腔耦合单个钙钛矿纳米晶产生的超快、高亮度量子发射体

Seongmoon Jun†、Joonyun Kim†、Minho Choi、Byungsu Kim、Jinu Park、Daehan Kim、Byungha Shin*、Yong-Hoon Cho*

†这些作者贡献相同。

Seongmoon Jun、Minho Choi、Byungsu Kim、Yong-Hoon Cho——韩国科学技术院（KAIST）物理系及纳米世纪研究院，韩国大田广域市儒城区大学路291号，邮编34141

Joonyun Kim、Jinu Park、Daehan Kim、Byungha Shin——韩国科学技术院（KAIST）材料科学与工程系，韩国大田广域市儒城区大学路291号，邮编34141

关键词

量子发射体，钙钛矿纳米晶，圆形布拉格光栅，珀塞尔效应，收集效率，亮度

摘要

钙钛矿纳米晶（NCs）因易于化学合成、光谱可调谐范围宽、复合速率快、可扩展性强且量子产率高，在实现单光子发射器方面日益受到关注。然而，将单个钙钛矿纳米晶集成到光子结构中仍未实现。我们成功地将基于两性离子配体的高稳定性单个 $CsPbBr_3$ 钙钛矿纳米晶与圆形布拉格光栅（CBG）耦合。CBG 内纳米晶的远场辐射图样呈现出朝向较小方位角的高方向性，这与模拟结果一致。由于收集效率提高，我们观察到亮度提升了 5.4 倍。此外，复合速率提高了 1.95 倍。本研究实现了超快（< 100 ps）单光子发射，并提升了钙钛矿纳米晶的亮度；这两项特性对于实际量子光学应用至关重要。

单光子源是新兴量子技术中的基础元件，例如量子通信[1], 量子增强计量[2], 和光学量子计算[3]。人们已研究多种系统以建立单光子源，包括自发参量下转换[4], 外延生长的量子点[5], 块体材料中的缺陷[6], 以及二维材料中的缺陷[7]。其中，无机铯铅卤化物 $CsPbX_3$ 钙钛矿纳米晶（NCs）是最有前景的单光子发射系统之一，这归功于其在可见光波长范围内具有宽广的波长可调性[8] 、易于合成，以及可通过溶液加工实现规模化制备。近期，研究人员还实现了室温下的单光子发射[9] 。此外，近期关于钙钛矿纳米晶的报告显示，由于缺陷陷阱减少[11,12]，胶体量子点（另一类著名的溶液加工量子发射体[10], ）应用中受到阻碍的闪烁效应得到了抑制。此外，钙钛矿纳米晶表现出长达 80 ps 的相干时间，展现了实现变换极限单光子发射[13]的可能性。尤其是，$CsPbBr_3$ 纳米晶的发射波长约为 530 nm，适用于水下量子通信[14]。

量子发射体的亮度是实际量子光学应用（例如量子通信）中的关键因素。量子发射体的亮度受物镜处的收集效率、量子产率和自发发射速率等因素影响。因此，可以采用两种方法来提高量子发射体的亮度。第一种方法是利用光子晶体[15], 分布式布拉格反射镜[16], 和等离激元腔[17], 等光子腔来增强自发发射速率，这对于实现不可区分的单光子发射也非常重要。在这一视角下，与其他量子发射体相比，钙钛矿纳米晶因其快速的发射速率而脱颖而出，这可归因于最低激子基态[18] 的明亮三重态特性[11]以及其较大的振子强度。因此，钙钛矿纳米晶具有优势，可以

即使通过与具有中等珀塞尔因子的腔耦合，也能实现超快单光子源。

第二种方法是通过集成光子结构来提高收集效率，包括圆形布拉格光栅（CBG）[19], 微透镜[20], 火箭结构[21], 和喇叭结构[22]。特别是，将钙钛矿纳米晶与光子结构集成至关重要，因为纳米晶的随机方向发射导致收集效率有限。迄今为止，已有关于集成钙钛矿纳米晶集合体与纳米束结构[23,24] 或等离激元晶体[25] 的报道。然而，这些研究仅涉及高密度钙钛矿纳米晶，且未报道单光子信号。因此，通过将单个钙钛矿纳米晶与光子结构集成，以提高单光子发射器的复合速率或收集效率，尚未实现。

为了将单个纳米晶集成到光子结构中，需要高度稀释的胶体纳米晶体系。然而，在纯化步骤中、稀释之前，广泛用于稳定胶体钙钛矿纳米晶的配体——油胺（OAm）和油酸（OA）——容易从纳米晶表面脱离[26]。OAm/OA 配体对在表面的结合不稳定，也会影响胶体纳米晶在稀释过程中的胶体稳定性。因此，研究发现，OAm/OA 封端的 $CsPbBr_3$ 纳米晶[27]在稀释后，其光致发光（PL）量子产率显著降低。为解决这一问题，研究人员合成了基于两性离子配体的卵磷脂封端 $CsPbBr_3$ 胶体纳米晶[27]，其在稀释后仍具有出色的胶体稳定性。

在本研究中，我们实现了两性离子配体包覆的 $CsPbBr_3$ 钙钛矿纳米晶与 CBG 结构的集成。CBG 结构备受关注，因为它不仅能提高复合速率，还能提高收集效率。CBG 也称为靶心结构，由多个周期性同心环组成，这些同心环可以

通过抑制光在平面内传播，提高法向方向的方向性，从而提升收集效率。此外，CBG 结构的品质因数（Q）相对较低，因此能在较宽的光谱带宽内提供适度的珀塞尔增强。我们采用有限差分时域（FDTD）方法设计了 CBG 结构，其设计波长为 530 nm，即 $CsPbBr_3$纳米晶在低温（10 K）下的发射波长。通过 FDTD 仿真，我们验证了波长为 530 nm 时的珀塞尔效应及收集效率增强。随后，我们根据设计尺寸制备了氮化硅（Si_3N_4）CBG 结构。为探究 CBG 的影响，我们比较了位于 CBG 内部和外部的纳米晶的发射。我们测量了 CBG 内外纳米晶的远场辐射图样。位于 CBG 内部的纳米晶表现出沿法向方向的高方向性发射，实验结果与仿真数据吻合良好。通过功率依赖的光致发光实验，我们测得纳米晶的饱和强度，以分析收集效率。收集效率提高了 5.4 倍。此外，我们进行了时间分辨光致发光实验，以确认复合速率的增强。辐射复合速率提高了 1.95 倍。进一步地，我们通过 Hanbury-Brown 和 Twiss（HBT）实验测量了二阶关联，以验证单光子发射。校正后的 $g^{(2)}(0)$ 值为 0.05，表明纳米晶发射的是量子光。因此，基于钙钛矿纳米晶的纳米光子结构展现出超快且明亮的发射特性，这些特性对于量子光学应用至关重要。这些与腔体集成的方法也有助于实现激光器和发光二极管等其他光学器件。

结果 样品描述

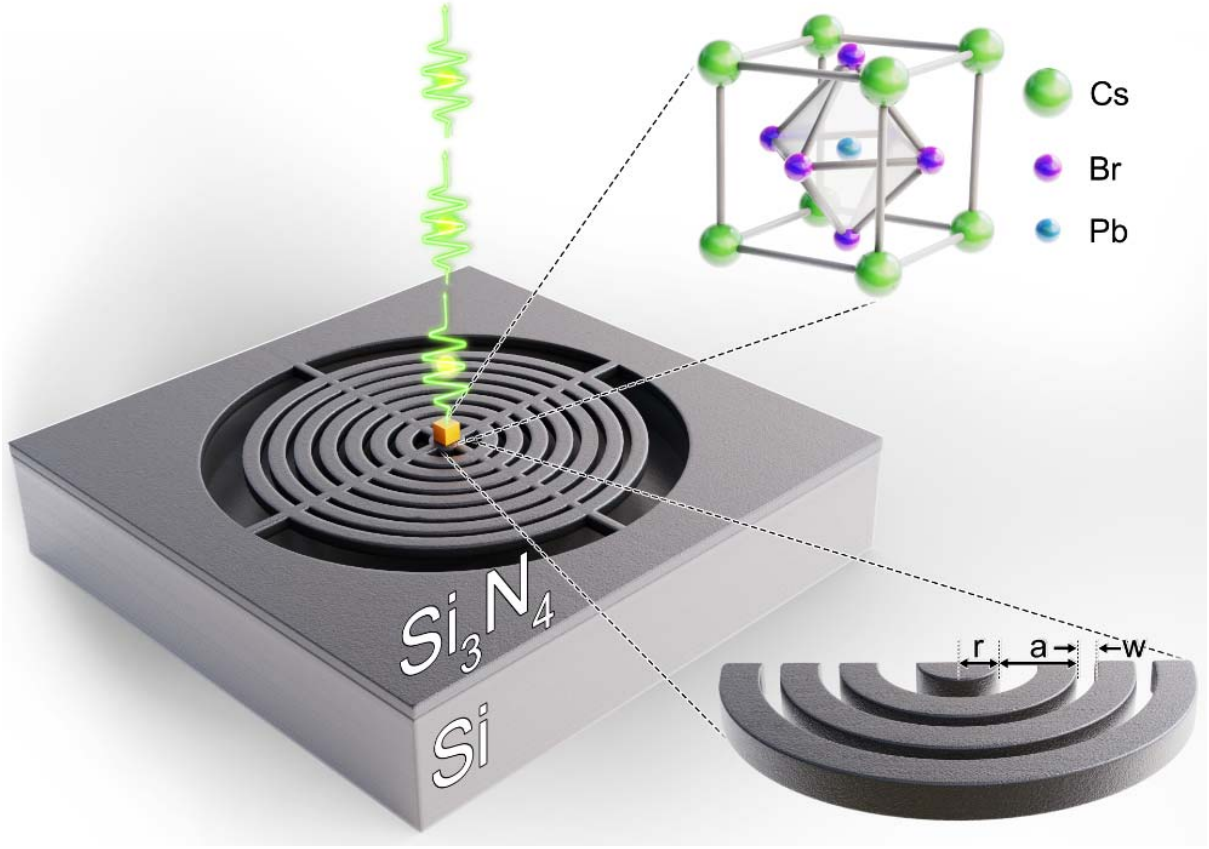

图 1 | S 实验概念示意图。 单光子发射的示意图 n

来自放置在 CBG上的单个$CsPbBr_3$ NC。CBG由硅上的 Si_3N_4 制成。通过控制三个参数（r、a、w）进行设计。

图 1 展示了 CBG 与单个钙钛矿纳米晶集成的示意图。用于制备 CBG 的材料为 Si_3N_4，它在可见光至近红外波长范围内具有较宽的透明窗口。此外，该材料与硅兼容，可利用高度成熟的互补金属氧化物半导体制造基础设施。为设计 CBG 的尺寸，我们采用了中心圆盘半径 (r)、环间沟槽宽度 (w) 和圆盘周期长度 (a) 作为参数。圆盘数量和厚度分别设为 8 个（图 S1）和 200 nm。通过调整这三个变量，利用 FDTD 优化了 530 nm 处的珀塞尔因子

计算。优化后的 CBG 尺寸为 r = 312 nm、w = 100 nm 和 a = 471nm。根据计算结果，制备了 Si_3N_4 CBG，并将钙钛矿纳米晶旋涂在 Si_3N_4 CBG 上。

裸钙钛矿纳米晶的光学表征

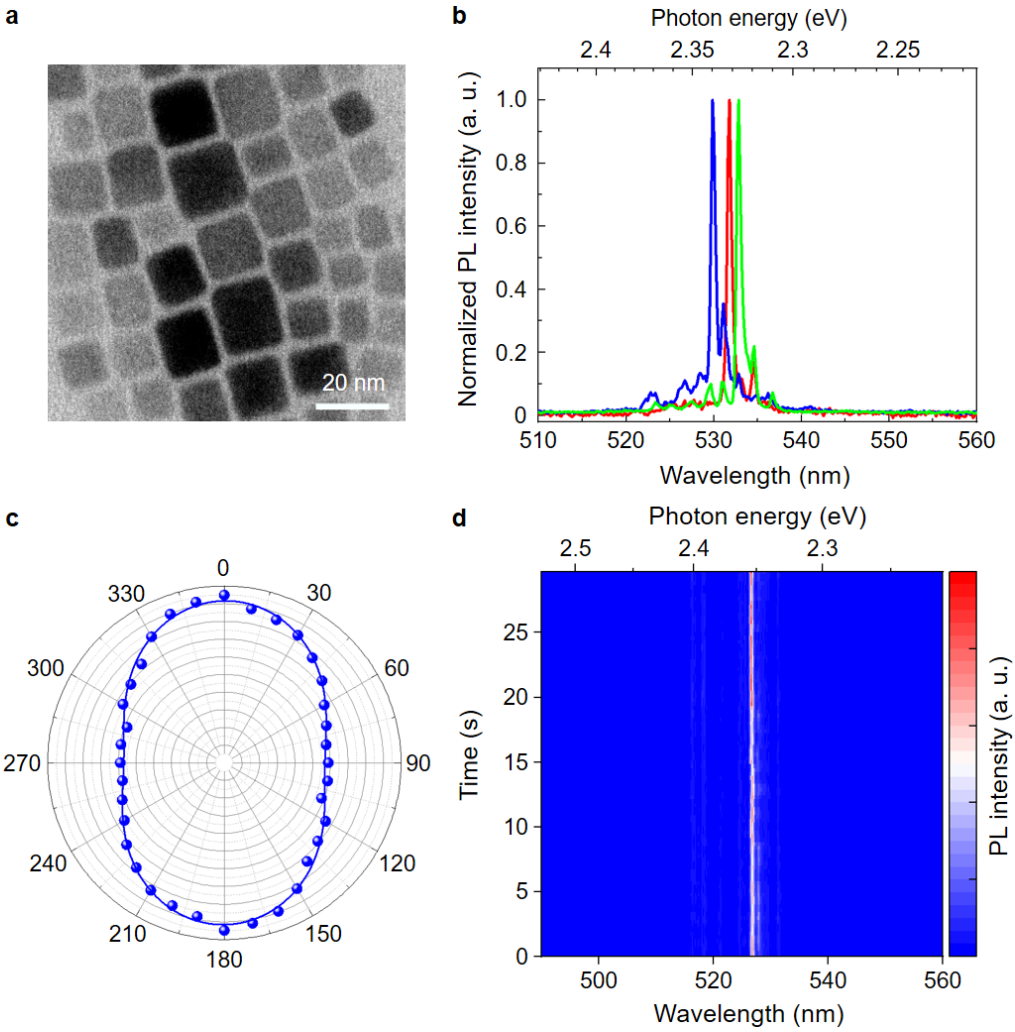

图 2 | 10 K下单个裸钙钛矿纳米晶的光学表征。a透射电子显微镜图像 o f 由两性离子配体包覆的 $CsPbBr_3$ 纳米晶。比例尺为 20 nm。**b**在 10K下，对SiO_2 基底上没有CBG 结构的三个不同单个裸钙钛矿纳米晶进行光致发光测量。在约 530 nm 的波长处观察到尖锐峰。**c**单个裸钙钛矿纳米晶的偏振依赖光致发光结果。该钙钛矿纳米晶表现出线偏振。

蓝线为拟合结果。**d**对单个裸钙钛矿纳米晶进行时长为30s的光致发光测量。分箱时间为 300 ms。未观察到带有暗态的闪烁效应。

图 2a 展示了两性离子配体封端的 $CsPbBr_3$ NCs 的透射电子显微镜（TEM）图像。与传统的油胺/油酸配体相比，基于两性离子配体的 CsPbBr3 纳米晶在纯化过程中以及胶体溶液稀释后均表现出更高的稳定性，这对于单光子发射体而言是理想的特性（图 S2、S3 和补充说明 1）。观察到尺寸约为 10 nm 的立方形纳米晶。为研究钙钛矿纳米晶与 CBG 集成前的光学性质，将钙钛矿纳米晶溶液旋涂到 SiO_2 基底上，并测量其光致发光光谱。图 2b 展示了 10 K 下三个未与 CBG 耦合的单个裸纳米晶的微区光致发光结果。观察到分布在 530 nm 附近的尖锐峰。图 2c 展示了单个钙钛矿纳米晶的偏振分辨光致发光。进行偏振分辨光致发光测量时，通过半波片调节发射光的偏振角，测量光致发光透过线偏振片后的透射强度随线偏振角的变化。纳米晶发出的线偏振光表明光致发光源自激子，因为带电激子发出的光为圆偏振[18]。由于旋涂纳米晶的激子发射具有随机取向的线偏振，且 CBG 因圆柱对称性而不具有偏振选择性，因此 CBG 是与纳米晶耦合的合适结构。如图 2d 所示，为研究是否存在闪烁效应，对光致发光进行了 30 秒测量。尽管峰值强度存在轻微波动，但未观察到与暗态相关的闪烁效应（图 S4）。

圆形布拉格光栅的仿真与制备

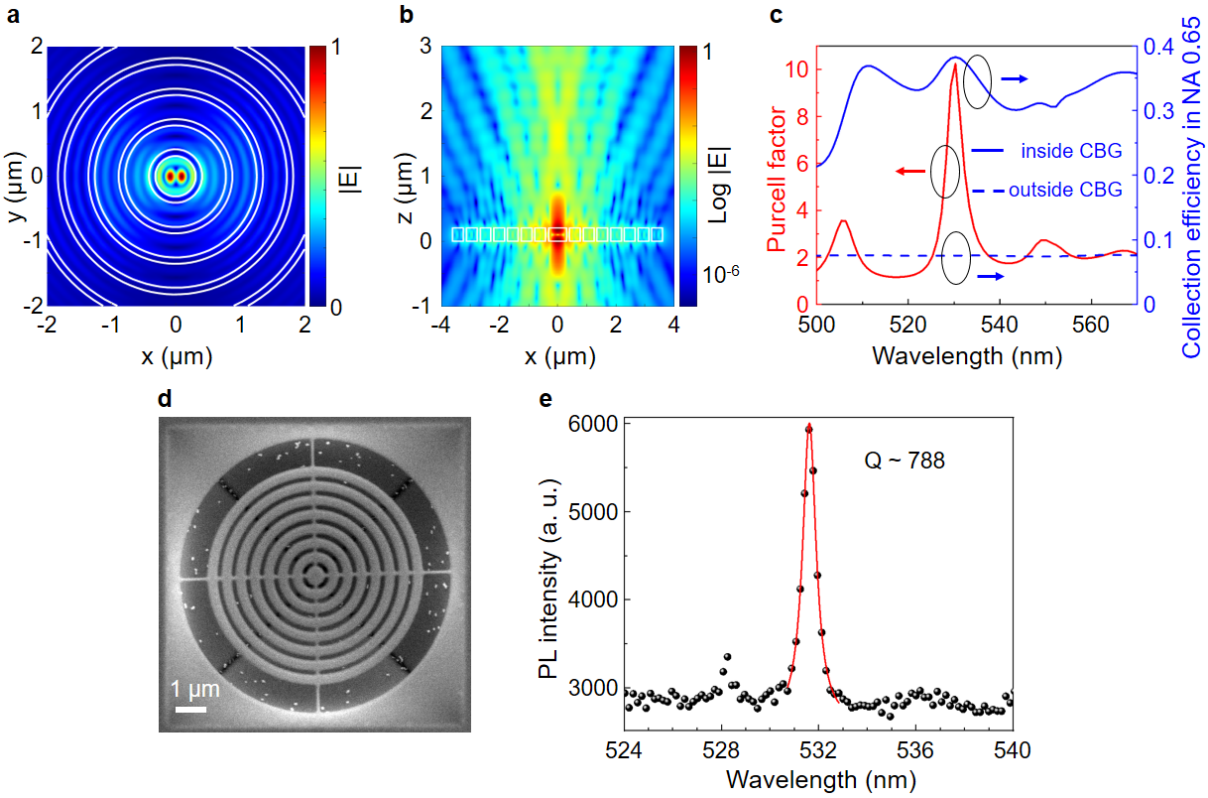

图 3 | CBG 的模拟与光学表征。a 电场强度

X-Y 平面中波长为 530 nm 处的分布。**b** X-Z 平面中 530 nm 处电场强度分布的对数图。**c** 模拟得到的珀塞尔因子（红色，左轴）和收集效率随波长的变化关系。收集效率以物镜为基准计算，物镜 NA 为 0.65，分别对应位于 CBG 内部（实线蓝色，右轴）和 CBG 外部（虚线蓝色，右轴）的偶极子。**d** CBG 结构的扫描电子显微镜图像。比例尺为 1 μm。**e** 裸 CBG 的光致发光光谱，其中包含本征 Si_3N_4 发射。CBG 模式峰位于 530 nm 附近。红线为模式峰的洛伦兹拟合曲线。

为研究 CBG 的光学性质，我们将单个偶极子置于 CBG 中心，并计算了电场分布。图 3a 显示了 X-Y 平面中的电场。氮化硅与空气界面处的折射率差异会使面内传播的光发生反射，从而在中心处产生强电场。

CBG的。因此，电场被限制在CBG的中心。此外，X-Z平面内的电场分布如图 3b所示。由于抑制了面内光传播，电场在面外方向上具有很高的方向性。图3c表示了计算得到的珀塞尔因子和收集效率随波长的变化关系。收集效率基于实验中使用的数值孔径（NA）为 0.65 的物镜进行计算。在实际应用中，收集物镜或光纤的 NA 值受到限制，因此，朝向有限 NA 的高方向性发射光对于提高收集效率十分重要。在波长为530 nm时，珀塞尔因子约为10。此外，发射光的收集效率从 CBG外部的7.54%提高到了 CBG内部的 38.3%。如果将金属层[28]或分布式布拉格反射镜用作底层，由于向下发射光的反射，收集效率可以提高约一倍。值得注意的是，尽管珀塞尔效应在狭窄的波长范围内实现，但收集效率的提升在相对较宽的波长范围内均有效。

在设计好 CBG 的尺寸后，采用电子束光刻和电感耦合等离子体反应离子刻蚀制备 CBG 结构。随后，通过氢氧化钾湿法刻蚀对硅进行底切，以形成悬空的 CBG 结构。图 3d 显示了所制备 CBG 结构的扫描电子显微镜（SEM）图像。为验证 CBG 的腔模，我们测量了 CBG 内部的光致发光光谱，如图 3e 所示。利用 Si_3N_4 中缺陷产生的宽带本征发射光来探测腔模。通过测量 CBG 结构的光致发光发射光，在约 530 nm 处观察到一个模式峰。所测腔模的品质因数为 788。此外，如具有本征 Si_3N_4 光致发光的映射结果所示（图 S5），CBG 内部 Si_3N_4 的光致发光强度相比 CBG 外部 Si_3N_4 的发射光有所增强。

本征 Si_3N_4 光致发光强度的增强源于收集效率的提高。

远场图样

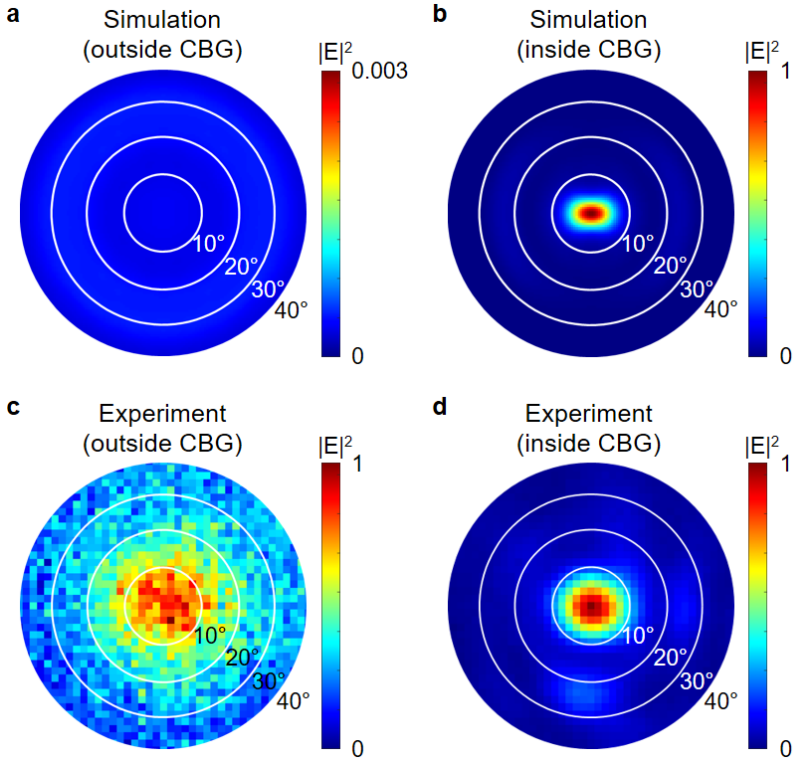

图 4 | 通过模拟和光学测量获得的远场图样。模拟的远场图样 d

偶极子位于 CBG **a** 外部和 CBG **b** 内部时，测得的辐射图样（角度范围为 ±40°）。CBG 外部图中的最大强度为 0.003，并以 CBG 内部图中的最大强度为归一化基准。钙钛矿纳米晶位于 CBG **c** 外部和 CBG **d** 内部时，测得的远场辐射图样（角度范围为 ±40°）。图 c 和 d 分别以各自结果中的最大强度进行归一化。

为测量 CBG 结构对发射体发射方向性的影响，我们计算并测量了 CBG 内部和外部单个钙钛矿纳米晶的远场辐射图样。图4a和图4b分别展示了单个

位于 CBG 外部和内部的钙钛矿纳米晶的模拟远场方向图。由于 NA 0.65 的物镜可收集角度最大为 40.54° 的发射光，我们将远场方向图可视化至 40°。CBG 外部纳米晶的远场发射光向各个角度扩散。相比之下，如图4b所示，我们确保 CBG 内部纳米晶的远场发射图样具有高度方向性，发射角低于 10°。随后，我们进行了微区光致发光实验，以测量远场方向图。为了耦合单个钙钛矿纳米晶与 CBG，我们沉积了 3 nm 的 Al_2O_3 ，并将稀释后的钙钛矿纳米晶旋涂到制备好的 CBG 结构上。样品被装载到低振动低温恒温器中，以进行低温测量。此外，还使用三轴压电台对样品位置进行高精度移动。由波长可调谐钛宝石波长可调谐脉冲激光器通过二次谐波产生得到的 405 nm 脉冲激光，被用作激发激光。通过监测样品图像，获得了 CBG 内部单个钙钛矿纳米晶的光致发光光谱。此外，还测量了 CBG 外部的钙钛矿纳米晶以进行比较。图4c和图4d分别展示了 CBG 外部和内部单个钙钛矿纳米晶的实验远场发射结果。CBG 内部纳米晶的远场辐射图样实验结果（光谱见图 S6）显示出向低角度高度定向的发射光。该结果与计算结果高度吻合。因此，我们可以将测得的远场方向图视为钙钛矿纳米晶与 CBG 结构发生耦合的证据。

收集效率和寿命的提升

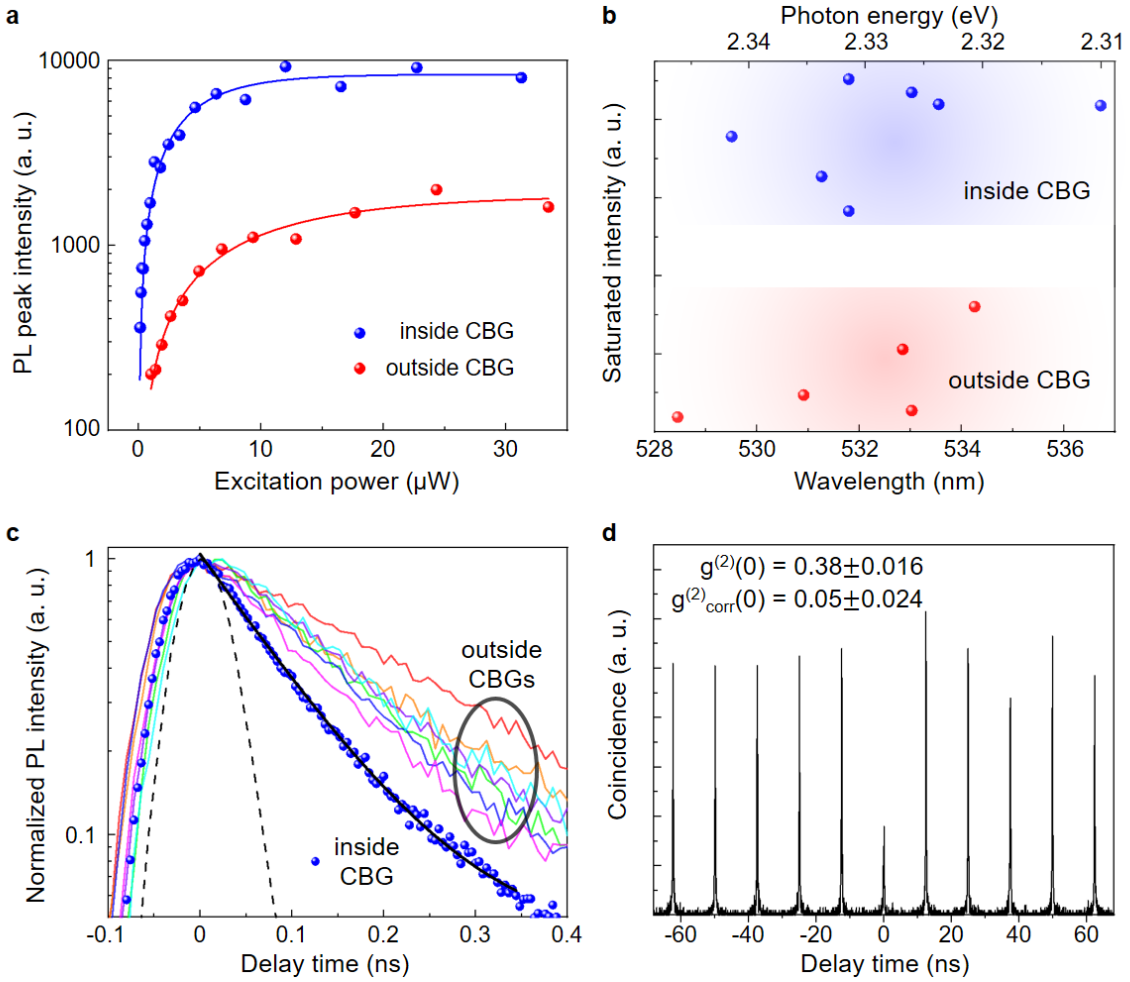

图 5 | C　CBG 内外单个纳米晶的表征。a 功率依赖性　　t

CBG 内（蓝色圆圈）和 CBG 外（红色圆圈）单个钙钛矿纳米晶的光致发光结果。红线和蓝线表示拟合曲线。**b** CBG 内（蓝色圆圈）和 CBG 外（红色圆圈）多个单个纳米晶的饱和强度和波长。平均饱和强度提升了 5.4 倍。**c** CBG 内钙钛矿纳米晶（蓝色圆点）和 CBG 外纳米晶（彩色实线）的时间分辨光致发光结果。蓝线是 CBG 内纳米晶的单指数拟合曲线。黑色虚线表示仪器响应函数。**d** CBG 内单个钙钛矿纳米晶发射光的二阶关联函数。测得的 $g^{(2)}(0)$ 值为 0.38，背景校正后的 $g^{(2)}_{corr}(0)$ 值为 0.05。

为研究收集效率和寿命的提升，我们分别在 10 K 下进行了功率依赖光致发光和时间分辨光致发光测量。图 5a 展示了 CBG 内单个钙钛矿纳米晶（与图4d中的纳米晶相同，光谱见图 S6）和 CBG 外单个钙钛矿纳米晶的功率依赖光致发光强度。对于两种纳米晶，在低功率范围内，强度均随激发功率线性增加。然而，在高功率范围内则出现饱和行为，因为单个二能级系统无法同时发射两个以上的光子。功率依赖强度结果采用以下方程进行拟合：

$$I = I_{\infty}\left(1 - e^{-\frac{P}{P_{Sat}}}\right),$$

其中，I 为量子点的强度，I_{∞} 为量子点的饱和强度，P 为激光的泵浦功率，P_{sat} 为饱和泵浦功率。CBG 内部和外部 NC 的饱和强度分别为 8397± 335 和1869 ± 148 。为确保饱和强度的增加在其他 NC 中同样成立，我们对多个 NC 发射体进行了功率依赖的光致发光测量。图 5b 展示了 CBG 内部和外部多个发射体的饱和强度。CBG 内部和外部发射体的平均饱和强度分别为7755 ± 1240 和1439 ± 1201。由于我们采用脉冲激光激发，发射体的复合速率不会影响饱和强度。测得的饱和强度仅取决于发射体的收集效率。因此，与 CBG 外部 NC 相比，CBG 内部 NC 饱和强度的增加源于其与 CBG 的耦合效应。由此值得注意的是，由于收集效率提高，CBG 内部 NC 的饱和强度增强了 5.4 倍。此外，饱和强度的增强对 CBG 内部的所有 NC 均有效。这意味着，无论位置和发射光波长存在何种轻微变化，收集效率都能够得到增强

NC。图 5c 展示了 CBG 内部和外部 NC 的时间分辨发射衰减。我们测量了 CBG 外部七个发射体的时间衰减。每个衰减函数均采用如下单指数函数进行拟合：

$$I = I_0 e^{-\frac{t}{\tau}} + y_0,$$

其中，I 表示随时间变化的光子计数，I_0 表示最大光子计数，t 表示延迟时间，τ 表示寿命，y_0 表示背景光子计数。CBG 外发光体的平均寿命为 175.1± 54.6 ps。对于 CBG 内的钙钛矿纳米晶（与图4d 中相同的纳米晶，其光谱见图 S6），衰减函数同样用单指数函数拟合，得到的寿命为 89.9 ps（图5c）。观察到只有少数 CBG 内的纳米晶比 CBG 外的纳米晶具有更快的时间衰减。我们推断，并非所有 CBG 内的纳米晶都会受到珀塞尔效应的影响，这是因为珀塞尔效应的波长范围相对较窄（光谱失配），且纳米晶的位置分布随机（空间失配）。尽管如此，图5c 中测得的 CBG 内纳米晶的复合速率比 CBG 外纳米晶的平均复合速率提高了 1.95 倍。为确认纳米晶的发射光属于单光子发射，我们进行了 HBT 实验。图5d 显示了与图4d 中相同纳米晶的发射光的二阶自相关函数。由于采用了脉冲激光激发，相邻符合峰之间的周期为 12.5 ns，即激发激光的时间间隔。$g^{(2)}(0)$ 值通过将零延迟处的积分符合计数除以 10 个峰的平均积分计数计算得出，这 10 个峰包括零延迟两侧各五个峰。测得纳米晶的 $g^{(2)}(0)$ 值为 0.38 ± 0.016。对于理想的单光子源，由于多光子事件受到抑制，$g^{(2)}(0)$ 值为零。然而，由于非相关发射（例如衬底背景发射以及测量纳米晶附近其他纳米晶的发射），$g^{(2)}(0)$ 值可能不为零。

在我们的实验中，较高的 $g^{(2)}(0)$ 值可能源于 Si_3N_4 的背景发射；我们可以通过以下方程[29]校正 $g^{(2)}(0)$ 值：

$$1 - g^{(2)}(0) = \rho^2 \left(1 - g^{(2)}_{corr}(0)\right),$$

其中，ρ 是信噪比，$g^{(2)}_{corr}(0)$是校正后的二阶关联值。因此，通过使用从光谱中获得的 ρ （图 S6），校正后的$g^{(2)}_{corr}(0)$ 为 0.05± 0.024。事实上，为了排除衬底背景发射的影响，我们在硅衬底上的钙钛矿纳米晶上进行了 HBT 实验，并获得了足够低的测量 $g^{(2)}(0)$ 值（图 S7）。

讨论

我们从腔耦合单个钙钛矿纳米晶中获得了明显的反聚束行为，但 Si_3N_4 的背景发射仍会导致单光子纯度低于硅基底上的裸单个钙钛矿纳米晶（图 S7）。在此，我们可以通过准共振激发[30], 共振激发[31], 和纳米级聚焦针孔[32]等技术，进一步降低 $g^{(2)}(0)$ 值。同时，本研究中的珀塞尔增强为 1.95。这种中等程度的珀塞尔增强可能源于钙钛矿纳米晶与腔模位置之间的轻微偏差，因为钙钛矿纳米晶是随机分布的。可通过在 CBG 中心使用纳米口袋[33] 来解决这一问题，从而实现纳米晶与 CBG 的确定性集成。纳米级光学定位[19] 方法也能提高纳米晶与 CBG 之间的耦合效率。本研究采用底切刻蚀来获得独立悬空的 CBG 结构。然而，在 CBG 下方使用金属层[28]可增强反射，从而提高发射体的收集效率。

将钙钛矿纳米晶量子发射体与 CBG 集成，在需要与光纤耦合[34] 的应用场景中可能具有优势，因为高方向性对于

与光纤有效耦合至关重要。值得一提的是，我们实现了超快单光子发射，发射时间短于 100 ps。然而，我们的钙钛矿纳米晶表现出略微展宽的线宽，这归因于声子诱导展宽，或光谱扩散造成的非均匀展宽。尽管如此，如果能够合成窄线宽纳米晶，则可利用 CBG 提供的珀塞尔增强实现变换极限发射。此外，为获得更高的珀塞尔增强，还可探索将钙钛矿纳米晶与其他类型的腔集成，例如光子晶体腔和等离激元蝴蝶结腔[35] 。此外，在未来的工作中，可将钙钛矿纳米晶与微透镜或喇叭结构等光子结构耦合，以提高收集效率。

总之，我们成功地将基于高度稳定的单一两性离子配体的 $CsPbBr_3$ 钙钛矿纳米晶与 CBG 结构耦合，实现了超快（< 100 ps）单光子发射，并使亮度提升了 5.4 倍。亮度的显著提升将有助于钙钛矿纳米晶成为量子光子技术中可靠且有价值的单光子源。

方法

油胺/油酸封端的 $CsPbBr_3$ 纳米晶的制备

按照先前报道[26] 的方法并稍作修改，合成了由 OAm/OA 封端的 $CsPbBr_3$ 纳米晶。纯化时，将粗溶液以 10000 rpm 离心 5 min，并将沉淀分散在 300 μL 己烷中。随后，再将分散液以 10000 rpm 离心 3 min，并弃去沉淀。此外，加入 300 μL 己烷和 1.2 mL 乙酸乙酯，再以 10000 rpm 离心 5 min。收集沉淀，并将其分散于 0.5 mL 甲苯中。随后再进行一次纯化：向胶体溶液中加入 1 mL 乙酸乙酯，以 10000 rpm 离心 5 min，然后将沉淀分散于 0.5 mL 甲苯中。

两性离子配体封端的 $CsPbBr_3$ 纳米晶的制备

两性离子配体封端的 $CsPbBr_3$ 纳米晶的合成方案参照先前报道[27]进行。 纯化时，向粗溶液中加入丙酮，体积比为 2:1，并以 10000 rpm 离心 10 min。将沉淀分散在 10 mL 甲苯中，再按 2:1 的体积比向溶液中加入丙酮，并以 10000 rpm 再次离心 3 min。重复纯化步骤两次，最后将沉淀分散在 2 mL 甲苯中。

数值模拟

使用商业软件（Ansys、LumericalFDTD）进行FDTD 数值模拟。Si_3N_4 的折射率通过椭偏仪测量，并在模拟中使用这些测量值。在模拟中，单个偶极子位于 CBG 中心上方5 nm 处。场监视器位于 X-Y 平面和 X-Z 平面，并穿过

CBG中心用于记录电场。通过使用CBG 上方的监视器并进行近场到远场投影，可以获得远场方向图。收集效率计算为远场数据中功率积分与单个偶极子的总辐射功率之比。珀塞尔因子计算为 CBG 中心偶极子的辐射功率与真空中偶极子的辐射功率之比。

CBG制备

CBG结构采用在硅基底上沉积的200 nm厚低压化学气相沉积Si_3N_4 制备。CBG图案通过电子束光刻和正性电子束抗蚀剂进行制作。随后，在140 °C下烘烤10分钟。通过电感耦合等离子体反应离子刻蚀，按照电子束光刻图案刻蚀Si_3N_4 层。使用丙酮去除电子束抗蚀剂。最后，在80°C条件下使用氢氧化钾刻蚀硅10分钟，以形成底切。

透射电子显微镜和扫描电子显微镜

使用JEOL JEM-3010显微镜在200 kV下采集透射电子显微镜图像。使用FEI XL30观察扫描电子显微镜图像。

单个钙钛矿纳米晶表征

我们采用波长可调飞秒脉冲激光器（钛宝石），脉冲宽度为 200 fs、重复频率为 80 MHz，作为激发激光。激发激光的波长为 405 nm，由波长为 810 nm 的激光经二次谐波产生获得。为在低温条件下激发单个钙钛矿纳米晶，我们使用了低振动闭循环液氦低温恒温器（Montana Instruments）。显微镜

物镜（Mitutoyo；50 倍；数值孔径为 0.65）用于将激光聚焦到钙钛矿纳米晶上，并收集同一纳米晶的发射光。收集到的光致发光光谱采用高分辨率单色仪（Princeton Instruments，SP2750）和电荷耦合器件探测器进行分析。为测量偏振分辨光致发光，我们调节固定线偏振片前半波片的角度。通过测量发射光在动量空间中的分布，获得远场辐射图样。此处使用带通滤光片进行光谱滤波。使用雪崩光电二极管（APD）（ID Quantique；ID100；时间分辨率为 40 ps）和时间相关单光子计数系统（Picoquant；Picoharp 300）观测时间分辨光致发光。我们采用 HBT 实验装置测量二阶自相关，该装置包括一个 50:50分束器和两个 APD。此外，两个 APD 连接至时间相关单光子计数系统，以获得符合直方图，显示两个 APD 探测到的光子之间的延迟时间。我们还在二阶关联测量中采用了带宽约为 0.7 nm 的光谱滤波。

数据可用性

支持本研究发现的数据可应合理请求向通讯作者索取。

参考文献

1. Bhaskar, M. K. 等. 实验演示记忆增强型量子通信. Nature **580**, 60-64 (2020). 2. Slussarenko, S. 等. 光子量子计量中无条件突破散粒噪声极限. Nat. Photonics **11**, 700-703 (2017). 3. Knill, E., Laflamme, R. & Milburn, G. J. 一种利用线性光学实现高效量子计算的方案. Nature **409**, 46-52 (2001). 4. Jin, B., Mishra, D. & Argyropoulos, C. 非线性等离激元超表面中自发参量下转换实现高效单光子对生成. Nanoscale **13**, 19903-19914 (2021). 5. Wang, H. 等. 朝向偏振微腔的最优单光子源. Nat. Photonics **13**, 770-775 (2019). 6. Marseglia, L. 等. 基于金刚石中 SiV 中心的明亮纳米线单光子源. Opt Express **26**, 80-89 (2018). 7. Koperski, M. 等. 剥离 WSe2 结构中的单光子发射体. Nat. Nanotechnol. **10**, 503-506 (2015). 8. Kovalenko, M. V., Protesescu, L. & Bodnarchuk, M. I. 铅卤化物钙钛矿纳米晶的性质及其潜在光电子应用. Science **358**, 745-750 (2017). 9. Park, Y.-S., Guo, S., Makarov, N. S. & Klimov, V. I. 个体钙钛矿量子点的室温单光子发射. ACS Nano **9**, 10386-10393 (2015). 10. Morozov, S. 等. 高度带电的个体胶体量子点中单光子发射的电学控制. Sci. Adv. **6**, eabb1821 (2020). 11. Raino, G. 等. 低温下的单个铯铅卤化物钙钛矿纳米晶：快速单光子发射、闪烁减弱与激子精细结构. ACS Nano **10**, 2485-2490 (2016). 12. Hu, F. 等. 无光谱扩散的非闪烁钙钛矿纳米晶中带电激子的缓慢俄歇复合. Nano Lett. **16**, 6425-6430 (2016). 13. Utzat, H. 等. 胶体铅卤化物钙钛矿量子点的相干单光子发射. Science **363**, 1068-1072 (2019). 14. Li, D.-D. 等. 海水信道量子密钥分发的原理验证：迈向天地间水下量子通信. Optics Communications **452**, 220-226 (2019). 15. Froch, J. E. 等. 六方氮化硼量子发射体与光子晶体腔的耦合. ACS Nano **14**, 7085-7091 (2020). 16. Wang, H. 等. 来自高效固态量子发射体的近变换极限单光子. Phys. Rev. Lett. **116**, 213601 (2016). 17. Luo, Y. 等. 单层 WSe2 中位点可控量子发射体与等离激元纳米腔的确定性耦合. Nat. Nanotechnol. **13**, 1137-1142 (2018). 18. Becker, M. A. 等. 铯铅卤化物钙钛矿中的明亮三重态激子. Nature **553**, 189-193 (2018). 19. Sapienza, L., Davanco, M., Badolato, A. & Srinivasan, K. 用于明亮且纯净单光子发射的单个量子点纳米级光学定位. Nat. Commun. **6**, 7833 (2015). 20. Gschrey, M. 等. 利用三维原位电子束光刻制作的确定性量子点微透镜产生高度不可区分的光子. Nat. Commun. **6**, 7662 (2015).

21. Choi, M.、Kim, S.、Choi, S. 和 Cho, Y.-H. 通过位点选择性自下而上的方法生长光子火箭结构：一种具有方向性和类高斯特性的量子发射体平台。《应用物理学快报》**119**，134001（2021）。22. Sun, X. 等。基于位点受控光学喇叭结构中 InGaN 量子点的单光子源。《应用物理学快报》**115**，022101（2019）。23. Fong, C. F. 等。氮化硅纳米梁增强全无机钙钛矿纳米晶的发射光。《光学快报》**27**，18673-18682（2019）。24. He, Z. 等。基于钙钛矿–SiN 混合集成的 CMOS 兼容高性能纳米激光。《先进光学材料》**8**（2020）。25. Li, H. 等。与等离激元晶体耦合的钙钛矿量子点的 Purcell 增强自发发射。《物理化学杂志 C》**123**，25359-25365（2019）。26. De Roo, J. 等。溴化铯铅钙钛矿纳米晶中高度动态的配体结合和光吸收系数。《ACS 纳米》**10**，2071-2081（2016）。27. Krieg, F. 等。使用天然卵磷脂作为封端配体制备稳定的超浓和超稀 CsPbX3（X= Cl、Br）纳米晶胶体。《美国化学学会杂志》**141**，19839-19849（2019）。28. Barbiero, A. 等。基于电驱动圆形布拉格光栅的高效半导体量子光源设计研究，工作于电信 C 波段。《光学快报》**30**，10919-10928（2022）。29. Holmes, M. J.、Kako, S.、Choi, K.、Arita, M. 和 Arakawa, Y. 350 K 热固态发射体产生的单光子。《ACS 光子学》**3**，543-546（2016）。30. Jun, S. 等。通过偏振控制的准共振激发增强 III-氮化物量子点的单光子纯度和相干性。《Small》**19**，e2205229（2023）。31. Makhonin, M. N. 等。来自片上量子发射体的波导耦合共振荧光。《纳米快报》**14**，6997-7002（2014）。32. Choi, M. 等。通过聚焦离子束诱导的发光猝灭实现高纯度量子发射体的纳米尺度聚焦光斑。《ACS 纳米》**15**，11317-11325（2021）。33. Fröch, J. E. 等。带有纳米凹袋的光子纳米梁腔，用于高效集成荧光纳米颗粒。《纳米快报》**20**，2784-2790（2020）。34. Jeon, W. B. 等。即插即用单光子器件及高效光纤–量子点接口。《先进量子技术》**5**，2200022（2022）。35. Luo, Y. 等。与等离激元纳米腔耦合的碳纳米管激子的 Purcell 增强量子产率。《自然通信》**8**，1413（2017）。

致谢

本研究得到韩国政府国家研究基金会（2022R1A2B5B03002560 和 2020M3E4A1080112）以及信息与通信技术规划评估研究院（2020-0-00841）的支持。

作者贡献

S.J.、J.K.和 M.C设计了实验。S.J. 和B.K.进行了光学表征。J.K.、J.P.和B.S.合成了钙钛矿纳米晶。D. K. 进行了纳米晶表征（透射电子显微镜）。S.J.、J.K.和 Y.-H.C 撰写了稿件。Y.-H.C 构思并监督了该项目。所有作者都讨论了研究结果，并对稿件提出了意见。

利益冲突

作者声明不存在任何利益冲突。

补充信息

补充材料 可用

通讯及材料索取请联系 B. S 或 Y.-H.C.