arXiv:2601.02317v1 [physics.optics] 5 Jan 2026

可调谐高纯度单光子发射体的机制与机遇：杂化钙钛矿综述及明亮压缩真空的前景

Galy Yang[1], Eric Ashallay[2], Abolfazl Bayat[2],王志明[2],和 Arup Neogi*[1,2]

[1]电子科技大学格拉斯哥学院，电子科技大学，中国成都 610054[2]电子科技大学基础与前沿科学研究院，电子科技大学，中国成都 610054

2026年1月6日

摘要

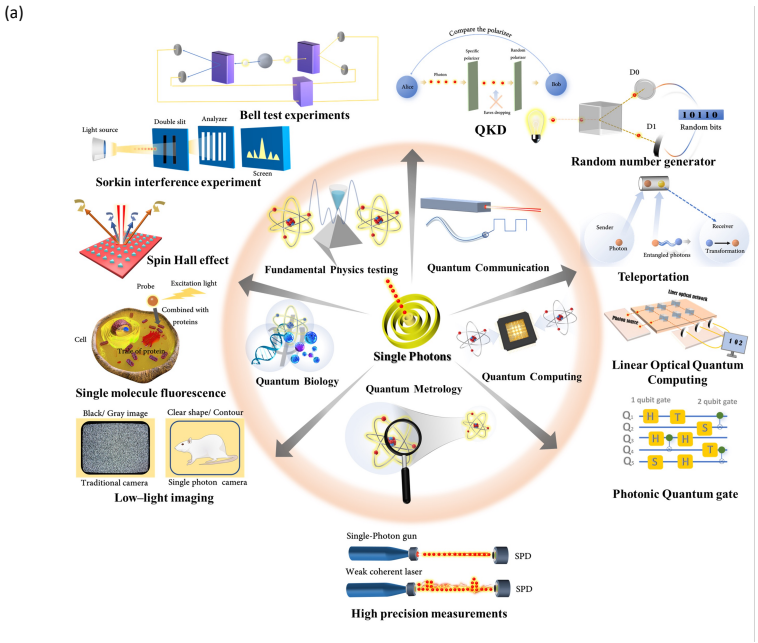
单光子发射体（SPE）是量子通信、计算和计量学的核心，但其发展仍受纯度、不可区分性和可调谐性之间权衡的限制。本文综述基于机制对单光子发射体进行分类，并提供一个以物理学为导向的框架，以阐明传统光源（包括量子发射体和非线性光学过程）的性能局限。本文特别关注有机–无机杂化钙钛矿量子点（HOIP QDs），这类材料可实现尺寸和组成可调的发射，具有窄线宽并可在室温下运行。通过比较物理机制和性能指标，我们展示了杂化有机-无机钙钛矿量子点如何克服现有单光子发射体平台的关键局限。鉴于当前确定性光源存在的限制，我们提出一个性能框架，以指导可扩展单光子发射体的开发；同时考察明亮压缩真空态（BSV）的理论潜力，并探讨 BSV 机制如何成为一种有前景的途径，在传统预示方案之外实现可复用、高纯度的光子生成。最后，本文概述了将基于 HOIP 和 BSV 的理念融入可扩展量子光子架构的未来方向。

1 引言

Quantum系统推动了通信、计算、成像和光谱学领域的近期重大进展，而光子学与量子光学的发展更是加速了这一进程 [1–4]。这些量子系统要高效运行，离不开高纯度光源。单光子（光的基本量子）的固有特性，例如自旋，使信息编码成为可能，并已成为现代量子硬件不可或缺的组成部分 [5–8]。与经典光源不同，单光子发射器（SPE）在每次激发事件中都能精确地产生一个光子，从而确保高纯度。理想情况下，这些光源还应具有很高的不可区分性，这对量子干涉至关重要。它们与环境的相互作用极弱，因此能够在长距离传输中保持稳定，也更易于操控 [5, 9]。这些特性是多种量子应用的基础，包括量子密钥分发（QKD）、量子网络和可扩展量子计算应用，如图所示。1(a) [5, 10–14]。要实现具有光谱可控性的高纯度、按需单光子发射，仍是推进可扩展量子网络发展的一项关键挑战。在已探索的各种单光子发射平台中，新兴的钙钛矿系统因其发射特性可调而备受关注。

与此同时，半导体和超导探测器的发展也使得在各种波长范围内进行高分辨率探测成为可能，尤其是在中红外区域，优化光谱响应与噪声之间的平衡仍至关重要 [11, 12, 15–17]。有关探测技术的深入探讨，请参阅现有综述 [7, 15–17]。

*通讯作者：arup@uestc.edu.cn



(b)

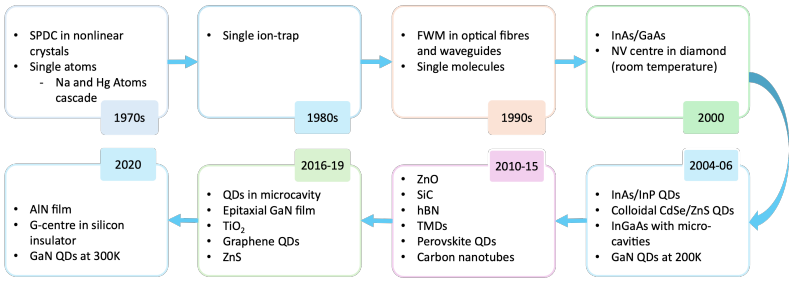


图1：单光子源的应用与发展。(a) 单光子具有不可分割性、低退相干、快速传输速度和纠缠能力，并且可以处于多种状态的叠加态，因此在量子通信、计算、计量学、生物学和基础物理学测试等先进应用中极具吸引力。(b) 突显单光子发射器技术关键进展的时间线。

1.1 单光子发射器技术的演变

过去十年间，光学、纳米物理学、化学和材料科学领域涌现出多种开发单光子发射器的方法[5, 6, 18, 19]。图1（b）展示了自20世纪70年代以来固态和非固态单光子发射器的发展历程。鉴于单光子的概念源于量子物理学，早期的许多方法本质上具有概率性，对光子发射的控制能力有限。与确定性光源相比，这些方法通常采用更简单的实验装置 [20]。

最早的概率性技术之一——自发参量下转换（SPDC）于1967年得到展示，此后被广泛应用于实验装置中 [21]。SPDC将入射光子束转换为成对的光子，即信号光子和闲置光子，并将其分布于两个空间上彼此不同的模式中。通过实施门控机制，可以对这些光束进行滤波，使其用作单光子源。自发参量下转换在21世纪初成为单光子产生的主导机制，至今仍被广泛采用[22–25]。其他概率源，包括原子荧光和原子蒸气，早于确定性技术出现，通常涉及光与块体介质相互作用，同时配合探测系统对预示光子进行探测 [20, 26]。

然而，概率型单光子发射器固有的不可预测性带来了可扩展性方面的挑战，尤其是在量子计算和通信等要求高准确性与安全性的应用中。理想的单光子发射器应能按需发射单光子，单光子发射的概率为 100%，多光子发射的概率则为零 [5, 6, 27, 28]。概率源本质上无法达到这一标准，因为同时产生多个光子对的概率始终不为零。为克服这些局限，人们开发了确定性单光子发射器。

量子点是重要的一类确定性光源，其材料特性可通过分子束外延精确控制。分子束外延生长的量子点可利用外部电磁场或其他方法进行精细调谐，而且发射体也相对容易实现电接触[29–31]。近期研究表明，集成于光学腔中的量子点可实现近乎完美的量子纯度，其整体效率至少是预告光源的十倍 [27, 32–34]。除量子点之外，P. Thomas等人还提出了一种确定性光子生成技术，利用腔中单个存储原子实现光子纠缠，并成功制备了大型、高保真度的吉赫兹型和簇型光子图态 [20]。

与概率源不同，确定性单光子发射器需要隔离并控制单个发射体，因此需要采用低温冷却、[35, 36], 纳米加工 [37, 38], 或原子囚禁系统[39, 40]等技术。随着量子通信与计算的发展，确定性单光子发射器也取得了显著进步，推动了可靠性和可控性更高的按需单光子技术的发展。

1.2 单光子发射器面临的挑战

尽管取得了显著进展，单光子发射器仍面临严峻挑战，阻碍了其实际应用和规模化发展。首要障碍是实现高纯度，确保每次激发事件只发射一个光子。对于量子密钥分发等玻色子采样应用而言，高纯度至关重要，因为多光子发射可能导致潜在的窃听，从而危及安全性。由自发参量下转换等产生的预告式单光子发射器呈现热光统计特性，因此产生多个光子对的概率并非零——这对量子密钥分发系统而言是一个显著的安全漏洞 [41–44]。

尽管先进滤波和腔量子电动力学（cQED）等技术可以减少多光子发射，但往往要以降低效率为代价 [41, 45, 46]。纯度与效率之间固有的权衡，是高质量光子光源实现实际部署的一大障碍。克服这一局限对于实现稳健且可扩展的量子技术至关重要。

除了纯度之外，将单光子发射器与现有量子系统（如光纤网络、波导或其他量子硬件）集成，也是另一项关键挑战 [5–7, 47]。许多量子系统工作于电信波长范围（C波段和O 波段），该范围因传输损耗极低而适用于长距离通信。然而，并非所有单光子发射器的波长都能自然匹配这一范围，导致耦合和通信效率低下。

应对这些挑战需要推动可调谐单光子发射器的发展，并开发混合集成方法。可调谐发射器能够调节其发射波长，以满足特定的运行要求，而混合系统则可增强与现有基础设施的兼容性。除了实现出色的性能外，开发一个具备宽范围发射可调谐性并能无缝集成到光子电路中的单一单光子发射器平台也至关重要。该平台还应具备成本效益高且高度可重

复的特点，以支持可扩展应用和商业化。通用且标准化的单光子发射器系统将简化制造、降低差异性并促进大规模生产，从而使其能够切实广泛应用于量子技术领域。

1.3 本综述的范围与目标

尽管已有许多综述探讨了单光子发射器的各个方面，但大多数侧重于材料特性或特定应用，往往忽略了驱动单光子发射的基本物理机制[6, 7, 15–17, 48, 49]。本综述旨在弥补这一空白，深入分析单光子发射器的物理原理，阐释其工作方式及固有局限。

我们旨在超越传统视角，聚焦纯度和可调谐性这两项可扩展量子技术的关键指标。具体而言，我们着重介绍杂化有机–无机钙钛矿量子点（HOIP QDs）这一新兴平台；该平台已在室温条件下展现出高纯度和可调谐性。

为此，我们首先考察现有单光子发射器的物理机制，并评估纯度、不可区分性和可调谐性等性能指标。随后，我们探讨基于有机–无机杂化钙钛矿量子点的单光子发射体及其相较于传统方案的优势。最后，我们概述新兴机遇和未来方向，包括评估单光子发射器性能的框架，以及对明亮压缩真空（BSV）态的前瞻性展望。我们探讨将明亮压缩真空作为一种具有巨大潜力的途径，以实现可复用、高纯度的光子生成，突破传统预示方案的局限。通过将物理驱动的进展与实际应用相结合，本综述指出了迈向可扩展且稳健的量子技术的潜在路径。

2 单光子发射

2.1 单光子的定义

光子的概念虽然基础，却长期以来一直引发概念上的复杂性。“光子”一词于1926年正式提出，而量子化辐射的概念可追溯至 1900 [50, 51]。从电磁辐射的角度来看，光子被定义为量子化电磁场中单一模式的一种基本激发 [9]。简而言之，光子是电磁辐射最小的离散单位——光量子。

作为量子客体，光子呈现波粒二象性。从粒子的角度来看，光子是无质量的玻色子，代表电磁场不可分割的量子。光子由福克态描述，福克态表示量子化电磁场中特定模式下确定的粒子数。福克态是数算符 $\hat{N}$ 的本征态，本征值为N，表示粒子数。对于单光子福克态，$N = 1$。其数学表示为：

$$\hat{a}^{\dagger}|0\rangle,$$

其中，$\hat{a}^{\dagger}$ 是光子产生算符，$|0\rangle$表示真空态。从波的角度来看，光子可表示为电磁波模式的叠加，其振幅经过量子化，并局域于时间和空间中。这种描述可表示为单模或多模波包，通常写作：

$$\psi(\mathbf{r},t) = \langle \mathbf{r},t|1\rangle.$$

其中，$\psi(\mathbf{r}, t)$ 表示光子概率振幅在空间和时间上的分布。

2.2 单光子发射器的判据

在讨论单光子发射器的物理机制之前，必须先定义如何表征单光子源。光源可以使用 Glauber 引入的二阶关联函数进行分类， 1963 [52, 53], 表示为：

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t)I(t+\tau)\rangle}{\langle I(t)\rangle^2}, \tag{1}$$

其中I 是光强，τ 是两个探测器（输出端口）之间的时间延迟。对于理想的SPE，同时探测到两个光子（$\tau = 0$）的概率为零，这意味着$g^{(2)}(0) = 0$。这一区别了量子光与经典光：光子关联是量子光的关键，而在经典光中，光子彼此独立并遵循泊松分布。

实际上，$g^{(2)}(0)$是通过 Hanbury-Brown 和 Twiss（HBT）实验测量的 [54]。该装置最初于20世纪50年代设计，用于研究星光的相干性，采用一个50/50分束器，如图2(a)、(c) [54]所示。其原理依赖于光子探测器：探测器接收到光子后会产生电子。由于探测器具有有限的恢复时间，因此难以区分在极短时间间隔内到达的多个光子。HBT 实验通过将入射光子分成两条路径来克服这一限制。如果第二个光子在第一个光子到达后不久到达，它会被引导至第二个探测器，而该探测器已准备好对其进行记录。对于理想的SPE，每次只发射一个光子，从而避免两个探测器同时探测到光子。在实验中，如果$g^{(2)}(0) < 1/2$ [5]，通常就将光源视为SPE。

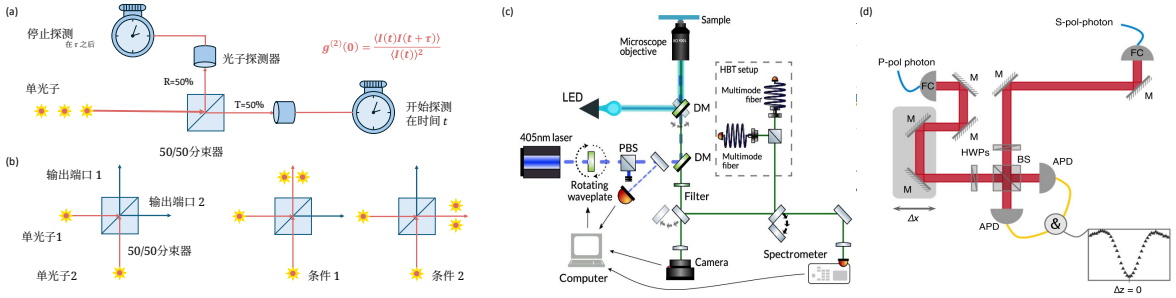


图2：单光子发射器的表征技术。（a）用于评估单光子纯度的 HBT 装置。50/50分束器将入射光子引导至两个探测器；二阶关联函数 $g^{(2)}(0)$ 反映符合计数。数值越低，纯度越高 [5]。经 Nat. Rev. Phys.**5**，326（2023）许可转载。版权所有 2023年施普林格·自然有限公司。（b）用于测试光子不可区分性的 HOM 装置。两个从不同端口进入 50/50分束器的相同光子发生量子力学干涉，并从同一输出端口离开，从而导致符合计数受到抑制（HOM 凹陷）[5]。经 Nat. Rev. Phys. **5**，326（2023）许可转载。版权所有 2023年施普林格·自然有限公司。（c）集成 HBT 功能的倒置共焦显微镜。发射体由发光二极管或脉冲激光器激发，发射光通过光谱仪或相机进行分析。HBT 测量使用多模光纤和雪崩光电二极管（APD）进行。DM：二向色镜；PBS：偏振分束器 [55]。经 ACS Photonics **7**，2265（2020年）许可转载。版权所有 2020年美国化学会。（d）用于 808 nm 光子的 HOM 装置。组件包括 FC：光纤耦合器；APD：雪崩光电二极管；HWP：半波片；BS：分束器；M：反射镜 [56]。S. Euler 等，Eur. Phys. J. Spec. Top. **230**，1073（2021年）；根据知识共享署名（CC BY）许可授权。

HBT 实验可以确认发射体是否产生单光子，而 Hong-Ou-Mandel（HOM）干涉测试则用于评估光子不可区分性（见图 2(b)、(d)）。与 HBT 实验类似，HOM 干涉也使用分束器，但不同的是，同时到达的是两个光子，而不是单个光子[57]。如果这些光子不可区分，也就是说，它们具有相同的偏振、频率、空间模式和时间模式，那么由于量子态的对称性，它们会发生相消干涉。这种现象可由 HOM 公式描述：

$$P(\text{same output port}) = 1 - |\langle \psi_{\text{in}} | \hat{U}_{\text{BS}} | \psi_{\text{in}} \rangle|^2, \tag{2}$$

其中，$\hat{U}_{\text{BS}}$ 表示分束器的酉操作，ψ_{in} 表示两个入射光子的状态。如果光子完全相同，量子干涉会使它们的波包完全重叠，导致它们总是从同一输出端口出射。这表现为符合率出现凹陷，表明光子聚束达到最大。然而，如果光子存在任何差异，它们的波包就不会完全重叠，从而减弱聚束效应，并使它们有一定概率从不同端口出射。HOM可见度是衡量不可区分性的关键指标，其定义为

$$V = \frac{C_{\max} - C_{\min}}{C_{\max}}, \tag{3}$$

其中，$C_{\max}$ 表示光子可区分时的符合率，$C_{\min}$ 表示光子同时到达时的符合率。$V = 1$ 表示完全不可区分性。

HOM实验广泛用于验证由自发参量下转换（SPDC）及其他量子光源产生的光子对的不可区分性。由于光子不可区分性对量子计算和通信至关重要，HOM干涉测试是表征量子光学系统的基本工具。

除了广泛使用的HBT和HOM测试外，还有其他表征方法。例如，光子发射光谱学可分析光谱纯度、相干性和线宽，从而深入了解光源的质量。

一般而言，单光子发射器由三个关键参数界定：纯度，确保每次只产生一个光子；不可区分性，用于验证发射的光子是否处于相同模式；以及效率/亮度，考虑了会降低整体发射效率的真空成分 [5, 6, 27, 28, 32]。根据应用场景，可能还需要优化其他参数。

2.3 单光子生成

按材料组成对单光子发射器进行分类是最常见的方法。然而，对于不熟悉该领域的人来说，这种方法可能不够直观，也无法清晰凸显不同单光子发射器在功能上的差异。因此，我们根据其生成原理进行分类：量子发射体跃迁和非线性光学过程。以下章节将讨论每种方法背后的机制。

2.3.1 量子发射体跃迁

生成单光子最直观、直接的方法是通过量子发射体跃迁。这种方法依赖于离散能级之间的跃迁，这是量子力学中的一个基本概念。

量子发射体最初处于基态。当它从外部光源吸收能量后，会跃迁至激发态（参见图 3）。由于激发态本质上不稳定，系统最终会衰减至低能态，并以光子的形式释放能量。这种弛豫通过两种机制发生：自发发射和受激发射。

- 当发射体在没有外部影响的情况下将过剩能量以光子形式释放出来时，就会自然发生自发发射。

- 受激发射是一种诱导过程：能量适当的入射光子促使激发态发射体释放出第二个光子，该光子与入射光子具有相干性。

对于单光子发射器而言，自发发射通常是主导过程 [2, 6, 27, 28, 58]。发射光子的频率由能态之间的能量差决定，可表示为 $\nu = {}^{\Delta_{Eh}}$，其中h 为普朗克常数。该方法的关键特征是每次衰减事件都会产生一个光子，从而确保真正的单光子运行。

许多广泛使用的单光子发射器都遵循这一原理，包括单原子、单离子、单分子、量子点和色心。下一节将讨论这些发射体的具体机制和设计考量。

单原子。 在基于囚禁原子的单光子发射器中，具有 Λ型能级方案的中性原子（如铷、铯和钠）因适用于强耦合区间而受到青睐。 Λ型构型由三个能级组成：激发态 $|e\rangle$、亚稳基态 $|u\rangle$和较低基态 $|g\rangle$。双光子拉曼跃迁通过激发态发生在两个基态之间，从而实现高效的光子生成以及对原子态的相干控制 [26, 59–62]。

该过程首先利用磁光阱（MOT）进行原子俘获和冷却；磁光阱结合了激光冷却和磁场。激光冷却有助于减小原子的热运动，降低其动能以便将其俘获，而磁场则可在空间上限制原子 [63]。当原子得到充分冷却并被局域化后，磁光阱会被关闭，使原子在重力作用下自由下落。当原子通过高精细度光学腔时，光学阱会被激活，将单个原子捕获在腔内。该腔体采用高反射率镜子设计，允许光在其中多次往返，从而显著增强囚禁原子与腔场之间的相互作用。

上述过程中的能量跃迁称为受激拉曼绝热通道（STIRAP），如图 4 所示。STIRAP 的核心思想是在两个态 $|g\rangle$ 和 $|u\rangle$之间实现相干布居转移，同时避免中间态 $|e\rangle$中出现显著布居。这通过反直觉脉冲序列实现，也就是说，先施加斯托克斯脉冲（耦合 $|e\rangle \longrightarrow |u\rangle$），再施加泵浦脉冲（耦合 $|g\rangle \longrightarrow |u\rangle$）。泵浦脉冲开启之前，斯托克斯激光在 $|e\rangle$ 和$|u\rangle$之间建立一条“通路”。然而，由于泵浦脉冲仍很弱或尚未开启，因此不会从 $|g\rangle$直接激发。随着泵浦脉冲逐渐开启，系统开始从 $|g\rangle$跃迁至 $|e\rangle$。由于斯托克斯场已经存在，

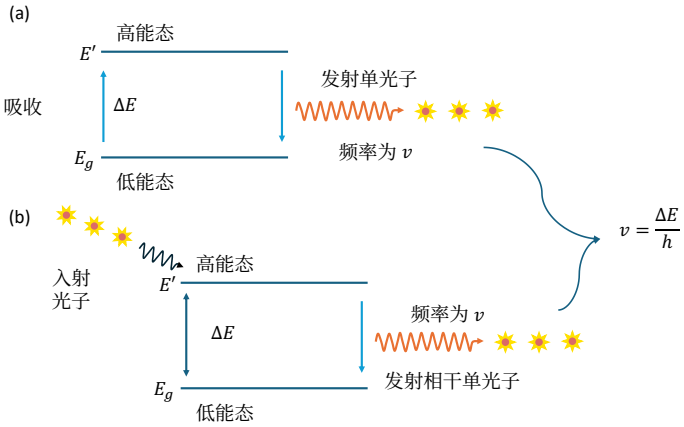


图 3：量子发射体的机制：(a) 自发发射：量子发射体最初被激发至高能态，随后在没有外部影响的情况下自然衰变至基态，并在此过程中发射一个单光子。这种发射在时间和方向上都是随机的。发射光子的能量对应于两个能态之间的能量差，定义为 $\nu = \Delta E_h$。(b) 受激发射：能量匹配的入射光子与受激发的量子发射体相互作用，促使其衰变至低能态。结果是发射出第二个光子，该光子与入射光子相干，具有相同的相位、频率和方向。尽管受激发射是《激光物理》中的基本过程，但与自发发射相比，它在单光子发射器中较不常见。

系统会立即沿着暗态演化，该暗态是 $|g\rangle$和 $|u\rangle$的叠加，从而绕过 $|e\rangle$。当泵浦脉冲达到峰值，随后斯托克斯脉冲逐渐关闭时，布居便完全转移到 $|u\rangle$。此时，原子位于高精细度光学腔内，它增强了原子与腔模之间的相互作用。 $|u\rangle \longrightarrow |g\rangle$ 跃迁与腔模耦合，而非与自由空间辐射耦合。由于腔的设计使其与 $|u\rangle \longrightarrow |g\rangle$ 跃迁共振，原子更倾向于将光子发射到腔模中，而不是随机方向。这个过程称为腔量子电动力学（cQED），原子与腔场之间的相互作用决定了发射特性。原子衰变至 $|g\rangle$后，会向腔模中恰好发射一个光子。系统的最终状态为 $|g\rangle|1\rangle$ [9, 61, 63]。这意味着原子处于基态，且一个光子储存在腔模中。随后，光子可以通过部分反射镜逸出腔体，并被探测或用于量子应用。逸出速率受到控制，以确保每次只发射一个明确确定的光子。

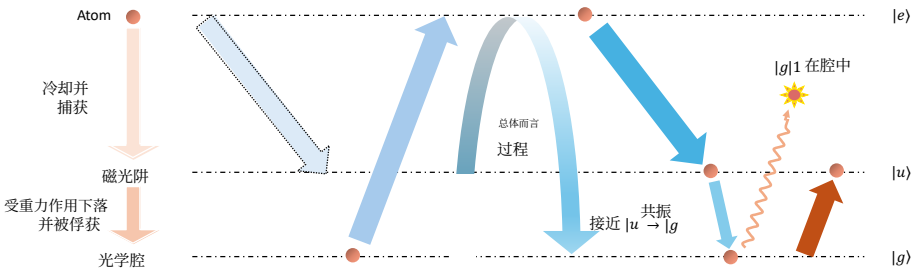


图 4：利用受激拉曼绝热通道过程产生单光子。首先使用磁光阱捕获并冷却原子，磁光阱通过激光冷却和磁场降低原子的热运动，并将其限制在空间中的特定区域。冷却完成后，关闭磁光阱，原子在重力作用下落入高精细度光学腔中。在这里，光学偶极阱将单原子固定在适当位置。能级跃迁由受激拉曼绝热通道过程驱动，使用两个激光脉冲：斯托克斯脉冲（耦合 $|e\rangle \longrightarrow |u\rangle$）和泵浦脉冲（耦合 $|g\rangle \longrightarrow |e\rangle$）。首先施加斯托克斯脉冲，建立跃迁通道；随后施加泵浦脉冲，将布居绝热转移至 $|u\rangle$，同时避开 $|e\rangle$。此时处于 $|u\rangle$态的原子发生 $|u\rangle \longrightarrow |g\rangle$ 跃迁，向受腔量子电动力学增强的腔模中发射一个光子，最终达到 $|g\rangle|1\rangle$态。

显然，这一过程避免了从 $|e\rangle$态发生自发发射。如果原子通过自发发射直接从$|e\rangle \longrightarrow |$跃迁至$\rangle$ g态，可能会降低单光子源的效率和不可区分性。通过精确控制激光场，使原子遵循非绝热演化，避免向较低能级发生自发衰变。这种方法能够实现基态之间的相干转移，从而以高度受控的方式发射光子。J. McKeever 等人 已证明，这种方法的效率甚至可以接近 1 [61]。

然而，这需要先进的实验装置和精密的控制。在受激拉曼绝热通道过程中，相干性的维持容易受到噪声、热涨落以及激光与腔的对准偏差的影响 [20, 26, 59, 61]。此外，单原子发射体还面临效率低和退相干的问题。因禁时间、耦合波动以及热布居导致的预期发射，都会显著损害其性能。对于可扩展应用，应首先解决这些问题。

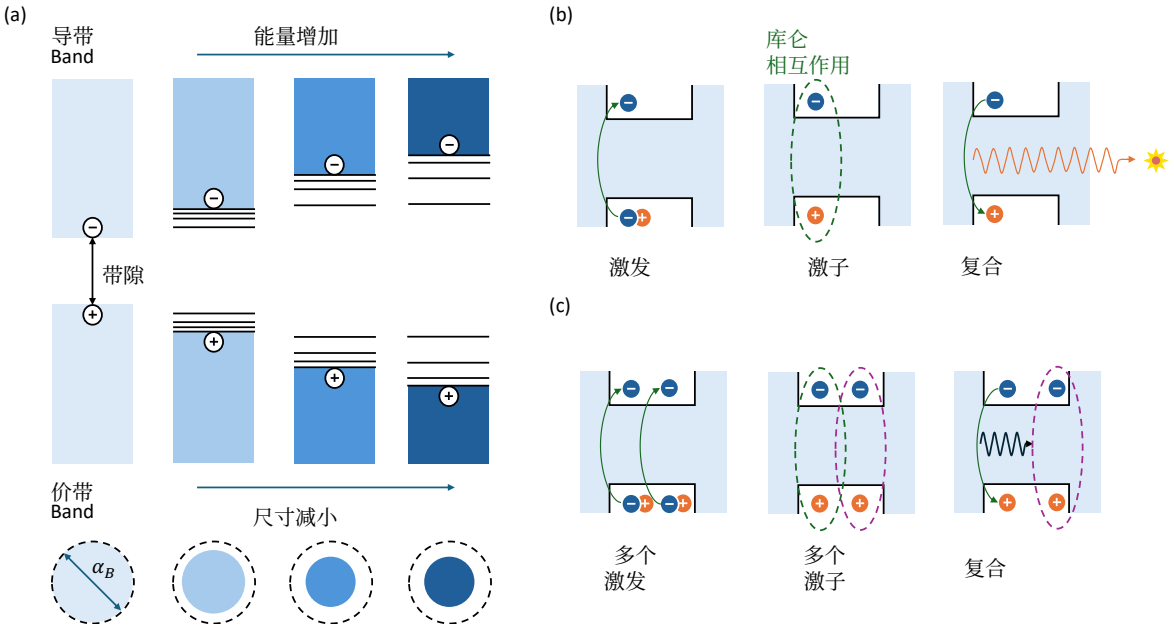


图 5：量子点的限域与发射机制 (a) 量子点中的电子-空穴对及其尺寸依赖的光学和电学性质。空穴与电子之间强烈的库仑吸引会使二者结合形成准粒子。量子点尺寸减小时，其带隙会反向增大。当半导体晶体的尺寸小于激子玻尔半径时，该晶体被视为量子点 [64]。经许可转载自 Science **373**, eaaz8541 (2021)。版权所有 © 2021 美国科学促进会。(b) 量子点的辐射衰变。电子首先被激发至导带，价带中则形成一个空穴。它们形成的激子随后以声子的形式逐渐损失能量。最后，电子和空穴复合并发射一个光子。(c) 量子点的非辐射（俄歇）衰变。在复合态下，能量不是以光子的形式释放，而是转移给另一个电荷载流子，从而阻碍单光子发射。

量子点（量子点）除了天然原子，量子点（QD）常被称为“人造原子”，在单光子发射中发挥着关键作用。它们是纳米尺度的半导体颗粒或纳米晶体（纳米晶），由于在三个空间方向上均受到量子限域，表现出显著的光学性质。当半导体的尺寸缩小到电子态由连续变为离散时，电子和空穴会被限制在一个小体积内，类似于盒中的粒子。由此产生的是量子化能级，而非块体半导体中可见的连续能带 [65]。这一行为的一个关键参数是激子玻尔半径，即块体材料中电子-空穴对的特征尺寸。当量子点的尺寸小于该半径时，就会出现强量子限域，从而形成离散能级并改变光学性质（参见图5（a））。

在量子点中，跨越带隙而被激发的电子会与留在价带中的空穴产生强烈的库仑吸引和自旋交换耦合。这种相互作用会形成激子，即电子-空穴对，并由此产生激子多体态，如图所示。5量子点的尺寸直径通常为 2 至 10 纳米

在这一尺度下，激子会在三个空间维度上都受到限域。这种限域会形成离散的类原子电子结构，其能级取决于量子点的尺寸 [65]。

更具体地说，量子点的光学和电子性质（包括吸收和发射波长）高度依赖于其尺寸。较小的量子点具有更大的有效带隙，并在更短波长处发光，因此其吸收和发射光谱会发生蓝移。相反，较大的量子点带隙较小，因此会发生红移，并在更长波长处发射光 [65, 66]。除了这种可调谐性外，量子点还因具有离散能级而呈现窄发射光谱和高色纯度（参见图6）。

不同于传统块体半导体——其光学性质主要由材料组成、晶体结构和杂质决定——量子点可通过尺寸调控获得额外的可调谐性。这使其在包括单光子发射器在内的可规模化应用中极具吸引力。

a. 量子点的一般物理机制

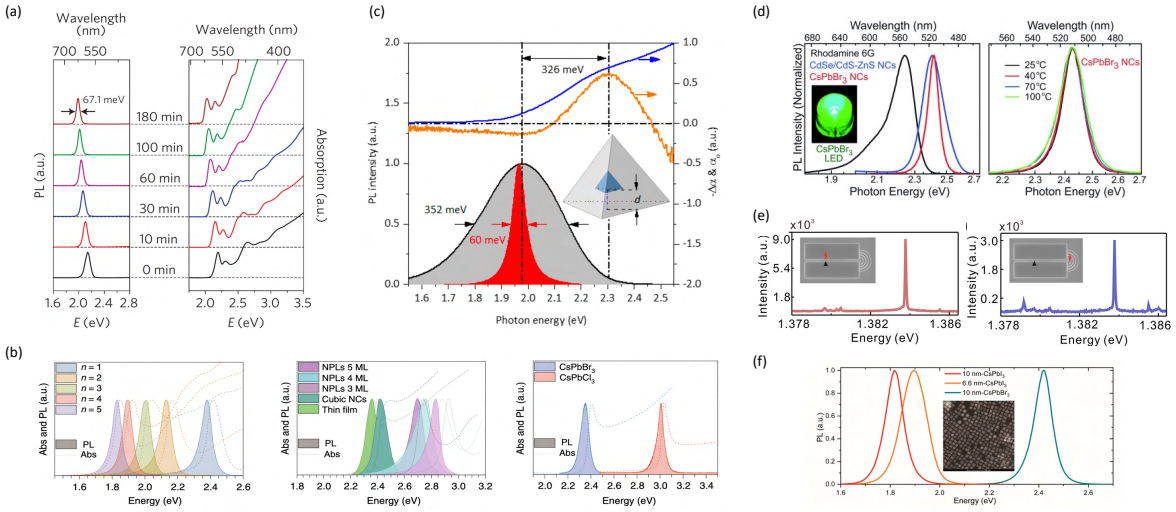


图6：不同类型量子点的窄带且可调谐的发射光谱。(a) 胶体CdSe-CdS核壳量子点集合的光致发光光谱，显示出不同的时间演化。集合光致发光峰的半峰全宽（FWHM）窄至67.1 meV（~20 nm） [67]。经许可转载自《自然·材料》**12**，445（2013）。版权所有 © 2013 施普林格·自然有限公司。(b) 不同组成卤化物钙钛矿材料的光学吸收和光致发光光谱：形式为$(CH_3(CH_2)_3NH_3)_2(CH_3NH_3)_{n-1}Pb_nI_{3n+1}$的二维剥离钙钛矿晶体，作为n的函数。不同组成和结构下，发射仍保持窄带。NPLs：纳米片；NCs：纳米晶；ML：单层 [68]。经许可转载自《自然·材料》**20**，1315（2021）。版权所有 © 2021 施普林格·自然有限公司。(c) 具有厚ZnS壳层的单个$CuInS_2$ 量子点的光致发光光谱。红色曲线表示单点发射，灰色阴影表示集合。通过添加厚ZnS壳层，Zang 等人实现了窄至60 meV的单点光致发光线宽，较集合值显著降低 [69]。经许可转载自《纳米快报》**17**，1787（2017）。版权所有 © 2017 美国化学会。(d) 罗丹明6G、CdSe/CdS-ZnS核/杂化壳量子点和$CsPbBr_3$ NCs的光致发光线宽对比。它们均呈现窄发射带宽。此外还展示了胶体$CsPbBr_3$ 量子点的温度依赖光致发光光谱 [70]。经许可转载自《德国应用化学》**54**，15424（2015）。版权所有 © 2015 WILEY-VCH。(e) GaAs波导中量子点的 μ-光致发光光谱。上图：位于源位置上方。下图：位于光栅耦合器上方。红色标记表示光收集位置，黑色标记表示激光激发位置 [71]。经许可转载自ACS Photonics **7**，2682（2020）。版权所有 © 2020 美国化学会。(f) 室温下，甲苯中的10 nm $CsPbBr_3$ 量子点（中心位于2.419 eV）、己烷中的6.6 nm $CsPbBr_3$（1.895 eV）以及甲苯中的10 nm $CsPbI_3$（1.816 eV）集合的光致发光光谱 [72]。C. Zhu等人，《纳米快报》**22**，3751（2022）；依据知识共享署名-非商业性使用-禁止演绎4.0国际许可协议（CC BY-NC-ND）授权。

量子点中的单光子发射依赖于辐射衰变（复合）（参见图 5（b））。量子点既可以通过光学方式激发，也可以通过电学方式激发，其中光学过程通常分为三个阶段：激发、弛豫和复合。吸收光子后，电子被激发至导带，并在

价带中留下一个空穴。电子-空穴对被称为激子，它们保持束缚状态并经历弛豫，在此过程中主要通过声子发射损失过剩能量，直到稳定在低能态。最后，电子与其对应的空穴复合，释放能量。对于单光子发射器应用而言，这种释放的能量以单光子的形式存在（辐射衰变）；而非辐射衰变过程则会在不发射光子的情况下耗散能量。

与其他单光子发射器一样，基于量子点的单光子发射体的基本要求是，每次激发事件都必须恰好发射一个光子。理想情况下，量子点在任一时刻都只应存在一个激子。激子复合后，应在量子点再次受到激发之前发射一个单光子。由辐射衰减率决定的激子寿命在这一过程中至关重要。通常，辐射寿命约为 1 纳秒或更短 [73–75]。如果复合速率过慢，激子就会持续存在更长时间，从而增加量子点在第一个激子复合之前吸收另一个光子的可能性。这可能导致双激子形成，即多个激子同时存在，进而发射多个光子，损害单光子纯度。

量子点中的激子也可以通过俄歇复合（AR）这一非辐射过程衰变（参见图5(c)）。在俄歇复合中，电子-空穴对复合时，其能量会转移给第三个载流子（电子或空穴），使其跃迁至更高能态，而不是发射光子 [76, 77]。由于量子限域会增强载流子之间的库仑相互作用，并使双激子等多激子态的寿命极短（约为皮秒量级），这一过程在量子点中尤为显著[77, 78]。因此，俄歇复合会导致非辐射能量耗散，降低光致发光量子产率（PLQY），其定义如下：

$$\mathrm{PLQY} = \frac{\text{Number of emitted photons}}{\text{Number of absorbed photons}} = \frac{k_{\mathrm{rad}}}{k_{\mathrm{rad}} + k_{\mathrm{nrad}}}, \tag{4}$$

其中k_{rad} 和k_{nrad} 分别为辐射衰变速率和非辐射衰变速率 [78–80]。

然而，俄歇复合并不总是需要被抑制；其影响很大程度上取决于激发强度和量子点的尺寸。俄歇速率随着量子点尺寸减小而增加，并与纳米晶半径（$1/\tau_{\mathrm{Auger}} \propto R^2$）呈平方反比关系。较小的量子点通常具有更大的带隙和更高的双激子形成概率，从而增强俄歇复合。有趣的是，较小量子点中增强的俄歇复合实际上可以抑制双激子发射。实验研究表明，俄歇复合的速率可能比辐射复合快几个数量级，尤其是在较小的量子点中 [77, 81–83]。加快的俄歇复合速率会显著缩短双激子寿命，通常将其缩短至仅几皮秒[72, 84–86]。例如，在铯铅卤化物量子点中，双激子通过俄歇复合衰减得非常快，以至于辐射复合无法及时发生 [72]。这一过程称为俄歇阻塞，它通过确保双激子（XX）迅速湮灭为单激子（X），使后者即使在高强度激发下也只发射单个光子，从而防止多个光子的发射 [77, 87–90]。这形成了一种微妙的平衡，俄歇复合速率必须根据运行情境进行仔细优化（见图7）。

相比之下，如前文所述，在低强度条件和较大量子点中，应抑制俄歇复合以保持光致发光量子产率。理想情况下，应加快双激子俄歇复合，同时尽量减小单激子俄歇复合。然而在实际中，小尺寸单点量子点中的强俄歇复合，尤其是在胶体系统中，可能会损害光稳定性并导致闪烁。

闪烁是一种现象：在连续激发下，单个量子点会在明亮的中性（“开启”）态和暗的带电（“关闭”）态之间随机切换。它源于随机光致发光强度波动，这些波动是由缺陷或环境因素激活的非辐射复合通道所导致的。Galland 等将闪烁机制分为两种类型：类型 A 由纳米晶核的常规充放电驱动，类型 B 则与热电子俘获有关 [80, 82, 91, 92]。

重要的是，闪烁并非普遍存在；其有无本质上取决于量子点的制备方式。根据制备方式，量子点通常分为外延量子点（eQDs）和胶体量子点（cQDs）。外延量子点具有很高的稳定性，基本不会闪烁，而胶体量子点则因强烈闪烁而臭名昭著。为了理解闪烁的物理起源，以及其如何影响发射机制、光稳定性、工作温度和可扩展性，必须详细考察制备过程（参见图8） [64, 93–95]。

b. 胶体量子点（胶体量子点）

胶体量子点是在化学溶液中合成的微小纳米晶体，参见图 8(a)。最常见且精确的制备方法是一种自下而上的化学工艺，称为胶体合成，通常采用热注入法。将高沸点溶剂和称为配体的特殊稳定分子加入反应烧瓶中，并将一种化学前驱体溶解在该混合物中。在惰性气氛（如氮气）下，将混合物加热至极高温度（150 至 300°C），以防止发生不必要的副反应。第二种前驱体

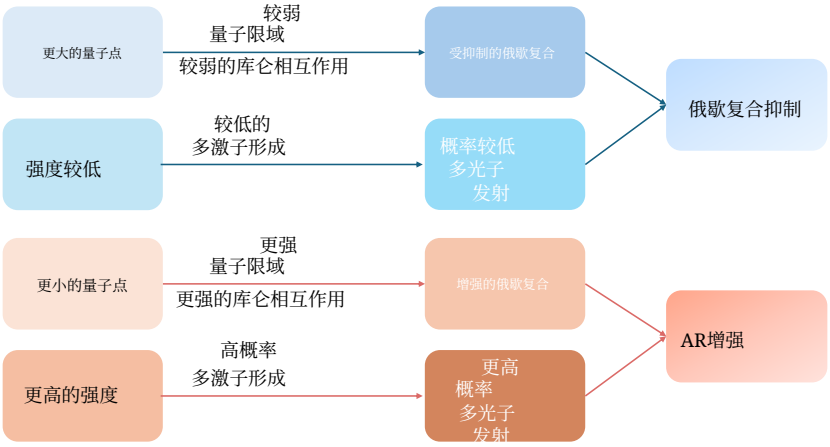


图 7：不同情形下俄歇复合倾向的简化示意图：(a) 低强度和较大量子点。首先，对于较大量子点，量子限域较弱，因此俄歇复合较弱。其次，在低强度方案中，通常只有一个电子被激发。多激子形成的概率相对较低。为达到足够的效率，应抑制俄歇复合。(b) 高强度和较小量子点。首先，对于较小量子点，量子限域较强，因此俄歇复合较强。其次，由于强度较高，存在多个激子的概率更高。俄歇复合可有效地将能量传递给另一个电荷载流子，从而有效抑制多光子发射。

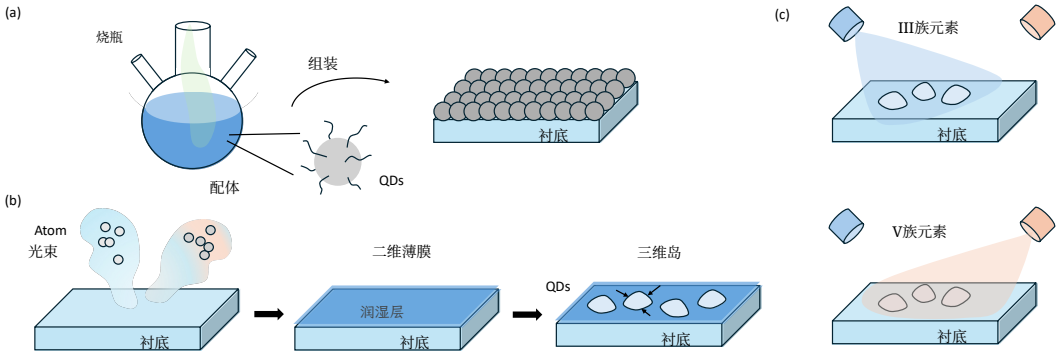


图 8：量子点的三种不同制备机制。(a) 胶体量子点的溶液法胶体合成方法。改编自 [64]。经 Science**373**, eaaz8541 (2021) 许可转载。版权所有 © 2021 美国科学促进会。(b)、(c) 外延量子点的外延生长方法。(b) 斯特兰斯基-克拉斯塔诺夫生长模式。(c) 液滴外延生长模式。

随后将其迅速注入热烧瓶中，这基本上就是热注入步骤。这种突然注入会使化学物质的浓度达到过饱和，从而触发成核“爆发”。几秒钟内，数百万个微小的晶体晶种便会同时形成。随后将温度略微降低，使反应进入生长阶段。在这一阶段，不会形成新的晶种，但已有晶种会从溶液中不断吸收更多前驱体原子，缓慢生长。让反应持续进行，直至量子点达到所需尺寸。最后淬火反应，得到尺寸分布较窄的配体稳定纳米晶胶体悬浮液。

显然，这种快速过程非常适合控制量子点核的尺寸，却不利于形成完美晶体。由于骤然淬火，纳米晶形成时原子表面并不完整。表面原子缺少其在完美块体晶体中本应具有的键，并暴露于真空或溶液中。这些原子在电子结构上仍未满足成键条件，且具有很强的成键反应活性，这类键称为悬挂键。为减少悬挂键，在热注入前加入配体，有助于通过与表面原子成键来钝化它们，同时防止形成团簇。然而，体积较大的配体无法完全覆盖量子点复杂的晶面化表面上的每一个缺陷位点。更糟的是，它们并非永久牢固地附着在表面上，而是不断地“脱落”（脱附）又“重新附着”（吸附）。因此，电荷载流子很容易被捕获在未能被配体钝化的表面陷阱中。这会导致A型和B型闪烁。两种闪烁机制的关键区别在于电荷被缺陷捕获的时间长短。对于A型闪烁，电荷被捕获的时间相对较长（数毫秒甚至数秒），使量子点核带电；而对于B型闪烁，电荷会立即释放，不会被滞留，因此量子点在整个过程中都保持电中性。

现在可以通过核壳结构有效缓解B型闪烁。然而，抑制A型闪烁的效果有限 [80, 96]。如果量子点核带电，就会进入完全关闭态，并开始出现A型闪烁。这一过程称为缺陷介导的俄歇复合，第三节将对此进行详细讨论。随着量子点尺寸减小，表面积体积比和俄歇复合速率都会增加，从而加剧闪烁行为 [97, 98]。

简而言之，胶体量子点本质上是漂浮在液体中或嵌入聚合物内的微观晶体碎片。由于它们非常小，其中很大一部分原子都位于表面。这种不完美且布满悬键的表面是闪烁的根本原因。

c. 外延量子点（外延量子点）

相比之下，外延量子点是在更大且高度有序的半导体晶体内部生长的。外延量子点通常是III-V族半导体结构，也有一些是氧化物钙钛矿。原子通过气相沉积工艺输送。两种主要的物理生长机制是Stranski-Krastanov（SK）生长和液滴外延（DE）。

在这两种生长方式中，SK生长更为常见，也是形成自组装电子量子点时商业化应用更成熟的一种。它完全由应变能驱动，因此需要两种晶格失配显著（原子间距或晶格常数不同）的材料。如图所示，生长从二维逐层生长开始。 8(b)所示。沉积的材料被迫采用衬底的晶格间距，因此受到压缩应变。例如，在砷化镓上沉积砷化铟时，砷化铟原子被迫拉伸，以匹配砷化镓的晶格。随着沉积材料不断增加，应变能在这层薄薄的应变层中累积，这层应变层称为润湿层（WL）。达到临界厚度后，这层材料能量较高且不稳定，就像橡胶被拉得过紧。此时，系统通过从二维生长转变为形成三维岛（即量子点）来释放应变，在能量上更为有利。这些岛是相干的（没有位错），仍处于应变状态，但其三维几何结构有助于更有效地实现应变弛豫 [99, 100]。

然而，DE生长模式是一种更灵活的模式，不依赖晶格应变，适用于晶格匹配材料。这是一个由表面能和化学反应动力学驱动的两步过程（参见图8(c)）。首先，仅将III族元素（金属原子）的原子束射向衬底。由于没有V族元素与之反应，III族原子会在表面迁移并聚集成纳米级液态金属液滴。其密度主要由衬底温度控制。第二步，将V族元素通量引入衬底，以控制量子点的尺寸。V族元素与液态金属液滴反应，使其结晶形成半导体纳米结构——量子点 [94, 101, 102]。显然，两种方法都需要对原子束进行精确控制。为实现这种原子级控制，研究者引入了金属有机化学气相沉积（MOCVD）和分子束外延（MBE），前者属于化学方法，后者属于物理方法。关于MBE和MOCVD的详细说明，请参阅 [103–105]。比较这两种生长模式，最大的区别在于是否存在润湿层（WL），以及与之相关联的密度和尺寸特性。WL会显著影响量子点的激发和弛豫动力学。对于SK生长的量子点，载流子首先在WL中产生，随后可沿WL移动，直至被量子点俘获。一旦进入量子点，载流子便再次局域化。WL会大幅提高载流子俘获速率，即最初将电子和空穴引入

量子点的过程。它就像一个大型储库，储存过量的电荷载流子，并为上方的量子点提供载流子。然而，这种基于应变的方法限制了量子点尺寸和密度的可变范围。温度升高会提高原子迁移率。原子移动得太快，无法彼此黏附，因此更可能并入已经形成的岛中。这会使WL上的量子点尺寸更大、密度更低。相反，温度较低时，原子无法移动太远。它们很快找到最近的邻居，形成许多新的微小岛。此时成核率很高，因此会形成高密度的小量子点。

就闪烁而言，具体来说，外延量子点不表现出本征闪烁行为。无论是SK生长还是DE生长的量子点，都被埋入半导体基质中。岛（量子点组装体）的顶部始终覆盖着覆盖层/势垒层。这种过生长通过重构晶体键并消除表面态，使所有部分都得到钝化。尽管WL确实提供了一条逃逸路径，使量子点容易发生这些充电/放电事件，但这一问题已得到有效解决 [106–109]。此外，这种半导体基质结构使量子点能够在不牺牲限域的情况下发射更长波长的光，而不必仅依赖较小的物理尺寸。它在量子点周围形成一个三维势阱。例如，对于InAs/GaAs量子点，GaAs的价带低于InAs的价带，而GaAs的导带高于InAs的导带。这将激子限域在InAs中，InAs也被称为核。因此，外延量子点的制备尺寸可以远大于胶体量子点。

为增强辐射衰变和空间限域，量子点通常会与微米或纳米尺度的高质量光学腔耦合，包括微柱、靶心腔和开放腔 [14, 110, 111]。合理设计腔体，可使其与量子点的波长和偏振相匹配，从而增强珀塞尔效应，显著提高辐射衰减率，同时抑制非辐射过程。通过将光限域在较小区域内，腔体可增强量子点所在位置的局部电磁场，提高光子收集效率。此外，腔体还有助于将发射的光子导入特定空间模式，从而提升其相干性及其在量子应用中的可用性。

与其他单光子发射器（如自发参量下转换）相比，基于量子点的发射体能够产生更明亮、效率更高的光子。其离散能级带来较窄的发射光谱，从而形成尖锐且定义明确的发射线。图 6展示了集合量子点和单点量子点的不同发射光谱，这些光谱的能量均低于 70 meV。此外，通过调节其带隙，量子点如今可在较宽的温度范围内工作，从低温到室温 [86, 112–114]。

尽管具有这些优势，基于量子点的单光子发射器的可扩展性仍面临若干挑战。首先，虽然量子点能够实现接近 1 的光致发光量子产率，但由于光学损耗和不理想的腔耦合，其整体发射效率仍然有限。其次，非均匀表面图案会使量子点之间产生差异，导致退相干和不可区分性降低。由于几乎不可能制备出完全相同的量子点，实现性能一致仍是一项挑战。尽管后处理技术可以提高不可区分性，P. Senellart 等人证明，提高不可区分性往往会牺牲效率 [27]。此外，它们并不稳定，容易受到闪烁和光漂白的严重影响。虽然部分量子点能够在室温（RT）下工作，但大多数必须在低温条件下工作。最后，许多胶体量子点含有镉、铅和汞等有毒重金属，会带来环境和健康风险 [72, 96, 114]。开发无毒替代品对于更广泛的应用至关重要。

2.3.2 色心

与单原子和量子点不同，色心并非离散粒子，而是晶格中的原子尺度缺陷。这些缺陷主要存在于金刚石等宽带隙材料中，可充当孤立的量子光发射体。它们源于空位、间隙原子或杂质原子，这些原子会改变宿主材料的电子结构 [115, 116]。受到激发时，色心会吸收特定波长的光并重新发射光，通常会产生可见的颜色，因此得名。

在完美晶体中，周期势会产生离域电子态，形成连续的能带。然而，缺陷的存在会破坏这种周期性，在势能景观中引入局域扰动。缺陷位点如同空间受限的势阱，将电子束缚在离散能级中，这与原子中的电子十分相似 [117]。根据量子力学，受限于此类有限势阱中的电子只能占据特定的量子化能态，其能量间隔由缺陷势阱的形状和深度决定。

当色心受到光学或电学激发时，电子会从基态跃迁至与缺陷相关的激发态。这种激发通常由调谐至这两个态之间能量差的激光诱导。一旦被激发，电子便会受晶体缺陷形成的局域势阱限制，束缚在缺陷位点 [118, 119]。与导带中的自由电子不同，它的波函数受空间限制，并且远离缺陷时会呈指数衰减。

缺陷引入的电子态位于宿主材料的带隙内。这种隔离可防止电子与导带或价带的离域态合并，除非提供足够的外部能量。因此，电子会被困在缺陷位点，直到弛豫回到基态，并在此过程中发射一个光子。不过，这些态之间的能量差决定了所发射光子的波长；由于这些跃迁具有离散性质，因而会产生光谱线宽窄的发射。

尽管不同材料中的基本发射过程相似，但晶场效应和声子相互作用会带来差异。例如，金刚石中的带负电氮-空位（NV^-）中心可以经过工程化设计，形成 Λ型系统，与前文讨论的单原子类似；而中性NV中心（NV^0）则不能 [120]。宿主材料的晶格结构和局部应变会改变缺陷的电子态，使发射波长发生偏移；与晶格振动（声子）的相互作用则会影响光谱线宽和整体发射特性。一些缺陷还具有自旋相关光学跃迁，可用于量子应用；另一些缺陷则会发生Jahn-Teller畸变，导致能级分裂[121–124]。本文不讨论不同宿主材料对色心的影响。有关详细讨论，请参阅 [119, 125–127]。

缺陷型单光子源的主要优势之一是具有稳健的固态架构，与单原子和量子点相比，这种架构更为耐用，也更便于集成到光子电路中 [128, 129]。六方氮化硼（hBN）等缺陷型单光子源在室温下即可高效运行，无需昂贵的低温装置 [130–132]。此外，这些光源具有出色的光稳定性，在长时间光激发下不易退化。某些缺陷（如氮-空位中心）还提供自旋-光子接口，使光子发射与缺陷的量子自旋态之间能够实现纠缠，拓展了其用途，使其不仅可用于产生光子，还可应用于量子存储器、传感和分布式量子网络 [133–135]。成熟的纳米加工技术也进一步助益缺陷型系统，使其能够在纳米结构环境中精确定位，从而提高光子提取效率 [129, 136]。

然而，这些系统也面临显著的局限。要实现高亮度和高收集效率仍然颇具挑战，因为缺陷发射通常是各向同性的，或受到宿主材料折射率的限制，因此需要复杂的光子工程 [28, 70, 129, 137]。晶格振动或电荷涨落引发的相互作用会导致光谱不稳定性，进而降低光子不可区分性。缺陷性质存在非均匀性，例如发射波长或衰减率的差异，这使大规模器件集成更加困难 [133]。虽然室温运行具有优势，但往往会加剧退相干效应，与低温冷却方案相比，限制自旋-光子纠缠保真度 [138]。此外，缺陷形成具有随机性，且难以以纳米尺度精度实现确定性定位，这阻碍了可扩展制造 [130, 139]。因此，缺陷型单光子源虽前景可期，但仍不够完善，尚难满足可扩展量子技术的需求。应进一步研究先进材料和混合光子设计。

2.3.3 非线性光学过程

与确定性光源量子发射体不同，基于非线性光学过程的单光子发射器具有概率性，并依赖于非线性介质中的多光子相互作用。这些光源并非在每个激发周期发射一个光子，而是通过晶体中的非线性相互作用产生关联光子对。一个高能光子（通常来自激光）在非线性介质中转化为两个低能光子。

在这一过程中，探测到光子对中的一个光子，即可表明另一个光子的存在。它们分别称为预示光子和被预示光子，这类光源则称为预示型单光子发射器。虽然这类光子源具有概率性，似乎并不适合产生纯单光子态，但被预示光子在信息相关应用中发挥着关键作用，尤其是在量子通信和密码学领域 [23, 42, 140, 141]。

2.3.4 自发参量下转换（SPDC）

早在1961年，人们就预测了自发参量下转换产生光子对的现象，并随后通过实验加以证实 1970 [142, 143]。此后，自发参量下转换一直处于量子光学的核心地位。尽管早期曾尝试采用原子级联方案，但产生的光子对会带走部分动量，导致其传播方向的相关性较弱 [144, 145]。如今，自发参量下转换已成为产生关联光子、纠缠光子和单光子的主要预示方法。 [24, 42, 140, 146, 147]。

SPDC 是一种非线性光学过程，其中入射泵浦光子分裂成两个能量较低的光子，分别称为信号光子和闲频光子。这本质上是二次谐波产生的逆过程，

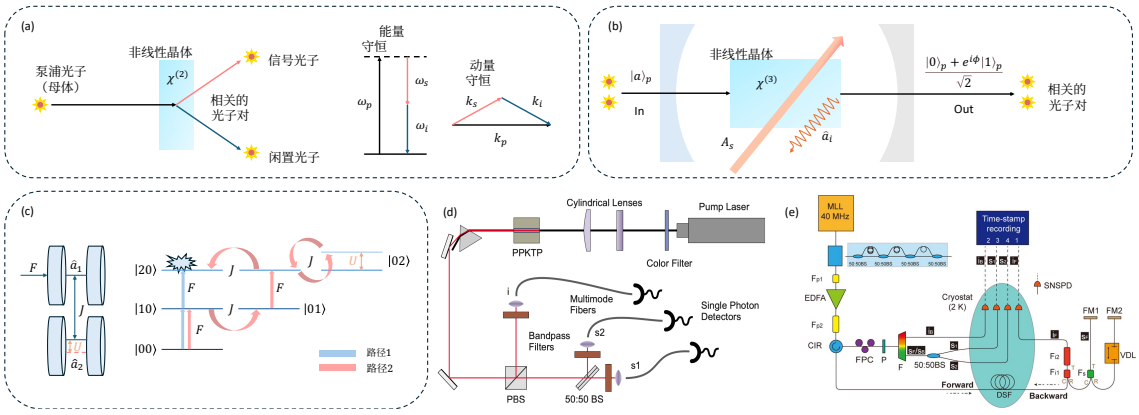


图9：基于非线性光学过程的光源。（a）SPDC过程示意图。（b）FWM过程示意图。（c）非对称驱动光子分子的示意图，其中每个腔在所关注的光谱区域内均支持单个共振模式。只有第一个腔由外部相干场驱动。插图显示了相应的能级阶梯，说明了两个腔的光子数态。改编自 [148]。H. Flayac等，《科学报告》**5**，11224（2015）；根据知识共享署名 4.0 国际版（CC BY 4.0）许可协议授权。（d）基于SPDC的单光子产生实验装置。周期性极化磷酸氧钛钾（PPKTP）晶体产生具有正交偏振的共线光子对。偏振分束器（PBS）将闲频光子和信号光子分开；闲频光子作为信号光子的预示光子，随后信号光子被引导至非偏振分束器（BS），用于二阶关联测量$g^{(2)}(0)$ [146]。经《当代物理学》**59**，291（2018）许可转载。版权所有©2018 Taylor & Francis。（e）基于受激FWM的单光子产生实验装置。主要组件：MLL——锁模激光器；50:50 BS——50/50光学分束器；Fp1、Fp2、Fi1、Fi2、Fs、F——通过（级联）三端口100 GHz密集波分复用器实现的滤波器；CIR——光环形器；FPC——光纤偏振控制器；FM——法拉第镜；VDL——可变光学延迟线；P——偏振片；SNSPD——超导纳米线单光子探测器。C（T、R）分别表示DWDM器件的公共端、透射端和反射端。有关系统的详细说明，请参阅 [149]。经ACS Photonics**4**，746（2017）许可转载。版权所有©2017美国化学会。

如图 9(a) 所示。该过程由以下相互作用哈密顿量描述：

$$H_{\text{int}} = \chi^{(2)} \int\int\int d^3\mathbf{r}\, E_{\text{pump}}(\mathbf{r},t) a_s^\dagger(\mathbf{r},t) a_i^\dagger(\mathbf{r},t) + \text{h.c.} \tag{5}$$

其中，$\chi^{(2)}$ 是二阶非线性磁化率，E^{pump} 是泵浦光子的电场，而$a_s^\dagger(\mathbf{r},\ t)$、$a^\dagger{}_i(\mathbf{r}t)$是位置$\mathbf{r}$ 和时间$\mathbf{t}$处信号光子和闲频光子的产生算符。h.c. 表示厄米共轭。

二阶非线性磁化率 $\chi^{(2)}$ 表征材料对泵浦场的极化响应，并决定光子对产生的概率振幅。相互作用哈密顿量的简化表示为：

$$H_{\text{int}} = \hbar g (a_p a_s^\dagger a_i^\dagger + a_p^\dagger a_s a_i). \tag{6}$$

其中 g是一个取决于 $\chi^{(2)}$ 的耦合常数，而 a^p、$a_p^\dagger$ 分别是泵浦光子的产生算符和湮灭算符 [150]。式（6）表明，泵浦光子有非零概率被湮灭，从而同时产生一个信号光子和一个闲频光子。两个光子结合形成一个泵浦光子的逆过程在理论上也有可能，但在经典自发参量下转换模型中不会发生。

然而，与相干产生的经典情况一样，SPDC 遵守动量守恒和能量守恒，从而产生相位匹配约束：

$$\begin{aligned} \omega_p &= \omega_s + \omega_i, \\ \mathbf{k_p} &= \mathbf{k_s} + \mathbf{k_i}, \end{aligned} \tag{7}$$

其中，ω_p、ω_s 和 ω_i 分别是泵浦光子、信号光子和闲频光子的角频率，而$\mathbf{k^p}$、$\mathbf{k_s}$ 和 $\mathbf{k_i}$ 则分别是它们的波矢。

这一约束既带来了优势，也带来了挑战。一方面，它确保生成的光子对具有高度的方向性，这是相较于许多其他单光子源的一项显著优势。另一方面，由于反冲效应，并非所有波长组合都满足这一条件，因此相位匹配是 SPDC 的关键环节。实现特定目标波长的相位匹配是一项重大挑战，稍后将对此进行详细讨论 [23, 145, 150]。

SPDC 中的相位匹配可根据不同的偏振设置进行分类。在 0 型中，三个光子（泵浦光子、信号光子和闲频光子）具有相同的偏振。在 I 型中，生成的信号光子和闲频光子具有相同的偏振，但与泵浦光子的偏振正交。在 II 型中，信号光子和闲频光子的偏振相互垂直。在这些类型中，I 型自发参量下转换最常用于单光子发射，因为它能提供更可预测的发射模式。I 型的一种可能量子态表示为

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|HH\rangle + e^{i\theta}|VV\rangle) \tag{8}$$

SPDC 产生的光子对总数服从泊松统计，而单个模式（信号或闲频）则表现出亚泊松统计。信号光子和闲频光子之间的纠缠，会在探测到一个模式中的光子时，降低另一个模式中探测到的光子数涨落。这种效应称为压缩真空，将在 BSV 单光子发射器部分进一步探讨。

由于泵浦（母）光子的波长以及信号光子/闲频（子）光子的波长由能量守恒决定，因此只能通过入射角和非线性介质的性质来控制相位匹配。材料选择和调谐有多种方法，但都基于同一基本原理：利用具有方向相关折射率的材料，满足动量和能量守恒条件。最有效的方法之一是使用双折射非线性晶体 [23, 146, 151]。在这些材料中，折射率 n 会随相对于晶体光轴的偏振方向而变化。沿非寻常轴偏振的光的折射率n_e 与沿寻常轴偏振的光的折射率 n_o [145, 150]不同。

对于 I 型自发参量下转换，泵浦光子通常以非寻常波的形式传播，而信号光子和闲频光子则以寻常波的形式传播。当泵浦光子的有效折射率与信号光子和闲频光子的寻常折射率相匹配时，即可实现相位匹配：

$$n_e^{\text{eff}}(\text{pump}) = n_o(\text{signal}) = n_o(\text{idler}). \tag{9}$$

通过仔细选择晶体取向和传播角，可以调节折射率以满足相位匹配条件。此外，温度调节还可以针对给定的波长范围进一步优化相位匹配。

由于双折射调节取决于晶体光轴的取向，因此也会影响有效 $\chi^{(2)}$ 值。该 $\chi^{(2)}$ 张量在双折射材料中具有各向异性，这意味着对于给定晶体，泵浦光、信号光和闲频光子偏振之间的相互作用由 $\chi^{(2)}$的具体取向决定。即使双折射能够通过调节折射率实现相位匹配，SPDC 的效率也取决于 $\chi^{(2)}$的大小和取向。双折射必须足够强，才能在所需的波长和偏振下实现相位匹配，同时 $\chi^{(2)}$ 必须足够大，以确保高效的光子转换。因此，选择合适的双折射材料时，既要考虑其非线性强度，也要考虑其满足相位匹配条件 [23]的能力。两种常用的双折射材料是 β-硼酸钡（BBO）和磷酸钛氧钾（KTP）。更详细的理论推导可见 [145, 146, 150, 152]。

自发参量下转换（SPDC）过程发生后，两个子光子会被分开并导向单光子探测器。闲频光子既可以单独探测，也可以用于基于纠缠的实验。系统使用符合计数器识别关联光子对。只有当两个探测器都在特定时间窗口内探测到光子时，系统才会记录一次“成功”，从而确认产生了一个光子对[146]。

除了双折射材料，周期极化晶体（如周期极化铌酸锂（PPLN））也常用于相位匹配。这些晶体包含周期性交替的高、低 $\chi^{(2)}$区域，其基本原理与双折射材料相同。由于本文聚焦于自发参量下转换（SPDC）的物理机制，关于基于PPLN的相位匹配的深入讨论，请读者参阅 [141, 153, 154]。

需要注意的是，双折射相位匹配技术和周期极化相位匹配技术都需要在光子不可区分性与波长控制之间进行权衡。非线性晶体中的双折射使两个光子难以保持相同的偏振态，这可能会削弱偏振纠缠，或导致系统处于混合态而非纯态。此外，正如前文所述，预告光源中始终会出现多光子发射。因此，平均成对产生率被有意控制在远低于1的水平，从而显著限制了效率。由于泵浦功率和 $\chi^{(2)}$ 值都相对较低，非线性晶体必须足够薄，以尽量缩短相互作用长度并减少不良影响 [145, 146, 150, 153]。

四波混频（FWM） 由于高阶非线性相互作用无法完全消除，因此可以将其用于单光子发射。四波混频（FWM）是一种 $\chi^{(3)}$ 非线性过程，其中两个泵浦光子转化为一对相关光子，如图9（b）所示。与 SPDC 一样，FWM 同时满足能量守恒和动量守恒，并广泛应用于光纤和波导中。通过调节泵浦波长并利用介质的色散特性，可以精确控制所生成的信号光子和闲频光子的波长 [155, 156]。

传统上，FWM 自发发生。然而，如图9（e）所示，可以利用受激四波混频增强单光子发射。在这一过程中，两个泵浦光子被湮灭，一个种子单光子会刺激信号光子和闲频光子的发射。生成的光子仍保持相关性，其中一个光子与种子光子占据相同的模式 [149]。

尽管具有潜力，近年来，四波混频作为可行的单光子源面临着日益严峻的挑战。波导中的制造缺陷会导致不同四波混频光源之间出现光谱失配，降低光子不可区分性，而后者是实现可扩展量子计算的关键因素。虽然锥形波导和泵浦延迟调谐等方法可以缓解这一问题，但要实现超过 99.5% 的不可区分性，需要极其精确的制造公差 [157]。此外，自发参量下转换等其他非线性过程通常更易于工程实现或性能更高，这进一步限制了四波混频在单光子源中的广泛应用。

非传统光子阻塞（UPB）除了前文讨论的主要单光子发射器外，非传统光子阻塞（UPB）也已作为生成单光子的一种替代方法得到研究。不过，它尚未广泛应用于实际场景。传统光子阻塞依赖非线性系统中的强非谐性，而 UPB 则源于弱非线性系统中的量子干涉效应 [158]。UPB 并非通过强非线性相互作用来阻止多光子占据，而是利用多条激发路径之间的相消干涉来抑制双光子激发 [148]。在 UPB 中，弱相干场驱动一个系统，其中存在两条或更多条从基态通向多光子态的激发路径，这种机制称为路径竞争。这种效应可通过间接

激发实现，光子可在耦合谐振腔之间隧穿，或与 $\chi^{(3)}$ 克尔介质等非线性元件相互作用 [158, 159]。

UPB 的一种常见实现采用两个耦合的光学腔，通常称为“光子分子”，其中两个腔的电磁场彼此重叠（参见图 9(c)）。这使得光子能够在腔之间发生隧穿或耦合，可由系统哈密顿量中的隧穿耦合率 J 描述：

$$\hat{H}_{\text{coupling}} = J(\hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2 + \hat{a}_2^\dagger \hat{a}_1). \tag{10}$$

参数 J 决定了腔之间能量交换的强度。这些路径因失谐参数 Δ而产生相位差，该参数受J 影响，并定义为：

$$\Delta = \omega_c - \omega_L, \tag{11}$$

其中， ω_c 是腔的共振频率， ω_L 是驱动激光频率。对于不同系统，最佳失谐条件有所不同。当路径之间的干涉变为相消干涉时，双光子激发受到抑制，从而产生光子反聚束。值得注意的是，即使非线性较弱，这种效应仍然存在，因为非线性主要调制路径之间的相对相位 [160, 161]。通过精确调节J和 Δ，可以将系统设计为最大限度地减少双光子占据，从而提高单光子发射的纯度。

经过干涉过程后，脉冲驱动结合时间滤波可实现受控的单光子发射。发射的光子脉冲具有有限的持续时间，由腔寿命决定。然而，反聚束仅在一个较短的时间窗口内得以保持（例如， <100 ps）[148]。若不进行滤波，在该窗口之外发射的光子会降低输出的单光子纯度。时间滤波可去除同一脉冲中较晚时刻出现的多光子事件，从而确保获得纯度更高的单光子流。

2.4 当前技术进展与性能指标

本节将介绍上述单光子发射器的最新进展，并分析其性能统计数据。此外，我们还将具体分析每种单光子发射器的可调谐性和纯度。总体而言，表1总结了各单光子发射器的关键性能指标。下文将详细研究原子系统和概率源。

2.4.1 天然原子与人造原子

过去十年来，基于天然原子的单光子源已显著减少了研究关注，而量子点、金刚石氮空位中心和六方氮化硼缺陷等人造原子则已成为主流 [61, 195, 196]。这一转变主要由三个因素推动：单原子研究固有的技术挑战、固态量子系统性能方面的突破，以及研究范式的理论转变。

正如 J. McKeever 等人在 21 世纪初发现的那样，单原子实验需要在超高真空环境中结合激光冷却、磁光阱或光镊，尤其是在捕获铯和铷原子时，才能确保原子在腔内稳定定位 [61, 197]。这些系统对振动、温度波动和激光相位噪声高度敏感，因此需要复杂的反馈控制。相比之下，量子点和缺陷中心通过纳米加工技术固定在衬底上，因此天然具备机械稳定性和可扩展性 [27, 64, 198]。此外，单原子发射的光子通常呈各向同性分布，导致收集效率较低。铷实验中的光子收集效率通常低于 10% [197]。尽管光学腔中的珀塞尔效应可以提高辐射速率，例如将铯与腔耦合可实现 69% 的输出效率 [61], ，但腔模匹配和长期原子-腔对准等挑战仍是重要的技术瓶颈。

相比之下，量子点因其较高的光致发光量子产率而受到认可，预示着未来有望实现更高的效率（参见表1）。此外，近年来，六方氮化硼中的缺陷等新型材料因能够在室温下发射单光子而成为研究焦点。第一性原理计算表明，六方氮化硼中的CBVN缺陷具有与实验观察一致的声子耦合特性，为可控单光子发射器提供了新平台 [130, 131, 198]。相比之下，单原子系统的材料选择有限，且通过化学修饰优化性能颇具挑战性。此外，固态系统天然适合片上集成，例如将硅基光子晶体与量子点结合，或将金刚石光子腔与光纤直接耦合[199, 200]。这对于开发量子网络和光子集成电路至关重要。相比之下，

表1：过去五年报道的单光子发射器性能参数汇总。

来源	波长	$g^{(2)}(0)$	调谐范围（毫电子伏特）	不可区分性	时钟 Rate	传输距离 (km)	效率	Type
原子	可见光至C波段	0.002 [59]	–	95% [162]	8.1 兆赫兹 [163]	0.7 [164]（光纤）	–	QEs
单点量子点与一个可调谐开放式微腔耦合	890 纳米 [14]	0.0205 [14]	-	98.56% [14]	25.38 兆赫兹 [14]	-	71.2% [14]	QEs
铟镓砷纳米线	890–1550纳米，优化于O/C 波段	<0.02 [165]	1.1 [166]	97% [167]	1 吉赫兹 [167]	<50[165]（光纤）	40%–90%	QEs
InAs/GaAs 量子点	C波段	0.184 [168]; 0.07 [169]; 0.012 [170]	0.75（通过应变）[169]; 1.1	98.5% [171]	100 兆赫兹 [169]	50–80[172] (光纤)	>80%（量子效率）[107]	QEs
砷化铟/磷化铟	C波段	0.0051 [173]	–	–	–	120[173] (光纤)	>20%（符合效率）[174]	QEs
砷化镓/砷镓铝通过局部液滴刻蚀	750–850 纳米	0.00075 [175]; 0.024 [176]	–	94.8% [176]	–	–	–	QEs
CdSe-CdS 核壳纳米晶	Vis	0.03 [33]; <0.05 [177]	0.1–0.5 [178]	–	兆赫兹 [33]	–	60% [33]	QEs
钙钛矿铯铅X_3（X = 氯、溴、碘）	400–730 纳米（可见光）	0.02 [72]; 0.019 [18]	0.3–0.8 [179]	99.2% [18]	5 兆赫兹 [179]; 1 吉赫兹 [72]	~0.5 (自由空间)	60% [72]	QEs
氮-空位中心	637 nm（零声子线）	0.08 [180]	<1	95% [181]	168 kHz [182]	–	82%（符合效率）[183]	QEs
hBN	300–800 nm（紫外至近红外）	0.45 [184]; 0.01 [131]	31 [184]; 80 [185]	98%	10 兆赫兹 [186]	–	10%（符合效率）[187]; 87%（量子效率）[188]	QEs
SPDC	可见光至C波段	0.0028 [189]; <0.003 [24]	–	99.56% [189]	2.1 兆赫兹 [190]	1700[191]（自由空间）	45% [24]; 65%（符合效率）[189]	NOP
FWM	可见光至C波段	0.09 [192]	132.5（近红外）[193]	0.74% [194]	100 兆赫兹 [192]	15.7[192]（光纤）	20%–60%	NOP

注。每一行所列数值可能来源于不同实验，也可能来源于在不同条件下进行的同一实验。因此，该表旨在对不同物理系统可实现的潜在性能进行指示性比较，而非作为直接基准。总体效率定义为量子效率（QE）与收集效率（CE）的乘积。除非另有说明，效率值均指该总体效率。Vis：可见光谱。QEs：量子发射体。NOP：非线性光学过程。

在实验阶段整合多i-分量单原子系统（例如采用光纤网络的光镊阵列）仍然 s
在实验 阶段。

早期的单光子源主要用于基础量子光学演示 [201]。然而，此后研究重点已转向实际性能指标，包括光子产生率、兼容性以及抵抗干涉的稳健性 [198, 202]。量子点和缺陷中心在更高重复频率方面具有优势（见表1），并且具备波长稳定性，这些特性还可通过应变工程进一步优化。

尽管人们对单原子系统的兴趣有所下降，但其核心概念（如腔量子电动力学）仍持续影响着固态系统的设计。选择性辐射态理论源自原子阵列的亚辐射研究，而基于量子点的单光子发射器的触发控制机制（如电脉冲调制）则受到单原子实验中光脉冲激发技术的启发 [197, 203]。未来，冷原子阵列或许会在量子模拟或中继节点等特定领域重新得到应用，但作为独立光子光源的单原子很可能会被固态系统彻底取代。

量子点 关于量子点，作为单光子发射器的研发已取得显著进展，尤其是在提升光子不可区分性和亮度方面，使其成为量子通信和计算领域的前沿技术 [2, 5, 14, 204]。砷化铟、铟镓砷等III-V族半导体，以及铟镓氮等III族氮化物，是高性能基于量子点的单光子发射器的主要材料；与此同时，胶体量子点和混合系统也日益受到关注，有望实现可扩展集成。

基于量子点的单光子发射器研究主要沿着两个方向开展：材料创新和结构优化。2019年之前，人们广泛研究了砷化镓、硒化镉/硫化锌、磷化铟/硒化锌和砷化铟/磷化铟等传统材料的单光子发射特性，揭示了它们各自的优势与局限。砷化镓量子点具有较高的激子束缚能，非常适合低温单光子发射。砷化铟/磷化铟量子点因与电信波长（1550纳米）兼容，已成为量子通信领域的研究重点。硒化镉/硫化锌核壳量子点能够抑制闪烁效应，但不太适合高纯度单光子应用 [29, 205]。

为提升性能，研究人员采用了壳层钝化，例如使用硫化锌涂层抑制表面缺陷；也采用了掺杂，例如掺入 Mn^{2+} 以调控自旋态，从而推动量子产率和单光子纯度接近理论极限 [205, 206]。然而，材料本征效率仍受低光提取率（通常低于 10%）和温度敏感性的限制；在高温下，声子散射会导致性能下降 [207, 208]。因此，过去五年来，研究重点已转向优化光子结构，以克服这些材料局限并提升器件级性能。

微腔和纳米线波导通过珀塞尔效应显著提升了效率。微柱、靶心腔、开放腔和绝热柱等常见腔体设计带来了显著的性能提升。早在2016年，潘建伟团队便利用微柱腔将效率从 10% 提高到 66%；到2025年，他们通过可调谐开放微腔实现了单点量子点耦合，首次达到可扩展光子量子计算的门槛 [14, 171]。等离激元纳米天线进一步将亮度提升了七倍，将发射寿命缩短了一半，并显著抑制了闪烁 [209]。此外，Li等人 通过线阵等离激元天线耦合实现了高方向性，预测收集效率可接近 85% [210]。

除了效率方面的突破，与光通信的兼容性也有所提升，尤其是在电信波段优化方面。通过分子束外延生长等技术进步，砷化铟/磷化铟量子点如今能够在1550纳米实现低噪声单光子发射，使其与光纤网络完全兼容 [29, 211]。此外，正如前文所述，集成了量子点的硅基光子晶体为实现可扩展的量子光源阵列提供了一条途径。

尽管光子结构方面取得了进展，传统材料仍需要持续改进工程设计。优化核壳结构，并推进液滴外延和位点控制生长等制备技术，已提升了性能 [208, 212]。

尽管对传统材料的研究有所放缓，新型材料却日益受到关注，这与第一条研究方向相呼应。过渡金属二硫属化物（TMDs）单层材料中的量子点凭借其灵活性引起了广泛关注。其较弱的范德华结合力为异质集成带来了丰富的可能性。有关详细讨论，请参阅 [28]。钙钛矿是另一种前景广阔的量子点材料。与传统量子点和TMDs不同，钙钛矿量子点（PQDs）在保持其他量子点所具有的高纯度特性的同时，还能在室温下提供出色的可调谐性。它们易于与腔耦合的特性，使其在可扩展量子光子学应用中尤其具有吸引力。

缺陷中心 对于基于缺陷的单光子发射体而言，金刚石仍是基石，其中 NV中心具有较长的自旋相干时间和稳定的光学跃迁。然而，其发射谱较宽且亮度适中，限制了量子通信效率。这推动了人们对金刚石 IV族空位的兴趣，例如硅（SiV）、锗（GeV）和锡空位（SnV）中心。SiV中心具有窄零声子线（ZPL），且德拜-沃勒因子较高，因此能够实现高效的光子提取 [126]。SnV中心的零声子线更窄，并具有自旋-光子接口，在量子网络领域展现出应用前景，但需要低温。除金刚石外，碳化硅（SiC）缺陷（如双空位）可实现电信波长发射并具备CMOS兼容性；六方氮化硼则具有超高亮度的室温缺陷和高空间分辨率，非常适合片上集成 [126, 130, 131, 213]。

尤其是，六方氮化硼（hBN）是一种极具前景的材料。其平面结构使其非常适合与其他光子电路集成。与过渡金属二硫属化物（TMDs）类似，它是一种具有强面内键合和弱层间相互作用的层状材料，因此天生兼容平面集成技术。六方氮化硼中的缺陷，例如能够发射尖锐零声子线（ZPL）的缺陷，可以嵌入多层薄片中，同时保持其光学性质 [130,131, 214]。值得注意的是，六方氮化硼的发射范围很宽，从紫外到近红外；在一个受到共振驱动的六方氮化硼量子发射体中，首次观察到了拉比振荡和共振荧光发射的迹象（参见表 1） [131, 215]。近年来，在与圆形布拉格光栅（CBG）光子微结构耦合的多层六方氮化硼中，发现了一种引人注目的二次谐波产生（SHG）现象，这为令人期待的应用创造了条件 [216, 217]。尽管其性能尚未达到预期水平，但它仍是一个极具吸引力且值得研究的替代方案。

表 2：UPB、SPDC/FWM 和量子点之间的性能比较。

光源	$g^{(2)}(0)$	亮度（光子/秒）	集成性	实验复杂度
UPB	<0.5 [148] ∼ 0.2	1×10^3	中等（需要复杂腔体设计）	非常高
SPDC/FWM	0.01 ∼ 0.1（需后选择）	1×10^4 [1]; $10^3 \sim 10^8$	Low（大体积）	High（需要复用技术）
QDs	<0.01 [224, 225]; 0.2 [72]; 0.0075% 在低温下 [175]	1×10^6 [2]; $10^6 \sim 10^9$	High（片上集成）	中（通常需要低温）

2.4.2 概率源

尽管概率源仍被广泛使用，但它们已不再是最受关注的单光子发射器（SPE）。如前所述，自发参量下转换（SPDC）、四波混频（FWM）和 UPB 等技术依靠非线性光学过程生成光子对。这些光源具有很高的可扩展性和可调谐性。例如，SPDC 仍广泛用于量子光学实验中的单光子产生。然而，由于 SPDC 和 FWM 中的光子对生成遵循泊松分布，因此无法实现确定性单光子输出。在高泵浦功率下，多对生成的概率会显著增加，因此需要采用光子数分辨探测器（PNRDs）等复杂的后选择技术。此外，通过复用或主动调制来提高效率，会增加器件尺寸和成本 [23, 218–220]。相比之下，量子发射体如今无需显著牺牲纯度即可提供足够高的效率。这一转变使量子点（QDs）和缺陷型单光子源成为研究焦点。

尽管自发参量下转换和四波混频作为单光子发射器受到限制，但它们在多光子态生成和量子信息处理方面仍不可或缺。在量子纠缠和多光子实验中，自发参量下转换是生成偏振纠缠光子对的标准方法，例如用于贝尔态制备。具有代表性的成果包括12光子纠缠实验和散射玻色子采样，展示了它们在复杂量子协议中的作用 [154, 221]。对于量子通信和量子密钥分发，自发参量下转换具有宽广的波长可调谐范围，例如电信C波段，因此非常适用于光纤通信（参见表 1） [42, 56, 140]。在量子网络和非线性干涉中，四波混频通过级联过程产生多模量子关联光束，因此对连续变量量子网络具有重要价值 [45, 222]。

对于 UPB，由于理论复杂性、与其他光源的竞争以及实验挑战，相关研究进展相对有限。表2 比较了 UPB 与其他光子源的性能。显然，UPB 在纯度和亮度方面逊色不少，而且实验难度高，导致研究需要耗费大量时间和资源。

此外，在需要波长匹配、带宽压缩和多光子纠缠的情境下，非线性光学过程具有出色的可调谐性。如表1所示，四波混频（FWM）的调谐范围高达 132.5 meV，而量子点的调谐范围通常低于 1 meV。如此宽广的波长可调谐性使四波混频非常适合跨波段应用，例如可见光到电信波段的接口 [154, 227]。此外，自发参量下转换（SPDC）可借助腔增强和群速度匹配等动态技术灵活地压缩带宽，而量子点本身的带宽就很窄 [228]。非线性光学过程还支持多参数优化和高维编码，因此在量子技术中不可或缺 [23, 146, 229]。因此，量子发射体和非线性光学过程发挥着互补作用：量子发射体擅长构建可扩展量子网络，而非线性过程则更适用于多光子协议和对波长敏感的应用。

具体而言，在可调谐性和纯度方面，表1 显示，部分光源的纯度已达到理论极限，这标志着一项重大突破。然而，这些光源，尤其是量子点，可调谐性有限。相比之下，调谐范围较宽的光源往往效率较低，且片上集成性较差。这凸显了对一种兼具高纯度、可调谐性和高效率的多功能单光子发射器的需求。因此，我们探究了杂化有机-无机钙钛矿量子点，它们在保持传统量子点高纯度的同时，具有更强的可调谐性和更低的闪烁。下文将详细探讨杂化有机-无机钙钛矿量子点。

3 杂化钙钛矿单光子发射器

有机-无机杂化钙钛矿是用于单光子发射的前景材料，属于更广泛的钙钛矿家族。由于转换效率高、发射特性优异，这类材料在太阳能电池、激光发射和发光二极管等领域引发了广泛关注，尤其是在光伏领域 [230–236]。作为单光子源，杂化有机-无机钙钛矿量子点与其他钙钛矿量子点一样，具有优异的组成和尺寸可调性，这是其相较于其他量子点的一大优势。更重要的是，与其他钙钛矿量子点相比，它具有更宽的调谐范围，同时能保持高纯度而不会引发严重闪烁（参见图 10）。本节将介绍HOIP材料，考察杂化有机-无机钙钛矿单光子发射体背后的三种关键机制，并严格分析不同的实现方案。

钙钛矿是指一类具有独特晶体结构的材料，其通式为 ABX_3。A位由一价阳离子占据，可以是金属或有机分子，例如 Cs^+ 或 $CH_3NH_3^+$。B位含有较小的二价金属阳离子，通常为 Pb^{2+} 或 Sn^{2+}；X位则由阴离子占据，通常是卤化物，如 Cl^-、Br^- 或 I^-，如图 10(a) 所示。根据 A、B 和 X 的选择，钙钛矿分为三类：有机钙钛矿、全无机钙钛矿和有机-无机杂化钙钛矿。

杂化有机-无机钙钛矿以其有机A位阳离子为特征，例如甲胺基 CH_3NH_3 或甲脒基 CH_3NH_2,，与铅或锡等无机金属B位阳离子结合。近年来，钙钛矿作为单光子源备受关注，尤其是胶体钙钛矿量子点（cPQDs） [72, 86]。选择HOIP材料，既是出于制备方面的考虑，也因为其光稳定性。选择胶体钙钛矿是因为其易于制备，而在钙钛矿家族中选择杂化有机-无机钙钛矿，则是因为其具有更优异的光学和电子特性。

3.0.1 易于制备

过去十年间，在不可区分性和效率方面，III-V族半导体量子点一直引领着单光子发射器的发展 [27, 64, 72, 86]。然而，这种出色性能的背后是制备过程的高度复杂性。如上一节所述，作为一类外延量子点，III-V族量子点依赖于分子束外延和金属有机化学气相沉积，这些技术需要精确控制、在低温下运行，且成本高昂 [27, 64, 72, 86]。此外，还必须进行低温冷却，以抑制晶格振动并维持相干性 [64]。

相比之下，胶体钙钛矿量子点提供了一种低成本的替代方案，可在室温下的温和条件中制备 [72, 86, 242]。它们还得益于超快非辐射复合，可有效抑制多光子发射，因此不受温度影响且性能稳健。胶体钙钛矿量子点的另一项显著优势是其极高的发射量子产率，最高可达 90%，远高于 CdSe 等传统量子点 [243, 244]。这种高效率结合简单的制备工艺，使胶体钙钛矿量子点非常适合大规模生产。本文不讨论钙钛矿量子点的详细合成方法。有关详细综述，请参阅 [64, 242]。

最重要的是，cPQDs 具有高度可调性。通过调整其卤化物组成（X = 氯、溴、碘）或利用量子尺寸效应，其发射波长可覆盖整个可见光谱（410–700 nm），并且在蓝绿色区域（410–530 nm）表现尤为出色。相比之下，传统金属硫属化物量子点在该范围内会迅速退化 [243]，通常还需要借助机械应变或外场进行调谐 [239]。此外，传统外延量子点依赖材料选择（例如砷化铟、氮化镓）或量子限制斯塔克效应来调谐波长，但其调谐范围有限，并且需要外部电场[184, 245, 246]。

截至目前，cPQDs 已实现纯净、明亮且窄线宽的室温单光子发射 [72]。其易获取性和商业可用性推动了其自 2015 年以来日益增长的受欢迎程度。与需要复杂晶格匹配的 III-V族量子点不同，钙钛矿能够轻松与波导等光子结构集成，因此成为可扩展量子光子学的有前景平台。

3.0.2 光稳定性增强

然而，如前所述，胶体量子点（包括钙钛矿量子点）天生容易出现闪烁行为。自 2015 年首次展示 $CsPbI_3$ 钙钛矿量子点以来，强限域全无机铅卤钙钛矿凭借其优异的光电性质，已成为量子点的主流选择 [72, 86]。这些钙钛矿量子点的尺寸为 5–15 nm，发射波长可在约 400–700 nm 范围内调谐 [28]。这类强限域钙钛矿量子点通常依靠快速的俄歇速率，大幅抑制多光子发射 [72, 247]。其二阶关联函数可近似表示为：

$$g^{(2)}(0) \approx \eta_{XX}/\eta_X \approx 4\tau_{XX}/\tau_X. \tag{12}$$

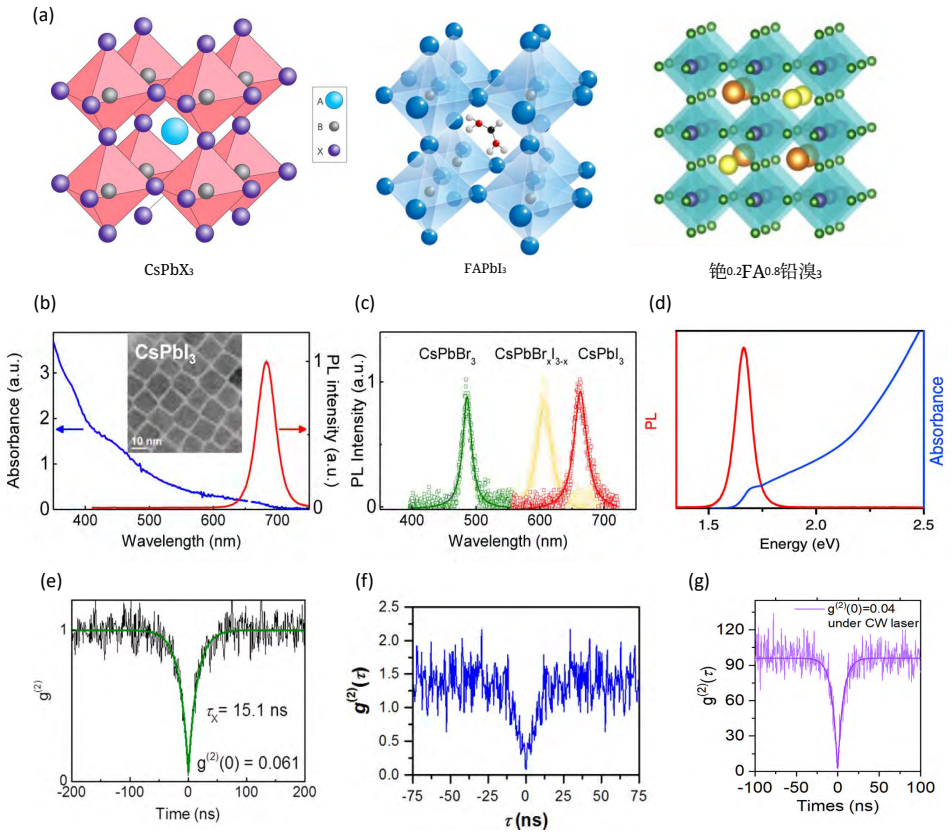


图10：用于单光子发射的钙钛矿：（a）钙钛矿晶体结构。左：钙钛矿的通用结构。所有卤化物无机 $CsPbX_3$ 均具有相同的结构 [237]。经许可转载自《自然·光子学》8, 506 (2014)。版权所有 2014 施普林格·自然有限公司。中：有机钙钛矿 $FAPbI_3$ [238]的晶体结构。M. Fu 等，发表于《自然·通讯》9, 3348 (2018)；采用知识共享署名（CC BY）许可。右：杂化有机-无机钙钛矿 $Cs_{0.2}FA_{0.8}PbBr_3$ [239]的晶体结构。经许可转载自 ACS Photonics 10, 197 (2023)。版权所有 2023 美国化学会。（b）、（c）、（d）钙钛矿量子点的吸收和光致发光光谱：（b）$CsPbX_3$ [86]的吸收和光致发光光谱。经许可转载自 ACS Nano 9, 10386 (2015)。版权所有 2015 美国化学会。（c）$CsPbBr_xI_{3-x}$的光致发光强度。随着 x 减小，光谱发生红移[86]。经许可转载自 ACS Nano 9, 10386 (2015)。版权所有 2015 美国化学会。（d）甲苯溶液 [238]中 $FAPbI_3$ 的吸收和光致发光光谱。M. Fu 等，发表于《自然·通讯》9, 3348 (2018)；采用知识共享署名（CC BY）许可。（e）、（f）、（g）在连续波（c.w.）激发下测得的钙钛矿量子点二阶光致发光强度关联函数：（e）单个 $CsPbI_3$ 量子点，$g^{(2)}(0) = 0.061$ [86]。经许可转载自 ACS Nano 9, 10386 (2015)。版权所有 2015 美国化学会。（f）单个 $CsPbBr_3$ 纳米晶体，$g^{(2)}(0) = 0.06$ [240]。经许可转载自 ACS Nano 9, 12410 (2015)。版权所有 2015 美国化学会。（g）单个 $FAPbBr_3$ 量子点，$g^{(2)}(0) = 0.04$ [241]。经许可转载自 ACS Nano 18, 10807 (2024)。版权所有 2024 美国化学会。

这使钙钛矿量子点能够实现高单光子纯度，$g^{(2)}(0) = 2\%$ [241, 248]。早期研究已系统探讨了系综水平的光致发光行为，包括在不同介电环境或外部扰动下的强度标度和光谱调制 [249–251]。然而，强限域也会使尺寸较小的单颗钙钛矿量子点出现闪烁（参见图11(a)） [81, 82, 85, 91, 252]。

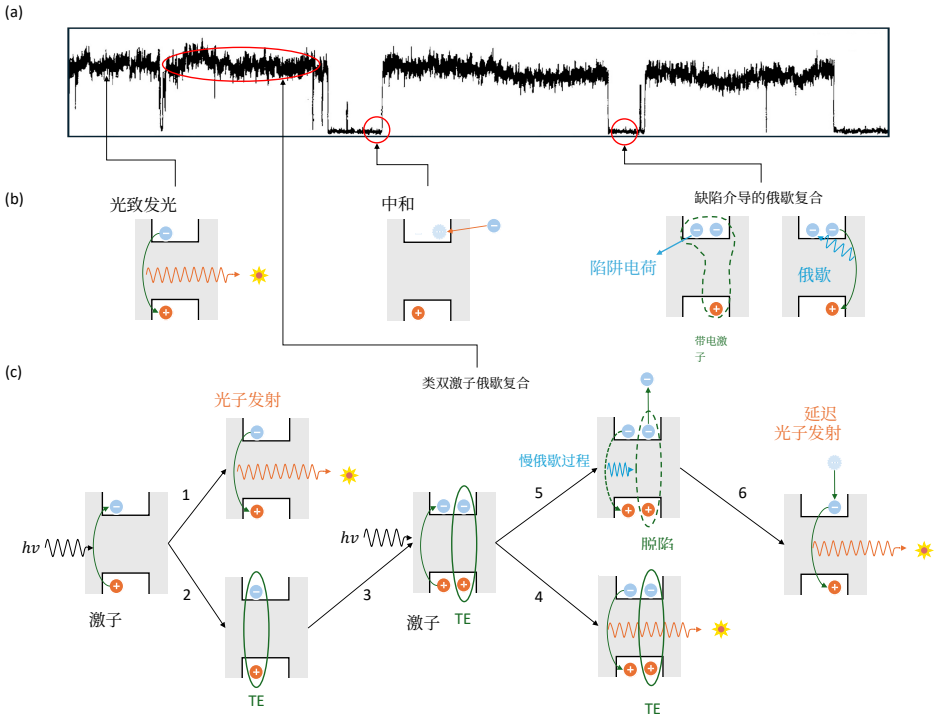


图11：俄歇复合诱导的闪烁：(a) 在连续波激发强度为0.7 kW cm^2[91]的条件下，半径为2.1 nm、包覆七单层厚ZnS壳层的单个CdSe纳米晶的光致发光强度随时间的变化。经许可转载自Nature**383**, 802 (1996)。版权所有 © 1996 施普林格·自然有限公司。(b) A型闪烁的示意图。该过程分为三个阶段：光致发光、缺陷介导的俄歇复合和中和。激子中的一个电荷被俘获，并与另一个激子形成带电激子。当激子复合时，能量转移至陷阱电荷，而非发出光子。这形成了一个持续时间较长的关闭态。随后，陷阱电荷脱离并最终返回量子点，从而结束闪烁循环。改编自 [80, 82]。经许可转载自Nat. Nanotechnol. **11**, 661 (2016)。版权所有 © 2016 施普林格·自然有限公司。经许可转载自Nature**479**, 203 (2011)。版权所有 © 2011 施普林格·自然有限公司。(c) 激子与陷阱激子（TE）之间所提出的类双激子俄歇相互作用示意图：当量子点中产生激子时，它会发射一个光子（路径1）或被俘获（路径2）。含有TE的量子点可再次受到激发（路径3），形成激子-TE对。在TE的作用下，激子可以发射光子（路径4）。或者，激子-TE对中也可能发生类双激子俄歇复合（路径5）。随后，TE获得能量并脱陷，形成恢复正常的激子（路径6），同时伴有延迟光致发光。改编自 [253]。经许可转载自J. Phys. Chem. Lett. **14**, 5466 (2023)。版权所有 © 2023 美国化学会。

缺陷介导的俄歇复合是 A 型闪烁的主要成因之一，在钙钛矿量子点中尤其如此，因为其电荷载流子动力学对缺陷、外场和激子相互作用高度敏感。激子形成后，卤化物空位和配体钝化不完全等表面缺陷会产生带隙中间能级。激子中的一个电荷载流子会被这些缺陷位点俘获。这种俘获会阻止辐射复合，并使量子点带电。若空穴被俘获，量子点带正电；若电子被俘获，则带负电，从而使量子点产生净电荷。随后再次激发时，带电量子点中会产生另一个电子-空穴对。新激子与被俘获的电荷结合形成带电激子，并发生非辐射俄歇复合。电子-空穴复合释放的能量会转移给被俘获的电荷，使其脱离量子点或跃迁至高能态。在整个过程中都不会发射光子，导致量子点进入持续时间较长的关闭态。

带有过剩能量的陷阱电荷随后会从量子点中逸出，进入周围的基质（如配体）

表3：钙钛矿量子点、杂化钙钛矿量子点与III-V族量子点的比较

性质	钙钛矿量子点	杂化钙钛矿量子点	III-V族量子点
合成方法 [28, 64, 255, 256]	胶体（热注入，LARP、合成后修饰）	胶体（热注入法，LARP、合成后处理和改性）	外延（分子束外延，金属有机化学气相沉积）
合成复杂度	Low	Low	High
工作温度 [72, 86, 112]	室温	室温	低温
组成可调谐性 [130, 184, 239]	High	High	Low
光稳定性 [86, 241, 257]	Low	High	High
集成潜力	高（可溶液加工）	高（兼容片上集成）	中（需要冷却装置）

注：此比较仅供参考，适用于各类量子点的一般代表性情况。具体配方、先进的合成技术以及器件结构都可能显著改变所列性质。例如，一些高度稳定的钙钛矿量子点可能表现出与III-V族量子点相当的光稳定性。

或衬底。请注意，“带电量子点”指的是中性量子点中的电荷分离，因此电荷逸出会激活电场，进一步加剧俄歇复合。但闪烁过程并未就此结束。由于电荷守恒，逸出的电荷之后需要返回量子点，从而完成闪烁循环 [80, 82]。图11(a) 展示了典型的闪烁光谱，并说明了 A 型闪烁的过程。可以观察到，亮态期间存在波动，而这无法用三激子模型解释。Mi等人 （2024年）提出了一种微观模型，用于解释光致发光期间的波动（参见图 11(c)） [253]。

为抑制闪烁，目前研究最广泛的方法是为量子点添加壳层，形成核-壳结构 [67, 69, 81, 82, 254]。然而，这种方法往往会以降低单光子纯度为代价 [241, 248]。例如，Tang 等人使用硫化镉壳层包覆 $CsPbBr_3$ 纳米晶体，降低了其光致发光间歇性，而$g^{(2)}(0)$为 0.43。此外，2016年，Rainò 等人展示了直径为 9.5 nm 的单个 $CsPbX_3$(X=Cl、Br) 量子点，其具有超快辐射衰变，从而实现了无闪烁发射。虽然这一现象是在低温（6 K）而非室温下实现的，此时声子相互作用受到抑制，因此激子的相干体积增大 [236]。这增强了振子强度。因此，辐射寿命大幅缩短。由于辐射衰变极快，激子会在发生非辐射过程之前复合，从而抑制俄歇衰减。同样，其$g^{(2)}(0)$约为 0.3。对于完全未经钝化且未进行介电工程的裸纳米晶体而言，这是一个相当不错的数值，但不如 0.06 [86, 236] 这类较低数值理想。

另一方面，杂化有机-无机钙钛矿量子点在室温下能够以极小的代价实现无闪烁发射。杂化有机-无机钙钛矿量子点并非依赖尺寸相关的限域效应，而是通过有机阳离子的作用减轻闪烁。此外，钙钛矿量子点中的A位阳离子不必严格为有机阳离子。通过将有机阳离子引入全无机钙钛矿量子点（如 $CsPbBr_3$, ），可以增强其光谱可调性和结构稳定性 [239]。表3 比较了这些不同类型量子点的性能。

3.1 杂化有机-无机钙钛矿单光子发射体的光子发射机制

通常，杂化有机-无机钙钛矿单光子发射体可根据尺寸通过三种不同的发射机制工作。杂化有机-无机钙钛矿通常被制成纳米晶体（1–100 nm），以增强其光学性质。当其尺寸减小至低于激子玻尔半径（钙钛矿中为 2–20 nm ）时，就会出现量子限域效应，使其成为量子点。相比之下，尺寸较大的纳米晶体仍可能发射单光子，但不具备量子限域效应，而是依靠空位、间隙原子或表面态等缺陷态来俘获激子。

实现高性能杂化有机-无机钙钛矿单光子发射体最有前景的方法，是利用对无机钙钛矿量子点的广泛研究成果来制备杂化有机-无机钙钛矿量子点。主要有两种构型：强限域量子点和弱限域量子点。

- 强限域量子点利用强库仑相互作用和快速俄歇复合来增强可调谐性。这些

量子点得益于高效的电荷载流子动力学，从而实现精确的光谱控制。

- 弱限域量子点依靠介电屏蔽或激子-激子排斥来抑制俄歇复合，从而最大限度地减少光致发光闪烁，同时不牺牲单光子纯度。

俄歇复合驱动型量子点与俄歇复合降低型量子点之间的这一区别，使得研究人员能够针对不同的量子光子学应用，对杂化有机-无机钙钛矿单光子发射体进行定制设计，以优化其性能。

3.1.1 强限域杂化有机-无机钙钛矿量子点

强限域杂化有机-无机钙钛矿量子点的工作机制与无机钙钛矿量子点基单光子发射器相似，但有一个关键区别：在无机 $CsPbBr^+$ 钙钛矿量子点中引入有机 FA_3 阳离子。这种掺杂策略拓宽了光谱可调谐范围，使这些量子点可与传统的可调色单光子发射器相媲美[239]。重要的是，加入 FA^+ 不会显著改变钙钛矿量子点的尺寸或形状，因此能够保留其原有的量子限域和维度。

D'Amato 等人（2024年）的光致发光测量表明，增加 FA^+ 含量会使半高全宽（FWHM）增大，并延长量子点的平均寿命 [239]。这是因为以较大的 FA^+ 阳离子取代铯$^+$ 会使 $PbBr_6$ 八面体骨架发生畸变，导致 Pb-Br 键长增加、键角改变。由于价带（Br 4p轨道）和导带（Pb 6p轨道）对结构变化极为敏感，随着 Pb-Br 键长增加，带隙会变窄，使发射向更长波长移动 [258]。D'Amato 等人证明，随着 FA^+ 浓度（x 表示 $FA_xCs_{1-x}PbBr_3$）增加，带隙会逐渐减小，从而实现从约 505 nm（纯 $CsPbBr_3$）到 537 nm（纯 $FAPbBr_3$）的精确光谱调谐，如图12（a）、（b）所示。这一 30 nm（150 meV）的调谐范围优于电场或应变调谐等传统调谐方法；后者通常只能实现小于 1 meV 的频移（参见表1） [169, 184, 239]。

虽然它们并非完全无闪烁，但其光致发光强度高于 $CsPbBr_3$, ，并且保持了显著的反聚束特性（$g^{(2)}(0) < 0.5$ （95%的发射体具有该特性）（参见图 12(c)） [239]。这些发现表明，强限域杂化有机-无机钙钛矿量子点是可扩展单光子发射体的一个颇具前景的平台，兼具光谱可调性、稳定性和高纯度量子发射。

3.1.2 弱限域杂化有机-无机钙钛矿量子点

弱限域杂化有机-无机钙钛矿量子点并不依赖极快的俄歇复合来抑制多光子发射，而是可通过两种主要方案实现无闪烁性能：降低快速俄歇复合，或完全避免俄歇复合。它们是本节的重点。

第一种方案。第一种方法是利用有机阳离子 FA^+ 和 MA^+ 调节有效介电常数 ε_{eff}，从而在室温 [241] 下获得高开启态占比和高纯度 $FAPbBr_3$钙钛矿量子点。

有机阳离子的存在提高了 ε_{eff}，增强了介电屏蔽，从而减弱了库仑相互作用的影响。介电屏蔽是指材料凭借其极化率"屏蔽" [84, 259, 260]电荷，从而削弱带电粒子之间库仑相互作用的能力。库仑相互作用显著影响激子和双激子形成等关键过程，进而影响光致发光中的俄歇复合和闪烁行为。强库仑相互作用会促进双激子和带电激子形成，导致俄歇复合以及发射强度的波动。

费米黄金定则描述了俄歇速率对库仑相互作用的依赖关系：

$$\frac{1}{\tau_{\text{A}}} = \frac{2\pi}{\hbar}\int |G^{\text{Aug}}|^2 \rho(\varepsilon_{\text{f}}) = \frac{2\pi}{\hbar}\int |\langle \Psi_{\text{i}}| \frac{e^2}{\kappa_{\text{Aug}}|r_1 - r_2|} |\Psi_{\text{j}}\rangle|^2 \rho(\varepsilon_{\text{f}}), \tag{13}$$

其中， $\rho(\varepsilon_{\text{f}})$为载流子末态密度，$G^{\text{Aug}}$ 为俄歇库仑矩阵元，r_1 和r_2 为电子的坐标， κ_{Aug} 为介电常数 [81, 82]。

根据式（13），较高的介电常数能够屏蔽库仑相互作用，减弱电子-空穴束缚强度并抑制双激子形成 [260, 261]。因此，激子复合的可能性降低，导致激子寿命延长（τ_{X}），并抑制A型闪烁，而A型闪烁与俄歇复合直接相关。

具体而言，弱限域量子点是通过增大量子点尺寸来合成的，从而减弱量子限域作用。随着量子点尺寸增大，电子-空穴对的运动自由度增加，库仑相互作用减弱 [260, 261]。库仑作用强度的降低会减弱双激子

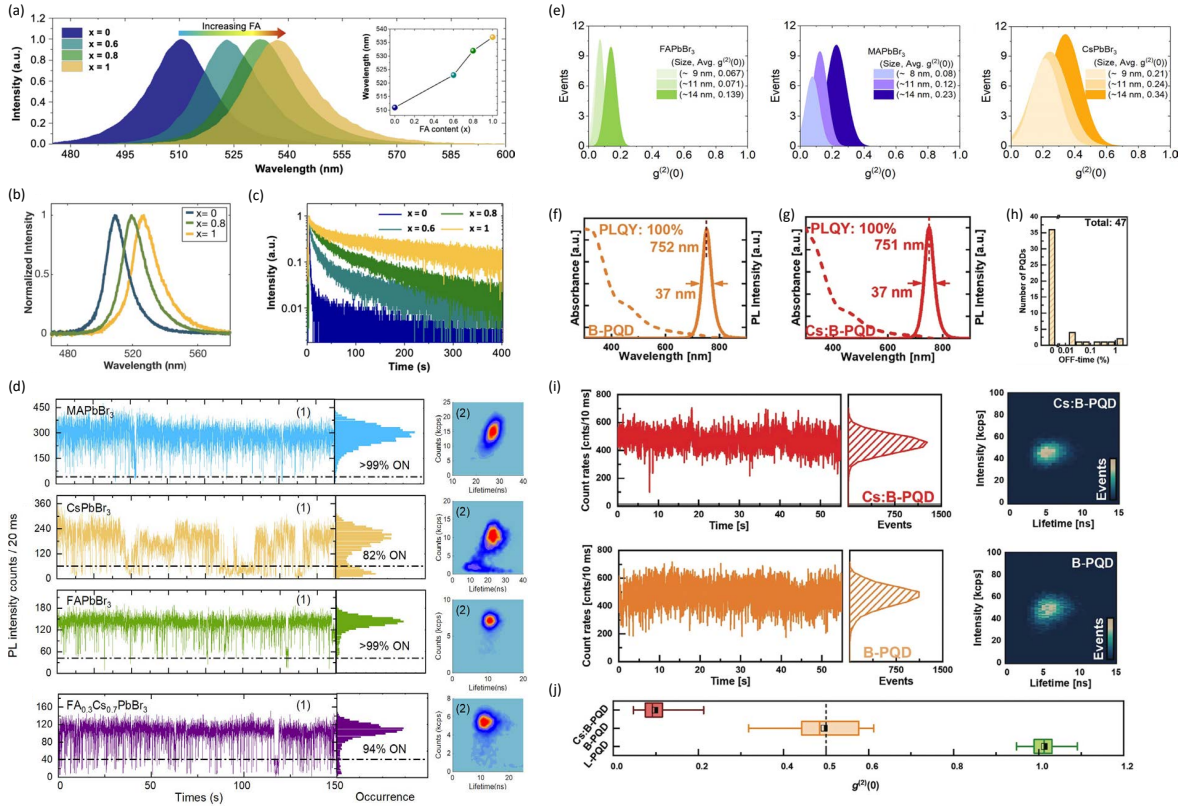


图12：不同方案下杂化有机-无机钙钛矿量子点的性能。(a)-(c) 强限域杂化有机-无机钙钛矿量子点的性能：(a) $CsPbBr_3$ (蓝色)、$Cs_{0.4}FA_{0.6}PbBr_3$ (青色)、$Cs_{0.2}FA_{0.8}PbBr_3$ (绿色)和$FAPbBr_3$ (黄色)量子点集合的归一化光致发光光谱。(b) 单个$CsPbBr_3$ (蓝色)、$Cs_{0.4}FA_{0.6}PbBr_3$(青色)、$Cs_{0.2}FA_{0.8}PbBr_3$ (绿色)和$FAPbBr_3$ (黄色)量子点的归一化光致发光光谱。(c) $Cs_{1-x}FA_xPbBr_3$ 量子点 [239]的时间分辨光致发光寿命测量。经许可转载自 ACS Photonics 10, 197 (2023)。版权所有 © 2023 美国化学会。(d)-(e) 弱限域杂化有机-无机钙钛矿量子点第一种方案的性能：(d) 11 nm $MAPbBr_3$, $CsPbBr_3$, $FAPbBr_3$, 和 $FA_{0.3}Cs_{0.7}PbBr_3$ 单个钙钛矿量子点荧光时间轨迹中观察到的开关闪烁行为。(e) 具有不同组分和尺寸 [241]的 $APbBr_3$ (A =FA、MA、Cs) 钙钛矿量子点的 $g^{(2)}(0)$ 直方图分布。经许可转载自 ACS Nano 18, 10807 (2024)。版权所有 © 2024 美国化学会。(f)-(j) 弱限域杂化有机-无机钙钛矿量子点第二种方案的性能：(f) $MAPbI_3$的吸收光谱和光致发光光谱。(g) Cs掺杂$MAPbI_3$的吸收光谱和光致发光光谱。(h) 共计47个单独Cs掺杂$MAPbI_3$ 钙钛矿量子点的关态时间直方图分布。(i) 60秒内的单光子发射时间轨迹及相应的荧光寿命-强度分布（FLID）图。上图：Cs掺杂$MAPbI_3$；下图：$MAPbI_3$。(j) 通过LARP方法合成的Cs掺杂$MAPbI_3$(红色)、$MAPbI_3$ (橙色)和$MAPbI_3$ 钙钛矿量子点（绿色）的$g^{(2)}(0)$ [252]。经许可转载自 Small 20, 2308676 (2024)。版权所有 © 2023 Wiley-VCH有限公司。

形成概率，从而抑制俄歇复合。非辐射复合事件减少，闪烁也随之减弱，单光子发射纯度则更高。此外，弱限域可使激子态更加稳定，电子和空穴保持松散束缚，从而避免快速复合，或形成可能干扰单光子发射的多激子态。

它们的表面积体积比也更低，减少了与表面接触的电荷载流子数量。因此，电子或空穴可能局域化的表面陷阱更少，从而减轻B型闪烁 [262]。此外，弱限域可减轻由电荷载流子动力学和表面缺陷密度导致的闪烁。在 $FAPbBr_3$, Wang等人采用了一种室温合成法，可形成尺寸更大的量子点。与旨在制备更小、强限域量子点的合成技术（如热注入法）相比，这种方法条件较为温和 [241, 263]。

需要指出的是，介电屏蔽不会损害单光子纯度，而是优化库仑作用强度。尽管较弱的库仑相互作用会降低双激子束缚，但由于多载流子增强，双激子俄歇复合仍然很快（寿命短τ_{XX}）。由于双激子本身经历更强的相互作用，即使库仑作用减弱，仍足以维持快速俄歇复合。通过调节有机阳离子，使 ε_{eff} 略高于全无机钙钛矿中的水平，可维持足够的库仑作用强度，以实现双激子俄歇复合 [88]。这确保双激子俄歇复合仍然高效，同时抑制单激子俄歇复合，从而减少闪烁并提高亮度。

Wang 等人已通过实验验证了这一方法等，见 2024 [155]。他们的结果表明，尺寸为 11 nm 的 $FAPbBr_3$ 钙钛矿量子点的平均$g^{(2)}(0)$ 仅为 0.071，同时在 20 ms 时间窗口内实现了超过 99% 的开启时间占比。该$g^{(2)}(0)$数值低于低温下 $CsPbCl/Br_3$ 的数值 [238]。尽管纯度最高的钙钛矿量子点仍是 $CsPbI_3$, , 但结合其无闪烁特性，$FAPbBr_3$ 钙钛矿量子点展现出极具前景的性能 [18, 72]。他们的实验还证实，提高混合 $FA_xCs_{1-x}PbBr_3$ 钙钛矿量子点中的 x 值，可提升单光子纯度和开启态占比（参见图12(d)-(e)) [241]。这些发现表明，杂化有机-无机钙钛矿量子点是实现稳定、高纯度、无闪烁单光子发射器的一种颇具前景的替代方案。

第二种方案。 第二种方案利用负双激子束缚能，完全避免俄歇复合，从而抑制 A 型闪烁。2024 年，Chuang 等人 通过一种新颖的合成与结构工程方法，实现了从 11 nm 的 $MAPbI_3$ 钙钛矿量子点中获得无闪烁的室温单光子发射，这是一项突破 [252]。与前两种方法不同，该方法着重于将 Cs 引入有机阳离子，而非向铯基钙钛矿中添加有机阳离子。由于 Cs^+ 比 MA^+小，它会在钙钛矿晶格中诱导压缩应变 [264, 265]。这种应变会改变晶体对称性，并改变电子和空穴波函数的空间重叠，从而削弱激子之间的库仑吸引。

应变诱导的晶格畸变会形成类似于 II 型异质结的交错能带结构，使电子和空穴在量子点内空间分离 [264]。这种分离会增强同种电荷载流子之间的排斥相互作用，例如电子—电子或空穴—空穴排斥，从而使双激子形成变得不稳定 [266]。与第一种方案类似，铯掺杂会稳定大极化子；大极化子是由电荷载流子与晶格振动耦合形成的准粒子，它们会进一步屏蔽库仑相互作用并增强激子间的排斥作用 [267, 268]。这些作用的综合结果是形成负双激子结合能，使双激子形成在能量上不利。没有双激子，也就无需通过俄歇复合将其猝灭，从而消除了 A 型闪烁的根本原因 [252, 269]。

此外，减少多激子通道、提高结晶度并有效进行表面钝化，有助于抑制多光子发射。双激子的吸收截面比单激子小几个数量级，测得激子的吸收截面为 $1.80\times10^{-12}cm^2$，双激子的为 $0.8\times10^{-15}cm^2$ [252]。因此，即使在高泵浦通量下，单激子态仍占主导，从而最大限度地减少多光子发射。球磨合成制备的量子点表面缺陷更少，能够抑制陷阱辅助复合[270, 271]。铯掺杂可稳定晶格，进一步减少非辐射衰减通道。与第一种方案相比，第一种方案依赖于平衡快速俄歇复合以保证纯度，同时通过介电屏蔽减少闪烁；$MAPbI_3$量子点则无需依赖双激子湮灭，借助应变和极化子效应等材料固有性质抑制多激子态，从而兼顾纯度与稳定性。

Chuang 等人通过实验证明，该方案避免了纯度与稳定性之间的权衡，使材料在室温下实现无闪烁发射，并具有极高的单光子纯度（参见图12(f)-(j)）。这些基于 $MAPbI_3$的钙钛矿量子点具有显著优势。首先，它们在集合水平上表现出接近 100% 的光致发光量子产率，确保了明亮而高效的发射。其次，它们实现了创纪录的高吸收截面，提升了其在低功耗光电子应用中的实用性。第三，这些杂化有机-无机钙钛矿量子点还展现出出色的结构稳定性，在高分辨率透射电子显微镜下经受了超过一小时的电子辐照而未发生降解——

这是对传统 $MAPbI_3$ 材料的显著改进。最重要的是，它们在室温下实现了无闪烁单光子发射，纯度达95.3%；这在量子发射体中实属罕见 [252]。

3.1.3 其他方法

除了量子点结构之外，杂化有机-无机钙钛矿单光子发射体还可能通过两种机制实现：缺陷局域激子和维度限域。在尺寸超过玻尔半径的较大纳米晶中，尽管不存在量子限域，仍然可以发生单光子发射。相反，发射依赖于我们之前解释过的色心等缺陷，或依赖于捕获激子的表面态；这种现象已在较大的纳米晶和块体材料中观察到 [115, 119, 125, 272]。

另一方面，维度限域可应用于二维层状结构或纳米片中。特别是，二维钙钛矿（如Ruddlesden–Popper 相）能够形成量子阱，将激子限域在超薄层内，而无需使用量子点 [128, 130, 131, 273]。然而，目前尚未针对这两种方法开展理论或实验研究。杂化有机-无机钙钛矿量子点仍是最具前景且研究最为广泛的机制，并且已经展现出高性能。

毋庸置疑，这两种弱限域方案都代表了重大进展，但它们也面临与材料相关的局限。这些机制仅在一两种类型的材料中得到验证。尽管理论上成立，但实际应用中的挑战仍大多未被探索。例如，在第一种方案中，平衡俄歇复合速率和介电屏蔽是一个微妙的过程，轻微偏差就可能重新引发闪烁。其可重复性仍需进一步研究。此外，有机阳离子（FA^+）的引入使量子点容易发生环境降解（湿气、热），从而限制了长期稳定性 [274]。

同样，第二种方案中的$MAPbI_3$ 在环境条件（湿气、光、热）下极不稳定 [275–277]。尽管铯掺杂提高了稳健性，但其长期稳定性仍未得到证实，尤其是在器件环境中。此外，对于抑制俄歇复合至关重要的负双激子束缚能，高度依赖于应变工程和铯掺杂。这种效应可能无法直接推广到溴或氯等其他阳离子的类似物，也可能不适用于FA^+。为了探索不同的组分，Chouhan 等人展示了通过填充卤化物空位来抑制闪烁的$MAPbX_3$ （X=为Br、Cl） [257]。这是通过使用溴化物或碘化物供体进行合成后处理实现的。还应开展类似的进一步研究（参见图13（a））。为了研究其他杂化有机-无机钙钛矿材料，研究人员或许能够将其他优异性质整合到单个单光子发射器中。例如，$FAPbI_3$ 明亮的光致发光光谱可延伸至近红外区的800 nm（见表1） [238]。

更重要的是，应开展严谨的理论研究，探讨引入有机阳离子和无机阳离子的影响，尤其关注尺寸和组成等因素。此外，深入理解激子发射动力学和劈裂机制也十分重要，这或可提供其他途径，在不依赖复杂介电工程的情况下，从根本上抑制闪烁 [278]。上述方法对尺寸的依赖是进一步开展理论研究的一大缺点。换言之，量子点的尺寸被严格调控为特定数值，无法调整。一旦量子点尺寸发生变化，该方法便会从根本上失效，尤其是方法一和方法三。这不利于将研究扩展到其他不同尺寸的量子点及其集成。2025年，Mi 等人探索了使用 $\pi-\pi$ 堆叠的PEA配体，使$CsPbBr_3$ 量子点在弱限域和强限域条件下均实现了卓越的光稳定性（连续运行12小时）和高纯度（98%） [96]。 $\pi-\pi$ PEA配体的堆叠形成了近乎外延的层，降低了表面能并防止配体脱附（参见图13（b））。这消除了缺陷诱导的电荷俘获和带电激子形成，而这两者是俄歇复合和光致发光间歇性的关键诱因。稳定的配体覆盖确保激子通过辐射而非非辐射方式复合。

除了材料组成和配体策略之外，人们还探索了其他用于调控量子点发射的物理方法。特别是，通过将量子点与金属纳米结构集成，等离激元耦合策略能够增强辐射速率、实现定向单光子输出，并促进相干光物质相互作用 [279–281]。尽管这类方法关注的是光子学性能，而非闪烁抑制本身，但它们为发射调制提供了不同的框架，未来有望与电子或化学策略结合，应用于器件平台。

此外，量子点仍面临一项更广泛的挑战：重金属毒性。虽然这种方法并未完全消除铅，但未来的工程工作应着重降低其在A位阳离子中的比例，或寻找替代材料。

除了独立开展研究之外，结合两种弱限域方案尤其值得探索。方案二能够完全抑制闪烁，但其纯度低于方案一。因此，自然会考虑将介电屏蔽与应变工程相结合，从而制备出具有超低$g^{(2)}(0)$且零闪烁的量子点。此外，AR驱动方法能够制备尺寸更小的量子点，这类量子点具有优势

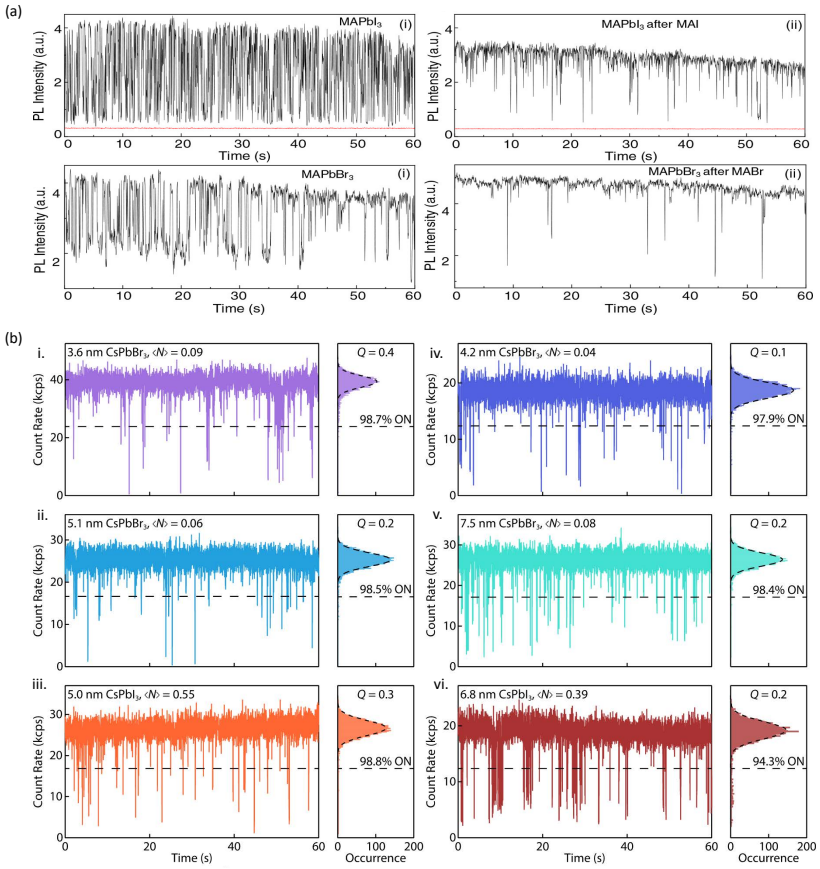


图13：其他抑制钙钛矿量子点闪烁的方法。(a) 光致发光强度轨迹显示，在填补卤化物空位后，钙钛矿量子点的闪烁受到抑制。上图：$MAPbI_3$ 经碘化甲铵溶液处理前后的轨迹。下图：$MAPbBr_3$ 经溴化甲铵溶液处理前后的轨迹[257]。经许可转载自 ACS Nano **15**, 2831 (2021)。版权归美国化学会所有，2021年。(b) 不同尺寸的 PEA 包覆 $CsPbBr_3$ 和 $CsPbI_3$ 量子点，几乎没有闪烁。 **i-vi** 四个 PEA 包覆 $CsPbBr_3$ 量子点和两个 PEA 包覆 $CsPbI_3$ 量子点的单量子点光致发光闪烁轨迹及相应的强度分布直方图 [96]。经许可转载自《自然·通讯》 **16**, 204 (2025年)。版权归作者所有。

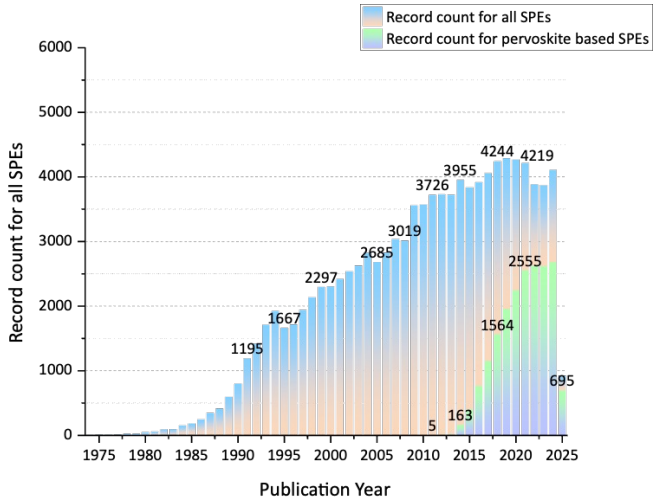


图1 4：单光子发射器的进展与基准：1971年至2025年单光子发射器和钙钛矿基单光子发射器的年度发表量。数据来源：Web of Science。

以实现集成。研究这种协同作用无疑很有价值。此外，将它们的性能与 $CsPbX_3$ 进行比较，是评估其可扩展应用的重要基准。

4 未来展望：明亮压缩真空单光子发射器?

二十多年来，单光子发射器一直是量子光学研究的核心焦点。早在2001年，单光子源的年度发表量就接近2,297篇。近年来，这一数字已增至每年6,500篇以上（见图14）。这一增长反映了技术的实质性进步：如今，最先进的单光子发射器在纯度、不可区分性和效率方面均有显著提升。

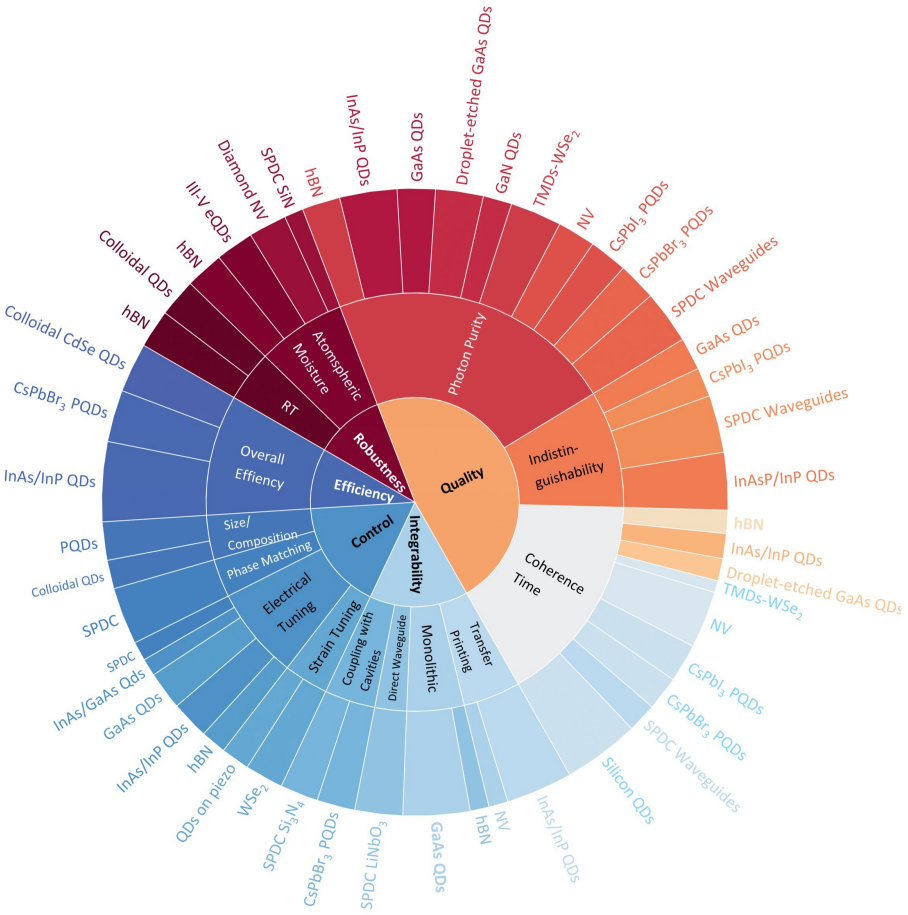
然而，尽管取得了这些进展，大多数单光子发射器仍局限于实验室环境。实现商业可行性和可扩展部署仍是一项长期目标。虽然本文主要关注可调谐性和纯度，但更广泛的性能指标对于判断单光子发射器平台能否实现规模化同样发挥着关键作用。这些指标可归纳为五项基本要求，在本文中统称为稳健性、效率、控制、集成性和质量（RECIQ）框架：

- 稳健性：在环境条件下（包括室温和大气湿度）稳定运行。
- 效率：高量子产率、光子提取效率和总体产生速率。
- 控制：光学性质可控、可调谐。
- 集成性：与现有光子平台及配套技术兼容
- 质量：具有高单光子纯度、不可区分性和长相干时间。

这些标准为评估不同平台和应用中的单光子发射器提供了通用框架，如图所示。15根据具体应用场景，RECIQ 各要素的重要性可能有所不同。例如，尽管高质量对于几乎所有量子应用都至关重要，但控制（尤其是可调谐性）在某些领域比其他领域更为关键。

本综述探讨的可调谐性属于 RECIQ 框架中的控制类别。具体而言，它指发射波长的可调节性和光学性质调制能力——这些能力对于量子计算、光谱学和混合量子系统等应用不可或缺。

例如，在量子计算中，独立发射体之间或光波导中的光子干涉往往是必需的。即使是微小的光谱失配也可能破坏干涉，损害纠缠，并使关键量子操作变得不可靠。可调谐单光子发射器能够实现多个发射体之间的精确光谱匹配，这对于玻色子采样和线性光学量子计算等协议至关重要。在量子光谱学中，可调谐光子源能够选择性地探测不同的原子或分子跃迁


Quality
Photon Purity
Indistin-guishability
Coherence Time
Robustness
Atomspheric Moisture
RT
Efficiency
Overall Effiency
Control
Size/ Composition
Phase Matching
Electrical Tuning
Strain Tuning
Coupling with Cavities
Direct Waveguide
Integrability
Monolithic
Transfer Printing
InAs/InP QDs
GaAs QDs
Droplet-etched GaAs QDs
GaN QDs
TMDs-WSe2
NV
CsPbI3 PQDs
CsPbBr3 PQDs
SPDC Waveguides
GaAs QDs
CsPbI3 PQDs
SPDC Waveguides
InAsP/InP QDs
hBN
InAs/InP QDs
Droplet-etched GaAs QDs
TMDs-WSe2
NV
CsPbI3 PQDs
CsPbBr3 PQDs
SPDC Waveguides
Silicon QDs
InAs/InP QDs
NV
hBN
GaAs QDs
SPDC LiNbO3
CsPbBr3 PQDs
SPDC Si3N4
WSe2
QDs on piezo
hBN
InAs/InP QDs
GaAs QDs
InAs/GaAs Qds
SPDC
SPDC
Colloidal QDs
PQDs
InAs/InP QDs
CsPbBr3 PQDs
Colloidal CdSe QDs
hBN
Colloidal QDs
hBN
III-V eQDs
Diamond NV
SPDC SiN
hBN

无需单独的光源。同样，在光子与其他量子平台相互作用的混合系统中，必须调节光子发射，使其与目标系统的吸收线相匹配，才能实现高效耦合。

PQDs 目前在室温条件下展现出最有前景的可调性能之一，同时具有高发射质量，这也解释了它们为何备受关注 [18, 72, 179, 282]。如今，PQDs 的年度发表论文数量占 SPEs 年度论文总数的 60% 以上（参见图 14）。然而，长期稳定性和集成方面仍存在挑战。如前所述，杂化有机-无机钙钛矿量子点在光稳定性方面带来了显著改善 [239, 241, 252], ，而进一步增强其稳健性是实现更广泛系统集成的关键一步。在集成方面，近期有关 PQDs 与纳米纤维和纳米天线耦合的演示 [55, 283] 展现出良好前景，不过，与更广泛的光子基础设施的兼容性仍在积极开发中。

在基于光纤的量子通信中，控制的含义有所不同。与量子计算或光谱学不同，这里并不需要波长可调谐性。电信系统依赖固定的光子能量，通常约为 1550纳米，即 C波段的中心波长，以最大限度地减少光纤中的衰减。由于 1300纳米窗口具有零色散特性，并且能够为经典数据传输保留较长波长，因此也很重要 [5]。在大多数情况下，无需在一定范围内进行调谐。相反，重要的是在这些电信波段实现光谱精度和稳定性。

在这里，控制 指的是保持量子特性的能力，其中最重要的是纠缠。纠缠是基于纠缠的量子密钥分发及其他多方量子协议的基础。Faleo 等人 最近使用两种高亮度、高纯度的自发参量下转换光源和切趾晶体，在 1550纳米实现了四光子纠缠，光谱纯度至少达到 98% [42]。尽管自发参量下转换光源最先得到验证，基于量子点的单光子发射体也已展现出生成纠缠光子对的能力 [43, 44, 284,285]., 并能在电信波段实现高亮度的确定性发射。

除了基于纠缠的量子密钥分发，BB84 等制备-测量协议仍被广泛使用。这些协议通常依赖量子点作为光源，且不需要纠缠。相反，它们将量子信息编码到单个光子中，通常通过偏振态进行编码。这些系统可通过光纤或自由空间链路部署，例如用于星地通信。在此类设置中，控制指的是传输过程中的偏振稳定性和比特保真度。目前，制备-测量式量子密钥分发已实现约 150 km [286–288], 的传输距离，进一步提升则取决于能否保持光子完整性。

回到可调谐性这一主题，杂化有机-无机钙钛矿量子点的调谐机制在本质上仍是静态的。要调整发射特性，必须改变材料本身，可通过改变组成、合成条件或纳米晶尺寸实现。这限制了实时控制，也阻碍了其集成到可重构或异质量子系统中。这些限制促使人们探索另一类平台：其可调谐性源于光学过程本身，而非材料工程。目前已有一些新兴光源能够天然提供动态、无需硬件的可调谐性，明亮压缩真空便是其中一例，可为基于量子点的发射体提供互补能力。明亮压缩真空具备这类可调谐性，同时还具有高亮度和多模结构。

BSV 是一种属于光压缩态的量子态。与传统预示方案不同，传统方案中的单光子产生受光子对产生的概率性所限，而基于 BSV 的方法则利用压缩态增强的亮度。这不仅提高了光子提取效率，还能精确控制其光谱和空间特性。其主要优势在于能够同时在多个模式中产生高亮度光子态。这种能力在混合量子系统和频率复用架构中潜力巨大，因为这些系统和架构受益于并行处理与相互作用。从理论上看，这类架构有望大幅提高计算效率和吞吐量。在本节余下部分，我们将探讨将 BSV 改造为 SPE 的可能性，以及其独特特性如何实现更高的可调谐性和纯度。接下来的三节中，我们将回顾 BSV 的理论背景，讨论利用 BSV 实现 SPE 的两种可能的概念性途径，最后评估利用多路复用结构发挥这些能力的理论可行性。

4.1 明亮压缩真空的理论背景

明亮压缩真空是一种宏观量子态，其特征是每个模式包含大量光子。海森堡不确定性原理，

$$\Delta x \Delta p \geq \frac{\hbar}{2}, \tag{14}$$

对共轭变量进行同时测量的精度施加了一个基本限制。在量子光学中，给定模式下的电磁场由两个正交分量算符描述，它们类似于位置和

动量：

$$\hat{X} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{a} + \hat{a}^\dagger), \quad \hat{Y} = \frac{1}{i\sqrt{2}}(\hat{a} - \hat{a}^\dagger). \tag{15}$$

在相干态这一经典光的量子类比中，这些正交分量的方差相等，并归一化为 1，从而使不确定性乘积达到最小值 [289–291]。这会形成圆形的相空间分布（参见图 16(a)）。

为区分压缩态与其经典对应态，我们首先考察真空态。它指的是电磁场的量子基态，不含相干激发。光是电磁场激发（光子）的表现形式，因此按照传统观点，真空态的平均光子数为零。然而，由于海森堡不确定性原理，量子涨落依然存在。这些涨落就像虚光子不断地产生和湮灭，无法直接探测，却是量子场行为的关键 [292]。真空态满足

$$V(x) = V(y) = 1, \tag{16}$$

其中，$V(x)$ 和 $V(y)$ 分别表示 x 和 y 的方差。

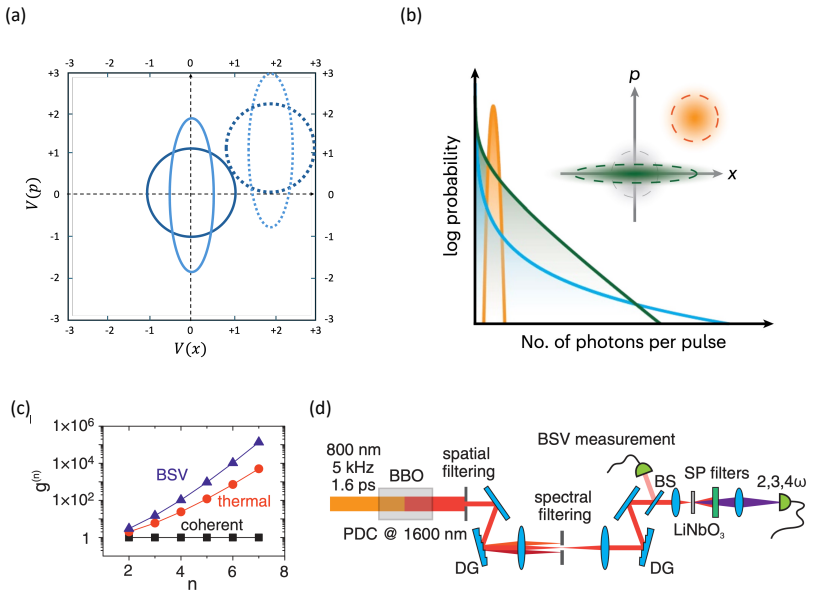


图16：明亮压缩真空的基本原理。(a) 相干态、压缩态、真空态和压缩真空态的相空间表示。圆形表示未压缩态；椭圆表示压缩态。实线表示真空态，虚线表示非真空态。(b) 相干光（橙色）和明亮压缩真空（绿色）的光子数分布，两者每个脉冲的平均光子数相同，显示明亮压缩真空的分布更宽 [293]。经许可转载自《自然·物理》**20**, 945 (2024)。版权所有 © 2024 施普林格·自然有限公司。(c) 归一化关联函数，展示相干光（黑色）、热光（红色）和明亮压缩真空（蓝色）照明下n光子效应的增强 [294]。经许可转载自《物理评论快报》**119**, 223603 (2017)。版权所有 © 2017 美国物理学会。(d) 通过高增益参量下转换产生明亮压缩真空的实验装置 [294]。经许可转载自《物理评论快报》**119**, 223603 (2017)。版权所有 © 2017 美国物理学会。

研究人员自然会寻求在遵守海森堡原理的同时降低不确定性的方法，由此提出了光压缩态的概念。当某一正交分量振幅的方差低于相干态的方差时，我们便认为该量子态处于压缩态，但代价是共轭正交分量的方差增大。这种不确定性的重新分配形成了椭圆相空间图，而非圆形图（参见图 16(a)），并以可控的方式降低量子噪声。这一特性使压缩态非常适用于精密测量和噪声敏感型应用，例如量子增强计量学和安全通信 [289, 290]。

压缩态　　态是通过对相干态应用压缩算符 $\hat{S}(\zeta)$ 得到的。单模

压缩算符定义为：

$$\hat{S}(\zeta) = \exp\left[\frac{1}{2}\left(\zeta \hat{a}^2 - \zeta^* (\hat{a}^\dagger)^2\right)\right], \tag{17}$$

其中，复压缩参数 $\zeta = re^{i\phi}$ 同时包含压缩幅度r $= \ln R$ （其中R为压缩因子）和压缩相位 ϕ [290, 295]。

不同于其他形式的量子光，压缩会引入光子聚束，显著改变数算符的期望值，$\hat{n} = \hat{a}^\dagger \hat{a}$ [290, 294, 296]。由于压缩算符关于产生算符和湮灭算符平方的指数形式，将其作用于真空态会生成偶数光子数态的叠加，从而产生压缩真空（SV）。明亮压缩真空是压缩真空的高增益区间，其特征是强压缩关联和宏观光子数 [291, 292, 297]。

对于纯压缩真空态 $|\xi\rangle$，平均光子数为：

$$\langle n \rangle = \langle \xi | \hat{a}^\dagger \hat{a} | \xi \rangle = \sinh^2(r), \tag{18}$$

其中r 是压缩算符 [290, 298]。即使r很小，$\sinh^2(r) \approx r^2$, 也不为零。因此，与“真空”一词所暗示的不同，压缩真空并非空无一物，其平均光子数不为零。具体而言，明亮压缩真空具有很大的 $\sinh^2(r)$, 因而在保持压缩关联的同时呈现宏观光子数。这里的“亮度”强调其高强度。因此，大多数关于明亮压缩真空的研究都着眼于利用其多模特性和亮度实现高次谐波产生 [292–294, 297]。

4.2 明亮压缩真空在单光子发射器中的应用

本节探讨实现单光子发射的两种概念性方案：在单一模式中分离出单光子，或将两个关联模式保留为预示光源（见图 17）。最后，我们基于这些概念讨论一种用于明亮压缩真空单光子发射器的复用结构。

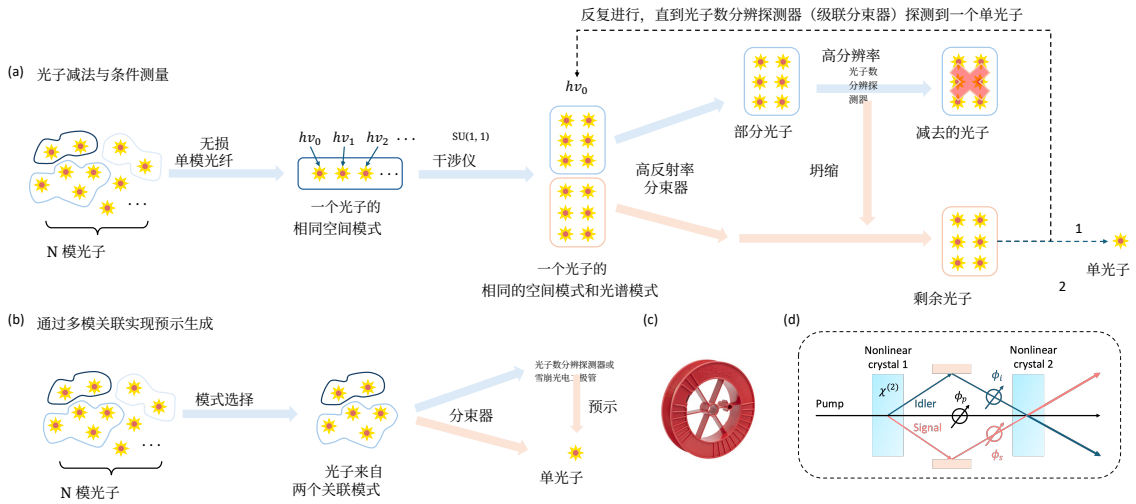


图17：两种概念性明亮压缩真空单光子发射器信道示意图。(a) 条件测量式光子减法：使用高反射率分束器和光子数分辨探测器，从明亮压缩真空态中滤出单光子。(b) 通过多模关联实现预示单光子产生：明亮压缩真空不同模式中的关联光子可实现条件探测。(c) 用于空间模式滤波的保偏单模光纤。图片由 Thorlabs 公司提供。(d) SU(1,1) 非线性干涉仪，由两个高增益参量放大器组成，可实现谱模式控制和压缩增强。改编自 [299]。经《现代光学杂志》**63**, 64 (2016)许可转载。版权所有 2016 Taylor & Francis。

4.2.1 明亮压缩真空单光子发射器的两种信道

通过条件测量进行光子减法 高质量单光子发射器的一个基本前提是不可区分性，这要求发射的光子占据单一光学模式。由于明亮压缩真空本质上是

在空间、光谱和角度域上具有多模式特性，因此要将其用于单光子发射，首先需要有效地隔离模式。

先前研究已确立实现此类隔离的可行途径。例如，Pérez 等人展示了如何产生有效空间模式数为 1.1 的明亮压缩真空（BSV），接近真正的单模态 [300]。他们还提出了一种无损滤波技术，可将 BSV 空间频谱投影到单模光纤的本征模上，并证明最大化光纤耦合强度能够切实实现单一空间模式隔离（参见图 17(c)，图 18(a)、(b)） [301]。除空间滤波外，光谱控制也至关重要。研究表明，采用由两块非线性晶体及其间空气间隙构成的 SU(1,1) 干涉仪，可在高泵浦功率下抑制光谱展宽，从而能够调控频率施密特模（参见 17(d)） [301, 302]。这种干涉方法与色散介质结合后，可调控相位、色散和参量增益，理论上确保光子处于单一光谱时间模式，从而提高不可区分性。

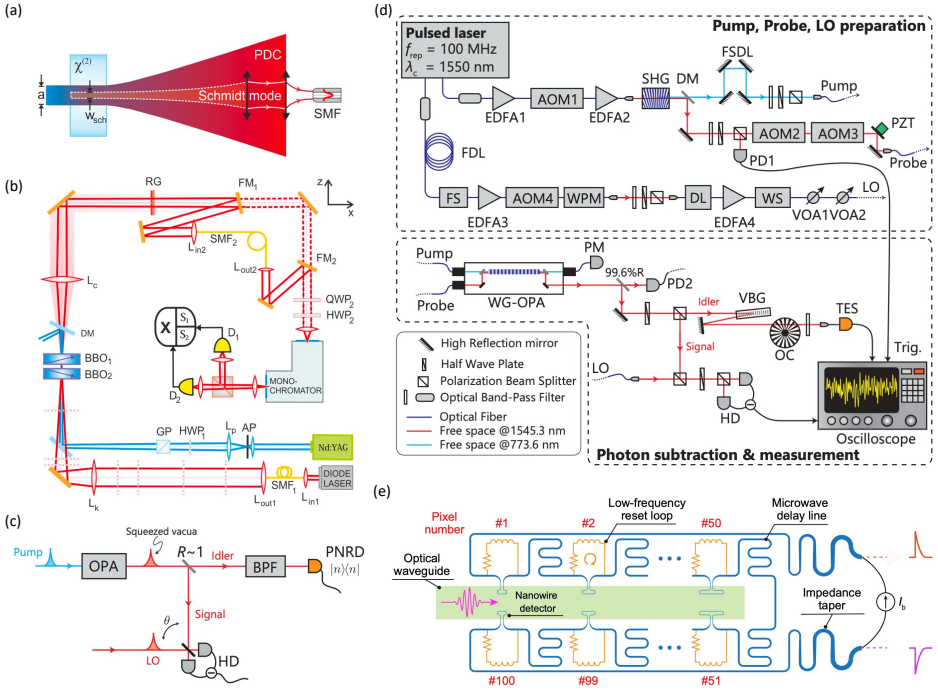


图18：BSV 单光子发射器。(a) 使用单模光纤隔离宽带参量下转换辐射单一本征模的示意图 [301]。经许可转载自《物理评论A》**92**, 053861 (2015)。版权所有 © 2015 美国物理学会。(b) 隔离单一空间施密特模的实验装置：钕掺杂钇铝石榴石激光器产生的三次谐波被导入 BBO 晶体以产生参量下转换。使用一系列透镜和单模光纤进行模式模拟与滤波。通过汉伯里·布朗-特威斯干涉仪分析滤波后的信号 [301]。经许可转载自《物理评论A》**92**, 053861 (2015)。版权所有 © 2015 美国物理学会。(c) 光子减法实验的概念示意图：光学参量放大器（OPA）产生压缩真空光，分束器分出部分光束并由光子数分辨探测器探测，同时通过零差探测以可变相位测量剩余光束 θ[303]。M. Endo 等人，《光学快报》**31**, 12865 (2023)；依据知识共享署名（CC BY）许可授权。(d) 多光子减除实验装置，包括掺铒光纤放大器（EDFAs）、声光调制器（AOMs）、二次谐波产生（SHG）、波导光学参量放大器、TES 和零差探测 [303]。M. Endo 等人，《光学快报》**31**, 12865 (2023)；依据知识共享署名（CC BY）许可授权。(e) 基于时空复用超导纳米线单光子探测器阵列的片上光子数分辨探测器架构，最多可分辨 100个光子 [304]。经许可转载自《自然·光子学》**17**, 112 (2023)。版权所有 © 2023 施普林格·自然有限公司。

然而，仅隔离模式仍不足以解决问题，因为单个模式的 BSV 可包含多达 2500 个光子[297, 305]。尽管从经典意义上说，这一光子数并不算宏观，但它显著高于弱压缩真空态的光子数，这意味着真空分量 $|0\rangle$ 和双光子分量 $|2\rangle$ 不再占主导地位 [301, 301, 302].. 为解决这一问题，光子减法是量子

光学领域中一项成熟的技术，可为转换提供理论途径 [306]。

标准光子减法会将压缩真空的偶数光子分布转变为奇数光子叠加态，从而产生以维格纳函数负值区域为特征的非高斯态（参见图18（c）） [303, 307]。这种变换通常采用弱反射分束器（$T \approx 1$，$R \ll 1$）将少量光子分流至抽头端口。在反射臂中探测到一个光子，即可推断透射光束中减去了一个光子；对于单模压缩真空，其数学描述为：

$$|\psi_{\text{sub}}\rangle \propto \hat{a}|r\rangle = \sum_{n=1}^{\infty} \sqrt{n} c_n |n-1\rangle, \tag{19}$$

其中，c_n 是原始压缩态的系数。由于明亮压缩真空仅包含偶数光子数（$|0\rangle$、$|2\rangle$、$|4\rangle$.....），减去一个光子后会得到奇数光子数态：

$$a|\psi\rangle \propto |1\rangle + \sqrt{3}\lambda|3\rangle + \sqrt{5}\lambda^2|5\rangle + \ldots \tag{20}$$

其中，a是湮灭算符。只有在反射臂中恰好探测到一个光子时，才能接受透射光束。

为了将这一机制用于高纯度单光子产生，理论上需要反转减法比率。与其减去一个光子，不如采用高反射率分束器（$T \ll 1$，$R = 1 - T$），将大部分明亮压缩真空通量分流至“减法”臂，使透射臂处于低光子数态。在这一配置中，反射臂中的高分辨率光子数分辨探测器将测量光子数N，从而仅在剩余光子数恰好为一个时，有条件地接收透射光束。

这种方法的可行性在很大程度上取决于近年来探测技术的进步。例如，Endo 等人 （2023年）利用转变边缘传感器（TES）实现了最多减除三个光子[303]，；而 Cheng 等人 则报道了一种片上探测器，它通过时空复用的超导纳米线，能够分辨多达100个光子，从而实现高阶关联函数的直接测量 $g^{(N)}$最高达 $N = 15$。[304] 。从理论上说，此类器件能够支持该方案所需的高阶减除（见图 18 （ d ）、（ e ））。在技术层面上，在这种“反向”配置中，减除的光子数等于光子数分辨探测器检测到的光子数。理想情况下，一次减除事件便会在传输臂中产生一个单光子，并由光子数分辨探测器的测量结果预示。如果态未坍缩至 $|1\rangle$，系统理论上可以采用迭代循环，或更实际地采用 HBT 后选择来验证单光子发射，从而避免反馈环路带来的光学损耗和相位失真。为保持模式纯度，理想情况下，所有组件都应通过保偏单模光纤连接。

该框架在可调谐性和光谱覆盖范围方面具有显著优势。在高增益区间，明亮压缩真空展现出极宽的带宽，可能达到 100–150 THz [308]。尽管这种宽带特性给单模产生带来挑战，却显著拓展了其适用的光谱波段。不同于依赖特定相位匹配条件的自发参量下转换和四波混频，明亮压缩真空的宽带特性便于获取多个频率；若采用短波长激光器泵浦，其范围甚至可能延伸至紫外波段 [294]。此外，由于光子减法能够有效滤除多光子贡献，该方法理论上可实现高纯度。

尽管这种方法在理论上具有上述优势，但尚未在单光子发射器应用中经过实验验证。主要挑战在于，如何协调明亮压缩真空固有的多模特性和高光子通量与单光子发射器的严格单模要求 [292, 294, 297]。尽管投影滤波和光子减法提供了理论上的解决方案，但探测极限、光学损耗以及精确调节参数（例如压缩强度和反射率）的复杂性，仍阻碍其实践应用 [309]。因此，需要进行广泛的实验验证，以确认能否克服后选择效率方面的权衡，从而实现实用光源。

通过多模关联实现预示生成 另一种理论框架不将 BSV 简化为单一可操作态，而是保留其内禀的高维结构。高增益非线性过程（如 PDC 或 FWM）会产生孪生光束，其强光子数关联分布于众多空间、时间或频谱通道 [289, 291, 294]。从概念上说，BSV 可建模为一个由双模压缩真空（TMSV）态构成的宏观储备库。因此，利用这一光源类似于从更广阔的态流形中滤出特定的纠缠对，如图 17（b）所示。

该机制依赖于一种概率性预示协议。在文献中常见的标准配置中，一个双模压缩真空（TMSV）分量经过一个 50/50 分束器，其中一路由光子数分辨探测器（PNRD）监测 [219]。

由于该量子态具有严格的相关性，在监测路径（模式 A）中恰好探测到一个光子，理论上即可确认共轭路径（模式 B）中存在一个单光子。

这种条件探测过程与前文讨论的光子减法方法有着本质区别。在光子减法中，光子被移除，从而使系统在物理上坍缩为非高斯态。在这种预示方案中，目标模式中的光子不会被移除；相反，模式 B 中的单光子依据模式 A 中的关联测量结果加以识别。随后应用后选择逻辑，只接受 PNRD 检测到单光子计数的事件。虽然针对特定低增益区间的详细实验配置已有研究，但如何将这一逻辑应用于高增益 BSV 区间，仍有待进一步的理论和实验探索 [219, 220]。

4.2.2 多路复用 BSV 单光子发射器结构

尽管前文讨论的光子减法和关联预示方法为实现单光子发射提供了途径，但它们必然需要舍弃 BSV 态的很大一部分，以分离出单一模式。这一过程会造成显著的光子损耗，类似于非常规光子阻塞系统所面临的效率挑战。然而，BSV 的显著特征，即极高的亮度和多模结构，表明多路复用架构在理论上或可缓解这些损耗。借鉴成熟的自发参量下转换光源策略（其中，时间或频谱复用可提高每个周期产生单光子的概率），可以设想将类似框架应用于 BSV，从而使纯度与效率相互独立。

鉴于明亮压缩真空天然涵盖多个光谱模式，实际上形成了宽带频率梳，因此从理论上看，采用频谱复用策略是可行的。该方法并非滤出单一频率并丢弃其余部分，而是将明亮压缩真空的宽频谱视为一系列独立的量子信道。其概念架构是利用色散元件将明亮压缩真空输出分离为不同的频率箱，从而实现状态解复用。分离之后，可利用共轭频谱模式间存在的强光子数关联，预示单光子的存在。预示出特定信道后，再通过主动光开关将光子路由至单一输出端，从而把并行的频谱分布转换为高重复率的单光子串流。

这种方法的可行性基于施密特模分解，该方法能够精确量化光谱纠缠和有效模式数 [302]。理论分析表明，明亮压缩真空的频谱分布具有动态可控性。Sharapova 等 （2018年、2020年）的研究表明，SU(1，1)干涉仪能够实现对明亮压缩真空的精确光谱控制，同时通过级联或并行配置实现多通道输出 [292, 302]。引入色散介质可进一步优化光谱分离。通过调节群速度失配，可以选择性地放大特定频段[302]。例如，由两个非线性晶体和色散元件组成的干涉仪可产生多个独立的频谱通道。

至关重要的是，明亮压缩真空的物理特性表明，高效复用需要在特定增益区间内运行。反直觉的是，降低泵浦增益可能会提升这种复用结构的效用。在高增益下会出现“增益窄化”效应：由于基阶施密特模式主导相互作用，主谱瓣变窄，而旁瓣受到抑制 [302]。这一现象可由下式理解：

$$\langle N_s(\omega_s)\rangle = \sum_n |u_n(\omega_s)|^2 \Lambda_n, \tag{21}$$

$$\Lambda_n = \frac{\sinh^2(G\sqrt{\lambda_n})}{\sum_n \sinh^2(G\sqrt{\lambda_n})}. \tag{22}$$

其中， Λ_n 表示第n个模式随增益变化的权重，$u_n(\omega_s)$表示施密特模式的频率，G 表示参量增益，而 λ_n 表示固定的施密特本征值。随着增益增大，主模式$n=0$ 的权重会不成比例地增加，从而有效缩窄带宽并减少可用信道的数量。反之，在较低增益下运行可保持更宽的带宽，从而增加可用于复用的光谱模式数量。此外，较低增益还能抑制每个独立信道中的多光子分量，便于分离预示逻辑所需的单光子对。

需要注意的是，这种窄化效应假设在存在色散和泵浦延迟 [302]的情况下，模式形状保持不变。如果模式形状取决于增益，单晶装置反而可能出现光谱展宽 [292]。

从实现角度来看，尽管这种架构在实验上要求很高，但所需的基本组件，例如色散解复用器和快速光开关，在经典电信领域都已是标准配置。挑战在于将这些技术集成到能够保持明亮压缩真空（BSV）特定相干性特征的量子电路中。如果能够克服这些集成障碍，这种系统理论上或可将 BSV 的宽带特性从需要大量滤波的负担转化为支持并行生成的优势，从而显著提升光源的可扩展性。

4.3 理论可行性与实施挑战

从理论上看，多路复用架构的实施潜力巨大，有望保留明亮压缩真空（BSV）出色的可调谐性和亮度，从而克服单模滤波的效率瓶颈。施密特模分解框架为这类系统奠定了坚实的理论基础，可精确量化光谱纠缠和有效模式数，这些参数对于高效信道选择至关重要 [302]。此外，利用 SU(1,1) 非线性干涉仪可为光谱工程提供可靠的机制 [292, 302]。通过调节泵浦增益和色散特性，这类干涉装置理论上能够定制 BSV 输出，使其与特定的解复用网格相匹配，从而提高提取出的单光子纯度。此外，BSV 在共轭模之间固有的强光子数关联，为高保真预示探测提供了物理基础；模式分离后，可确保输出逻辑具有确定性。

然而，目前用于描述这类系统的理论模型仍存在局限。降低增益能够持续保持或拓宽有效带宽这一假设，具有很强的条件性，且取决于特定的色散和泵浦延迟配置。偏离这些理想条件可能导致与标准预测相悖的光谱行为，例如意外变窄或分裂 [292]。因此，标准施密特分解可能不足以全面描述高增益区间内的光谱展宽效应，这表明需要采用更复杂的积分微分模型，才能准确预测系统性能。

从实用角度来看，实现复用型明亮压缩真空（BSV）光源面临着重大的工程难题。明亮压缩真空的产生通常依赖体材料自发参量下转换（SPDC）或四波混频（FWM）装置，这使其难以集成到量子信息处理所需的紧凑、可扩展光子电路中 [289, 291, 294]。此外，引入阵列波导光栅（AWG）等解复用组件以及高速交换网络，不可避免地会带来光学损耗。在多级复用装置中，这些累积损耗会严重降低信噪比。定时精度也是一项挑战；尽管超导纳米线单光子探测器（SNSPD）具有卓越的分辨率，定时抖动低于 15 ps，但并行探测信道之间的同步误差仍可能损害预示信号的保真度 [310–312]。

尽管存在这些挑战，明亮压缩真空（BSV）的架构优势仍为继续研发提供了充分理由。与传统的概率型自发参量下转换光源相比，复用型明亮压缩真空方案提供了一条提高单光子概率的途径，无需使用独立发射体阵列。明亮压缩真空固有的频域编码与硅光子学中成熟的波分复用技术天然契合，因此有望成为量子网络中可扩展的资源。此外，这种结构天然支持并行量子处理：独立量子信道可在不同光谱模式上运行，理论上能够实现同步多光子操作，从而显著提高系统吞吐量 [313]。

5 结论

本文基于机制对单光子发射器进行了分析，重点阐述了两种主导性物理范式：量子发射体跃迁和非线性光学过程。我们批判性地审视了它们的当前进展和性能指标，尤其关注可调谐性与纯度——这两项是实现可扩展量子应用的关键基准。尽管已取得显著进展，但这些指标之间固有的权衡仍是实际应用的一大障碍。

为解决基于材料的调谐所面临的局限，我们着重介绍了杂化有机-无机钙钛矿量子点这一出色平台。我们的分析证实，杂化有机-无机钙钛矿量子点凭借三种不同的物理机制抑制闪烁并增强稳定性，独特地弥合了室温下高纯度与宽范围可调谐性之间的差距。此外，为了标准化对这类多样系统的评估，我们提出了RECIQ框架。该指南提供了一套统一指标，用于评估稳健性、效率、控制、集成性和质量，可为旨在设计可扩展、高性能光源的未来研究提供参考。

然而，尽管杂化有机-无机钙钛矿中的材料工程能在近期带来显著提升，单模发射器的可扩展性仍受制于根本性限制。超越材料组成这一范畴，我们的综述将光学态工程确定为一个互补的前沿方向。具体而言，我们探讨了明亮压缩真空作为下一代光源的高潜力候选方案。我们不再仅仅依赖单发射器隔离，而是探讨了如何通过理论上的复用架构，利用明亮压缩真空的内在多模结构和宏观亮度。通过综合非线性光学与量子网络的相关概念，我们的讨论表明，这类框架在理论上有望使效率摆脱纯度约束。尽管目前仍处于概念阶段，这一观点为克服传统预告光源的随机性限制提供了颇具说服力的路线图，并有望拓展实用量子技术的应用范围。

作者声明

利益冲突

作者没有需要披露的利益冲突。

作者贡献

Galy Yang: 数据整理（同等贡献）；形式分析（同等贡献）；调查（同等贡献）；方法学（同等贡献）；撰写——初稿（同等贡献）。**Eric Ashalley:** 调查（同等贡献）；方法学（同等贡献）；撰写——初稿（同等贡献）。**Zhi mingM. Wang:** 监督（同等贡献）。**AbolfazlBayat:** 撰写——审阅与编辑（支持性贡献）。**Arup Neogi:** 概念构思（同等贡献）；项目管理（同等贡献）；资源提供（同等贡献）；监督（同等贡献）；验证（同等贡献）；撰写——审阅与编辑（同等贡献）。

数据可用性

本文不适用数据共享，因为本研究未创建或分析新数据。

参考文献

[1] T. J. Durant, E. Knight, B. Nelson, S. Dudgeon, S. J. Lee, D. Walliman, H. P. Young, L. Ohno-Machado, and W. L. Schulz, 《量子计算及其在医疗保健和生物医学研究中的应用入门》，《美国医学信息学协会杂志》**31**，1774–1784（2024年）。[2] Y. Arakawa 和 M. J. Holmes, 《面向量子信息技术的量子点单光子源进展：全面综述》，应用物理评论**7**（2020年）。[3] N. Aslam, H. Zhou, E. K. Urbach, M. J. Turner, R. L. Walsworth, M. D. Lukin 和 H. Park, 《用于生物医学应用的量子传感器》，自然评论：物理**5**，157–169（2023年）。[4] A. J. Daley, I. Bloch, C. Kokail, S. Flannigan, N. Pearson, M. Troyer 和 P. Zoller, 《量子模拟中的实用量子优势》，Nature**607**，667–676（2022年）。[5] C. Couteau, S. Barz, T. Durt, T. Gerrits, J. Huwer, R. Prevedel, J. Rarity, A. Shields 和 G. Weihs, 《单光子在量子通信和计算中的应用》，自然评论：物理**5**，326–338（2023年）。[6] S. Gupta, W. Wu, S. Huang 和 B. I. Yakobson, 《二维材料的单光子发射，迈向更光明的未来》，《物理化学杂志快报》**14**，3274–3284（2023年）。[7] R. H. Hadfield, J. Leach, F. Fleming, D. J. Paul, C. H. Tan, J. S. Ng, R. K. Henderson 和 G. S. Buller, 《用于远距离成像和传感的单光子探测》，Optica**10**，1124–1141（2023年）。[8] C. Couteau, S. Barz, T. Durt, T. Gerrits, J. Huwer, R. Prevedel, J. Rarity, A. Shields 和 G. Weihs, 《单光子在量子计量学、生物学和量子物理学基础研究中的应用》，自然评论：物理**5**，354–363（2023年）。

[9] M. D. Eisaman, J. Fan, A. Migdall 和 S. V. Polyakov, 《特邀综述：单光子源与探测器》, 《科学仪器评论》82（2011年）。[10] D. Cogan, Z.-E. Su, O. Kenneth 和 D. Gershoni, 《簇态中不可区分光子的确定性生成》, 《自然·光子学》17，324–329（2023年）。[11] W. Li, L. Zhang, H. Tan, Y. Lu, S.-K. Liao, J. Huang, H. Li, Z. Wang, H.-K. Mao, B. Yan 等, 《超过110 mb s–1的高速率量子密钥分发》, 《自然·光子学》17，416–421（2023年）。[12] Y. Liu, W.-J. Zhang, C. Jiang, J.-P. Chen, C. Zhang, W.-X. Pan, D. Ma, H. Dong, J.-M. Xiong, C.-J. Zhang 等, 《跨越1000 km光纤距离的双场量子密钥分发实验》, Physical Review Letters 130，210801（2023年）。[13] N. Maring, A. Fyrillas, M. Pont, E. Ivanov, P. Stepanov, N. Margaria, W. Hease, A. Pishchagin, A. Lemaître, I. Sagnes 等, 《多功能基于单光子的量子计算平台》, 《自然·光子学》18，603–609（2024年）。[14] X. Ding, Y.-P. Guo, M.-C. Xu, R.-Z. Liu, G.-Y. Zou, J.-Y. Zhao, Z.-X. Ge, Q.-H. Zhang, H.-L. Liu, L.-J. Wang 等, 《超过耐损耗阈值、可实现高效线性光学量子计算的高效率单光子源》, 《自然·光子学》, 1–5（2025年）。[15] J. A. Lau, V. B. Verma, D. Schwarzer 和 A. M. Wodtke, 《用于物理化学和光谱学的中红外超导单光子探测器》, 化学会评论52，921–941（2023年）。[16] L. You, 《用于量子信息的超导纳米线单光子探测器》, Nanophotonics 9，2673–2692（2020年）。[17] I. Esmaeil Zadeh, J. Chang, J. W. Los, S. Gyger, A. W. Elshaari, S. Steinhauer, S. N. Dorenbos 和 V. Zwiller, 《超导纳米线单光子探测器：演进历程、最先进水平、未来发展与应用展望》, Applied Physics Letters 118（2021年）。[18] A. E. Kaplan, C. J. Krajewska, A. H. Proppe, W. Sun, T. Sverko, D. B. Berkinsky, H. Utzat 和 M. G. Bawendi, 《胶体 CsPbBr3 钙钛矿纳米晶中的洪–欧–曼德尔干涉》, 《自然·光子学》17，775–780（2023年）。[19] K. Parto, S. I. Azzam, K. Banerjee 和 G. Moody, 《单层 WSe2 的缺陷与应变工程实现最高150 k的位点控制单光子发射》, 《自然·通讯》12，3585（2021年）。[20] P. Thomas, L. Ruscio, O. Morin 和 G. Rempe, 《从单原子高效生成纠缠多光子图态》, Nature 608，677–681（2022年）。[21] S. Harris, M. Oshman 和 R. Byer, 《可调谐光学参量荧光的观测》, Physical Review Letters 18，732（1967年）。[22] F. Kaneda, B. G. Christensen, J. J. Wong, H. S. Park, K. T. McCusker 和 P. G. Kwiat, 《时间复用预示单光子源》, Optica 2，1010–1013（2015年）。[23] C. Zhang, Y.-F. Huang, B.-H. Liu, C.-F. Li 和 G.-C. Guo, 《用于多光子实验的自发参量下转换光源》, 《先进量子技术》4，2000132（2021年）。[24] C. Kießler, M. Kirsch, S. Lengeling, H. Herrmann 和 C. Silberhorn, 《钛扩散切割脊形 LiNbO3 波导中的自发参量下转换单光子源》, Optics Continuum 4，593–606（2025年）。[25] Y.-C. Tseng, Y.-C. Wei 和 Y.-C. Chen, 《通过腔增强自发参量下转换产生光子偏振量子比特的高效量子存储器》, 《光学快报》30，19944–19960（2022年）。[26] K. B. Dideriksen, R. Schmieg, M. Zugenmaier 和 E. S. Polzik, 《具有近毫秒内置存储器的室温单光子源》, 《自然·通讯》12，3699（2021年）。[27] P. Senellart, G. Solomon 和 A. White, 《高性能半导体量子点单光子源》, Nature Nanotechnology 12，1026–1039（2017年）。

[28] M. Esmann、S. C. Wein 和 C. Antón-Solanas，《固态单光子源：新型量子材料的最新进展》，《先进功能材料》34，2315936（2024年）。[29]T. Smołka、K. Posmyk、M. Wasiluk、P. Wyborski、M. Gawełczyk、P. Mrowi´nski、M. Mikulicz、A. Zieli´nska、J. P. Reithmaier、A. Musiał 等，《分子束外延生长的第三通信窗口发射型 InAs/InP 量子点在分布式布拉格反射器上的光学质量》，《材料》14，6270（2021年）。[30] C. Shen、W. Zhan、K. Xin、M. Li、Z. Sun、H. Cong、C. Xu、J. Tang、Z. Wu、B. Xu 等，《机器学习辅助和实时反馈控制的 InAs/GaAs 量子点生长》，《自然·通讯》15，2724（2024年）。[31] M. von Helversen、A. V. Haisler、M. P. Daurtsev、D. V. Dmitriev、A. I. Toropov、S. Rodt、V. A. Haisler、I. A. Derebezov 和 S. Reitzenstein，《在（111）B GaAs衬底上生长的共振激发量子点的触发式单光子发射》，《固体物理学报（RRL）—快速研究快报》16，2200133（2022年）。[32] S. Thomas 和 P. Senellart，《理想单光子源的竞赛已经开始》，Nature Nanotechnology 16，367–368（2021年）。[33] S. Morozov、S. Vezzoli、A. Myslovska、A. Di Giacomo、N. A. Mortensen、I. Moreels 和 R. Sapienza，《室温下提纯巨壳层 CdSe/CdS 量子点的单光子发射》，《纳米尺度》15，1645–1651（2023年）。[34] X. You、M.-Y. Zheng、S. Chen、R.-Z. Liu、J. Qin、M.-C. Xu、Z.-X. Ge、T.-H. Chung、Y.-K. Qiao、Y.-F. Jiang 等，《通过300 km光纤实现独立单光子源间的量子干涉》，Advanced Photonics 4，066003–066003（2022年）。[35] I. A. Khramtsov 和 D. Y. Fedyanin，《低温下明亮的碳化硅单光子发射二极管：迈向量子光子学应用》，《纳米材料》11，3177（2021年）。[36] Z. O. Martin、A. Senichev、S. Peana、B. J. Lawrie、A. S. Lagutchev、A. Boltasseva 和 V. M. Shalaev，《低温下氮化硅本征单光子发射体的光物理学》，《先进量子技术》6，2300099（2023年）。[37] M. Hollenbach、N. Klingner、N. S. Jagtap、L. Bischoff、C. Fowley、U. Kentsch、G. Hlawacek、A. Erbe、N. V. Abrosimov、M. Helm 等，《硅中通信波段单光子发射体的晶圆级纳米制造》，《自然·通讯》13，7683（2022年）。[38] X. Xu、Z. O. Martin、D. Sychev、A. S. Lagutchev、Y. P. Chen、T. Taniguchi、K. Watanabe、V. M. Shalaev 和 A. Boltasseva，《在芯片兼容衬底上确定性地制备六方氮化硼量子发射体》，《纳米快报》21，8182–8189（2021年）。[39] L. Spencer、J. Horder、S. Kim、M. Toth 和 I. Aharonovich，《在六方氮化硼靶心腔中单片集成单量子发射体》，ACS Photonics 10，4417–4424（2023年）。[40] Y. Kutovyi、M. M. Jansen、S. Qiao、C. Falter、N. Von Den Driesch、T. Brazda、N. Demarina、S. Trel[40] lenkamp、B. Bennemann、D. Grützmacher 等，《基于氯掺杂 ZnSe 纳米柱的高效单光子源及其生长控制的发射能量》，ACS Nano 16，14582–14589（2022年）。[41] M. Keller，《单个囚禁离子的腔量子电动力学》，Contemporary Physics 63，1–14（2022年）。[42] T. Faleo、E. Brunner、J. W. Webb、A. Pickston、J. Ho、G. Weihs、A. Buchleitner、C. Dittel、G. Dufour、A. Fedrizzi 等，《纠缠诱导的集体多体干涉》，《科学进展》10，eadp9030（2024年）。[43] M. Zahidy、M. T. Mikkelsen、R. Müller、B. Da Lio、M. Krehbiel、Y. Wang、N. Bart、A. D. Wieck、A. Ludwig、M. Galili 等，《利用确定性单光子源通过已部署的现场光纤链路进行量子密钥分发》，《npj量子信息》10，2（2024年）。[44] Y. Meng、M. L. Chan、R. B. Nielsen、M. H. Appel、Z. Liu、Y. Wang、N. Bart、A. D. Wieck、A. Ludwig、L. Midolo 等，《真正三量子比特纠缠的确定性光子源》，《自然·通讯》15，7774（2024年）。

[45] A. Pscherer、M. Meierhofer、D. Wang、H. Kelkar、D. Martín-Cano、T. Utikal、S. Götzinger 和 V. San- doghdar，《单分子真空拉比劈裂：单光子水平的四波混频与光开关》，Physical Review Letters 127，133603（2021年）。[46] J. Iles-Smith、M. K. Svendsen、A. Rubio、M. Wubs 和 N. Stenger，《利用级联量子系统按需预示的 MIR 单光子源》，《科学进展》11，eadr9239（2025年）。[47] A. Nowak、S. Portalupi、V. Giesz、O. Gazzano、C. Dal S avio、P.-F. Braun、K. Karrai、C. Arnold、L. Lanco、I. Sagnes 等，《确定性电调谐明亮单光子源》，《自然·通讯》5，3240（2014年）。[48] L. Aolita 和 S. Walborn，《利用多量子比特单光子态实现无需对准的量子通信》，Physical Review Letters 98，100501（2007年）。[49] G. Liu、W. Zhou、D. Gromyko、D. Huang、Z. Dong、R. Liu、J. Zhu、J. Liu、C.-W. Qiu 和 L. Wu，《量子纳米光子学中的单光子产生与操控》，应用物理评论 12（2025年）。[50] G. N. Lewis，《光子守恒》，Nature 118，874–875（1926年）。[51] M. Planck，《对维恩方程的改进》，Ann. Physik 1，719–721（1900年）。[52] R. J. Glauber，《辐射场的相干态与非相干态》，Physical Review 131，2766（1963年）。[53] R. J. Glauber，《光学相干性的量子理论》，Physical Review 130，2529（1963年）。[54] R. H. Brown 和 R. Q. Twiss，《两束相干光束中光子间的关联》，Nature 177，27–29（1956年）。[55] S. Pierini、M. d’Amato、M. Goyal、Q. Glorieux、E. Giacobino、E. Lhuillier、C. Couteau 和 A. Bramati，《高光稳定性钙钛矿纳米立方体：基于锥形纳米光纤的集成单光子源》，ACS Photonics 7，2265–2272（2020年）。[56] S. Euler、E. Fitzke、O. Nikiforov、D. Hofmann、T. Dolejsky 和 T. Walther，《用于量子密钥分发的自发参量下转换单光子源的光谱表征》，The European Physical Journal Special Topics 230，1073–1080（2021年）。[57] C.-K. Hong、Z.-Y. Ou 和 L. Mandel，《通过干涉测量两个光子之间的亚皮秒时间间隔》，Physical Review Letters 59，2044（1987年）。[58] T. Müller、J. Skiba-Szymanska、A. Krysa、J. Huwer、M. Felle、M. Anderson、R. Stevenson、J. Heffernan、D. A. Ritchie 和 A. Shields，《面向1550 nm附近标准电信窗口的量子发光二极管》，《自然·通讯》9，862（2018年）。[59] D. B. Higginbottom、L. Slodiˇcka、G. Araneda、L. Lachman、R. Filip、M. Hennrich 和 R. Blatt，《来自囚禁原子源的纯单光子》，New Journal of Physics 18，093038（2016年）。[60] A. Doherty、T. Lynn、C. Hood 和 H. Kimble，《在腔量子电动力学系统中用单光子囚禁单原子》，Physical Review A 63，013401（2000年）。[61] J. McKeever、A. Boca、A. Boozer、R. Miller、J. Buck、A. Kuzmich 和 H. Kimble，《从腔中囚禁的单个原子确定性地产生单光子》，Science 303，1992–1994（2004年）。[62] N. V. Vitanov、A. A. Rangelov、B. W. Shore 和 K. Bergmann，《物理、化学及其他领域中的受激拉曼绝热通道》，Reviews of Modern Physics 89，015006（2017年）。[63] M. Hijlkema、B. Weber、H. P. Specht、S. C. Webster、A. Kuhn 和 G. Rempe，《仅用一个原子的单光子服务器》，Nature Physics 3，253–255（2007年）。[64] F. P. García de Arquer、D. V. Talapin、V. I. Klimov、Y. Arakawa、M. Bayer 和 E. H. Sargent，《半导体量子点：技术进展与未来挑战》，Science 373，eaaz8541（2021年）。

[65] A. P. Alivisatos, A. Harris, N. Levinos, M. Steigerwald, 和 L. Brus, “半导体团簇的电子态: 光谱的均匀展宽与非均匀展宽”, The Journal of Chemical Physics**89**, 4001–4011 (1988)。[66] V. I. Klimov, “半导体纳米晶中的多载流子相互作用及其与俄歇复合和载流子倍增现象的关系”, Annu. Rev. Condens. Matter Phys. **5**, 285–316 (2014)。[67] O. Chen, J. Zhao, V. P. Chauhan, J. Cui, C. Wong, D. K. Harris, H. Wei, H.-S. Han, D. Fukumura, R. K. Jain, 等, “具有窄发射线宽和受抑制闪烁的紧凑型高质量硒化镉–硫化镉核壳纳米晶”, Nature Materials **12**, 445–451 (2013)。[68] R. Su, A. Fieramosca, Q. Zhang, H. S. Nguyen, E. Deleporte, Z. Chen, D. Sanvitto, T. C. Liew, 和 Q. Xiong, “用于室温激子-极化激元物理的钙钛矿半导体”, Nature Materials **20**, 1315–1324 (2021)。[69] H. Zang, H. Li, N. S. Makarov, K. A. Velizhanin, K. Wu, Y.-S. Park, 和 V. I. Klimov, “具有受抑制闪烁和窄单颗粒发射线宽的厚壳硫化铜铟/硫化锌量子点”, Nano Letters**17**, 1787–1795 (2017)。[70] A. Swarnkar, R. Chulliyil, V. K. Ravi, M. Irfanullah, A. Chowdhury, 和 A. Nag, “胶体CsPbBr3钙钛矿纳米晶：超越传统量子点的发光”, Angewandte Chemie **127**, 15644–15648 (2015)。[71] L. Tao, W. Wei, Y. Li, W. Ou, T. Wang, C. Wang, J. Zhang, J. Zhang, F. Gan, 和 X. Ou, “通过砷化镓波导的应变调谐实现能量可调量子点单光子源的片上集成”, ACS Photonics**7**, 2723–2730 (2020)。[72] C. Zhu, M. Marczak, L. Feld, S. C. Boehme, C. Bernasconi, A. Moskalenko, I. Cherniukh, D. Dirin, M. I. Bodnarchuk, M. V. Kovalenko, 等, “来自全无机铅卤化物钙钛矿量子点的室温高纯度单光子源”, Nano Letters **22**, 3751–3760 (2022)。[73] X. Huang, J. Horder, W. W. Wong, N. Wang, Y. Bian, K. Yamamura, I. Aharonovich, C. Jagadish, 和 H. H. Tan, “通过在磷化铟纳米线阵列上进行液滴外延制备可扩展的高亮度、高纯度单光子源”, ACS Nano**18**, 5581–5589 (2024)。[74] G. Almeida, L. van der Poll, W. H. Evers, E. Szoboszlai, S. J. Vonk, F. T. Rabouw, 和 A. J. Houtepen, “磷化铟胶体量子点的尺寸依赖光学性质”, Nano Letters **23**, 8697–8703 (2023)。[75] X. You 和 Y.-M. He, “通过与非对称微腔耦合，开发性能优异的量子点单光子源”, Physical Review Research **7**, L012016 (2025)。[76] V. I. Klimov, A. Mikhailovsky, S. Xu, A. Malko, J. A. Hollingsworth, A. C. Leatherdale, H.-J. Eisler, 和 M. Bawendi, “纳米晶量子点中的光学增益与受激发射”, Science**290**, 314–317 (2000)。[77] V. I. Klimov, A. A. Mikhailovsky, D. McBranch, C. A. Leatherdale, 和 M. G. Bawendi, “半导体量子点中多粒子俄歇速率的量子化”, Science**287**, 1011–1013 (2000)。[78] R. Vaxenburg, A. Rodina, E. Lifshitz, 和 A. L. Efros, “硒化镉/硫化镉核/壳半导体纳米晶中的双激子俄歇复合”, Nano Letters**16**, 2503–2511 (2016)。[79] S. J. LeBlanc, M. R. McClanahan, M. Jones, 和 P. J. Moyer, “与金薄膜耦合的单个硒化镉量子点的多光子发射增强”, Nano Letters**13**, 1662–1669 (2013)。[80] C. Galland, Y. Ghosh, A. Steinbrück, M. Sykora, J. A. Hollingsworth, V. I. Klimov, 和 H. Htoon, “通过单量子点的光谱电化学揭示的两种发光闪烁类型”, Nature**479**, 203–207 (2011)。[81] G. E. Cragg 和 A. L. Efros, “受限结构中俄歇过程的抑制”, Nano Letters**10**, 313–317 (2010)。[82] A. L. Efros 和 D. J. Nesbitt, “量子点闪烁的起源与控制”, Nature Nanotechnology**11**, 661–671 (2016)。

[83] A. Neogi, H. Everitt, H. Morkoç, T. Kuroda, 和 A. Tackeuchi，“氮化镓量子点中载流子复合效率的尺寸依赖性”，IEEE Transactions on Nanotechnology 4, 297–299 (2005)。[84] H. Zhu, K. Miyata, Y. Fu, J. Wang, P. P. Joshi, D. Niesner, K. W. Williams, S. Jin, 和 X.-Y. Zhu，“晶态液体中的屏蔽效应保护杂化钙钛矿中的高能载流子”，Science 353, 1409–1413 (2016)。[85] C. T. Trinh, D. N. Minh, K. J. Ahn, Y. Kang, 和 K.-G. Lee，“作为量子光源的有机–无机FAPbBr3钙钛矿量子点：单光子发射与闪烁行为”，ACS Photonics 5, 4937–4943 (2018)。[86] Y.-S. Park, S. Guo, N. S. Makarov, 和 V. I. Klimov，“单个钙钛矿量子点的室温单光子发射”，ACS Nano 9, 10386–10393 (2015)。[87] N. S. Makarov, S. Guo, O. Isaienko, W. Liu, I. Robel, 和 V. I. Klimov，“铯铅卤化物钙钛矿量子点中单激子、双激子和带电激子的光谱与动力学性质”，Nano Letters 16, 2349–2362 (2016)。[88] V. Chandrasekaran, M. D. Tessier, D. Dupont, P.Geiregat, Z.Hens, 和 E.Brainis，“胶体磷化铟/硒化锌量子点实现近乎无闪烁的高纯度单光子发射”，Nano Letters 17, 6104–6109 (2017)。[89] A. Neogi, H. Morkoc, T. Kuroda, A. Tackeuchi, T. Kawazoe, 和 M. Ohtsu，“垂直和横向耦合氮化镓/氮化铝量子点中的激子局域化”，Nano Letters 5, 213–217 (2005)。[90] A. Neogi, B. Gorman, H. Morkoç, T. Kawazoe, 和 M. Ohtsu，“自组装氮化镓/氮化铝纳米结构的近场光学光谱与显微术”，Applied Physics Letters 86 (2005)。[91] M. Nirmal, B. O. Dabbousi, M. G. Bawendi, J. Macklin, J. Trautman, T. Harris, 和 L. E. Brus，“单个硒化镉纳米晶体中的荧光间歇性”，Nature 383, 802–804 (1996)。[92] T. Ahmed, S. Seth, 和 A. Samanta，“对导致CsPbBr3钙钛矿纳米晶光致发光闪烁的缺陷活性进行机理研究”，ACS Nano 13, 13537–13544 (2019)。[93] J. Skiba-Szymanska, R. M. Stevenson, C. Varnava, M. Felle, J. Huwer, T. Müller, A. J. Bennett, J. P. Lee, I. Farrer, A. B. Krysa, 等，“适用于多种发射波长、具有低精细结构劈裂的量子点通用生长方案”，Physical Review Applied 8, 014013 (2017)。[94] J. Keizer, J. Bocquel, P. Koenraad, T. Mano, T. Noda, 和 K. Sakoda，“液滴外延生长的自组装砷化镓/砷镓铝量子点的原子尺度分析”，Applied Physics Letters 96 (2010)。[95] T. Strobel, J. H. Weber, M. Schmidt, L. Wagner, L. Engel, M. Jetter, A. D. Wieck, S. L. Portalupi, A. Lud-wig, 和 P. Michler，“面向先进量子光源的单极性量子点二极管结构”，Nano Letters 23, 6574–6580 (2023)。[96] C. Mi, G. C. Gee, C. W. Lander, D. Shin, M. L. Atteberry, N. G. Akhmedov, L. Hidayatova, J. D. DiCenso, W. T. Yip, B. Chen, 等，“迈向无闪烁、光稳定的钙钛矿量子点”，Nature Communications 16, 204 (2025)。[97] D. A. Hines 和 P. V. Kamat，“量子点表面化学的最新进展”，《ACS应用材料与界面》6, 3041–3057 (2014)。[98] C. Giansante，“胶体量子点带隙的表面化学调控”，《物理化学杂志C辑》122, 18110–18116 (2018)。[99] A. Baskaran 和 P. Smereka，“Stranski–Krastanov生长机制” = Cl、Br和SK生长机制”，《应用物理杂志》111 (2012)。[100] D. Eaglesham 和 M. Cerullo，“硅（100）上无位错的Stranski–Krastanow生长”，Physical Review Letters 64, 1943 (1990)。[101] J. Wu 和 Z. M. Wang，“面向先进光电子材料与器件的液滴外延”，《物理学杂志D辑：应用物理》47, 173001 (2014)。

[102] M. Gurioli, Z. Wang, A. Rastelli, T. Kuroda, 和 S. Sanguinetti, 《用于量子光子器件的半导体纳米结构液滴外延》, Nature Materials **18**, 799–810（2019）。[103] W. Hidayat 和 M. Usman, 《分子束外延在光电器件中的应用：综述》, Physica Scripta（2024）。[104] T. Sogabe, Y. Shoji, N. Miyashita, D. J. Farrell, K. Shiba, H.-F. Hong, 和 Y. Okada, 《通过电流约束工程实现高效率砷化铟/砷化镓量子点中间带太阳能电池》, Next Materials**1**, 100013（2023）。[105] P. Petroff 和 S. DenBaars, 《III-V族半导体结构中自组装量子点阵列的MBE和MOCVD生长及其性质》, Superlattices and Microstructures**15**, 15（1994）。[106] F. Hu, Z. Cao, C. Zhang, X. Wang, 和 M. Xiao, 《缺陷诱导的单个外延铟镓砷量子点光致发光闪烁》, Scientific Reports **5**, 8898（2015）。[107] J. Liu, K. Konthasinghe, M. Davanço, J. Lawall, V. Anant, V. Verma, R. Mirin, S. W. Nam, J. D. Song, B. Ma, 等, 《光子纳米结构中的单个自组装砷化铟/砷化镓量子点：纳米加工的作用》, Physical Review Applied **9**, 064019（2018）。[108] X. Wang, X. Ren, K. Kahen, M. A. Hahn, M. Rajeswaran, S. Maccagnano-Zacher, J. Silcox, G. E. Cragg, A. L. Efros, 和 T. D. Krauss, 《无闪烁半导体纳米晶体》, Nature**459**, 686–689 （ 2009 ）。[109] C. Schimpf, S. Manna, S. F. Covre da Silva, M. Aigner, 和 A. Rastelli, 《采用最高工作温度达20 K的无闪烁量子点实现基于纠缠的量子密钥分发》, Advanced Photonics **3**, 065001–065001（2021）。[110] E. Peinke, T. Sattler, G. M. Torelly, P. L. Souza, S. Perret, J. Bleuse, J. Claudon, W. L. Vos, 和 J.-M. Gérard, 《通过超快光学注入自由电荷载流子调控量子点微柱的性质》, Light: Science & Applications **10**, 215（2021）。[111] S. Xia, T. Aoki, K. Gao, M. Arita, Y. Arakawa, 和 M. J. Holmes, 《靶心结构中氮化镓量子点的增强单光子发射》, ACS Photonics **8**, 1656–1661（2021）。[112] G. Rainò, N. Yazdani, S. C. Boehme, M. Kober-Czerny, C. Zhu, F. Krieg, M. D. Rossell, R. Erni, V. Wood, I. Infante, 等, 《单个CsPbBr3钙钛矿量子点的超窄室温发射》, Nature Communications **13**, 2587（2022）。[113] S. R. Gosain, E. Bellet-Amalric, E. Robin, M. Den Hertog, G. Nogues, J. Cibert, K. Kheng, 和 D. Fer-rand, 《厚锥形纳米线中量子点蓝绿色单光子发射的定量分析》, Physical Review B **106**, 235301（2022）。[114] I. Fedin, M. Goryca, D. Liu, S. Tretiak, V. I. Klimov, 和 S. A. Crooker, 《不对称应变胶体CdSe/Cd x Zn1–x Se量子点中明激子的增强发射》, ACS Nano**15**, 14444–14452（2021）。[115] C. Kurtsiefer, S. Mayer, P. Zarda, 和 H. Weinfurter, 《稳定的固态单光子源》, Physical Review Letters**85**, 290（2000）。[116] A. Gruber, A. Drabenstedt, C. Tietz, L. Fleury, J. Wrachtrup, 和 C. v. Borczyskowski, 《单个缺陷中心的扫描共焦光学显微术和磁共振》, Science **276**, 2012–2014（1997）。[117] L. E. Brus, 《小型半导体微晶电离势、电子亲和能及水相氧化还原电势的简单模型》, The Journal of Chemical Physics**79**, 5566–5571（1983）。[118] E. Sörman, N. T. Son, W. M. Chen, O. Kordina, C. Hallin, 和 E. Janzén, 《与4H和6H碳化硅中硅空位相关的缺陷》, Physical Review B **61**, 2613（2000）。[119] J. M. Smith, S. A. Meynell, A. C. Bleszynski Jayich, 和 J. Meijer, 《面向量子技术的金刚石色心生成》, Nanophotonics**8**, 1889–1906（2019）。

[120] Á. Gali, 《金刚石中氮-空位中心的从头算理论》, Nanophotonics **8**, 1907–1943（2019）。[121] H. L. Stern, C. M. Gilardoni, Q. Gu, S. Eizagirre Barker, O. F. Powell, X. Deng, S. A. Fraser, L. Follet, C. Li, A. J. Ramsay, 等, 《环境条件下六方氮化硼中的量子相干自旋》, Nature Materials **23**, 1379–1385（2024）。[122] H. L. Stern, Q. Gu, J. Jarman, S. Eizagirre Barker, N. Mendelson, D. Chugh, S. Schott, H. H. Tan, H. Sir-ringhaus, I. Aharonovich, 等, 《六方氮化硼中单个缺陷的室温光探测磁共振》, Nature Communications **13**, 618（2022）。[123] M. E. Bathen, A. Galeckas, R. Karsthof, A. Delteil, V. Sallet, A. Y. Kuznetsov, 和 L. Vines, 《解析硅空位在碳化硅中量子发射的Jahn–Teller诱导振电精细结构》, Physical Review B**104**, 045120（2021）。[124] M. E. Bathen 和 L. Vines, 《调控金刚石和碳化硅点缺陷的单光子发射》, 《先进量子技术》**4**, 2100003（2021）。[125] C. Bradac, W. Gao, J. Forneris, M. E. Trusheim, 和 I. Aharonovich, 《利用金刚石中的IV族缺陷实现量子纳米光子学》, Nature Communications **10**, 5625（2019）。[126] W. Redjem, Y. Zhiyenbayev, W. Qarony, V. Ivanov, C. Papapanos, W. Liu, K. Jhuria, Z. Al Balushi, S. Dhuey, A. Schwartzberg, 等, 《将原子发光中心嵌入纳米光子腔, 打造全硅量子光源》, Nature Communications **14**, 3321（2023）。[127] H. Ou, 《碳化硅：量子技术的下一代集成平台》, Light: Science & Applications**13**, 219（2024）。[128] F. Peyskens, C. Chakraborty, M. Muneeb, D. Van Thourhout, 和 D. Englund, 《将单光子发射体集成到二维层状材料与氮化硅光子芯片中》, Nature Communications **10**, 4435（2019）。[129] C. Li, J. E. Froch, M. Nonahal, T. N. Tran, M. Toth, S. Kim, 和 I. Aharonovich, 《将六方氮化硼量子发射体集成到单片集成波导中》, ACS Photonics **8**, 2966–2972（2021）。[130] C. Su, F. Zhang, S. Kahn, B. Shevitski, J. Jiang, C. Dai, A. Ungar, J.-H. Park, K. Watanabe, T. Taniguchi,等, 《调控扭转六方氮化硼界面处的色心》, Nature Materials **21**, 896–902（2022）。[131] A. B. D.-a.-j.-w.-i. Shaik 和 P. Palla, 《利用六方氮化硼单光子源实现光学量子技术》, Scientific Reports **11**, 12285（2021）。[132] Q. Li, Y. Yang, W. Que, 和 T. Lian, 《CsPbBr3钙钛矿二维纳米片和一维纳米棒中尺寸和形貌依赖的俄歇复合》, 《纳米快报》**19**, 5620–5627（2019）。[133] S. Michaelis de Vasconcellos, D. Wigger, U.Wurstbauer, A. W. Holleitner, R. Bratschitsch, 和 T. Kuhn, 《层状范德华材料中的单光子发射体》, 《固体物理学现状（b）》**259**, 2100566（2022）。[134] Ç. Samaner, S. Paçal, G. Mutlu, K. Uyanık, 和 S. Ateş, 《利用六方氮化硼缺陷中的单光子实现自由空间量子密钥分发》, 《先进量子技术》**5**, 2200059（2022）。[135] C. Li, J. J ang, T. Badloe, T. Yang, J. Kim, J. Kim, M. Nguyen, S. A. Maier, J. Rho, H. Ren, 等, 《通过多功能超透镜实现任意结构化量子发射》, 《Elight》**3**, 19（2023）。[136] M. R. Rosenberger, C. K. Dass, H.-J. Chuang, S. V. Sivaram, K. M. McCreary, J. R. Hendrickson, 和 B. T. Jonker, 《量子书法：在二维材料平台中书写单光子发射体》, ACS Nano**13**, 904–912（2019）。

[137] J. Körber、J. Heiler、P. Fuchs、P. Flad、E. Hesselmeier、P. Kuna、J. Ul-Hassan、W. Knolle、C. Becher、F. Kaiser 等，“4H-SiC 腔天线中单个 v2 中心的荧光增强”，《纳米快报》24，9289–9295（2024年）。[138] J.-W. Ji、Y.-F. Wu、S. C. Wein、F. K. Asadi、R. Ghobadi 和 C. Simon，“利用氮空位中心和腔光力学实现室温量子中继器的方案”，Quantum 6，669（2022年）。[139] I. H. Abidi、N. Mendelson、T. T. Tran、A. Tyagi、M. Zhuang、L.-T. Weng、B. Özyilmaz、I. Aharonovich、M. Toth 和 Z. Luo，“六方氮化硼中的选择性缺陷形成”，Advanced Optical Materials 7，1900397（2019年）。[140] X.-H. Zhan、Z.-Q. Zhong、S. Wang、Z.-Q. Yin、W. Chen、D.-Y. He、G.-C. Guo 和 Z.-F. Han，“采用实用自发参量下转换光源的测量设备无关量子密钥分发”，Physical Review Applied 20，034069（2023年）。[141] S. Murakami、R. Fujimoto、T. Kobayashi、R. Ikuta、A. Inoue、T. Umeki、S. Miki、F. China、H. Terai、R. Kasahara 等，“利用四端口光纤尾纤化 PPLN 模块进行量子频率转换”，《光学快报》31，29271–29279（2023年）。[142] W. Louisell、A. Yariv 和 A. Siegman，“参量过程中的量子涨落与噪声：I”，Physical Review 124，1646（1961年）。[143] D. C. Burnham 和 D. L. Weinberg，“参量产生光学光子对同时性的观测”，Physical Review Letters 25，84（1970年）。[144] J. Zhang、M. A. Itzler、H. Zbinden 和 J.-W. Pan，“用于量子通信的 InGaAs/InP 单光子探测器系统进展”，Light: Science & Applications 4，e286–e286（2015年）。[145] P. G. Kwiat、E. Waks、A. G. White、I. Appelbaum 和 P. H. Eberhard，“超高亮度偏振纠缠光子源”，Physical Review A 60，R773（1999年）。[146] C. Couteau，“自发参量下转换”，Contemporary Physics 59，291–304（2018年）。[147] T. Santiago-Cruz、V. Sultanov、H. Zhang、L. A. Krivitsky 和 M. V. Chekhova，“来自亚波长非线性薄膜的纠缠光子”，Optics Letters 46，653–656（2021年）。[148] H. Flayac、D. Gerace 和 V. Savona，“通过非常规光子阻塞实现全硅单光子源”，Scientific Reports 5，11223（2015年）。[149] S. Dong、X. Yao、W. Zhang、S. Chen、W. Zhang、L. You、Z. Wang 和 Y. Huang，“真正的单光子激发四波混频”，ACS Photonics 4，746–753（2017年）。[150] K. Edamatsu，“纠缠光子：产生、观测与表征”，Japanese Journal of Applied Physics 46，7175（2007年）。[151] J. López-Durán 和 O. Rosas-Ortiz，“非线性单轴晶体中矢量相位匹配条件的精确解”，Symmetry 14，2272（2022年）。[152] C. Hong 和 L. Mandel，“光的参量频率下转换理论”，Physical Review A 31，2409（1985年）。[153] J. Armstrong、N. Bloembergen、J. Ducuing 和 P. S. Pershan，“非线性介质中光波之间的相互作用”，Physical Review 127，1918（1962年）。[154] M. Bock、A. Lenhard、C. Chunnilall 和 C. Becher，“基于 PPLN 波导的电信波段高效率预示单光子源”，《光学快报》24，23992–24001（2016年）。[155] L. Wang、C. Hong 和 S. Friberg，“通过光纤中的四波混频产生关联光子”，Journal of Optics B: Quantum and Semiclassical Optics 3，346（2001年）。[156] B. Fang、O. Cohen、J. B. Moreno 和 V. O. Lorenz，“通过双泵浦自发四波混频产生的光子对的态工程”，《光学快报》21，2707–2717（2013年）。

[157] M. Borghi 和 L. Pavesi，“通过延迟泵浦模间四波混频缓解光子对源中的不可区分性问题”，《光学快报》**30**，12964–12981（2022年）。[158] H. Flayac 和 V. Savona，“非常规光子阻塞”，Physical Review A **96**，053810（2017年）。[159] Y. Wang、W. Verstraelen、B. Zhang、T. C. Liew 和 Y. Chong，“二聚体链中非常规光子阻塞的巨大增强”，Physical Review Letters **127**，240402（2021年）。[160] F. Zou、D.-G. Lai 和 J.-Q. Liao，“通过量子干涉增强光子阻塞效应”，《光学快报》**28**，16175–16190（2020年）。[161] H. Shen、Y. Zhou、H. Liu、G. Wang 和 X. Yi，“利用弱非线性耦合腔对光子阻塞进行精确最优控制”，Optics Express **23**，32835–32858（2015年）。[162] L. Comandar、M. Lucamarini、B. Fröhlich、J. F. Dynes、Z. Yuan 和 A. Shields，“独立播种的增益开关激光器之间近乎完美的模式重叠”，Optics Express **24**，17849–17859（2016年）。[163] P. Maunz、D. Moehring、S. Olmschenk、K. C. Younge、D. Matsukevich 和 C. Monroe，“来自两个远程囚禁原子离子的光子对的量子干涉”，Nature Physics **3**，538–541（2007年）。[164] B. Hensen、H. Bernien、A. E. Dréau、A. Reiserer、N. Kalb、M. S. Blok、J. Ruitenberg、R. F. Vermeulen、R. N. Schouten、C. Abellán、等，“利用相隔 1.3 千米的电子自旋实现无漏洞贝尔不等式违背”，Nature**526**，682–686（2015年）。[165] S. Haffouz、K. D. Zeuner、D. Dalacu、P. J. Poole、J. Lapointe、D. Poitras、K. Mnaymneh、X. Wu、M. Couillard、M. Korkusinski、等，“电信波长下位置可控 InP 纳米线中的明亮单个 InAsP 量子点：光子波导的作用”，《纳米快报》**18**，3047–3052（2018年）。[166] P. Munnelly、T. Heindel、A. Thoma、M. Kamp、S. Höfling、C. Schneider 和 S. Reitzenstein，“由单片集成量子点微激光器触发的电可调单光子源”，ACS Photonics **4**，790–794（2017年）。[167] N. Tomm、A. Javadi、N. O. Antoniadis、D. Najer、M. C. Löbl、A. R. Korsch、R. Schott、S. R. Valentin、A. D. Wieck、A. Ludwig、等，“明亮且快速的相干单光子源”，Nature Nanotechnology **16**，399–403（2021年）。[168] S. L. Portalupi、M. Jetter 和 P. Michler，“在变质缓冲层上生长的 InAs 量子点：作为电信 C 波段非经典光源的综述”，Semiconductor Science and Technology **34**，053001（2019年）。[169] M. Moczała-Dusanowska、Ł. Dusanowski、S. Gerhardt、Y. M. He、M. Reindl、A. Rastelli、R. Trotta、N. Gregersen、S. Höfling 和 C. Schneider，“基于量子点-微柱系统的应变可调单光子源”，ACS Photonics**6**，2025–2031（2019年）。[170] Y.-M. He、H. Wang、C. Wang、M.-C. Chen、X. Ding、J. Qin、Z.-C. Duan、S. Chen、J.-P. Li、R.-Z. Liu、等，“利用双频激光脉冲相干驱动单个量子二能级系统”，Nature Physics**15**，941–946（2019年）。[171] X. Ding、Y. He、Z.-C. Duan、N. Gregersen、M.-C. Chen、S. Unsleber、S. Maier、C. Schneider、M. Kamp、S. Höfling、等，“共振驱动微柱中量子点产生的按需单光子：高提取效率与近乎完美的不可区分性”，Physical Review Letters **116**，020401（2016年）。[172] J. Motohisa、A. Tomoya、O. Manami 和 T. Katsuhiro，“对发射电信波段光的 InP/InAsP 异质结构纳米线发光二极管的表征”，Japanese Journal of Applied Physics**63**，03SP08（2024年）。[173] K. Takemoto、Y. Nambu、T. Miyazawa、Y. Sakuma、T. Yamamoto、S. Yorozu 和 Y. Arakawa，“利用超高纯度单光子源和超导单光子探测器实现 120 千米量子密钥分发”，Scientific Reports **5**，14383（2015年）。

[174] A. Musiał, P. Holewa, P. Wyborski, M. Syperek, A. Kors, J. P. Reithmaier, G. S.ek, and M. Benyoucef, “电信C波段窗口附近对称单个砷化铟/磷化铟量子点的高纯度触发式单光子发射”, 《先进量子技术》**3**, 1900082 (2020).[175] L. Schweickert, K. D. Jöns, K. D. Zeuner, S. F. Covre da Silva, H. Huang, T. Lettner, M. Reindl, J. Zichi, R. Trotta, A. Rastelli, 等, “按需产生来自固态光源的无背景单光子”, Applied Physics Letters**112** (2018).[176] B. Da Lio, C. Faurby, X. Zhou, M. L. Chan, R. Uppu, H. Thyrrestrup, S. Scholz, A. D. Wieck, A. Ludwig, P. Lodahl, 等, “电信波长下纯净且不可区分的单光子源”, 《先进量子技术》**5**, 2200006 (2022).[177] X. Lin, X. Dai, C.Pu, Y. Deng, Y. Niu, L. Tong, W. Fang, Y. Jin, and X. Peng, “基于胶体量子点的电驱动单光子源：室温下近乎最优的反聚束”, 《自然·通讯》**8**, 1132 (2017).[178] A. Eich, T. C. Spiekermann, H. Gehring, L. Sommer, J. R. Bankwitz, P. P. Schrinner, J. A. Preuß, S. Michaelis de Vasconcellos, R. Bratschitsch, W. H. Pernice, 等, “来自单个集成纳米光子学胶体量子点的单光子发射”, ACS Photonics **9**, 551–558 (2022).[179] T. Farrow, A. R. Dhawan, A. R. Marshall, A. Ghorbal, W. Son, H. J. Snaith, J. M. Smith, and R. A. Taylor, “嵌入光学微腔的钙钛矿量子点产生的超窄线宽室温单光子源”, 《纳米快报》**23**, 10667–10673 (2023).[180] S. K. Andersen, S. Kumar, and S. I. Bozhevolnyi, “纳米立方体二聚体天线中的氮空位中心产生超高亮度线偏振光子”, 《纳米快报》**17**, 3889–3895 (2017).[181] T. Grange, N. Somaschi, C. Antón, L. De Santis, G. Coppola, V. Giesz, A. Lemaître, I. Sagnes, A. Auf- fèves, and P. Senellart, “利用腔量子电动力学降低固态单光子源中的声子诱导退相干”, Physical review letters**118**, 253602 (2017).[182] M. Radulaski, K. A. Fischer, and J. Vuˇckovi´c, “III–V族和IV族固态腔量子系统中的非经典光产生”, 载于*Advances In Atomic, Molecular, and Optical Physics*, 第66卷（Elsevier, 2017）, 第111–179页。[183] B. Lubotzky, H. Abudayyeh, N. Nikolay, O. Benson, and R. Rapaport, “通过在混合纳米天线中超精确定位纳米金刚石，实现NV中心近乎完美的光子收集”, arXiv预印本 arXiv:2503.14761 (2025).[184] Y. Xia, Q. Li, J. Kim, W. Bao, C. Gong, S. Yang, Y. Wang, and X. Zhang, “范德华材料中单光子发射体的室温巨大斯塔克效应”, 《纳米快报》**19**, 7100–7105 (2019).[185] S. Häußler, G. Bayer, R. Waltrich, N. Mendelson, C. Li, D. Hunger, I. Aharonovich, and A. Kubanek, “六方氮化硼缺陷中心的可调谐光纤腔增强光子发射”, Advanced Optical Materials**9**, 2002218 (2021).[186] X. Li, R. A. Scully, K. Shayan, Y. Luo, and S. Strauf, “通过耦合金属介质天线，实现氮化硼量子发射体近乎完美的光收集效率”, ACS nano**13**, 6992–6997 (2019).[187] A. W. Schell, H. Takashima, T. T. Tran, I. Aharonovich, and S. Takeuchi, “二维材料中的量子发射体与锥形光纤的耦合”, Acs Photonics**4**, 761–767 (2017).[188] N. Nikolay, N. Mendelson, E. Özelci, B. Sontheimer, F. Böhm, G. Kewes, M. Toth, I. Aharonovich, and O. Benson, “六方氮化硼中单光子发射体量子效率的直接测量”, Optica**6**, 1084–1088 (2019).[189] N. Somaschi, V. Giesz, L. De Santis, J. Loredo, M. P. Almeida, G. Hornecker, S. L. Portalupi, T. Grange, C. Anton, J. Demory, 等, “固态中近乎最优的单光子源”, 《自然·光子学》**10**, 340–345 (2016).[190] L. A. Ngah, O. Alibart, L. Labonté, V. d’Auria, and S. Tanzilli, “基于电信技术的超快预告式单光子源”, Laser & Photonics Reviews**9**, L1–L5 (2015).

[191] J. Yin, Y. Cao, Y.-H. Li, S.-K. Liao, L. Zhang, J.-G. Ren, W.-Q. Cai, W.-Y. Liu, B. Li, H. Dai, 等, “跨越1200公里的基于卫星的纠缠分发”, Science 356, 1140–1144 (2017).[192] Q.-C. Sun, Y.-L. Mao, S.-J. Chen, W. Zhang, Y.-F. Jiang, Y.-B. Zhang, W.-J. Zhang, S. Miki, T. Ya- mashita, H. Terai, 等, “利用独立源和预先分发的纠缠实现网络量子隐形传态”, 《自然·光子学》10, 671–675 (2016).[193] A. S. Kowligy, D. D. Hickstein, A. Lind, D. R. Carlson, H. Timmers, N. Nader, D. L. Maser, D. Westly, K. Srinivasan, S. B. Papp, 等, “通过氮化硅波导中的宽带四波混频实现可调谐中红外产生”, Optics Letters 43, 4220–4223 (2018).[194] C. Xiong and W. J. Wadsworth, “以1064 nm泵浦的双折射光子晶体光纤中的偏振超连续谱及其在可调谐可见光/紫外光产生中的应用”, 《光学快报》16, 2438–2445 (2008).[195] T. Wilk, S. C. Webster, A. Kuhn, and G. Rempe, “单原子单光子量子接口”, Science 317, 488–490 (2007).[196] N. Piro, F. Rohde, C. Schuck, M. Almendros, J. Huwer, J. Ghosh, A. Haase, M. Hennrich, F. Dubin, and J. Eschner, “单原子对单光子的预告式吸收”, Nature Physics 7, 17–20 (2011).[197] B. Darquié, M. P. Jones, J. Dingjan, J. Beugnon, S. Bergamini, Y. Sortais, G. Messin, A. Browaeys, and P. Grangier, “来自单个囚禁二能级原子的受控单光子发射”, Science 309, 454–456 (2005).[198] S. A. Tawfik, S. Ali, M. Fronzi, M. Kianinia, T. T. Tran, C. Stampfl, I. Aharonovich, M. Toth, and M. J. Ford, “六方氮化硼缺陷量子发射的第一性原理研究”, 《纳米尺度》9, 13575–13582 (2017).[199] J.-H. Kim, S. Aghaeimeibodi, C. J. Richardson, R. P. Leavitt, D. Englund, and E. Waks, “固态量子发射体在硅光子芯片上的混合集成”, 《纳米快报》17, 7394–7400 (2017).[200] J.-H. Kim, S. Aghaeimeibodi, J. Carolan, D. Englund, and E. Waks, “片上量子光子学的混合集成方法”, Optica 7, 291–308 (2020).[201] J. C. Bergquist, R. G. Hulet, W. M. Itano, and D. J. Wineland, “单个原子中量子跃迁的观测”, Physical review letters 57, 1699 (1986).[202] M. Arcari, I. Söllner, A. Javadi, S. Lindskov Hansen, S. Mahmoodian, J. Liu, H. Thyrrestrup, E. H. Lee, J. D. Song, S. Stobbe, 等, “量子发射体与光子晶体波导的近乎完美耦合效率”, Physical review letters 113, 093603 (2014).[203] A. Asenjo-Garcia, M. Moreno-Cardoner, A. Albrecht, H. Kimble, and D. E. Chang, “利用原子阵列中的亚辐射和‘选择性辐射’, 光子存储保真度实现指数级提升”, Physical Review X 7, 031024 (2017).[204] G. Chen, Z. Diao, J. U. Kim, A. Neogi, K. Urtekin, and Z. Zhang, “量子点计算门”, 《国际量子信息杂志》4, 233–296 (2006).[205] M. Holtkemper, G. F. Quinteiro, D. Reiter, and T. Kuhn, “空间结构光束激发量子点的选择定则：在重构高激发态激子波函数中的应用”, 《物理评论B》102, 165315 (2020).[206] R. Beaulac, P. I. Archer, S. T. Ochsenbein, and D. R. Gamelin, “Mn2+掺杂CdSe量子点：自旋电子学和自旋光子学的新型无机材料”, 《先进功能材料》18, 3873–3891 (2008).[207] S. Aghaeimeibodi, B. Desiatov, J.-H. Kim, C.-M. Lee, M. A. Buyukkaya, A. Karasahin, C. J. Richardson, R. P. Leavitt, M. Lonˇcar, and E. Waks, “量子点与铌酸锂光子学的集成”, Applied Physics Letters 113 (2018).[208] S. Haffouz, P. J. Poole, D. Northeast, R. L. Williams, and D. Dalacu, “嵌入磷化铟纳米线中的单个InAsP量子点的光致发光性质”, 载于《电化学学会会议摘要》245, 22（电化学学会，2024）, 第1315–1315页。

[209] Q. Jiang, P. Roy, J.-B. Claude, and J. Wenger, “来自纳米天线捕获单量子点的单光子源”，《纳米快报》**21**, 7030–7036 (2021).[210] P. Li, P. Yu, J. Sun, Z. Jing, J. Wu, L. V. Besteiro, R. Caputo, A. Neogi, H. Xu, and Z. Wang, “基于线阵等离激元天线耦合的纳米线量子点定向辐射增强”，Photonics Research **10**, 2178–2190 (2022).[211] R. Joos, S. Bauer, C. Rupp, S. Kolatschek, W. Fischer, C. Nawrath, P. Vijayan, R. Sittig, M. Jetter, S. L. Portalupi, 等, “相干与非相干泵浦的电信C波段单光子源：兼具高亮度和高不可区分性”，《纳米快报》**24**, 8626–8633 (2024).[212] S. F. C. da Silva, G. Undeutsch, B. Lehner, S. Manna, T. M. Krieger, M. Reindl, C. Schimpf, R. Trotta, and A. Rastelli, “通过液滴刻蚀外延生长的砷化镓量子点作为量子光源”，Applied Physics Letters**119**(2021).[213] S. Castelletto and A. Boretti, “用于量子应用的碳化硅色心”，Journal of Physics: Photonics **2**, 022001 (2020).[214] N. R. Jungwirth, B. Calderon, Y. Ji, M. G. Spencer, M. E. Flatté, and G. D. Fuchs, “六方氮化硼中单个缺陷零声子发射的波长可选性及其温度依赖性”，《纳米快报》**16**, 6052–6057 (2016).[215] K. Konthasinghe, C. Chakraborty, N. Mathur, L. Qiu, A. Mukherjee, G. D. Fuchs, and A. N. Vamivakas, “单个六方氮化硼量子发射体的拉比振荡与共振荧光”，Optica**6**, 542–548 (2019).[216] N. Bernhardt, S. Kim, J. E. Fröch, S. J. White, N. M. H. Duong, Z. He, B. Chen, J. Liu, I. Aharonovich, and A. S. Solntsev, “用于非线性光学的大型少层六方氮化硼薄片”，Optics Letters**46**, 564–567 (2021).[217] R. Cunha, A. Cadore, S. L. Ramos, K. Watanabe, T. Taniguchi, S. Kim, A. S. Solntsev, I. Aharonovich, and L. M. Malard, “缺陷六方氮化硼中的二次谐波产生”，Journal of Physics: Condensed Matter **32**, 19LT01 (2020).[218] P. P. Rohde, L. Helt, M. Steel, and A. Gilchrist, “利用光纤环路架构进行复用单光子态制备”，Physical Review A **92**, 053829 (2015).[219] L. Stasi, P. Caspar, T. Brydges, H. Zbinden, F. Bussières, and R. Thew, “采用光子数分辨并行超导纳米线单光子探测器增强的预示单光子源”，arXiv预印本 arXiv:2210.16005 (2022).[220] L. Stasi, P. Caspar, T. Brydges, H. Zbinden, F. Bussières, and R. Thew, “用于改进预示单光子源的高效率光子数分辨探测器”，Quantum Science and Technology **8**, 045006 (2023).[221] H.-S. Zhong, Y. Li, W. Li, L.-C. Peng, Z.-E. Su, Y. Hu, Y.-M. He, X. Ding, W. Zhang, H. Li, 等, “参量下转换产生的最优纠缠光子对实现12光子纠缠和可扩展散射玻色子采样”，Physical Review Letters **121**, 250505 (2018).[222] C.-Y. Cheng, J.-J. Lee, Z.-Y. Liu, J.-S. Shiu, and Y.-F. Chen, “基于共振四波混频的量子频率转换”，Physical Review A **103**, 023711 (2021).[223] F. Kaneda and P. G. Kwiat, “通过大规模主动时间复用实现高效率单光子产生”，《科学进展》**5**, eaaw8586 (2019).[224] H. Abudayyeh, B. Lubotzky, S. Majumder, J. A. Hollingsworth, and R. Rapaport, “通过对量子点源进行时间预示来提纯单光子”，ACS Photonics **6**, 446–452 (2019).[225] T. Ihara, S. Miki, T. Yamada, T. Kaji, A. Otomo, I. Hosako, and H. Terai, “通过对时间提纯单光子的超低暗计数探测，揭示室温胶体量子点发射体的优异特性”，Scientific Reports **9**, 15941 (2019).

[226] P. Jiang, N. Ma, P. Liu, W. Wu, and K. Zhang, “一种易于实现的、基于自组装量子点膜的片上波导耦合单光子源”, 《应用科学》**11**, 695 (2021).[227] A. Anwar, C. Perumangatt, F. Steinlechner, T. Jennewein, and A. Ling, “基于块体晶体中三波混频的纠缠光子对源”, 《科学仪器评论》**92** (2021).[228] F. Kaneda, K. Garay-Palmett, A. B. U’Ren, and P. G. Kwiat, “利用高度非简并、频谱可分的自发参量下转换实现预示单光子源”, Optics Express **24**, 10733–10747 (2016).[229] C. S. Chang, C. Sabín, P. Forn-Díaz, F. Quijandría, A. Vadiraj, I. Nsanzineza, G. Johansson, a nd C. Wilson, “在超导参量腔中观测到三光子自发参量下转换”, 《物理评论X》**10**, 011011 (2020).[230] A. K. Jena, A. Kulkarni, and T. Miyasaka, “卤化物钙钛矿光伏：背景、现状与未来展望”, 《化学评论》**119**, 3036–3103 (2019).[231] Y. Tu, J. Wu, G. Xu, X. Yang, R. Cai, Q. Gong, R. Zhu, and W. Huang, “空间应用钙钛矿太阳能电池：进展与挑战”, 《先进材料》**33**, 2006545 (2021).[232] Y.-T. Huang, S. R. Kavanagh, D. O. Scanlon, A. Walsh, and R. L. Hoye, “钙钛矿启发材料在光伏及其他领域的应用——从设计到器件”, 《纳米技术》**32**, 132004 (2021).[233] X. Zhao, J. D. A. Ng, R. H. Friend, and Z.-K. Tan, “钙钛矿发光器件的机遇与挑战”, ACS Photonics**5**, 3866–3875 (2018).[234] J. Xu, X. Li, J. Xiong, C. Yuan, S. Semin, T. Rasing, and X.-H. Bu, “用于非线性光学的卤化物钙钛矿”, 《先进材料》**32**, 1806736 (2020).[235] S. Makarov, A. Furasova, E. Tiguntseva, A. Hemmetter, A. Berestennikov, A. Pushkarev, A. Zakhidov, and Y. Kivshar, “卤化物钙钛矿共振纳米光子学”, Advanced Optical Materials **7**, 1800784 (2019).[236] G. Rainò, G. Nedelcu, L. Protesescu, M. I. Bodnarchuk, M. V. Kovalenko, R. F. Mahrt, and T. Stöferle, “低温下单个铯铅卤化物钙钛矿纳米晶：快速单光子发射、闪烁减少及激子精细结构”, ACS Nano **10**, 2485–2490 (2016).[237] M. A. Green, A. Ho-Baillie, and H. J. Snaith, “钙钛矿太阳能电池的兴起”, 《自然·光子学》**8**, 506–514 (2014).[238] M. Fu, P. Tamarat, J.-B. Trebbia, M. I. Bodnarchuk, M. V. Kovalenko, J. Even, and B. Lounis, “揭示发射近红外单光子的单个$FAPbI_3$纳米晶中的激子–声子耦合”, 《自然·通讯》**9**, 3318 (2018).[239] M. D’Amato, Q. Y. Tan, Q. Glorieux, A. Bramati, and C. Soci, “颜色可调的混合阳离子钙钛矿单光子发射体”, ACS Photonics **10**, 197–205 (2023).[240] F. Hu, H. Zhang, C. Sun, C. Yin, B. Lv, C. Zhang, W. W. Yu, X. Wang, Y. Zhang, and M. Xiao, “钙钛矿纳米晶作为单光子发射体的优异光学性质”, ACS Nano **9**, 12410– 12416 (2015).[241] B. Wang, J. W. M. Lim, S. M. Loh, R. Mayengbam, S. Ye, M. Feng, H. He, X. Liang, R. Cai, Q. Zhang, 等, “弱限域有机–无机卤化物钙钛矿量子点：高纯度室温单光子源”, ACS Nano **18**, 10807–10817 (2024).[242] S. Castelletto, F. De Angelis, and A. Boretti, “钙钛矿纳米晶中量子发射体的前景与挑战”, 《今日应用材料》**26**, 101401 (2022).[243] L. Protesescu, S. Yakunin, M. I. Bodnarchuk, F. Krieg, R. Caputo, C. H. Hendon, R. X. Yang, A. Walsh, and M. V. Kovalenko, “铯铅卤化物钙钛矿纳米晶（CsPbX3，X= Cl、Br和I）：具有明亮发射和宽色域的新型光电材料”, 《纳米快报》**15**, 3692–3696 (2015).

[244] J. Song、T. Fang、J. Li、L. Xu、F. Zhang、B. Han、Q. Shan 和 H. Zeng，“有机–无机杂化钝化使钙钛矿量子点发光二极管的外量子效率达到16.48%”，《先进材料》30，1805409（2018年）。[245] X. He、Y. Song、Y. Yu、B. Ma、Z. Chen、X. Shang、H. Ni、B. Sun、X. Dou、H. Chen 等，“砷化铟（镓）半导体自组装量子点的量子光源器件”，《半导体学报》40，071902（2019年）。[246] S. Tamariz、G. Callsen、J. Stachurski、K. Shojiki、R. Butté 和 N. Grandjean，“基于硅衬底氮化镓量子点、面向300 K下明亮且纯净单光子发射体的研究”，ACS Photonics 7，1515–1522（2020年）。[247] S. C. Boehme、M. I. Bodnarchuk、M. Burian、F. Bertolotti、I. Cherniukh、C. Bernasconi、C. Zhu、R. Erni、H. Amenitsch、D. Naumenko 等，“强限域CsPbBr3量子点作为量子发射体和菱形超晶格构筑单元”，ACS Nano 17，2089–2100（2023年）。[248] G. Nair、J. Zhao 和 M. G. Bawendi，“基于光子统计的单个半导体纳米晶双激子量子产率”，《纳米快报》11，1136–1140（2011年）。[249] B. W. Garner、T. Cai、Z. Hu 和 A. Neogi，“聚（N-异丙基丙烯酰胺）纳米球封装CdTe量子点的电场增强光致发光”，《光学快报》16，19410–19418（2008年）。[250] B. W. Garner、T. Cai、Z. Hu、M. Kim 和 A. Neogi，“光散射诱导聚丙烯酰胺凝胶纳米球封装CdTe量子点光致发光的巨大红移”，Applied Physics Express 2，075001（2009年）。[251] A. Neogi、B. Garner、T. Cai、M. Kim 和 Z. Hu，“控制光散射诱导的聚丙烯酰胺凝胶纳米球封装CdTe量子点光致发光位移”，Soft Materials 7，232–241（2009年）。[252] Y.-T. Chuang、T.-Y. Lin、G.-H. Tan、P.-E. Jan、H.-C. Lin、H.-M. Chen、K.-Y. Hsiao、B.-H. Chen、C.-H. Lu、C.-H. Lee 等，“基于$MAPbI_3$、在室温下呈现异常不闪烁单光子发射的高效量子点”，Small 20，2308676（2024年）。[253] C. Mi、M. L. Atteberry、V. Mapara、L. Hidayatova、G. C. Gee、M. Furis、W. T. Yip、B. Weng 和 Y. Dong，“强限域CsPbBr3钙钛矿量子点中的类双激子俄歇闪烁”，《物理化学杂志快报》14，5466–5474（2023年）。[254] Y. He、S. Hu、T. Han、X. Chen、Y. Yu、T. Li、W. Zhu 和 G. Ouyang，“抑制CdSe/CdS核/壳纳米晶体中的俄歇复合过程”，ACS Omega 4，9198–9203（2019年）。[255] K. Vighnesh、S. Wang、H. Liu 和 A. L. Rogach，“绿色发光溴化铯铅钙钛矿纳米晶体的热注入合成方案”（2022年）。[256] J. Shamsi、A. S. Urban、M. Imran、L. De Trizio 和 L. Manna，“金属卤化物钙钛矿纳米晶体：合成、合成后修饰及其光学性质”，《化学评论》119，3296–3348（2019年）。[257] L. Chouhan、S. Ito、E. M. Thomas、Y. Takano、S. Ghimire、H. Miyasaka 和 V. Biju，“通过卤素空位填充实时抑制钙钛矿量子点闪烁”，ACS Nano 15，2831–2838（2021年）。[258] D. Chen、X. Chen、Z. Wan 和 G. Fang，“阳离子杂化Cs1–mFAmPbX3（X= Cl、Br 和 I，$0 \le m \le 1$）量子点的全光谱可调可见光发射”，《ACS应用材料与界面》9，20671–20678（2017年）。[259] K. Miyata、D. Meggiolaro、M. T. Trinh、P. P. Joshi、E. Mosconi、S. C. Jones、F. De Angelis 和 X.-Y. Zhu，“卤化铅钙钛矿中的大极化子”，《科学进展》3，e1701217（2017年）。[260] A. Franceschetti、A. Williamson 和 A. Zunger，“量子点的添加光谱：介电失配的作用”，《物理化学杂志B》104，3398–3401（2000年）。[261] A. Franceschetti 和 A. Zunger，“砷化铟、磷化铟和硅量子点的电子和空穴添加光谱的赝势计算”，《物理评论B》62，2614（2000年）。

[262] A. Veamatahau、B. Jiang、T. Seifert、S. Makuta、K. Latham、M. Kanehara、T. Teranishi 和 Y. Tachibana，“CdS量子点中表面陷阱态的起源：尺寸依赖的光致发光与硫空位陷阱态之间的关系”，《物理化学化学物理》**17**，2850–2858（2015年）。[263] D. N. Minh、J. Kim、J. Hyon、J. H. Sim、H. H. Sowlih、C. Seo、J. Nam、S. Eom、S. Suk、S. Lee、等，“室温合成宽范围可调的甲脒铅卤化物钙钛矿纳米晶”，《材料化学》**29**，5713–5719（2017年）。[264] X. Liu、Y. Chen、Y. Miao、N. Wei、H. Chen、Z. Qin、M. Feng、Y. Wang、X. Wang 和 Y. Zhao，“稳定的纯碘化物$MA_{0.95}Cs_{0.05}PbI_3$钙钛矿：面向高效1.6 eV带隙光伏器件”，《物理化学杂志快报》**13**，5088–5093（2022年）。[265] J. Marí-Guaita、A. Bouich 和 B. Marí，“通过铋掺杂提高甲胺基碘化铅钙钛矿薄膜的稳定性”，JOM **74**，3103–3110（2022年）。[266] G. Kim、H. Min、K. S. Lee、D. Y. Lee、S. M. Yoon 和 S. I. Seok，“应变弛豫对 α-甲脒基碘化铅钙钛矿太阳能电池性能的影响”，Science**370**，108–112（2020年）。[267] A. J. Neukirch、W. Nie、J.-C. Blancon、K. Appavoo、H. Tsai、M. Y. Sfeir、C. Katan、L. Pedesseau、J. Even、J. J. Crochet、等，“协同晶格畸变和阳离子旋转对杂化钙钛矿材料中极化子稳定化的作用”，《纳米快报》**16**，3809–3816（2016年）。[268] Q. Sun、C. Zhao、Z. Yin、S. Wang、J. Leng、W. Tian 和 S. Jin，“二维钙钛矿中超快且高产率的极化子激子解离”，美国化学会志**143**，19128–19136（2021年）。[269] L. Chouhan、S. Ghimire、C. Subrahmanyam、T. Miyasaka 和 V. Biju，“卤化物钙钛矿的合成、光电性质及应用”，化学会评论**49**，2869–2885（2020年）。[270] Y. Cai、D. Begin、C. Sidhoum、A. Girault、T. Fix、C. Lefevre、W. Belayachi、A. Dinia、D. Preziosi、M. Gallart、等，“具有活性界面和良好光探测性质的$MAPbI_3$@石墨复合材料的机械化学合成”，《材料化学》**35**，10188–10205（2023年）。[271] N. Leupold、K. Schötz、S. Cacovich、I. Bauer、M. Schultz、M. Daubinger、L. Kaiser、A. Rebai、J. Rousset、A. Köhler、等，“机械化学合成卤化物钙钛矿粉末的高通用性和稳定性及其在光电器件中的应用”，《ACS应用材料与界面》**11**，30259–30268（2019年）。[272] P. Walke、R. Kaupmees、M. Grossberg-Kuusk 和 J. Krustok，“通过钾基前驱体合成的WS2单层材料中异常的缺陷相关室温发射”，ACS Omega **8**，37958–37970（2023年）。[273] Y. Cho、S. M. Greene 和 T. C. Berkelbach，“层状杂化有机-无机卤化铅钙钛矿中三激子和双激子的模拟”，Physical Review Letters**126**，216402（2021年）。[274] S. Zhang、Y. Jiang、C.-S. Chen、J. Spurgin、K. A. Schwehr、A. Quigg、W.-C. Chin 和 P. H. Santschi，“海洋环境中量子点的聚集、溶解与稳定性：胞外聚合物质的重要性”，《环境科学与技术》**46**，8764–8772（2012年）。[275] Y. Han、S. Meyer、Y. Dkhissi、K. Weber、J. M. Pringle、U. Bach、L. Spiccia 和 Y.-B. Cheng，“高温高湿条件下封装平面$CH_3NH_3PbI_3$钙钛矿太阳能电池的降解观察”，《材料化学杂志A》**3**，8139–8147（2015年）。[276] G. Nagabhushana、R. Shivaramaiah 和 A. Navrotsky，“铅卤化物杂化钙钛矿热力学不稳定性的直接量热验证”，美国国家科学院院刊**113**，7717–7721（2016年）。[277] A. Senocrate、G. Y. Kim、M. Grätzel 和 J. Maier，“杂化卤化物钙钛矿的热化学稳定性”，ACS Energy Letters **4**，2859–2870（2019年）。[278] L. Hou、P. Tamarat 和 B. Lounis，“揭示卤化铅钙钛矿纳米晶中的激子精细结构”，《纳米材料》**11**，1058（2021年）。

[279] S. Karna、M. Mahat、T.-Y. Choi、R. Shimada、Z. Wang 和 A. Neogi，“还原氧化石墨烯量子点中共振等离激元耦合与静电相互作用之间的竞争”，Scientific Reports 6，36898（2016）。[280] M. Mahat、Y. Rostovtsev、S. Karna、G. N. Lim、F. D’Souza 和 A. Neogi，“具有缀饰声子态的氧化石墨烯量子点中的等离激元诱导透明”，ACS Photonics 5，614–620（2018）。[281] A. Neogi、H. Morkoç、T. Kuroda 和 A. Tackeuchi，“氮化镓–氮化铝量子点自发发射与银表面等离激元的耦合”，Optics Letters 30，93–95（2005）。[282] S. Gorji、H. P. Adl、A. F. Gualdron-Reyes、A. S. Sanchez、R. I. S. Alarcon、C. Pareja-Rivera、I. Mora-Sero、J. P. M. Pastor 和 G. M. Matutano，“提升全无机钙钛矿纳米晶体单光子发射的光学稳定性”，Advanced Optical Materials（2025），10.1002/adom.202403441。[283] J. Chen、Q. Zhang、J. Shi、S. Zhang、W. Du、Y. Mi、Q. Shang、P. Liu、X. Sui、X. Wu 等，“通过等离激元非线性法诺共振实现钙钛矿纳米片在室温下连续波激发的双激子发射”，Communications Physics 2，80（2019）。[284] F. Basso Basset、M. B. Rota、C. Schimpf、D. Tedeschi、K. D. Zeuner、S. F. Covre da Silva、M. Reindl、V. Zwiller、K. D. Jöns、A. Rastelli 等，“与量子点按需产生的光子进行纠缠交换”，Physical Review Letters 123，160501（2019）。[285] M. Pennacchietti、B. Cunard、S. Nahar、M. Zeeshan、S. Gangopadhyay、P. J. Poole、D. Dalacu、A. Fognini、K. D. Jöns、V. Zwiller 等，“用于量子密钥分发的半导体量子点振荡光子贝尔态”，Communications Physics 7，62（2024）。[286] J. Yang、Z. Jiang、F. Benthin、J. Hanel、T. Fandrich、R. Joos、S. Bauer、S. Kolatschek、A. Hreibi、E. P. Rugeramigabo 等，“利用半导体单光子源实现高速率城际量子密钥分发”，Light: Science & Applications 13，150（2024）。[287] T. Gao、M. von Helversen、C. Antón-Solanas、C. Schneider 和 T. Heindel，“用于量子通信的原子级薄单光子源”，npj 2D Materials and Applications 7，4（2023）。[288] C. L. Morrison、R. G. Pousa、F. Graffitti、Z. X. Koong、P. Barrow、N. G. Stoltz、D. Bouwmeester、J. Jeffers、D. K. Oi、B. D. Gerardot 等，“利用单发射体在175 km光纤链路上实现量子密钥分发，并优化有限密钥率”，Nature Communications 14，3573（2023）。[289] U. L. Andersen、T. Gehring、C. Marquardt 和 G. Leuchs，“压缩光产生的30年历程”，Physica Scripta 91，053001（2016）。[290] D. F. Walls，“光压缩态”，Nature 306，141–146（1983）。[291] M. Chekhova、G. Leuchs 和 M. ˙Zukowski，“明亮压缩真空：宏观光束的纠缠”，Optics Communications 337，27–43（2015）。[292] P. Sharapova、G. Frascella、M. Riabinin、A. Pérez、O. Tikhonova、S. Lemieux、R. Boyd、G. Leuchs 和 M. Chekhova，“明亮压缩真空在亮度提升时的特性”，Physical Review Research 2，013371（2020）。[293] J. Heimerl、A. Mikhaylov、S. Meier、H. Höllerer、I. Kaminer、M. Chekhova 和 P. Hommelhoff，“利用非经典光实现多光子电子发射”，Nature Physics，1–6（2024）。[294] K. Y. Spasibko、D. A. Kopylov、V. L. Krutyanskiy、T. V. Murzina、G. Leuchs 和 M. V. Chekhova，“ 超快光子数涨落增强的多光子效应 ”，Physical Review Letters 119，223603（2017）。[295] A. I. Lvovsky，“压缩光”，《光子学：科学基础、技术与应用》1，121–163（2015）。[296] R. Schnabel，“光压缩态及其在激光干涉仪中的应用”，Physics Reports 684，1–51（2017）。

[297] A. Rasputnyi、Z. Chen、M. Birk、O. Cohen、I. Kaminer、M. Krüger、D. Seletskiy、M. Chekhova 和 F. Tani，“利用明亮压缩真空产生高次谐波”，Nature Physics **20**，1960–1965（2024）。[298] A. Ferraro、S. Olivares 和 M. G. Paris，“连续变量量子信息中的高斯态”，arXiv预印本 quant-ph/0503237（2005）。[299] T. S. Iskhakov、S. Lemieux、A. Perez、R. Boyd、G. Leuchs 和 M. Chekhova，“用于调控明亮压缩真空频谱的非线性干涉仪”，《现代光学杂志》**63**，64–70（2016）。[300] A. Perez、T. S. Iskhakov、P. Sharapova、S. Lemieux、O. Tikhonova、M. Chekhova 和 G. Leuchs，“明亮压缩真空的空间单模光源”，arXiv预印本 arXiv:1402.2771（2014）。[301] A. Pérez、P. Sharapova、S. Straupe、F. Miatto、O. Tikhonova、G. Leuchs 和 M. Chekhova，“对单一空间辐射本征模进行投影滤波”，arXiv预印本 arXiv:1502.06552（2015）。[302] P. Sharapova、O. Tikhonova、S. Lemieux、R. Boyd 和 M. Chekhova，“非线性干涉仪中的明亮压缩真空：频率与时间施密特模式描述”，Physical Review A **97**，053827（2018）。[303] M. Endo、R. He、T. Sonoyama、K. Takahashi、T. Kashiwazaki、T. Umeki、S. Takasu、K. Hattori、D. Fukuda、K. Fukui、等，“在电信波长下通过多光子减除产生非高斯量子态”，《光学快报》**31**，12865–12879（2023）。[304] R. Cheng、Y. Zhou、S. Wang、M. Shen、T. Taher 和 H. X. Tang，“揭示光子统计特性的100像素光子数分辨探测器”，《自然·光子学》**17**，112–119（2023）。[305] M. A. Finger、T. S. Iskhakov、N. Y. Joly、M. V. Chekhova 和 P. S. J. Russell，“用于产生超快、超亮双光束压缩真空的无拉曼效应惰性气体填充光子晶体光纤光源”，Physical Review Letters**115**，143602（2015）。[306] B. Woloncewicz、T. Das 和 M. ˙Zukowski，“改进光场的纠缠指标及其在具有诱导非高斯性的明亮压缩真空事件就绪实验中的应用”，arXiv电子印本，arXiv–2205（2022）。[307] H.-M. Li、Z. Wang、B.-H. Yang 和 H.-C. Yuan，“相干光子减除双模压缩热态的非经典性与隐形传态保真度”，《激光物理》**32**，095202（2022）。[308] K. Katamadze、N. Borshchevskaya、I. Dyakonov、A. Paterova 和 S. Kulik，“单一空间模式中的宽带双光子”，Physical Review A **92**，023812（2015）。[309] F. Matsuoka、A. Tomita 和 Y. Shikano，“通过对单光子进行后选择并利用弱交叉克尔非线性，产生具有大相干振幅的相位压缩光脉冲”，《量子研究：数学与基础》**4**，159–169（2017）。[310] L. You、X. Yang、Y. He、W. Zhang、D. Liu、W. Zhang、L. Zhang、L. Zhang、X. Liu、S. Chen、等，“超导纳米线单光子探测器的抖动分析”，《AIP Advances》**3**（2013）。[311] A. S. Abazi、R. Jaha、C. A. Graham-Scott、W. H. Pernice 和 C. Schuck，“提升基于超导纳米线单光子探测器的飞行时间激光雷达系统的多光子分辨率”，arXiv预印本 arXiv:2503.15349（2025）。[312] A. McCarthy、G. G. Taylor、J. Garcia-Armenta、B. Korzh、D. V. Morozov、A. D. Beyer、R. M. Briggs、J. P. Allmaras、B. Bumble、M. Colangelo、等，“利用超低定时抖动超导纳米线单光子探测器实现高分辨率远距离深度成像激光雷达”，Optica**12**，168–177（2025）。[313] M. Manceau、G. Leuchs、F. Khalili 和 M. Chekhova，“利用SU（1，1）干涉仪实现耐探测损耗的超灵敏相位测量”，Physical Review Letters**119**，223604（2017）。