快速低功率全光可调局域激子极化 激元超材料

柴真^{1,2}, 胡小永^{2,3,4*}, 杨宏^{2,3,4}, 龚旗煌^{2,3,4}

1. 北京航空航天大学前沿科学技术创新研究院, 北京 100191;

2. 北京大学物理学院, 人工微结构和介观物理国家重点实验室, 量子物质科学协同创新中心, 教育部纳光电子前沿科学中心, 北京 100871;

3. 山西大学极端光学协同创新中心, 太原 030006;

4. 北京量子信息科学研究院, 北京 100193

*联系人, E-mail: xiaoyonghu@pku.edu.cn

收稿日期: 2020-04-26; 接受日期: 2020-06-14; 网络出版日期: 2020-07-10

国家自然科学基金(编号: 11804008, 61775003, 11734001, 91950204, 1152701, 91850111)和国家重点基础研究发展计划(编号: 2018YFB2200403)资助项目

摘要 激子极化激元指的是材料中激子和光子强耦合而形成的准粒子, 由于具有强相互作用而在全光器件中有着广泛的应用前景. 近期, 本课题组利用周期性矩形孔硫化钨纳米片超材料, 实现了低泵浦功率快速响应全光可调激子极化激元. 通过线性显微透过光谱实验可以发现结构的透过谱中出现明显的共振行为. 类比为表面等离激元和声子极化激元, 研究证明共振行为来源于局域激子极化激元. 本文还在实验上证明了在波长402 nm, 功率85 MW cm⁻², 脉冲120 fs激光泵浦下, 超材料共振波长处透过率从0.18增加到0.44, 并得到时间48.7 ps的快速响应. 此外, 本文还验证了局域激子极化激元在过渡金属硫化物材料中广泛存在. 这种特性使得过渡金属硫化物这种范德瓦尔斯材料在低泵浦功率全光器件和纳米集成电路中具有潜在应用价值.

关键词 硫化钨纳米片超材料, 三阶非线性效应, 激子极化激元

PACS: 42.65.An, 42.25.Bs, 71.36.+c

1 引言

近年来, 二维范德瓦尔斯层状材料^[1-3]由于独特的性质而在极化激元领域中被广泛研究. 极化激元是由于材料中激发的电偶极子(比如金属材料中的等离子体、半导体材料中的激子、六方氮化硼的光学声子)

与光子强耦合而形成的准粒子. 二维层状材料的极化激元的发现不仅促进了范德瓦尔斯材料和纳米光子学的研究, 而且开启了从可见光到近红外波段的场增强效应的应用, 比如光电探测器^[4]、光催化^[5]等. 表面等离激元最初多指在金属与电介质界面之间电子的集体振荡行为, 其特点是可以突破衍射极限, 实现强烈的场

引用格式: 柴真, 胡小永, 杨宏, 等. 快速低功率全光可调局域激子极化激元超材料. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2020, 50: 084215

Chai Z, Hu X Y, Yang H, et al. Fast low-power all-optical tunable localized exciton-polaritons in nanostructured van der Waals metamaterials (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2020, 50: 084215, doi: [10.1360/SSPMA-2020-0148](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2020-0148)

增强作用. 近年来, 研究者利用散射型近场光学显微镜在实验上首次观察到石墨烯中传播的等离激元^[6,7]. 与金属相比, 石墨烯表面等离激元可以通过调节载流子分布实现从太赫兹到中红外波段的电学、化学和光学调谐. 块状各向异性六方氮化硼也被发现具有近红外光学声子模式, 在六方氮化硼超材料^[8]中可以产生双曲声子极化激元. 并且通过将六方氮化硼薄膜微纳结构化, 可以获得基于局域声子极化激元的中红外表面内双曲超表面. 以上所有的情况都在说明表面等离激元和声子极化激元存在两种形式: 传播模式和局域模式^[9,10]. 传播的极化激元模式通常发生在范德瓦尔斯材料与其他介质材料截面或者直接发生在材料纳米片内部. 而纳米光栅、纳米棒和纳米柱等电偶极纳米结构可以产生局域的极化激元模式. 由于具有大的激子结合能^[11], 过渡金属硫化物中的激子极化激元可以在室温条件下稳定存在. 很多基于金属共振微腔和单层过渡金属硫化物的纳米结构^[12-14]已经被观察到具有强耦合拉比劈裂色散现象. 利用散射型近场显微镜在机械剥离的硒化钼纳米片中也首次观察到波导型激子极化激元的图像^[15]. 然而至今, 还没有基于范德瓦尔斯材料纳米结构的局域激子极化激元相关实验报道. 另外, 由于激子-激子、极化激元-极化激元间存在非常强的相互作用, 之前也有很多基于传统半导体材料的激子和极化激元非线性光学的报道^[16], 激子极化激元也在全光器件^[17-19]、低阈值激光器^[20]、量子计算和模拟^[21]中具有重要的应用前景. 因此, 基于范德瓦尔斯材料的局域激子极化激元的研究和全光调控研究具有十分重要的意义.

本文利用过渡金属硫化物周期纳米阵列进行了全光可调局域激子极化激元的实验研究. 类比于石墨烯中的表面等离激元^[6,10]、氮化硼纳米片中的声子极化激元^[8,9]以及硒化钼纳米片波导中的传播型激子极化激元^[7], 结合微加工工艺和块状硫化钨中的激子极化激元, 通过薄硫化钨纳米片矩形纳米洞阵列结构证明了局域激子极化激元共振的存在. 此外, 由于层状材料的库仑相互作用, 硫化钨纳米阵列超材料可以转移到多种材料衬底上. 这是与很多自下而上生长的材料不同的地方. 基于材料大的可饱和吸收诱导折射率变化, 局域激子极化激元超材料显示出非常大的全光可调谐特性. 快速载流子转移过程决定了硫化钨片纳米洞超材料全光可调具有48.7 ps的快速响应时间.

2 实验部分

本文研究的样品是放置于标准氧化铟锡(ITO)衬底上具有较大折射率^[22]厚度为50 nm的硫化钨片(图1(a)). 硫化钨薄片是在100°C加热环境下通过机械剥离后直接转移到衬底上, 从而避免了由于多次转移而引起的不必要的表面污染^[23]. 本文利用标准的聚焦离子束刻蚀系统制备了周期 p 为460 nm的硫化钨矩形纳米洞阵列. 为了表征硫化钨超材料的透过特性, 实验上采用波长范围550–950 nm的超连续激光器作为光源的显微光谱系统进行线性透过谱测量, 光学信号由光纤光谱仪收集^[24], 利用商业软件Comsol Multiphysics的波动光学模块进行理论计算. 为了证明硫化钨薄片纳米洞超材料的全光可调谐特性, 实验上采用飞秒激光泵浦-探测装置. 泵浦光波长是由探测光波长经过偏硼酸钡倍频晶体二次谐波而产生, 在本实验中泵浦光波长是402 nm, 处于硫化钨薄片的单光子吸收波段范围.

图 1 (网络版彩图)硫化钨纳米薄片超材料的结构和表征. (a) 纳米硫化钨薄片超材料的示意图, 由周期 $p=460$ nm的硫化钨矩形孔阵列构成; (b) 硫化钨超材料的扫描电子显微镜图和部分放大的扫描电子显微镜图; (c) 硫化钨纳米片和氧化铟锡衬底边界的扫描电子显微镜图

Figure 1 (Color online) Structure and characteristics of WS_2 nanohole flake metamaterials. (a) Schematic illustration of the nanostructure WS_2 flake metamaterials, consisted of WS_2 nanoholes arrays with the period of $p=460$ nm; (b) SEM and zoomed-in SEM images of WS_2 flake metamaterials; (c) SEM contrast image between WS_2 flake and ITO substrate.

因为泵浦光和探测光是不同的波长, 所以泵浦光可以直接被滤波片滤掉而不进入光电探测器中.

3 结果与讨论

3.1 硫化钨纳米洞阵列的线性透过特性

整个硫化钨纳米洞超材料尺寸是 $25\ \mu\text{m} \times 25\ \mu\text{m}$, 足以覆盖整个入射光. 硫化钨纳米洞长和宽分别是360和280 nm. 为了简化描述, 定义矩形纳米洞的长轴方向为 X 轴, 与之垂直的短轴方向为 Y 轴. 图1(b)和(c)分别展示了硫化钨纳米洞周期阵列和硫化钨薄片的扫描电子显微镜图. 从这些图中可以观察到超平整的硫化钨纳米片和均匀分布的周期性硫化钨纳米阵列, 这些可以为局域激子极化激元共振提供很好的结构基础.

当入射光偏振沿着 X 轴方向时, 计算的正入射透过谱在波长772 nm处出现一个透过对比度为(即透过率最大值和最小值的差值)0.65的极小谷. 当入射光偏振沿 Y 轴方向时, 入射在共振波长793 nm处存在透过

对比度0.52的极小谷(图2(a)). 在实验上, 可以清楚地观察到在 X 偏振激发下波长767 nm处出现透过对比度为0.6的共振透过谷, Y 偏振激发下波长805 nm处出现透过对比度为0.47的共振透过谷(图2(a)). 因此, 实验数据与理论计算结果可以较好的吻合. 为了证明这个共振行为源于硫化钨薄片超材料结构中的局域激子极化激元, 本文利用Comsol Multiphysics软件理论分析了在 Y 偏振下共振波长793 nm处结构的电场和磁场各个分量场分布(图2(b)). 从图中颜色可以看出, 场强分布在空气和硫化钨以及晶格单元的边界处显著增强, 并且朝着空气纳米槽和单元间区域扩散. 而且由于激发偏振的原因, E_y 和 E_z 分量的大小比其他电场和磁场分量数值要大. 依据极化激元的定义和应用, 传播型和局域型极化激元模式是极化激元两种重要的分类. 相似的共振行为已经在局域表面等离激元(金属、石墨烯等)^[6,10]和声子极化激元(六方氮化硼)^[8,9]超材料中观察到. 室温下也在过渡金属硫化物薄片^[7]中观察到传播的激子极化激元模式. 实验中, 在矩形纳米槽硫

图 2 (网络版彩图)硫化钨局域激子极化激元超材料的线性透过特性. (a) X 和 Y 偏振激发下波长范围550–950 nm结构计算和测量的透过谱; (b) 在 Y 偏振激发下共振波长805 nm的归一化电场和磁场各分量场分布; (c), (d) 计算和测量的结构透过共振波长随着入射方向与 X 轴夹角的变化

Figure 2 (Color online) Linear transmission features of the WS_2 localized exciton polaritons flake metamaterials. (a) Calculated and measured transmission spectra of the WS_2 flake metamaterials under the excitation of X axis or Y axis polarization from the wavelength 550–950 nm; (b) simulated normalized each electric and magnetic field component distributions under the Y axis polarized incident light at the resonant wavelength of 805 nm; (c), (d) the calculated and measured resonant wavelength changes as a function of incident polarized angles with the X axis, respectively.

化钨薄片超材料中观察到存在相似的共振和场增强效应. 这证明了共振响应来自于局域激子极化激元. 本文还对超材料不同偏振方向入射的透过特性进行仿真和实验测量(图2(c)). 图中偏振角度对应入射光偏振与 X 轴方向的夹角. 纵坐标波长指的是在不同偏振激发下周期结构的共振波长. 由于结构 XY 平面的设计, 随着角度的增加透过特性显示出周期性变化的特征. 计算和测量的透过率都是在偏振角度为 0° 时最小, 90° 时最大. 周期性双曲透过特征以角度 180° 为周期进行变化, 实验测试数据整体趋势与理论预期相同. 这种行为也与金超材料局域表面等离激元类似, 可以进一步证明局域激子极化激元的存在.

3.2 硫化钨纳米洞阵列的全光可调特性

本文采用了共线光学泵浦-探测的方法测量结构的 Y 偏振激发下波长 805 nm 处透过率随着泵浦和探测光两束光时间延迟的变化曲线^[25](图3(a)). 这可以保证所有收集的信号都是来自探测光. 泵浦-探测系统的细节文字描述可以在网络版补充材料中获得(图3(b)). 图

3(c)展示了在波长 402 nm , 120 fs 泵浦光激发下, 结构波长 805 nm 处透过率随着泵浦光和探测光时间延迟从 $-30\text{--}50\text{ ps}$ 的变化曲线. 泵浦光和探测光的功率分别为 85 和 0.62 MW cm^{-2} . 当泵浦光时间上远离探测光时($<0\text{ ps}$), 因为泵浦光引起的硫化钨薄片的折射率变化没有对探测光起作用, 所以探测光的透过率始终保持 0.2 最小值. 随着时间延迟的增加, 泵浦光与探测光逐渐开始发生时间空间上的重叠. 透过率刚开始快速上升(泵浦光和探测光时间重叠时, 升至 0.4), 紧接着快速下降(当泵浦光和探测光时间上远离时, 下降至 0.12). 由于结构材料的折射率发生了变化, 透过率在跨过时间零点时出现了快速增大的现象. 基于光学三阶非线性克尔效应, 非线性介质材料的折射率可以写成 $n=n_0+n_2I$. 在这个工作中, n 是硫化钨薄片在光学非线性泵浦光作用下的折射率, n_0 和 n_2 分别是硫化钨薄片的线性和非线性折射率, I 是全光可调硫化钨薄片超材料的泵浦光强. 根据前人的研究结果^[26,27], 硫化钨薄片的光学克尔非线性折射率是正值, 说明在泵浦光作用下硫化钨薄片超材料共振波长会发生红移, 对应的

图 3 (网络版彩图)硫化钨纳米片超材料的非线性测量和表征. (a) 硫化钨激子极化激元超材料的泵浦-探测示意图; (b) 典型的共线泵浦-探测实验装置. 泵浦光和探测光的波长分别是 805 和 402 nm ; (c) 在波长 402 nm , 功率 85 MW cm^{-2} 泵浦光作用下测量的透过谱随着抽运光和检测光时间延迟的变化关系; (d) 有和无泵浦光作用下的结构透过谱

Figure 3 (Color online) Nonlinear measurement and characteristics of WS_2 flake metamaterials. (a) Schematic of WS_2 localized exciton polaritons metamaterials by the pump-probe measurement; (b) a standard experimental collinear pump-probe set up. The 120 fs pump and probe pulse laser beams were 805 and 402 nm , respectively; (c) the measured transmission spectrum as a function of time delay under the excitation of wavelength 402 nm laser beam at the pump energies 85 MW cm^{-2} ; (d) the calculated transmission spectrum with and without the pump laser beam.

透过率增加. 本文还计算了结构在有无泵浦光作用下的透过谱, 如图3(d)所示. 仿真采用有限元软件并通过引入非线性折射率进行计算. 在高的泵浦光作用下, 光谱极小值对应波长的透过率从0.18增加到0.44. 整个理论计算结果与实验数据基本吻合. 当泵浦光和探测光时间上重叠后, 透过率的弛豫动力学过程发生变化(图3(c)), 这个过程可以看作是硫化钨纳米片局域激子极化激元超材料的时间响应. 拟合的响应时间是48.7 ps, 与之前的文献中报道的硫化钨块材激子寿命是同一量级^[28,29]. 硫化钨薄片是间接带隙材料, 由于需要利用声子弥补晶体动量不匹配, 面内激子复合速率比单层硫化钨低. 考虑电场极化, 层间激子的传输非常弱以至于面外激子间的相互作用可以直接忽略. 此外, 实验还观察到响应时间比参考文献^[28,29]中的报道要短一些, 这是由于两个实验测量中泵浦光和探测光波长取值和硫化钨薄片的厚度差异. 在本文的实验中, 由于结构共振波长远离激子波长, 泵浦光位于材料的吸收波段内, 因此极化激元中激子分量的强非线性占主要原因. 通过与之前的研究对比^[6-8], 可以很明显的发现硫化钨超材料的光学非线性比金的表面等离激元和六方氮化硼的双曲声子极化激元要大.

3.3 硫化钨纳米片材料非线性特性的测量

为了进一步验证硫化钨局域激子极化激元超材料全光调谐的泵浦能量, 本文采用闭环 z 扫描系统评估硫化钨薄片的非线性大小. 硫化钨超材料的非线性来源于材料中的激子, 而超材料结构的共振场增强效应可以降低全光调谐所需的泵浦光强. 为了确定非线性的

光强非相关性, 本文利用波长402 nm的不同入射光强的飞秒激光进行实验. 图4(a)和(b)展示了在波长402 nm, 120 fs, 功率分别为46.5和91.3 MW cm⁻²脉冲光激发下厚度为50 nm的硫化钨薄片的闭环 z 扫描曲线. 测量对应的非线性折射率分别是 4.689×10^{-9} 和 3.04×10^{-9} cm² W⁻¹, 比石英的 1×10^{-15} cm² W⁻¹大6个数量级. 对均匀的单一组分材料而言, 硫化钨材料的非线性折射率数值非常大. 根据之前的报道, 硫化钨材料在波长532 nm, 脉宽4 ns激光光束作用下存在可饱和吸收非线性特性^[26]. 而且在800 nm飞秒激光的作用下, 还观察到从低功率饱和吸收到高功率双光子吸收的变化^[27]. 本文在测量中, 入射激光波长选择为402 nm, 位于材料的强共振吸收区域. 因此, 硫化钨薄片在402 nm脉冲光作用下的光学克尔非线性效应可以认为是非线性光学吸收引起的, 即自由载流子的饱和吸收(电子和空穴之间的激子库仑相互作用)和带间非线性的饱和吸收效应. 除了薄片外, 本文在实验上还测量了在功率30 MW cm⁻², 波长402 nm, 脉宽120 fs激光脉冲作用下单层硫化钨的非线性折射率数值. 与硫化钨薄片相比, 单层硫化钨的非线性折射率为 1.671×10^{-7} cm² W⁻¹, 比硫化钨薄片高100倍. 最近的工作^[26]也发布了类似的现象, 即硫化钨单层具有更大的三阶非线性光学效应. 随着硫化钨层数的增加, 硫化钨薄片相邻激子中载流子间库仑相互作用降低, 进而导致非线性折射率直接下降. 以上这些材料非线性的验证证实了在低泵浦强度下硫化钨超材料的全光可调性.

与表面等离激元相似, 范德瓦尔斯材料也存在很多结构设计可以实现激子极化激元场共振增强. 本文

图4 (网络版彩图)硫化钨纳米片的非线性折射率测量. (a), (b) 在波长402 nm泵浦能量46.5和91.3 MW cm⁻²的作用下硫化钨纳米薄片的闭环 z 扫描结果; (c) 在波长402 nm泵浦能量30.8 MW cm⁻²的作用下单层硫化钨的闭环 z 扫描结果

Figure 4 (Color online) Nonlinear refractive index measurement of WS₂ material. (a) and (b) show the close aperture z scan measurement results of WS₂ few layers flake under the excitation of wavelength of 402 nm laser beam at the pump energies 46.5 and 91.3 MW cm⁻², respectively; (c) is the close aperture z scan result of WS₂ monolayer under the excitation of wavelength of 402 nm laser beam at the pump energies 30.8 MW cm⁻².

图 5 (网络版彩图)硫化钨纳米棒薄片超材料的结构示意图. (a) 硫化钨纳米棒超材料的单元示意图; (b) 计算的硫化钨纳米棒薄片超材料透过谱; (c) 在共振波长821 nm处计算的结构电场各个分量的分布

Figure 5 (Color online) Design configuration of WS_2 nanobars flake metamaterials. (a) The unit cell of the WS_2 nanobars flake metamaterials; (b) the calculated transmission spectrum of the WS_2 nanobars flake metamaterials; (c) the calculated each electric field component distributions at the resonant wavelength of 821 nm.

又设计了另外一个硫化钨薄片纳米棒阵列(图5(a)), 可以验证局域激子极化激元概念在范德瓦尔斯材料中普遍存在. 纳米棒阵列结构材料选取与前面相同, 周期为540 nm. 单个硫化钨纳米棒的长和宽分别是 $a=360$ nm和 $b=120$ nm. 利用商业仿真软件COMSOL Multiphysics计算了波长550–950 nm范围内在 X 轴偏振激发下纳米棒阵列的透过特性. 与预期结果一样, 图5(b)中可以明显看到在波长821 nm处存在明显的窄带透过共振谷, 透过率为0.1. 进一步分析了在821 nm共振波长处的电场分布(图5(c)). 与金属局域表面等离激元一样, 共振波长处, 硫化钨纳米棒两端同样出现了局域的场强分布. 因此, 不同的结构设计可以证明局域激子极化激元在过渡金属硫化物材料中是可扩展的概念.

4 结论

综上所述, 本文通过实验证明了硫化钨超材料中存在低泵浦功率快速响应的全光可调局域激子极化激元. 硫化钨薄片材料的纳米矩形孔洞阵列具有与金属

表面等离激元和氮化硼声子极化激元类似的共振特性. 在泵浦功率 85 MW cm^{-2} , 波长402 nm, 脉宽120 fs的激光泵浦下, 共振波长处的透过率从0.18增加到0.44, 比之前报道的金属表面等离激元周期阵列非线性泵浦光强降低一个量级^[30]. 由于材料中电子的间接带间跃迁, 快速响应时间为48.7 ps. 值得注意的是, 激子材料可能具有更高的吸收损耗, 从而导致局域激子极化激元的 Q 值和对比度更小, 并且局域激子极化激元中的场局域效应比金属中局域表面等离激元更弱. 但是, 从另一个角度来看, 在强激光功率下的强激子吸收会引起较大的非线性光学行为, 从而导致低功率全光可调谐振. 本文还通过不同的结构设计揭示了局域激子极化激元的概念具有普适性. 此外, 范德瓦尔斯层状超材料可以通过机械转移的方法转移到其他衬底上, 甚至可以使用不同类型的范德瓦尔斯材料获得更丰富的物理现象和功能. 下一步的研究可以考虑探索新颖的极化激元场增强结构或者结合纳米复合材料, 进一步降低局域激子极化激元的泵浦光强和响应时间; 也可以考虑针对具体功能应用(比如全光器件和光学传感)的需求进行研究.

补充材料

本文的补充材料见网络版<http://physcn.scichina.com>. 补充材料为作者提供的原始数据, 作者对其学术质量和内容负责.

参考文献

- 1 Low T, Chaves A, Caldwell J D, et al. Polaritons in layered two-dimensional materials. *Nat Mater*, 2017, 16: 182–194, arXiv: [1610.04548](#)
- 2 Bernardi M, Ataca C, Palummo M, et al. Optical and electronic properties of two-dimensional layered materials. *Nanophotonics*, 2017, 6: 479–493
- 3 Basov D N, Fogler M M, Garcia de Abajo F J. Polaritons in van der Waals materials. *Science*, 2016, 354: aag1992
- 4 Dhanabalan S C, Ponraj J S, Zhang H, et al. Present perspectives of broadband photodetectors based on nanobelts, nanoribbons, nanosheets and the emerging 2D materials. *Nanoscale*, 2016, 8: 6410–6434
- 5 Di J, Xia J, Li H, et al. Freestanding atomically-thin two-dimensional materials beyond graphene meeting photocatalysis: Opportunities and challenges. *Nano Energy*, 2017, 35: 79–91
- 6 Hu F, Luan Y, Fei Z, et al. Imaging the localized plasmon resonance modes in graphene nanoribbons. *Nano Lett*, 2017, 17: 5423–5428
- 7 Fei Z, Ni G X, Jiang B Y, et al. Nanoplasmonic phenomena at electronic boundaries in graphene. *ACS Photon*, 2017, 4: 2971–2977
- 8 Li P, Dolado I, Alfaro-Mozaz F J, et al. Infrared hyperbolic metasurface based on nanostructured van der Waals materials. *Science*, 2018, 359: 892–896, arXiv: [1904.03945](#)
- 9 Brown L V, Davanco M, Sun Z, et al. Nanoscale mapping and spectroscopy of nonradiative hyperbolic modes in hexagonal boron nitride nanostructures. *Nano Lett*, 2018, 18: 1628–1636, arXiv: [1710.10285](#)
- 10 Nikitin A Y, Alonso-González P, Vélaz S, et al. Real-space mapping of tailored sheet and edge plasmons in graphene nanoresonators. *Nat Photon*, 2016, 10: 239–243
- 11 Xiao J, Zhao M, Wang Y, et al. Excitons in atomically thin 2D semiconductors and their applications. *Nanophotonics*, 2017, 6: 1309–1328
- 12 Wang S, Li S, Chervy T, et al. Coherent coupling of WS₂ monolayers with metallic photonic nanostructures at room temperature. *Nano Lett*, 2016, 16: 4368–4374, arXiv: [1604.06656](#)
- 13 Zheng D, Zhang S, Deng Q, et al. Manipulating coherent plasmon-exciton interaction in a single silver nanorod on monolayer WSe₂. *Nano Lett*, 2017, 17: 3809–3814
- 14 Schlather A E, Large N, Urban A S, et al. Near-field mediated plexcitonic coupling and giant Rabi splitting in individual metallic dimers. *Nano Lett*, 2013, 13: 3281–3286
- 15 Hu F, Luan Y, Scott M E, et al. Imaging exciton-polariton transport in MoSe₂ waveguides. *Nat Photon*, 2017, 11: 356–360
- 16 Sun Y, Yoon Y, Steger M, et al. Direct measurement of polariton-polariton interaction strength. *Nat Phys*, 2017, 13: 870–875
- 17 Flayac H, Savenko I G. An exciton-polariton mediated all-optical router. *Appl Phys Lett*, 2013, 103: 201105, arXiv: [1307.6552](#)
- 18 Sturm C, Tanese D, Nguyen H S, et al. All-optical phase modulation in a cavity-polariton Mach-Zehnder interferometer. *Nat Commun*, 2014, 5: 3278, arXiv: [1303.1649](#)
- 19 Amo A, Liew T C H, Adrados C, et al. Exciton-polariton spin switches. *Nat Photon*, 2010, 4: 361–366
- 20 Byrnes T, Kim N Y, Yamamoto Y. Exciton-polariton condensates. *Nat Phys*, 2014, 10: 803–813, arXiv: [1411.6822](#)
- 21 Sanvitto D, Kéna-Cohen S. The road towards polaritonic devices. *Nat Mater*, 2016, 15: 1061–1073
- 22 Li Y, Chernikov A, Zhang X, et al. Measurement of the optical dielectric function of monolayer transition-metal dichalcogenides: MoS₂, MoSe₂, WS₂, and WSe₂. *Phys Rev B*, 2014, 90: 205422, arXiv: [1610.04671](#)
- 23 Cong C, Shang J, Wang Y, et al. Optical properties of 2D semiconductor WS₂. *Adv Opt Mater*, 2018, 6: 1700767
- 24 Chai Z, Hu X, Zhu Y, et al. Low-power and ultrafast all-optical tunable plasmon-induced transparency in plasmonic nanostructures. *Appl Phys Lett*, 2013, 102: 201119
- 25 Chai Z, Zhu Y, Hu X, et al. On-chip optical switch based on plasmon-photon hybrid nanostructure-coated multicomponent nanocomposite. *Adv Opt Mater*, 2016, 4: 1159–1166
- 26 Torres-Torres C, Perea-López N, Elías A L, et al. Third order nonlinear optical response exhibited by mono- and few-layers of WS₂. *2D Mater*, 2016, 3: 021005
- 27 Zheng X, Zhang Y, Chen R, et al. Z-scan measurement of the nonlinear refractive index of monolayer WS₂. *Opt Express*, 2015, 23: 15616–15623
- 28 Yuan L, Huang L. Exciton dynamics and annihilation in WS₂ 2D semiconductors. *Nanoscale*, 2015, 7: 7402–7408
- 29 Ceballos F, Zhao H. Ultrafast laser spectroscopy of two-dimensional materials beyond graphene. *Adv Funct Mater*, 2017, 27: 1604509

- 30 Zhang Y, Wen F, Zhen Y R, et al. Coherent Fano resonances in a plasmonic nanocluster enhance optical four-wave mixing. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2013, 110: 9215–9219

Fast low-power all-optical tunable localized exciton-polaritons in nanostructured van der Waals metamaterials

CHAI Zhen^{1,2}, HU XiaoYong^{2,3,4*}, YANG Hong^{2,3,4} & GONG QiHuang^{2,3,4}

¹ Research Institute for Frontier Science, Beihang University, Beijing 100191, China;

² State Key Laboratory for Mesoscopic Physics & Department of Physics, Collaborative Innovation Center of Quantum Matter, Frontiers Science Center for Nano-optoelectronics, Peking University, Beijing 100871, China;

³ Collaborative Innovation Center of Extreme Optics, Shanxi University, Taiyuan 030006, China;

⁴ Beijing Academy of Quantum Information Sciences, Beijing 100193, China

Exciton-polaritons, which are quasiparticles resulting from the strong coupling of excitons to photons, have strong intrinsic nonlinearities. These quasiparticles are essential for emerging technological applications in polaritonic devices. Here low-power fast-response all-optical tunable localized exciton-polaritons were observed in WS₂ flakes. The metamaterial comprised 50-nm-thick WS₂ flakes with periodic rectangular nanoholes. This configuration shows a resonance dip in the transmission measured spectrum. A comparison with plasmon and phonon polaritons revealed that the resonance behavior originates from localized exciton-polaritons. Because of the large optical nonlinearity of excitons and polaritons, the transmission ratios at the resonant wavelength could be tuned from 0.18 up to 0.44 under an excitation of 85 MW cm⁻² using a 402-nm, 120-fs laser beam. The response time, as determined from the electron indirect interband transition, was 48.7 ps. Moreover, the proposed theoretical design demonstrates the widespread existence of localized exciton-polaritons in the material. This van der Waals semiconductor with localized exciton-polaritons and large all-optical tunability shows promising characteristics for low-power all-optical devices and nanophotonic integrated circuits.

WS₂ flake metamaterials, third-order optical nonlinearity, exciton-polaritons

PACS: 42.65.An, 42.25.Bs, 71.36.+c

doi: 10.1360/SSPMA-2020-0148