

台灣大學朱士維教授納米粒子組、中研院林宮玄研究員《Adv. Opt. Mater.》：  
矽納米結構中的瞬態超/亞非線性效應

關鍵詞：泵浦探測技術、光熱效應、熱光效應、俄歇複合、弛豫壽命

在電子學的領域矽納米結構透過電的非線性效應達到高速高效率的用電控制電，而成就了現代社會的技術基石。往下一個世代發展，會朝向應用光的非線性效應來達成用光控制光的理想。台灣大學朱士維教授團隊在 2020 年發表利用矽納米結構具有高折射率形成的米氏共振，可大幅提升光學非線性效應，並具有一納秒左右的反應速度 (Nat. Comm. 11, 4101 (2020))。在他們最新的研究中則發現，在單一矽納米結構上運用泵浦探測技術，當弛豫壽命與泵浦通量相依時，能在時域上展現多種瞬態非線性響應。包含線性、超線性以及亞線性效應，並透過此非線性，展現單一納米結構空間解析度在時域上的變化。此研究為矽納米光子學開闢了一條新途徑，可在時域的維度上調整非線性響應，從而為全光學信號處理及納米成像提供了新的機制。相關的研究成果以標題為“Transient Super-/Sub-Linear Nonlinearities in Silicon Nanostructures”發表在《Advanced Optical Materials》(DOI: 10.1002/adom.202101711)。

### I 瞬態非線性的形成機制

圖 1a 為泵浦探測模擬軌跡，其中弛豫壽命在不同泵浦通量上是常數，所有曲線在歸一化後會相互重疊，因此光與物質交互作用具有線性強度依賴性，而圖 1b 中，如果弛豫壽命隨著泵浦通量的增加而減小，呈現亞線性強度依賴性。反之，則會展現超線性依賴性，如圖 1c 所示。圖 1d 以示意圖呈現只要弛豫壽命與泵浦通量彼此相依，瞬態非線性為普遍現象的概念。

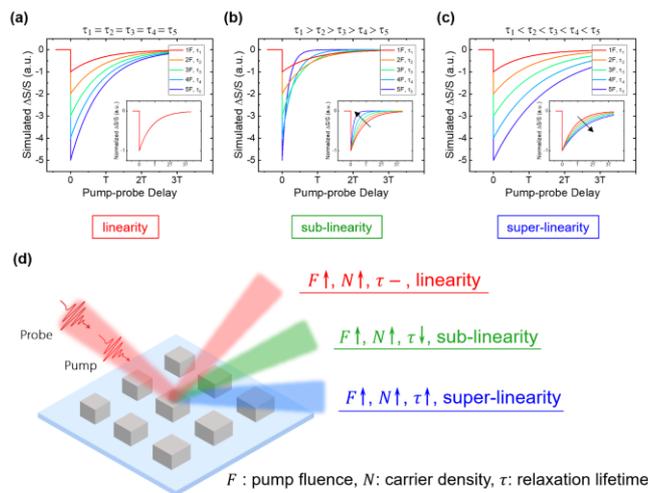


圖 1 由泵浦通量相依的弛豫壽命所引起的瞬態非線性。(a)線性響應；(b)亞線性響應；(c)超線性響應；(d)瞬態非線性示意圖。

## II 矽納米結構中的泵浦探測特性

實驗上該團隊利用矽納米結構中的俄歇復合機制進行驗證。俄歇復合是三粒子效應，其弛豫壽命與泵浦通量的平方反比有關。圖 2a 與 2b 為實驗架構示意圖，結合共軛焦雷射掃描與泵浦探測技術，可量測納米結構在空間域及時域的光交互作用特性。圖 2c 為單一矽納米方塊在不同泵浦通量下的泵浦探測軌跡，弛豫壽命有明顯隨強度增加而變小的相依性，更特別的是在延遲為 80 ps 時，出現一個共同的交叉點。圖 2d 顯示了基於俄歇復合機制的理論擬合曲線，擬合參數則呈現於圖 2e 及 2f，並透過圖 2g 的模擬曲線，再次確認 80 ps 交叉點的產生。

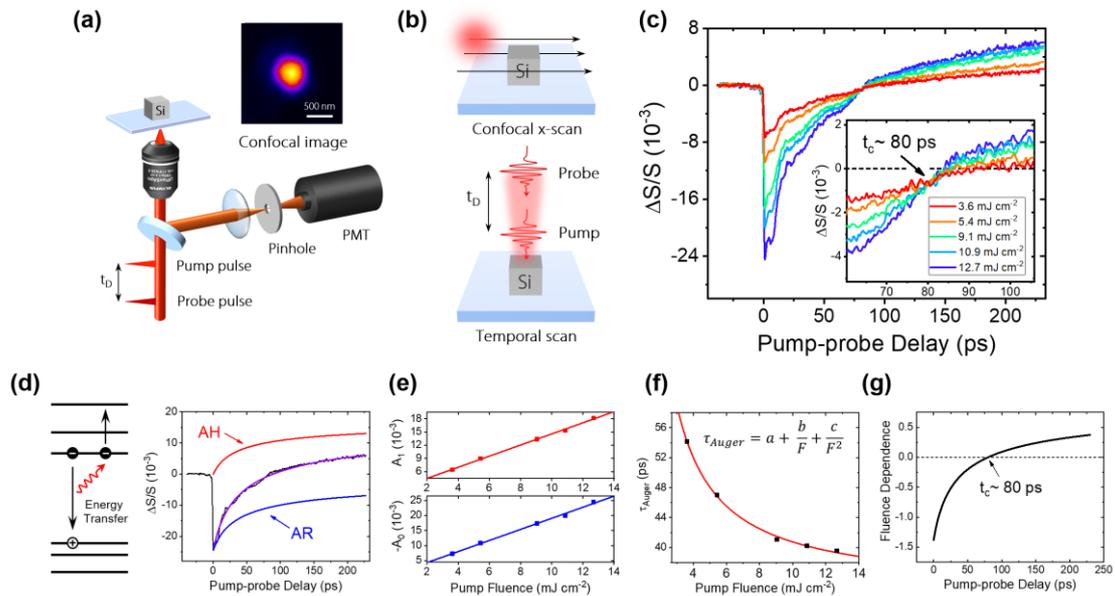


圖 2 矽納米結構的泵浦探測特性。(a)共軛焦泵浦探測顯微鏡示意圖；(b)共軛焦空間域中的 x 掃描和泵浦探測時域掃描；(c)不同泵浦通量下的泵浦探測軌跡；(d)俄歇復合與俄歇加熱的擬合曲線及其(e)擬合振幅及(f)復合壽命；(g)模擬泵浦通量變化相依性，發現確實在 80 ps 左右，變化相依性為零，亦即所有曲線會在這一點交會。

## III 矽納米結構中的瞬態非線性

圖 3a 示意通過俄歇機制產生的瞬態非線性，如果復合壽命不隨著泵浦通量而變化，如紅色和藍色曲線所示，則所預期的泵浦通量依賴性將是線性的。反之，在實驗中如綠色曲線所示，俄歇復合壽命隨著泵浦通量的增加而縮短，從而導致非線性行為。藉由分析不同的泵浦探測延遲，圖 3b 呈現在交叉點前後會出現亞線性和超線性響應，而圖 3c 則顯示了瞬態非線性的完整時間演化。

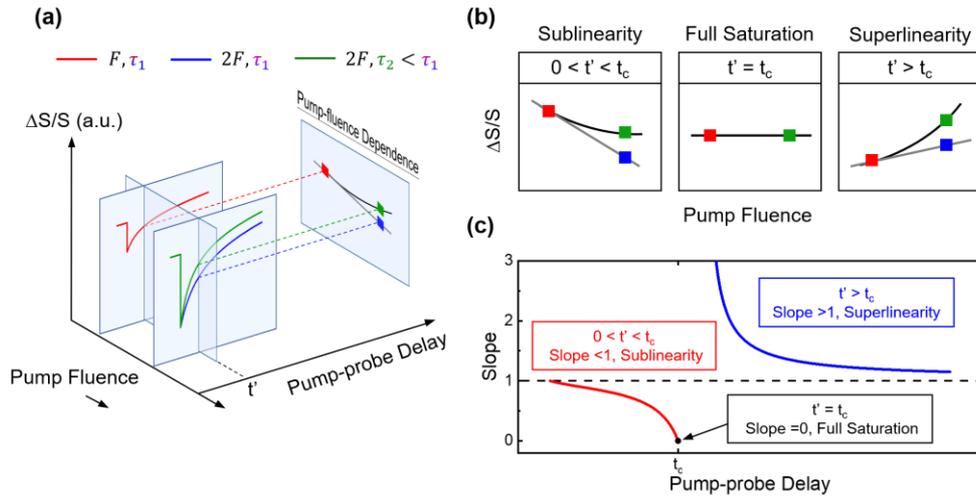


圖 3 瞬態非線性示意圖。(a)俄歇效應引起的瞬態非線性示意圖；(b)非線性泵浦通量依賴性的三種情況：亞線性、完全飽和以及超線性；(c)瞬態非線性在時域中的演化。

圖 4a-e 為提取圖 2c 中不同泵浦探測時間延遲下，分析泵浦探測訊號隨泵浦通量的依賴性，在對數圖中的斜率可用以量化非線性響應。在圖 4a 和 4e 中，當延遲為 0 ps 及 7815 ps 時，顯示了線性依賴性。而圖 4c-e 呈現在交叉點的前後，75、80 和 90 ps 時，分別具有亞線性、完全飽和、與超線性行為。完整的瞬態非線性演化展示於圖 4f。

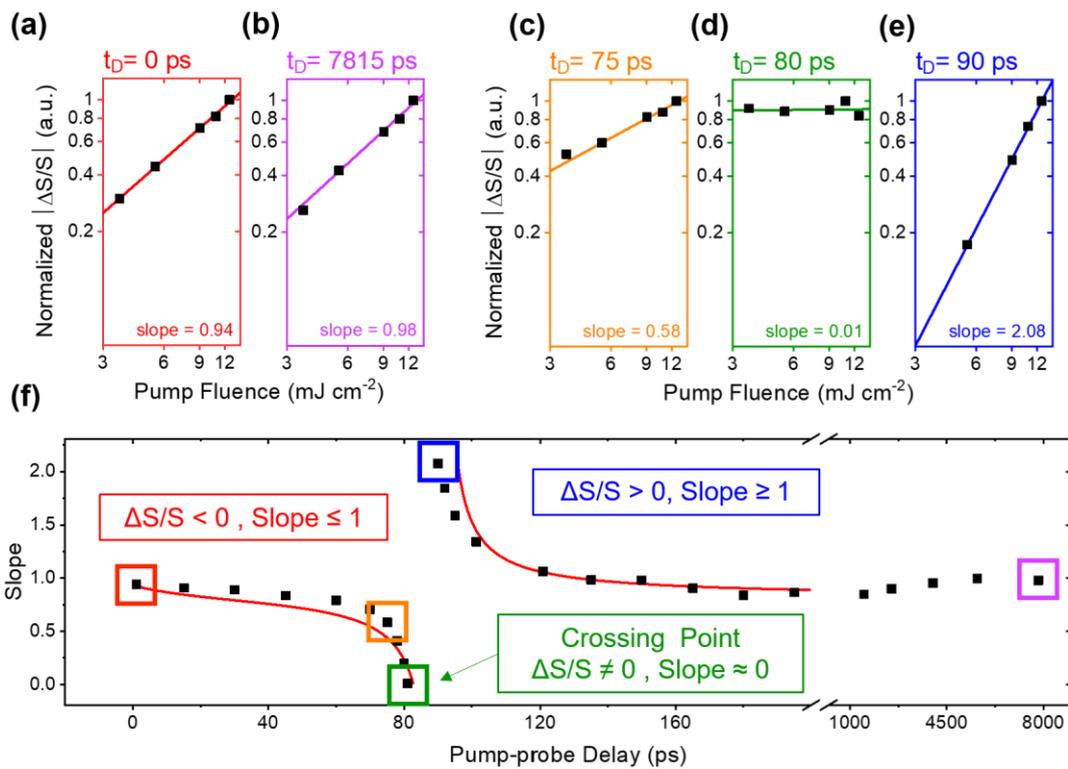


圖 4 矽納米結構的瞬態非線性的時間演變。(a)-(e) 歸一化訊號與泵浦通量的

依賴性，在不同延遲：(a) 0，(b) 7815，(c) 75，(d) 80，(e) 90 ps；(f) 瞬態非線性的演化。

#### IV 瞬態非線性在空間解析度提升之應用

眾所周知，非線性會改變顯微成像的點擴散函數 (PSF) 大小，即 PSF 會由於超線性收縮，或通過亞線性變寬，從而影響空間解析度。從圖 4f 中，我們預期 PSF 會隨著延遲的增加先變寬然後縮小。圖 5a-d 則驗證了此現象確實發生。

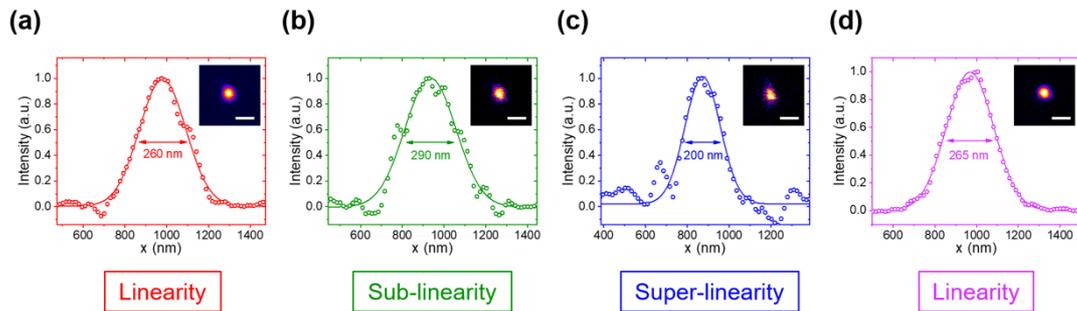


圖 5 點擴散函數在不同非線性的變化。(a)(d)線性響應；(b)亞線性響應；(c)超線性響應

#### V 結語

通過共軛焦掃描顯微鏡和泵浦探測光譜學的結合，我們揭示了一種嶄新的瞬態非線性，其產生的條件為弛豫壽命具有泵浦通量相依性。透過矽納米結構與俄歇複合，驗證瞬態非線性的一般性存在，並在幾十皮秒的泵浦探針延遲下觀察到一個「交叉點」，具有亞線性和超線性響應隨時間演變的現象。此研究開啟了一類新的非線性矽納米光子學，將可應用於全光開關和納米級成像。

論文連結：

Huang, G.-J., Cheng, H.-Y., Tang, Y.-L., Hotta, I., Takahara, J., Lin, K.-H., Chu, S.-W., Transient Super-/Sub-Linear Nonlinearities in Silicon Nanostructures. *Adv. Optical Mater.* 2022, 2101711.

<https://doi.org/10.1002/adom.202101711>