

二维Mott绝缘体红外非线性各向异性

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/39309.html>

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

二维Mott绝缘体红外非线性各向异性。导读

莫特绝缘体是一类由强电子—电子关联驱动形成绝缘态的材料体系：在位库仑斥力使载流子局域化并打开电荷能隙，这一机理不同于传统能带绝缘体，因而成为探索奇异量子现象的理想平台。更重要的是，强关联与电荷转移的协同不仅稳定了磁有序，也赋予材料丰富而独特的光学响应。

近日，新加坡南洋理工大学刘政教授、王岐捷教授联合哈尔滨工业大学李兴冀教授等合作团队，在二维电荷转移型Mott绝缘体VOCl中观察到强红外非线性光学各向异性。这一发现为偏振分束器、上转换探测器、超快激光器等器件提供了全新的材料与物理基础。

相关研究成果以Colossal infrared nonlinear optical anisotropy in a 2D charge-transfer Mott insulator为题发表于《Light: Science Applications》。

研究背景

非线性光学过程及其各向异性是先进光学技术的核心支撑，直接影响片上光子学与纳米光学器件的功能与效率。随着集成光子学的快速发展，亟需同时具备强非线性响应与显著光学各向异性的二维材料。莫特绝缘体因强关联导致的载流子局域化与电荷能隙，在电子、自旋、轨道等自由度强耦合的推动下，呈现出与传统绝缘体截然不同的激发态与光学现象。本研究在二维电荷转移型Mott绝缘体VOCl中观察到强非线性光学响应与非线性光学各向异性：在1280 nm激发下，三次谐波(Third-Harmonic Generation, THG)各向异性比值 (ρ_{THG}) 达到187。机制研究表明，如此巨大的各向异性源于相关电荷转移与本征C3对称性破缺的协同增强，为面向偏振工程的纳米光子器件提供了全新的材料基础与物理路径。

研究亮点

该工作在二维电荷转移 Mott 绝缘体 VOCl 中实现红外区非线性光学各向异性：在 1280 nm 激发下 THG 各向异性比 ρ_{THG} 达到187，并可在 2028 – 1280 nm 范围内连续调谐，实现高达 72 倍调控（如图1）。同时该材料呈现出层数无关的三阶非线性极化率 $\chi^{(3)} \approx 10 - 19 \text{ m}^2/\text{V}^2$ 与近层数无关的带隙 ($\approx 2 \text{ eV}$)，表明该Mott绝缘体极弱的层间耦合（如图2）。机制上，各向异性源于强关联驱动的p→d电荷转移与本征C3对称性破缺的协同作用，并获理论计算验证（如图1）。

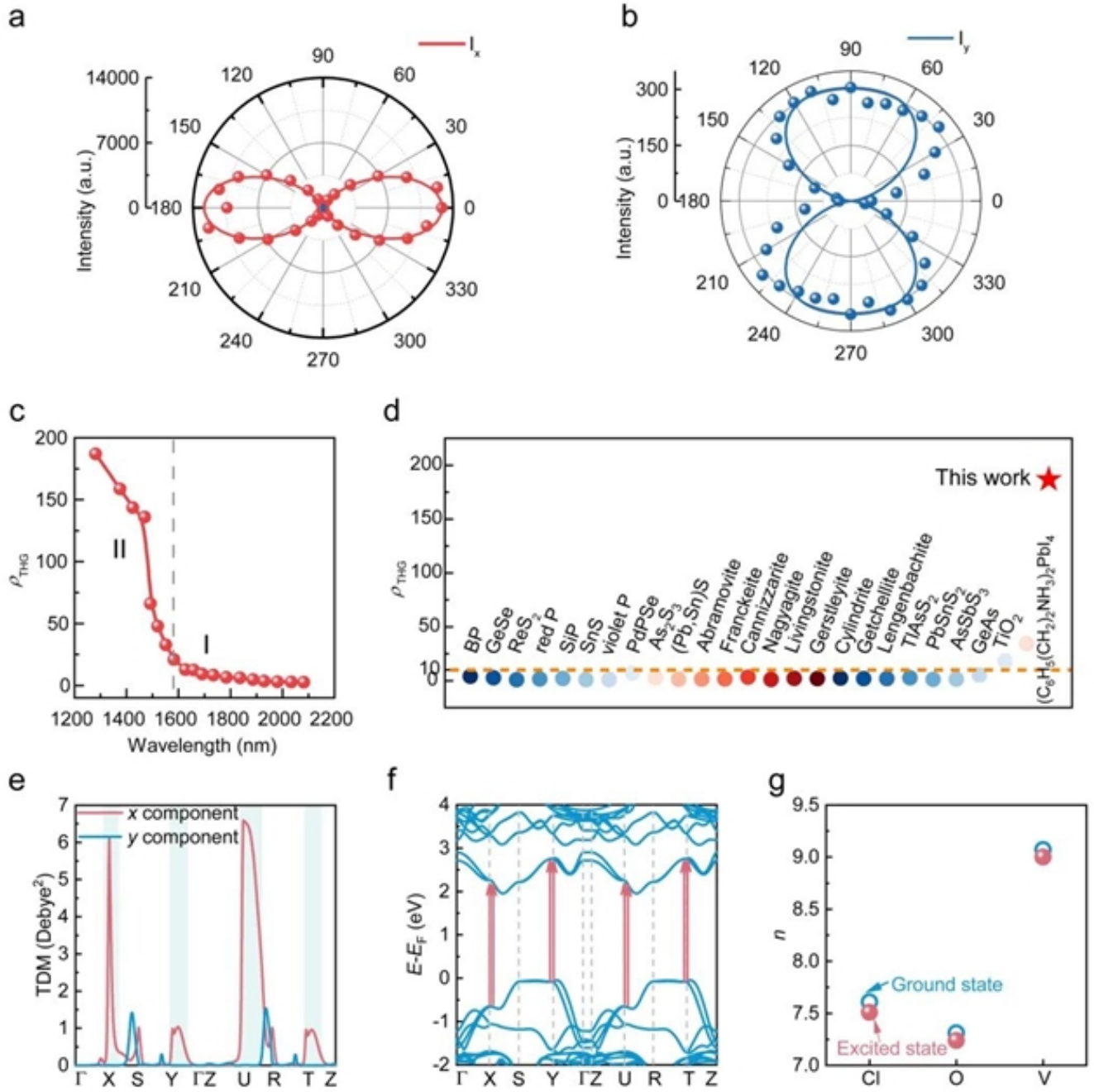


图1. (a, b) 1558 nm 激发偏振下的角度依赖 THG 光谱，其中 0° 对应 x 轴方向。红色（蓝色）点分别表示 THG 信号的 x (y) 分量。实线为理论拟合曲线，显示出巨大的 THG 各向异性；(c) 少层 VOCl₂ 薄片在不同激发波长下的 THG 各向异性比。在 1280 nm 激光激发下，最大各向异性比约为 187；(d) VOCl₂ 与其他材料的 THG 各向异性比对比；(e) 跃迁偶极矩在 x 与 y 方向的分量；(f) 对 THG 各向异性比有主要贡献的光学跃迁所在的高对称 k 点(X、Y、U、T)；(g) 基态与激发态在 V、O、Cl 原子上的电荷分布。

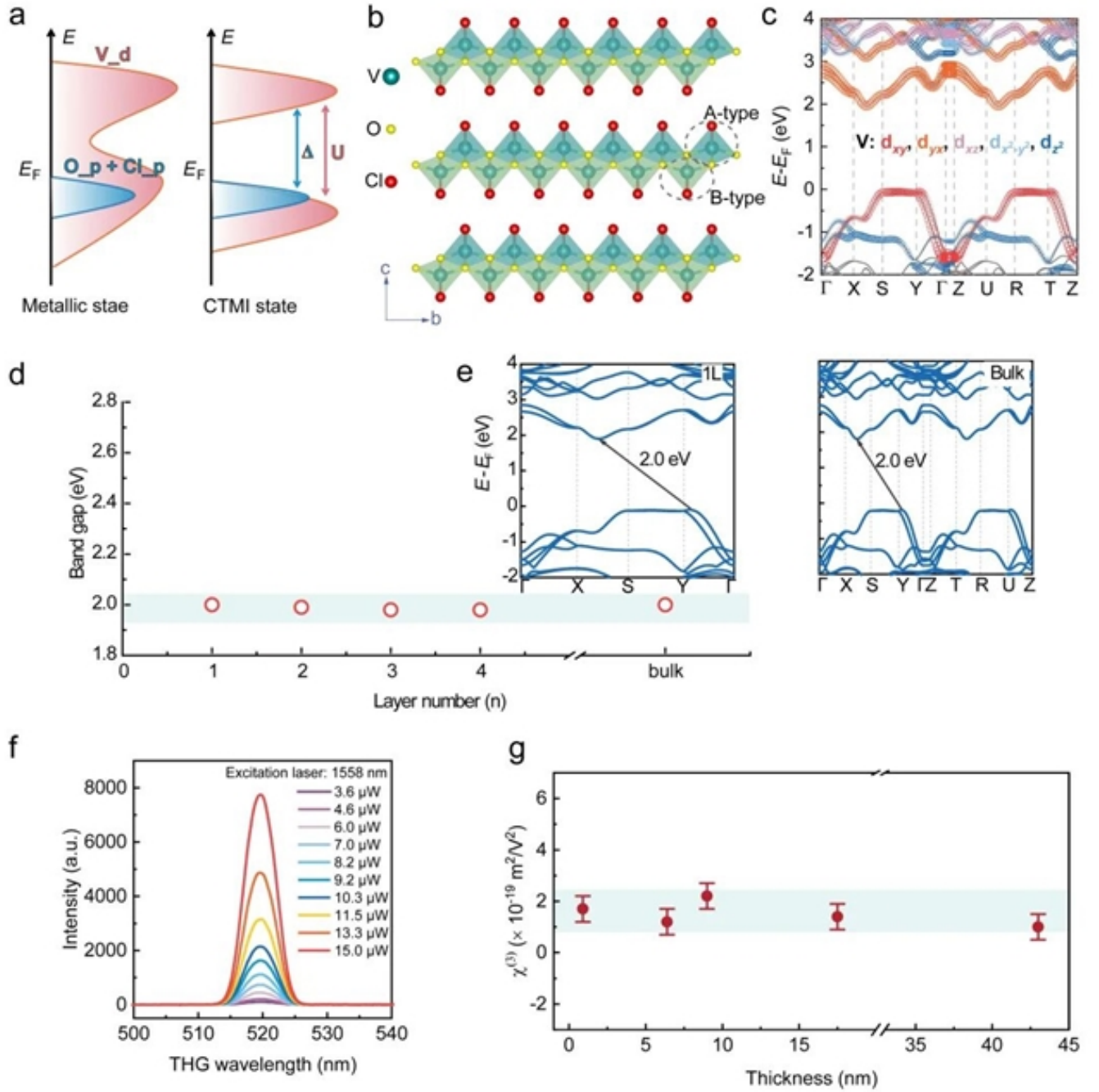


图2. (a) 采用 Hubbard-U 处理得到的电荷转移型莫特绝缘体状态示意图，其中 Δ 与 U 分别表示电荷转移能量和在位库仑能；(b) 二维 VOCl 沿 a 轴方向的晶体结构；(c) V 3d 轨道投影的能带结构图；(d) 层数依赖的带隙关系图；(e) 单层（左）和块体（右）VOCl 的电子结构图；(f) 在 1558 nm 激发下，THG 随激发强度变化的依赖关系；(g) 三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}$ 随厚度的变化关系。

总结与展望

莫特绝缘体因其独特的强关联电子行为而兼具优异的非线性光学响应。本研究在理论计算的指导下，系统探索了二维电荷转移型Mott绝缘体VOCl的非线性光学性质及其各向异性，发现强关联驱动的 $p \rightarrow d$ 电荷转移与材料本征的C3对称性破缺协同作用，使VOCl呈现出高非线性光学各向异

性。该成果不仅加深了人们对二维强关联电子材料光学机理的认识，也凸显了VOCl在偏振分束器、红外上转换探测器与超快激光器等器件中的应用潜力，有望引领新一代偏振工程化光子器件的发展，为二维材料与量子光子学的交叉研究带来新的机遇。南洋理工大学高级研究员段瑞焕博士、南京航空航天大学朱松教授与哈尔滨工业大学徐晓东博士为共同第一作者。（来源：LightScienceApplications微信公众号）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1038/s41377-025-02130-3>

特别声明：本文转载仅仅是出于传播信息的需要，并不意味着代表本网站观点或证实其内容的真实性；如其他媒体、网站或个人从本网站转载使用，须保留本网站注明的“来源”，并自负版权等法律责任；作者如果不希望被转载或者联系转载稿费事宜，请与我们联系。

作者：刘政等 来源：《光：科学与应用》

更多 科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](https://www.iikx.com)转发