_d^{(3)}$ 比金属（如金）小了至少三个量级[1]，故可以忽略式（2.26b）中的后一项，即



$$\chi_{\text{eff}}^{(3)}(\omega, r) = \chi_m^{(3)} \frac{\frac{1}{V} \int_m |E_{\text{loc}}|^2 E_{\text{loc}}^2 dV}{|E_0|^2 E_0^2} = \chi_m^{(3)} \frac{1}{V} \int_m L(\omega, \mathbf{r})^2 dV, \quad (2.26c)$$

由上式可知金属-介质复合体系的有效三阶非线性光学极化率由微结构中分布的局域场增强因子决定。当产生表面等离激元时，大的场增强因子可极大程度上放大体系的有效三阶非线性光学极化率。

金属折射率的改变通常涉及到实部和虚部分量的改变，实部分量的改变通常会引起信号光相位的变化，而虚部分量的改变主要导致信号光强度的改变[13]。金属的光学非线性效应主要源于其对外界控制光的吸收，故其三阶非线性主要由其虚部决定。因而金属中对信号光的调制主要是改变其强度。此外金属中非线性响应速度很快，可达到飞秒到皮秒量级，故其常用于超快调控光场[37, 89]。



第三章 超快光调制的测量和金属铝中的超快过程

3.1 超短脉冲激光技术的发展

自从 1960 年第一台红宝石激光器问世后，非线性光学领域有了长足发展。激光脉冲宽度的减小一方面是提高其峰值功率的重要手段，另一方面促使了超快激光光谱学这一学科的诞生。早期脉冲激光是通过调 Q 技术 (Q-switching) 获得短脉冲的，通过调 Q 技术可得到纳秒量级的激光脉宽[90]。20 世纪 60 年代出现的锁模技术 (mode-locking) 可将输出光脉宽压缩到皮秒量级[91, 92]。至 90 年代，以钛宝石 (Ti:sapphire) 为代表的固体介质激光器的发明极大的促进了飞秒激光器的商业化，这为超快科学的发展奠定了前提条件。钛宝石激光器采用 Kerr 自锁模技术并利用钛宝石超宽的光谱既提高了激光器输出的稳定性又可获得几个飞秒的超短光脉冲[93, 94]，这为探测分子和原子体系内飞秒级动力学过程提供了足够的时间分辨，并使飞秒级光场操控成为可能。各个超快过程的时间尺度的分布如图 3.1 所示[95]。

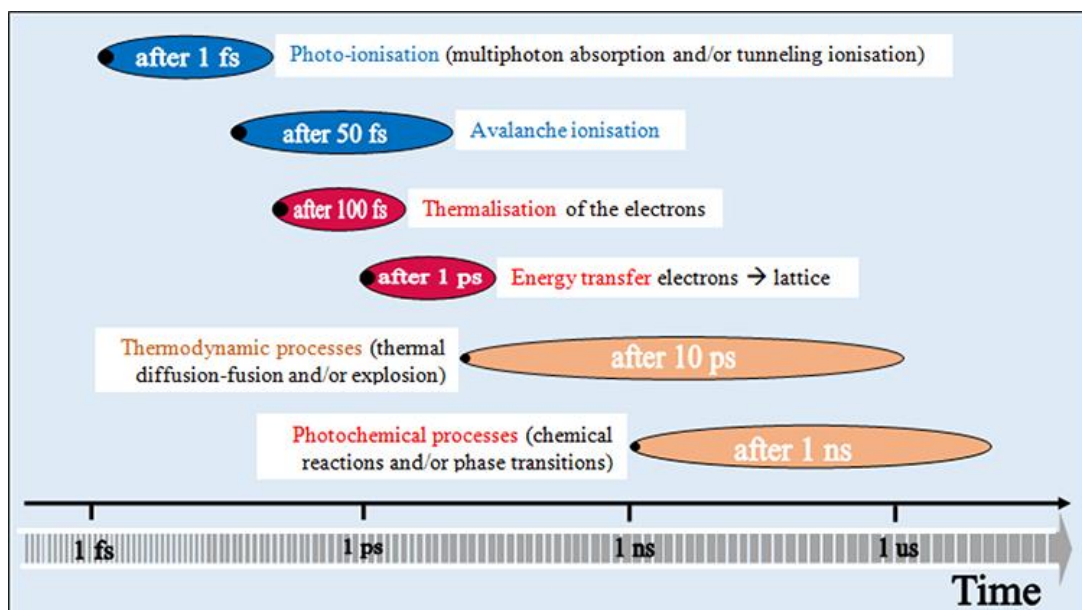


图 3.1 超短脉冲激光与材料相互作用时不同时间尺度的物理过程[95]。

Fig. 3.1 Various physical processes with different timescales during the interaction between an ultrashort optical pulse and a material [95].



3.2 泵浦探测技术

本文中虽然讨论的是利用强光与金属相互作用时所产生的的一系列动力学过程调制弱光信号，目标是如何调控光信号。然而其原理很类似于传统的泵浦-探测技术，即用一束弱光探测强光与金属相互作用后的一系列动力学过程，这里仅是研究对象的置换，故以泵浦-探测技术为出发点介绍金属中的超快光调制。

泵浦-探测技术主要是研究时间尺度在飞秒到皮秒量级的动力学过程。如图 3.2 所示 [96]，其基本原理为：两个时间上同步的脉冲分别用作泵浦脉冲和探测脉冲，由泵浦脉冲激发出样品的一系列超快动力学过程，其中时间零点定义为泵浦脉冲和探测脉冲同时到达样品表面的时刻。此后相对于时间零点之后某一延迟时刻 Δt ，探测脉冲到达样品的被激发区域并可测得泵浦引起的动力学过程在此时刻的瞬时状态。通过改变 Δt 的大小可得到一系列延迟时刻（如 t_1 、 t_2 、 t_3 等）处超快动态过程的瞬时响应，对这些离散的瞬态信号进行分析即可得到整个动态过程的信息。

在光学实验中，相对时间延迟的获得通常是通过调整两个脉冲光到达样品时的光程差。比如泵浦光和探测光相差 0.3 mm 则对应于 1 ps 的时间延迟。对于不同的超快过程，需要选择不同的时间延迟及步长来确定。

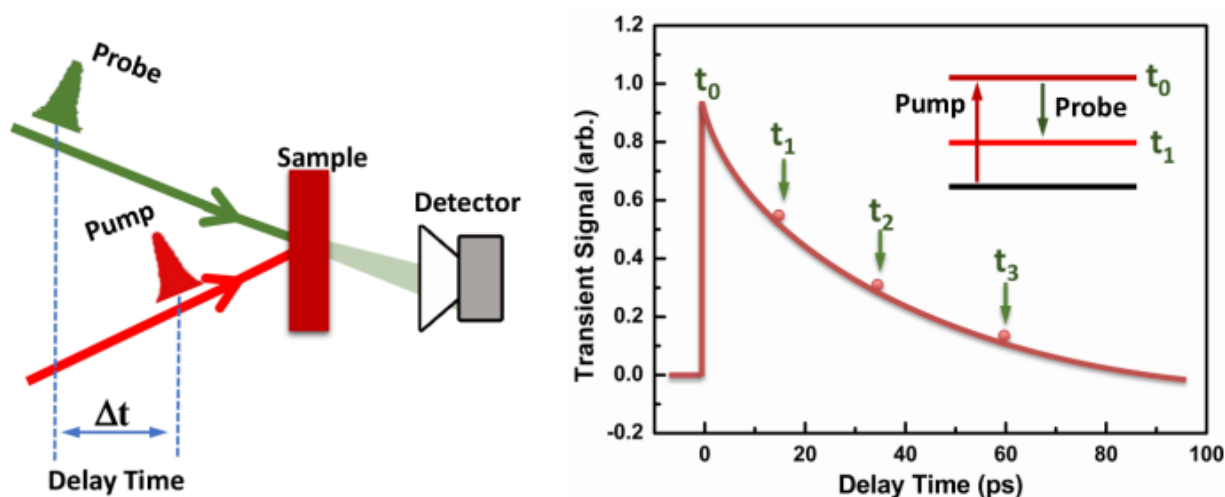


图 3.2 泵浦探测原理图[96]。

Fig. 3.2 schematic of optical pump-probe technique [96].



泵浦-探测实验的关键是确保两个脉冲在空间和时间上的重合。空间重合指探测光脉冲所探测的区域是已被泵浦脉冲均匀激发的区域，因而在实验中探测光斑大小应远小于泵浦光斑。时间重合指两脉冲在某一时刻同时抵达样品位置，一般来说很难通过实验观测到严格的时间重合点，因为探测光对泵浦光所激发的一系列动态过程中的不同过程敏感性不同，故常用探测光信号发生可观测变化的时刻为准。然而对于光 Kerr 效应，由于该效应的演化是泵浦光和探测光两者脉冲在时间域中的卷积，故可将 Kerr 效应引起的折射率最大改变（对应最高的调制深度）处定为时间零点。

3.3 超快光调制的测量

本文中所有实验都用传统的泵浦（强光）-探测（弱光）装置，其中强光和弱光分别对应于控制光和信号光（下同），来研究控制光与金属相互作用时对信号光的调制过程，在实验中主要测量信号光反射率或透射率的相对改变。实验共分三大块，包括飞秒激光放大器系统、泵浦-探测光路部分及锁相放大器。飞秒激光放大器系统是美国相干公司的商业化系统（Legend Elite HE+ USP-III, Coherent, Inc.），其将钛宝石振荡器（Oscillator）输出的中心波长为 800 nm、单脉冲能量 4 nJ、重复频率 81.6 MHz、脉宽百飞秒的脉冲（谱宽约 90 nm）先通过展宽器（Stretcher）展宽成皮秒量级的长脉冲，然后用再生放大器（Regenerative Amplifier）将单脉冲能量放大至 mJ 量级，最后通过光栅对将此皮秒级长脉冲压缩成飞秒脉冲。最终的输出光重复频率为 1 kHz、中心波长 790 到 800 nm 可调、谱宽 30 nm、最小脉宽 40 fs（脉冲时域半高全宽）。光束输出后被一分束镜分为两束，一束能量较强的为控制光、另一束能量较弱的为信号光。控制光经过电动平移台后被光学斩波器（chopper）斩成与信号光不同的重复频率，并以 θ_{control} 角入射到样品表面，信号光以 θ_{signal} 角聚焦入射至样品表面。两者的入射角在不同的实验中都不同，但其都在样品表面空间重合。在第四章和第五章的实验中主要测信号光反射率的相对改变，而第六章中既测反射率又测透射率的相对改变。实验中控制光通过改变照射区域金属的折射率进而对信号光的反射光或透射光强度进行调制。调制深度定义为信号光反射率或透射率相对改变的最大值，信号光瞬态反射光的强度由一个硅偏压光电探测器（DET100A/M, Thorlabs, Inc.）测得，如图 3.3 所示。

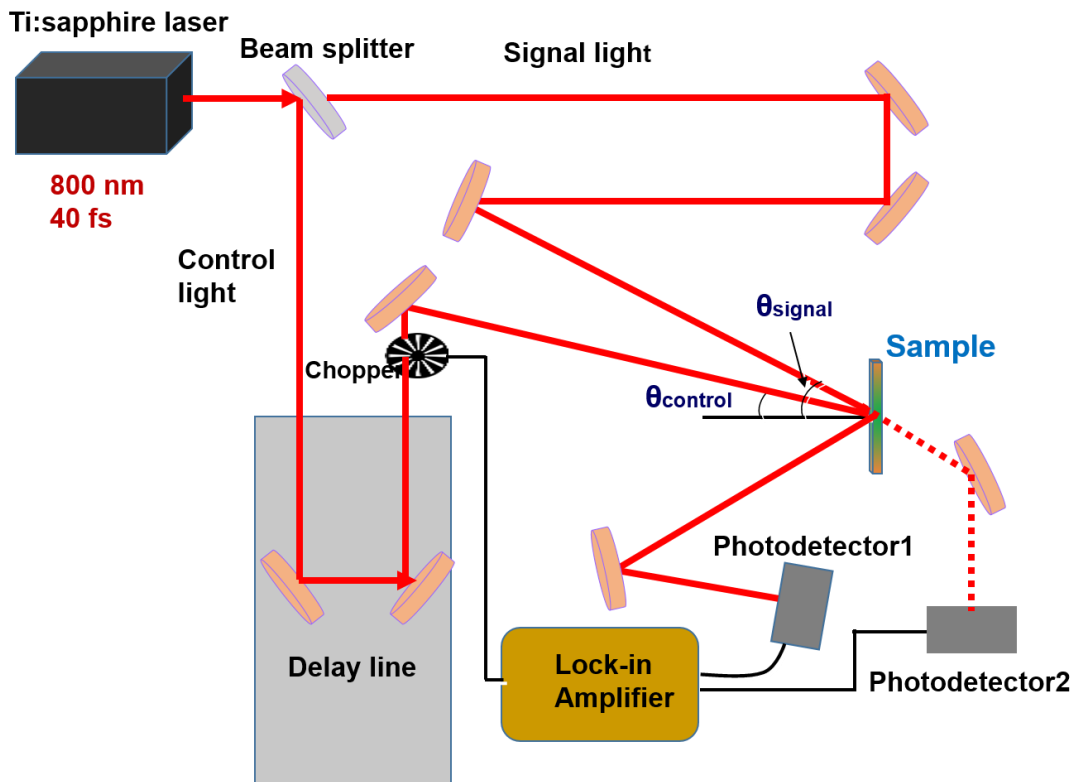


图 3.3 泵浦-探测实验装置示意图。

Fig. 3.3 Pump-probe experimental configuration.

实验中由于控制光引起的信号光反射率相对改变很小（百分之几），且在激光 1 kHz 的重复频率下信噪比较低，故需要应用锁相放大技术通过选频输出提高信噪比。锁相放大器采用在无线电电路中非常成熟的外差式振荡技术，把被测信号通过频率变换的方式转变成直流。外差式振荡技术中被称为本机振荡（Local Oscillation）的、用于做乘法运算的信号，在锁相放大器中被称为参照信号，是从外面输入的。锁相放大器能够（从被测量的各种信号中）检测出与这个参照信号频率相同的分量。在被测量的信号里所包含的各种信号分量中，只有与参照信号频率相同的那个分量才会被转换为直流，因而才能够通过低通滤波器（Low-pass Filter）。其他频率的分量因为被转换为频率不等于零的交流信号，所以被低通滤波器滤除，如图 3.4 所示。

锁相放大器对噪声的抑制能力是由图中低通滤波器的截止频率来确定的。例如，在本实验中测量 220 Hz 的信号时，如果使用 0.1 Hz 的低通滤波器，则等效于使用 $220 \pm 0.1\text{Hz}$



的带通滤波器时的噪声抑制能力。本文的实验中，通过测试不同参照信号频率下的信噪比，最终确定当参照光为 220 Hz 时信噪比最好。此时系统所能探测到的反射率改变的分辨率极限为 0.02%。

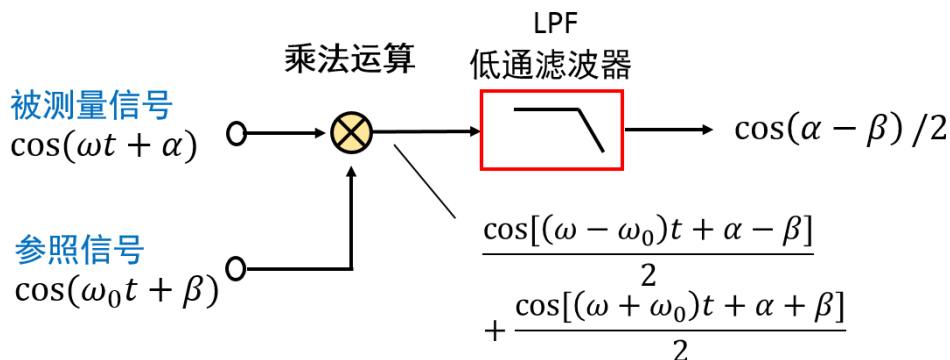


图 3.4 锁相放大器原理示意图。

Fig. 3.4 Principle of Lock-in Amplifier.

3.4 金属铝中的超快过程

正如泵浦-探测技术中探测光可以通过一系列时间延迟测得泵浦引起的超快动力学过程信息一样，反过来，通过控制光激发的一系列超快过程也可用于信号光的光场调控。此类超快过程可改变金属的反射率、透射率及传播特性。

对于不同波长的信号光，铝在一定外界功率激发下反射率与透射率的相对改变谱如图 3.5 所示[97]。在 1.55 eV（对应 800 nm 波长）处，铝的带间跃迁导致的改变量是其它波长范围中带内吸收引起的改变的几十倍。反射率的增大或减小也与带间跃迁相关。与贵金属类似，对于产生带内跃迁的信号光光子，电子温度升高引起 Fermi 面下态密度的减小和 Fermi 面上态密度的增多[Fermi 拖拽（Fermi smearing）]，这导致了吸收增强，即反射率下降；而带间跃迁附近的光子能量，则反射率上升。对本文所用 800 nm 信号光，光调制导致的反射率上升；而 400 nm 反射率的调制为下降。

当飞秒激光脉冲入射到铝表面时，可激发一系列的超快动力学过程。假如控制光脉冲宽度远小于几百飞秒的电子加热时间，则按照超快过程发生的时间顺序，首先在控制光照



射期间产生非线性光 Kerr 效应，伴随着此过程，电子体系在几百飞秒内通过电子-电子散射作用被加热至最高温度，达到热平衡后的电子体系通过电-声耦合作用将能量传递给晶格，这一过程大概持续几个皮秒，待电子体系跟晶格达到热平衡后可产生声学声子，伴随着声子在晶格内部的传播，能量逐渐扩散掉。能量扩散的时间一般远长于电-声耦合的时间，在不同结构下从百皮秒到纳秒量级不等。

在上述过程中电子温度和晶格温度的改变都可以引起金属介电函数（对应折射率）的改变[98]，其反射率和透射率都会随之发生改变。在电-声耦合过程中，双温度模型很好的描述了电子温度 T_e 和晶格温度 T_l 随时间的演化[71, 72]:

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = K \nabla^2 T_e - G(T_e - T_l) + Q(z, t), \quad (3.1a)$$

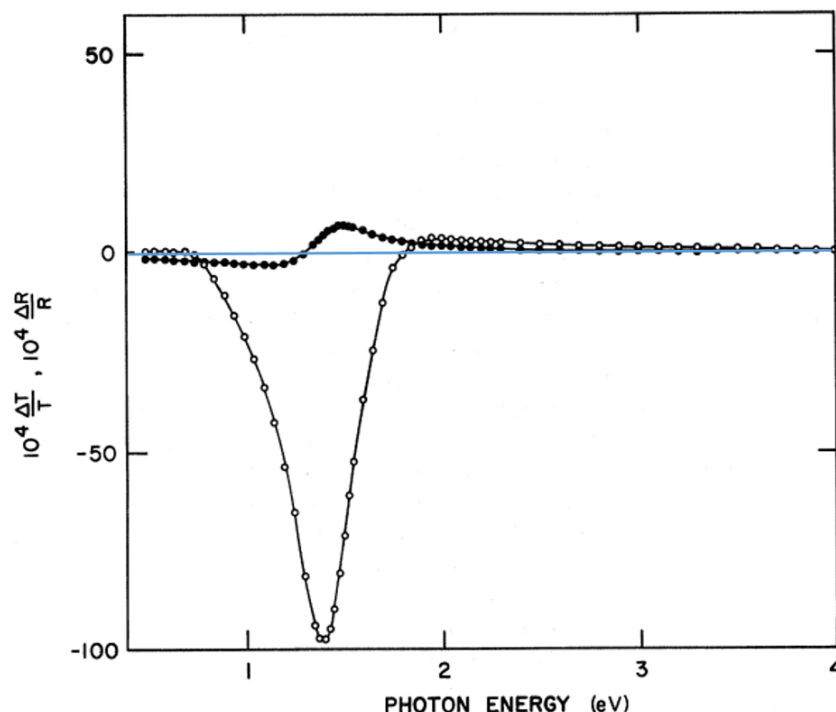


图 3.5 31 nm 厚铝膜在 370 K 温度下的热透射与反射率谱。圆圈和黑点分别代表透射率和反射率在 5W 功率激发下的相对改变[97]。

Fig. 3.5 Thermo-transmission and thermo-reflection spectra of a 31-nm thick film of aluminum at about 370 K. Open circles represent $\Delta T/T$ and closed circles $\Delta R/R$. About 5W of modulating power were dissipated in the sample [97].



$$C_l \frac{\partial T_l}{\partial t} = G(T_e - T_l), (3.1b)$$

其中 $C_e = \gamma T_e$ ，各符号代表的参数见文章的符号对照表，此模型在已知铝的各项参数后可数值求解。对于控制光引起铝表面折射率改变的探测，不同波长的信号光对控制光引起的不同过程的敏感度都不同。由于铝的 Fermi 能相对于其它贵金属较高（11.7 eV），对于 800 nm 信号光（1.55 eV），其很难探测到 Fermi 拖拽的贡献，故 800 nm 光调制的时间演化主要由晶格温度变化引起，如图 3.6。此图为 50 nm 铝膜在控制光激发下调制 800 nm 信号光的超快动态过程。而对于 395 nm 的信号光，其对控制光引起的 Fermi 拖拽很敏感，这与贵金属中的光调制很类似，如图 3.7 中 70 nm 铝膜在 3.8 mJ/cm² 的控制光激发下调制 395 nm 信号光的时间演化过程。

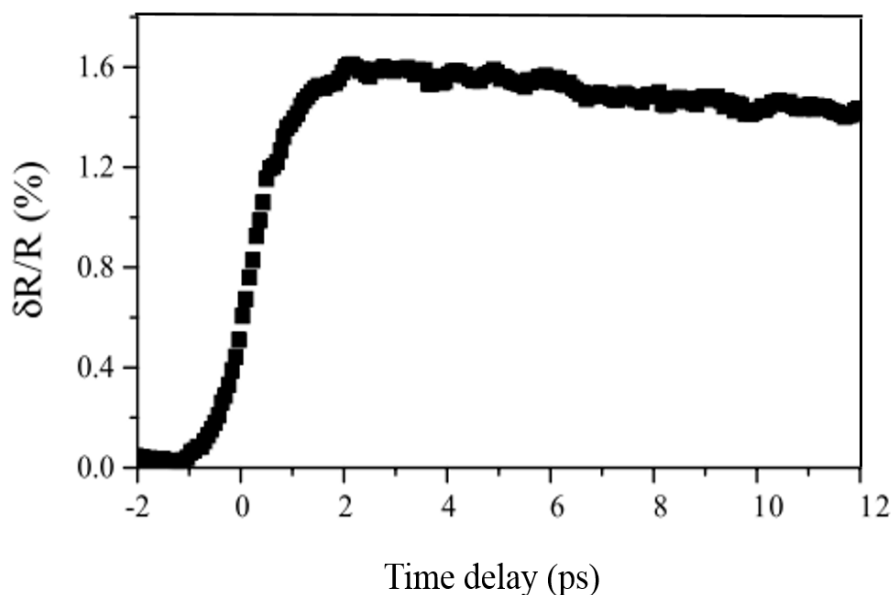


图 3.6 50 nm 厚铝膜在外界激发下用 800 nm 探测光测得反射率随时间延迟的变化曲线[102]。

Fig. 3.6 Reflectance change of an 50-nm thick aluminum film at 800 nm excited by an 800-nm, 27-mJ/cm² pump pulse as a function of time delay [102].

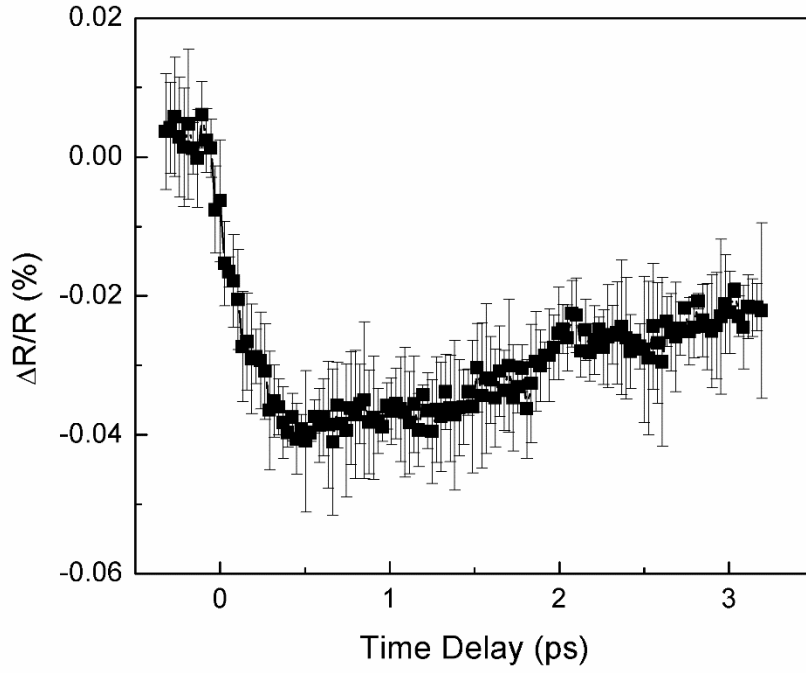


图 3.7 70 nm 厚铝膜在外界激发下用 395 nm 探测光测得反射率随时间延迟的变化曲线。

Fig. 3.7 Reflectance change of a 70-nm thick aluminum film at 395 nm excited by an 395-nm, 3.8-mJ/cm² pump pulse as a function of time delay.



第四章 铝光栅表面的飞秒级光调制

4.1 研究背景与意义

表面等离子激元是局域在金属-介质表面传播的一种电磁模式，其可将光波通过与电子集体振荡的方式耦合至纳米尺寸。由于其对金属界面及附近的介质的光学性质非常敏感，故很小的外界激发能量可导致表面等离子激元色散关系的很大改变[78]，进而导致材料折射率的很大改变，因而此效应常被作为一种增强光学非线性的方法进行光学信号的调制。此外利用表面等离子激元超越衍射极限的特性也可减小光调制器的尺寸，这为光学集成器件的发展奠定了物理基础。为了满足未来芯片级数据传输及高速光调制器件的需求，且考虑到表面等离子激元超快的退相时间（dephasing time，电子-电子相互作用时相干过程的持续时间），各种各样的等离子激元材料被用于超快的光场调制以提高调制速度和调制深度，以往的研究已有用金属[40-43]、半导体[45]、拓扑绝缘体[99]及二维材料[48, 100]等材料调制光场。调制深度可定义为经过外界激发后信号光强度或相位的最大改变，而调制速度（与带宽相关）直接由材料的非线性光学响应时间决定，更快的非线性光学响应时间对应着更高的调制速度及更宽的带宽。相比于已经被广泛研究的半导体材料，其响应时间一般在皮秒量级，金属有着极快的非线性光学响应时间，可达到几百飞秒[43]，故其很有希望被用于高速光调制器件。然而，一方面根据数据传输及处理的要求，目前的光调制速度依然需要提高才有望达到实用的需求；另一方面，对金属中超飞秒级光调制的物理机制的理解还不够清楚。

本章中我们利用表面等离子激元在铝膜光栅表面的相干非线性光学作用得到了小于 100 飞秒时间尺度的光调制过程。应用飞秒级时间分辨的泵浦-探测技术，800 nm 的信号光分别被 400 nm 和 800 nm 不同偏振的控制脉冲光调制。当控制光和信号光波长和偏振都相同时，调制过程出现了一个半高全宽（Full Width at Half Maximum）为 70 fs 的飞秒级过程，此过程时间短于之前所得的最快值（115 fs）[101]。进一步研究发现此飞秒级过程的持续时间由相互作用光脉冲宽度和等离子激元的退相时间决定，且后者给出了特定纳米结构下可能达到的最短的响应时间。此外，本章中还通过对比等离子激元条件与非等离子激元条件下的光调制探讨了此飞秒级过程的物理机制。



4.2 实验条件

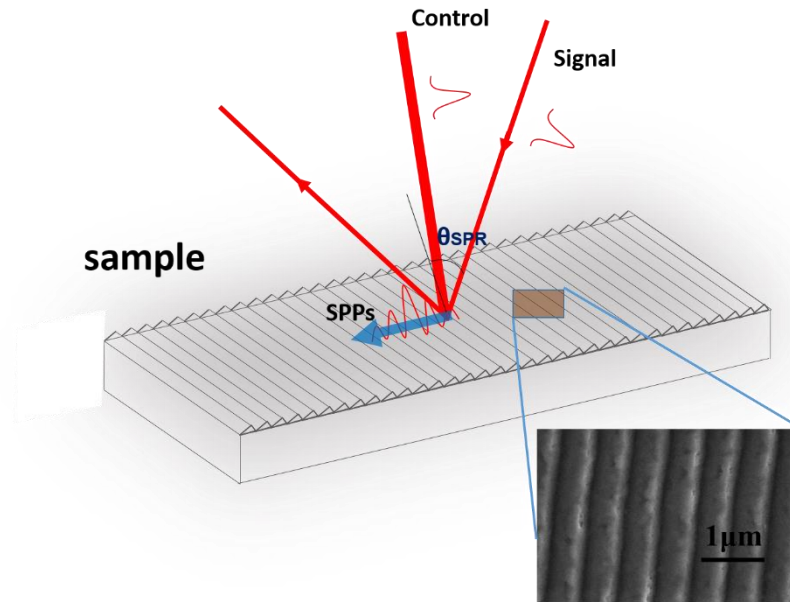


图 4.1 超快光调制示意图，插图为铝膜光栅的扫描电子显微镜图像。

Fig. 4.1. Schematic of ultrafast control of SPPs; inset, scanning electron microscopy (SEM) image of the grating.

产生表面等离激元时的光调制示意图如图 4.1 所示，本实验中样品为一镀有 50 纳米厚铝膜的锯齿光栅，基底为钠钙玻璃。光栅常数为 555 纳米、深度 223 纳米、闪耀角 26.7 度，其扫描电子显微镜（Scanning Electron Microscope, SEM）图像如图 4.1 中插图所示。实验中控制光和信号光中心波长都为 800 纳米，控制光近垂直入射至光栅表面以避免自身反射光完全返回后损害光学元件，在此角度下最大控制光能量密度为 2.5 mJ/cm^2 ；信号光分别以 SPR 角（见 4.3.1 讨论）和非 SPR 角聚焦入射至光栅表面比较表面等离激元的产生对光调制的影响，信号光能量密度约 0.07 mJ/cm^2 。两者在光栅表面的光斑大小分别为 1 毫米和 60 微米，且入射面都垂直于光栅的刻槽方向。本文中，当控制光和信号光同频率时，称为简并实验，否则为非简并实验。

4.3 结果与分析



4.3.1 表面等离激元的静态激发

表面等离激元的激发需要满足一定的相位匹配条件。通过 2.1.3 小节中第三部分的原理描述，可由式 (2.10) 结合本实验中铝光栅结构及入射光波长算得 SPR 的理论值为 25.5° 。实验中通过测量角度分辨的静态反射率可得到表面等离子体共振角的实验值。如图 4.2 所示，对于 p 偏振、40 fs、800 nm 入射光，在 $R-\theta$ 曲线中有一 0.35 的最小值，此值明显小于其它角度处的反射率；而同样条件下的 s 偏振光的反射率可达 0.82，且反射率基本不随角度变化。这是由于在此角处，绝大多数 p 偏振的光子被耦合进表面等离激元中而导致光栅的反射率曲线显示出一个吸收峰值，而根据 Maxwell 方程在一定边界条件下的解可知 s 偏振的等离激元不存在，这与实验中 s 偏振光反射率无吸收峰相符合[54]。由图可知在 SPR 角处，并非所有的 p 偏振光都被耦合进 SPP 中，有两方面因素导致 35% 的光被反射出表面。一方面本实验所用飞秒激光脉冲谱宽很宽，从 785 nm 到 815 nm 波长都有，在 SPR 条件下绝大部分中心波长附近的光子被吸收，而远离中心波长的光子无法满足波

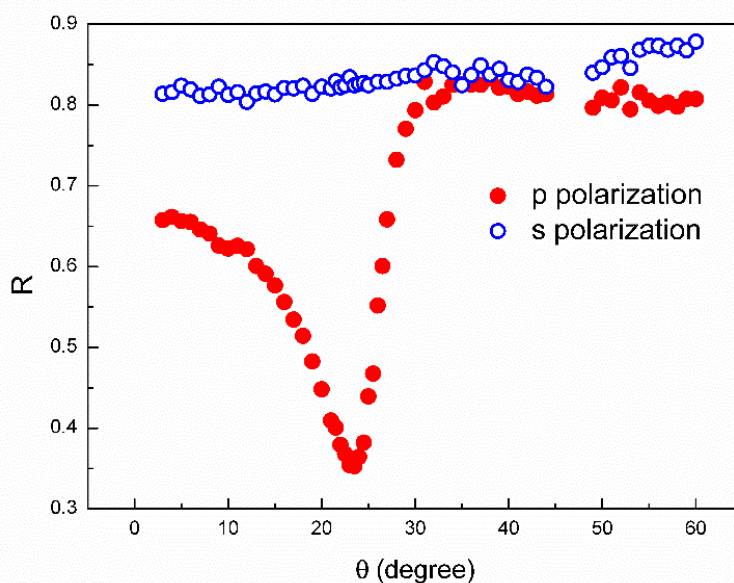


图 4.2 p 偏振（红色点）和 s 偏振（蓝色圈）的 800 nm 飞秒激光以不同角度入射到铝光栅表面时的反射率。

Fig. 4.2 Reflectivity of p - (closed red circles) and s -polarized (open blue circles) 800 nm femtosecond pulses from an aluminum-coated grating at different incident angles ($R-\theta$ curve).



矢匹配条件而无法被耦合进 SPP 中，故被反射掉；另一方面当 SPP 在光栅表面传播的时候有一部分 SPP 由于光栅作用退耦成自由空间光子从而进入探测器。此实验中 SPR 角为 23.5° ，与相位匹配条件下的理论值比较符合[55]，所差的两度可能由实验精度引起。

4.3.2 应用表面等离子激元非线性效应的动态光调制

首先我们研究了简并与非简并时 800 nm 信号光处于表面等离子体共振条件下的光调制。对于简并条件下 p 偏振控制光的激发，即控制光的光场振动方向平行于信号光产生的表面等离子激元的传播方向，光信号的调制显示出两个过程：一个在时间零点处几十飞秒的飞秒级过程和一个超过 30 皮秒的皮秒级过程，如图 4.3 和 4.4 所示。然而对于简并条件下 s 偏振控制光的激发及非简并实验中的光调制仅能观察到皮秒级的慢过程。很显然，此飞秒级过程与控制光的偏振和波长相关，仅当控制光和信号光的偏振和波长都相同时才能出

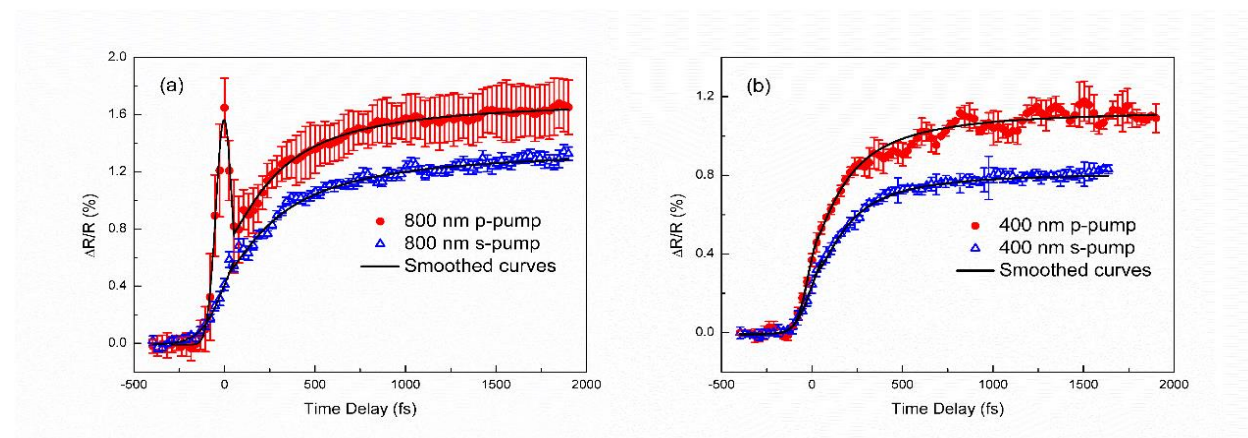


图 4.3 (a) 控制光能量密度在 1.0 mJ/cm^2 下，当 800 nm 控制光偏振平行（红色点）或垂直（蓝色圈）于表面等离子激元的传播方向时对 800 nm 信号光的超快简并调控；(b) 当 400 nm 飞秒控制光的偏振平行（红色点）或垂直（蓝色圈）于表面等离子激元传播方向时对 800 nm 信号光的超快非简并调制。

Fig. 4.3 (a) Ultrafast degenerate control of 800-nm optical signals when the 800 nm pump beam is polarized parallel (red closed circles) or perpendicular (blue open triangles) to the plasmon propagation direction at a pump fluence of 1.0 mJ/cm^2 . (b) Ultrafast non-degenerate control of 800-nm optical signals by 400-nm femtosecond pump pulses with the polarization direction parallel (red closed circles) or perpendicular (blue open triangles) to the propagation direction of the plasmon. The smoothed curves in both figures serve to guide the eye.



现，这说明飞秒级的光调制过程是源于控制光和信号光脉冲的相干作用，需要指出此相干作用未考虑相位信息。

4.3.3 皮秒级过程讨论

皮秒级调制过程不依赖于控制光的偏振和波长，仅与铝表面对控制光能量的吸收有关。如图 4.3 (a) 所示，在 1.0 mJ/cm^2 的 p 偏振控制光激发下，信号光的皮秒级过程调制深度为 1.6%；对同能量密度 s 偏振光的激发，信号光的调制深度仅为 1.3%。此较小的调制深度源于铝光栅对同样入射角处的 s 偏振光的吸收小于 p 偏振光（见图 4.2）。在时间零点后，信号光反射率的升高与瞬态漂白相关，此不同于贵金属（如金）中常见的加热导致的反射率降低[102]。当控制光脉冲照射到铝表面，电子体系吸收能量并在亚皮秒时间内被加热至最高温度，而后电子通过电子-声子耦合作用经过几皮秒时间将能量传递给晶格 [103, 104]，待两者热平衡后整个体系热扩散，并回到最初温度。此皮秒级调制过程随时

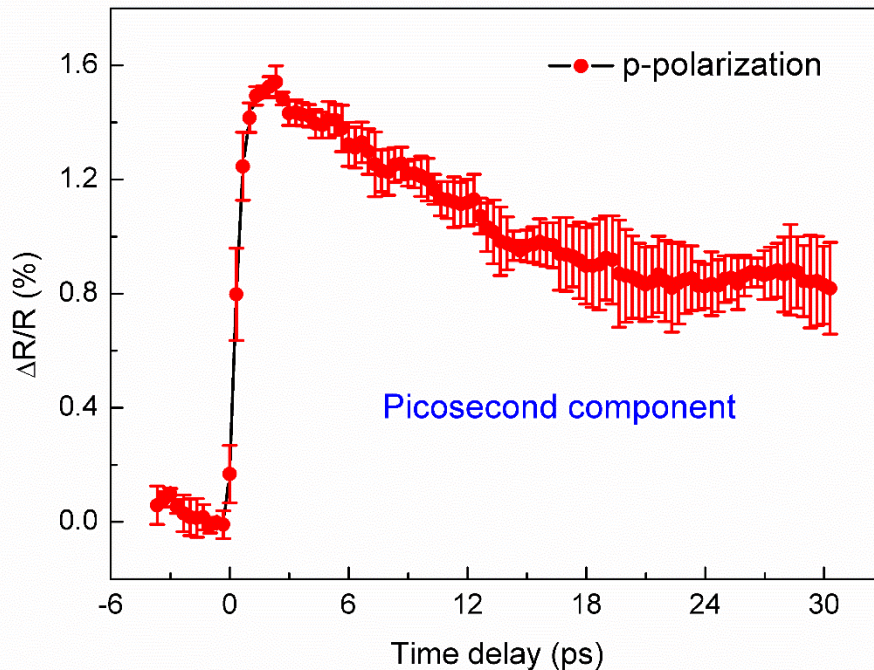


图 4.4 在 1.0 mJ/cm^2 的 800 nm 、 p 偏振控制光激发下对 800 nm 信号光的皮秒级调制过程。

Fig. 4.4 Picosecond component of optical modulation (800 nm) induced by 800 nm , p -polarized pump beam at a pump fluence of 1.0 mJ/cm^2 .



间的变化曲线由晶格温度主导，这是因为铝的 Fermi 能（11.7 eV）一般要高于其它贵金属，因而 800 nm 光（1.55 eV）引起的 Fermi 拖拽较小[105]，由于金属中 Fermi 拖拽是引起折射率依赖电子温度的主要因素，故铝在 800 nm 光作用下折射率的改变主要依赖于晶格温度而非电子温度。本实验中调制深度主要由晶格温度的最大变化引起的折射率改变决定，由热传递方程的结果（2.21）晶格体系的最大温度与入射光能量密度成正比关系，故吸收的控制光能量越大，导致的电子晶格体系温度越大，进而调制深度越大。

4.3.4 飞秒级过程调制机制讨论

图 4.3 (a) 中的飞秒级调制过程持续时间与控制光脉宽相当，且表现出很强的波长和偏振依赖特性，可初步判断此过程可能源于非线性光 Kerr 效应。光 Kerr 效应指出，当控制光照射材料表面时（此处为铝），激发材料的三阶非线性光学极化率并可引起材料折射率的改变，其表示为 $n = n_0 + \Delta n = n_0 + n_2 I$ ，其中 n_2 与 $\chi^{(3)}$ 成正比。当控制光强度升高时，材料折射率的改变 Δn 正比于光强。对于确定波长和偏振的信号光，一般情况下，其所感受到的 $\chi^{(3)}$ 与控制光的波长和偏振都相关。本章比较两个波长，400 nm 和 800 nm p 偏振控制光产生的可被 800 nm p 偏振信号光探测到的三阶非线性光学极化率。当控制光波长与信号光一样时可观察到明显的 n_2 引起的反射率改变，而当波长不同时，起码在 400 nm 光激发下未观察到明显的由 n_2 引起的反射率改变，如图 4.3 (b) 所示。此外本文还研究了信号光为 395 nm p 偏振的紫外光对铝纳米条带（结构见图 4.5 插图）的 $\chi^{(3)}$ 的探测，如图 4.5 所示。当控制光为 395 nm 的 p 偏振光时， n_2 导致的反射率改变非常明显，而当控制光为 790 nm 的 p 偏振光时，此改变仅为前者的 1/4，即不同控制光波长下紫外信号光所测得的 $\chi^{(3)}$ 很不同。故对于不同波长不同纳米结构的铝而言，其信号光所测得的 $\chi^{(3)}$ 对应的折射率改变在波长与信号光一样时得到很显著的值。由于实验条件所限，本文中无法得到光谱中每一个波长的光对铝表面所激发的三阶非线性光学极化率的相对值，因而特定信号光所探测到的 $\chi^{(3)}$ 随控制光波长的关系还需系统的研究。根据三阶非线性光学极化率的张量特性可知，其是一个四阶张量，对于对称性不同的材料体系，张量中的独立参量数量可以很不相同，比如各向同性的材料仅有三个独立参量，其它情况下（比如界面处）非零参量更多。即便对于同一材料，当不同偏振的光入射到铝表面时，由于电场方向不同，引起的各张量元亦不同，具体对张量自然特性的讨论参见[1]。本文实验主要探测了 s 偏振和 p 偏振



两种控制光引起的 $\chi^{(3)}$ ，发现当控制光偏振与信号光偏振同方向时可测得 n_2 引起的反射率显著的改变，这与 R. Wilks 和 R. J. Hicken 在 2004 年对铝表面已有的研究[106]相符合，此外在他们的工作中通过改变控制光的偏振方向测得了一系列偏振下反射率改变的数值，发现当控制光和信号光偏振一样时所测得的光 Kerr 效应最明显，即 n_2 值最大。由上述结果可认为 $\chi^{(3)}$ 在控制光与信号光同偏振时达到最大值。这里需要指出并非所有金属都能产生可探测的 $\chi^{(3)}$ 。如金在 800 nm, p 偏振光泵浦和 800 nm, p 偏振光探测的实验中未表现出明显的光 Kerr 效应，这可能与自身电子响应时间的特性相关。

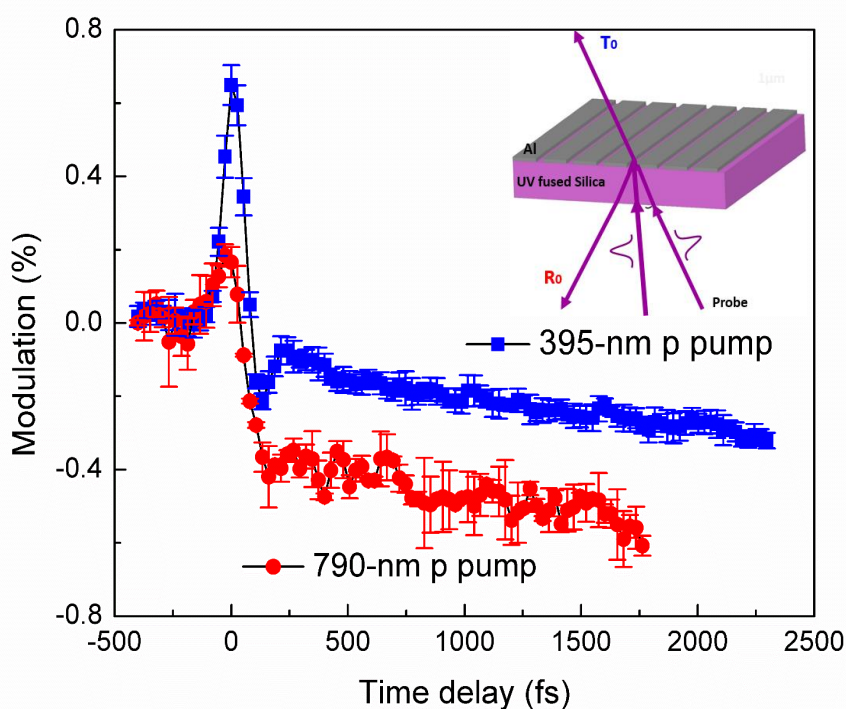


图 4.5 铝纳米条带上 25 GW/cm^2 不同波长控制光对 395 nm 信号光的飞秒级光调制。插图：铝纳米条带上对紫外光的超快光调制示意图。

Fig. 4.5 Femtosecond optical control of 395-nm light by various-wavelength control light under 25 GW/cm^2 on aluminum nanostripes. Inset, ultrafast control of UV light on aluminum nanostripes.

为了进一步研究超快简并光调制下的飞秒级过程，我们对比了表面等离激元条件下不同控制光强度处此过程的调制深度。由于实验所得零点处飞秒级过程的反射率改变包含了



一小部分皮秒级过程的变化，故应当用前者的值减去后者的即得到纯飞秒级过程的调制深度。由图 4.6 (a) 可知，当控制光强度从 12.5 GW/cm^2 上升到 62.5 GW/cm^2 时，飞秒级调制过程的反射率最大改变以非线性趋势上升，考虑到非线性光 Kerr 效应公式 (2.17) 中随着控制光强的增加折射率的改变应当是线性增长的，故此飞秒级过程除了光 Kerr 效应的贡献外，应当还有一个由表面等离子激元非线性效应引起的相干非线性过程（未考虑相位信息）。为此我们比较了信号光以 SPR 角 (23.5°) 和非 SPR 角 (40°) 入射时表面等离子激元对飞秒级过程调制深度的影响，如图 4.6 (b)。在 25 GW/cm^2 的控制光强度下，信号光产生表面等离子激元时飞秒级过程的调制深度为 1.2%，而不产生 SPP 时的调制深度不到 0.4%，前者是后者的 3 倍。由于在非 SPR 条件下，图中蓝色菱形表示的过程是主要是光 Kerr 效应引起的，所以 SPP 的产生明显增强了材料的光学非线性响应进而提高了飞秒级过程的调制深度。此增强可能源于等离子激元振荡的非谐振分量引起的相干非线性过程[107, 108]，此类简单谐振的非线性偏离改变了表面等离子激元在铝-空气界面的色散关系并极大的改变

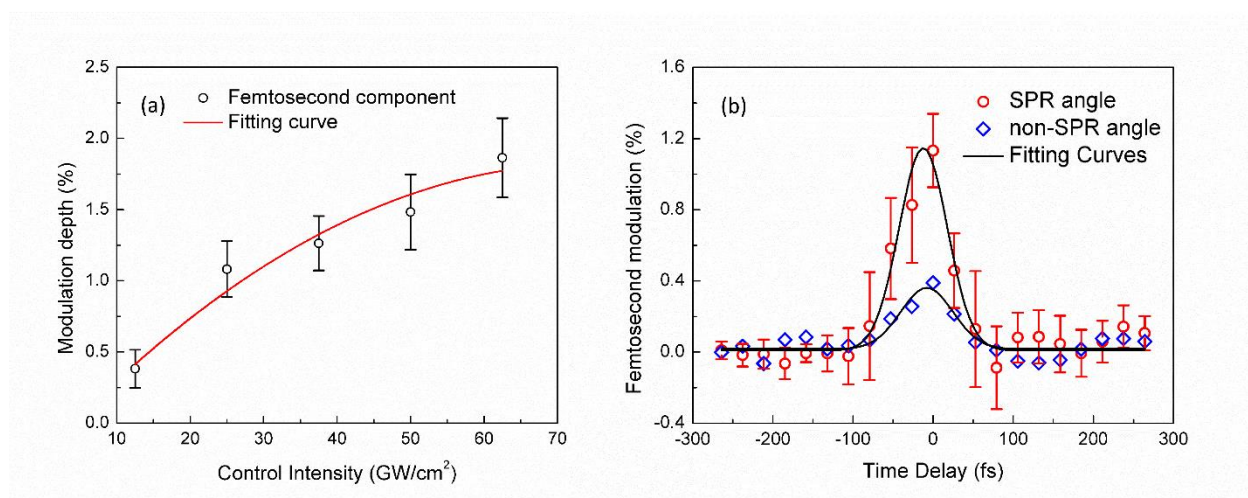


图 4.6 (a) 飞秒级过程的调制深度与控制光强度之间的关系。(b) 控制光 (800 nm) 强度为 25 GW/cm^2 时，信号光 (800 nm) 在 SPR 条件和非 SPR 条件下的飞秒级过程调制深度比较。图中曲线由高斯函数拟合。

Fig. 4.6 (a) Maximum of the femtosecond modulation as a function of the control intensity. (b) Femtosecond modulations for the probe beam (800 nm) at SPR (red open circles) and non-SPR angles (blue open diamonds) with a control intensity (800 nm) of 25 GW/cm^2 . The curves are fitted with Gaussian functions.



了信号光光子耦合到 SPP 中的效率。通过调制深度的对比可知当信号光处于 SPR 条件下时，飞秒级过程的调制是由表面等离激元引起的相干非线性过程主导的。

4.3.5 飞秒级快过程调制时间讨论

上述讨论可知，在 SPR 条件下产生的飞秒级过程并非由非线性光 Kerr 效应主导，故此过程的持续时间并非由两个光脉冲函数的简单卷积获得。通过对飞秒级过程的高斯拟合，可得到信号光产生 SPP 时此调制的时间宽度约为 70 fs，如图 4.6 (b) 所示，此时间短于之前观察到最短的光调制时间[101]。如前文所述，控制光引起的过程限制了最高的调制速度，为了理解飞秒级过程时间宽度的具体影响因素，我们改变了实验所用激光的脉冲宽度，并重复了一系列脉宽下信号光产生表面等离激元时的超快简并调控实验，如图 4.7 所示。飞秒级过程的时间宽度随着激光脉宽的变短而减小，然而实验数据和图中线性拟合显

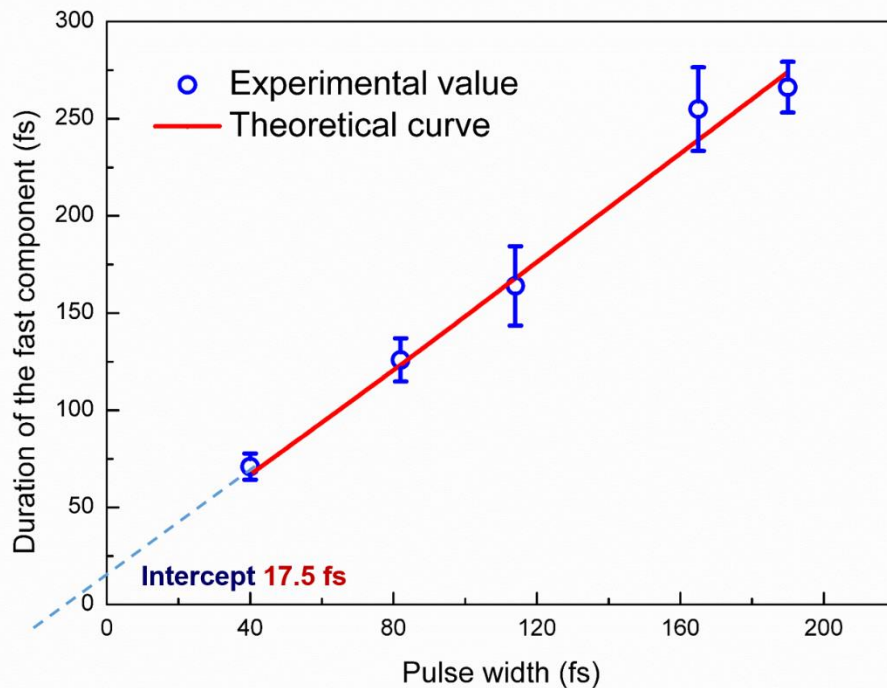


图 4.7 飞秒级调制过程的时间宽度的实验（蓝色圆圈）和理论值（红色线）随光脉冲宽度变化关系。

Fig. 4.7 Experimental (open blue circles) and theoretical (red curve) duration of the femtosecond modulation as a function of the optical pulse width.



示当激光脉冲宽度趋近零时此过程的时间宽度不为零，这说明当信号光产生表面等离子激元时光调制的飞秒级过程有一个最小值，此值限制了用 SPP 增强光学非线性时调制速度的提高。除了激光脉宽外，此最小值应当也取决于产生的非零脉宽的表面等离子激元脉冲，后着与 SPP 的退相时间 τ_{SPP} 相关。

为了研究脉宽 τ_0 为 40 fs 的信号光照射下产生的表面等离子激元的脉冲宽度，可先计算表面等离子激元的退相时间。一般来说，铝膜厚度的涨落引起线宽的非均匀展宽可导致额外退相，为了简化问题，本章只考虑均匀展宽情况。通过零级反射率谱曲线得到 SPR 谷的均匀线宽 Γ_l 进而计算表面等离子激元的退相时间，即 $\tau_{SPP} = 2\hbar/\Gamma_l$ [109, 110]。由图 4.8 (a) 可知，对于本实验所用光栅结构，SPP 线宽 Γ_l 约为 80 meV，因此此结构通过 800 nm 光激发的表面等离子激元退相时间约为 17 fs。此值与图 4.7 中飞秒级过程时间宽度在光脉宽为零的极限情况下的值（17.5 fs）很符合。进而假定 800 nm 信号光脉冲在时间域中为高斯分布、SPP 在光照射时瞬间产生（即产生时间相对其脉宽可忽略不计）且以指数衰减[111]、SPP 在某一时刻的强度正比于那一时刻激发光的强度，通过积分时刻 t 之前所有时刻的表

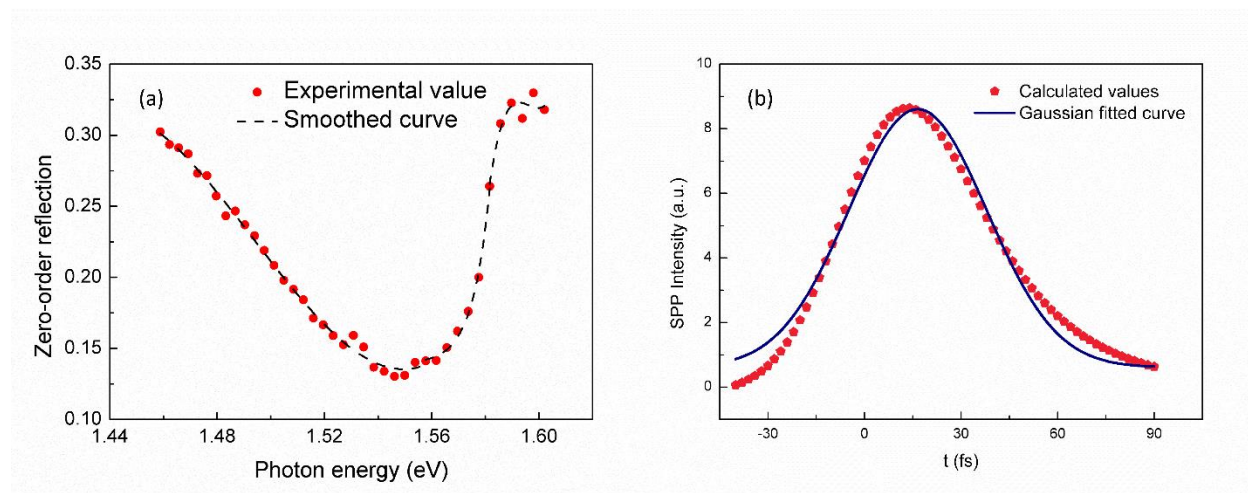


图 4.8 (a) p 偏振光以 23.5° 入射时零级反射光的反射率谱。(b) 800 nm 飞秒激光产生的表面等离子激元强度在时间域中的分布。

Fig. 4.8 (a) Zero-order reflectance spectrum of p -polarized light incident at 23.5° . The smoothed curve of the data serves to guide the eye. (b) SPP intensity in the time domain generated by an 800-nm femtosecond optical pulse.



面等离子激元（包括刚产生的和到 t 时刻还未衰减掉的）强度可得到如图 4.8 (b) 所示每一时刻的 SPP 强度数值解[108]，以简化理解对此数值解进行高斯拟合可得到 40 fs 激光脉宽产生的表面等离子激元脉宽 $\tau_{SPP,G}$ 为 53 fs。

如上所述，信号光产生表面等离子激元时的飞秒级光调制时间宽度由控制光和信号光产生的 SPP 相互作用时间决定的，此调制时间可通过这两个脉冲的卷积获得。在我们实验中，光脉冲为高斯型

$$I_o(t) = I_p e^{-4\ln 2(t/\tau_o)^2}, \quad (3.1)$$

表面等离子激元脉冲为类高斯型

$$I_{SPP}(t) = I_{SPP,p} e^{-4\ln 2(t/\tau_{SPP,G})^2}, \quad (3.2)$$

两者的卷积为可表述为

$$F(t') = I_o(t) \times I_{SPP}(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_o(t) \times I_{SPP}(t' - t) dt = I_p I_{SPP,p} A \times e^{-4\ln 2 \frac{t'^2}{\tau_o^2 + \tau_{SPP,G}^2}}, \quad (3.3)$$

其中 $A = \frac{\sqrt{\pi}\tau_o\tau_{SPP,G}}{2\sqrt{\ln 2(\tau_o^2 + \tau_{SPP,G}^2)}}$ ， I_p 和 $I_{SPP,p}$ 分别为光脉冲和 SPP 脉冲的峰值强度。当光脉冲宽度为

40 fs 且相应的 SPP 脉宽为 53 fs 时，光脉冲与 SPP 脉冲的相互作用时间为 67 fs，这与上述实验中得到的 70 fs 的飞秒级过程相符合。当激光脉宽被展宽至图 4.7 中的一系列值时，由此公式算得的理论值依然与实验所得的快过程时间宽度一致。我们预测当激光脉冲宽度继续减小时，飞秒级调制过程的持续时间会更短并得到更高的光调制速度，然而此过程持续时间不可能无限短，其最终被 SPP 的退相时间所限制。

更深入来讲，当控制光激发金属光栅表面时，电子体系首先吸收光子能量并很快升温，电子的升温过程伴随着电子间散射速率的加快，进而导致了表面等离子激元的退相时间变短 [89]，由于本文中所用激光脉宽相对此变化较宽，故未考虑 SPP 退相时间的改变对飞秒级过程调制速度的影响。然而，当控制光脉宽短至几飞秒时，其导致的 SPP 退相时间的减小则必须在光与 SPP 相互作用时间的计算中考虑。



4.4 本章小结

在本章中，我们研究了表面等离激元产生时的飞秒级超快光调制，此过程与控制光的偏振和波长相关。在超快简并调控实验中，当控制光偏振和信号光产生的等离激元传播方向一样时，可观察到一个调制时间为 70 fs（对应于 6.3 THz 带宽）的飞秒级过程。此飞秒级过程一方面由控制光引起的非线性光 Kerr 效应贡献，但更大程度上源于表面等离激元相关的相干非线性过程。通过实验及理论对比控制光和信号光不同脉冲宽度下的飞秒级过程的调制时间，发现此过程的时间宽度可以更短，其最终取决于表面等离激元的退相时间。本章所示结果是在应用表面等离激元增强材料的光学非线性响应的前提下提高光调制速度的一个有效方法，并给出了可能达到的最高速的光开关的限定。此方法也可应用到其它材料，如半导体，在保持了飞秒级光学响应时间的前提下继续提高调制深度。



第五章 应用表面等离激元增强光学非线性实现飞秒级全光开关

5.1 研究背景

超快光调制为高速集成光子器件，如光开关和光调制器提供了有效途径[20]。主动光子器件的品质因子主要包括调制速度和消光比，两者由材料的非线性光学响应时间和光学非线性效应决定。为了得到高速率、大消光比的光开关和调制器，包括金属[42, 43]、半导体[47]、超材料[42, 101, 112]和二维材料[113, 114]等在内的多种材料都被用于提高超快光调制的消光比。考虑到调制速度，如上章所讨论的金属，尤其是铝因其与超短脉冲激光（亚 50 飞秒）相互作用时极快的光学响应时间（几十飞秒）而极有希望被应用于高速主动光子器件[72, 106, 115]。光调制器的消光比通常可通过测量调制深度来度量，与上一章类似，本章中调制深度定义为信号光在某一超快过程中反射率相对改变的最大值。在控制光脉冲与金属相互作用期间，金属表面折射率的改变正比于入射光强， $\Delta n = n_2 I$ ，此即前面讨论过的非线性光 Kerr 效应。一般来说 n_2 分别包含实部和虚部，实部对光场相位调制有贡献，而虚部主要引起光场振幅的调制[13]。对于金属表面光场强度的调制， n_2 一般由其虚部 n_{2i} 决定，尤其是存在光致带间跃迁的时候[17, 116]。 n_{2i} 越大，同等控制光强度下得到的折射率改变越大，进而调制深度越大。当表面等离激元在铝表面被激发时其引起的相干非线性过程可增强飞秒级光调制，然而上章中 1.2% 的光场调制深度很难被用于实际集成光子回路的元件中。

此外，实验发现当控制光强度一定，其脉宽从皮秒到飞秒量级减小时，对应更快的非线性光学响应时间，金属的 n_2 严重降低[17, 117, 118]。如图 5.1 所示，在不同实验中虽然入射光波长不同，但金的三阶非线性光学极化率的实部 $\text{Re}(\chi^{(3)})$ 和虚部 $\text{Im}(\chi^{(3)})$ 总体上都随着作用光脉宽的变短而减小，当作用脉宽从百皮秒减小到百飞秒时，三阶非线性极化率降低了 4-5 个数量级。根据复非线性极化率和复二阶非线性折射率的正比关系[1, 17]:

$$n_2 = \frac{3}{2n_0 n_0' \epsilon_0 c} \chi^{(3)}, \quad (5.1)$$

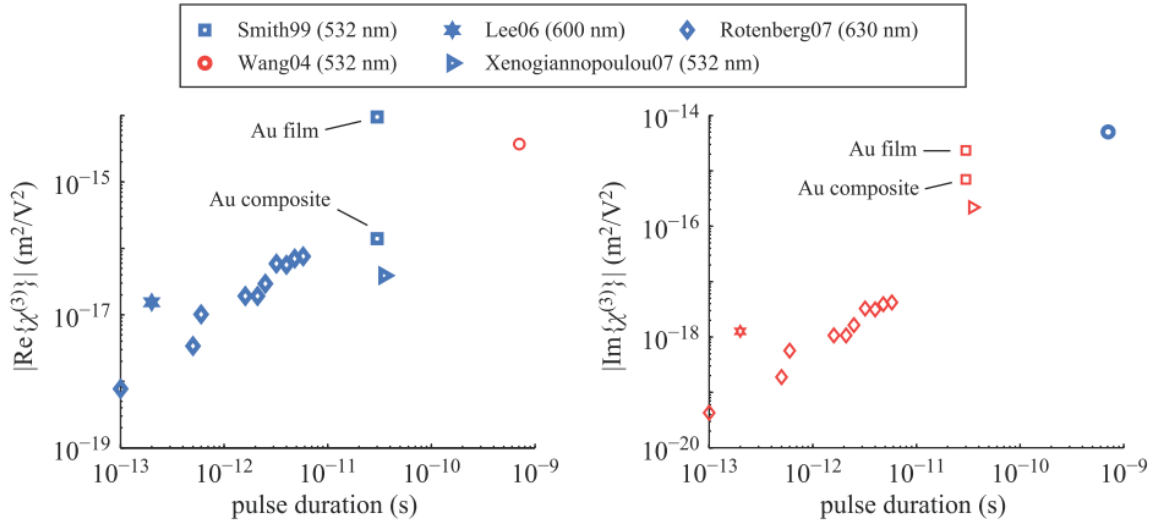


图 5.1 不同文献中通过 z 扫描方法测得的三阶非线性光学极化率 $\chi^{(3)}$ 随激光脉宽变化的关系[17]。蓝色和红色分别表示原始值为负数和正数。

Fig. 5.1 Converted values of the third order nonlinear susceptibility $\chi^{(3)}$ plotted against the duration of the laser pulse from reported z -scan measurements [17]. The thick blue and thin red markers indicate that the original values are negative and positive, respectively.

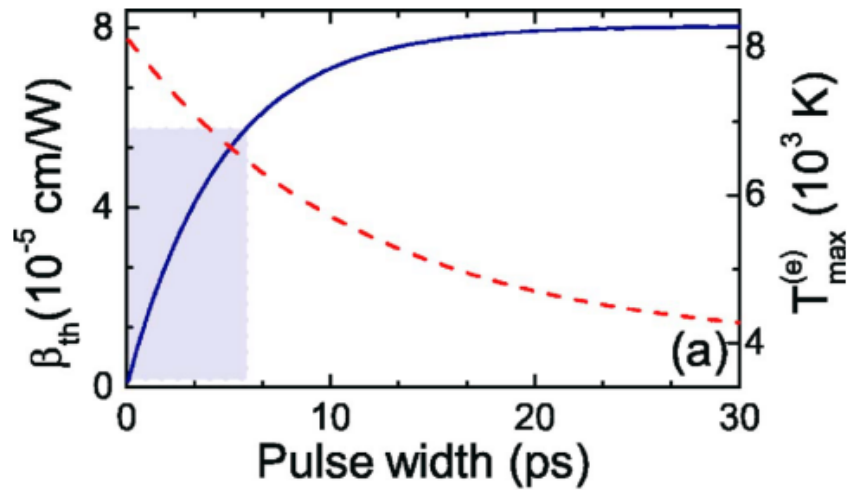


图 5.2 脉冲能量为 100 nJ、光斑大小为 40 μm 的脉冲作用下理论计算的非线性吸收系数 β_{th} 随脉冲宽度的关系，阴影区域表示实验脉宽范围；红色虚线表示电子温度峰值随入射光脉宽的关系 [118]。

Fig. 5.2 Calculated β_{th} as a function of pulse width for a 100-nJ pulse energy, a 40- μm beam diameter. The shaded area indicates the range of conditions for which the experiments are performed. The behavior of the peak electron temperature $T_{max}^{(e)}$, as a function of pulse width is plotted with the red dashed line [118].



其中 n'_0 为金属线性折射率的实部，二阶非线性折射率也降低了四五个量级，进一步根据式(2.17a)描述折射率的改变同样减小了四五个数量级。这种脉宽依赖的非线性特性极大阻碍了飞秒级调制速度下光开关调制深度的提高。此外，理论模拟结果也显示出类似的趋势。如图 5.2 中阴影部分所示，如果控制光能量不变，当脉宽小于几个皮秒时，非线性吸收系数 β_{th} 随脉宽的减小近似线性下降。而当脉宽大于 10 ps 后， β_{th} 趋于稳定。

为了得到同时具有飞秒级超高速的调制速度和足够调制深度的光开关，本章结合表面等离激元的两种光学非线性效应，一是表面等离激元对金属-介质界面的光学性质改变非常敏感，二是表面等离激元可以增强金属表面的局域电场强度从而很大程度上增强三阶非线性光学极化率，以提高飞秒级光脉冲与金属相互作用时的光学非线性响应，进而提高光开关的消光比。

5.2 实验条件

应用表面等离激元的光学非线性调制光场的实验设计如图 5.3 所示，本章实验中样品除了与第三章中类似的在钠钙玻璃基底上镀有 50 纳米厚铝膜的锯齿光栅外，还有一个 50 纳米厚的平面铝样品。锯齿光栅的周期为 555 纳米、刻槽深度 223 纳米、闪耀角 26.7° ，用于在特定相位匹配条件下激发表面等离激元。本章实验中的 SPP 角依然为 23.5° 。

泵浦-探测（分别对应于控制光和信号光）实验装置类似于 3.3 节的讨论。在本章中涉及三类实验：第一类实验为纯粹的光调制，所用样品为平面铝，通过控制光在平面铝表面产生的光学非线性过程调制信号光强度。此时控制光近垂直入射而信号光以 23.5° 入射；第二类实验中控制光近垂直入射到光栅表面而信号光以表面等离子体共振角（ 23.5° ）入射，即是光致光调制。第三类实验中控制光与信号光近平行（夹角约为 1° ）且都以表面等离子体共振角入射至光栅表面，利用强控制光产生的表面等离激元局域场增强对信号光的调制，此为表面等离激元增强的光调制。这里需要指出，对于一般品质因子较高的表面等离子体共振（峰的宽度较窄），让两束性质完全一样的光在空间上能区分开时（需有一定夹角）都处于 SPR 共振峰处很困难。本章利用了铝光栅结构较宽的表面等离子体共振，如图 4.2，角度分辨的反射率谷跨越近 1 度（从 22.5 到 23.5 度），所以实验中控制光和信



号光夹角约 1 度时可保证两者都产生足够强的表面等离子激元。为了区分信号光和控制光，实验中用了直径较小的光斑 (<10 毫米) 并将光电探测器置于距两束光交点较远的位置 (~1 米) 处，即可进行控制光 and 信号光同时产生表面等离子激元的实验。为了提高信噪比，在上述三种实验 中控制光 and 信号光在样品表面分别被聚焦成 500 微米和 60 微米的小斑，且两光斑达到空间重合。当控制光产生表面等离子激元时，铝表面不被熔化或破坏的最大控制光强约为 37.5 GW/cm^2 。在所有实验中，控制光 and 信号光都是 p 偏振且入射面垂直于光栅刻槽方向，如图 5.3 所示。

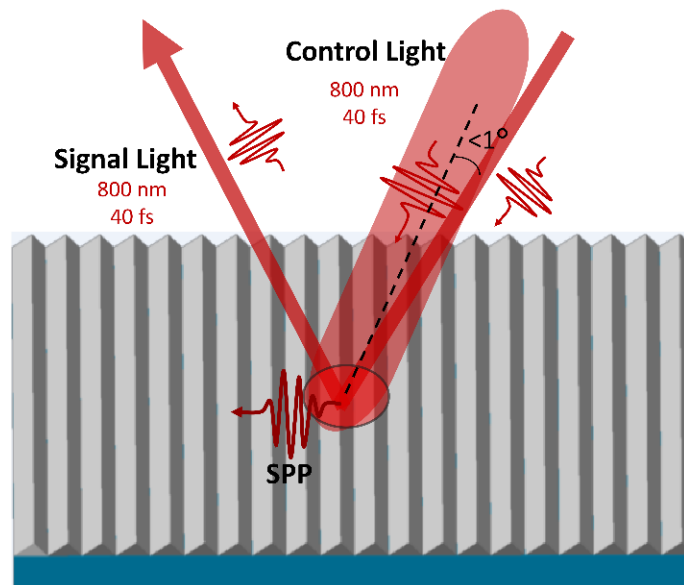


图 5.3 飞秒级光调制示意图。

Fig. 5.3 Schematic of femtosecond optical modulation.

5.3 实验结果及分析

5.3.1 实验结果

在第一类实验中，控制光与信号光都不产生表面等离子激元，故是光调制光信号。由调制深度随控制-信号光时间延迟关系可知，调制过程包含一个时间零点处几十飞秒的飞秒级过程和超过 30 ps 的皮秒级过程，如图 5.4 中黑色三角所示。飞秒级调制过程源于控制



光引起的非线性光 Kerr 效应，对于确定波长与偏振的信号光，其所能探测到铝的三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}$ 依赖于控制光的波长和偏振。当控制光与信号光同波长且同偏振时 $\chi^{(3)}$ 最大，此过程表现为相干非线性作用。调制时间为几十皮秒的皮秒级过程主要由电子声子相互作用及晶格温度的改变导致的热效应引起。对于给定的信号光，由上一章讨论可知慢调制过程与控制光的波长和偏振等参数无关。此三类实验中飞秒级调制过程与皮秒级调制过程的调制深度分别如表 5.1 所示。

表 5.1 各类实验中飞秒级过程与皮秒级过程的调制深度数值

控制光/信号光	光/光 (Light/Light)	光/SPP (Light/SPP)	SPP/SPP
飞秒级过程	0.17%	1.3%	8.7%
皮秒级过程	0.15%	1.9%	4.5%
$\theta_{\text{signal}}/\theta_{\text{signal}}$ (样品)	6.5°/23.5° (平面铝)	6.5°/23.5° (铝光栅)	22.5°/23.5° (铝光栅)

当控制光强度为 37.5 GW/cm²时，第一类实验中的飞秒级过程与皮秒级过程调制深度都非常小，分别为 0.17% 和 0.15%，此结果与控制光强度相当时平面铝的传统光学泵浦-探测实验中反射率相对改变的最大值相符合[106]。然而当信号光产生表面等离激元时（第二类实验），对于同样的控制光强度，飞秒级过程和皮秒级过程调制深度大约增强了一个数量级。飞秒级过程的调制增强主要源于表面等离激元振荡的非谐振分量引起的相干非线性过程，此过程导致了铝表面光致 Δn 的增强。而对于皮秒级调制过程，根据超短脉冲激光与金属相互作用时的双温度模型，当控制光能量密度、金属铝的膜厚及对光的吸收率等参数确定时，铝晶格最大温度 $T_1^{(\text{max})}$ 不随信号光的改变而变。此外由 (2.19) 式

$$\Delta n^{(\text{th})} = \left(\frac{dn}{dT} \right) T_1^{(\text{max})}$$



可知，除了控制光对铝表面电子体系和晶格引起的温度改变导致的折射率变化外，光致表面等离子体共振峰的移动极大的增强了折射率随温度的变化率 dn/dT 。此共振峰的移动极大的增强了铝的折射率改变 $\Delta n^{(th)}$ ，进而导致了皮秒级过程调制深度的提高。

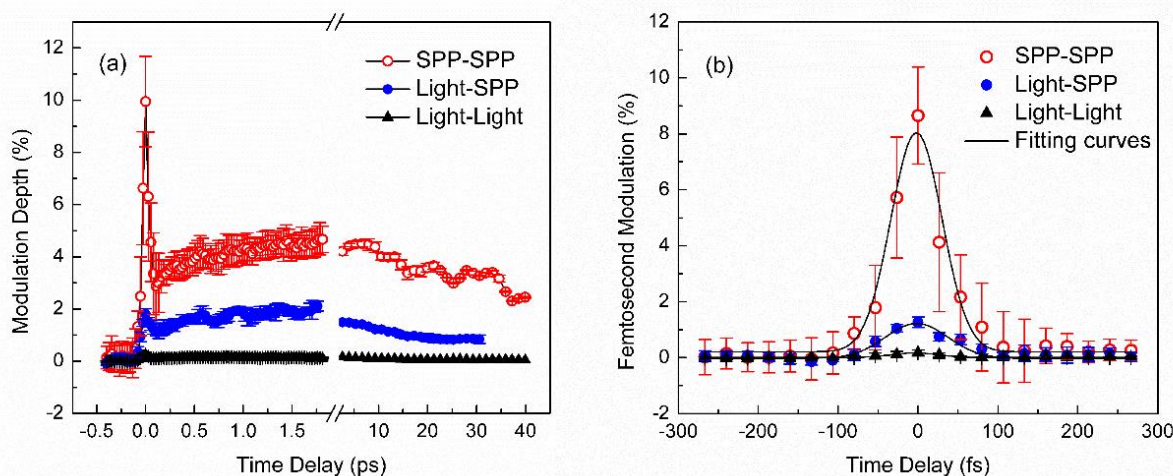


图 5.4 (a) 800 nm 控制光强度为 37.5 GW/cm^2 时三类不同实验下对 800 nm 信号光的超快光调控随泵浦-探测时间延迟的关系 (1) 控制光和信号光都不产生表面等离激元 (黑色三角); (2) 仅有信号光产生 SPP 而控制光不产生 (蓝色点); (3) 控制光和信号光都产生 SPP (红色圈)。(b) 三类实验中光调制的飞秒级过程, 图中曲线由高斯函数拟合。

Fig. 5.4 Ultrafast optical control of the 800-nm signal light as a function of the pump-probe time delay at a control intensity (800 nm) of 37.5 GW/cm^2 under various conditions: (1) both the control and signal light are at the SPR conditions (black closed triangles); (2) the signal light is at the SPR condition and the control light is not (blue closed circles); and (3) both the control and signal light are at the SPR conditions (red open circles). (b) The femtosecond component of the optical modulation in three experiments; these curves are fitted with Gaussian functions.

进一步对比第二类实验和第三类实验，即光致光调制和表面等离激元增强的光调制。在控制光强度都为 37.5 GW/cm^2 时，SPP 增强的光调制飞秒级过程和皮秒级过程调制深度分别为 8.7% 和 4.5%，这分别是光致光调制两过程的近 7 倍和 2.3 倍。此调制深度增强倍



数的不同主要是由 Δn 的不同增强机制导致。对于 SPP 增强调制的飞秒级过程，控制光激发的强局域表面等离激元场极大的增强了铝表面二阶非线性折射率 n_{2i} 并导致了调制深度的明显提高。由图 5.4 (b) 得到，快过程的时间宽度约 75 fs，此值与第三章中利用控制光和信号光互相关计算出的理论值很符合。飞秒级过程过后，控制光产生的表面等离激元通过非辐射阻尼衰减成金属表面的热电子[119]，因而强 SPP 场消失。故而相对于光致光调制，SPP 增强的光调制皮秒级过程中 Δn 的增强是由于铝表面对控制光有更多的热吸收。通过第三章中静态反射率曲线可知 800 nm 光以 SPR 角入射时对光的吸收是近垂直入射时吸收的两倍，这与图 5.4 中热效应导致的光调制深度关系相符合[1]。由于 SPP 增强的光调制中飞秒级过程和皮秒级过程调制深度的增强机制不同，且导致了明显不同的增强倍数，故可由此方法将飞秒级快过程从皮秒级慢过程中分离出来，这为飞秒级光开关的实现提供了有效途径。

5.3.2 飞秒级过程调制增强机制分析

由表面等离激元的非线性特性可知，快调制过程中 n_{2i} 的显著增强是由控制光激发的表面等离激元强局域场引起的。根据双光束的非线性光 Kerr 效应，信号光在铝-空气界面感应到的非线性折射率的虚部可表示为[1, 17]:

$$n_{2i} = \frac{3}{2n_0 n'_0 \epsilon_0 c} \text{Im}(\chi_{\text{eff}}^{(3)}), \quad (5.2)$$

其中 $\text{Im}(\chi_{\text{eff}}^{(3)})$ 为铝-空气界面有效三阶非线性极化率的虚部。由于 n_{2i} 与 $\text{Im}(\chi_{\text{eff}}^{(3)})$ 的正比关系，故在表面等离激元增强的光调制中 n_{2i} 与 $\text{Im}(\chi_{\text{eff}}^{(3)})$ 增强了相同的倍数。此处我们将局域光场强度 I_{SPP} 、 $\text{Im}(\chi_{\text{eff}}^{(3)})$ 、 n_{2i} 及飞秒级过程调制深度的增强因子分别记为 E_I ， E_χ ， $E_{n_{2i}}$ 和 E_m ，各自的定义如表 4.2 所示。一般来说 $\chi_{\text{eff}}^{(3)}$ 是由金属表面和相邻介质两者的非线性光学响应共同贡献的，然而由于空气的三阶非线性光学极化率相对于铝非常小[1]，故在这里只考虑铝的作用。应用平均场近似理论[88]及式 (2.25c)， E_χ 和 E_I 的关系可表示为:

$$E_\chi = \frac{\langle |E_{\text{loc}}|^2 \rangle_m \langle E_{\text{loc}}^2 \rangle_m}{|E_0|^2 E_0^2} \sim E_I^2, \quad (5.3)$$



其中 \mathbf{E}_{loc} 和 \mathbf{E}_0 分别表示产生表面等离激元时铝表面的局域电场强度和入射光平均电场强度, $\langle \dots \rangle_m$ 表示对金属表面体积元的平均。

本章分别用两种方法计算表面等离激元局域光场增强因子 E_I 的数值, 进而可得到三阶非线性光学极化率及二阶非线性折射率的增强因子。第一种方法利用光在金属-介质表面处的能量守恒求得。对于周期性表面, 表面等离激元局域电磁场增强因子可表示为[55, 120]:

$$E_I = \frac{2|\epsilon'_m|^2 \cos \theta_{SPR} A}{\epsilon''_m (|\epsilon'_m| - 1)^{1/2}}, \quad (5.4)$$

其中 θ_{SPR} 、 ϵ'_m 、 ϵ''_m 和 A 分别为表面等离子体共振角、金属介电常数的实部、虚部以及在 SPR 条件下金属表面对入射光的吸收系数。在本章实验中, 对于中心波长为 800 nm 的入射光, SPR 入射角、铝的介电常数和吸收系数分别为 23.5° 、 $-63.6+i47.2$ [121]和 0.45 [108], 计算所得 E_I 的值为 8.9。尽管上述公式是由正弦型周期界面推导而来的, 由于其结果与锯齿光栅的结果差别很小故也适用于锯齿光栅结构中场增强因子的计算[122]。通过光场的增强因子及公式 (5.3) 可得到有效三阶非线性极化率虚部及非线性折射率的增强因子, 如表 5.2 所示。

表 5.2 各种参数的增强因子。等离激元增强的参量和光致参量分别由 $X(SPP)$ 和 $X(Light)$ 表示, X 可为 I , $\text{Im}(\chi_{eff}^{(3)})$, n_{2i} , or $\frac{\Delta R}{R}$ 。所有的增强因子数值都是在同样控制光能量密度下得到的。

符号	定义	增强因子数值
E_I	$I(SPP) / I(Light)$	8.9
E_χ	$\text{Im}(\chi_{eff}^{(3)})(SPP) / \text{Im}(\chi_{eff}^{(3)})(Light)$	~80
$E_{n_{2i}}$	$n_{2i}(SPP) / n_{2i}(Light)$	~80
E_m	$\frac{\Delta R}{R}(SPP) / \frac{\Delta R}{R}(Light)$	~7



第二种计算表面等离子激元场增强因子的方法是应用 COMSOL Multiphysics 软件进行数值模拟，如图 5.5 所示。显然，每个结构元都有相同的光场分布，对于某一特定结构元，除了体积很小的尖端部分外，增强因子 E_f 的数值大都集中在 6 到 12 以内。由于控制光和信号光的尺度远远大于周期性结构元大小，总体的场增强因子可认为是均匀分布的，故而此模拟结果与上述公式所得结果一致。为了简化分析，这里直接使用公式 (5.4) 所得的具体数值计算其它参数的增强因子。因而可得三阶非线性光学极化率虚部及二阶非线性折射率都被增强了~80 倍，此增强直接导致了对信号光调制深度的 7 倍增强。

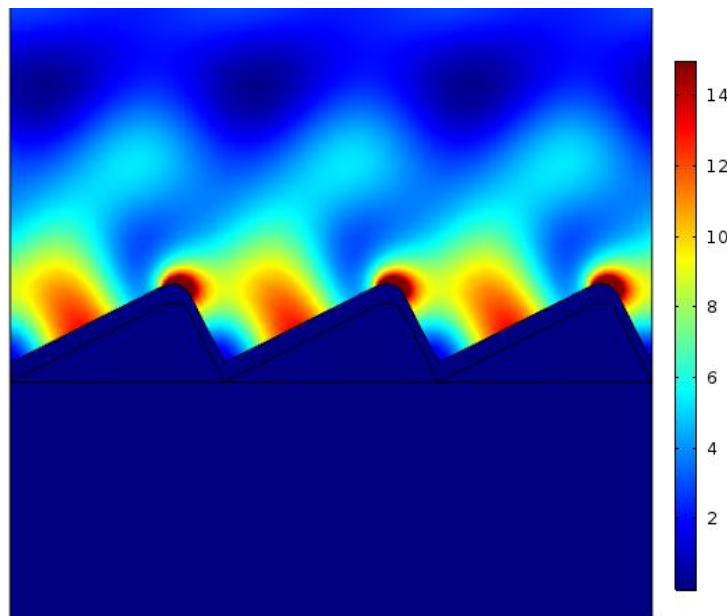


图 5.5 铝膜锯齿光栅表面的表面等离子激元局域场增强因子分布图。

Fig. 5.5 Numerical simulation of the enhancement factor of the local field intensity on the saw-tooth grating.

5.3.3 不同入射光强下等离子激元场增强因子的讨论

上述铝光栅表面的非线性折射率增强因子的讨论是基于表面等离子激元的局域场增强因子与控制光入射强度无关这一假设，且上面的实验中控制光强度仅为 37.5 GW/cm^2 一个数值。实验中可通过改变控制光强度并比较等离子激元增强的光调制和光致光调制的调制深度进行验证不同控制光强度下的场增强因子，如图 5.6 (a) 所示。随着控制光强度的增加，



尽管两种情况下调制深度都提高了，但是调制深度的增强因子 E_m 在所有控制光强度下却基本不变，处于 7-8 之间，如图 5.6 (b) 所示。仔细观察可发现 E_m 在较高控制光强度下有微小降低，这可能是由于随着控制光强度的增加，铝吸收光后电子散射速率加快，此导致了信号光产生的表面等离激元退相时间的变短[89]及 SPR 共振峰的微弱加宽[123]。实验结果得出近常数的 E_m 表明表面等离激元引起的调制深度的增强倍数独立于产生其的入射光强度，这为将来弱能量下飞秒级光开关的应用奠定了物理基础。

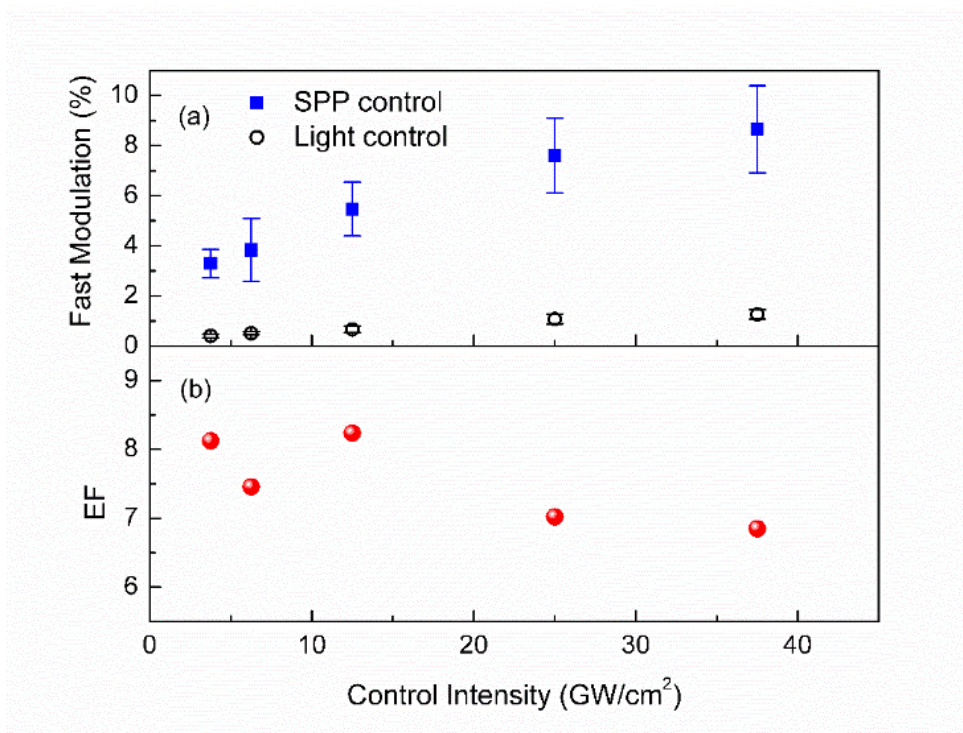


图 5.6 (a) 等离激元增强的光调制（蓝色方块）和光致光调制（黑色圆圈）的飞秒级过程的调制深度随控制光强度的关系；(b) 飞秒级过程调制深度的增强因子与控制光强的关系。图中控制光和信号光波长都为 800 nm。

Fig. 5.6 (a) Control intensity dependence of the plasmon-enhanced and light-induced modulation depth for the femtosecond component. (b) Enhancement factors of the modulation depth for the femtosecond component as a function of control intensity. The wavelength of both the control and signal light are 800 nm.

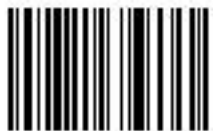
5.4 研究意义



相对于没有等离激元效应的全光调制，通过结合等离激元增强光学非线性效应的两种方法，即信号光处于表面等离子体共振条件下的光致共振峰的移动和控制光产生的表面等离激元对铝表面三阶非线性光学极化率的增强，我们将飞秒级快过程的调制深度提高了近 50 倍。应当指出，此处飞秒级光调制的调制深度可通过改变纳米结构以得到更窄的表面等离激元共振峰和更大的局域场增强因子而进一步增强，而且较薄的金属膜也能导致更大的三阶非线性光学极化率 $\chi_{\text{eff}}^{(3)}$ [124, 125]。飞秒级过程调制深度的增强因子与入射控制光强度无关使得在降低控制光强度时调制深度较高的放大倍数得以保持，这为将来极低控制光能量下调控光场提供了先决条件。另一方面，本章所得 75 fs 的超快调制时间可随着控制光脉冲宽度的减小而变短，最快的持续时间由表面等离激元退相时间决定。此外，本文中所使用的较简单的纳米结构和容易获得的金属材料也是超快数据调控和传输以及高速光开关的一大优势。

5.5 本章小结

本文从实验方面实现了响应时间 75 fs、调制深度 8.7% 的飞秒级全光调制。通过应用表面等离激元的两种非线性光学增强效应，即 SPP 对金属表面光学性质的改变非常敏感及其能产生很强的局域场，飞秒级光调制的调制深度相比于没有等离激元效应时被增强了近 50 倍。本研究中等离激元增强的光调制是实现同时具备超高速（速度可与电子驰豫时间相比拟）、大消光比和非常低的控制光能量的光开关的一种有效途径。



14007181



第六章 利用 SPR 提高铝纳米条带在紫外波段的非线性响应

6.1 研究背景

超快光调制可作为实现高速集成光子器件如光开关和光调制器的有效途径[20]。主动光子元件的品质因子除了上述章节所讨论的调制速度和消光比外，还有信号光的工作波长范围，因为对于光学数据传输系统，不同的调制器需要不同的波长工作范围[4]。光调制的调制速度和消光比分别取决于材料的非线性光学响应时间和光学非线性效应。一方面，为了提高调制速度，各类材料如半导体[45, 126]、二维材料[113]、金属[43, 101]等都被用于提高非线性光学响应时间，研究表明金属由于其响应时间可小于百飞秒因而是最有希望充当高速光子器件的材料之一。另一方面，调制深度亦通过多种方法来提高，如等离激元增强光学非线性[41, 42, 127]、超材料引起的偏振旋转[128]、光学共振腔[10]等。然而这些全光调制的工作波长大都集中在可见光和近红外范围，即便最近也有一些在中红外和太赫兹波段的研究[46, 48, 99]，很少涉及到紫外波段的超快调控。这主要是因为通常用于超快光调控的贵金属在紫外波段都有很强的带间跃迁吸收，故其都不适合紫外光信号的调制；仅有一些贫金属（如铝）是主动调制紫外光信号的潜在选择，然而铝在紫外波段的光学非线性效应非常小[97]，这极大的阻碍了其在紫外光调制方面的应用。此外紫外波段的超快光调制是实现高速紫外探测器和生物化学体系光子元件的一种可行途径，故很有必要通过寻找有效并可行的方法以增强铝的光学非线性效应而实现实用的主动紫外光子器件。

本章应用表面等离子体共振效应增强光学非线性的方法，从实验方面对紫外光信号在铝纳米条带上进行全光调制，并实现了调制深度 2.2%且响应时间几个皮秒的超快调制。此调制深度相比于没有表面等离子体共振效应时增强了 55 倍，相比于传统的热光调制方法所得的 10^{-4} 的调制深度（5 W 调制功率）[97]，这是一个非常大的提高，此调制增强与 Wood 反常的移动相关[40, 129]。通过对比两组实验与理论结果及分析增强机制，我们发现这里的调制增强主要是信号光对晶格热响应的敏感增强所致。此增强特性使得利用等离激元效应更易于探测金属中声学声子振荡的动力学过程。



6.2 实验条件

6.2.1 样品制备

实验中所用的样品包含一个镀有 70 纳米厚铝膜的平面样品和一个包含一系列周期性铝纳米条带的样品。首先，利用蒸镀方法在 5×10^{-4} Pa 的真空下将 70 纳米厚的铝膜镀于紫外熔融石英基底上，此时在铝-石英界面没有氧化铝膜。铝膜表面的平均颗粒大小由原子力显微镜（Atomic Force Microscope, AFM）测得 25.8 nm，如图 6.1 (a)。而后应用电子束曝光（Electron Beam Lithography）并结合 $\text{Cl}_2\text{-BCl}_3$ 等离子体的离子刻蚀（聚焦离子束刻蚀，Focused Ion Beam）将铝表面制成一系列纳米条带，铝条带宽 330 纳米、高 70 纳米、间距 100 纳米，故周期为 430 纳米。所有加工都是在上海交通大学先进电子材料与器件校级平台里完成的。加工后，条带上侧暴露在空气中并附上一层几纳米厚的氧化铝膜。如图 6.1 (b) 所示，铝膜的厚度和纳米条带的形貌分别通过原子力显微镜和扫描电子显微镜测得。

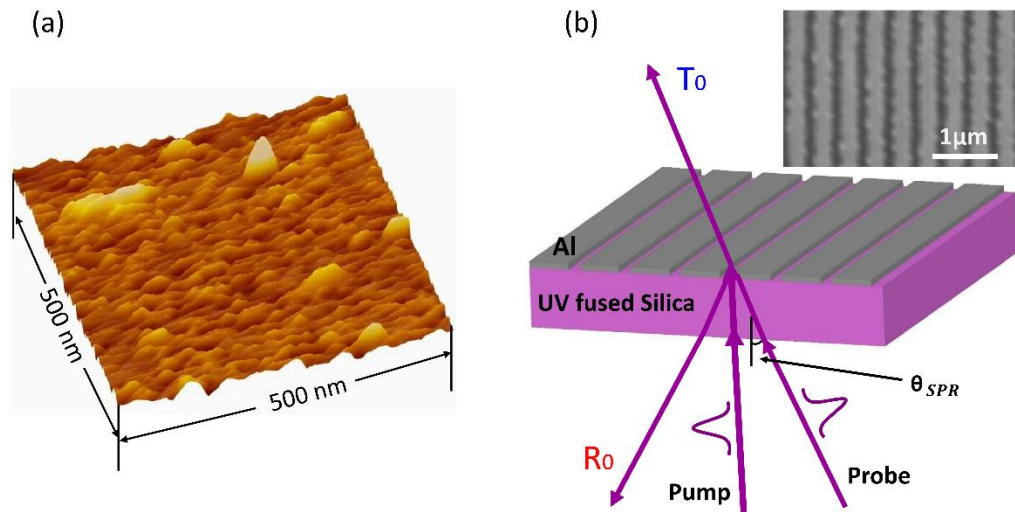


图 6.1 (a) 平坦铝表面的 AFM 图像；(b) 超快主动调制紫外光信号的示意图。插图：铝纳米条带的扫描电子显微镜图像。

Fig. 6.1 (a) AFM image of the flat aluminum film. (b) Schematic of ultrafast active control. Inset, a SEM image of the nanostripes.



6.2.2 实验装置

时间分辨的瞬态光反射率与透射率测量通过飞秒级泵浦（强光）-探测（弱光）技术实现，其中强光和弱光分别对应于控制光和信号光（下同），实验装置见 3.3 节讨论。本章实验中控制光和信号光都为 395 nm 的飞秒激光，其由钛宝石飞秒激光放大器输出的脉宽为 40 fs、中心波长 790 nm、重复频率为 1 kHz 的脉冲光通过 BBO 晶体倍频而来。控制光以 11° 角入射，信号光以表面等离子体共振角入射至铝纳米条带并以同样角度入射至平面铝，这分别对应于 SPR 和非 SPR 条件下的紫外光调制。控制光能量密度根据具体实验在 1.0 到 3.8 mJ/cm^2 之间变化，而信号光能量密度保持在 0.17 mJ/cm^2 。在我们的实验中，每个控制光能量下的瞬态反射率/透射率曲线都由三组数据平均而来，每个时间延迟处的数据点积分 1 秒（220 Hz）。两束光都是 p 偏振且入射面垂直于条带方向。本实验中，信号光反射率和透射率的相对改变用 $\Delta R/R$ 和 $\Delta T/T$ 标记，调制深度是两者的最大改变量。

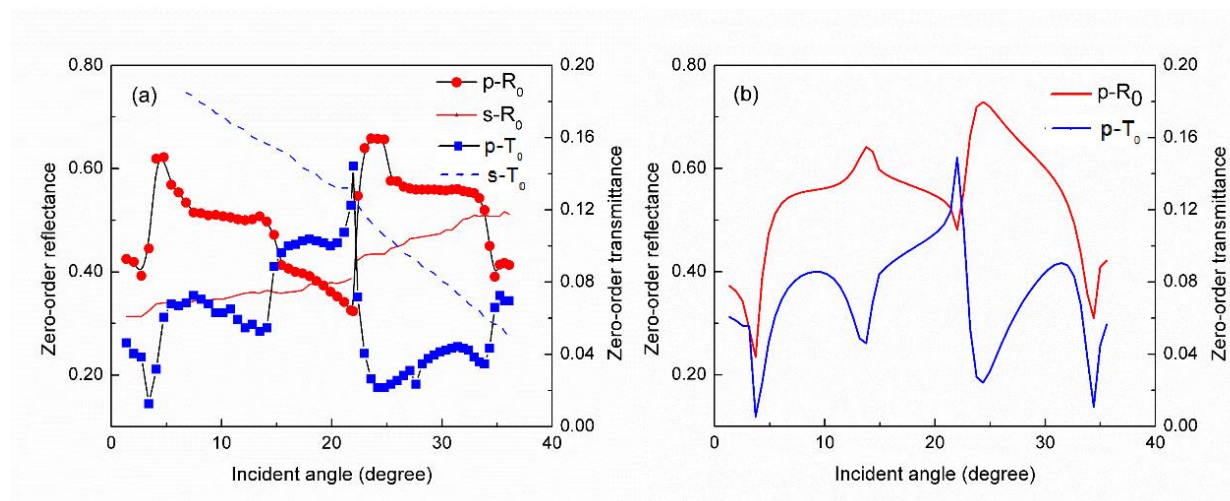


图 6.2 (a) 395 nm 的 p 偏振（红色圆点和蓝色方块）和 s 偏振（红色实线和蓝色虚线）光以各种角度入射到铝纳米条带上的零级反射率和透射率曲线； (b) Fourier 模拟法得到的数值结果。

Fig. 6.2 (a) Zero-order reflectance and transmittance of p - (red circles and blue squares) and s -polarized (red solid line and blue dashed line) 395-nm light from plasmonic nanostripes at different incident angles (R - θ curve). (b) Numerical results simulated by FMM.



6.3 实验结果与分析

6.3.1 静态实验

静态角分辨零级反射率和透射率实验用于确定本结构的表面等离子体共振角。由于紫外波段的等离激元响应对空气-铝界面产生的氧化铝膜非常敏感[130]，故实验中的光都从石英-铝界面入射以降低氧化铝对 SPR 共振的影响。如图 6.2 (a) 所示，当 p 偏振、395 nm 光以 SPR 角入射时，出现一个强透射峰，其对应反射率最小值。对亚波长及与波长相当的纳米小孔及狭缝的透射率研究表明此透射峰是表面等离子体作用的结果[131-134]。而对于 s 偏振光没有任何增强透射峰，这是由于根据 Maxwell 方程不存在 s 偏振的表面等离子体。本实验中测得石英-铝界面的 SPR 角为 22° ，其对应于空气-石英界面的 33.5° ，此角

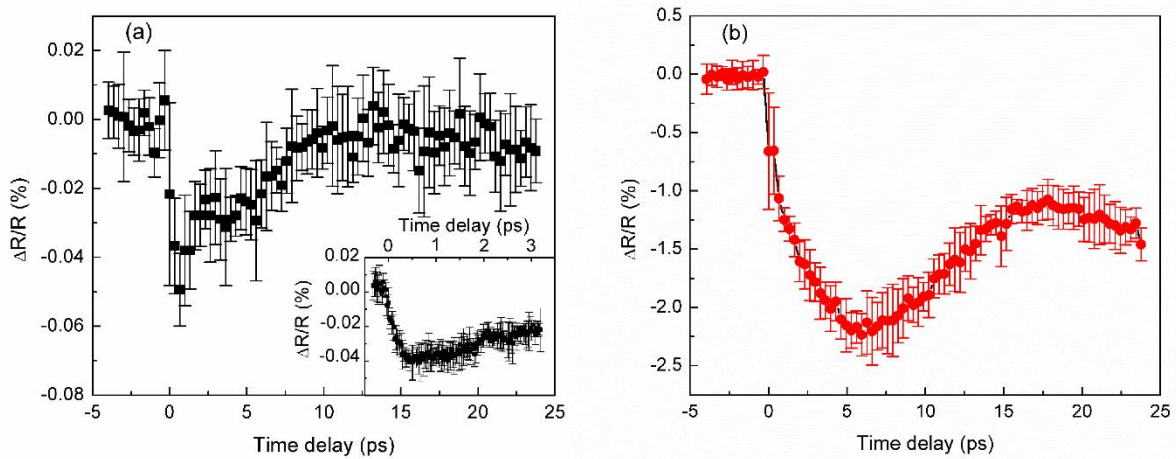


图 6.3 当 395 nm 的控制光能量密度为 3.8 mJ/cm^2 时，395 nm 的信号光以非 SPR 角（平面铝）（a）和 SPR 角（铝纳米条带）（b）入射下的紫外光调制随泵浦-探测时间延迟的关系；a 图中的插图，非 SPR 条件下控制光激发后几个皮秒内的调制曲线。

Fig. 6.3 Ultrafast optical control of UV light as a function of time delay at a pump fluence of 3.8 mJ/cm^2 when the 395-nm probe light was incident at (a) non-SPR (flat aluminum surface) and (b) SPR (aluminum nanostripes) conditions; Inset to (a), the modulation in a few picoseconds after pump excitation at the non-SPR condition.



度及角度分辨的反射率、透射率曲线和 FMM 数值模拟得到的理论值很一致，如图 6.2 (b) 所示。

6.3.2 紫外光信号的超快调制

在表面等离子体共振和非等离子体共振条件下的紫外光调制显示出明显不同的超快响应，其调制深度和上升沿时间有很大差别，如图 6.3。本章中，我们把从时间零点到调制最大处所对应时间的时差定义为调制上升沿时间。在非 SPR 条件下，如图 6.3 (a) 所示，当控制光能量密度为 3.8 mJ/cm^2 时，调制在时间零点后 0.5 ps 达到最大值 (0.04%)，约 7 ps 后衰减至初态。然而，在 SPR 条件且相同的控制光能量密度下，调制深度被极大的提

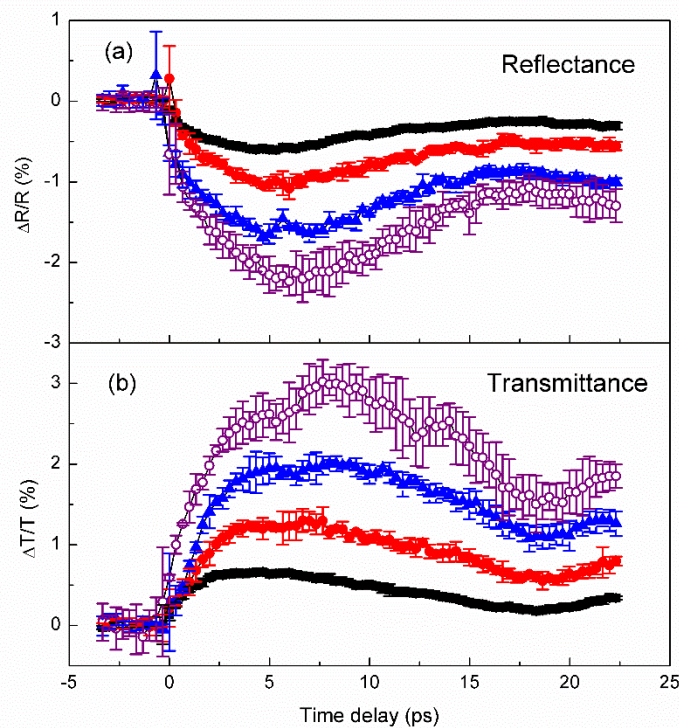


图 6.4 紫外光信号在 SPR 条件下的反射率 (a) 和透射率 (b) 光调制随泵浦-探测时间延迟的关系；(a) 和 (b) 图中的黑色方块、红色圆点、蓝色三角和紫色圆圈 分别对应于 1.0 , 2.0 , 2.9 和 3.8 mJ/cm^2 的控制光能量密度。

Fig. 6.4 Ultrafast optical modulation of UV light as a function of time delay for both (a) reflectance and (b) transmittance at the SPR condition. The black squares, red closed circles, blue triangles and purple open circles in (a) and (b) correspond to pump fluence of 1.0 , 2.0 , 2.9 and 3.8 mJ/cm^2 , respectively.



高至 2.2%，其是非 SPR 条件下调制深度的 55 倍。同时上升沿时间减慢至~6 ps，衰减时间与非 SPR 时基本相等，如图 6.3 (b)。

为了进一步理解 SPR 条件下超快光调制的机制，我们做了一系列控制光能量密度下瞬态反射率和透射率的实验，随时间延迟的关系如图 6.4 (a) 和 (b)。控制光激发样品表面后，反射率随着时间延迟减小而透射率相应的增加。调制深度数值随着控制光能量密度的增加近似线性的增大，这说明了此类调制主要是由热过程引起的[1]。对于透射结果，其光调制幅度稍大于反射率实验，如 3.8 mJ/cm² 的能量密度下 $(\Delta R/R)_m$ 和 $(\Delta T/T)_m$ 分别为 2.2% 和 3.0%，这可能是由于光致铝的吸收改变引起的。

在非 SPR 条件下紫外光信号在铝纳米条带上超快光调制的时间响应类似于金表面调制可见光信号动态过程的情况，后者由电子加热过程决定[72]。然而当信号光以表面等离子体共振角入射时，光调制的上升沿从 0.5 ps 减缓至 6 ps，这接近于金属中晶格的升温时间。同时，光调制的衰减过程对应于晶格的热扩散。

6.3.3 改进的双温度模型

因为铝表面在某一时刻反射率的改变 $\Delta R(t)$ 取决于那一时刻电子温度和晶格温度的改变 ΔT_e 和 ΔT_l ，关系为[98]

$$\Delta R(t) = E_e \frac{\partial R}{\partial T_e} \Delta T_e + E_l \frac{\partial R}{\partial T_l} \Delta T_l, \quad (6.1)$$

其中 $\partial R/\partial T_e$ 和 $\partial R/\partial T_l$ 分别表示电子温度和晶格温度的改变是如何影响反射率的， E_e 和 E_l 是 $\partial R/\partial T_e$ 和 $\partial R/\partial T_l$ 的增强因子，在非 SPR 条件下都等于 1。这里，在电子和晶格热平衡前 $T_e(t)$ 和 $T_l(t)$ 随时间的演化可由改进的双温度模型 (Modified Two-temperature Model) 描述。其可写成如下形式： [71, 72, 135]

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = K\nabla^2 T_e - G(T_e - T_l) + Q(z, t), \quad (6.2a)$$

$$C_l \frac{\partial T_l}{\partial t} = G(T_e - T_l), \quad (6.2b)$$

$$Q(z, t) = Q(z) \cdot T(t), \quad (6.2c)$$



$$Q(z) = \frac{AF e^{-\frac{z}{\delta+\lambda_b}}}{(\delta+\lambda_b) \left(1 - e^{-\frac{d}{\delta+\lambda_b}}\right)}, \quad (6.2d)$$

$$T(t) = \frac{1}{\tau_q} \sqrt{\frac{4 \ln 2}{\pi}} e^{-4 \ln 2 \left(\frac{t-2\tau_q}{\tau_q}\right)^2}, \quad (6.2e)$$

其中， C_e 正比于电子温度 $C_e = \gamma T_e$ (γ 为电子热容常数)。 $Q(z, t)$ 为能量源项，其中的 $Q(z)$ 和 $T(t)$ 分别为能量源的空间和时间分布。 λ_b 为铝的电子弹道范围， z 为铝内部距离表面的深度， τ_q 表示能量源的持续时间， F 、 A 、 d 和 δ 分别表示控制光能量密度、铝对入射

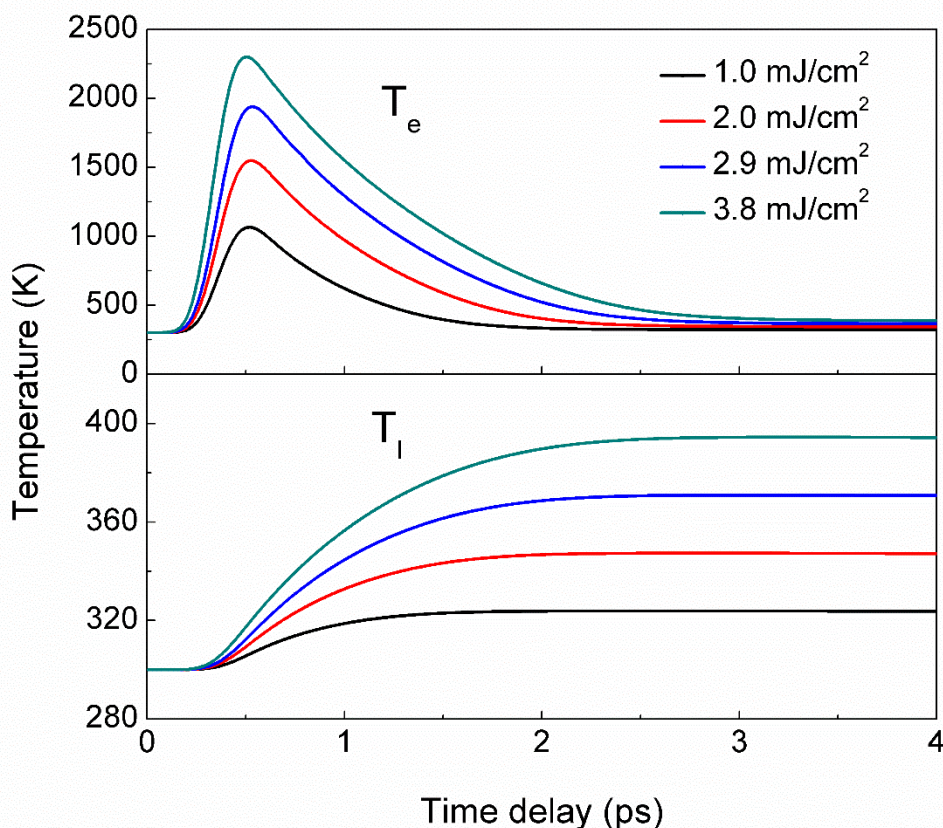


图 6.5 控制光能量密度分别为 1.0, 2.0, 2.9 和 3.8 mJ/cm^2 时应用改进的双温度模型拟合的铝纳米条带表面 ($z=0$ 处) 电子温度 (a) 和晶格温度 (b) 随时间的演化曲线。

Fig. 6.5 Temporal evolution of (a) electron temperature and (b) lattice temperature on the surface of the aluminum nanostripes ($z=0$) simulated by the modified two-temperature model at the pump fluences of 1.0, 2.0, 2.9 and 3.8 mJ/cm^2 .



光的吸收率、铝膜厚度和入射光波长处的光学穿透深度。在一般的双温度模型中，假定光子能量被金属中热电子瞬间吸收，即电子温度在控制光脉冲持续时间内上升到最大值，故 τ_q 等于控制光脉冲宽度。实际上，当激光脉宽小于 100 fs 时，控制光的能量被吸收后需要一定的时间延迟才能转移到热电子中[136, 137]。在控制光照射期间，光脉冲的大部分能量先被存储到非热电子中，只有小部分能量直接被热电子吸收。此时电子分布函数由非 Fermi 分布决定，而后在几百飞秒内能量通过电子-电子散射作用从非热电子转移到热电子中[138, 139]。非热电子弛豫时间的具体计算需考虑 Fermi 液体的 Landau 理论[140]，为简单起见，我们假定电子气的内部加热时间等于非 SPR 条件下光调制的上升沿时间，这也与之前的结果相符合[141]，通过指数拟合图 6.3 (a) 中 0.5 ps 的上升沿过程得到非热电子弛豫时间大约 0.2 ps。因此我们应用 0.2 ps 而非 40 fs 的激光脉宽作为能量源项的时间响应。从已有文献及实验结果中得到上述各类参数 γ 、 C_l 、 K 、 G 、 A 、 F 、 δ 、 λ_b 、 d 和 τ_q 分别等于 91.2 J/(m³·K²)、 2.43×10^6 J/(m³·K)、237 W/(m·K)、 1.2×10^{17} W/(m³·K)、0.36、3.8 mJ/cm²、7.5 nm、46 nm、70 nm 和 0.2 ps [72, 142-144]，因而铝表面的电子温度与晶格温度在不同控制光能量密度下随时间的演化关系可由求解上述耦合微分方程组获得，如图 6.5 所示。能量从电子之间的传递和电子与晶格之间的转移分别为 0.5 ps 和 2.5 ps，结合两个过程可知电子气加热的总时间约 3 ps。通过对比 $T_e(t)$ 和 $T_l(t)$ 的模拟结果和图 6.3 (a) 和 (b) 中的实验结果，我们初步可知非 SPR 条件下和 SPR 条件下紫外光信号调制的时间响应分别由电子温度和晶格温度演化过程决定。

6.3.4 纳米条带几何形状改变的贡献

在大多数基于纳米结构的光调制中，由控制光引起结构几何形状的改变（波导形变）导致对信号光的调制也通常是不容忽视的。因此我们研究了光致晶格膨胀引起的纳米条带几何大小的改变对光信号调制深度的影响。根据我们之前铝的电子衍射实验结果，晶格的相对膨胀与控制光能量密度呈线性关系，1.0 mJ/cm² 的控制光产生铝晶格常数的相对改变为 1.7×10^{-4} [145]，因而可得当控制光能量密度为 1.0 mJ/cm² 时铝条带在横向和纵向上几何膨胀的最大改变量分别为 0.056 nm 和 0.01 nm，而在 3.8 mJ/cm² 下分别为 0.20 nm 和 0.042 nm。利用 FMM 模型计算几何形状改变后纳米结构的静态反射率和透射率。相比于条带几何形状未变的情况，当纳米条带横向和纵向分别改变 0.056 nm 和 0.01 nm 时（对应



于 1.0 mJ/cm^2 的控制光作用），反射率和透射率分别改变了 0.009% 和 0.008% ；当纳米条带横向和纵向分别改变 0.20 nm 和 0.042 nm 时（对应于 3.8 mJ/cm^2 的控制光作用），静态反射率和透射率分别改变了 0.036% 和 0.033% 。相比于 SPR 条件下动态实验中反射率和透射率的调制深度 [图 6.4 (a) 和 (b)]，由几何结构的改变引起的光信号的调制非常小，基本可以忽略。故我们认为在 SPR 条件下对紫外光信号的调制主要是晶格温度的演化而非光致晶格膨胀主导的。

6.3.5 调制增强机制的讨论

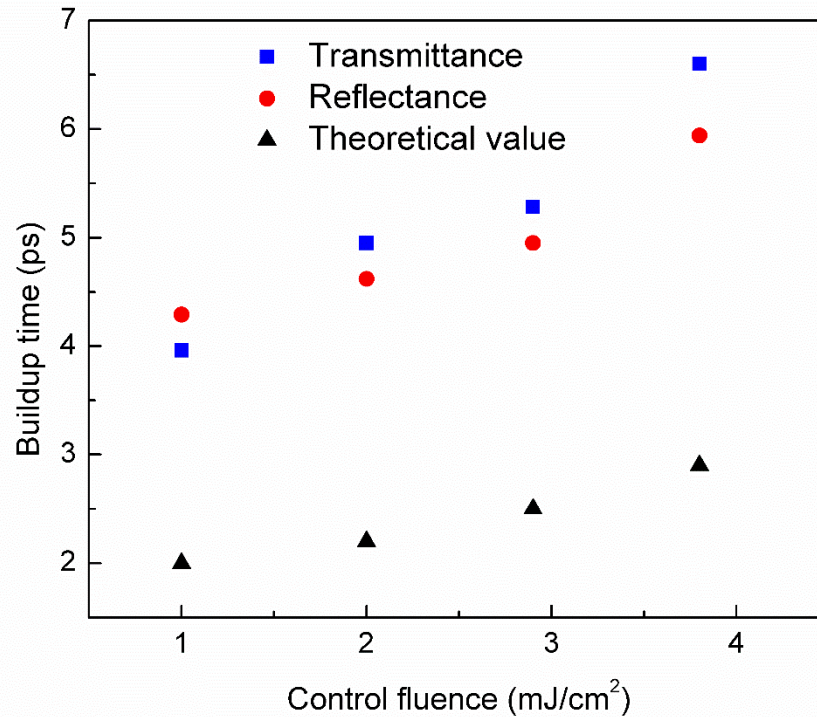


图 6.6 表面等离子体共振条件下瞬态反射率（红色圆点）和透射率（蓝色方块）和上升沿随控制光能量密度变化的关系，图中的黑色三角是由改进的双温度模型计算得理论值。

Fig. 6.6 Pump-fluence-dependence of the buildup time of both reflectance (red circles) and transmittance (blue squares) at the plasmonic resonance condition. The black triangles present theoretical values obtained by TTM.



在表面等离子体共振条件下瞬态反射率和透射率的动态调制依赖于晶格温度的变化亦由上升沿时间随控制光能量密度的增加而变长的关系证实，如图 6.6 所示。1.0 mJ/cm² 时上升沿时间为 4 ps，3.8 mJ/cm² 时约为 6 ps。这里上升沿时间随着控制光能量密度增加的变长对应于晶格加热的减缓，是更强的 Fermi 拖拽作用的结果。此时，Fermi 面上更多的态被填充，而铝中电子-声子散射速率随电子温度的升高没有明显的改变 ($\Delta T_e < 3000$ K 情况下[143, 146])，故在更高的能量密度下电子温度下降越慢。实验中上升沿时间的变化趋势与改进的双温度模型所得结果一致。相对于理论结果，所有控制光能量密度下的实验结果都与理论值有类似的偏移，这可能是由于瞬态反射率中探测波长的不同引起的[115, 147]。

为了理解信号光对电子温度和晶格温度敏感性的不同，我们计算了非 SPR 和 SPR 条件下反射率调制相对于两者温度改变的增强因子 E_e 和 E_l 。在非 SPR 条件下，尽管电子体系和晶格热平衡后两者的温度都对反射率调制有贡献，然而在调制最大的时候是电子的温度主导了反射率改变。因而 $\partial R/\partial T_e$ 和 $\partial R/\partial T_l$ 可由方程 (1) 确定，其中 $\Delta R/R$ 在电子温度最高时为 0.04% (最大值)，在电子和晶格热平衡时为 0.015%。由图 6.5 可知控制光能量在 3.8 mJ/cm² 下电子最高温和电子-晶格热平衡温度分别为 2000 K 和 94 K，反射率 R 为 0.32 [图 6.2 (a)]，故 $\partial R/\partial T_e$ 和 $\partial R/\partial T_l$ 分别为 $6.4 \times 10^{-8} \text{ K}^{-1}$ 和 $4.5 \times 10^{-7} \text{ K}^{-1}$ 。在 SPR 条件下， $\Delta R(t)$ 被明显的放大且其随时间的演化与晶格温度演化表现出很强的相关性。时间零点后 0.5 ps 时电子温度达到最大值且晶格刚开始升温， $\Delta R/R$ 的值 (0.65%) 由电子温度主导，然而当 $\Delta R/R$ 在时间零点后 6 ps 达到最大值 2.2% 时，此值主要由热平衡后晶格温度决定。因此可计算得到 $E_e \frac{\partial R}{\partial T_e}$ 和 $E_l \frac{\partial R}{\partial T_l}$ 的值分别为 $1.0 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ 和 $7.4 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$ ，相应的增强因子 E_e 和 E_l 分别为 16 和 165。增强因子如表 6.1 所示。Wood 反常的移动引起的 $\partial R/\partial T_l$ 的极大增强导致了紫外局域等离子体对折射率的改变 Δn 响应的增强，因而进一步导致了紫外光信号调制深度的极其显著的放大 (55 倍)。更高的增强倍数可通过更大的 Wood 反常移动而获得。这说明了信号光产生的紫外表面等离子体共振对晶格温度改变的敏感性远超过对电子温度的改变。



表 6.1 SPR 条件与非 SPR 条件下增强因子数值

	$(\Delta R/R)_m$ 决定因素	$E_e \frac{\partial R}{\partial T_e} (K^{-1})$	$E_l \frac{\partial R}{\partial T_l} (K^{-1})$	E_e	E_l
非 SPR 条件	电子温度	6.4×10^{-8}	4.5×10^{-7}	1	1
SPR 条件	晶格温度	1.0×10^{-6}	7.4×10^{-5}	16	165

6.3.6 调制增强在声学声子探测中的应用

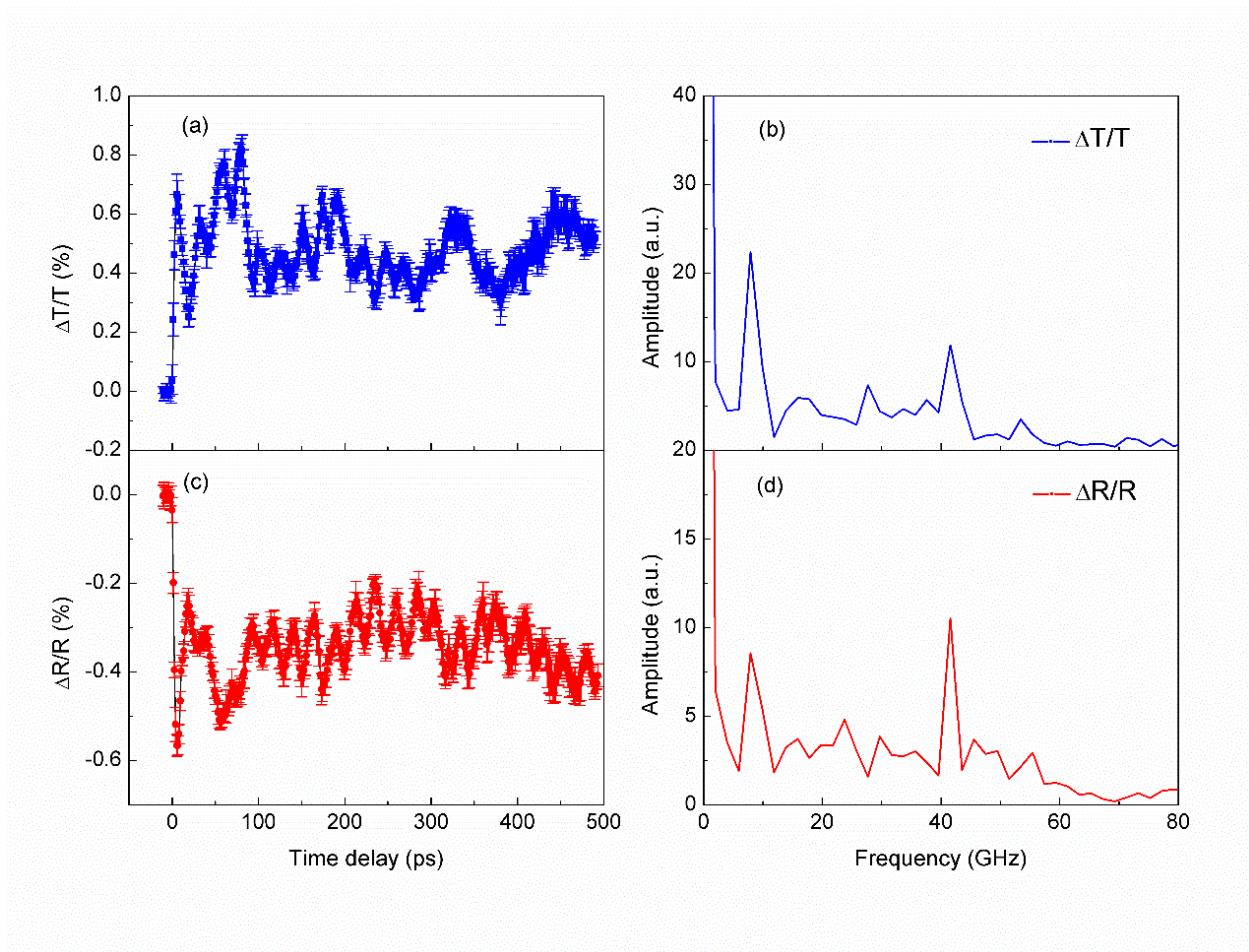


图 6.7 声学声子引起的透射率 (a) 和反射率 (c) 随时间演化的相对改变, (b) 和 (d) 分别为 Fourier 转换后的频率幅度。

Fig. 6.7 The temporal evolutions of the relative changes induced by the acoustic phonons in (a) transmittance (blue squares) and (c) reflectance (red circles) with their corresponding Fourier transforms (b) and (d) at the SPR condition.



由于在表面等离子体共振条件下反射率和透射率的改变随晶格的改变被极大的增强了，我们可通过此调制增强探测来测量 ΔT_l 导致的光学现象，如声学波。铝膜中的声学波一般由热应力产生，后者在电子和晶格热平衡后由晶格温度梯度引起[148]。应用表面等离子体共振使得探测铝纳米条带中的声学声子动力学过程相对于传统探测手段变得极为容易[149]。如图 6.7 (a) 和 (c) 所示，经过上升沿后瞬态反射率和透射率调制随着时间延迟显示出几个耦合的周期性振荡，通过 Fourier 分析可得到一个 8 GHz 和一个 42 GHz 的振荡，如图 6.7 (b) 和 (d)。此处 Fourier 分析的频率分辨为 2 GHz，其取决于实验所采的 500 ps 时间延迟范围。结合固体铝中的声速 6.0 ± 0.4 km/s [104, 145, 150] 和 330 nm 宽、70 nm 高的铝纳米条带，可计算得到横向和纵向声学声子的频率分别为 9.1 ± 0.6 GHz 和 42.8 ± 1.8 GHz，此结果与实验中所观察的结果类似，故可知此类振荡源于铝条带中光致产生的声子脉冲的来回传播，如图 6.8 所示。这说明表面等离子体共振由于其对金属中的晶格热响应的增强作用可以作为研究金属中声子动力学过程的有效手段。

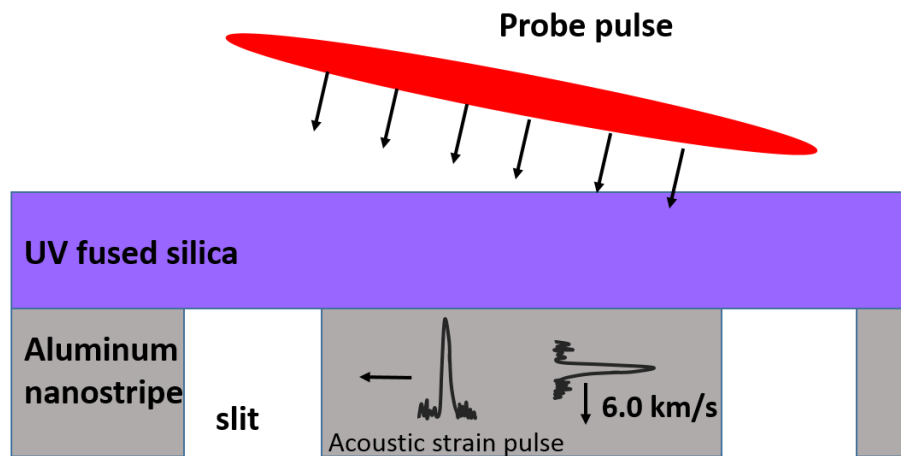


Fig. 6.8 铝纳米条带中声学声子传播示意图。

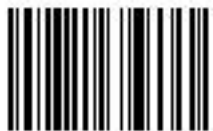
Fig. 6.8 Schematic of acoustic phonon propagation in aluminum nanostripes.

6.4 本章小结

我们实验上研究了铝纳米条带对紫外光信号的超快光调制作用，相比于一般情况下，利用表面等离子体共振效应可对调制深度增强 55 倍。通过探寻此增强机制发现其主要由



信号光对晶格温度变化的敏感性提高导致，故而应用表面等离子体共振作用可比较容易的探测铝中声学声子的动力学过程。此外，由于表面等离子体的非线性效应，亦可将其用于其它材料的声子动力学探测中。



14007181



第七章 总结及展望

7.1 研究内容总结

基于表面等离激元的非线性光学效应结合光学泵浦-探测的超快测量方法，本文分别研究了不同波段处超快光调制的调制速度及调制深度的提高，并讨论了相应超快光调制的机理及可能的应用领域。

表面等离激元增强光学非线性效应主要分为两方面。一方面等离激元对纳米结构的金属-介质界面的光学性质非常敏感，即界面附近几十纳米内金属或相邻介质的介电函数在外界激发下有一个微小的扰动时，表面等离激元的色散关系将发生很大的改变，这导致了SPP场强度的很大变化。另一方面，表面等离激元在纳米结构上产生的局域电磁场场强可远高于外界入射光场强，这一限制在结构表面的强场极大的增强了结构体系的三阶非线性光学极化率，进而使金属-介质表面折射率发生很大改变。

通常的超快光调制研究都是利用表面等离激元的第一种增强光学非线性的方式，因为对于品质因子较高的表面等离子体共振，此种方式中光致共振峰的移动一般可得到足够的调制深度（开关比）。本文中所讨论的三种实验都应用了此种非线性增强方式，不论是时间响应与控制光脉宽相当的飞秒级调制（第四章和第五章内容），还是金属-介质体系电子和晶格热效应的皮秒级调制（第四章、第五章和第六章内容），抑或是由声学声子在金属表面产生的热涨落导致的百皮秒至纳秒级调制（第六章内容），SPP的第一种非线性增强方式都可以数十倍的增强这些过程的调制深度。此外SPP有着极快的退相时间，其持续时间往往小于几十飞秒，对于线宽较宽的表面等离子体共振，SPP退相时间甚至可以达到几个飞秒[110]，这样短的退相时间即使光激发的局域场具有瞬时性，又保证了表面等离激元增强金属表面非线性过程的瞬时性，进而保持了超快光调制的响应时间。

然而未来数据的处理及光学集成需要更高速的、不同工作波长的调制器，这使得我们一方面要考虑在飞秒级光调制的基础上进一步提高调制速度，另一方面要实现工作在其它波段的调制器。



基于此，我们首先研究了 800 纳米近红外波段光信号调制速度的提高。应用镀了铝膜的锯齿光栅为产生表面等离激元的结构载体，并结合飞秒级光学泵浦-探测技术，在控制光和信号光波长和偏振相同时得到了一个 70 fs 的飞秒级调制过程和一个皮秒级过程。通过研究此飞秒级调制的物理机制，发现此超快过程的调制深度由表面等离激元相关的相干非线性过程主导，其调制时间（半高全宽）由控制光脉冲宽度和信号光激发的等离激元脉冲宽度共同贡献。当减小控制光脉宽时调制时间更短，但此时间不能短于 SPP 的退相时间。此研究是在应用表面等离激元增强材料的非线性光学响应的条件下提高光调制速度的一个有效方法，并给出了可能达到的最高速的光开关的限定。

对于此飞秒级光调制，减小控制光脉冲宽度可得到更快的调制速度。然而随着控制光脉冲宽度的减小，其产生的三阶非线性光学极化率严重降低，为此 SPP 增强光学非线性的第二种方式正好可以弥补由于激光脉冲宽度变短导致的非线性效应的减弱。而且上述对 800 纳米信号光的飞秒级调制的调制深度很小（~1%），即便是调制速度很高（6.3 THz），也很难有实际的应用。实验中得到了响应时间 75 fs、调制深度 8.7% 的飞秒级光调制，这与同样控制光强度下未产生局域的表面等离激元时相比调制深度增强了 7 倍。进一步研究发现此增强与等离激元的场增强因子相关，故对于场增强因子更高的纳米结构，此调制深度的增强会更大。第四章的方法可作为实现同时具备超高速（速度可与电子驰豫时间相比拟）、大消光比和非常低的控制光能量的光开关的一种有效途径。

除了近红外波段，紫外波段光信号调制研究亦有重要的意义。本文利用石英玻璃上的铝纳米条带亦结合光学泵浦探测技术，研究了表面等离子体共振对紫外光信号调制的作用。实验发现，一方面调制深度比无 SP 共振时增强了 55 倍，另一方面等离子体共振的出现改变了光调制随时间变化的趋势。通过理论分析得到此增强导致了信号光对晶格温度变化的敏感性的提高。故而应用表面等离子体共振作用较容易的探测铝中声学声子的动力学过程。



7.2 展望

利用特定的方式增强材料或结构体系的光学非线性效应，如三阶非线性光学极化率，是非线性光学、光子学与光电子学领域极为重要的一个课题。在本文研究所涉及的内容里，有两个方向可以继续研究。

一个方向为寻找增强光学非线性效应更高的方式。本文中主要借助了表面等离子体共振及其所产生场增强效应的两个方面提高了金属的三阶非线性效应。若要利用 SPR 效应得到更高的光学非线性增强因子，则需结合作用波段、材料特性等设计更加特殊的纳米结构，这对材料质量及纳米加工的要求都比较高。故寻找尽可能简单的非线性增强方式对于将来的应用极为重要。除 SPR 效应外还有不少方法被用于提高体系的非线性效应，比如第一章中介绍的光学微腔、光子晶体和超材料等新结构。近来提出的新思路——介电常数近零材料可极大的增强材料在某一波长范围内的光学非线性效应。其主要思想为[27, 151]: 对于介电常数的特定改变 $\Delta\epsilon$ ，无损耗材料的折射率改变 Δn 可表示为 $\Delta n = \Delta\epsilon / (2\sqrt{\epsilon})$ ，当介电常数 ϵ 变小时， Δn 变大。对于某一材料，在其 $\epsilon \sim 0$ 处 Δn 可以非常大，这使得材料在 ENZ 频率处具有极强的非线性效应。

已有的利用 ENZ 提高材料的非线性光学效应的研究主要集中在近红外波段，利用铟锡氧化物 (Indium tin oxide, ITO) [27, 28, 152]、掺铝氧化锌 (Al-doped ZnO, AZO) [29, 153]、掺铟氧化镉 (Indium-doped cadmium oxide, ICO) [154]等材料的 ENZ 频率增强光学非线性进而提高光调制的消光比。然而到目前为止很少有在可见光波段利用 ENZ 增强光学非线性的研究。在后面的研究中，我们通过寻找 ENZ 频率在可见光区的材料研究可见光区的光学非线性的增强。

另一个方向为利用表面等离激元的非线性增强效应研究各类光学非线性效应。到目前为止，SPP 增强效应已被用来研究了大部分光学非线性过程，如表 6.1 所示。如二次谐波与和频的增强[74, 83, 155]、利用电光效应实现电光调制器[156]、表面增强的三次谐波[84, 157]和四波混频[85, 86]、等离激元增强非线性光 Kerr 效应[37, 127]、热效应导致的 Δn [158, 159]、表面增强的 Raman 散射[160]和 Brillouin 散射[161]、声光效应[149]与高次谐波[87, 162]等。然而还有一些过程，如光学参量放大、强度依赖折射率改变的一些应用及受激



Rayleigh 散射，还很少见到利用表面等离激元增强的报道。故利 SPP 研究这些过程是今后需要讨论的。此外，对于已有的利用 SPP 增强的光学非线性过程还有很多问题值得讨论。如目前等离激元增强的非线性光 Kerr 效应在超快时间响应下其增强因子仅为几十[127]，对应的光信号的调制深度距离应用还有不少距离，故设计新的纳米结构用来进一步提高场增强因子极有必要；对于等离激元增强高次谐波的研究，目前仅对 19 次以下的谐波可得到较高的性噪比[87, 162, 163]，所得二十几次谐波的性噪比很差[164]。因而提高二十几次谐波的性噪比以及得到更高次的谐波也是表面等离激元与金属相互作用的重要课题。

表 7.1 表面等离激元增强的光学非线性过程分类

非线性阶数	分类	利用 SPP 增强的非线性过程
2	波混频	二次谐波
		和频
		电光效应
3	波混频	三次谐波
		四波混频
	强度依赖的折射率改变	光 Kerr 效应（单束光/两束光）
		光学双稳态，光开关，双光束耦合
		热效应导致的 Δn
	受激光散射	受激 Brillouin 散射
受激 Raman 散射		
	声光效应	
n		高次谐波



参考文献

1. R. W. Boyd, *Nonlinear Optics* (Elsevier, 2008).
2. Y.-R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics* (Wiley-Interscience, New York, 1984).
3. G. T. Reed, G. Mashanovich, F. Gardes, and D. Thomson, Silicon optical modulators. *Nat. Photon.* **4**, 518 (2010).
4. Z. Sun, A. Martinez, and F. Wang, Optical modulators with 2D layered materials. *Nat. Photon.* **10**, 227 (2016).
5. A. V. Krasavin, and A. V. Zayats, Benchmarking system-level performance of passive and active plasmonic components: Integrated circuit approach. *Proc. IEEE* **104**, 2338 (2016).
6. J. Chiles, and S. Fathpour, Mid-infrared integrated waveguide modulators based on silicon-on-lithium-niobate photonics. *Optica* **1**, 350 (2014).
7. D. A. B. Miller, Energy consumption in optical modulators for interconnects. *Opt. Exp.* **20**, A293 (2012).
8. W. M. J. Green, M. J. Rooks, L. Sekaric, and Y. A. Vlasov, Ultra-compact, low RF power, 10 Gb/s silicon Mach-Zehnder modulator. *Opt. Exp.* **15**, 17106 (2007).
9. Q. Xu, B. Schmidt, S. Pradhan, and M. Lipson, Micrometre-scale silicon electro-optic modulator. *Nature* **435**, 325 (2005).
10. C. P. T. McPolin, N. Olivier, J.-S. Bouillard, D. O'Connor, A. V. Krasavin, W. Dickson, G. A. Wurtz, and A. V. Zayats, Universal switching of plasmonic signals using optical resonator modes. *Light Sci. Appl.* **6**, e16237 (2017).
11. P. Dong, W. Qian, H. Liang, R. Shafiiha, N.-N. Feng, D. Feng, X. Zheng, A. V. Krishnamoorthy, and M. Asghari, Low power and compact reconfigurable multiplexing devices based on silicon microring resonators. *Opt. Exp.* **18**, 9852 (2010).
12. M. Nedeljkovic, S. Stanković, C. J. Mitchell, A. Z. Khokhar, S. A. Reynolds, D. J. Thomson, F. Y. Gardes, C. G. Littlejohns, G. T. Reed, and G. Z. Mashanovich, Mid-Infrared Thermo-Optic Modulators in SoI. *IEEE Photon. Techno. Lett.* **26**, 1352 (2014).
13. S. Yu, X. Wu, Y. Wang, X. Guo, and L. Tong, 2D materials for optical modulation: challenges and opportunities. *Adv. Mater.* **29**, 1601628 (2017).
14. M. Liu, X. Yin, E. Ulin-Avila, B. Geng, T. Zentgraf, L. Ju, F. Wang, and X. Zhang, A graphene-based broadband optical modulator. *Nature* **474**, 64 (2011).
15. C. T. Phare, Y.-H. Daniel Lee, J. Cardenas, and M. Lipson, Graphene electro-optic modulator with 30 GHz bandwidth, *Nat. Photon.* **9**, 511 (2015).



16. D. D. Smith, Y. Yoon, R. W. Boyd, J. K. Campbell, L. A. Baker, R. M. Crooks, and M. George, Z-scan measurement of the nonlinear absorption of a thin gold film. *J. Appl. Phys.* **86**, 6200 (1999).
17. R. W. Boyd, Z. Shi, and I. De Leon, The third-order nonlinear optical susceptibility of gold. *Opt. Commun.* **326**, 74 (2014).
18. B. Luk'yanchuk, N. I. Zheludev, S. A. Maier, N. J. Halas, P. Nordlander, H. Giessen, and C. T. Chong, The Fano resonance in plasmonic nanostructures and metamaterials. *Nat. Mater.* **9**, 707 (2010).
19. M. F. Limonov, M. V. Rybin, A. N. Poddubny, and Y. S. Kivshar, Fano resonances in photonics. *Nat. Photon.* **11**, 543 (2017).
20. V. R. Almeida, C. A. Barrios, R. R. Panepucci, and M. Lipson, All-optical control of light on silicon chip. *Nature* **431**, 1081 (2004).
21. X. Hu, P. Jiang, C. Ding, H. Yang, and Q. Gong, Picosecond and low-power all-optical switching based on an organic photonic-bandgap microcavity. *Nat. Photon.* **2**, 185 (2008).
22. M. Scalora, J. P. Dowling, C. M. Bowden, and M. J. Bloemer, Optical Limiting and Switching of Ultrashort Pulses in Nonlinear Photonic Band Gap Materials. *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1368 (1994).
23. M. Kauranen, and A. V. Zayats, Nonlinear plasmonics. *Nat. Photon.* **6**, 737 (2012).
24. F. Raineri, C. Cojocaru, P. Monnier, A. Levenson, R. Raj, C. Seassal, X. Letartre, and P. Viktorovitch, Ultrafast dynamics of the third-order nonlinear response in a two-dimensional InP-based photonic crystal. *Appl. Phys. Lett.* **85**, 1880 (2004).
25. Z. Sun, X. Yang, Y. Huang, L. Ding, L. Qin, and Z. Wang, π -electron density dependence of third-order optical nonlinearities in poly (1, 4-phenylene vinylene) derivatives. *Opt. Commun.* **160**, 289 (1999).
26. Q. Zhang, W. Liu, Z. Xue, J. Wu, S. Wang, D. Wang, and Q. Gong, Ultrafast optical Kerr effect of Ag–BaO composite thin films. *Appl. Phys. Lett.* **82**, 958 (2003).
27. M. Z. Alam, I. De Leon, and R. W. Boyd, Large optical nonlinearity of indium tin oxide in its epsilon-near-zero region. *Science* **352**, 795 (2016).
28. M. Z. Alam, S. A. Schulz, J. Upham, I. De Leon, and R. W. Boyd, Large optical nonlinearity of nanoantennas coupled to an epsilon-near-zero material. *Nat. Photon.* **12**, 79 (2018).
29. L. Caspani, R. P. M. Kaipurath, M. Clerici, M. Ferrera, T. Roger, J. Kim, N. Kinsey, M. Pietrzyk, A. Di Falco, V. M. Shalaev, A. Boltasseva, and D. Faccio, Enhanced Nonlinear Refractive Index in ϵ -Near-Zero Materials. *Phys. Rev. Lett.* **116**, 233901 (2016).
30. Z. Chai, X. Hu, F. Wang, X. Niu, J. Xie, and Q. Gong, "Ultrafast All-Optical Switching, *Adv. Opt. Mater.* **5**, 1600665 (2017).
31. Q. Xu, D. Fattal, and R. G. Beausoleil, Silicon microring resonators with 1.5- μm radius. *Opt. Exp.* **16**, 4309 (2008).



32. P. Tran, Optical limiting and switching of short pulses by use of a nonlinear photonic bandgap structure with a defect. *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 2589 (1997).
33. K. Nozaki, A. Shinya, S. Matsuo, T. Sato, E. Kuramochi, and M. Notomi, Ultralow-energy and high-contrast all-optical switch involving Fano resonance based on coupled photonic crystal nanocavities. *Opt. Exp.* **21**, 11877 (2013).
34. J. Homola, Surface Plasmon Resonance Sensors for Detection of Chemical and Biological Species. *Chem. Rev.* **108**, 462 (2008).
35. J. N. Anker, W. P. Hall, O. Lyandres, N. C. Shah, J. Zhao, and R. P. Van Duyne, Biosensing with plasmonic nanosensors. *Nat. Mater.* **7**, 442 (2008).
36. M. I. Stockman, Nanoplasmonics: past, present, and glimpse into future. *Opt. Exp.* **19**, 22029 (2011).
37. H. Baida, D. Mongin, D. Christofilos, G. Bachelier, A. Crut, P. Maioli, N. Del Fatti, and F. Vallée, Ultrafast Nonlinear Optical Response of a Single Gold Nanorod near Its Surface Plasmon Resonance. *Phys. Rev. Lett.* **107**, 057402 (2011).
38. G. Piredda, D. D. Smith, B. Wendling, and R. W. Boyd, Nonlinear optical properties of a gold-silica composite with high gold fill fraction and the sign change of its nonlinear absorption coefficient. *J. Opt. Soc. Am. B* **25**, 945 (2008).
39. W. Dickson, G. A. Wurtz, P. Evans, D. O'Connor, R. Atkinson, R. Pollard, and A. V. Zayats, Dielectric-loaded plasmonic nanoantenna arrays: A metamaterial with tuneable optical properties. *Phys. Rev. B* **76**, 115411 (2007).
40. N. Rotenberg, M. Betz, and H. M. van Driel, Ultrafast control of grating-assisted light coupling to surface plasmons. *Opt. Lett.* **33**, 2137 (2008).
41. N. Rotenberg, J. N. Caspers, and H. M. van Driel, Tunable ultrafast control of plasmonic coupling to gold films. *Phys. Rev. B* **80**, 245420 (2009).
42. M. Pohl, V. Belotelov, I. Akimov, S. Kature, A. Vengurlekar, A. Gopal, A. Zvezdin, D. Yakovlev, and M. Bayer, Plasmonic crystals for ultrafast nanophotonics: optical switching of surface plasmon polaritons. *Phys. Rev. B* **85**, 081401 (2012).
43. K. F. MacDonald, Z. L. Sámsón, M. I. Stockman, and N. I. Zheludev, Ultrafast active plasmonics. *Nat. Photon.* **3**, 55 (2009).
44. G. A. Wurtz, R. Pollard, W. Hendren, G. Wiederrecht, D. Gosztola, V. Podolskiy, and A. V. Zayats, Designed ultrafast optical nonlinearity in a plasmonic nanorod metamaterial enhanced by nonlocality. *Nat. Nanotech.* **6**, 107 (2011).



45. M. Wagner, A. S. McLeod, S. J. Maddox, Z. Fei, M. Liu, R. D. Averitt, M. M. Fogler, S. R. Bank, F. Keilmann, and D. Basov, Ultrafast dynamics of surface plasmons in InAs by time-resolved infrared nanospectroscopy. *Nano Lett.* **14**, 4529 (2014).
46. P. Guo, R. D. Schaller, J. B. Ketterson, and R. P. Chang, Ultrafast switching of tunable infrared plasmons in indium tin oxide nanorod arrays with large absolute amplitude. *Nat. Photon.* **10**, 267 (2016).
47. P. Guo, R. D. Schaller, L. E. Ocola, B. T. Diroll, J. B. Ketterson, and R. P. Chang, Large optical nonlinearity of ITO nanorods for sub-picosecond all-optical modulation of the full-visible spectrum. *Nat. Commun.* **7**, 12892 (2016).
48. G. Ni, L. Wang, M. Goldflam, M. Wagner, Z. Fei, A. McLeod, M. Liu, F. Keilmann, B. Özyilmaz, and A. C. Neto, Ultrafast optical switching of infrared plasmon polaritons in high-mobility graphene. *Nat. Photon.* **10**, 244 (2016).
49. K. M. Dani, Z. Ku, P. C. Upadhyaya, R. P. Prasankumar, S. Brueck, and A. J. Taylor, Subpicosecond optical switching with a negative index metamaterial. *Nano Lett.* **9**, 3565 (2009).
50. S. Choi, J. Kyoung, H. Kim, H. Park, D. Park, B.-J. Kim, Y. Ahn, F. Rotermund, H.-T. Kim, and K. Ahn, Nanopattern enabled terahertz all-optical switching on vanadium dioxide thin film. *Appl. Phys. Lett.* **98**, 071105 (2011).
51. R. Zhang, J. Fan, X. Zhang, H. Yu, H. Zhang, Y. Mai, T. Xu, J. Wang, and H. J. Snaith, Nonlinear Optical Response of Organic-Inorganic Halide Perovskites. *ACS Photon.* **3**, 371 (2016).
52. 冯端, 金国钧, 凝聚态物理学(下卷)(北京: 高等教育出版社, 2003).
53. W. L. Barnes, A. Dereux, and T. W. Ebbesen, Surface plasmon subwavelength optics. *Nature* **424**, 824 (2003).
54. A. V. Zayats, I. I. Smolyaninov, and A. A. Maradudin, Nano-optics of surface plasmon polaritons. *Phys. Rep.* **408**, 131 (2005).
55. H. Raether, *Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings* (Springer, 1988).
56. S. A. Maier, *Plasmonics: Fundamentals and Applications* (Springer, 2007).
57. E. Kretschmann, and H. Raether, Notizen: Radiative Decay of Non Radiative Surface Plasmons Excited by Light. *Zeitschrift für Naturforschung A*(1968), p. 2135.
58. A. Otto, Excitation of nonradiative surface plasma waves in silver by the method of frustrated total reflection. *Zeitschrift für Physik A Hadrons and nuclei* **216**, 398 (1968).
59. B. Hecht, H. Bielefeldt, L. Novotny, Y. Inouye, and D. W. Pohl, Local Excitation, Scattering, and Interference of Surface Plasmons. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1889 (1996).
60. R. H. Ritchie, E. T. Arakawa, J. J. Cowan, and R. N. Hamm, Surface-Plasmon Resonance Effect in Grating Diffraction. *Phys. Rev. Lett.* **21**, 1530 (1968).



61. A. Taflove, and S. C. Hagness, *Computational Electrodynamics: the Finite-Difference Time-Domain method* (Artech House, 2005).
62. L. Li, New formulation of the Fourier modal method for crossed surface-relief gratings. *J. Opt. Soc. Am. A* **14**, 2758 (1997).
63. 赫光生, 刘颂豪, *强光光学* (科学出版社, 2011).
64. T. H. Maiman, Stimulated Optical Radiation in Ruby. *Nature* **187**, 493 (1960).
65. P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich, Generation of Optical Harmonics. *Phys. Rev. Lett.* **7**, 118 (1961).
66. J. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. Pershan, Interactions between light waves in a nonlinear dielectric. *Phys. Rev.* **127**, 1918 (1962).
67. R. W. Hellwarth, Theory of stimulated Raman scattering. *Phys. Rev.* **130**, 1850 (1963).
68. G. Askaryan, Effect of the gradient of a strong electromagnetic ray on electrons and atoms. *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **42** (1962).
69. M. Bellini, and T. W. Hänsch, Phase-locked white-light continuum pulses: toward a universal optical frequency-comb synthesizer. *Opt. Lett.* **25**, 1049 (2000).
70. R. Y. Chiao, P. L. Kelley, and E. Garmire, Stimulated Four-Photon Interaction and Its Influence on Stimulated Rayleigh-Wing Scattering. *Phys. Rev. Lett.* **17**, 1158 (1966).
71. S. Anisimov, B. Kapeliovich, and T. Perelman, Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses. *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **66**, 375 (1974).
72. J. Hohlfeld, S.-S. Wellershoff, J. Güdde, U. Conrad, V. Jähnke, and E. Matthias, Electron and lattice dynamics following optical excitation of metals. *Chem. Phys.* **251**, 237 (2000).
73. J. Wang, and C. Guo, Effect of electron heating on femtosecond laser-induced coherent acoustic phonons in noble metals. *Phys. Rev. B* **75**, 184304 (2007).
74. C. Chen, A. De Castro, and Y. Shen, Surface-enhanced second-harmonic generation. *Phys. Rev. Lett.* **46**, 145 (1981).
75. H. Aouani, M. Rahmani, M. Navarro-Cía, and S. A. Maier, Third-harmonic-upconversion enhancement from a single semiconductor nanoparticle coupled to a plasmonic antenna. *Nat. Nanotech.* **9**, 290 (2014).
76. L. Novotny, and N. van Hulst, Antennas for light. *Nat. Photon.* **5**, 83 (2011).
77. B. Sharma, R. R. Frontiera, A.-I. Henry, E. Ringe, and R. P. Van Duyne, SERS: Materials, applications, and the future. *Mater. Today* **15**, 16 (2012).
78. K. F. MacDonald, and N. I. Zheludev, Active plasmonics: current status. *Laser Photon. Rev.* **4**, 562 (2010).



79. A. Wokaun, J. G. Bergman, J. P. Heritage, A. M. Glass, P. F. Liao, and D. H. Olson, Surface second-harmonic generation from metal island films and microlithographic structures. *Phys. Rev. B* **24**, 849 (1981).
80. B. Lambrecht, A. Leitner, and F. R. Aussenegg, Femtosecond decay-time measurement of electron-plasma oscillation in nanolithographically designed silver particles. *Appl. Phys. B* **64**, 269 (1997).
81. S. Linden, F. B. P. Niesler, J. Förstner, Y. Grynko, T. Meier, and M. Wegener, Collective Effects in Second-Harmonic Generation from Split-Ring-Resonator Arrays. *Phys. Rev. Lett.* **109**, 015502 (2012).
82. I. I. Smolyaninov, A. V. Zayats, and C. C. Davis, Near-field second harmonic generation from a rough metal surface. *Phys. Rev. B* **56**, 9290 (1997).
83. S. I. Bozhevolnyi, J. Beermann, and V. Coello, Direct Observation of Localized Second-Harmonic Enhancement in Random Metal Nanostructures. *Phys. Rev. Lett.* **90**, 197403 (2003).
84. E. M. Kim, S. S. Elovikov, T. V. Murzina, A. A. Nikulin, O. A. Aktsipetrov, M. A. Bader, and G. Marowsky, Surface-Enhanced Optical Third-Harmonic Generation in Ag Island Films. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 227402 (2005).
85. J. Renger, R. Quidant, N. van Hulst, and L. Novotny, Surface-Enhanced Nonlinear Four-Wave Mixing. *Phys. Rev. Lett.* **104**, 046803 (2010).
86. P. Genevet, J.-P. Tetienne, E. Gatzogiannis, R. Blanchard, M. A. Kats, M. O. Scully, and F. Capasso, Large Enhancement of Nonlinear Optical Phenomena by Plasmonic Nanocavity Gratings. *Nano Lett.* **10**, 4880 (2010).
87. S. Kim, J. Jin, Y.-J. Kim, I.-Y. Park, Y. Kim, and S.-W. Kim, High-harmonic generation by resonant plasmon field enhancement. *Nature* **453**, 757 (2008).
88. H. Ma, R. Xiao, and P. Sheng, Third-order optical nonlinearity enhancement through composite microstructures, *J. Opt. Soc. Am. B* **15**, 1022 (1998).
89. S. Link, and M. A. El-Sayed, Spectral Properties and Relaxation Dynamics of Surface Plasmon Electronic Oscillations in Gold and Silver Nanodots and Nanorods. *J. Phys. Chem. B* **103**, 8410 (1999).
90. F. McClung, and R. Hellwarth, Giant optical pulsations from ruby. *Appl. Opt.* **1**, 103 (1962).
91. H. W. Mocker, and R. Collins, Mode competition and self-locking effects in aq-switched ruby laser. *Appl. Phys. Lett.* **7**, 270 (1965).
92. A. DeMaria, D. Stetser, and H. Heynau, Self mode-locking of lasers with saturable absorbers. *Appl. Phys. Lett.* **8**, 174 (1966).
93. D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett, 60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser. *Opt. Lett.* **16**, 42 (1991).



94. M. Nisoli, S. Stagira, S. De Silvestri, O. Svelto, S. Sartania, Z. Cheng, M. Lenzner, C. Spielmann, and F. Krausz, A novel-high energy pulse compression system: generation of multigigawatt sub-5-fs pulses. *Appl. Phys. B Lasers Opt.* **65**, 189 (1997).
95. A. H. Hamad, Effects of different laser pulse regimes (nanosecond, picosecond and femtosecond) on the ablation of materials for production of nanoparticles in liquid solution. *High Energy and Short Pulse Lasers* (InTech, 2016).
96. 李润泽, 光致金属瞬态表面电场与超快晶格结构动力学的研究(上海交通大学, 2014).
97. R. Rosei, and D. W. Lynch, Thermomodulation spectra of Al, Au, and Cu. *Phys. Rev. B* **5**, 3883 (1972).
98. S. Brorson, A. Kazeroonian, J. Moodera, D. Face, T. Cheng, E. Ippen, M. Dresselhaus, and G. Dresselhaus, Femtosecond room-temperature measurement of the electron-phonon coupling constant γ in metallic superconductors. *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2172 (1990).
99. S. Sim, H. Jang, N. Koirala, M. Brahlek, J. Moon, J. H. Sung, J. Park, S. Cha, S. Oh, and M.-H. Jo, Ultra-high modulation depth exceeding 2,400% in optically controlled topological surface plasmons. *Nat. Commun.* **6**, 8814 (2015).
100. M. A. Huber, F. Mooshammer, M. Plankl, L. Viti, F. Sandner, L. Z. Kastner, T. Frank, J. Fabian, M. S. Vitiello, and T. L. Cocker, Femtosecond photo-switching of interface polaritons in black phosphorus heterostructures. *Nat. Nanotech.* **12**, 207 (2017).
101. M. Ren, B. Jia, J. Y. Ou, E. Plum, J. Zhang, K. F. MacDonald, A. E. Nikolaenko, J. Xu, M. Gu, and N. I. Zheludev, Nanostructured plasmonic medium for terahertz bandwidth all-optical switching. *Adv. Mater.* **23**, 5540 (2011).
102. C. Guo, G. Rodriguez, A. Lobad, and A. J. Taylor, Structural Phase Transition of Aluminum Induced by Electronic Excitation. *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4493 (2000).
103. C. J. K. Richardson, and J. B. Spicer, Short-time thermoelastic contributions to picosecond-time scale reflectivity measurements of metals. *Appl. Phys. Lett.* **80**, 2895 (2002).
104. S. Nie, X. Wang, H. Park, R. Clinite, and J. Cao, Measurement of the electronic Grüneisen constant using femtosecond electron diffraction. *Phys. Rev. Lett.* **96**, 025901 (2006).
105. J. L. Hostetler, A. N. Smith, D. M. Czajkowsky, and P. M. Norris, Measurement of the electron-phonon coupling factor dependence on film thickness and grain size in Au, Cr, and Al. *Appl. Opt.* **38**, 3614 (1999).
106. R. Wilks, and R. Hicken, Transient optical polarization response of aluminium at an interband transition. *J. Phys. Condens. Matter* **16**, 4607 (2004).
107. S. Park, M. Pelton, M. Liu, P. Guyot-Sionnest, and N. F. Scherer, Ultrafast Resonant Dynamics of Surface Plasmons in Gold Nanorods. *J. Phys. Chem. C* **111**, 116 (2007).



108. K. Wang, L. Chen, H. Zhang, and J. Chen, Controlling surface plasmon polaritons at femtosecond timescales on an aluminum-coated grating. *Appl. Phys. Lett.* **110**, 021105 (2017).
109. C. Sönnichsen, T. Franzl, T. Wilk, G. von Plessen, J. Feldmann, O. Wilson, and P. Mulvaney, Drastic Reduction of Plasmon Damping in Gold Nanorods. *Phys. Rev. Lett.* **88**, 077402 (2002).
110. D. S. Kim, S. C. Hohng, V. Malyarchuk, Y. C. Yoon, Y. H. Ahn, K. J. Yee, J. W. Park, J. Kim, Q. H. Park, and C. Lienau, Microscopic Origin of Surface-Plasmon Radiation in Plasmonic Band-Gap Nanostructures. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 143901 (2003).
111. M. Lupetti, J. Hengster, T. Uphues, and A. Scrinzi, Attosecond Photoscopy of Plasmonic Excitations. *Phys. Rev. Lett.* **113**, 113903 (2014).
112. D. J. Cho, W. Wu, E. Ponizovskaya, P. Chaturvedi, A. M. Bratkovsky, S.-Y. Wang, X. Zhang, F. Wang, and Y. R. Shen, Ultrafast modulation of optical metamaterials. *Opt. Exp.* **17**, 17652 (2009).
113. W. Li, B. Chen, C. Meng, W. Fang, Y. Xiao, X. Li, Z. Hu, Y. Xu, L. Tong, and H. Wang, Ultrafast all-optical graphene modulator. *Nano Lett.* **14**, 955 (2014).
114. S. Yu, X. Wu, K. Chen, B. Chen, X. Guo, D. Dai, L. Tong, W. Liu, and Y. R. Shen, All-optical graphene modulator based on optical Kerr phase shift. *Optica* **3**, 541 (2016).
115. C. K. Sun, F. Vallée, L. H. Acioli, E. P. Ippen, and J. G. Fujimoto, Femtosecond-tunable measurement of electron thermalization in gold. *Phys. Rev. B* **50**, 15337 (1994).
116. F. Hache, D. Ricard, C. Flytzanis, and U. Kreibig, The optical kerr effect in small metal particles and metal colloids: The case of gold. *Appl. Phys. A* **47**, 347 (1988).
117. N. Rotenberg, A. Bristow, M. Pfeiffer, M. Betz, and H. Van Driel, Nonlinear absorption in Au films: Role of thermal effects. *Phys. Rev. B* **75**, 155426 (2007).
118. O. Lysenko, M. Bache, N. Olivier, A. V. Zayats, and A. Lavrinenko, Nonlinear Dynamics of Ultrashort Long-Range Surface Plasmon Polariton Pulses in Gold Strip Waveguides. *ACS Photon.* **3**, 2324 (2016).
119. M. van Exter, and A. Lagendijk, Ultrashort surface-plasmon and phonon dynamics. *Phys. Rev. Lett.* **60**, 49 (1988).
120. W. H. Weber, and G. W. Ford, Optical electric-field enhancement at a metal surface arising from surface-plasmon excitation. *Opt. Lett.* **6**, 122 (1981).
121. E. D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids* (Academic press, 1998).
122. N. Garcia, G. Diaz, J. Saenz, and C. Ocal, Intensities and field enhancement of light scattered from periodic gratings: study of Ag, Au and Cu surfaces. *Surf. Sci.* **143**, 342 (1984).
123. I. De Leon, Z. Shi, A. C. Liapis, and R. W. Boyd, Measurement of the complex nonlinear optical response of a surface plasmon-polariton. *Opt. Lett.* **39**, 2274 (2014).



124. O. Lysenko, M. Bache, and A. Lavrinenko, Third-order susceptibility of gold for ultrathin layers. *Opt. Lett.* **41**, 317 (2016).
125. E. Xenogiannopoulou, P. Aloukos, S. Couris, E. Kaminska, A. Piotrowska, and E. Dynowska, Third-order nonlinear optical properties of thin sputtered gold films. *Opt. Commun.* **275**, 217 (2007).
126. K. Nozaki, T. Tanabe, A. Shinya, S. Matsuo, T. Sato, H. Taniyama, and M. Notomi, Sub-femtojoule all-optical switching using a photonic-crystal nanocavity. *Nat. Photon.* **4**, 477 (2010).
127. K. Wang, L. Chen, H. Zhang, H.-H. Hsiao, D. P. Tsai, and J. Chen, Plasmon-enhanced optical nonlinearity for femtosecond all-optical switching. *Appl. Phys. Lett.* **111**, 181102 (2017).
128. L. H. Nicholls, F. J. Rodríguez-Fortuño, M. E. Nasir, R. M. Córdova-Castro, N. Olivier, G. A. Wurtz, and A. V. Zayats, Ultrafast synthesis and switching of light polarization in nonlinear anisotropic metamaterials. *Nat. Photon.* **11**, 628 (2017).
129. R. W. Wood, On a Remarkable Case of Uneven Distribution of Light in a Diffraction Grating Spectrum. *Philos. Mag.* **4**, 396 (1902).
130. M. W. Knight, N. S. King, L. Liu, H. O. Everitt, P. Nordlander, and N. J. Halas, Aluminum for plasmonics. *ACS Nano* **8**, 834 (2013).
131. T. W. Ebbesen, H. J. Lezec, H. Ghaemi, T. Thio, and P. Wolff, Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays. *Nature* **391**, 667 (1998).
132. J. Porto, F. Garcia-Vidal, and J. Pendry, Transmission resonances on metallic gratings with very narrow slits. *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2845 (1999).
133. L. Martin-Moreno, F. Garcia-Vidal, H. Lezec, K. Pellerin, T. Thio, J. Pendry, and T. Ebbesen, Theory of extraordinary optical transmission through subwavelength hole arrays. *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1114 (2001).
134. F. Garcia-Vidal, and L. Martin-Moreno, Transmission and focusing of light in one-dimensional periodically nanostructured metals. *Phys. Rev. B* **66**, 155412 (2002).
135. Q. Li, H. Lao, J. Lin, Y. Chen, and X. Chen, Study of femtosecond ablation on aluminum film with 3D two-temperature model and experimental verifications. *Appl. Phys. A Mater. Sci. Pro.* **105**, 125 (2011).
136. B. Rethfeld, A. Kaiser, M. Vicanek, and G. Simon, Ultrafast dynamics of nonequilibrium electrons in metals under femtosecond laser irradiation. *Phys. Rev. B* **65**, 214303 (2002).
137. A. M. Brown, R. Sundararaman, P. Narang, A. M. Schwartzberg, W. A. Goddard III, and H. A. Atwater, Experimental and ab initio ultrafast carrier dynamics in plasmonic nanoparticles. *Phys. Rev. Lett.* **118**, 087401 (2017).
138. W. Fann, R. Storz, H. Tom, and J. Bokor, Direct measurement of nonequilibrium electron-energy distributions in subpicosecond laser-heated gold films. *Phys. Rev. Lett.* **68**, 2834 (1992).



139. W. Fann, R. Storz, H. Tom, and J. Bokor, Electron thermalization in gold. *Phys. Rev. B* **46**, 13592 (1992).
140. D. Pines, and P. Nozieres, *The Theory of Quantum Liquids* (New York, 1966).
141. C. K. Sun, F. Vallée, L. Acioli, E. P. Ippen, and J. G. Fujimoto, Femtosecond investigation of electron thermalization in gold. *Phys. Rev. B* **48**, 12365 (1993).
142. D. E. Gray, *American Institute of Physics Handbook* (McGraw-Hill, 1982).
143. Z. Lin, L. V. Zhigilei, and V. Celli, Electron-phonon coupling and electron heat capacity of metals under conditions of strong electron-phonon nonequilibrium. *Phys. Rev. B* **77**, 075133 (2008).
144. W. Ma, H. Wang, X. Zhang, and W. Wang, Study of the electron-phonon relaxation in thin metal films using transient thermoreflectance technique. *Inter. J. Thermophys.* **34**, 2400 (2013).
145. R.-Z. Li, P. Zhu, L. Chen, J. Chen, J. Cao, Z.-M. Sheng, and J. Zhang, Simultaneous investigation of ultrafast structural dynamics and transient electric field by sub-picosecond electron pulses. *J. Appl. Phys.* **115**, 183507 (2014).
146. A. M. Brown, R. Sundararaman, P. Narang, W. A. Goddard III, and H. A. Atwater, Ab initio phonon coupling and optical response of hot electrons in plasmonic metals. *Phys. Rev. B* **94**, 075120 (2016).
147. M. Kandyla, T. Shih, and E. Mazur, Femtosecond dynamics of the laser-induced solid-to-liquid phase transition in aluminum. *Phys. Rev. B* **75**, 214107 (2007).
148. G. Tas, and H. J. Maris, Electron diffusion in metals studied by picosecond ultrasonics. *Phys. Rev. B* **49**, 15046 (1994).
149. V. V. Temnov, Ultrafast acousto-magneto-plasmonics. *Nat. Photon.* **6**, 728 (2012).
150. W. M. Haynes, *CRC Handbook of Chemistry and Physics, 95th ed.* (Chemical Rubber Company Press, 2014).
151. I. Liberal, and N. Engheta, Near-zero refractive index photonics. *Nat. Photon.* **11**, 149 (2017).
152. Z. Chai, X. Hu, F. Wang, C. Li, Y. Ao, Y. Wu, K. Shi, H. Yang, and Q. Gong, Ultrafast on-Chip Remotely-Triggered All-Optical Switching Based on Epsilon-Near-Zero Nanocomposites. *Laser Photon. Rev.* **11**, 1700042 (2017).
153. N. Kinsey, C. DeVault, J. Kim, M. Ferrera, V. M. Shalaev, and A. Boltasseva, Epsilon-near-zero Al-doped ZnO for ultrafast switching at telecom wavelengths. *Optica* **2**, 616 (2015).
154. B. T. Diroll, P. Guo, R. P. Chang, and R. D. Schaller, Large transient optical modulation of epsilon-near-zero colloidal nanocrystals. *ACS Nano* **10**, 10099 (2016).
155. S. Baldelli, A. S. Eppler, E. Anderson, Y.-R. Shen, and G. A. Somorjai, Surface enhanced sum frequency generation of carbon monoxide adsorbed on platinum nanoparticle arrays. *J. Chem. Phys.* **113**, 5432 (2000).



156. A. V. Krasavin, and A. V. Zayats, Photonic Signal Processing on Electronic Scales: Electro-Optical Field-Effect Nanoplasmonic Modulator. *Phys. Rev. Lett.* **109**, 053901 (2012).
157. T. Hanke, J. Cesar, V. Knittel, A. Trügler, U. Hohenester, A. Leitenstorfer, and R. Bratschitsch, Tailoring Spatiotemporal Light Confinement in Single Plasmonic Nanoantennas. *Nano Lett.* **12**, 992 (2012).
158. A. V. Krasavin, and N. Zheludev, Active plasmonics: Controlling signals in Au/Ga waveguide using nanoscale structural transformations. *Appl. Phys. Lett.* **84**, 1416 (2004).
159. T. Nikolajsen, K. Leosson, and S. I. Bozhevolnyi, Surface plasmon polariton based modulators and switches operating at telecom wavelengths. *Appl. Phys. Lett.* **85**, 5833 (2004).
160. A. Campion, and P. Kambhampati, Surface-enhanced Raman scattering. *Chem. Soc. Rev.* **27**, 241 (1998).
161. A. L. Moretti, W. M. Robertson, B. Fisher, and R. Bray, Surface-enhanced Brillouin scattering on silver films. *Phys. Rev. B* **31**, 3361 (1985).
162. M. Sivi, M. Duwe, B. Abel, and C. Ropers, Extreme-ultraviolet light generation in plasmonic nanostructures. *Nat. Phys.* **9**, 304 (2013).
163. G. Vampa, B. G. Ghamsari, S. Siadat Mousavi, T. J. Hammond, A. Olivieri, E. Lisicka-Skrek, A. Y. Naumov, D. M. Villeneuve, A. Staudte, P. Berini, and P. B. Corkum, Plasmon-enhanced high-harmonic generation from silicon. *Nat. Phys.* **13**, 659 (2017).
164. I.-Y. Park, S. Kim, J. Choi, D.-H. Lee, Y.-J. Kim, M. F. Kling, M. I. Stockman, and S.-W. Kim, Plasmonic generation of ultrashort extreme-ultraviolet light pulses, *Nat. Photon.* **5**, 677 (2011).



攻读博士期间已发表论文列表

1. **Kuidong Wang**, Long Chen, Haijuan Zhang, and Jie Chen,
Controlling surface plasmon polaritons at femtosecond timescales on an aluminum-coated grating.
Applied Physics Letters, **110**, 021105 (2017)
2. **Kuidong Wang**, Long Chen, Haijuan Zhang, Hui-Hsin Hsiao, Din Ping Tsai and Jie Chen,
Plasmon-enhanced Optical Nonlinearity for Femtosecond All-Optical Switching.
Applied Physics Letters, **111**, 181102 (2017)
3. **Kuidong Wang**, Runze Li, Hui-Hsin Hsiao, Long Chen, Haijuan Zhang and Jie Chen,
Ultrafast active control of UV light with plasmonic resonance on aluminum nanostripes.
Applied Physics Letters, **112**, 191107 (2018)
4. Haijuan Zhang, **Kuidong Wang**, Yuanyuan Zhang, Wenxia Dong, Long Chen, Xiaodong Tang and Jie Chen,
Strong influence of polaron-polaron interaction on the magnetoresistance effect in $La_{0.7}A_{0.3}MnO_3$ thin films.
Applied Physics Letters, **111**, 192408 (2017)



致 谢

转眼间，已经临近博士毕业。在交大的四年博士生活，虽谈不上多么精彩，但也足够充实。四年时间在人生中固然不长，然而对于想要做科研的人来说，博士生活的四年确极为关键。还记得我刚进交大时，没有接触过真正的实验，而且对超快光学的认识也非常有限，对目前实验室做的方向更是极为陌生。然而经过了博士期间的训练，我不但对本领域有了一定理解，而且还能初步独立的开展自己喜欢的研究方向，这对我来说不能不算是一大进步。

首先我要衷心的感谢我的导师陈洁特别研究员。没有陈老师的认真负责、严格要求，很难想象我能顺利开展自己的博士课题。陈老师为人正直，做事极其认真，事事能够以身作则，为我和师弟师妹们做出了好的榜样。她对科研有着极大的热情，能时时跟我分享她看到的最新科研进展，这种热情也深深影响着我；她时刻提醒我不要迷信权威的说法，文章虽要多读但更要有自己的判断力；而且教导我博士期间做科研不要太急躁，仅仅是以发文章为目的而不重视工作的深度对以后的发展没好处；她非常重视科研中的细节，不管是理论知识还是实验的过程和结果，都要求我以做严谨科研的方式对待；在她的指导下我受到了正规的学术训练，对我来说这是我博士期间最大的收获之一。在我刚进实验室时，由于对超快领域及光学实验缺乏应有的理解，她也没有嫌我背景知识欠缺，而是一步一步引导我，用她的耐心，将我这一个纯粹的外行带入超快科学领域。不仅如此，在研究课题上她更是给了我极大的自由度，让我充分发挥自己的特长利用实验室已有设备做自己想做的方向，在跟她的讨论中我找到了自己很感兴趣的方向，这也使我在博士期间的研究充满乐趣。此外，她对学生非常负责，即便有时候很忙，她也能放下手上的事先解决学生的问题。总之，我很庆幸自己在博士期间能跟她做科研。

感谢徐剑秋教授。徐老师对待学生随和，喜欢跟学生讨论问题，在我刚入校后帮我确定我的博士研究方向。虽然他平时很忙，但也能尽力的抽时间跟我讨论遇到的问题，这使我更快的进入到超快光学这一领域。



感谢我的师兄陈龙，博士期间我从他身上学到了很多。不论是光学泵浦探测技术的原理和实验技巧，还是曾经用过的超快电子衍射装置，他都能不厌其烦的给我讲解直到我彻底明白为止。虽然我跟他的研究方向不同，但是每跟他讨论学术问题我都能或多或少得到启发。

感谢叶芳伟老师在我刚进入纳米光子学领域时能够热心的给我解答疑惑；感谢马杰老师在科研与生活中对我的关心与帮助；感谢刘烽老师对我的鼓励和科研方向上一些有用的建议；感谢物理所的王瑄老师在实验结果方面的有益讨论；感谢我的合作者国立台湾大学的蔡定平教授和台北医学大学的萧惠心博士，虽然跟蔡老师当面交流次数有限，但每次跟他在一起讨论我科研方向的问题时他都能给我中肯的建议。感谢萧博士，每当我有理论计算上的问题时，她都能及时的跟我讨论并发给我详细的解答。

感谢朱鹏飞老师在我实验中遇到问题时无私的帮助；感谢李润泽师兄在我刚来交大时带我熟悉超快电子衍射装置；感谢张喆林师兄在我刚开始用电动平移台时给一头雾水的我讲解其控制程序的原理；感谢江舟亚给第一次接触超快实验的我讲解超快热反射率的原理；感谢张海娟师姐在新激光器到来后与我一同分担监管激光器的任务。同时感谢郭鑫、康小卫、陈荣在我刚进交大时给我的帮助。

在交大期间，特别要感谢实验室新进的各位师弟师妹们，施文隽、余军潇、陈璁珑、王燕档等，他们的到来让实验室的气氛越来越活跃，也让我在实验和论文工作之余更加快乐。

最后，真诚的感谢我的家人，是他们一直默默在背后支持着我的各种选择与决定，并时刻鼓励着我，使我能够毫无顾忌的进行我博士期间的每项工作。

王魁东

2018年3月17日

于上海交通大学



4007181

上海交通大学 学位论文原创性声明

本人郑重声明：所呈交的学位论文，是本人在导师的指导下，独立进行研究工作所取得的成果。除文中已经注明引用的内容外，本论文不包含任何其他个人或集体已经发表或撰写过的作品成果。对本文的研究做出重要贡献的个人和集体，均已在文中以明确方式标明。本人完全意识到本声明的法律结果由本人承担。

学位论文作者签名：王健东

日期：2018年5月29日

上海交通大学 学位论文使用授权书

本学位论文作者完全了解学校有关保留、使用学位论文的规定，同意学校保留并向国家有关部门或机构送交论文的复印件和电子版，允许论文被查阅和借阅。

本学位论文属于 公开论文

内部论文， 1年/ 2年/ 3年 解密后适用本授权书。

秘密论文，___年（不超过10年）解密后适用本授权书。

机密论文，___年（不超过20年）解密后适用本授权书。

（请在以上方框内打“√”）

学位论文作者签名：王健东

日期：2018年5月29日

指导教师签名：陈洁

日期：2018年5月29日



14007181

上海交通大学博士学位论文答辩决议书



0140729004

姓名	王魁东	学号	0140729004	所在学科	物理学
指导教师	陈洁	答辩日期	2018-05-28	答辩地点	上海交通大学闵行区物理楼616会议室
论文题目	基于表面等离激元非线性光学特性的超快光调制				

投票表决结果：5/5/5（同意票数/实到委员数/应到委员数） 答辩结论：通过 未通过
评语和决议：

光调制器是光子学与光电子学领域应用重要的器件。随着科学技术的发展，高速集成光子回路中对调制器的调制速度和深度的要求越来越高。本文通过泵浦-探测的实验手段，利用表面等离激元的非线性光学特性研究了超快光调制的增强机理及特性。本文主要内容和创新点如下：（1）在铝光栅表面实现亚百飞秒光调制，揭示了相关物理机制；（2）结合表面等离激元的两种特性，将飞秒级光调制深度增强55倍，并区分了两种调制过程的不同机制，使得飞秒级过程从皮秒级过程中分离出来成为可能；（3）利用表面等离子体共振，实现了对紫外波段光信号调制的增强，通过其增强机制发现此非线性增强作用可用于声学声子的探测。

答辩委员会一致认为该论文创新性强、写作规范、内容充实，对进一步理解利用光学非线性增强效应提高光调制深度有重要意义。

在答辩过程中王魁东同学表达明确，能够正确回答评委的问题。答辩委员会一致认为该论文达到申请博士学位的水平，建议授予其博士学位。

2018年5月28日

答辩委员会成员签名	职务	姓名	职称	单位	签名
	主席	周磊	教授	复旦大学	
	委员	刘韡韬	教授	复旦大学	
	委员	叶芳伟	教授	上海交通大学	
	委员	叶坚	教授	上海交通大学	
	委员	郑君	副研究员	上海交通大学	
	秘书	陈雪	助理研究员	上海交通大学	