

超薄二维材料非线性量子光源

祁晓卓¹ 郭强兵² 仇成伟^{2,†} 任希锋^{3,††}

(1 天津工业大学 天津 300387)

(2 新加坡国立大学 新加坡 119077)

(3 中国科学技术大学 合肥 230026)

2023-02-16 收到

† email: chengwei.qiu@nus.edu.sg

†† email: renxf@ustc.edu.cn

DOI: 10.7693/wl20230307

随着量子科学的不断发展，量子系统的规模也在不断扩大。相比传统的空间量子光学系统，集成量子光学系统能够稳定支持大规模量子系统，是量子科学未来发展的重要方向。集成量子光学系统由多个部分组成，其中为系统提供量子资源的部分是集成量子光源。现有量子光源主要分为三类：衰减相干脉冲单光子源、确定性单光子源和自发非线性过程产生的时间关联光源。其中，由自发非线性过程产生的时间关联光源广泛应用于量子光学系统之中^[1-4]。

自发参量下转换是一种光学二阶非线性($\chi^{(2)}$)过程。该过程为一个光子在能量和动量守恒条件下转换为一对关联光子，产生的光子对在时间上有强关联，可用来制备多种量子态。输入的光子称作泵浦光，频率为 ω_p ，转换后的光子频率为 ω_s 和 ω_i ，分别被称为信号光和闲频光。根据能量守恒定律，信号光和闲频光的光子能量之和等于泵浦光的光子能量。同时，该非线性转换过程中参与的光子需要满足动量匹配条件。

目前，产生基于参量下转换过程的量子光源通常由块状晶体实现，例如硼酸钡和铌酸锂^[5]。

这些晶体材料具有空间非中心对称性，因而有二阶非线性光学响应。为保证泵浦光与晶体的相互作用能高效地发生自发参量下转换过程，晶体的参数需要严格设计以满足参量下转换过程中的能量守恒和动量守恒，比如周期性极化铌酸锂的参数设计^[6]。然而，只有部分具有强二阶非线性效应的晶体支持这类集成非线性量子光源，因此限制了集成量子光学系统兼容模块的发展。

二维材料是一类新型材料，其层内原子以共价键相连，而层间原子通过相对较弱的范德瓦耳斯力相互作用。二维层状材料能够方便地堆叠或集成在芯片结构上^[7]。一些二维材料在单层或者堆叠条件下，晶体结构具有空间非中心对称性，能够产生二阶非线性效应。同时单层以及少层堆叠的二维材料厚度薄且远小于常用紫外、可见、红外光的光子波长，材料对色散的影响极弱使得非线性过程不受动量匹配条件限制^[8]。这些优势使得二维材料在集成光学非线性方向有很大的应用潜力，有可能制备兼容多平台的非线性量子光源。我们研究了一种新型二维材料二氯化铌(NbOCl_2)的二阶非线性光学响应，并测到了自发参量下转换光子对，该成果近期在*Nature*杂志上发表^[9]。

制约二维材料非线性量子光源发展的主要问题是转换效率不足。二维材料的厚度薄使得相互作用距离短，非线性转换效率受限。现有大部分具有二阶非线性效应的二维材料在单层时转换效率最强，如过渡金属硫族化合物^[10]。这是因为堆叠至厚层的该

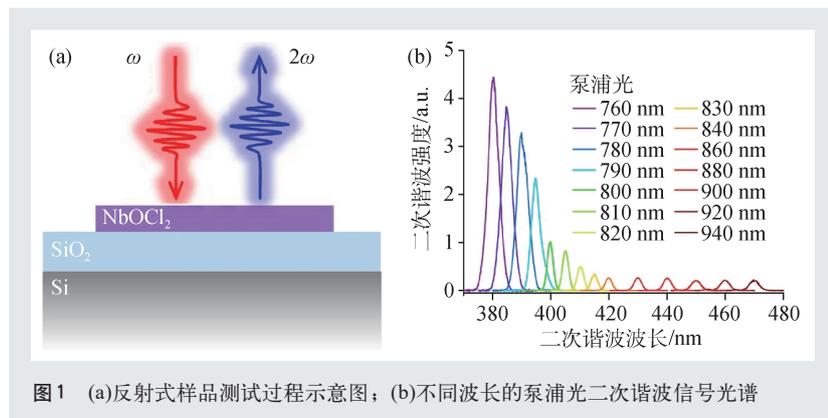


图1 (a)反射式样品测试过程示意图；(b)不同波长的泵浦光二次谐波信号光谱

类二维材料层间电子耦合较强，使得非线性系数显著降低^[11]或晶体结构对称性使非线性效应减弱^[12]。新型材料NbOCl₂的优势在于：层间电子耦合弱，堆叠后能够保持非中心对称结构，显著的面内各向异性以及较强二阶光学非线性响应。这些优势使该材料具有随层数增加的二阶光学非线性转换效率，达到比一般的单层过渡金属硫族化合物更高的二阶非线性转换效率。

二氯化铌为C₂空间群晶体，晶体层沿*a*轴堆叠，层间相互作用力为范德瓦耳斯力且层间距离约为0.65 nm。Nb原子表现出一维Peierls畸变^[13]导致沿*b*轴的极化和沿*c*轴的两个交替且长度不等的Nb-Nb键。因此，晶体结构呈现非中心对称的特性，使得材料具有较高的光学二阶非线性系数。另外，通过透射电镜电子能量损失谱(EELS)测试证实NbOCl₂晶体的带隙对厚度(层数)非常不敏感。通过计算层电荷密度，我们发现在层间区域只存在可忽略不计的电荷分布，这表明在面外方向上几乎没有共价键。NbOCl₂中这种相当弱的层间耦合特性可能来源于：从Nb原子上夺取一个电子后，Cl原子的*p*壳层被占满，于是对外显惰性，因此层间相互作用相当弱。综合以上研究结果能够发现，NbOCl₂晶体不仅具有非中心对称的晶体结构，而且层间电子耦合非常弱，能够通过层数堆叠方法提高二阶非线性转换效率。

二阶光学非线性转换过程中，和频过程与自发参量下转换过程互为逆过程。其中，和频过程中较为特殊的情况是二次谐波过程，即两个和频的光子频率一致。通过测量在材料上发生的二次谐波过程，可以对材料的二阶非线性性质进行初步判断。我们利用反射式光路测试NbOCl₂薄层材料的二阶非线性响应情况，反射式测试过程的示意图如图1(a)所示。我们收集到的二次谐

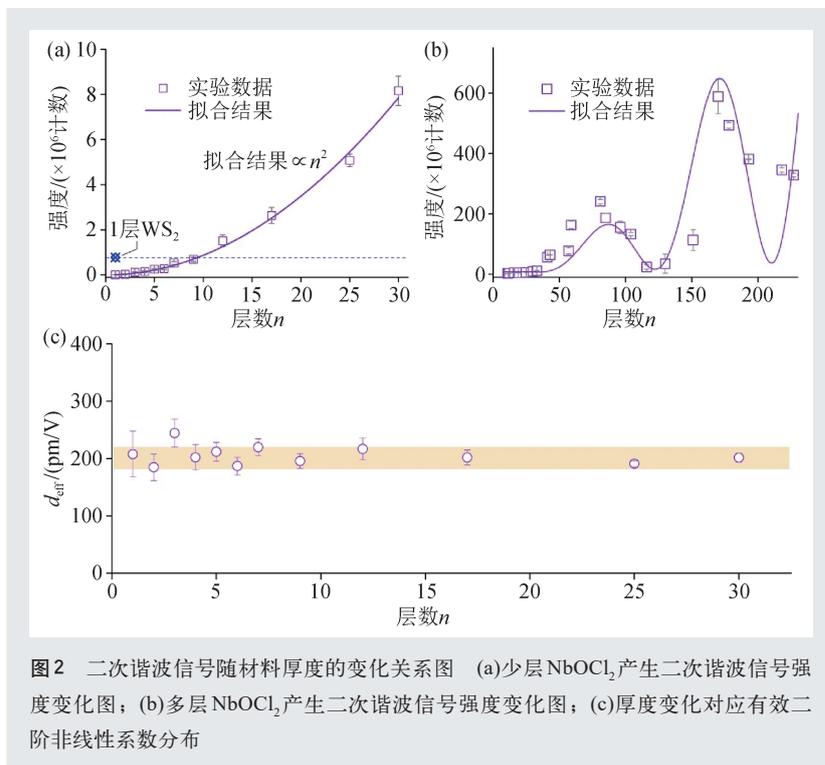


图2 二次谐波信号随材料厚度的变化关系图 (a)少层NbOCl₂产生二次谐波信号强度变化图；(b)多层NbOCl₂产生二次谐波信号强度变化图；(c)厚度变化对应有效二阶非线性系数分布

波信号为样品反射回测试系统的信号。实验中使用可调谐飞秒脉冲激光对样品进行泵浦，激光的波长可以从760 nm调谐到940 nm，测量到的二次谐波信号光谱波段为380 nm到470 nm，如图1(b)所示。从图中可以看出，二次谐波信号的波长越接近380 nm强度越强，这与电子能量损失谱的结果以及光学吸收特性一致。越接近材料共振吸收波长时，我们预测二次谐波信号有越大的增益。目前我们无法验证这个预测，这受制于可用的光电探测器的光学响应范围，而我们使用的硅基单光子计数器对波长在400 nm以下的光子信号探测效率会变得非常低。

我们测试了二次谐波信号相对泵浦光的偏振依赖关系，发现信号与泵浦光平行且与材料*b*轴平行时转换效率最高。图2展示了二次谐波信号随材料厚度的变化关系。如图2(a)所示，当材料层数较少时，我们根据二阶非线性耦合波方程拟合二次谐波的信号强度，得到其与材料厚度的平方成正比，此时材料厚度低于二次谐波信号穿透深度。当材料厚度超过9层时，产生的二次谐波信号强度超过单层二硫化钨材料在同等条件下产生的信号强度。当材料层数较多时，材料厚度与

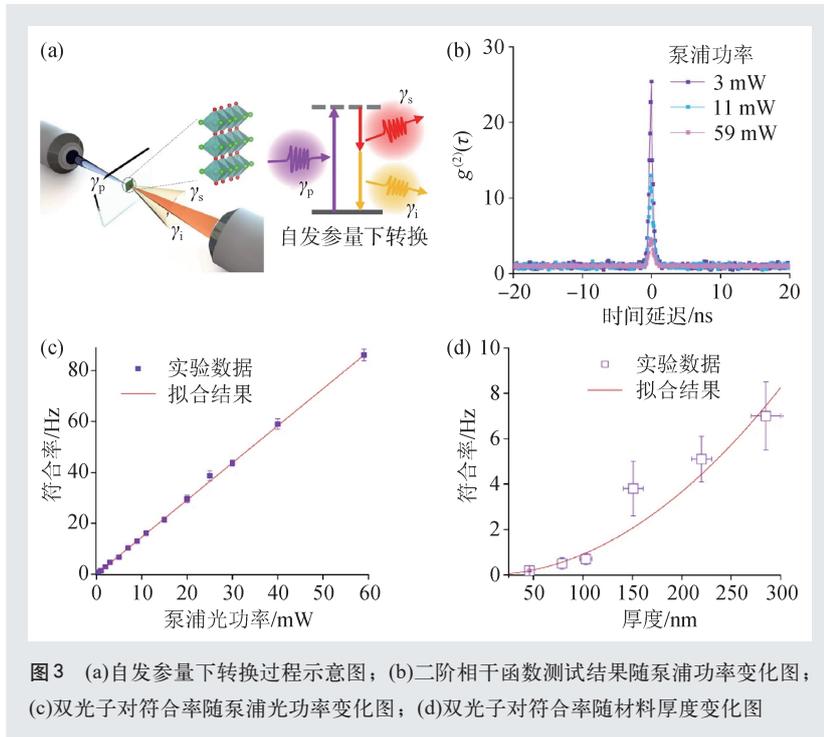


图3 (a)自发参量下转换过程示意图；(b)二阶相干函数测试结果随泵浦功率变化图；(c)双光子对符合率随泵浦光功率变化图；(d)双光子对符合率随材料厚度变化图

信号相干长度可比，图2(b)中强度变化振荡现象由反射系统的干涉效应引起。我们通过相同的测试系统测试了单层二硫化钨的二次谐波信号，测试条件与 NbOCl_2 一致。实验结果中， NbOCl_2 薄层材料上产生的二次谐波信号的强度远超同等条件下单层二硫化钨产生的信号强度。我们计算了不同堆叠层数 NbOCl_2 的二阶非线性系数。如图2(c)所示，计算出的有效二阶非线性系数大约为 200 pm/V 。该结果与层数基本无关，证明了材料弱层间电子耦合效应使得块体材料保持了单层优异的二阶非线性系数。

我们进一步测试了多层 NbOCl_2 二维材料的自发参量下转换过程。实验中采用透射式光路 404 nm 波长的连续激光器泵浦二维材料，收集下

转换过程所产生的 808 nm 附近波长参量光，如图3(a)所示。二阶关联函数($g^{(2)}$)测试是一种区别经典与非经典光学信号的方法，在实验中将光学信号经过1:1光学分束器分为两路，两路信号接入符合仪器测得符合强度随两路延时变化关系。经典光学信号延时为零时， $g^{(2)}$ 测试结果最高为2，而具有时间关联性的非经典信号的测试结果能够超越2。图3(b)中展示的二阶关联函数 $g^{(2)}$ 测试结果远超2，证明该过程产生了非经典关联的光子对。我们也对自发参量下转换光信号强度随泵浦功率变化以及二维材料厚度变化关系进行了测量，如图3(c), (d)所示。

其中，参量下转换信号强度与泵浦功率存在正比关系，与材料厚度的平方存在正比关系，来源于参量下转换的耦合波方程。实验中展示了厚度低至 46 nm 的 NbOCl_2 材料能明确产生下转换光子对，这是目前已有报道中最薄的非线性量子光源。

二维材料本身的范德瓦耳斯集成性质使得该光源能够跨平台应用于多种量子系统中。相比于传统非线性晶体的厚度，二维材料厚度更薄，能够更好地匹配各种微纳光学结构的倏逝场，在信号增益和调控方面有优势。该成果在芯片集成量子光源以及集成频率转换器领域具有巨大的应用潜力。这项工作不仅为光学量子科学研究提供了一种可集成的量子光源，也为二维材料的非线性研究开辟了一个新的方向。

参考文献

- [1] Elshaari A W, Pernice W, Srinivasan K *et al.* Nat. Photon., 2020, 14: 285
- [2] Wang Y, Jöns K D, Sun Z. Appl. Phys. Rev., 2021, 8: 011314
- [3] Li L, Liu Z, Ren X *et al.* Science, 2020, 368: 1487
- [4] Santiago-Cruz T, Sultanov V, Zhang H *et al.* Opt. Lett., 2021, 46: 653
- [5] Li L, Liu Z, Ren X *et al.* Science, 2020, 368: 1487
- [6] Wang C, Langrock C, Marandi A *et al.* Optica, 2018, 5: 1438
- [7] Liu Y, Huang Y, Duan X. Nature, 2019, 567: 323
- [8] Hong H, Wu C, Zhao Z *et al.* Nat. Photon., 2021, 15: 510
- [9] Guo Q, Qi X Z, Zhang L *et al.* Nature, 2023, 613: 53
- [10] Li D, Xiong W, Jiang L *et al.* ACS nano, 2016, 10(3): 3766
- [11] Kumar N, Najmaei S, Cui Q *et al.* Phys. Rev. B, 2013, 87: 161403
- [12] Li Y, Rao Y, Mak K F *et al.* Nano. Lett., 2013, 13: 3329
- [13] Jia Y, Zhao M, Gou G *et al.* Nanoscale Horiz., 2019, 4: 1113