

# 光学学报

## 一种基于纳米环-柱结构的高效非线性超表面

张梦蝶<sup>1,2</sup>, 王文涛<sup>1,2</sup>, 孙朋<sup>2</sup>, 黄辉<sup>1,2</sup>, 董凤良<sup>2,3\*\*\*\*</sup>, 胡源<sup>1\*\*</sup>, 褚卫国<sup>2,3\*</sup>

<sup>1</sup>长春理工大学光电工程学院, 吉林 长春 130022;

<sup>2</sup>国家纳米科学中心纳米加工实验室, 中国科学院纳米科学卓越创新中心, 北京 100190;

<sup>3</sup>中国科学院大学材料与光电研究中心, 北京 100049

**摘要** 为了通过光学元件结构设计实现高效非线性转换, 提出了一种由金纳米圆环、开口金谐振环和四个砷化镓纳米柱构成的结构单元, 来形成纳米环盘谐振腔和开口谐振环混合结构超表面。利用开口谐振环和纳米环共同激发 Fano 共振效应增强局域电场, 并将具有高二次非线性极化率的 GaAs 介质纳米柱作为二次谐波转换器, 从而降低吸收损耗, 提高非线性转化效率。此外, 在基频和倍频处偶极子共振形成的模式匹配进一步增强非线性转化。数值模拟计算得到的二次谐波转换效率高达 0.15%。该研究为具有高非线性转化效率的新型纳米光学元器件的探索和设计提供了新思路。

**关键词** 非线性光学; 超表面; 谐波振荡; Fano 共振

中图分类号 O437.1

文献标志码 A

doi: 10.3788/AOS202141.1219002

## A Highly Efficient Nonlinear Metasurface Based on Nanoring-Rod Structures

Zhang Mengdie<sup>1,2</sup>, Wang Wentao<sup>1,2</sup>, Sun Peng<sup>2</sup>, Huang Hui<sup>1,2</sup>, Dong Fengliang<sup>2,3\*\*\*\*</sup>,  
Hu Yuan<sup>1\*\*</sup>, Chu Weiguo<sup>2,3\*</sup>

<sup>1</sup> School of Opto-Electronic Engineering, Changchun University of Science and Technology,  
Changchun, Jilin 130022, China;

<sup>2</sup> Nanofabrication Laboratory, CAS Center for Excellence in Nanoscience, National Center for  
Nanoscience and Technology, Beijing 100190, China;

<sup>3</sup> Center of Materials Science and Optoelectronics Engineering, University of Chinese Academy of Sciences,  
Beijing 100049, China

**Abstract** In order to achieve highly efficient nonlinear conversion through the design of optical elements, a structural unit composed of an Au nanoring, an Au split-ring resonator (SRR), and four GaAs nanorods is proposed to form a nanoring disk resonant cavity and a hybrid structure metasurface of the open resonant ring. The SRR and nanoring jointly excited Fano resonance to enhance the local electric field. The four GaAs nanorods with high second nonlinear polarizability in subatoms are used as second harmonic generation converters to reduce the absorption loss and improve the nonlinear conversion efficiency. Furthermore, the mode matching of dipole resonance at both the fundamental frequency and the second harmonic improves the nonlinear conversion efficiency. The efficiency for second harmonic generation is up to 0.15% through simulations. Therefore, this research provides new ideas for the exploration and design for novel optical components with high nonlinear conversion efficiency.

**Key words** nonlinear optics; metasurfaces; harmonic generation; Fano resonance

**OCIS codes** 190.4360; 190.4400; 310.6628; 350.4238

收稿日期: 2020-11-12; 修回日期: 2021-01-09; 录用日期: 2021-01-22

基金项目: 国家自然科学基金(61875042, 11627803)、中国科学院青年创新促进会(Y201911)、中国科学院科研仪器设备研制项目(Y8512911)

\* E-mail: wgchu@nanocr.cn; \*\* E-mail: huy@cust.edu.cn; \*\*\* E-mail: dongfl@nanocr.cn

## 1 引言

光学超表面<sup>[1-9]</sup>由金属或/和介质纳米天线组成,能够在亚波长分辨率下对光(如振幅、相位、偏振和频率响应)进行任意调控,在纳米光学领域愈加受到关注。就线性光学领域而言,光学超表面已实现了诸多不同功能并得到广泛而深入的研究,包括光子自旋霍尔效应<sup>[3,10-11]</sup>、超透镜<sup>[5-6,12-15]</sup>、图像编码<sup>[4,7,16-19]</sup>、偏振操纵和控制<sup>[20-23]</sup>、产生涡旋光束等<sup>[1,24-25]</sup>。近年来,由于大容量光学存储、生物医学传感和光学信息安全等方面的需求驱动,超表面在非线性光学领域的研究引起了广泛关注<sup>[26-34]</sup>。但由于材料特性自身所限,非线性光学转换效率通常很低,因而从材料而言,超表面在非线性光学和光子学元器件上的应用势必受到限制。因此,如何将材料选择和结构设计有效结合起来提高光学超表面的非线性转换效率是难以回避的问题。

二次谐波和三次谐波(SHG/THG)是两类最低阶、最常被利用的非线性光学响应。因而,国内外科研人员提出诸多方法来提高 SHG/THG 转换效率。首先,金属的等离激元能够增强光学非线性转换效应<sup>[27-30]</sup>。利用金属纳米结构的表面等离激元(SPPs)或局域表面等离激元(LSPs)<sup>[28,30]</sup>可增强纳米结构的近场电场,进而可增强非线性效应。其次,利用模式匹配也可提高非线性转化效率。实验已验证,通过单个纳米棒与 V 形纳米天线耦合实现模式匹配的纳米结构的倍频效率达  $6.4 \times 10^{-9}$ ,较无模式匹配的金(Au)纳米球结构提高两个量级<sup>[35]</sup>。此外,纳米结构的对称破缺也能够用来增强光学非线性效应。L 形纳米结构<sup>[36]</sup>和开口谐振环结构<sup>[28,30]</sup>是最常采用的两种非中心对称结构。前者主要利用电偶极子共振增强 SHG 效率,而后者主要利用磁偶极子共振增强 SHG 效率<sup>[26]</sup>。最后,Fano 共振也可有效地增强非线性转化效应<sup>[37-38]</sup>,Fano 共振是超辐射亮模与亚辐射暗模相互干涉形成的共振。非同心环-盘(RD)腔是一种支持 Fano 共振的典型纳米结构,由环结构提供的高阶多极子共振模(亚辐射模)与盘结构提供的偶极模(超辐射模)发生耦合。但由于金属材料本身在可见光波段对光吸收严重,由此引起的能量损失限制了 SPPs 的传输距离和 LSPs 的增强,不利于光学非线性转化。因此,利用金属和介质材料构成混合纳米结构,其中金属纳米结构用于电场增强而在介质纳米结构中实现高效非线性转换<sup>[39-43]</sup>,可达到实现高效非线性转化的目的。

基于这种混合结构设计的超表面可实现  $10^{-3}$  量级的 SHG 转换效率<sup>[43]</sup>。

为实现高转化效率,本文基于金属/介质材料混合纳米结构思想,设计了一种超表面(图 1),其超原子由金纳米环、开口金谐振环(SRR)和砷化镓圆柱三种结构组成。这种结构可通过金纳米环和金 SRR 组成类非同心 RD 纳米结构支持的 Fano 共振模式来增强基波和谐波的局域电场。同时,使用高非线性极化率的介质 GaAs 纳米柱作为谐波的转化器,以降低吸收引起的能量损失。此外,具有对称性破缺的金 SRR 结构本身利用偶极子共振可进一步增强非线性转化效应,而且在二次谐波处电偶极子形成超辐射态也有利于提高非线性转化效率。因此,所设计的金属/介质混合纳米结构可充分利用在基频和倍频产生的效应来增强非线性转化,因而预期可显著提高非线性转化效率。实际上,计算得到的 SHG 转换效率高达 0.15%,较仅由砷化镓材料超表面<sup>[44]</sup>的转换效率高 2 个数量级。

## 2 超表面设计

虽然非同心金属纳米环-盘结构产生的 Fano 共振效应能够显著增强基波和谐波的局域电场,提高非线性转化效率,但是由于纳米盘结构的阻尼大于同直径纳米环,因而圆盘结构会损耗更多能量而导致非线性转化效率降低。为了尽可能避免该结构带来的效率降低,本文利用金纳米圆环和金 SRR 构成类非同心纳米环-盘结构,在保证产生 Fano 共振的前提下,降低结构阻尼,减少能量耗散,从而更加有效地增强非线性转化。同时,SRR 结构本身能够产生偶极子共振,因而可进一步提高非线性转化效率。此外,利用吸收系数小、非线性极化率高的介质 GaAs 纳米柱作为谐波转化器,可将局域增强的能量高效地转化为非线性信号。

基于上述材料选择和结构设计的思想,本文使用时域有限差分(FDTD)方法对超表面单元进行了设计,并对性能进行了仿真。本文在模拟和仿真计算超原子的透射率、场增强时,采用条件如下:沿  $x$ 、 $y$  方向采用周期边界条件, $z$  方向设置完美匹配层,激发偏振沿  $x$  方向,Au 和 GaAs 的二次非线性极化率分别采用  $0.78 \text{ pm} \cdot \text{V}^{-1}$ <sup>[43]</sup>和  $200 \text{ pm} \cdot \text{V}^{-1}$ <sup>[44]</sup>。

本文提出的混合纳米结构超表面如图 1 所示。其超原子单元由 Au 纳米环和一个处于中心位置的 Au SRR 以及分布在 SRR 两端的 4 个砷化镓(GaAs)纳米柱所组成,衬底材料为石英玻璃,如

图 1(b)和(c)所示。超表面的光学非线性效应不仅与构成超原子单元结构 Au 和 GaAs 材料的性质相关,而且更大程度上取决于超原子的几何参数,包括金属圆环内径  $r_i$  和外径  $r_o$ 、四个砷化镓圆柱的直径  $d$ 、SRR 尺寸( $w_1$ 、 $l_1$ 、 $l_2$  和  $w_2$ )、高度  $h$  和周期  $P$ ,图中  $r_o=120$  nm,  $r_i=100$  nm,  $d=30$  nm,  $l_1=l_2=100$  nm,  $w_1=20$  nm,  $w_2=70$  nm,  $g=135$  nm,  $h=60$  nm, 超原子结构的周期  $P=1000$  nm。金纳米环和金 SRR 作为基波接收器,可通过优化单元尺寸使其在基频与倍频处均形成共振达到模式匹配的效果。此时,所设计的结构在基波波长和二次谐波波长处能够提供足够场增强,并且位于其间的 4 个 GaAs 圆柱可作为谐波的“转换器”。

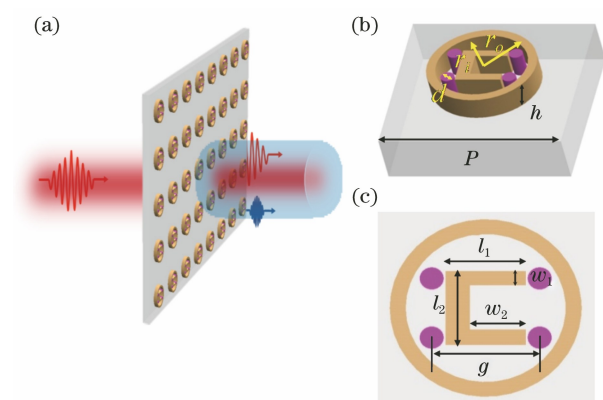


图 1 混合纳米结构超表面。(a)示意图;  
(b)(c)超原子结构斜视图和俯视图

Fig. 1 Metasurface with hybrid nanostructure. (a) Schematic;  
(b)(c) oblique- and top-view of a meta-atom

金纳米环和金 SRR 可形成等离激元的耦合谐振器。该复合结构产生的等离激元模式是由这两种结构各自产生的等离激元杂化的结果<sup>[45]</sup>。图 2(a)给出了由图 1 所示超原子单元的透射谱和吸收谱。其中,透射谱可近似认为是图 2(b)所示金纳米环和金 SRR 等离激元杂化形成的透射谱。纳米环与 SRR 发生耦合形成波长为 1480 nm 基波附近的成键共振(亚辐射态)和波长为 740 nm 二次谐波的反键共振(超辐射态)。如图 2(c)所示,两种反相偶极子共同作用形成了亚辐射暗态。超原子经基波激发的电流并未形成闭合回路[图 3(a)],这表明此时结构处于电偶极子共振状态。图 2(a)中 1480 nm 附近的吸收峰是由亚辐射暗态近场电场增强的结果。这表明入射光的能量辐射主要受限于纳米结构内部并被有效抑制,从而形成极大局域场增强[图 2(e)]。但此时,吸收谱峰与结构单元透射谱在基波处的谷位置并未重合,这可能是由于等离激元混合杂化所

致。如图 2(a)所示,透射率在基波 1480 nm 处最小,为 12.89%;而吸收峰产生于 1499 nm 处,最大值为 54.6%,基波处的吸收率为 32.7%。另一方面,图 2(d)中的电荷分布表明在二次谐波处等离激元杂化使纳米环和 SRR 都激发产生同相偶极子共振,从而形成超辐射亮态。由图 3(b)可知,此时金属环中的电流密度较基频处迅速下降,而 SRR 中的电流密度增强但并未形成环形电流,电偶极子共振增强了结构在谐波处的电场[图 2(f)],进而增强了非线性转化效应。

### 3 结果与讨论

图 4 显示了结构参数与图 1 相同的混合纳米结构超表面的透射强度谱,图中  $x$  偏振泵浦光的中心波长、脉冲宽度和峰值强度分别为 1480 nm、150 fs 和  $1.83$  GW·cm<sup>-2</sup>。在模拟非线性响应时,采用中心波长为 1480 nm、宽度为 150 fs 的脉冲激励,并且其峰值强度低于破坏 Au 结构的阈值  $1.83$  GW·cm<sup>-2</sup><sup>[46]</sup>。由图可见,在 740 nm 处产生一个显著的二次谐波峰。为了计算二次谐波的转换效率  $\eta_{SH}$ ,定义  $\eta_{SH} = P_{SH}/P_{FF}$ ,其中  $P_{FF} = I_{FF}A$  为基波功率,  $A$  为超原子面积,  $P_{SH} = I_{SH}A$  为二次谐波功率。由此计算得到超表面的 SHG 效率为 0.15%。该超表面具有高 SHG 效率,主要是由于以下四方面的贡献:1) Au SRR 结构产生的共振与 Fano 共振的协同作用有效地增强局域电场;2) 具有高二次非线性极化率的 GaAs 介质材料作为谐波转换器,吸收小,能够有效降低吸收损耗,提高非线性转化效率;3) 基频处金属环和 Au SRR 纳米结构的电偶极子共振有利于提高非线性转化效率;4) 二次谐波处偶极子共振进一步增强非线性转化效应。能够高效产生二次谐波主要是由于局域电场增强、金属环和 Au SRR 的电偶极子共振效应和 GaAs 介质转换器的低吸收损耗共同作用的结果。

前面已经提及,由于金属材料的吸收系数大,金属材料纳米结构因能量吸收耗散而导致非线性转化效率低。因而使用吸收系数小、非线性极化率高的介质材料是提高非线性转化效率的首选有效途径。如使用 GaAs 材料设计纳米结构超表面的二次谐波转化效率在  $3.4$  GW/cm<sup>2</sup> 的泵浦光强下可达  $2 \times 10^{-5}$ <sup>[44]</sup>。但是,仅依靠使用高非线性极化率的介质材料增强电场效果十分有限,如 GaAs 纳米柱在基波的光强只有泵浦光强的 30 倍左右。而本文提出的混合纳米结构超表面利用金属纳米结构等离激元



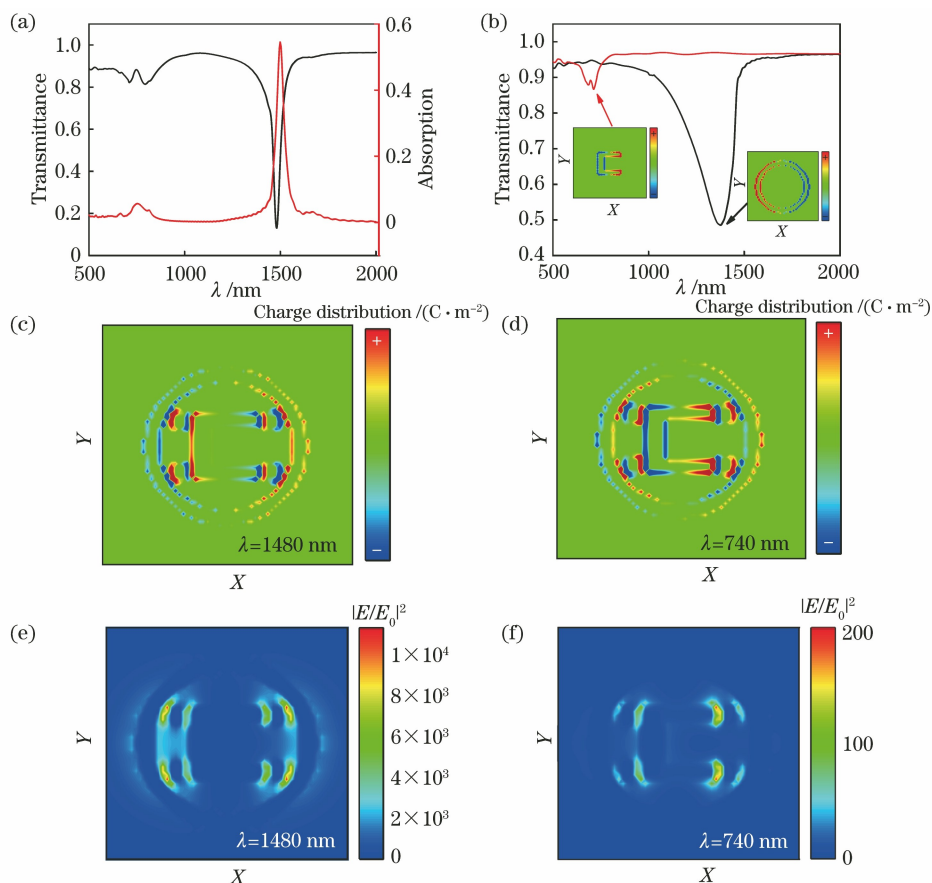


图 2 仿真实验结果。(a) 超表面的透射光谱和吸收谱线；(b) Au 纳米环和 Au SRR 的透射光谱；(c)(d)基波和二次谐波处的电荷分布图；(e)(f)波长为 1480 nm 和 740 nm 的近场增强分布图

Fig. 2 Simulation results. (a) Transmission and absorption spectra of the metasurface; (b) transmittances of the metasurfaces consisting of the meta-atoms with a single Au ring and a single Au SRR; (c)(d) charge distributions of the meta-atom at the wavelengths of 1480 nm and 740 nm, respectively; (e)(f) near-field enhancements of the meta-atom at the wavelengths of 1480 nm and 740 nm, respectively

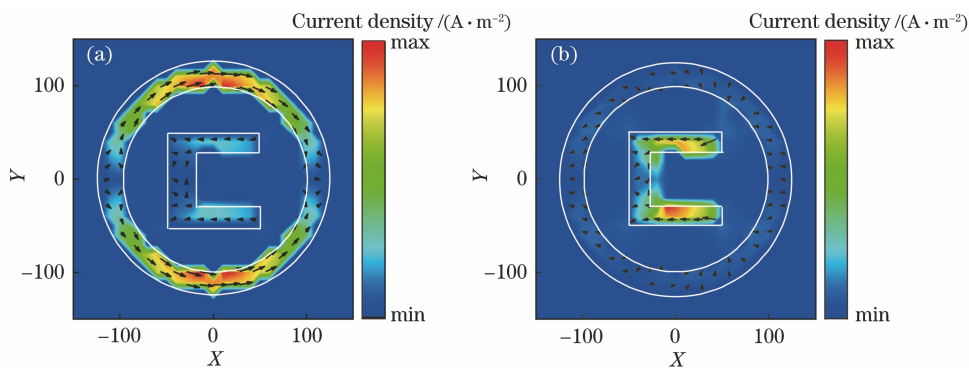


图 3 金属环和 SRR 组合结构的电流密度分布图和电流的矢量方向。(a)基频处电流密度分布图；(b)二次谐波处的电流密度分布图

Fig. 3 Current density distribution of the metal ring and SRR combined structure and the vector direction of the current. (a) Current density distribution of fundamental frequency; (b) current density distribution of second harmonic

增强基波强度的因子大于  $10^4$  [图 2(c)], 较仅使用 GaAs 纳米柱的结构高 2 个量级以上。此外, 本文提出的超原子单元中 Au 纳米环和 Au SRR 结构除大大增强局域电场外, Au SRR 本身的偶极子共振

也可以提高了非线性转化效率, 二次谐波信号可增大 2 倍左右<sup>[28]</sup>。另外, Au 纳米环和 Au SRR 的同相偶极子共振形成的超辐射态进一步提高了二次谐波的非线性转化效率。综合上述效应使得所提出的

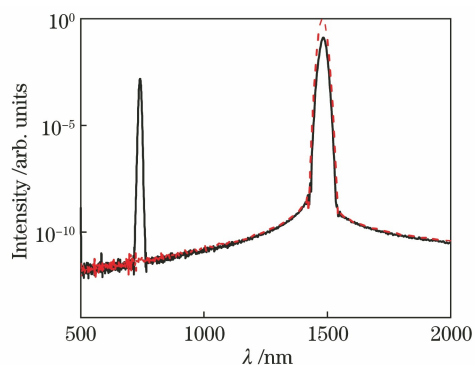


图 4 混合纳米结构超表面的透射光谱

Fig. 4 Transmitted spectrum of the metasurface with hybrid nanostructures

混合纳米结构超表面的二次非线性转化效率较仅使用 GaAs 纳米柱介质超表面的效率提高 2 个数量级,而较 GaAs 介质膜提高约 6 个数量级<sup>[44]</sup>。

图 5 给出了混合纳米结构超表面的 SHG 效率随泵浦峰值强度改变而发生的变化。由图可见, SHG 效率与泵浦的强度呈线性关系。这是因为 SHG 的能量正比于激发波强度的平方,由转换效率的定义很容易推导出转换效率正比于泵浦强度。

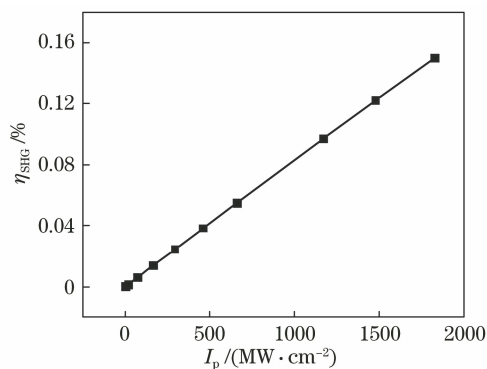


图 5 泵浦峰值强度与 SHG 效率之间的关系

Fig. 5 Relationship between pump peak intensity and SHG efficiency

综上所述,为了避免由于金属纳米 RD 结构中纳米盘阻尼大导致能量耗散大从而降低非线性转化效率,本文提出了一种基于金属纳米环和 SRR 结构的新型类非同心金属 RD 纳米复合结构。该结构既能够通过 Fano 共振模式增强非线性转化效应,也能够降低纳米结构的阻尼、减少能量耗散,更加有效地提高非线性转化效率。同时,将吸收系数小、非线性极化率高的介质 GaAs 纳米柱作为谐波转换器,利用基频和倍频处的偶极子共振模式匹配,实现了非线性超表面二次谐波转化效率的突破,为高非线性转化效率的纳米光学器件的设计提供了重要借鉴和思路。

## 4 结 论

本文基于混合纳米结构提出一种超表面可以实现非线性高效转换,其中超原子由 Au 纳米环、Au SRR 和 GaAs 纳米柱三种结构组成。Au 纳米环和 Au SRR 两个结构的等离子元杂化形成了成键偶极子共振暗态和反成键偶极子共振亮态。GaAs 纳米柱利用自身材料的非线性极化率高、吸收损耗低的性质将基波增强的电场高效转换为二次谐波。金属环和 Au SRR 结构在基频处利用电偶极子共振模式也增强了 SHG 转化效应,同时在谐波因形成的超辐射态进一步提高了 SHG 转换效率。这表明本文提出的混合纳米结构超表面可作为高性能非线性光学元件的设计范例,广泛用于高密度光存储、生物医学传感和光信息安全等领域。

## 参 考 文 献

- [1] Yu N, Genevet P, Kats M A, et al. Light propagation with phase discontinuities: generalized laws of reflection and refraction[J]. *Science*, 2011, 334(6054): 333-337.
- [2] Kildishev A V, Boltasseva A, Shalaev V M, et al. Planar photonics with metasurfaces[J]. *Science*, 2013, 339(6125): 1232009.
- [3] Yin X, Ye Z, Rho J, et al. Photonic spin hall effect at metasurfaces [J]. *Science*, 2013, 339 (6126): 1405-1407.
- [4] Chen W T, Yang K Y, Wang C M, et al. High-efficiency broadband meta-hologram with polarization-controlled dual images [J]. *Nano Letters*, 2014, 14 (1): 225-230.
- [5] Lin D M, Fan P Y, Hasman E, et al. Dielectric gradient metasurface optical elements [J]. *Science*, 2014, 345(6194): 298-302.
- [6] Arbabi A, Horie Y, Bagheri M, et al. Dielectric metasurfaces for complete control of phase and polarization with subwavelength spatial resolution and high transmission [J]. *Nature Nanotechnology*, 2015, 10(11): 937-943.
- [7] Wen D, Yue F, Li G, et al. Helicity multiplexed broadband metasurface holograms [J]. *Nature Communications*, 2015, 6: 8241.
- [8] Dong F L, Chu W G. Multichannel-independent information encoding with optical metasurfaces [J]. *Advanced Materials*, 2019, 31(45): 1804921.
- [9] Wang Y, Zhang S H, Shen Y, et al. Manipulation on amplitude of anomalous refraction in staggered terahertz V-shaped metasurface [J]. *Acta Optica*

- Sinica, 2020, 40(7): 0713001.
- 汪云, 章少华, 沈云, 等. 太赫兹 V-形错位超表面异常折射振幅调控研究[J]. 光学学报, 2020, 40(7): 0713001.
- [10] Hasman E. Spin-optical metasurface route to spin-controlled photonics [C]//CLEO: QELS\_Fundamental Science 2014, June 8-13, 2014, San Jose, California United States. Washington D.C.: OSA, 2014: FF1C.1.
- [11] Luo X G, Pu M B, Li X, et al. Broadband spin hall effect of light in single nanoapertures [J]. Light, Science & Applications, 2017, 6(6): e16276.
- [12] Khorasaninejad M, Chen W T, Devlin R C, et al. Metalenses at visible wavelengths: diffraction-limited focusing and subwavelength resolution imaging [J]. Science, 2016, 352(6290): 1190-1194.
- [13] Khorasaninejad M, Chen W T, Zhu A Y, et al. Multispectral chiral imaging with a metalens [J]. Nano Letters, 2016, 16(7): 4595-4600.
- [14] Chen B H, Wu P C, Su V C, et al. GaN metalens for pixel-level full-color routing at visible light [J]. Nano Letters, 2017, 17(10): 6345-6352.
- [15] Zheng G X, Wu W B, Li Z L, et al. Dual field-of-view step-zoom metalens [J]. Optics Letters, 2017, 42(7): 1261-1264.
- [16] Wang B, Dong F, Li Q T, et al. Visible-frequency dielectric metasurfaces for multiwavelength achromatic and highly dispersive holograms [J]. Nano Letters, 2016, 16(8): 5235-5240.
- [17] Chen J, Li T, Wang S M, et al. Multiplexed holograms by surface plasmon propagation and polarized scattering [J]. Nano Letters, 2017, 17(8): 5051-5055.
- [18] Zang X, Dong F, Yue F, et al. Polarization encoded color image embedded in a dielectric metasurface [J]. Advanced Materials, 2018, 30(21): e1707499.
- [19] Dong F L, Feng H, Xu L H, et al. Information encoding with optical dielectric metasurface via independent multichannels [J]. Acs Photonics, 2019, 6(1): 230-237.
- [20] Maguid E, Yulevich I, Veksler D, et al. Photonic spin-controlled multifunctional shared-aperture antenna array [C]//2016 IEEE Photonics Conference (IPC), October 2-6, 2016, Waikoloa, HI, USA. New York: IEEE Press, 2016: 200-201.
- [21] Li Q T, Dong F L, Wang B, et al. Free-space optical beam tapping with an all-silica metasurface [J]. ACS Photonics, 2017, 4(10): 2544-2549.
- [22] Yue F Y, Wen D D, Zhang C M, et al. Multichannel polarization-controllable superpositions of orbital angular momentum states [J]. Advanced Materials, 2017, 29(15): 1603838.
- [23] Liu K T, Liu X, Ge Y H, et al. Generation of orbital angular momentum vortex beams based on high-efficiency transmission metasurfaces [J]. Acta Optica Sinica, 2019, 39(1): 0126016.
- 刘凯婷, 刘鑫, 葛悦禾, 等. 基于高效传输型超表面轨道角动量涡旋波束的产生 [J]. 光学学报, 2019, 39(1): 0126016.
- [24] Chong K E, Staude I, James A, et al. Polarization-independent silicon metadevices for efficient optical wavefront control [J]. Nano Letters, 2015, 15(8): 5369-5374.
- [25] Mehmood M Q, Mei S, Hussain S, et al. Visible-frequency metasurface for structuring and spatially multiplexing optical vortices [J]. Advanced Materials, 2016, 28(13): 2533-2539.
- [26] Klein M W. Second-harmonic generation from magnetic metamaterials [J]. Science, 2006, 313(5786): 502-504.
- [27] Kauranen M, Zayats A V. Nonlinear plasmonics [J]. Nature Photonics, 2012, 6(11): 737-748.
- [28] Niesler F B P, Linden S, Förstner J, et al. Collective effects in second-harmonic generation from split-ring-resonator arrays [C]//Quantum Electronics and Laser Science Conference 2012, May 6-11, 2012, San Jose, California United States. Washington D.C.: OSA, 2012: QTh3E.2.
- [29] Li G X, Chen S M, Pholchai N, et al. Continuous control of the nonlinearity phase for harmonic generations [J]. Nature Materials, 2015, 14(6): 607-612.
- [30] Segal N, Zur S K, Hendler N, et al. Controlling light with metamaterial-based nonlinear photonic crystals [J]. Nature Photonics, 2015, 9(3): 180-184.
- [31] Nookala N, Lee J, Tymchenko M, et al. Ultrathin gradient nonlinear metasurface with a giant nonlinear response [J]. Optica, 2016, 3(3): 283-288.
- [32] Shorokhov A S, Gaykazyan E V M, Smirnova D A, et al. Multifold enhancement of third-harmonic generation in dielectric nanoparticles driven by magnetic fano resonances [J]. Nano Letters, 2016, 16(8): 4857-4861.
- [33] David J B, Levy U. Nonlinear diffraction in asymmetric dielectric metasurfaces [J]. Nano Letters, 2019, 19(2): 1044-1051.
- [34] Shcherbakov M R, Werner K, Fan Z Y, et al. Photon acceleration and tunable broadband harmonics generation in nonlinear time-dependent metasurfaces [J]. Nature Communications, 2019, 10: 1345.
- [35] Celebrano M, Wu X F, Baselli M, et al. Mode matching in multiresonant plasmonic nanoantennas

- for enhanced second harmonic generation[J]. *Nature Nanotechnology*, 2015, 10(5): 412-417.
- [36] Czaplicki R, Zdanowicz M, Koskinen K, et al. Dipole limit in second-harmonic generation from arrays of gold nanoparticles [J]. *Optics Express*, 2011, 19(27): 26866-26871.
- [37] Thyagarajan K, Butet J, Martin O J F, et al. Augmenting second harmonic generation using Fano resonances in plasmonic systems[J]. *Nano Letters*, 2013, 13(4): 1847-1851.
- [38] Liu S D, Leong E S P, Li G C, et al. Polarization-independent multiple fano resonances in plasmonic nonamers for multimode-matching enhanced multiband second-harmonic generation[J]. *Acs Nano*, 2016, 10(1): 1442-1453.
- [39] Aouani H, Rahmani M, Cia M N, et al. Third-harmonic-upconversion enhancement from a single semiconductor nanoparticle coupled to a plasmonic antenna[J]. *Nature Nanotechnology*, 2014, 9(4): 290-294.
- [40] Lehr D, Reinhold J, Thiele I, et al. Enhancing second harmonic generation in gold nanoring resonators filled with lithium niobate [J]. *Nano Letters*, 2015, 15(2): 1025-1030.
- [41] Linnenbank H, Grynkó Y, Förstner J, et al. Second harmonic generation spectroscopy on hybrid plasmonic/dielectric nanoantennas[J]. *Light, Science & Applications*, 2016, 5(1): e16013.
- [42] Li Z, Liu W W, Li Z C, et al. Fano-resonance-based mode-matching hybrid metasurface for enhanced second-harmonic generation[J]. *Optics Letters*, 2017, 42(16): 3117-3120.
- [43] Kim K H, Rim W S. Strongly resonant metasurfaces supported by reflective substrates for highly efficient second- and high-harmonic generations with ultralow pump intensity [J]. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 2019, 21(35): 19076-19082.
- [44] Liu S, Sinclair M B, Saravi S, et al. Resonantly enhanced second-harmonic generation using III-V semiconductor all-dielectric metasurfaces [J]. *Nano Letters*, 2016, 16(9): 5426-5432.
- [45] Hao F, Sonnefraud Y, van Dorpe P, et al. Symmetry breaking in plasmonic nanocavities: subradiant LSPR sensing and a tunable fano resonance [J]. *Nano Letters*, 2008, 8(11): 3983-3988.
- [46] Kim S W, Kim S, Park I Y, et al. High harmonic generation by resonant plasmon field enhancement[C]// *Conference on Lasers and Electro-Optics 2010*, May 16-21, 2010, San Jose, California United States. Washington D.C.: OSA, 2010: CThQ1.