arXiv:2602.01895v1 [physics.optics] 2 Feb 2026

非局域超表面中三次谐波产生的波前控制与强度调制

田宇[1,2],王诺[1],刘琦[1,2],肖书媛[3],刘婷婷[3],Olivier J. F. Martin[4],

和顾颖[1,2,5,6,7*]1人工微结构和介观物理国家重点实验室，北京大学，北京100871，中国2纳米光电子前沿科学中心、量子物质协同创新中心及北京量子信息科学研究院，北京大学，北京100871，中国3信息工程学院，南昌大学，南昌330031，中国4纳米光子学与计量实验室，洛桑联邦理工学院（EPFL），洛桑CH-1015，瑞士5极端光学协同创新中心，山西大学，太原，山西030006，中国6北京大学长三角光电科学研究院，南通226010，中国7合肥国家实验室，合肥230088，中国

*电子邮箱：ygu@pku.edu.cn

摘要

超表面已成为集成非线性光学领域一种前景广阔的平台。非局域超表面可实现高非线性转换效率，而局域超表面则能提供灵活多样的波前控制，但要在单一超表面中兼得二者仍具挑战。在此，我们采用非局域相位梯度超表面，首次展示了具有偏振依赖波前控制的高效三次谐波产生（THG）。借助共振处存在的非局域非线性几何相位，偏振各异的三次谐波光被偏转至 ± 2nd 和 ± 4th 衍射级次；同时，在 1 GW/cm^2 的泵浦强度下，转换效率最高可达 1.45×10^{-4}。随后，通过引入次级基频光束，使其产生的三次谐波光与第一束光产生的三次谐波光重叠，从而实现了三次谐波产生的强度调制。通过改变两束基频光的相对相位、偏振和强度，可将三次谐波产生效率从 3.9×10^{-9} 调节至 5.5×10^{-3}。通过结合局域与非局域超表面的优势，我们的研究为片上非线性光子器件和信号处理开辟了有效途径。

关键词

非局域超表面、准连续谱束缚态、三次谐波产生、高转换效率、波前控制、强度调制

引言

超表面是一类二维人工材料，可在微纳尺度上对光的振幅、相位、偏振及其他特性进行卓越调控，[1–3] 从而实现多种经典和量子应用。[4–6] 利用近场增强，共振超表面进一步促进了用于非线性频率转换的频域调控，使其成为集成非线性光学的理想候选者。[7–9] 迄今为止，超表面中的多种非线性过程，包括谐波产生和频率混合，已在具有等离激元共振或米氏模的超表面中得到验证。[10–12]例如，已有研究在硅超表面中实现三次谐波产生（THG），其转换效率超过 $10^{-6} \sim 10^{-5}$，相比未经图案化的硅薄膜提升了近四个数量级。[13–15] 尽管取得了这些进展，这些超表面的整体非线性转换效率仍然相对较低，主要原因是它们工作于品质因数有限的局域模下 ($Q < 10^2$)。为提高转换效率，具有显著近场增强和更高品质因数 ($Q > 10^3$)的[16,17] 非局域超表面已被引入非线性光学领域。其中，支持准连续谱束缚态（q-BIC）的超表面已成为重要分支；通过调控结构对称性和几何扰动，这类超表面原则上能够实现近乎无限的品质因数，[18,19] 从而增强非线性过程。[17] 借助准连续域束缚态，硅超表面已实现高效三次谐波产生，转换效率高达 10^{-4}，[20–22] 与相应的局域模结构相比，提升近两个数量级。除三次谐波产生外，非局域超表面还实现了高阶非线性过程，[23,24] 以及自发参量下转换等量子非线性现象，[25,26] 这些成果展现了其在先进非线性光子学领域日益广阔的应用前景。

尽管非局域超表面能够显著增强非线性效应，但另一项关键要求是同时调控所产生谐波光的波前。对于局域超表面，只需高精度地独立设计各个单元胞的非线性响应，便可轻松调控谐波波前，从而实现非线性衍射、[27,28] 非线性全息、[29,30] 涡旋光束产生、[31] 等功能。然而，在非局域超表面中实现非线性波前控制仍然颇具挑战，因为每个单元胞的响应都会受到其他单元胞的强烈影响，因此难以独立设计各单元胞的非线性响应。近期，有研究提出了编码几何相位梯度的非局域超表面，即非局域相位梯度超表面（NPGM），用于线性光学中的光谱选择性波前操控。[32–34] 将这种几何相位从线性领域拓展至非线性领域后，便有望在单个 NPGM 上同时实现高转换效率与灵活的波前控制——这正是本研究的主要目标之一。此外，若能实现非线性波前控制，还可支持基频光束之间以及谐波光之间的干涉，从而为非线性响应的全光调制提供可能性——这也是本研究的另一项目标。

非线性超表面中谐波光的调制对于信号处理和光开关至关重要。[35,36] 通常，通过引入额外的控制光束来调节

非线性材料的折射率，进而调控二次谐波和三次谐波（TH）的转换效率。[37–39] 然而，这些方法主要依赖三阶非线性过程，例如克尔效应和双光子吸收，而许多材料的非线性系数都非常低，因此限制了现有调制方法的普适性和调制深度。另一种方法是通过干涉改变非线性材料内部的电场分布，从而实现全光调制。这一策略已应用于传统光学结构中，[40,41] 使调制不再依赖特定的非线性系数。然而，利用干涉调控非线性超表面的转换效率仍鲜有研究。借助 NPGM 的波前控制能力，我们揭示了通过改变次级基频光束的入射条件，可以有效调制三次谐波产生效率。

在此，我们首先在单个NPGM上展示了具有波前控制的高效三次谐波产生。硅基 NPGM支持品质因数约为120的准连续域束缚态以及强近场增强。在此基础上，三次谐波产生效率最高可达 1.45×10^{-4}，并在泵浦强度为1GW/cm^{2}时实现。更重要的是，通过调节单元胞的旋转角，可将非局域非线性几何相位赋予准连续域束缚态处的三次谐波产生。该相位为 $4\theta\sigma$ （同偏振条件）和 $8\theta\sigma$ （交叉偏振条件），恰好是局域超表面中相应相位的两倍，[8] 其中 θ 表示单元胞的旋转角， $\sigma = +1/-1$ 分别表示右/左旋圆偏振（RCP/LCP）基频光。利用我们所提出的非局域非线性几何相位，实现了偏振依赖的波前调控。在右旋圆偏振基频光束入射下，所产生的三次谐波光被偏转到第 $+2$和第 $+4$衍射级次（图1a）；而当入射光为左旋圆偏振时，则出射到第 -2和第 -4衍射级次。随后，通过引入次级基频光束，其产生的三次谐波光与主光束的三次谐波光重叠（图1b），两束基频光束之间的干涉将强烈调制三次谐波产生效率（图1c）。通过改变相对相位、偏振和强度，转换效率可从 3.9×10^{-9} 动态调谐至 5.5×10^{-3}，对应于

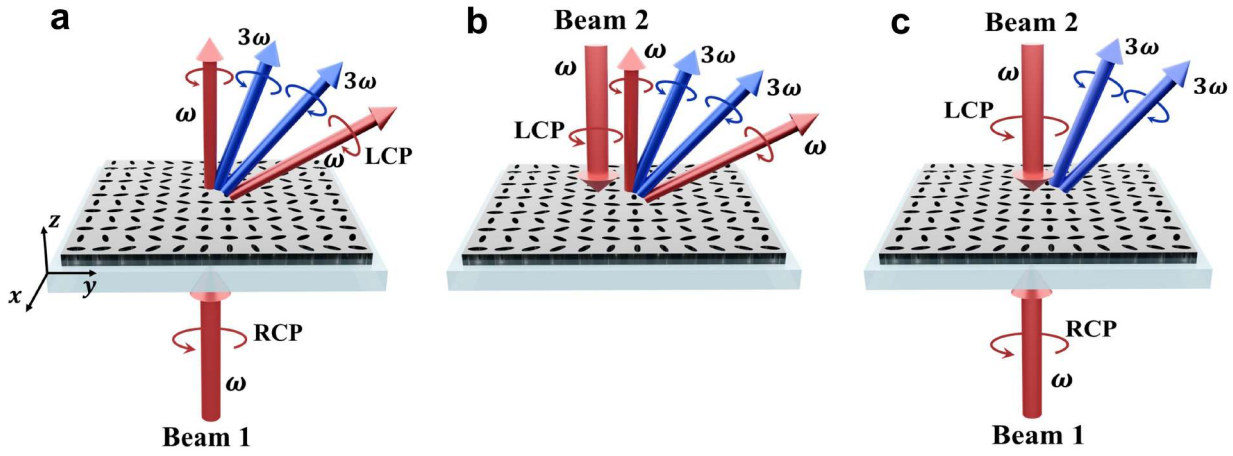


图1：单个 NPGM 上三次谐波产生的波前控制和强度调制示意图。(a、b) 基频光束分别从 (a) 基底侧入射的右旋圆偏振光或 (b) 空气侧入射的左旋圆偏振光入射到 NPGM 中。空气侧产生的三次谐波光被偏转至 $+2$ 阶和 $+4$ 阶衍射级次。(c) 当光束1和光束2同时入射时，同一 NPGM 上三次谐波产生的强度调制。它们产生的三次谐波光相互重叠，从而以接近 unity 的调制深度实现三次谐波产生效率的调制。

接近于1的调制深度。我们的结果克服了同时实现高转换效率与灵活波前控制的关键局限，为紧凑的多功能非线性光学器件铺平了道路。此外，非线性转换效率的基于干涉的调制在片上非线性信号处理和光开关方面具有广阔前景。

结果与讨论

1. NPGM 中三次谐波产生的波前控制

现在，我们开始研究 NPGM 上具有波前控制功能的高效三次谐波产生。已有研究表明，此类 NPGM 能够调控线性光场的波前，同时实现强近场增强。[32–34]将其应用于非线性光学，预计可在单个 NPGM 上实现高转换效率，并灵活调控非线性光场的波前。本节首先考察增强的三次谐波产生过程，其效率较局域超表面显著提高。[13,15] 值得注意的是，NPGM 还能提供非局域非线性几何相位，仅在准连续域束缚态处实现对三次谐波光偏振相关的波前控制。因此，单个 NPGM 可同时实现高非线性转换效率和多样化的波前工程，为

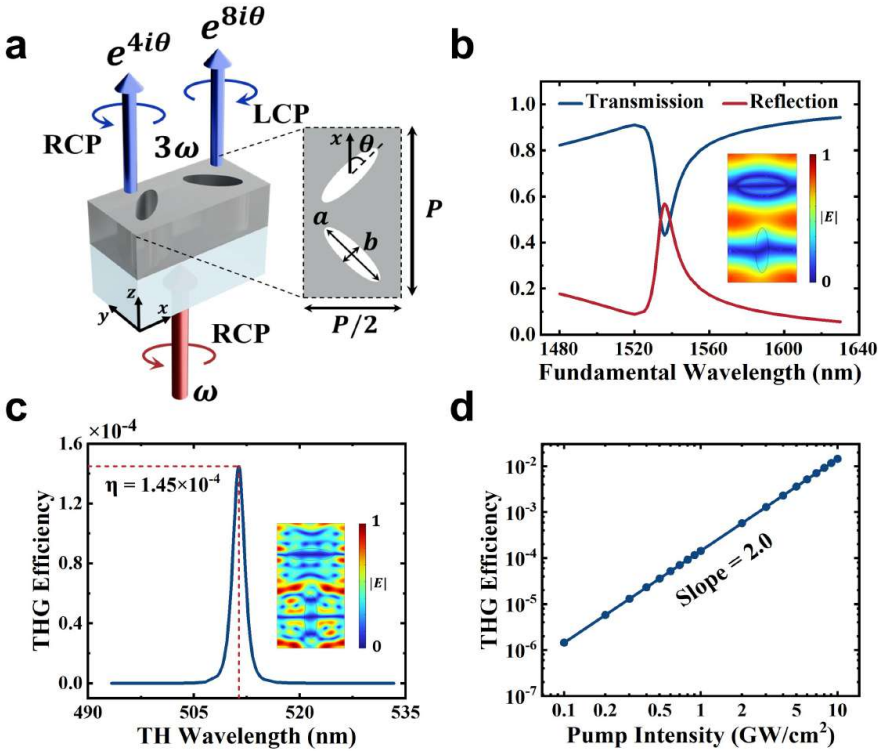


图 2：NPGM 单元胞内增强的三次谐波产生。(a) 周期性单元胞内三次谐波产生过程示意图。(b) 单元胞的透射/反射光谱及准连续域束缚态处 xy 平面内的电场分布。(c) 泵浦强度为 1 GW/cm^2, 时，单元胞的三次谐波产生效率随三次谐波波长的变化，以及波长为 511.3 nm 处的 xy 平面内电场分布。(d) 三次谐波产生效率与泵浦强度的关系。这里，右旋圆偏振光基频光束从基底侧垂直入射到单元胞。

非线性超表面的片上应用提供了广阔前景。

1.1 单元胞的线性和非线性响应。如图 2a 所示，考虑由刻蚀有椭圆孔的硅板（灰色部分）构成、并置于玻璃基底（浅蓝色部分）上的周期性排列单元胞。硅的折射率取自实验数据（参见补充信息第 S1 节），[42] 而玻璃基底的折射率固定为 1.5。单元胞厚度为 260 nm，周期常数为 P $=$ 750 nm。此外，椭圆孔的旋转角固定为 $\theta = 0°$，长轴为 a $=$ 260nm，短轴为 b $=$70 nm。对于硅单元胞中的三次谐波产生过程，非线性极化可表示为 $\boldsymbol{P}^{3\omega} = \varepsilon_0\chi_3(\boldsymbol{E}^{\omega}\cdot\boldsymbol{E}^{\omega})\boldsymbol{E}^{\omega}$，其中 ε_0 为真空介电常数，$\chi_3 = 2.45\times10^{-19}\mathrm{m}^2/\mathrm{V}^2$ 为硅的三阶极化率，[43] 而 $\boldsymbol{E}^{\omega}$ 为基频波长处的电场。此处，三次谐波转换效率定义为 $\eta = P_{TH}/P_F$，其中 P_{TH}表示从空气侧辐射的三次谐波功率， P_F 表示基频波长处的泵浦功率。数值分析采用商业软件 COMSOL Multiphysics 中的有限元法求解器，在频域内进行（更多细节见方法部分）。

我们首先研究上述单元胞的线性和非线性响应。传输光谱和反射光谱证实，该单元胞支持位于1536 nm处、品质因数约为120的准连续域束缚态（q-BIC），如图2b所示。准连续域束缚态（q-BIC）可在硅材料内部实现强近场增强（图2b中的插图），从而用于增强三次谐波产生过程。当泵浦光束为右旋圆偏振（RCP），强度为$1\mathrm{GW/cm}^2$, 时，转换效率在三次谐波波长为511.3 nm处达到峰值 1.45×10^{-4} （图2c），与局域超表面相比，提升近两个数量级。[13–15]与前述讨论一致，三次谐波产生主要发生在准连续域束缚态（q-BIC）处近场增强较强的位置（图2c中的插图）。此外，随着泵浦强度增加，三次谐波产生效率也随之线性增加；在对数坐标下拟合斜率为2.0（图2d），证实了三次谐波产生过程的特性。[28] 此外，基底侧也会发射三次谐波光，其强度略低于空气侧（见补充信息第S2节）。由于两侧特性相似，我们仅关注空气侧三次谐波光的强度和波前。因此，在考虑NPGM中的单元胞后，已在准连续域束缚态（q-BIC）处实现高效三次谐波产生。

1.2 非局域非线性几何相位。除增强THG外，还可以为三次谐波光赋予非局域非线性几何相位。具体而言，当处于准连续域束缚态的基频光束入射到NPGM的单元胞时，所产生三次谐波光的右旋圆偏振分量和左旋圆偏振分量将携带由椭圆孔的旋转角决定的几何相位（ θ （图2a）。几何相位与 θ 之间的关系可通过圆偏振基下THG的非线性极化解析得到。以右旋圆偏振光入射为例，非线性极化的右旋圆偏振分量和左旋圆偏振分量可表示为

$$P_R^{3\omega} = e^{i4\theta}\varepsilon_0\chi_{\mathrm{RRRR}}E_R^{\omega}E_R^{\omega}E_R^{\omega}, \quad P_L^{3\omega} = e^{i8\theta}\varepsilon_0\chi_{\mathrm{LRRR}}E_R^{\omega}E_R^{\omega}E_R^{\omega}, \tag{1}$$

其中 χ_{LRRR} 表示使频率为 ω 的三个右旋圆偏振光子产生一个频率为 3ω的左旋圆偏振光子的非线性系数。因此，当处于准连续域束缚态、旋转角为 θ的右旋圆偏振光束入射到单元胞时，三次谐波光的左旋圆偏振分量携带的相位为 8θ，而右旋圆偏振分量携带的相位为 4θ (图2a）。相反，当入射光为左旋圆偏振光时，三次谐波光的左旋圆偏振分量携带的相位为 -4θ，右旋圆偏振分量携带的相位为 -8θ （详细推导请参见补充信息第S3节）。

上述关于非局域非线性几何相位的分析可通过仿真验证。我们首先构建了12种相对旋转角为 $15°$的单元胞。这些单元胞具有相同的

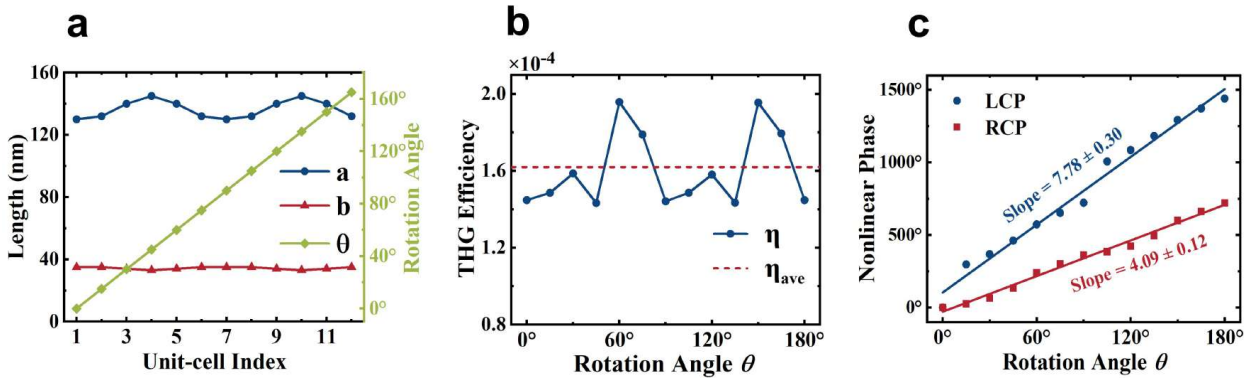


图3：（a）NPGM 中单元胞的几何参数。通过随旋转角调整椭圆孔的长轴和短轴，使准连续域束缚态波长保持不变，并获得相近的三次谐波产生效率。（b）不同旋转角下周期性单元胞的三次谐波产生效率和（c）非线性几何相位。这里，基频光束为强度为 1 GW/cm^2 的右旋圆偏振光，用于产生波长为 511.3 nm 的三次谐波光。

周期常数和厚度，但其椭圆孔的长轴 a 和短轴 b 则随旋转角相应调整（图3a）。这样可确保所有单元胞支持相同波长的准连续域束缚态，同时具有相当的三次谐波产生效率，如图3b所示。只有满足这些条件，三次谐波光的远场分布才完全由单元胞编码的非局域非线性几何相位决定，从而实现非线性波前调控。随后，我们计算了三次谐波光的非线性几何相位与旋转角 θ 之间的关系。在准连续域束缚态处以右旋圆偏振光照射时，当单元胞的旋转角变化 θ时，三次谐波光右旋圆偏振分量的非线性相位变化 4θ，而左旋圆偏振分量的相位变化 8θ（图3c），与上述公式（1）中的解析结果一致。左旋圆偏振基频光束入射时，情况类似。因此，非局域非线性几何相位得以充分确立，这也是NPGM中非线性波前工程的基础。

值得注意的是，所提出的非局域非线性几何相位在响应振幅和工作带宽方面不同于先前报道的局域超表面中的非线性几何相位。[8,27,30,44,45]通常，对于局域超表面中的线性/非线性过程，几何相位在同偏振和交叉偏振条件下分别为 $(n-1)\,\theta\sigma$ 和 $(n+1)\,\theta\sigma$，[8] 其中 n 表示非线性过程的阶数，θ 表示单元胞的旋转角，$\sigma = +1/-1$ 表示右旋圆偏振/左旋圆偏振基频光束。对于线性过程（$n=1$），同偏振和交叉偏振条件下分别为0和 $2\theta\sigma$；[3] 对于三次谐波产生过程（$n=3$），同偏振条件下为 $2\theta\sigma$，交叉偏振条件下为 $4\theta\sigma$。[30] 这是基于如下事实确立的：当局域超表面单元胞的旋转角改变 θ时，主轴也相应地旋转 θ。然而，对于非局域相位梯度超表面中的单元胞，旋转 θ 会导致其主轴旋转 2θ。[32]因此，线性光场的几何相位在同偏振和交叉偏振条件下分别为0和 $4\theta\sigma$，[33,34] 是局域超表面中相应值的两倍。相应地，三次谐波产生过程的非局域非线性几何相位也是局域超表面的两倍，在同偏振和交叉偏振条件下分别为 $4\theta\sigma$ 和 $8\theta\sigma$。上述公式（1）中的解析结果和仿真也证实了这一点。此外，与局域超表面中的宽带响应不同，[8,44] NPGM中的非线性几何相位仅存在于准连续域束缚态处。因此，非局域非线性几何相位使NPGM能够在准连续域束缚态处调控三次谐波光的波前。

1.3 三次谐波产生的波前控制。 为调控三次谐波光的波前，我们首先构建了由上述12种单元胞组成的NPGM（图1a）。它支持位于1529 nm处的准连续域束缚态，其透射和反射光谱如图4a所示，相对于单元胞周期排列的情况呈现出轻微蓝移。[32–34] 在准连续域束缚态处，硅材料内部存在强烈的近场增强（图4a的插图），从而增强三次谐波产生过程。因此，当入射基频光束为右旋圆偏振、强度为$1\mathrm{GW/cm^2}$, 时，三次谐波产生效率超过 $\eta = 1.45 \times 10^{-4}$，对应三次谐波波长为509 nm，如图4b所示。与具有相位梯度的局域超表面相比，[29–31] 这是超过两个数量级的提升。同时，从基底侧出射的三次谐波光强度相对低于空气侧（见补充信息第S2节）。因此，利用NPGM，可在准连续域束缚态处实现高效的三次谐波产生过程。

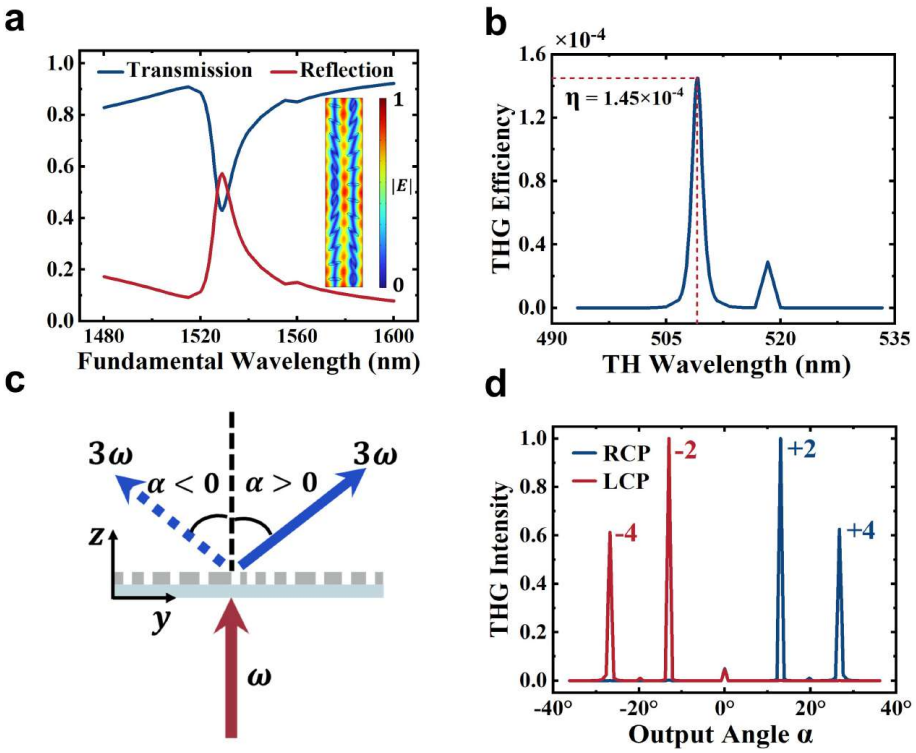


图4: （a）NPGM 的透射/反射光谱，以及准连续域束缚态处 xy平面内的电场分布。（b）NPGM 的三次谐波产生效率随三次谐波波长的变化。（c）三次谐波光出射角 α 的示意图。（d）右旋圆偏振和左旋圆偏振基频光束从基底侧垂直入射时，归一化三次谐波强度的分布。

在提升三次谐波产生效率的同时，还可在准连续域束缚态处实现三次谐波光的偏振依赖波前控制。不同出射角下的三次谐波产生强度分布 α 可通过傅里叶变换获得（详见方法部分），其中 α 定义为三次谐波光的发射方向与 $+$z 轴之间的夹角（图4c）。如图4d所示，在右旋圆偏振基频光束入射时，三次谐波光的出射角主要为 $\alpha = 13.1°$ 和 $26.9°$，分别对应波长为 509 nm 时的第 $+2$阶和第 $+4$阶衍射级次。这种非线性波前控制源于上文讨论的非局域非线性几何相位。根据公式（1）以及图3c中的数值结果，NPGM 中共偏振和交叉偏振情况下三次谐波光的相位分别为 $+4\theta$ 和 $+8\theta$,

这表明三次谐波光将从第 $+2$阶和第 $+4$阶衍射级次出射，这与图4d中的数值结果高度吻合。同时，基频光束主要从出射角为 0° 和 42.7°的方向出射，分别对应波长为 1527 nm 时的 0 阶和第 $+2$阶衍射级次（见补充信息第S4节）；这也与线性光场已报道的几何相位0 和 4θ 一致。[32–34] 相比之下，当入射基频光为左旋圆偏振时，三次谐波光主要进入第 -2阶和第 -4阶衍射级次（图4d）。对于其他偏振态的基频光束，由于可将其视为右旋圆偏振光与左旋圆偏振光的叠加，其三次谐波光将同时从第 ±2阶和第 ±4阶衍射级次出射。因此，在 NPGM 中，三次谐波光的波前可在准连续域束缚态处进行调控，并呈现偏振依赖和光谱选择性特征。

总之，我们展示了在单个 NPGM 上实现具有偏振依赖波前调制的高效三次谐波产生，且工作于准连续域束缚态（q-BIC），克服了非线性超表面中同时实现高转换效率与波前控制的关键限制。基于这些成果，通过设计非局域非线性几何相位梯度，可利用 NPGM 实现更灵活的波前控制。因此，NPGM 有望实现更先进的功能，例如非线性全息[29,30]和涡旋光束产生，[31] 这些功能对于构建多样化的非线性光源至关重要。与具有宽带响应的局域超表面相比，[8,44] NPGM 具有固有的窄带相位响应。这使得非线性光场的光谱选择性波前工程成为可能，从而推动多功能非线性光子器件的发展。除经典非线性光学外，NPGM 还可拓展至支持伴随波前控制的量子非线性过程，包括自发参量下转换和四波混频，为生成和操控具有更强纠缠及更高效率的量子态提供了机遇。NPGM 的波前控制能力也为通过干涉调制三次谐波产生的强度提供了可能性，我们将在下一节讨论这一点。

2. 三次谐波产生的强度调制

本文旨在研究同一 NPGM 中通过干涉实现的三次谐波产生强度调制。上一节的讨论聚焦于器件制成后功能固定的被动非线性响应。全光调制对于 NPGM 的按需应用至关重要，可通过两束基频光束之间的干涉实现。本节基于针对三次谐波光的偏振依赖波前控制，引入一束次级基频光束，其三次谐波光与第一束基频光束产生的三次谐波光重叠（图1b）。同时输入这两束基频光束（图1c），并调节相对相位、强度和偏振，即可将三次谐波产生效率从 3.9×10^{-9} 调节至 5.5×10^{-3}。基于干涉的三次谐波产生调制具有接近 1 的调制深度，可应用于全光开关和非线性信号处理。

2.1 强度调制的机制。我们首先阐明由两束基频光束之间的干涉调制三次谐波产生效率的物理机制。仅有第一束基频光束入射时，NPGM 中诱导的电场分布记为 $\boldsymbol{E}_1^{\omega}=(E_{1x},\ E_{1y},\ E_{1z})^T$，其具体形式由其相位、强度和偏振决定。仅有第二束基频光束照射 NPGM 时，诱导的电场分布记为 $\boldsymbol{E}_2^{\omega}=(E_{2x},\ E_{2y},\ E_{2z})^T$。若两束基频光束同时入射，NPGM 中的总电场分布便是 $\boldsymbol{E}_1^{\omega}$ 与 $\boldsymbol{E}_2^{\omega}$ 的相干叠加，表示为 $\boldsymbol{E}_s^{\omega}=\boldsymbol{E}_1^{\omega}+\boldsymbol{E}_2^{\omega}=(E_{1x}+E_{2x},\ E_{1y}+E_{2y},\ E_{1z}+E_{2z})^T$。因此，NPGM 中三次谐波产生的非线性极化可表示为

by

$$\boldsymbol{P}_s^{3\omega} = \varepsilon_0 \chi_3 (\boldsymbol{E}_s^{\omega} \cdot \boldsymbol{E}_s^{\omega}) \boldsymbol{E}_s^{\omega}, \tag{2}$$

其中， ε_0 是真空介电常数， $\chi_3 = 2.45\times10^{-19}\mathrm{m}^2/\mathrm{V}^2$ 是硅的三阶极化率。[43] 因此，三次谐波产生效率取决于 $\boldsymbol{E}_s^{\omega}$ 由两束基频光束干涉形成的总电场分布。通过改变次级基频光束的入射条件， $\boldsymbol{E}_s^{\omega}$可以对其进行大幅调控，从而有效调制三次谐波产生效率。因此，两束基频光束之间的有效干涉能够实现三次谐波产生的强度调制。

在 NPGM 中，如图1示意所示，当两束基频光束产生的三次谐波光重叠时，会发生有效干涉。如上一节所述，当右旋圆偏振/左旋圆偏振基频光束从基底侧入射时，三次谐波光主要出射至 $+2\mathrm{nd}/-2\mathrm{nd}$ 和 $+4\mathrm{th}/-4\mathrm{th}$ 衍射级次。相反，当右旋圆偏振/左旋圆偏振基频光从空气侧入射时，三次谐波光主要从 $-2\mathrm{nd}/+2\mathrm{nd}$ 和 $-4\mathrm{th}/+4\mathrm{th}$ 衍射级次出射。基于此，我们将第一束基频光（光束1）固定为从基底侧入射的右旋圆偏振光，强度为$1\mathrm{GW}/\mathrm{cm}^2$, ；第二束基频光（光束2）则从空气侧入射，其相位、强度和偏振可变。在此配置下，当光束2为左旋圆偏振时，由于其产生的三次谐波光与光束1产生的三次谐波光重叠，因此会发生强烈干涉（图1c）。当光束2为右旋圆偏振时，干涉几乎消失。因此，通过改变光束2的相位、强度和偏振，可以在同一 NPGM 中实现三次谐波产生的强度调制。

2.2 强度调制的演示。 通过调节光束2的相位，可以调控三次谐波产生效率，实现接近 1 的调制深度。此处，光束2为右旋圆偏振光或左旋圆偏振光，强度为 $1\mathrm{GW}/\mathrm{cm}^2$ ，相对于光束1的相对相位为 $\Delta\varphi$ ，其中 $\Delta\varphi$ 定义为光束1与光束2之间传播相位的差，即 $\Delta\varphi = \varphi_1 - \varphi_2$ （见图 5b 的插图）。如图 5a 所示，当光束2为左旋圆偏振光时，三次谐波产生效率可从 3.9×10^{-9} 调节至 5.5×10^{-3}，变化幅度跨越六个数量级。这意味着调制深度接近 1，优于现有依赖克尔效应和双光子吸收的结果。[37–39] 值得注意的是，当 $\Delta\varphi = 0°$ 时，三次谐波产生效率最低；而当 $\Delta\varphi = 180°$时，效率最高。这是因为准连续域束缚态与光束1之间的耦合系数，与其和光束2之间的耦合系数符号相反（见补充信息第S5节）。当光束2为右旋圆偏振光时，三次谐波产生效率与 $\Delta\varphi$ 之间的关系则完全不同。随着 $\Delta\varphi$ 变化，三次谐波产生效率几乎保持不变，如图 5a 中的红色曲线所示。这是因为两个基频光束产生的三次谐波光几乎没有重叠，因此不会发生干涉。因此，通过改变左旋圆偏振光束2的相位，可以实现 NPGM 中三次谐波产生的强度调制。

然后，在此基础上，我们通过改变左旋圆偏振态下光束2的强度，探究三次谐波产生效率的调制（图5b）。随着光束2的强度在 $\Delta\varphi = 0°$处增大，三次谐波产生效率先降低后升高，最低效率为 $\eta = 1.1\times10^{-10}$ ，对应的强度为1。$4\mathrm{GW}/\mathrm{cm}^2$。这一现象源于两束基频光束之间的相消干涉，其 $|\boldsymbol{E}_s^{\omega}| = \big||\boldsymbol{E}_1^{\omega}| - |\boldsymbol{E}_2^{\omega}|\big|$。相反，当光束2的强度在 $\Delta\varphi = 180°$处增大时，三次谐波产生效率持续升高，因为两束光发生相长干涉，即 $|\boldsymbol{E}_s^{\omega}| = |\boldsymbol{E}_1^{\omega}| + |\boldsymbol{E}_2^{\omega}|$。因此，通过适当调节光束2的强度，我们也可以调控NPGM中的三次谐波产生效率。

此外，我们系统地分析了光束2的偏振对三次谐波产生效率的影响。对于

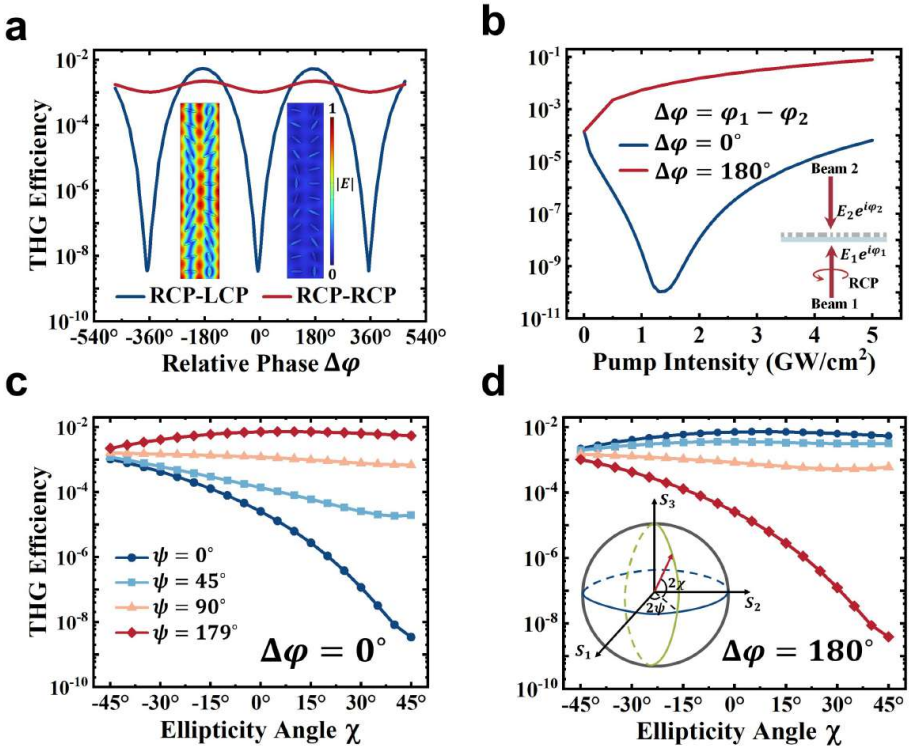


图5：通过改变 (a) 相对相位 $\Delta\varphi$、(b) 光束2的泵浦强度以及光束2的偏振来调制三次谐波产生效率的强度，其中 (c) 为 $\Delta\varphi = 0°$，(d) 为 $\Delta\varphi = 180°$。(a) 中的插图展示了在 $\Delta\varphi = 180°$（左）和 $\Delta\varphi = 0°$（右）时，基频光束在 xy平面上的电场分布；相长干涉下近场增强显著，而相消干涉下则趋近于零。(d) 中的插图展示了庞加莱球上取向角 ψ 和椭圆率角χ 的物理含义。

沿 -z 轴传播的光束2，其琼斯矢量可写为

$$\begin{bmatrix} E_x \\ E_y \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos\chi\cos\psi - i\sin\chi\sin\psi \\ \cos\chi\sin\psi + i\sin\chi\cos\psi \end{bmatrix}, \tag{3}$$

其中，$\psi \in [0°, 180°)$为取向角，$\chi \in [-45°, 45°]$为椭圆率角。当 χ =45°和 −45°时，对应左旋圆偏振和右旋圆偏振状态，其琼斯矢量分别为 $|L_-\rangle = 1/\sqrt{2}\left[1, i\right]^T$ 和$|R_-\rangle = 1/\sqrt{2}\left[1, -i\right]^T$。当 χ =0°时，表示线偏振；而 χ的其他取值对应椭圆偏振。对于具有任意偏振 $|a\rangle$的光束2，可将其分解为右旋圆偏振分量和左旋圆偏振分量，即 $|a\rangle = m|R_-\rangle + n|L_-\rangle$，其中系数分别为 $m = \cos(\chi + 45°)e^{i\psi}$和 $n = \sin(\chi + 45°)e^{-i\psi}$，满足 $|m|^2 + |n|^2 = 1$。通过改变取向角 ψ 和椭圆率角 χ，可以调节系数 m 和 n的振幅与相位。根据上述讨论，光束2的左旋圆偏振分量能够与光束1有效干涉，而右旋圆偏振分量不会对干涉产生贡献。因此，可通过调节光束2的偏振来调制其左旋圆偏振分量的系数 n，进而调制三次谐波产生效率，如图5c、d所示。

当初始相对相位为 $\Delta\varphi = 0°$时，光束1与光束2之间发生相消干涉，从而使三次谐波产生效率达到最小值。如图5c所示，三次谐波产生效率达到其

最小值为 $\eta = 3.9 \times 10^{-9}$，对应 $\psi = 0°$、$\chi = 45°$，即光束2为左旋圆偏振光且附加相位为 0°。相反，当 $\psi = 179°$、$\chi = 45°$时，三次谐波产生效率在 $\eta = 5.3 \times 10^{-3}$ 处达到峰值，对应光束2为左旋圆偏振光且附加相位为 179°。若 χ 取其他值，三次谐波产生效率随取向角 ψ增大。这是因为在这些条件下，左旋圆偏振分量系数 n 的振幅保持不变，而其相位随 ψ逐渐增大，从而由相消干涉转变为相长干涉。另一方面，当 ψ 固定时，χ的增大会导致左旋圆偏振分量的振幅增大，进而使 $\psi < 90°$（相消干涉）对应的三次谐波产生效率降低，而使 $\psi > 90°$（相长干涉）对应的效率升高。因此，跨越六个数量级的三次谐波产生效率对光束2的偏振表现出显著敏感性，从而实现调制深度接近于1的偏振控制强度开关。当初始相对相位为 $\Delta\varphi = 180°$时，光束1与光束2之间发生相长干涉，从而使三次谐波产生效率达到最大值。如图5d所示，偏振相关调制与图5c中针对 $\Delta\varphi = 0°$ 所观察到的情况恰好相反。三次谐波产生效率在 $\psi = 0°$、$\chi = 45°$时于 $\eta = 5.5 \times 10^{-3}$ 处达到峰值，而在 $\psi = 179°$、$\chi = 45°$时达到最小值 $\eta = 3.5 \times 10^{-9}$，同样跨越六个数量级。因此，我们证明通过调节光束2的偏振可实现对三次谐波产生效率接近于1的调制，这在非线性光学中的偏振控制开关应用方面具有重要潜力。

结论

总之，我们在单个 NPGM 上实现了兼具偏振依赖波前控制的高效三次谐波产生过程，并进一步展示了三次谐波产生的强度开关。借助准连续域束缚态，在泵浦强度为 1 GW/cm^2, 时，硅基 NPGM 的三次谐波产生效率超过 10^{-4}，相较于局域超表面提升近两个数量级。同时，在准连续域束缚态处可获得非局域非线性几何相位，从而实现三次谐波光的偏振依赖波前控制。此外，通过引入次级基频光束，利用线性干涉实现了三次谐波产生的强度开关。通过调节第二光束的相对相位、强度和偏振，三次谐波产生效率可在 10^{-9} 至 10^{-3} 之间动态调谐，变化范围超过六个数量级，且调制深度接近 1。这些结果解决了非线性超表面领域的一项根本挑战，即同时实现高转换效率和灵活的波前控制，从而为多功能非线性光学器件提供了一条可行途径。此外，所展示的基于干涉、调制深度接近 1 的非线性转换效率调制，凸显了该平台在非线性光学开关和片上信号处理方面的潜力。

方法

数值模拟

NPGM 的线性和非线性响应通过 COMSOL Multiphysics 计算。一般仿真模型为一个无限周期表面，由置于玻璃基底上的带椭圆孔硅板构成，如图1 和图2所示。通过沿 x和 y 方向引入周期性边界条件，对结构的周期性进行建模。在模型的顶面和底面，采用完美匹配层（PML）实现开放边界条件。周期端口用于充当

沿 $+z$ 或 $-z$ 方向传播的入射光场。非晶硅的折射率取自实验数据，并考虑了色散和耗散，[42] 相关内容见补充信息第 S1 节；基底和空气的折射率则分别固定为 1.5 和 1.0。在仿真中，通过非线性极化$\mathbf{P}^{3\omega} = \varepsilon_0\chi_3 (\mathbf{E}^{\omega} \cdot \mathbf{E}^{\omega})\mathbf{E}^{\omega}$来考虑三次谐波产生，其中 $\chi_3 = 2.45 \times 10^{-19}\,\mathrm{m}^2/\mathrm{V}^2$取自实验数据。[43]在此过程中，忽略反向频率转换。因此，计算中需要使用两个频域求解器，分别对应基频波长和三次谐波波长。第一个求解器得到的光场分布作为第二个求解器的输入。对于第二个求解器，沿 x 和 y 方向采用连续边界条件，而沿 z 方向采用完美匹配层条件。随后，对模型顶面和底面上的三次谐波光功率流进行面积分，以测量三次谐波光的输出功率。为测量三次谐波光的出射角，使用 COMSOL Multiphysics 进行傅里叶变换。获取一个与 NPGM 相距足够远的 $x-y$ 横截面，然后沿 x 和 y 方向对其进行复制，以获得空间域中的三次谐波光远场分布。然后对其进行傅里叶变换，并提取对应于 $k_x = 0$的数据。

补充信息

注释

作者声明不存在竞争性经济利益。

致谢

本研究得到国家自然科学基金（项目编号：U25D9003 和 12474370）以及量子科学与技术国家科技重大专项（项目编号：2021ZD0301500）的资助。

参考文献

[1] Yu, N.; Genevet, P.; Kats, M. A.; Aieta, F.; Tetienne, J.-P.; Capasso, F.; Gaburro, Z. 具有相位不连续性的光传播：广义反射定律和折射定律。*Science* **2011**，*334* (6054)，333–337。

[2] Chen, H.-T.; Taylor, A. J.; Yu, N. 超表面综述：物理学与应用。*Rep. Prog.Phys.***2016年**，*79* (7)，076401。

[3] Liu, Q.; Liu, X.; Tian, Y.; Tian, Z.; Li, G.; Ren, X.-F.; Gong, Q.; Gu, Y. 基于梯度超表面的平行光束分束：从经典到量子。*Opt. Express* **2024**，*32* (18)，31389–31404。

[4] Stav, T.; Faerman, A.; Maguid, E.; Oren, D.; Kleiner, V.; Hasman, E.; Segev, M. 利用超材料实现光子的自旋角动量与轨道角动量量子纠缠。*Science* **2018年**，*361*(6407)，1101–1104。

[5] Liu, Q.; Liu, X.; Tian, Y.; Tian, Z.; Li, G.; Ren, X.-F.; Gong, Q.; Gu, Y.通过单个梯度超表面实现多光子路径-偏振纠缠。*Adv. Photonics Nexus* **2025**, *4* (2), 026002.

[6] Liu, Q.; Tian, Y.; Tian, Z.; Jia, Y.; Li, G.; Ren, X.-F.; Gong, Q.; Gu, Y.单个梯度超表面上的量子CZ门。Light Sci. Appl. 2025, 14 (1), 193.[7] Lee, J.; Tymchenko, M.; Argyropoulos, C.; Chen, P.-Y.; Lu, F.; Demmerle, F.; Boehm, G.; Amann, M.-C.; Alù, A.; Belkin, M. A.等离激元超表面与子带间跃迁耦合产生的巨大非线性响应。Nature 2014, 511 (7507), 65–69.[8] Li, G.; Zhang, S.; Zentgraf, T.非线性光子超表面。Nat. Rev. Mater. 2017, 2 (5), 1–14.[9] Grinblat, G.非线性介质纳米天线与超表面：频率转换和波前控制。ACS Photonics 2021, 8 (12), 3406–3432.[10] Liu, S.; Sinclair, M. B.; Saravi, S.; Keeler, G. A.; Yang, Y.; Reno, J.; Peake, G. M.; Setzpfandt, F.; Staude, I.; Pertsch, T.; Brener, I.利用III–V族半导体全介质超表面增强共振二次谐波产生。Nano Lett. 2016, 16 (9), 5426–5432.[11] Liu, S.; Vabishchevich, P. P.; Vaskin, A.; Reno, J. L.; Keeler, G. A.; Sinclair, M. B.; Staude, I.; Brener, I.作为宽带光学频率混频器的全介质超表面。Nat. Commun. 2018, 9 (1), 2507.[12] Celebrano, M.; Wu, X.; Baselli, M.; Großmann, S.; Biagioni, P.; Locatelli, A.; De Angelis, C.; Cerullo, G.; Osellame, R.; Hecht, B.; Duò, L.; Ciccacci, F.; Finazzi, M.多谐振等离激元纳米天线中的模式匹配，以增强二次谐波产生。Nat. Nanotechnol. 2015, 10 (5), 412–417.[13] Shcherbakov, M. R.; Neshev, D. N.; Hopkins, B.; Shorokhov, A. S.; Staude, I.; Melik-Gaykazyan, E. V.; Decker, M.; Ezhov, A. A.; Miroshnichenko, A. E.; Brener, I.; Fedyanin, A. A.; Kivshar, Y. S.磁响应驱动硅纳米粒子中的增强三次谐波产生。Nano Lett. 2014, 14 (11), 6488–6492.[14] Yang, Y.; Wang, W.; Boulesbaa, A.; Kravchenko, I. I.; Briggs, D. P.; Puretzky, A.; Geohegan, D.; Valentine, J.非线性法诺共振介质超表面。Nano Lett. 2015, 15 (11), 7388–7393.[15] Grinblat, G.; Li, Y.; Nielsen, M. P.; Oulton, R. F.; Maier, S. A.单个锗纳米盘中高阶无辐射模式下的高效三次谐波产生和非线性亚波长成像。ACS Nano 2017, 11 (1), 953–960.[16] Kolkowski, R.; Hakala, T. K.; Shevchenko, A.; Huttunen, M. J.非线性非局域超表面。Appl. Phys. Lett. 2023, 122 (16), 160502.[17] Vabishchevich, P.; Kivshar, Y.超表面非线性光子学。Photonics Res. 2023, 11 (2), B50–B64.[18] Hsu, C. W.; Zhen, B.; Stone, A. D.; Joannopoulos, J. D.; Soljačić, M.连续谱中的束缚态。Nat. Rev. Mater. 2016, 1 (9), 1–13.[19] Koshelev, K.; Lepeshov, S.; Liu, M.; Bogdanov, A.; Kivshar, Y.由连续谱中的束缚态调控的高Q共振非对称超表面。Phys. Rev. Lett. 2018, 121 (19), 193903.[20] Liu, Z.; Xu, Y.; Lin, Y.; Xiang, J.; Feng, T.; Cao, Q.; Li, J.; Lan, S.; Liu, J.用于非线性超表面的高Q准连续谱束缚态。Phys. Rev. Lett. 2019, 123 (25).

[21] Xiao, S.; Qin, M.; Duan, J.; Liu, T. 借助偏振不敏感连续谱中的束缚态增强全介质超表面的高次谐波产生。Opt. Ex- press 2022, 30 (18), 32590–32599.[22] Liu, T.; Qin, M.; Qiu, J.; Tu, X.; Qiu, H.; Wu, F.; Yu, T.; Liu, Q.; Xiao, S. 借助双重简并连续谱中的准束缚态增强三次谐波产生，且与偏振无关。Nano Lett 2025, 25 (9), 3646–3652.[23] Carletti, L.; Kruk, S. S.; Bogdanov, A. A.; De Angelis, C.; Kivshar, Y. 连续谱中的束缚态增强纳米尺度高次谐波产生。Phys. Rev. Res. 2019, 1 (2), 023016.[24] Zograf, G.; Koshelev, K.; Zalogina, A.; Korolev, V.; Hollinger, R.; Choi, D.-Y.; Zuerch, M.; Spielmann, C.; Luther-Davies, B.; Kartashov, D.; Makarov, S. V.; Kruk, S. S.; Kivshar, Y. 借助连续谱中的束缚态增强共振介质超表面的高次谐波产生。ACS Photonics 2022, 9 (2), 567–574.[25] Parry, M.; Mazzanti, A.; Poddubny, A. N.; Valle, G. D.; Neshev, D. N.; Sukhorukov, A. A. 增强非线性超表面中非简并光子对的产生。Adv. Photonics 2021, 3 (5), 055001.[26] Santiago-Cruz, T.; Gennaro, S. D.; Mitrofanov, O.; Addamane, S.; Reno, J.; Brener, I.; Chekhova, M. V. 用于产生复杂量子态的共振超表面。Science 2022, 377 (6609), 991–995.[27] Bar-David, J.; Levy, U. 非对称介质超表面中的非线性衍射。Nano Lett. 2019, 19 (2), 1044–1051.[28] Hail, C. U.; Michaeli, L.; Atwater, H. A. 利用局域高Q超表面增强三次谐波产生并控制波前。Nano Lett. 2024, 24 (7), 2257–2263.[29] Gao, Y.; Fan, Y.; Wang, Y.; Yang, W.; Song, Q.; Xiao, S. 非线性全介质超表面。Nano Lett. 2018, 18 (12), 8054–8061.[30] Reineke, B.; Sain, B.; Zhao, R.; Carletti, L.; Liu, B.; Huang, L.; De Angelis, C.; Zentgraf, T. 用于三次谐波几何相位操控和复用全息术的硅超表面。Nano Lett. 2019, 19 (9), 6585–6591.[31] Wang, L.; Kruk, S.; Koshelev, K.; Kravchenko, I.; Luther-Davies, B.; Kivshar, Y. 利用全介质超表面进行非线性波前控制。Nano Lett. 2018, 18 (6), 3978–3984.[32] Overvig, A. C.; Malek, S. C.; Carter, M. J.; Shrestha, S.; Yu, N. 连续谱中的准束缚态的选择定则。Phys. Rev. B 2020, 102 (3), 035434.[33] Overvig, A. C.; Malek, S. C.; Yu, N. 多功能非局域超表面。Phys. Rev. Lett. 2020, 125 (1), 017402.[34] Overvig, A.; Alù, A. 波前选择性法诺共振超表面。Adv. Photonics 2021, 3 (2), 026002.[35] Sain, B.; Meier, C.; Zentgraf, T. 全介质纳米天线和超表面中的非线性光学：综述。Adv. Photonics 2019, 1 (2), 024002.

[36] Maiuri, M.; Schirato, A.; Cerullo, G.; Della Valle, G. 超快全光超表面：挑战与新前沿。*ACS Photonics* **2024**,*11* (8), 2888–2905.[37] Sartorello, G.; Olivier, N.; Zhang, J.; Yue, W.; Gosztola, D. J.; Wiederrecht, G. P.; Wurtz, G.; Zayats, A. V. 切盘型超表面产生的二次和三次谐波的超快光调制。*ACS Photonics* **2016**, *3* (8), 1517–1522.[38] Pogna, E. A. A.; Celebrano, M.; Mazzanti, A.; Ghirardini, L.; Carletti, L.; Marino, G.; Schirato, A.; Viola, D.; Laporta, P.; De Angelis, C.; Leo, G.; Cerullo, G.; Finazzi, M.; Della Valle, G. 超快全光可重构非线性纳米天线。*ACS Nano* **2021**,*15* (7), 11150–11157.[39] Bijloo, F.; Murzyn, K.; van Emmerik, F.; den Boef, A. J.; Kraus, P. M.; Koenderink, A. F. 利用法诺共振介质超表面近乎完全地全光调制三次谐波产生。*Nano Lett.***2024**,*24* (41), 12942–12947.[40] Hareli, L. 利用结构化泵浦光束实时控制高次谐波产生。*Phys.Rev. Lett.* **2018**,*120* (18).[41] Li, W.-Z. 借助谐波产生，将双光束干涉转化为多光束干涉。*Phys. Rev. Res.* **2025**, *7* (2).[42] Palik, E. D. 固体光学常数手册; Academic Press, 1985.[43] Hon, N. K.; Soref, R.; Jalali, B. 中波和长波红外波段 Si、Ge 和 Si_{1-x}锗$_x$的三阶非线性光学系数。*J. Appl. Phys.* **2011**, *110* (1), 011301.[44] Liu, B.; Sain, B.; Reineke, B.; Zhao, R.; Meier, C.; Huang, L.; Jiang, Y.; Zentgraf, T. 几何相位介质超表面的非线性波前控制：模式场和旋转对称性的影响。*Adv. Opt. Mater.***2020**,*8* (9), 1902050.[45] Reineke Matsudo, B.; Sain, B.; Carletti, L.; Zhang, X.; Gao, W.; de Angelis, C.; Huang, L.; Zentgraf, T. 利用几何相位调控实现光学超表面的高效频率转换。*Adv. Sci.* **2022**,*9* (12), 2104508.