在单链上连接分子量子发射体 从单个发射体到协同发射体

Jean-Baptiste Marceau[1#]、Juliette Le Balle[1, 2#]、Christel Poujol[3], Frédéric Fossard[2], Annick Loiseau[2], Gaëlle Recher[1] 和 Etienne Gaufrès[1*]

[1] 数字光子学与纳米科学实验室，光学研究所，法国国家科学研究中心 UMR5298，波尔多大学，法国塔朗斯 F-33400

[2] 微结构研究实验室，法国国家航空航天研究院-法国国家科学研究中心，UMR104，巴黎萨克雷大学，BP 72，92322 沙蒂永，法国

[3] 波尔多成像中心，UAR 3420 法国国家科学研究中心 – 波尔多大学 – 法国国家健康与医学研究院 US4，新阿基坦布罗卡中心，33076 波尔多，法国

这些作者贡献相同

*通讯：etienne.gaufres@cnrs.fr

摘要

在多个自由空间量子发射体之间调控光-物质相互作用，是实现可扩展量子光子技术的一项核心挑战。尤其是，要进入相干发射体间相互作用的工作区间——其中多个发射体通过共享的电磁环境耦合——对于实现相干发射和量子功能至关重要。这类相互作用要求精确控制发射体间距，并将其稳定在亚波长距离；在固态系统的分子尺度上，实现这种空间组织仍极其困难。本文提出编码量子链（EQC），这是一种一维架构，通过对相同分子发射体进行空间编码来编程调控协同辐射行为。有机发射体与惰性间隔分子共同封装在介电氮化硼纳米管（BNNT）中，从而能够对纳米至微米尺度的分子间距进行统计控制，同时确保偶极取向排列和一维限域。环境条件下的时间分辨荧光表明，辐射衰减加快、单个发射体的发射速率提高；当间距小于光学波长时，还会出现非单指数动力学，这与一维协同辐射态相符。EQC束化可使相邻氮化硼纳米管中的发射体发生耦合，推动激发向更高维度离域，实现维度交叉。这种模块化构件式方法为在受限分子系统中调控光-物质相互作用及多体光学现象提供了一条可扩展的途径，并为分布式单光子源、可编程量子发射体以及面向量子技术的光子架构开辟了新机遇。

引言

按需单光子源和多光子源的技术构件对于量子光学及新兴量子技术至关重要，可为通信、计算、传感和计量学提供飞行量子比特[1–3]。尽管这些应用涉及截然不同的光发射工作区间，但它们对单个量子发射体层面的光-物质相互作用都有严格要求[4]。

单光子发射依赖于对与单个光学偶极子相关联的单一、明确定义的二能级系统的隔离。相比之下，产生关联或纠缠多光子态需要多个相同的发射体协同辐射到共享的电磁环境中。在这种集体机制中，发射体之间的耦合可以产生超辐射态和亚辐射态，正如Dicke最初所描述的那样，其中发射动力学由集体偶极同步而非独立衰变所支配。实现这种协同发射需要对发射体间距、偶极取向排列和相干性进行精确控制，而在自由空间系统中，这一条件由亚波长长度尺度所决定。

尽管持续努力，在固态平台中实现集体辐射行为的工程化仍然具有挑战性。许多超辐射或协同发射的实验实现依赖于低温运行、光刻定义的架构，或高度受控但可扩展性较差的系统[5–7]。辐射耦合的精巧演示已在冷原子系综以及与纳米光子波导耦合的原子中实现，其中较长的相干时间和受控环境使集体发射成为可能[8–12]。然而，这些方法涉及严苛的实验开销，并且难以转化为紧凑、稳健且可扩展的材料平台。

在纳米尺度，研究者已在少发射体系统中探索集体发射，例如随机嵌入固态有机基质中的相干耦合量子发射体对，其中超辐射和亚辐射衰减通道可进行调控[13]。尽管这些研究为协同

辐射动力学提供了基础性见解，但要将这种调控拓展至两个或三个以上的发射体，同时实现均匀、可重复且可控的间距与排列，仍是一项重大挑战。近期，研究者在自组装钙钛矿量子点中报告了类集体发射特征，其中辐射寿命从纳秒缩短至皮秒，表明多个发射体之间可能存在耦合[14]。然而，残余无序、环境稳定性不足以及耦合强度的可调性有限，仍然制约着对集体状态的系统性探索。

有机分子因具有较大的振子强度、化学多样性以及可在室温下工作等特性，成为颇具吸引力的量子发射体[15]。在少数情况下，分子自组装形成 J-聚集体可产生集体光学响应，包括少量分子呈现超辐射发射的迹象[16–18]。然而，分子聚集体本身易受扰动，加之对分子间距和局部环境的控制有限，阻碍了可重复性以及对集体光子统计的定量研究。近期研究在氮化硼层环境中的单个有机分子里发现了尖锐的零声子线，这进一步凸显了嵌入宽带隙介电材料中的分子发射体所具有的潜力，同时也强调了可控纳米尺度限域与稳定化的重要性[19]。此外，近期在氮化硼纳米管（BNNTs）内堆叠的分子中发现了聚集效应，导致其稳态光谱发生集体变化。[20–22]

总体而言，利用集体辐射现象实现量子光子学，仍受限于缺乏可扩展的策略，难以在环境条件下以亚波长间距对多个发射体进行定位、排列和稳定。

在此，我们提出编码量子链（EQC）这一一维材料平台，通过对分子发射体进行空间编码，预先设定其集体辐射行为。EQC 由有机发射体和间隔分子共同封装在氮化硼纳米管中形成；氮化硼纳米管作为刚性介电宿主，能够实现一维限域并使偶极取向排列。通过在合成过程中调节发射体与间隔分子的相对浓度，可在统计意义上将单链上的平均分子间距从纳米调节至微米。

利用这一平台，我们首先在较大间距下确立了明确的单发射体状态：此时分子发射体彼此相距较远，表现为孤立分子，并在室温下呈现单个发射体特有的荧光指纹。随着发射体间距缩短至小于光学波长，我们观察到辐射衰减显著加快、非单指数动力学的出现，以及单个发射体发射速率的提升；这些现象与一维几何结构中协同辐射态的形成相符。最后，我们表明，EQC@BNNT 的束化可实现相邻链之间的辐射耦合，从而引发向更高维度协同发射的维度交叉。总之，这些结果确立了 EQC 作为一种模块化、可扩展的平台，可用于在室温下调控受限分子系统中的集体光-物质相互作用。

Main

编码量子链（EQC）的概念如图1a、b所示。其原理是沿单一线性宿主以亚波长间距排列并稳定分子量子发射体，宛如嵌入纳米尺度项链中的珍珠。我们利用氮化硼纳米管的晶体宽带隙（5.7 eV）一维腔[20,21,23] 作为刚性模板，组装EQC@BNNT结构。该合成策略利用氮化硼纳米管的开口端作为纳米级闸门，使溶液中的功能分子依次进入。我们假设，这种闸门机制能在受限的一维通道内重现稀溶液中各分子物种的相对浓度，从而沿氮化硼纳米管轴形成致密有序序列。氮化硼纳米管内腔的内径（1–3 nm）与入口孔尺寸相匹配，可最大限度地减少封装后重排、混合、序列扰乱和泄漏。

量子发射体和间隔分子的选择依据是：(1) 尺寸适合BNNT的空腔；(2) 光学共振之间至少相隔1 eV，从而减少光谱串扰，并在发射体位置形成具有局部极小值的纵向势能景观（图1b）。为此，将六噻吩（6T）和蒽（Anth）分子（吸收能量分别为2 eV和3.5 eV）与分散的BNNT共同溶解于二甲基甲酰胺（DMF）中，并在80°C下回流24小时。

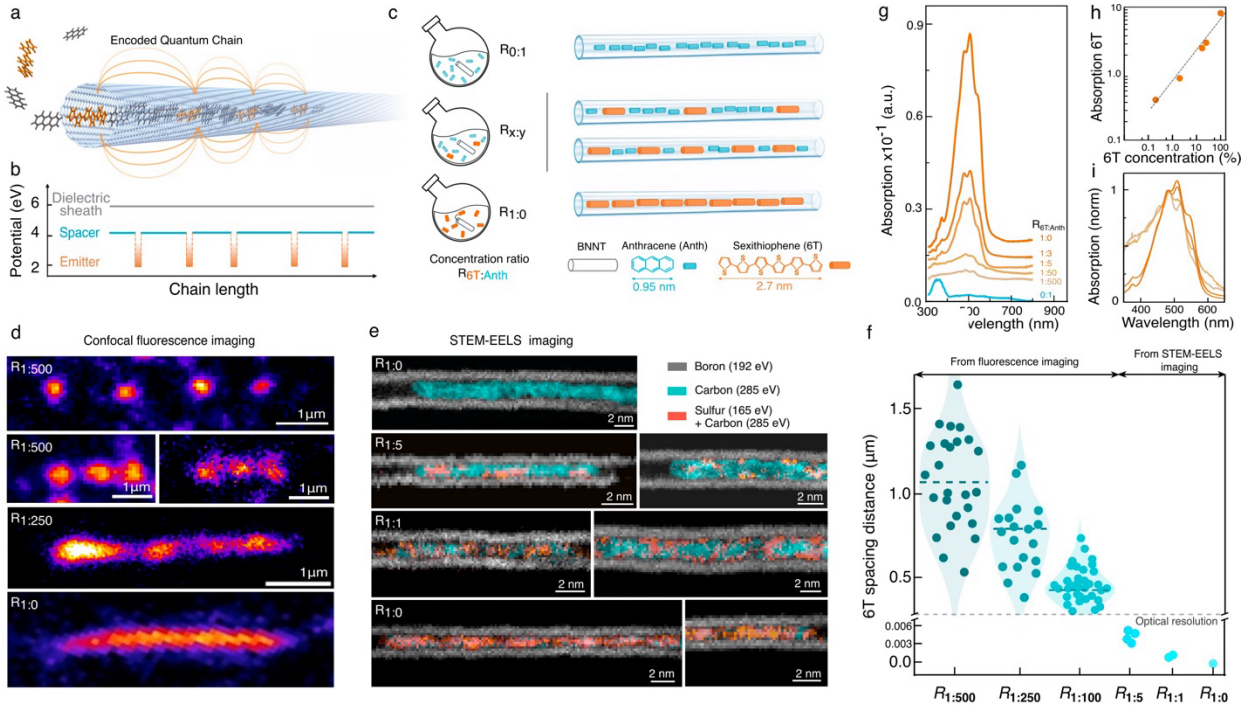


图1 – 编码量子链（EQC）的结构和化学组成。a EQC示意图，其构造方式为将六噻吩和蒽分子封装在BNNT内部。**b**EQC@BNNT纵轴方向上的势函数。**c**基于液相封装，将给定浓度比例的六噻吩和蒽分子封装在BNNT内形成EQC的合成路线，比例记为$R_{6T:Anth}$。**d**在激发波长为532 nm、收集范围为600-800 nm的条件下，对沉积在Si/SiO_2 基底上的EQC@BNNT进行共聚焦荧光成像。**e**EQC@BNNT的化学分析：叠加硼（192 eV）、硫（165 eV）和碳边（285 eV）的元素芯层电子能量损失（EELS）图像。图像采用像差校正扫描透射电子显微镜ac-STEM（JEOL NeoARM）在80kV下采集，样品为悬置于多孔碳透射电镜载网上的单个EQC@BNNT。**f**小提琴图表示BNNT内部蒽分子之间6T分子的统计平均间距随$R_{6T:Anth}$的变化。数据由共聚焦荧光成像$R_{1:500}$ $R_{1:250}$ 和 $R_{1:100}$提取；由STEM-EELS$R_{1:5}$ $R_{1:1}$ 和 $R_{1:0}$提取。彩色虚线表示给定$R_{6T:Anth}$下的间距中位数。灰色虚线表示共聚焦系统的光学分辨率极限。**g**合成后重新分散于DMF溶液中的EQC@BNNT在不同$R_{6T:Anth}$下的吸收光谱。**h**EQC@BNNT中6T分子在400 nm至600 nm范围内的积分吸收随$R_{6T:Anth}$的变化，数据取自(g) **i**EQC@BNNTs在485 nm处归一化的吸收光谱，样品为$R_{1:500}$ $R_{1:50}$、$R_{1:5}$和$R_{1:0}$。

制备了不同6T:蒽浓度比（记为$R_{6T:Anth}$），以调节EQC内的平均分子间距。混合物的组成从纯6T（$R_{1:0}$）到纯蒽（$R_{0:1}$）不等，中间比例为$R_{1:1}$、$R_{1:5}$、$R_{1:50}$、$R_{1:100}$、$R_{1:250}$ 和$R_{1:500}$，如图1c所示。EQC@BNNT的合成详情见补充信息。

通过旋涂将EQC@BNNT沉积在Si/SiO_2 基底上，并采用共聚焦荧光成像进行观测。（详情见补充信息文件。）图1d展示了EQC@BNNT的代表性荧光图像。在$R_{1:0}$ 条件下合成的EQC @BNNT沿纳米管轴呈现连续的荧光信号，表明6T分子在光学分辨率极限（250 nm）下形成了均匀、密集排列的链。相比之下，低6T含量下制备的样品（$R_{1:500}$和$R_{1:250}$）呈现不连续的荧光分布，氮化硼纳米管轴上分布着离散的强度斑点。这些斑点归因于被非共振蒽分子间隔开的6T发射体。发射体间距定义为相邻荧光斑点质心之间的距离。（图S1）

图1f展示了从 EQC@BNNTs 统计集合中提取的发射体间距分布随$R_{6T:Anth}$ 的变化。如预期，六噻吩相对浓度增加会缩短平均间距，这表明氮化硼纳米管孔道在统计意义上编码了反映外部溶液组成的分子序列。然而，间距分布呈现伪高斯轮廓（图 S2），与一维伯努利插入过程预期的指数统计特征明显不同。这种行为表明，进入的分子在氮化硼纳米管入口处会经历吸引或排斥相互作用，从而扰动纯粹的泊松装载机制。此外，氮化硼纳米管有限的长度（1–3 μm）限制了对大间距事件的观测，而光学分辨率（~250 纳米）则无法分辨更短的距离。

由于在尽量减少发射体聚集的同时实现亚波长间距，对于增强相干发射体间耦合至关重要，因此我们接下来评估了较高6T含量下氮化硼纳米管孔道的门控效率，重点考察$R_{1:5}$ 和$R_{1:1}$。为直接探测衍射极限以下单个EQC@BNNT的化学组成，我们在80千伏条件下，采用像差校正扫描透射电子显微镜结合电子能量损失谱（像差校正扫描透射电子显微镜-电子能量损失谱）对

组成范围从纯6T（$R_{1:0}$）到纯蒽（$R_{0:1}$）、并包含中间比例$R_{1:1}$、$R_{1:5.}$的EQC@BNNT样品进行了分析。通过滴涂并干燥，将EQC@BNNT悬浮于TEM栅网上的真空中。我们的STEM-EELS设备空间分辨率为1纳米。（图1e；详情见补充信息）。在硼（192 eV）、碳（285 eV）和硫（165 eV）边采集的元素分辨EELS图谱，揭示了分子排列随$R_{6T:Anth}$变化而发生的明显演变。随着6T含量增加，对应于6T发射体的富硫区域间距逐渐缩小，分子排列由准连续链转变为彼此间隔纳米尺度的离散发射体序列。对合成后并经滤洗的EQC@BNNT分散液进行吸收光谱分析，可独立测量总体6T负载量随$R_{6T:Anth}$ 的变化（图1g）。仅填充蒽的EQC@BNNT（$R_{0:1}$）在350 nm处呈现单一吸收带。（图1g）在前驱体溶液中逐步加入6T，会使530 nm处出现并增强一个特征吸收带，该吸收带对应于封装在氮化硼纳米管中的6T分子[20,22]。该吸收带的积分面积在超过三个数量级的范围内随6T比例线性变化（图1h），表明通过合成比例能够定量且可靠地控制发射体负载量。

以 485 nm 处的 6T 电子振动跃迁归一化后，吸收光谱显示，在 6T 比例最高时，0-0 和 0-1 电子振动特征的相对强度有所增强（图 1i）。这种光谱变化是与光学明亮激子态的头尾相接J型聚集相关的分子相互作用的典型标志。[24,25] 这一效应在分子间距最短的 EQC@BNNTs 中最为显著，这与高堆积密度下增强的激子耦合相符。图 1 所示的结构和光谱分析共同表明，将发射体与间隔体双重封装，是对定制的一维介电函数进行统计编码的一种可靠策略，间距可在 1 nm 至数微米范围内调控。这种空间控制水平构建了一个可扩展的平台，可用于设计和调控单链上量子发射体之间的相互作用。这些结果促使我们进一步详细研究 6T 发射体相对于$R_{6T:Anth}$的荧光性质。

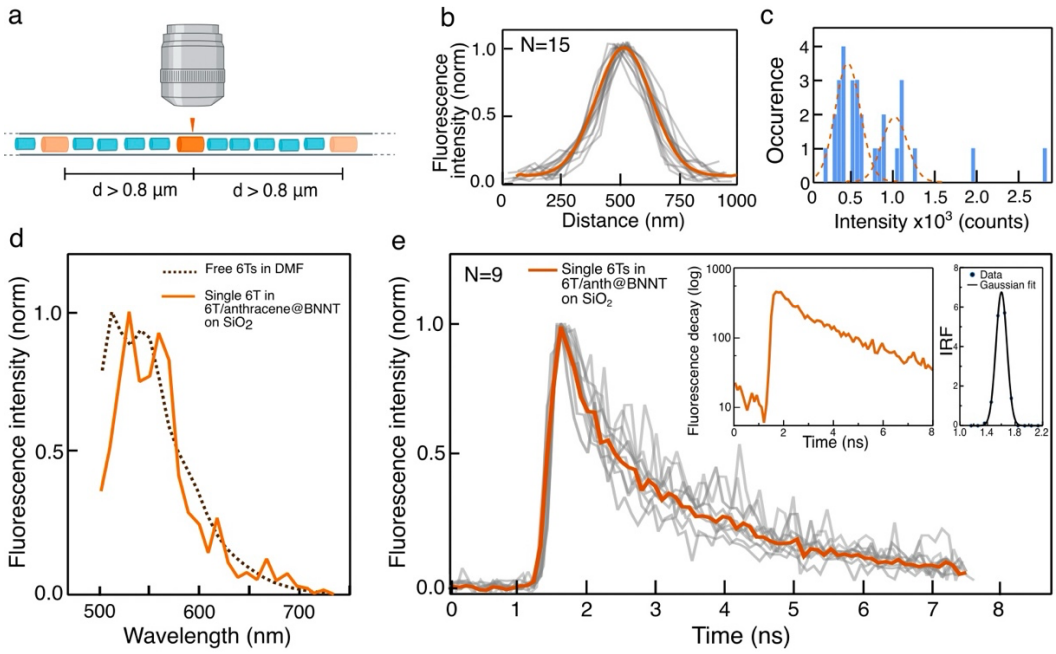


图2 - 编码量子链中孤立发射体的光学特征。a 用于光学测量的、间距大于800纳米的荧光强度光斑筛选方案，来自$R_{1:500}R_{1:250}$。 **b** 各个孤立光斑的荧光强度分布（灰色）及其平均分布（橙色）的叠加。 **c** 封装于氮化硼纳米管中的空间孤立6T发射体集合（N=15）的积分荧光强度分布。子分布以橙色虚线标出。 **d** 在488纳米激发下记录的DMF中游离6T分子以及封装于氮化硼纳米管中的单个6T发射体的荧光发射光谱。**e** 在488纳米激发下测得的孤立6T发射体集合（N=9）的时间分辨荧光衰减（灰色）及其平均衰减（橙色）。插图：氮化硼纳米管中单个6T发射体衰减的半对数表示，以及仪器响应函数（IRF）。

基于此前建立的样品库，我们首先考察荧光强度斑点间距较大的 EQC@BNNTs；如图 2a 所示，这些斑点之间的距离超过激发波长，且固定为 800 nm。这些斑点的荧光分布具有相近的半峰全宽（FWHM）（图 2b），接近成像装置的光学分辨率极限。此外，积分荧光强度聚集成两个离散分布，其中主要群体的强度为较低强度最大值的 0.4 倍10^3，（图 2b）。

这些观察结果表明发射体群体是均匀的，并表明大多数荧光斑点对应于单个6T分子。为检验这一假设，我们比较了

在488纳米激发下测得的、DMF中孤立6T分子的荧光光谱和激发态寿命，与室温下沿EQC@BNNTs记录的各个荧光斑点的相应结果（图2c、d）。发射光谱相似，封装在氮化硼纳米管中的6T分子的线宽略有变窄，这可能反映了沿纳米管壁伸展的分子骨架所受到的介电屏蔽和结构稳定。准单指数衰减动力学（图2d）的观察结果，以及与聚甲基丙烯酸甲酯（PMMA）基质环境中单个6T分子相当的特征寿命（1-2纳秒）[26], 表明，这些荧光斑点主要来自单分子发射体。

在分子间距较大、孤立发射体状态明确的条件下，我们现在考察间距缩小、发射体间相互作用增强的状态。决定相同分子发射体之间耦合的关键参数是它们的相对偶极取向和间距倒数。为探测相互作用特征，我们利用图1中介绍的多功能组装平台：BNNT主体使6T跃迁偶极保持一致取向，而蒽分子则作为可调间隔体沿单链排列。

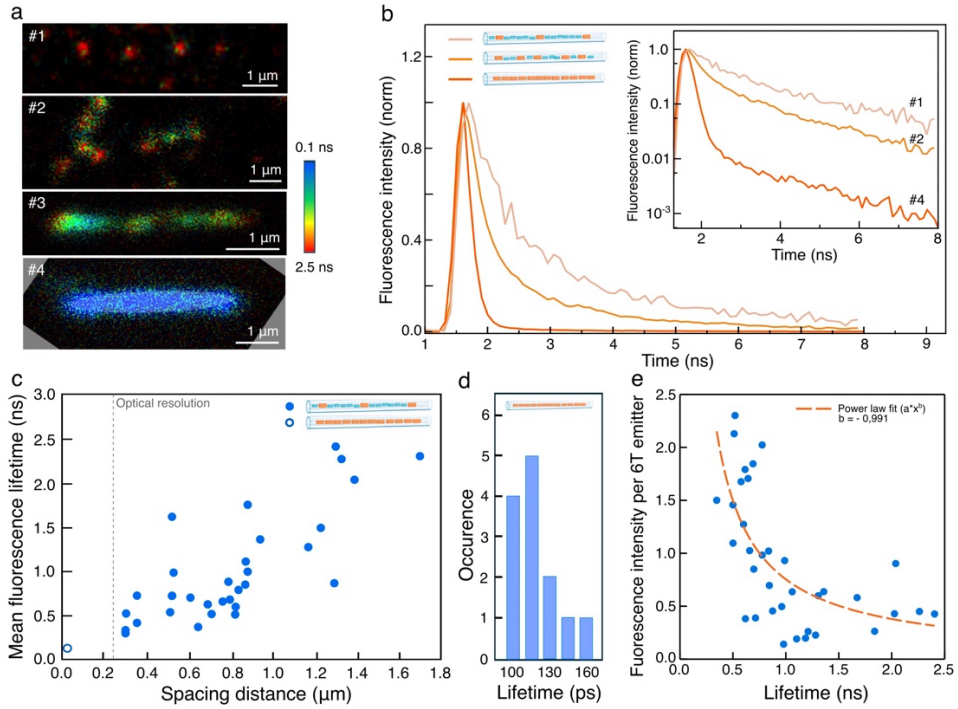


图3 - 室温下氮化硼纳米管中分子量子发射体的耦合。 a 荧光

在激发波长为532 nm时，对氮化硼纳米管内连续排列的六噻吩发射体链（#4）以及由蒽分子逐渐隔开的六噻吩发射体（#3-#2-#1）进行寿命成像（荧光寿命成像显微术）。**b** (a)中样品#1、#2和#4记录的荧光强度衰减。插图：衰减曲线的对数刻度表示。EQC@BNNT沉积在Si/SiO_2 基底上。**c** 与快速和慢速衰减分量（τ_1 和 τ_2）相关的加权平均有效寿命（τ_{eff}）；它们分别归因于超辐射和亚辐射衰减通道，并以发射体间距为函数绘制。**d** 在氮化硼纳米管内连续排列的六噻吩发射体链的统计系综（N=13）测得的寿命分布。**e** 间隔排列的六噻吩发射体的积分荧光强度随其寿命的变化，并以幂律拟合。

图3a展示了单个EQC@氮化硼纳米管的荧光寿命成像显微术（FLIM）图像，其构型从微米尺度分隔的6T发射体到准连续链不等，分别标记为#1至#4。随着分子间距缩小，荧光衰减逐步加快，幅度超过一个数量级；寿命从孤立发射体的约2纳秒缩短至密集排列链的100皮秒。中间构型（#2和#3）的寿命值始终处于中间水平。

这一趋势直接反映在图 3b 所示的代表性构型（#1、#3 和 #4）的时间分辨荧光衰减中，这些测量是在室温下进行的。在半对数刻度下（图 3b 插图），其衰减动力学明显偏离了孤立发射体所呈现的单指数行为

。随着发射体间距减小，一个快速且强烈的衰减分量开始出现，并逐渐主导衰减动力学。在 EQC@BNNTs 中，密集排列的发射体同时存在超辐射和亚辐射衰减通道，这与快速的光子脉冲（约 100 ps，τ1）和微弱的长寿命尾部（衰减时间为 τ2）并存的现象相符；后者的衰减时间与孤立发射体相当。简而言之，超辐射是一种由真空涨落触发的量子协同发射过程。在 t=0 时刻，真空涨落触发首次自发偶极响应，并由此选定一个由耦合同一电磁储库的发射体共享的集体相位。一旦系综在波长尺度的相干窗口内实现相位同步，便会通过明亮集体模辐射；该模式与真空的耦合强度随相干发射体数量的平方增长，从而加快发射，并使辐射寿命短于孤立分子的辐射寿命。

为定量捕捉这两种贡献，我们定义了有效荧光寿命 τ_{eff}，其计算方式为 τ1 和 τ2 的加权平均值。图3c展示了从所有测得的衰减曲线中提取的 τ_{eff} 随发射体间距的变化情况。当间距小于约 0.8 μm 时，τ_{eff} 显著缩短，最大缩短幅度达 15 倍；这一间距与光学波长相当。

在理想的迪克极限下，发射体被限制在亚波长体积内，此时集体辐射衰减率预计会随相干耦合发射体数量的增加而反比变化。更一般地，在三维几何结构中，集体发射由光学相干体积所支配，从而对发射体间距呈三次方依赖。相比之下，当前的 EQC@BNNT系统表现出有效荧光寿命随发射体间距增加而近似线性增加的特征。这种行为源于有限长度纳米管结构施加的一维限域。在这种几何结构中，只有位于链上长度与发射波长相当的线段内的发射体才能实现相干辐射。因此，沿链方向彼此相干的发射体的有效数量会随分子间距增加而线性减少。这一几何学论证解释了实验观察到的 τ_{eff} 标度关系。补充信息中给出了一个能够描述这一行为的最简解析模型。

对于连续发射体链（#4），慢衰减分量 τ2 的权重可以忽略不计，因此荧光动力学主要由快分量 τ1 支配。在这些条件下，有效发射动力学可以用约 100 ps 的特征时间尺度很好地描述（图 3d）。与孤立发射体纳秒尺度的衰减相比，荧光寿命缩短了近一个数量级，这表明在室温下形成了一个离域辐射通道，其中涉及数量约为十个的耦合发射体（详情见补充信息）。

在图3e中，展示了有效寿命τ_{eff}与单个6T发射体发射强度之间的关系。仅考虑空间分辨发射体。引人注目的是，局域发射强度与τ_{eff}呈反比例关系，幂律指数为$b \approx -1$。这种标度关系反映了一种机制，其中荧光亮度与辐射衰减率成正比，表明加速发射源于增强的集体辐射耦合，而非激发效率或非辐射损失的变化。与此一致，该行为可解释为振子强度在集体辐射通道之间的重新分配，其中快速的超辐射衰减分量主导所探测到的荧光，而长寿命的亚辐射分量仅有微弱贡献。

图 3 中观察到的标度关系依赖于孤立 EQC 的一维特性。因此，我们考察当 EQC 彼此靠近时衰减如何演变；此时发射体的空间排列不再局限于单链。（图 4a）

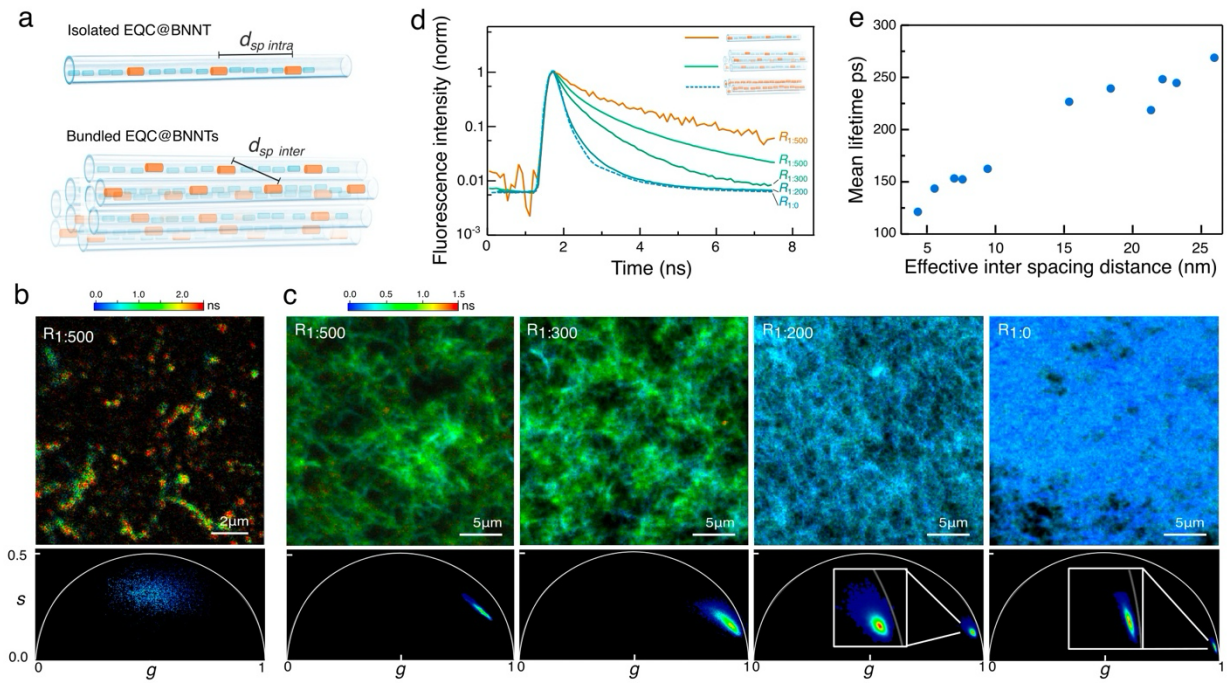


图4。 D　从一维到更高维集体发射的维度交叉 **n.**

a 在给定$R_{6T:Anth}$ 比值下 EQC@BNNT 束化的示意图，该过程促进发射体之间的管间耦合。**b-c** 亚单层微束 EQC@BNNT（b）以及沉积在 Si/SiO_2 基底上的密集捆束 EQC@BNNT 薄毡的荧光寿命成像显微术（FLIM）图像及相应的 PHASOR 表示；BNNT 填充条件为$R_{1:500}$、$R_{1:300}$、$R_{1:200}$和$R_{1:0}$，激发波长为 514 nm。寿命图根据强度加权平均光子到达时间获得，未进行拟合。**d** 从（b-c）中成像区域提取的、在$R_{1:500}$、$R_{1:300}$、$R_{1:200}$ 和$R_{1:0}$条件下合成的孤立和捆束 EQC@BNNT 的荧光衰减半对数表示。**e,** 根据捆束 EQC@BNNT 荧光衰减拟合提取的平均荧光寿命随$R_{6T:Anth}$ 比值的变化，并以计算得到的束内有效发射体间距为横轴绘制。

为探究单条一维链以外的协同发射，将 EQC@BNNTs 滴涂于 Si/SiO2 基底上，并置于 50 °C 烘箱中缓慢干燥。该过程促进范德华力驱动的吸附，使氮化硼纳米管自发捆束形成组装体，其典型横向尺寸为数百纳米；这些组装体随后进一步聚集，在基底上形成延展的薄毡。

图 4b–c 展示了在逐渐提高 BNNT 填充条件下制备的 EQC@BNNT组装体的荧光寿命成像显微术（FLIM）图，以及相应的相量表示[27,28] $R_{1:500}$、$R_{1:300}$、$R_{1:200}$ 和$R_{1:0}$。

在亚单层覆盖条件下（图 4b），EQC@BNNTs 彼此部分隔离，荧光寿命成像图像显示出明显的荧光寿命空间变化。这种异质性体现在宽广的相量分布中，表明尽管合成条件完全相同，局部BNNT密度和辐射衰减通道仍存在很大范围的差异。相比之下，在相同的 $R_{1:500}$比条件下合成、但以致密束状垫形式沉积的 EQC@BNNTs，在$15 \times 15\ \mu m^2$ 成像区域内表现出更短且空间均匀的荧光寿命。

这构成了链间耦合的直接证据：孤立的 EQC@BNNTs 的寿命仍与单根纳米管中测得的寿命相当，而仅束化便会导致寿命显著缩短，尽管 BNNTs 内的发射体间距完全相同。这一观察直接证明，集体辐射相互作用并不局限于单条一维链，而是源于束内相邻 BNNTs 中所承载发射体之间的耦合。

对不同$R_{6T:Anth}$ 比例下合成的束状 EQC@BNNT 薄毡，进一步通过时间分辨成像进行了研究（图 4c），结果显示，随着发射体密度增加，寿命均匀缩短。相应的相量分布逐渐向较短寿命方向移动，并随着 6T负载量增加而变得越来越窄，表明束内的辐射动力学趋于均一化。从这些密集组装体中提取的平均寿命从$R_{1:500}$ 时的约 0.7 纳秒降至$R_{1:0}$时的约 0.1 纳秒。

同样，从图 4b–c 中标出的区域提取的荧光衰减显示，随着发射体密度增加，衰减逐渐加快（图 4d）。在高密度极限（$R_{1:0}$）下，发射体链近乎连续，并组装成紧密堆积的束，衰减呈现出明显的多指数特征，反映出多种集体辐射通道并存，这些通道对应于异质的局部耦合构型。

基于束状构型中 EQC 间耦合的证据，我们结合实验测定的线性发射体

密度与几何堆积因素（见补充信息），估算了氮化硼纳米管束内的有效发射体间距。这使得我们能够直接关联束状 EQC@BNNTs 的平均荧光寿命与每种封装比例下的有效三维发射体间距（图 4e）。一个关键观察结果是，与严格的一维情形相比，束状结构中的集体发射在明显更短的长度尺度上演变。在束中，有效发射体间距仅变化 ~25 nm，平均寿命便大幅缩短，从约 300 ps 降至 100 ps。相比之下，在孤立的一维 EQC 中，要产生相近的寿命变化，间距至少需要增加 ~250 nm（图 3c）。

这种显著差异凸显了集体辐射动力学中的维度交叉：孤立 EQC 中的发射由沿单一一维轴的链内耦合主导，而 BNNT 束化则通过链间相互作用激活额外的辐射通道。因此，集体发射对空间组织的敏感度显著提高，反映出束化几何结构所促成的高维耦合通道。

讨论

本研究提出了一种通用策略，通过在受限几何结构中对分子发射体进行空间编码，实现集体与协同发射。该策略不依赖确定性定位，而是通过在一维介电宿主中共同封装发射体和间隔分子，以统计方式调控相互作用。这种方法将编码量子链（EQC）确立为一种通过设计调控辐射耦合的化学途径。

尽管本文展示的是限域于氮化硼纳米管中的有机发射体，但 EQC 概念并不局限于特定的分子体系。原则上，任何与一维限域兼容的光学活性纳米对象和惰性间隔分子的组合都可被纳入其中，从而实现定制化发射体序列的模块化组装。从这个意义上说，编码量子链提供了一个分子构件平台，可在合成阶段对相互作用强度、发射体密度和有效维度进行编码，而非在后加工阶段加以设定。

从孤立的单个发射体到强相互作用系综，再到通过纳米管成束实现的链间耦合，这一连续演变揭示了集体辐射行为如何随着空间组织的变化而逐步显现。重要的是，这一演变可在单一材料平台和环境条件下实现，凸显了该方法的稳健性，以及其对于构建基于分子发射体、可扩展光子架构的意义。

超越一维链这一特定情形，EQC提供了一个通用的实验框架，用以重新审视零维发射体（如分子量子点或纳米晶体）在彼此之间或与结构化电磁环境发生受控相互作用时的光物理学。通过弥合孤立发射体与集体系综之间的差距，该平台能够系统探索辐射速率、相干性和发射统计如何从单粒子极限演化到相互作用的多体区域。

我们观测中一个引人注目的方面是，耦合的特征在分子间距接近数百纳米时仍然存在，远超分子尺度，并且处于凝聚介电环境中。尽管这样的距离仍与一个光学波长内的一维辐射耦合相容，但该效应的稳健性表明，其背后的物理图像或许不能简化为通过自由空间模式耦合的简单偶极子系综。特别是，氮化硼纳米管宿主本身可能有助于沿链稳定或介导离域电磁模式，尽管其具有宽带隙电介质性质[19]。缺陷相关态、经修饰的局域光子态密度、声子相互作用[29], 或由纳米管几何结构支持的弱导引光学模式的贡献，在现阶段尚不能排除。已知类似的环境效应会强烈影响其他低维系统中的辐射动力学和相干性，例如封装在六方氮化硼中的二维半导体[30,31]。因此，阐明分子激子、纳米管宿主及其共享电磁环境之间的相互作用，是未来工作的一个重要方向。

更广泛而言，编码量子链构建了一个稳健且可操控的平台，用于探索低维分子系统中的集体光-物质相互作用，涵盖从孤立单个发射体到超辐射系综以及高维耦合网络的各种情形。由于 EQC 以固态纳米模板为基础，且可在溶液中加工、沉积于表面、组装成束或嵌入

聚合物基质中，因此天然适用于集成到光电子和光子器件中。通过在分子尺度上实现对发射体间距、相互作用强度和维度的可编程控制，这一方法为设计离域辐射态、分布式量子发射体以及可扩展固态架构中涌现的多体光学现象开辟了新途径。

参考文献

1. Couteau, C. 等单光子在量子通信与计算中的应用。*Nat Rev Phys* **5**, 326–338 (2023年)。2. Couteau, C. 等单光子在量子计量学、生物学和量子物理学基础中的应用。*Nat Rev Phys* **5**, 354–363 (2023年)。3. Alexander, K. 等一种可制造的光子量子计算平台。*Natur*

e

641, 876–883 (2025)。4. Daggett, E. 等固态发射体中的多体纠缠。*Nat Rev Mater* 1–21 (2026) doi:10.1038/s41578-026-00893-8。5. Reitz, M., Sommer, C. & Genes, C. 光-物质平台中的协同量子现象。*PRX Quantum* **3**, 010201 (2022年)。6. Benson, O. 由纳米光子组成单元组装混合光子架构。*Nature* **480**, 193–199 (2011)。7. Grim, J. Q. 等纳米光子波导中可扩展的运行中应变调谐使能

g

三量子点超辐射。《自然·材料》 **18**, 963–969 (2019年)。8. Thompson, J. D. 等将单个受困原子耦合至纳米尺度光学腔。*Science* **340**, 1202–1205 (2013)。9. Solano, P., Barberis-Blostein, P., Fatemi, F. K., Orozco, L. A. & Rolston, S. L. 超辐射通过纳米光纤揭示无限程偶极相互作用。*Nat Commun* **8**, 1 (2017年)。

857

10. Goban, A. 等 光子晶体波导中受困原子的超辐射。《物理评论快报》 **115**, 063601 (2015年)。11. Tiranov, A. 等 相距遥远的光学量子发射体之间的集体超辐射与亚辐射动力学。*Science* **379**, 389–393 (2023年)。12. Browaeys, A. & Lahaye, T. 由单独控制的里德伯原子构成的多体物理。《自然·物理》 **16**, 132–142 (2020年)。13. Trebbia, J.-B., Deplano, Q., Tamarat, P. & Lounis, B. 调控两个相干耦合量子发射体的超辐射与亚辐射特性。*Nat Commun* **13**, 2962 (2022年)。14. Zhu, C. 等 单个卤化铅铯量子点中的单光子超辐射。*Nature* **626**, 535–541 (2024年)。15. Toninelli, C. 等 用于光子量子技术的单个有机分子。《自然·材料》**20**, 1615–1628 (2021年)。

16. Eisfeld, A., Marquardt, C., Paulheim, A. & Sokolowski, M. 染料分子的二维砖墙状聚集体中的超辐射：尺寸和形状对温度依赖性的影响。《物理评论快报》 **119**, 097402（2017年）。

17. Luo, Y. 等 等离激元纳米腔中分子链的电驱动单光子超辐射。《物理评论快报》 **122**, 233901 （ 2019 年）。18. Yang, J., Yoo, H., Aratani, N., Osuka, A. & Kim, D. 单分子尺度下直接连接的线性卟啉阵列超辐射相干长度的测定。《应用化学》 **121**, 4387–4391（2009年）。19. Smit, R., Tebyani, A., Hameury, J., van der Molen, S. J. & Orrit, M. 六方氮化硼表面单个有机分子的尖锐零声子线。*Nat Commun* **14**, 7960（2023年）。20. Allard, C. 等 氮化硼纳米管内染料的限域：实现光稳定且荧光红移至近红外。《先进材料》 **32**, 2001429（2020年）。

21. Badon, A. 等 利用限域于氮化硼纳米管中的高偏振发光染料实现荧光各向异性。*Mater. Horiz.* **10**, 983–992（2023年）。22. Juergensen, S. 等 氮化硼纳米管内α-六噻吩链的集体态。*J. Phys. Chem. Lett.* **16**, 2393–2400（2025）。23. Blase, X., Rubio, A., Louie, S. G. & Cohen, M. L. 氮化硼纳米管的稳定性和带隙恒定性。*Europhys. Lett.* **28**, 335–340（1994）。24. Hestand, N. J. & Spano, F. C. H型和J型分子聚集体的扩展理论：振电耦合与分子间电荷转移的影响。*Chem. Rev.* **118**, 7069– 7163（2018）。25. Spano, F. C. & Silva, C. 聚合物半导体中的H型和J型聚集体行为。*Annu.Rev. Phys. Chem.* **65**, 477–500（2014）。

26. Da Como, E., Loi, M. A., Murgia, M., Zamboni, R. & Muccini, M. 二氧化硅上α-六噻吩亚单层薄膜中的J型聚集。*J. Am. Chem. Soc.* **128**, 4277–4281（2006）。

27. Digman, M. A., Caiolfa, V. R., Zamai, M. & Gratton, E. 荧光寿命成像分析的相量法。《生物物理学杂志》 **94**, L14–L16 (2008). 28. Torrado, B., Pannunzio, B., Malacrida, L. & Digman, M. A. 荧光寿命成像显微术。*Nat Rev Methods Primers* **4**, 80 (2024年). 29. Kuruma, K. 等 利用声子晶体控制高频声子与单个量子系统之间的相互作用。《自然·物理》 **21**, 77–82 (2025). 30. Cadiz, F. 等 基于 ${\mathrm{MoS}}_{2}$ 的范德华异质结构中激子线宽接近均匀展宽极限。*Phys. Rev. X* **7**, 021026 (2017年). 31. Ajayi, O. A. 等 过渡金属二硫族化物单层中的光致发光线宽接近本征值。*2D Mater.* **4**, 031011 (2017年).

致谢

作者衷心感谢加拿大国家研究委员会的 C. Kingston 及其团队捐赠氮化硼纳米管材料。E.G. 感谢 CNRS 启动经费、 CNRS Tremplin 计划和 GDRi Howdi 提供资助。E.G. 得到了 NAQUIDIS 量子中心和新阿基坦大区的支持。E. G. 和 G. R. 得到了 CNRS MITI“自组织挑战”项目的资助。G. R. 感谢 GdR ImaBio 的支持，并感谢法国国家研究署提供经费（ANR-21-CE45-0028）。共聚焦荧光显微镜和寿命成像在波尔多成像中心进行；该中心是法国国家科学研究中心—法国国家健康与医学研究院及波尔多大学的服务机构，也是法国国家研究署支持的国家基础设施法国生物成像的成员（ANR-10-INBS-04）。本研究得益于微结构研究实验室（LEM UMR 104 CNRS-ONERA）的 MOSTRA电子显微镜平台，并获得法兰西岛大区 SESAME 2020 项目的经费支持。作者感谢 C. Salomon 和 A. Browaeys 就超辐射问题进行讨论。

作者贡献

J.-B.M. 和 E.G. 设计了实验；J.-B. M. 和 J. L.B. 制备了样品；J.-BM、J. L.B.、C.P.、G.R. 和 E. G. 开展了光学实验并分析了结果。J.L.B、F.F. 和 A.L. 开展并讨论了扫描透射电子显微镜-电子能量损失谱实验。所有作者均参与了学术讨论、稿件准备和最终版本的定稿。

利益冲突

作者声明不存在利益冲突

补充信息文件，用于

在单链上连接量子发射体
从单个发射体到协同发射体

Jean-Baptiste Marceau[1#]、J. Le Balle[1, 2#]、Christel Poujol[3], Frederic Fossard[2], Annick Loiseau[2], Gaëlle Recher[1] 和 Etienne Gaufrès[1*]

[1] 数字光子学与纳米科学实验室，光学研究所，法国国家科学研究中心 UMR5298，波尔多大学，F-33400 塔朗斯，法国

[2] 微结构研究实验室，法国国家航空航天研究院-法国国家科学研究中心，UMR104，巴黎萨克雷大学，BP 72，92322 沙蒂永，法国

[3] 波尔多成像中心，UAR 3420 法国国家科学研究中心 – 波尔多大学 – 法国国家健康与医学研究院 US4，新阿基坦布罗卡中心，33076 波尔多，法国

作者贡献相同

*通讯作者：etienne.gaufres@cnrs.fr

1. EQC@BNNT 合成

为实现不同的封装比例，我们首先配制α- 六噻吩（6T）和蒽（Anth）的储备溶液。将 1.98 mg Sigma-Aldrich 的α- 六噻吩粉末溶解于 V=500 mL 的 N,N-二甲基甲酰胺（DMF）中，配制得到最终浓度为 C = 0.8 x 10^{-5} mol/L 的 6T 储备液。为简化比例计算，我们将蒽储备液配制成与 6T 相同的浓度。因此，将 1.14 mg Sigma-Aldrich 的蒽粉末溶解于 V=800 mL 甲苯中。

为配制不同的 6T-Anth 比值，我们决定将最终体积设为 V=100mL。下表列出了从 6T 和 Anth 储备溶液中取用的等分体积，以配制不同比值的溶液。

比值（6T:Anth）	移取的 6T 储备液	移取的 Anth 储备液
1:0	100 mL	0 mL
1:1	50 毫升	50 毫升
1:5	20 毫升	80 毫升
1:50	1,961 毫升	98,04 毫升
1:100	990,1 µL	99,0099 mL
1:250	400 µL	99,60 mL
1:500	199,6 µL	99,80004 mL
0:1	0 mL	100 mL

分子在氮化硼纳米管内的封装是在80°C下回流24小时完成的。为确保实验的可重复性，我们采用了以下操作流程:

为确保均匀性，将储备液和氮化硼纳米管溶液（经过预处理并开口的氮化硼纳米管）超声处理5分钟。用移液器吸取20 mL储备比例溶液和6 mL氮化硼纳米管溶液，加入装有磁力搅拌子的圆底烧瓶中。随后将圆底烧瓶连接到球形冷凝管，球形冷凝管再连接到水循环系统。将整套装置——一个装有油浴的结晶皿置于带磁力搅拌功能的加热板上——升高，使圆底烧瓶浸入油浴约50%。

24小时反应结束时，降低油浴以取出烧瓶。随后用布氏漏斗通过聚四氟乙烯膜过滤溶液。聚四氟乙烯膜具有0.2 µm的孔，这些孔事先已用DMF打开。然后将膜转移至装有DMF的烧瓶中，并置于超声浴中，以使Mol@BNNT从其表面脱离。最后从烧瓶中取出膜，得到最终的Mol@BNNT溶液。

2. 在基底上组装EQC@氮化硼纳米管

将标记有 Si/SiO_2 的晶圆切割成约 7x7 mm 的基底。随后将其置于丙酮浴中超声处理 10 分钟，再置于异丙醇浴中超声处理 10 分钟，之后用氮气吹干。将基底放在一片置于载玻片上的光学纸上。通过滴铸沉积，将所需 Mol@BNNT 比例的溶液沉积到基底表面。为使溶剂蒸发，将样品放入 70°C 的烘箱中 2 小时。

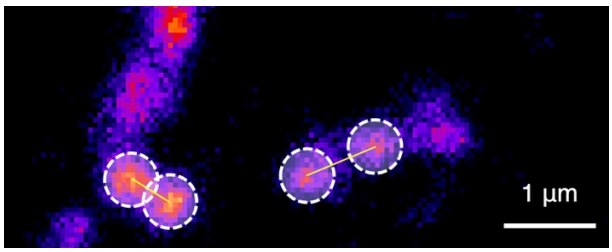
3. 使用扫描透射电子显微镜电子能量损失谱对 EQC@BNNT 进行结构与化学分析

将所研究的 Mol@BNNT 溶液滴涂到蕾丝碳 400目铜网格上，并使用 S/TEM MOSTRA显微镜（JEOL NeoARM）在 80kV 下进行扫描透射电子显微镜–电子能量损失谱（STEM-EELS）分析。由于分析的是复杂样品，因此选择合适的能量范围至关重要，该范围需能分别记录硫、硼和碳的信号，其对应能量分别为 165 eV、192 eV 和 285 eV，因此我们将中心能量设为 200eV。测量完成后，使用 Panta Rhei 软件分析数据。该软件通过选择我们希望研究的元素的元素核心值，生成交互式元素EELS图像。为不同元素创建不同的图谱后，即可叠加显示各种元素的贡献。

4. 共聚焦荧光寿命测量

实验装置 使用（2）中制备的样品进行荧光寿命测量。测量在倒置式 DMI6000 支架上的徕卡 SP8 WLL2显微镜（徕卡显微系统，德国曼海姆）上进行，使用 HCX Plan Apo CS2 63倍油镜，数值孔径1.40。由于显微镜为倒置式，且样品不透明，我们必须以一种能够将样品物理翻转的方式进行制备。为此，将样品放置在载玻片上，使待研究的一面朝上。在样品两侧各滴一滴强力胶。在样品表面滴一滴甘油，然后盖上玻璃盖玻片。盖玻片会被强力胶固定在适当位置。这样的装置既能将样品翻转，又能满足显微镜所需的尺寸要求。荧光寿命和共聚焦成像测量采用 514 nm 激发波长。使用混合型探测器收集 500 nm 至 700 nm 范围内的发射信号。随后通过 FLIMX软件分析数据，从而获得不同的寿命值、拟合结果和相量图。

EQC@BNNT 上发射体间距的测量。间距定义为荧光斑点质心之间的距离，如图S1所示。使用 FLIMX软件直接测量该距离。



图S1 - 根据量子点质心确定发射体间距

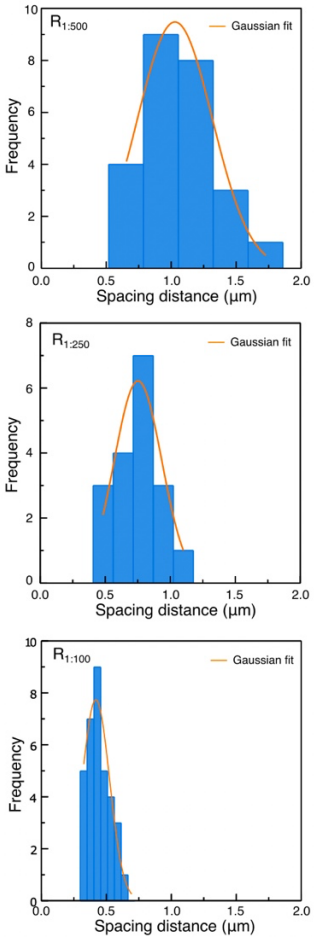


图 S2 从激发波长为 514 nm、收集范围为 550–700 nm 的共聚焦图像中测得的间距分布及高斯拟合，随 $R_{6T:Anth}$ ($R_{1:500}$, $R_{1:250}$, $R_{1:100}$) 的变化。

5. 有限长度纳米管中一维集体衰减的解析模型

5.1. 恒定间距的周期链

几何结构与假设。

我们考虑一条有限的准一维链，其中有 N 个相同的二能级发射体，被限制在氮化硼纳米管内。发射体以 a 为间距，均匀分布在轴向位置 $z_i = i\,a$ （$i = 1 \ldots N$），单个发射体的辐射衰减率为 Γ_0，跃迁波长为 λ（$k = 2\pi/\lambda$）。氮化硼纳米管使跃迁偶极矩主要沿管轴排列，因此电磁格林张量的轴向投影决定了耗散性（辐射）耦合。

耦合核与集体速率。

发射体 i 与 j 之间的辐射耦合为

$$\Gamma_{ij} = \begin{cases} \Gamma_0, & i = j \\ \Gamma_0 \dfrac{\sin(k\, r_{ij})}{k\, r_{ij}}, & i \neq j \end{cases}$$

$$\text{with } r_{ij} = \mid i - j \mid a.$$

对于集体本征模 $\mathbf{c} = (c_1, \ldots, c_N)$，总辐射衰减率为

$$\Gamma[\mathbf{c}] = \sum_{i,j=1}^{N} \Gamma_{ij}\ c_i c_j^*.$$

由于相位因子 $\sin(kr)/(kr)$ 在超过 $r \sim \lambda$ 后会发生振荡，因此只有轴向窗口大小为 $\sim \lambda$ 的范围内的发射体才能产生相长叠加。因此，亮模（类超辐射模式）的有效相干尺寸为

$$N_{\text{eff}}^{(0)} \ \sim\ \frac{\lambda}{a},$$

由此得到集体衰减率

$$\Gamma_{\text{coll}}^{(0)} \ \approx\ \Gamma_0\, N_{\text{eff}}^{(0)} \ \sim\ \Gamma_0\, \frac{\lambda}{a},$$

以及亮模寿命的线性 1D 标度关系

$$\tau_1 \ \sim\ \frac{1}{\Gamma_{\text{coll}}^{(0)}} \ \propto\ a.$$

5.2. 伪高斯间距无序的影响

在实验中，固定装载比下的发射体间距并非完全呈周期性，而是围绕平均值 $\bar{a}$ 服从伪高斯分布（图 1 和图 S2）。为描述这一点，我们将轴向位置建模为

$$z_i \ =\ i\,\bar{a} \ +\ \epsilon_i,$$

其中，$\bar{a}$ 是平均最近邻间距，ϵ_i 是位置 i 相对于周期晶格 $i\,\bar{a}$ 的零均值位置偏差（不失一般性，我们令 $\epsilon_1 = 0$）。局部间距涨落（最近邻间距）为

$$\delta_i \ \equiv\ (z_{i+1} - z_i) - \bar{a},$$

以便

$$\delta_i \;=\; \epsilon_{i+1} - \epsilon_i \Leftrightarrow \epsilon_i \;=\; \textstyle\sum_{n=1}^{i-1} \delta_n \quad \text{with } (\epsilon_1 = 0).$$

我们假设

$$\langle \delta_i \rangle \;=\; 0 \quad \text{and} \quad \mathrm{rms}(\delta_i) \;=\; \sigma_a,$$

其中 $\cdot$ 表示数据集内的系综平均，$\mathrm{rms}(\cdot)$ 为均方根（零均值变量的标准差）。因此，σ_a 是均方根最近邻间距涨落。

对于一对 (i, j)，进入耦合核的轴向间距为

$$r_{ij} \;=\; |\, z_j - z_i \,| \;=\; |\, i - j \,|\; \bar{a} \;+\; \Delta_{ij},$$

with

$$\Delta_{ij} \;\equiv\; \epsilon_j - \epsilon_i \;=\; \textstyle\sum_{n=i}^{j-1} \delta_n,$$

在短程、近似高斯间距噪声（与伪高斯直方图一致）下，Δ_{ij} 同样近似为零均值高斯分布。在波长限制的相干窗口 $|\, i - j \,| \lesssim \lambda/\bar{a}$ 上，均方根成对抖动为

$$\sigma_\Delta^2 \;\equiv\; \langle \Delta_{ij}^2 \rangle \;\approx\; \left(\frac{\lambda}{\bar{a}}\right) \sigma_a^2,$$

它控制核中的统计相位抖动 $k\,\Delta_{ij}$。由此得到高斯相干退相位因子

$$\mathcal{C} \;\equiv\; \langle e^{ik\Delta_{ij}} \rangle \;\simeq\; \exp\!\left[-\tfrac{1}{2}\, k^2\, \sigma_\Delta^2\right] \;=\; \exp\!\left[-\tfrac{1}{2}(2\pi\, \sigma_\Delta/\lambda)^2\right].$$

间距无序下的集体速率

轴向相干窗口 $\sim \lambda$ 保持不变；然而，亮模振幅被 $\mathcal{C} \in (0,1]$ 衰减。因此，有效相干尺寸与集体速率变为

$$N_{\mathrm{eff}} \;\approx\; \left(\frac{\lambda}{\bar{a}}\right) \mathcal{C},$$

$$\Gamma_{\mathrm{coll}} \;\approx\; \Gamma_0\, N_{\mathrm{eff}} \;\approx\; \Gamma_0 \left(\frac{\lambda}{\bar{a}}\right) \mathcal{C},$$

而快速寿命的变化规律为

$$\tau_1 \;\approx\; \frac{1}{\Gamma_{\mathrm{coll}}} \;\propto\; \frac{\bar{a}}{\mathcal{C}}.$$

一维趋势的函数形式保持不变，τ_1 仍与平均间距 $\bar{a}$ 呈线性关系，但其斜率会被 $\mathcal{C} < 1$ 重新归一化，而 $\mathcal{C} < 1$ 取决于均方根间距涨落，关系由 σ_Δ 给出。

实际上，间距离散度越大（σ_a越大，因此σ_Δ也越大），集体增强越弱（N_{eff}越小），在固定$\bar{a}$时寿命τ_1 越长，并且名义上相似的样品之间拟合所得寿命的分布也越宽。这些说法与在固定比值下观察到的伪高斯间距统计相符。

与三维系综的对比。

上述无序修正主要影响一维集体衰变率的前因子。与三维系综相比，标度关系 仍然不同：在三维中，$N_{\mathrm{eff}}^{(3\mathrm{D})} \sim (\lambda/\bar{a})^3$ 和$\Gamma_{\mathrm{coll}}^{(3\mathrm{D})} \sim \Gamma_0(\lambda/\bar{a})^3$，即寿命与$\bar{a}$呈三次方关系，这与此处观察到的一维线性行为截然不同。

5. 耦合发射体有效数目的估算

相干耦合发射体的有效数目

EQC@BNNTs 的荧光衰减可由双指数函数很好地描述,

$$I(t) = A_1 e^{-t/\tau_1} + A_2 e^{-t/\tau_2},$$

其中，τ_1 对应快速辐射通道，τ_2 对应较慢的通道。在集体发射的背景下，快分量τ_1归因于在相干窗口（$\sim \lambda$）内保持相位同步的发射体所形成的明亮集体模。慢分量τ_2 源自弱辐射构型（部分失相干或彼此独立的偶极子），因此可为单发射体辐射率提供一个实用的基准。

实验上，τ_2 仍接近孤立发射体的寿命τ_0，表明强亚辐射模虽存在，但在探测信号中所占权重可忽略不计。这种行为在固态分子系统中很典型：深度亚辐射本征态表现出极弱的辐射振幅，因此在时间分辨荧光中基本上不可见。

为量化与明亮集体模相关的辐射率增强，我们定义有效集体衰减率。

$$\Gamma_{\mathrm{eff}} = \frac{A_1\Gamma_1 + A_2\Gamma_2}{A_1 + A_2}, \quad \Gamma_i = 1/\tau_i$$

在与 EQC 相关的区间内，快分量占主导地位（$A_2 \ll A_1$），因此

$$\Gamma_{\mathrm{eff}} \simeq \Gamma_1 = 1/\tau_1$$

因此，相干耦合发射体的有效数量定义为

$$N_{\mathrm{eff}} = \frac{\Gamma_{\mathrm{eff}}}{\Gamma_0} \simeq \frac{\tau_0}{\tau_1},$$

其中$\Gamma_0 = 1/\tau_0$是由孤立6T分子或慢分量τ_2推断得到的单发射体辐射率。

利用本研究获得的典型值（$\tau_1 \approx 100$皮秒和$\tau_0 \approx 2.0$纳秒），我们估计

$$N_{\mathrm{eff}} \approx 20,$$

N_{eff}反映了能够在氮化硼纳米管的一维几何结构所施加的轴向相干窗口内相长辐射的发射体数量。该数值并非一条链中分子的总数，而是主导辐射动力学的波长限制的集体偶极的尺度。