空气稳定的明亮纠缠光子对源，来自石墨烯封装的范德华铁电体 $NbOI_2$

Mayank Joshi[1,2], Mengting Jiang[3], Yu Xing[1], Yuerui Lu[4], Jie Zhao[2], Ping Koy Lam[1,3,5], Syed MAssad[1,3,5*], Xuezhi Ma[1,3,5*]， 以及 Young-Wook Cho[1,3,5*]

1. 量子创新中心（Q. InC）、新加坡科技研究局（A*STAR），新加坡 138635，Fusionopolis Way 4 号，Kinesis，#05。

2. 澳大利亚国立大学（ANU）量子科学与技术系，澳大利亚国立大学，澳大利亚堪培拉，ACT 2601。3. 材料研究与工程研究所（IMRE），新加坡科技研究局，2 Fusionopolis Way，Innovis，#08-03，新加坡 138634。4. 澳大利亚国立大学工程学院工程、计算与控制论学部，澳大利亚堪培拉，ACT 2601。5. 量子技术中心（CQT），新加坡国立大学（NUS），新加坡 117543。通讯作者电子邮箱：Young-Wook Cho：cho_youngwook@a-star.edu.sg；Xuezhi Ma：ma_xuezhi@a-star.edu.sg；Syed M Assad：cqtsma@gmail.com

摘要

范德华（vdW）铁电体是一类新兴的非线性光子材料，兼具较大的二阶极化率 $\chi^{(2)}$ 和异质结构兼容性，为小型化自发参量下转换（SPDC）光源提供了极具吸引力的途径。然而，在空气中连续辐照的范德华自发参量下转换光源仍受限于亮度低、运行稳定性差等问题；氧气和水分的侵蚀，加上泵浦诱导加热，会导致材料退化和永久性损坏。在此，我们展示了一种由石墨烯封装实现的空气稳定、高亮度 SPDC 光源，其基础材料为铁电体 $NbOI_2$ 。石墨烯可提供稳健的环境保护，并通过增强散热有效抑制泵浦诱导的退化。我们报告了创纪录的光子对产生绝对速率 258 Hz，以及 19,900 Hz/(mW·mm) 的归一化亮度。借助这一稳定平台，我们进一步利用石墨烯封装的 90° 扭转双层 $NbOI_2$产生了偏振纠缠光子对，其相对于最大纠缠贝尔态的保真度为 94%。我们的研究确立了一种实用且空气稳定的范德华铁电体 SPDC 平台，克服了现有范德华量子光源的关键局限，并为面向片上量子光子学的可扩展集成纠缠光子源提供了可行路径。

Main

自发参量下转换（SPDC）[1-3] 是一种广泛使用的机制，可用于产生相关的纠缠光子对。它是众多光子量子技术的重要基础资源，应用领域涵盖量子通信[4], 量子计算[5],量子传感[6] 以及量子物理基础性检验[7]。基于块体非线性晶体的传统自发参量下转换光源已实现许多原理验证演示，但其体积较大且集成度有限，因此有必要开发与新兴量子光子平台兼容的紧凑型光子对光源。

范德华（vdW）非线性材料为实现此类紧凑型自发参量下转换光源提供了一条颇具吸引力的途径，因为它们兼具强二阶极化率（$\chi^{(2)}$）以及与异质结构集成的天然兼容性[8-12]。其无悬挂键表面有利于与各种光学层、电子层和保护层进行界面集成，而厚度控制和确定性堆叠则能够实现

在原子级薄的平台内对非线性生成、环境保护和热管理进行工程化设计的器件架构。

尽管前景广阔，实际的范德华自发参量下转换光源仍面临两大挑战。首先，可实现的光子对数量往往不足以满足可扩展量子光子学应用的需求。其次，在环境条件下的运行稳定性始终令人担忧，因为许多原子级薄的范德华材料容易因氧气和水分[13,14]而发生降解。在光泵浦条件下，这种不稳定性会进一步加剧：局部加热和光辅助化学反应可能加速材料损伤并降低非线性性能。连续辐照下由此产生的低损伤阈值，严重限制了运行条件和器件的长期稳定性。

在范德华$\chi^{(2)}$材料中，层状铁电晶体尤具吸引力，因为其反演对称性破缺能够在较宽的厚度范围内支持非线性响应，为自发参量下转换[15–20]提供了实际灵活性。特别是，铌氧卤化物 $NbOX_2$ (X = Cl、Br 或 I)家族近期受到关注，这得益于其适用于异质结构组装，且具有激子增强的二阶非线性[21-26]。然而，增强非线性响应的激子共振也会在泵浦波长附近引入不可忽视的光吸收。这种吸收会导致局域光热加热，最终造成泵浦诱导损伤。因此，封装对于在连续运行期间维持环境稳定性和高非线性至关重要。

在此，我们利用经石墨烯封装而稳定的铁电 $NbOI_2$ 薄片来应对这些挑战。与广泛用于范德华材料的传统六方氮化硼封装不同，石墨烯不仅能有效保护材料免受环境影响，还凭借极高的热导率[27]实现高效的横向热扩散。这种双重功能可在连续激光照射下增强散热，并抑制泵浦光辅助降解。为实现稳定且明亮的范德华自发参量下转换光源，我们在同一材料平台中直接比较了石墨烯封装、六方氮化硼封装和未封装的 $NbOI_2$ 。采用石墨烯封装后，我们从 $NbOI_2$获得了创纪录的自发参量下转换率，达 258 ± 1.2 Hz，并观测到最大 $g^{(2)}(0)$ 为 2816 ± 243。此外，通过堆叠两块晶体，我们生成了偏振纠缠光子对，其相对于最大纠缠态的保真度为 94%。总体而言，

我们的研究确立了石墨烯封装的 $NbOI_2$ 是一种稳定且高性能的自发参量下转换平台，适用于集成量子光生成。

基于二次谐波产生的畴表征与石墨烯封装

我们首先考察导电石墨烯覆盖层是否会改变 $NbOI_2$ 的自发铁电极化，或降低其有效 $\chi^{(2)}$ 响应。我们使用反射模式显微术装置测量二次谐波产生响应（补充图 S1）。

图 1a 展示了 $NbOI_2$ 单斜晶格的晶体结构（C2 空间群）；其非中心对称性支持有限的 $\chi^{(2)}$。图 1b 展示了 $NbOI_2$ 薄片经石墨烯封装后的显微图像，证实石墨烯均匀且贴合地覆盖了整个晶体表面。这种配置使得我们能够直接逐区域比较同一 $NbOI_2$ 薄片在石墨烯封装前后的二次谐波产生（SHG）响应。在相同区域进行的二次谐波产生映射显示，石墨烯封装后 SHG 强度变化小于 20%（图 1c、d），表明有效 $\chi^{(2)}$ 响应基本得以保留。尽管 SHG 强度有所变化，石墨烯封装仍显著提升了材料的环境耐受性。未封装的薄片在环境暴露和光照下容易劣化，而石墨烯封装的 $NbOI_2$ 在相同条件下仍能保持稳定的 SHG 响应（补充图 S2）。图 1e–g 展示了石墨烯封装不仅通过散热减少泵浦光诱导的损伤，还能保护材料免受环境条件的影响。

综上，这些结果表明，石墨烯封装在保留 $NbOI\chi^{(2)}$ 的铁电畴完整性和 $\chi^{(2)}$ 功能的同时，显著增强了其抵抗激光及环境诱导损伤的能力。非线性功能与运行稳健性的结合，为连续激发下实现高亮度自发参量下转换提供了可靠基础。

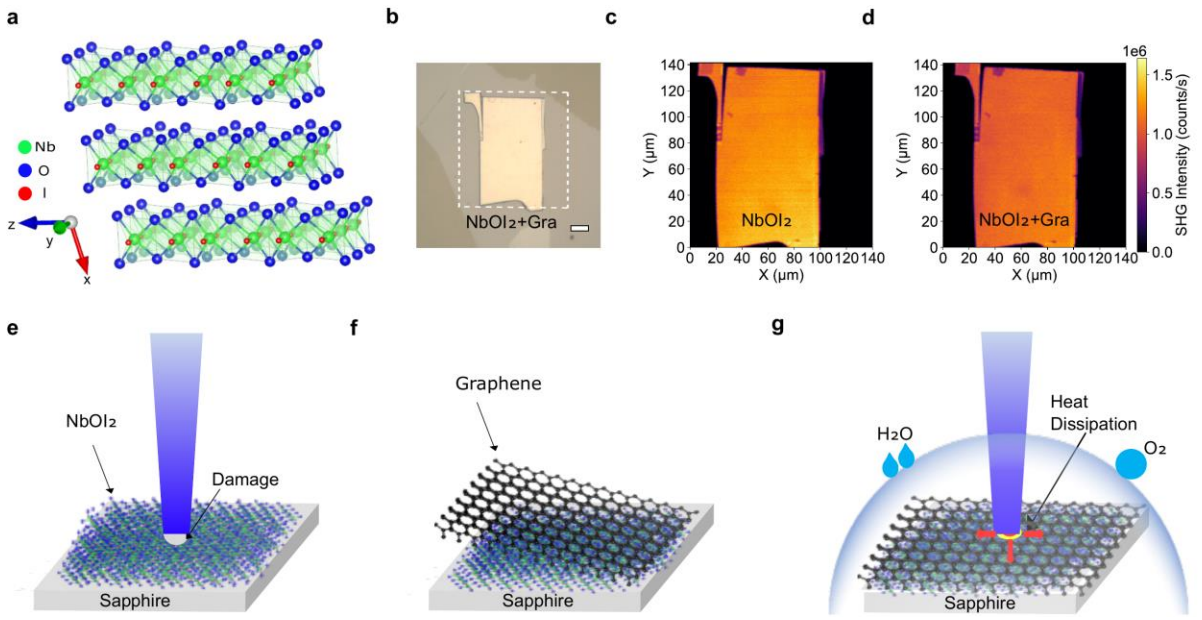


图 1| a，$NbOI_2$ 的晶体结构，显示 Nb、O 和 I 原子的层状排列。**b**，经石墨烯封装的 $NbOI_2$ 显微图像。白色虚线标记的区域为二次谐波产生映射的成像区域。比例尺为 20 μm。**c**，二次谐波产生（二次谐波产生）图，显示 $NbOI_2$的均匀畴。**d**，二次谐波产生图显示石墨烯覆盖的 $NbOI_2$ 的二次谐波产生强度，表明其强度接近未封装的 $NbOI_2$。**e**，示意图说明在无封装情况下直接施加激光时对 $NbOI_2$ 造成的损伤。**f**，石墨烯覆盖 $NbOI_2$的示意图。**g**，示意图说明石墨烯保护薄片免受水分（H_2O）和氧气（O_2）的影响，并散去激光产生的热量。色标显示二次谐波产生强度（计数/秒）。

石墨烯、六方氮化硼与未封装 $NbOI_2$ 的自发参量下转换性能比较

已知 $NbOI_2$ 在环境条件下会发生退化，先前研究表明，六方氮化硼封装能够保持其化学稳定性[29]。然而，六方氮化硼相对有限的热导率[30]可能会限制连续激光激发下的散热，从而影响基于 $NbOI_2$ 的自发参量下转换光源的长期运行稳定性。因此，我们在同一材料平台中比较石墨烯封装、六方氮化硼封装和未封装的 $NbOI_2$ 薄片，以考察不同封装策略对连续激光激发下自发参量下转换亮度、光子统计和稳定性的影响。

图 2a 展示了用于自发参量下转换测量的实验配置。采用连续波 405 nm 激光作为泵浦光，其功率和偏振由半波片 (HWP) 和偏振分束器 (PBS) 控制。泵浦光束聚焦到样品上

并使用13× 物镜收集产生的自发参量下转换光子，收集所用物镜为100× ，数值孔径为0.5。经 10 nm 滤波带宽的光谱滤波以阻挡泵浦光并选择中心波长为 810 nm 的下转换光子后，信号由透射率为 50% 的分光器分束，并耦合到多模光纤中进行符合探测。如图 2(b) 所示，在激光照射前后采集显微图像。在相同的辐照条件下，未封装的 $NbOI_2$ 薄片严重受损，六方氮化硼封装的薄片出现部分退化，而石墨烯封装的薄片基本完好。这一趋势与下文讨论的自发参量下转换性能直接相关。

对于理想的自发参量下转换光源，符合率随泵浦功率线性变化，二阶关联函数$g^2(0)$随泵浦功率增大而反比下降，同时始终大于 2，而单光子计数率则随泵浦功率线性增加[31]。这些行为的偏离是激光诱导退化和散射增强的灵敏指标。未封装 $NbOI_2$ 薄片的自发参量下转换响应如图 2c-f 所示。示意图和白光成像（插图）见图 2c（以及补充图 S3）。符合率最初随泵浦功率从 1mW 增至 40 mW 而上升，但很快达到饱和，并偏离线性变化（图 2d）。当泵浦功率从 40mW 降至 1mW 时，符合率未能恢复，表明发生了不可逆损伤。相应地，在向下功率扫描过程中，$g^2(0)$ 未能保持与泵浦功率成反比的关系（图 2e）。这一行为与图 2f 中的单光子计数率相吻合：光学损伤引发的散射增强导致偶然符合增加，并显著抑制了预期的非经典统计。

六方氮化硼封装的 $NbOI_2$ 薄片虽有所改善，但在较高泵浦功率下仍不稳定（图 2g-j）。图 2g 展示了示意图和白光成像（插图）。虽然在初始增加功率时，符合率看起来更接近线性（图 2h），但原始数据受到大量偶然符合计数的影响。我们在时间相关单光子计数直方图数据中表征了这些偶然计数，并将其扣除，以估算关联光子对产生率。在图 2g（插图）中，我们可以看到一个黑斑，这表明随着功率增加，六方氮化硼开始受损；由于黑斑产生的散射，单计数迅速增加，导致$g^2(0)$降低，如图 2i 和 j 所示。当泵浦功率超过 ~30 mW 时，六方氮化硼封装完全损坏，使泵浦光只能与 $NbOI_2$ 单独相互作用。在没有六方氮化硼散射的情况下，单计数率下降

随着泵浦功率增加。我们注意到，高功率照射后，在向下功率扫描期间，自发参量下转换响应并未恢复，这表明底层的 $NbOI_2$ 薄片也已受损。

相比之下，石墨烯封装的 $NbOI_2$ 薄片在整个泵浦功率范围内均表现出稳定的自发参量下转换行为（图 2k–n）。图 2k 展示了示意图和白光成像（插图）。在功率递增和递减扫描过程中，符合率始终近似线性变化（图 2l），而 $g^2(0)$ 则遵循预期的泵浦功率反比关系，且无滞后现象（图 2m）。单光子计数率在两个方向上也都随泵浦功率线性且可重复地增加（图 2n），表明额外散射极少，非线性转换效率得以保持。

综合来看，这些结果表明，石墨烯封装为范德华自发参量下转换光源提供了独特而有效的环境保护与光学稳定性组合。未封装的样品容易受到环境影响并发生激光损伤，因而迅速劣化；六方氮化硼虽能提供部分保护，却无法承受持续的高功率激发；而石墨烯则能在连续激光照射下实现稳健、可逆且高亮度的自发参量下转换运行。

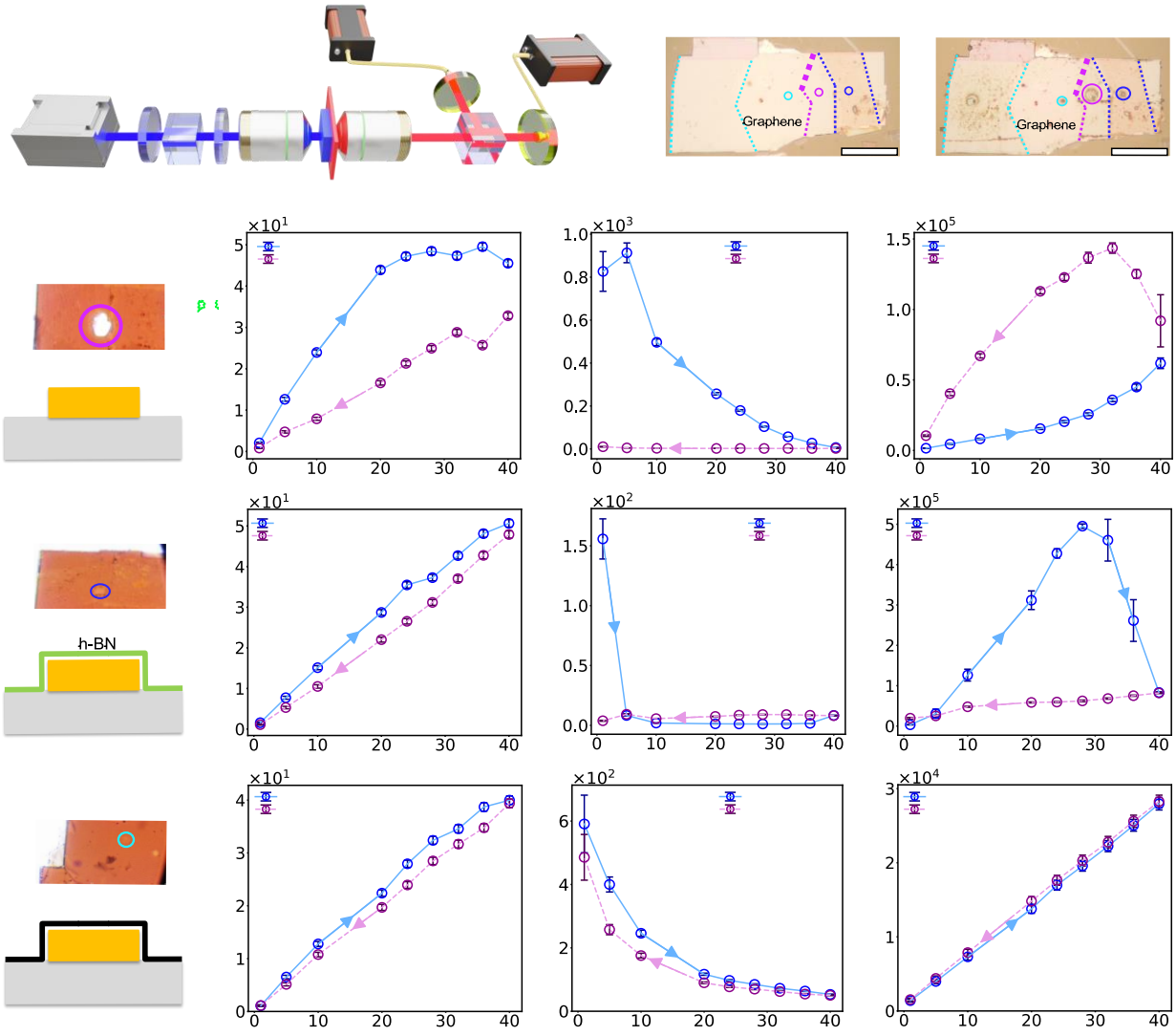


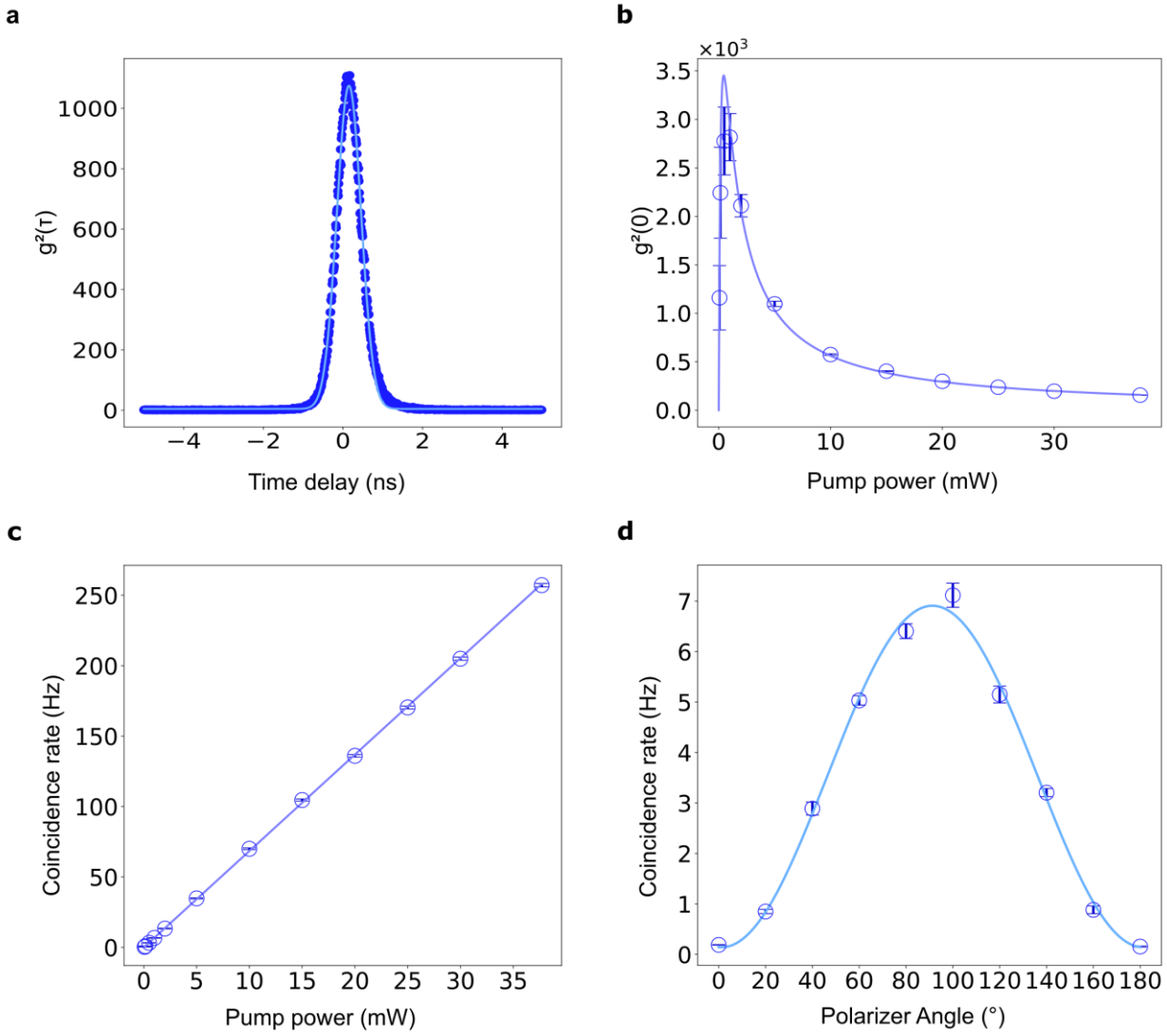
图 2| $NbOI_2$基自发参量下转换发射在不同封装条件下的稳定性。 a, 基于自发参量下转换（SPDC）的光子对产生实验装置。CW，连续波激光；HWP，半波片；PBS，偏振分束器；BS，50:50分束器；FC，光纤耦合器；BPF，带通滤波器；SPD，单光子探测器。 **b,** $NbOI_2$ 薄片在所示区域经激光照射前后的光学显微图像。比例尺为 50 μm。 **c-f,** 蓝宝石衬底上的裸 $NbOI_2$：示意图和光学图像（插图）、符合率、零延迟处的二阶关联 $g^{(2)}(0)$ 以及单计数率随泵浦功率的变化，显示出在光照下性能迅速退化。 **g-j,** 六方氮化硼封装的 $NbOI_2$：相应的示意图、光学图像（插图）、符合率、$g^{(2)}(0)$ 以及随泵浦功率变化的单计数率，表明稳定性有所提高。 **k-n,** 石墨烯封装的 $NbOI_2$：相应的示意图、光学图像（插图），

符合率，$g^{(2)}(0)$，以及单计数率随泵浦功率的变化，表明其具有最高的抗激光诱导退化能力。

增强的自发参量下转换性能

在验证了石墨烯封装对 $NbOI_2$，的稳定作用后，我们进一步改进收集光学系统，以优化自发参量下转换性能。我们使用与图 2a 所示相同的装置，但采用放大倍率为 100× 、数值孔径为 0.7 的收集物镜，以提高自发参量下转换光子的收集效率。这是因为范德华材料会向各个方向发射下转换光子；增大数值孔径可提高收集效率，从而获得更高的计数。实验中使用的 $NbOI_2$ 薄片厚度约为 350 nm，并封装有一层厚度为 ~8 nm 的石墨烯层。所选厚度接近 $NbOI_2$ 的相干长度 $L_c \approx 424$ nm，以优化非线性自发参量下转换相互作用。石墨烯封装可提供环境保护，同时足够薄，不会造成显著的泵浦吸收。图 3a 显示了在 405 nm 激发下，$NbOI_2$ 薄片发射光子的时间二阶关联函数。在零时间延迟处出现的显著峰值，且 $g^{(2)}(0) \gg 2^{32}$ ，清楚地表明产生了强时间关联的光子对。随后，图 3b 展示了 $g^{(2)}(0)$ 随泵浦功率的变化。在低功率下，$g^{(2)}(0)$ 起初随泵浦功率增加而迅速上升，直至达到最大值 2816 ± 243。这是因为偶然符合率与真实符合率相当。随着泵浦功率继续增加，真实符合率超过偶然计数，使 $g^{(2)}(0)$ 呈现出预期的与泵浦功率成反比的关系[31]。图 3c 显示，符合率随泵浦功率线性增加；范德华材料自发参量下转换的符合率达到创纪录的 258± 1.2 Hz[33]。假设发射各向同性，0.7 数值孔径透镜的几何收集效率为 ~29%，滤光片透射率为 90%，探测器效率为 60%，则对应的本征成对光子产生率为 10.08 ± 0.05 kHz。该估算未计入额外的光学损耗，因此代表本征产生率的下限。最后，图 3d 展示了符合计数对泵浦偏振的依赖关系，呈现出正弦依赖关系，与 $NbOI_2$ 样品的各向异性响应一致。当泵浦光沿 y 方向的偏振与晶体学 y 轴对齐时，符合计数达到最大值，此时 $\chi^{(2)}_{yyy}$ 对符合计数的贡献占主导。因此，当泵浦光为水平偏振$|H$，即沿 y 轴偏振时，我们将获得

信号光子和闲频光子，两者均为水平偏振（补充图 S4）。这些结果表明，石墨烯封装的 $NbOI_2$ 是具有各向异性特性的稳定、高亮度量子光子对光源。



图。 3| NbOI 的自发参量下转换（SPDC）数据$_2$，厚度为 350 nm，覆盖有一层~8 nm 石墨烯层，并由 405 nm 连续波（CW）激光泵浦。a，归一化二阶关联 $g^{(2)}(\tau)$随时间延迟 τ的变化，分箱宽度为 10 ps，泵浦功率为 10 mW，积分时间为 40 min。**b**，$g^{(2)}(0)$随泵浦功率的变化；在 0.5 mW 以上呈反比关系，在该值以下则由于偶然计数而近似呈线性变化。**c**，符合率与泵浦功率呈线性关系，最大符合率为 258 ± 1.2 Hz。**d**，符合率随泵浦功率的变化，显示出 $NbOI_2$ 样品的各向异性行为。

偏振纠缠

在自发参量下转换性能得到充分验证后，我们进一步展示了纠缠光子对的产生。双光子纠缠态在量子通信[34] 和量子计量[35]中有广泛应用。多种方法已实现这类纠缠态，包括使用PPKTP[36], 、BBO[37]，等体材料，以及 GaP[38], 、MoS_2[39], 、GaSe[40]、$NbOCl_2$[41, 43] 等范德华材料。由于 $NbOI_2$ 具有占主导地位的 $\chi^{(2)}_{yyy}$ 分量，我们采用了一个堆叠角度为 90° 的 $NbOI_2$异质结构：将一片薄薄片置于较厚薄片之上，并用石墨烯封装，以防止激光诱导损伤。该器件由两片厚度分别为 d_1 和 d_2 的 $NbOI_2$ 薄片组成，其中第二片相对于第一片旋转了 90° 。堆叠的 $NbOI_2$ 层厚度约为 30 nm 和 207 nm（厚度选择的详情见补充材料第 S8 节），异质结构则用一层 10 nm 厚的石墨烯封装。采用这种一薄一厚的不对称结构，是因为 $NbOI_2$[42,43]在 405 nm 光照下具有很强的各向异性偏振相关吸收。若使用厚度相同的层，第一片薄片会吸收大部分泵浦光，导致偏振态不平衡。因此，第一片薄片必须足够薄，以便让足够的泵浦功率透射到第二片；而第二片则设计得足够厚，以便利用衰减后的泵浦光产生大量自发参量下转换光子。与自发参量下转换光子的表征相同，这里我们将沿 y 轴的偏振定义为 $|H$，将沿 x 轴的偏振定义为 $|V$。当泵浦偏振设为 θ° （偏振片角度）时，泵浦电场（E_p）表示为

$$E_p = \frac{E_0}{\sqrt{2}}\left(\sin(\theta)\, H_y + \cos(\theta)\, V_x\right)$$

其中E_0 为入射泵浦振幅。由于$NbOI_2$ 中占主导的张量分量为$\chi^{(2)}_{yyy}$[29]，薄薄片（沿y 取向）主要将H_y 泵浦光分量转换为$|HH$光子对，而V_x 分量基本不受影响。相反，在厚薄片处，V_x分量与薄片的局域y' 轴对齐，同一张量元在此处能够高效产生$|VV$光子对。使用输入半波片将泵浦偏振调节至约19°。该配置以近似相等的概率产生$|HH$和$|VV$光子对。

图4展示了90°薄厚堆叠$NbOI_2$异质结构的量子态层析数据。在该测量中，我们使用了2 mW的泵浦功率以及符合窗口

为0.5 ns。 重建的双光子密度矩阵实部与虚部如（图4a、b）所示。我们观测到相对于最大纠缠贝尔态的保真度为94%($|HH\rangle + |VV\rangle)/\sqrt{2}$。这些结果证实，堆叠的$NbOI_2$异质结构可作为产生高质量偏振纠缠光子对的可靠平台。

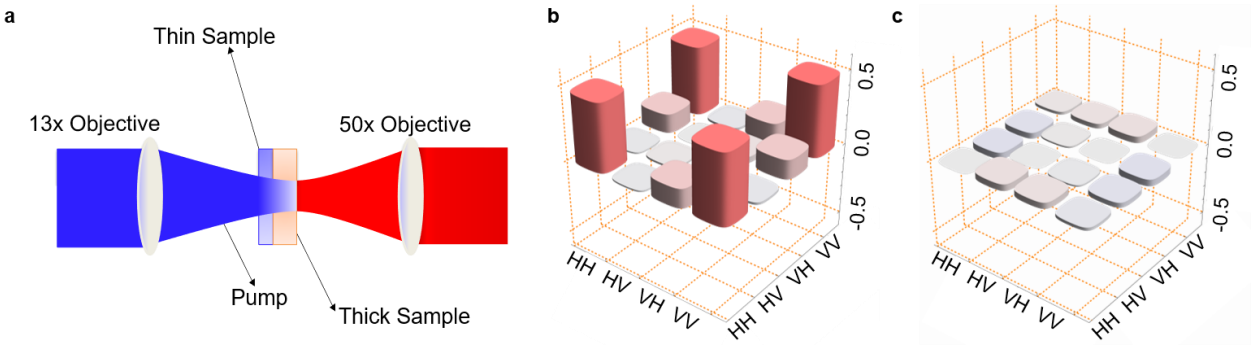


图 4| 90°薄-厚堆叠 $NbOI_2$ 异质结构的层析数据。 生成的态为（$|HH\rangle + |VV\rangle)/\sqrt{2}$。 **a**，示意图展示了泵浦光如何与薄-厚样品相互作用以生成偏振纠缠光子对。 **b,** 重构密度矩阵的实部和**c,** 虚部。

结论

总之，我们证明了范德华材料量子自发参量下转换光源的环境稳定性和光学稳定性对其性能有着至关重要的影响。未封装的 $NbOI_2$ 极易受湿度和激光诱导退化的影响，因此其自发参量下转换性能显著受损。通过使用石墨烯封装 $NbOI_2$ ，我们不仅提高了其环境稳定性，还通过高效散热提升了光学稳定性，从而实现了连续泵浦条件下稳定的自发参量下转换运行。石墨烯封装的 $NbOI_2$ 器件展现出创纪录的 $g^{(2)}(0)$ 值 2816 ± 243 ，以及 258 ± 1.2 Hz 的符合率，创下范德华材料自发参量下转换光源的纪录。此外，通过采用 90° 堆叠的薄-厚 $NbOI_2$ 异质结构，我们实现了保真度较高的偏振纠缠光子对光源。

符合率可通过使用厚度更接近相干长度的更厚样品，或采用数值孔径更高的收集物镜进一步提高。此外，堆叠实现的准相位匹配为获得更亮的自发参量下转换光源提供了一条可行途径[3]。更高保真度的偏振纠缠光子对可通过将薄层和厚层之间的堆叠角控制得尽可能接近90°，同时优化泵浦偏振以产生相等的$|HH$和$|VV$计数来实现。该

NbOI近乎均匀的畴$_2$ 使相同厚度样品的符合计数率大体相同，这将提高$NbOI_2$基自发参量下转换器件的可扩展性。总之，这些结果使$NbOI_2$ 成为可扩展片上量子光子源的有前景二维平台。

方法

器件制备与转移

$NbOI_2$ 晶体购自 HQ Graphene。使用 KLA-Tencor P-16轮廓仪测量薄片厚度，其扫描范围最大为 200 mm，垂直量程最大为 110 μm。采用胶带剥离法将晶体剥离至带有 SiO_2 层的硅晶圆上。使用转移台和毛细力辅助转移方案，将选定的薄片转移至购自 2D Semiconductors [44,45] 的蓝宝石基底上。

进行封装对比时，我们使用了厚度约为 280 nm 的 $NbOI_2$ 薄片、厚度为 7 nm 的石墨烯和厚度为 15 nm 的六方氮化硼。薄片和封装层的厚度并未严格控制；相反，我们选择薄片，使不同封装条件下测得的符合计数尽可能相近。这有助于直接比较封装效应。对于图 3 中报告的符合率测量，我们使用了一片厚度为 350 nm 、采用 ~8 nm 石墨烯封装的 $NbOI_2$ 薄片。对于偏振纠缠实验，我们使用了一片厚度为 207 nm 的厚 $NbOI_2$薄片和一片厚度为 30 nm 的薄片，两者均覆盖有厚度为 ~10 nm 的石墨烯层，泵浦光输入功率为 2 mW。

量子光子对参量产生测量

为产生自发参量下转换，我们使用了OBIS LX SF 405 nm激光器。采用紫外物镜（13×，数值孔径0.13）将泵浦光聚焦到样品上。在封装对比测量中，使用100×、数值孔径0.5的Mitutoyo Plan Apo NIR无限远校正物镜（480-1800 nm）收集自发参量下转换光子。在高计数率测量中，我们使用了100× 长工作距离、数值孔径0.7、针对400-655 nm优化的Mitutoyo Plan Apo物镜。在偏振纠缠实验中，我们改回使用100×、数值孔径0.5的Mitutoyo Plan Apo NIR无限远校正物镜（480-1800 nm）进行收集。一个BS005 50:50非偏振分光立方体（BS）（700-1100 nm）和一个FBH810-10硬镀膜带通滤光片（Thorlabs）被

用于滤光并将光子导向探测器。一个 10×、数值孔径0.25的显微镜物镜（Newport）被用作我们测量中的输出收集物镜。

二次谐波产生测量

二次谐波产生（SHG）是一种二阶非线性光学过程，其中入射场 $E(\omega)$ 诱导非线性极化 $P(2\omega) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E^2(\omega)$，从而在 2ω 处产生辐射。在我们的测量中，波长为 $\omega = 1030\ \mathrm{nm}$ 的泵浦光被聚焦到 $NbOI_2$，上，产生 515 nm 的二次谐波。缺乏 $\chi^{(2)}$ 的区域不会产生可测量的 $P(2\omega)$，因此二次谐波信号可忽略不计；而具有非零 $\chi^{(2)}$ 的区域则表现出较强的二次谐波强度，表明实现了高效倍频。光学装置沿用我们先前的报道[46]，，更多细节见补充图 1。

数据可用性

支持本研究结果的所有数据均可在正文、图和补充信息中获得。如有合理请求，也可向通讯作者索取。

代码可用性

正文和补充信息中使用的所有代码，均可在合理请求下向通讯作者获取。

致谢

本研究得到新加坡科技研究局（新加坡科技研究局）MTC YIRG 资助（编号：M23M7c0129）、职业发展基金种子项目资助（编号：222D800038）以及新加坡科技研究局量子创新中心（Q. InC）SRTT 的支持。本研究还得到新加坡国家基金会通过设于新加坡科技研究局的新加坡国家量子办公室的量子技术中心资助计划（S24Q2d0009）的支持。

作者贡献

Y.C、X.M.、S.M.A 和 J.Z 提出了这一想法。Y.C.、X.M.、S.M.A 和 P.K.L. 负责监督本项目。M.J. 和 Y.X 制备了器件；M.J. 和 Y.C. 搭建了自发参量下转换装置；M.-T. J 搭建了二次谐波生成装置并对二次谐波生成成像进行了表征。M.J.、X.M. 和 Y.C. 撰写了初稿，所有作者均对稿件进行了修改并批准了最终版本。

利益冲突

作者声明不存在利益冲突。

参考文献

1. Anwar, A., Perumangatt, C., Steinlechner, F., Jennewein, T. & Ling, A. 基于体块晶体中三波混频的纠缠光子对源。科学仪器评论 **92**, 041101 (2021). 2. Lin, K., Yao, G., Shao, J. 等 集成于光纤上的非线性相位匹配范德华晶体。自然·材料 (2026). 3. Trovatello, C. 等。周期性极化层状半导体中的准相位匹配上转换与下转换。自然·光子学 **19**, 291-299 (2025). 4. Konacki, M., Torres, G., Jha, S. & Sasselov, D. D. 通信波长下量子比特的长距离隐形传态。自然 **421**, 507-509 (2003). 5. Knill, E., Laflamme, R. & Milburn, G. J. 一种利用线性光学实现高效量子计算的方案。自然 **409**, 46-52 (2001). 6. Tan, S.-H. 等。高斯态量子照明。物理评论快报 **101**, 253601 (2008). 7. Weihs, G., Jennewein, T., Simon, C., Weinfurter, H. & Zeilinger, A. 严格满足爱因斯坦定域性条件下对贝尔不等式的违反。物理评论快报 **81**, 5039-5043 (1998). 8. Xiao, J. 等。具有偶极锁定的本征二维铁电性。物理评论快报 **120**, 227601 (2018). 9. Somvanshi, D. & Jit, S. 基于二维材料的混合维度异质结构光电探测器的研究进展：现状与挑战。半导体加工中的材料科学 **164** (2023). 10. Geim, A. K. & Grigorieva, I. V. 范德华异质结构。自然。**499**, 419-425 (2013). 11. Li, M. Y., Chen, C. H., Shi, Y. & Li, L. J. 基于二维层状材料的异质结构及其潜在应用。今日材料。**19**, 322-335 (2016). 12. Lim, H., Yoon, S. I., Kim, G., Jang, A. R. & Shin, H. S. 二维材料在横向和纵向上的堆叠。材料化学 **26**, 4891-4903 (2014). 13. Zhao, Q. 等。实现薄层 GaSe 器件的空气稳定性：通过封装避免环境和激光诱导的降解。先进功能材料 **28**, 1805304 (2018). 14. Kang, J. 等 层状 $NbOCl_2$ 的动力学降解机制及其二阶非线性光学响应的改善。材料进展 **6**, 954-962 (2025). 15. Li, C. 等 与 WSe_2 单层强耦合的单个等离激元纳米棒产生的二次谐波。纳米快报 **21**, 1599-1605 (2021). 16. Yu, H., Talukdar, D., Xu, W., Khurgin, J. B. & Xiong, Q. 双层 WSe_2中的电荷诱导二次谐波产生。纳米快报 **15**, 5653-5657 (2015).

17. Puri, S. 等。$MoSe_2$ 单层二次谐波产生中的衬底干涉与应变。纳米快报 24, 13061-13067 (2024). 18. Chen, H. 等。硅波导上二维 $MoSe_2$ 的二次谐波产生增强。光科学与应用 6, e17060 (2017). 19. Janisch, C. 等。二硫化钨单层中非凡的二次谐波产生。科学报告 4, 5530 (2014). 20. Malard, L. M., Alencar, T. V., Barboza, A. P. M., Mak, K. F. & de Paula, A. M. 在 MoS_2 原子晶体中观察到强烈的二次谐波产生。物理评论 B 87, 201401 (2013). 21. Guo, Q. 等。采用范德华 $NbOCl_2$ 晶体的超薄量子光源。自然 613, 53-59 (2023). 22. Abdelwahab, I. 等。铁电 $NbOI_2$中的巨型二次谐波产生。自然·光子学 16, 644-650 (2022). 23. Fu, J. 等。范德华铁电体 $NbOI_2$中的发射偶极及压力驱动的二次谐波产生可调性。先进功能材料 34, 2308207(2023) 24. Chen, W. 等。$NbOBr_2$ 微腔中非线性光学相互作用的显著增强。先进材料 36, 2400858 (2024). 25. Bai, L. 等。光子晶体缺陷腔实现$NbOCl_2$的空气稳定、增强型二次谐波产生。先进光学材料 13, 30 (2025). 26. Xuan, F., Lai, M., Wu, Y. & Quek, S. Y. 二维晶体中激子增强的自发参量下转换。物理评论快报 132, 246902 (2024). 27. Balandin, A. A. 等。单层石墨烯的优异热导率。纳米快报 8, 902 907 2008- ( ). 28. Ye, L. 等。层状铁电氧化铌二卤化物中非线性光学响应的调控。自然通讯 14, 5911 (2023). 29. Yan, Q. 等。范德华铁电体 $NbOI_2$的环境降解各向异性与机理。ACS应用材料与界面 16, 9051-9059 (2024). 30. Cai, Q. 等。高质量单层氮化硼的高热导率及其热膨胀。科学进展 5, eaav0129 (2019). 31. Wang, Y., Jöns, K. D. & Sun, Z. 非线性光学集成光子对源。应用物理评论 8 (2021). 32. Ding, D.-S., Zhou, Z.-Y., Shi, B.-S., Zou, X.-B. & Guo, G.-C. 通过阶梯型原子构型产生非经典关联光子对：理论与实验。光学快报 20, 11433-11444 (2012). 33. Liang, H. 等。菱方氮化硼中的可调偏振纠缠光子对源。科学进展 11, eadt3710 (2025). 34. Piveteau, A. 等。通过简单测量实现纠缠辅助量子通信。自然通讯 13, 7878 (2022).

35. Krischek, R. 等. 实验相位估计中有用的多粒子纠缠与低于散粒噪声的灵敏度. Phys. Rev. Lett. 107, 080504 (2011). 36. Lee, S. M., Kim, H., Cha, M. & Moon, H. S. 采用周期极化磷酸氧钛钾晶体实现的偏振纠缠光子对源：II型非共线自发参量下转换过程. Opt. Express 24, 2941 (2016). 37. Villar, A., Lohrmann, A. & Ling, A. 使用具有平行光轴的晶体实现纠缠光子对产生的实验研究. Opt. Express 26, 12396 (2018). 38. Sultanov, V., Santiago-Cruz, T. & Chekhova, M. V. 通过平面光学产生具有可调偏振纠缠的宽带光子对. Opt. Lett. 47, 3872 (2022). 39. Weissflog, M. A. 等. 一种可调谐的过渡金属二硫属化物纠缠光子对源. Nat. Commun. 15, 7600 (2024). 40. Lu, Z. 等. 来自单层 GaSe 的反向传播的纠缠光子对. Nat. Commun. 16, 9616 (2025). 41. Guo, Q. 等. 通过正交堆叠的范德华 $NbOCl_2$ 晶体实现偏振纠缠. Nat. Commun. 15, 10461 (2024). 42. Fang, Y., Wang, F., Wang, R., Zhai, T. & Huang, F. 二维 $NbOI_2$：一种具有高度面内各向异性电学和光学性质的手性半导体. Adv. Mater. 33, 2101505 (2021). 43. Mortazavi, B., Shahrokhi, M., Javvaji, B., Shapeev, A. V. & Zhuang, X. 第一性原理揭示的二维 $NbOX_2$ （X = 为 Cl、Br、I）的高度各向异性力学和光学性质. Nanotechnology 33, 27 (2022). 44. Ma, X. 等. 二维材料的毛细力辅助洁净印章转移. Nano Lett. 17, 6961-6967 (2017). 45. Huang, G. 等. 转移及更进一步：二维材料器件制造的新兴策略与趋势. Chemical Society Reviews. (2026). 46. Aletheia, W., Jiang, M., Cao, M., Huang, S., Lourembam, J., Ma, X., Duan, R. & Liu, Z. 二维开罗五边形磷硫化钯中的非线性光学过程. Nano Research. (2026).