

Однофотонный источник при 80 К на основе диэлектрической наноантенны с CdSe/ZnSe квантовой точкой

М. В. Рахлин⁺¹⁾, К. Г. Беляев⁺, С. В. Сорокин⁺, И. В. Седова⁺, Д. А. Кириленко⁺, А. М. Можаров*,
И. С. Мухин^{*×}, М. М. Кулагина⁺, Ю. М. Задиранов⁺, С. В. Иванов⁺, А. А. Торопов⁺

⁺ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе, 194021 С.-Петербург, Россия

* С.-Петербургский национальный исследовательский Академический университет РАН, 194021 С.-Петербург, Россия

× С.-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики, 197101 С.-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 26 июня 2018 г.

Исследованы излучательные характеристики источника одиночных фотонов, изготовленного на основе эпитаксиальной гетероструктуры с квантовыми точками CdSe/ZnSe и цилиндрического волновода с переменным сечением, сформированного в слое резиста методом электронной литографии. В условиях оптической накачки при 80 К показана возможность генерации потока одиночных фотонов на длине волны 530 нм со средней интенсивностью порядка 1 МГц и значением корреляционной функции второго порядка при нулевой задержке $g^{(2)}(0) = 0.15 \pm 0.03$.

DOI: 10.1134/S0370274X18150109

1. Введение. В настоящее время физика источников квантового света является одной из лидирующих областей нанопотоники и наноэлектроники. Источники однофотонного излучения и “запутанных” фотонных пар видимого диапазона на основе эпитаксиальных полупроводниковых квантовых точек (КТ) перспективны для использования в системах квантовой криптографии, предназначенных для безопасной передачи информации в атмосферных оптических линиях связи, а также по пластиковому оптоволокну [1, 2]. Коммерчески доступные приборы такого типа в настоящее время отсутствуют из-за сложности воспроизводимого изготовления образцов с одиночными КТ и физическими ограничениями, определяющими возможность выделения узких неперекрывающихся линий излучения одиночных электрон-дырочных комплексов (нейтральных и заряженных экситонов и биэкситонов) и, тем самым, максимальную рабочую температуру. При увеличении температуры оптические линии спектрально уширяются и в определенный момент начинают перекрываться, что затрудняет достижение однофотонной статистики. КТ на основе широкозонных соединений A2B6, обладающих большой энергией связи экситона и биэкситона, а, как следствие, и большим спектральным расстоянием между соответствующими линиями излучения, являются хоро-

шими кандидатами для создания однофотонных источников, работающих при комнатной температуре [3, 4]. В частности, однофотонная генерация была получена при 220 К в структуре с CdSe КТ, сформированной в ZnSe нанопроволоке [5] и при 300 К в эпитаксиальной гетероструктуре, где излучение одиночной квантовой точки CdSe/ZnSe пространственно выделялось с помощью субмикронной апертуры, сформированной в напыленном металлическом слое [6]. Однако интенсивность излучения таких образцов не превышала значений порядка десятков килогерц, что на 2–3 порядка меньше интенсивности, имеющей практическое значение для использования в системах квантовой криптографии. Для хорошо изученных эпитаксиальных КТ типа InAs/GaAs проблема увеличения эффективности сбора и вывода излучения одиночной КТ обычно решается в результате изготовления монолитного колончатого микрорезонатора с Брэгговскими зеркалами на основе слоев решеточно-согласованных соединений в системе GaAs/AlAs [7]. Создание аналогичных структур в технологически доступных системах соединений группы A2B6 затруднено отсутствием бинарных соединений с близкими постоянными кристаллической решетки.

В данной работе мы исследуем излучательные характеристики однофотонного источника на основе CdSe/ZnSe КТ, помещенной в цилиндрический волновод с переменным сечением. При правильно по-

¹⁾e-mail: maximrakhlin@mail.ru

добранных параметрах волновода (высота, диаметр основания, показатель преломления) фотоны в такой структуре могут излучаться из одной единственной моды с эффективностью сбора вплоть до 90% [8, 9]. Высокая эффективность сбора и вывода излучения одиночной КТ, достижимая в такой структуре, позволила нам реализовать источник одиночных фотонов со средней интенсивностью, превышающей 1 МГц при практически важной температуре жидкого азота.

2. Образцы и экспериментальные методики. Для создания высокотемпературного источника однофотонного излучения основной задачей является изготовление структуры с КТ, обладающей высокой квантовой эффективностью излучения. Одним из способов повышения квантовой эффективности является усиление ограничения носителей заряда в КТ за счет увеличения ширины запрещенной зоны барьеров, а также разрывов валентной зоны и зоны проводимости [10]. В работе [11] структура с КТ CdSe, окруженными парой широкозонных барьеров ZnSSe/MgS, демонстрирует уменьшение интегральной интенсивности фотолуминесценции (ФЛ) между температурой жидкого гелия и 300 К менее чем в 3 раза. Однако соединение MgS быстро окисляется на воздухе, что существенно осложняет постростовую обработку выращенных гетероструктур и приводит к быстрой деградации изготовленных приборов. Возможным альтернативным решением является использование уже хорошо изученной системы широкозонных барьеров ZnSe/ZnSSe/ZnMgSSe, которая ранее применялась в качестве оптического волновода в лазерных структурах на основе CdSe КТ [12].

Получение однофотонного излучения предполагает спектральное выделение одиночной линии излучения изолированной КТ. Как следствие, возникает необходимость формирования массивов КТ с достаточно малой плотностью (менее 10^{10} см^{-2}). Для решения данной задачи структура с КТ была выращена с помощью метода термической активации (ТА) [13, 14]. Суть метода ТА заключается в формировании массива КТ за счет изменения поверхностной энергии сильно напряженного двумерного слоя CdSe, осажденного на ZnSe при низкой температуре, путем резкого изменения температуры поверхности, способствующего также переиспарению части материала и, как следствие, уменьшению плотности КТ.

Гетероструктура, исследуемая в настоящей работе, была изготовлена с помощью молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) на подложках GaAs (001) с 200-нм буферным слоем GaAs [15]. По-

верх буферного слоя был выращен 10-нм слой ZnSe и короткопериодическая сверхрешетка (СР) ZnSe (1.8 нм)/ZnSSe (1.5 нм) с суммарной толщиной 33 нм. Для усиления ограничения носителей заряда КТ CdSe были окружены с двух сторон системой широкозонных барьеров, состоящих из слоев ZnMgSSe толщиной 47 нм, ZnSSe толщиной 1.5 нм и ZnSe толщиной 1.5 нм. Поверх широкозонных барьеров структура включала 33-нм СР ZnSe (1.8 нм)/ZnSSe (1.5 нм) и слой ZnSe толщиной 10 нм (рис. 1а).

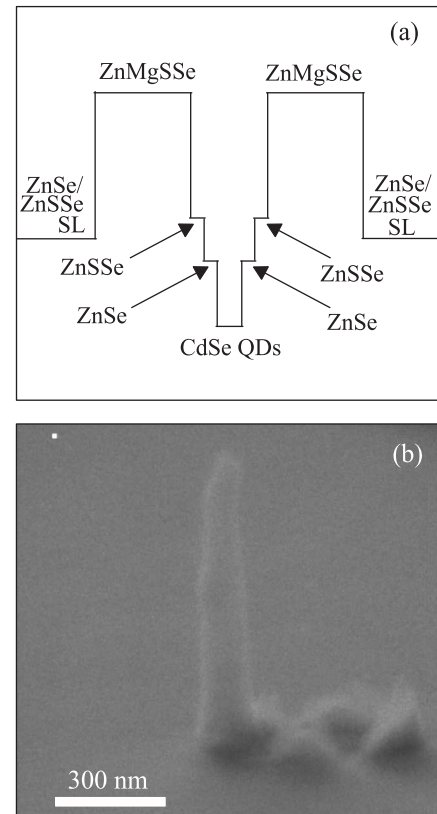


Рис. 1. (а) – Профиль зонной структуры КТ CdSe в широкозонных барьерах. (б) – Изображение, полученное на сканирующем электронном микроскопе, типичной фотонной наноантенны, изготовленной с помощью электронной литографии и ионно-лучевого травления фоторезиста

С целью увеличения эффективности вывода излучения одиночной КТ был использован подход, основанный на создании гибридной фотонной наноантенны, состоящей из полупроводника и диэлектрика. Для этого на поверхность выращенной гетероструктуры наносился толстый слой ($1.4 \mu\text{м}$) электронного фоторезиста SU-8 с показателем преломления $n = 1.6$, который является оптически прозрачным в исследуемом спектральном диапазоне. После выполнения электронной литографии и ионно-лучевого трав-

ления пучком ионов Ag были получены цилиндрические структуры с переменным сечением, имеющие 180 нм в диаметре основания и высоту порядка 1 $\mu\text{м}$ (рис. 1b).

Измерения структуры методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) были проведены с использованием микроскопа Jeol JEM-2100F. Излучательные характеристики выращенной гетероструктуры и нанофотонных антенн исследовались методами ФЛ и микро-фотолюминесценции (μ -ФЛ). Измерение спектров μ -ФЛ проводилось в оптической конфокальной схеме с пространственным ограничением по детектированию и регистрации спектров с помощью CCD-камеры. Образец помещался в гелиевый криостат с пьезо-подвижками Attocube XYZ, позволяющими устанавливать и удерживать позицию выбранной нанофотонной антенны на протяжении достаточно долгого времени (несколько часов). Для возбуждения ФЛ использовалось излучение непрерывного полупроводникового лазера с длиной волны $\lambda = 405$ нм. Плотность мощности возбуждения составляла ~ 4 В/см². Корреляционные измерения производились в схеме Хенбери Браун-Твисса с использованием кремниевых однофотонных лавинных фотодиодов с временным разрешением порядка 40 пс.

3. Результаты. Исследование выращенной гетероструктуры с помощью ПЭМ показало наличие островков, которые можно отнести к КТ из-за их характерных латеральных размеров 5–9 нм. Плотность КТ, оцененная из ПЭМ изображения, составила $\sim 5 \cdot 10^9$ см⁻² (рис. 2а). Спектр ФЛ характерной структуры, измеренный при температуре 77 К, демонстрирует интенсивную линию с шириной на полувысоте ~ 90 мэВ. Большая спектральная ширина линии свидетельствует о неоднородном характере уширения, определяемом значительной дисперсией излучающих КТ по размеру и/или составу (рис. 2b).

Характерный спектр μ -ФЛ, измеренный в одиночной фотонной структуре, демонстрирует узкие линии, относящиеся к излучению небольшого числа одиночных КТ, ограниченных в пределах структуры (рис. 3а). При увеличении температуры ширина запрещенной зоны КТ уменьшается, и линия излучения сдвигается в длинноволновую область. Кроме того, происходит увеличение спектральной ширины линии: ширина на полувысоте меняется от 0.4 мэВ при 8 К до 3.5 мэВ при 80 К. Наличие системы широкозонных барьеров ZnSe/ZnSSe/ZnMgSSe обеспечивает фактическое отсутствие гашения интегральной интенсивности ФЛ одиночной линии излучения во всем диапазоне температур от 8 до 80 К.

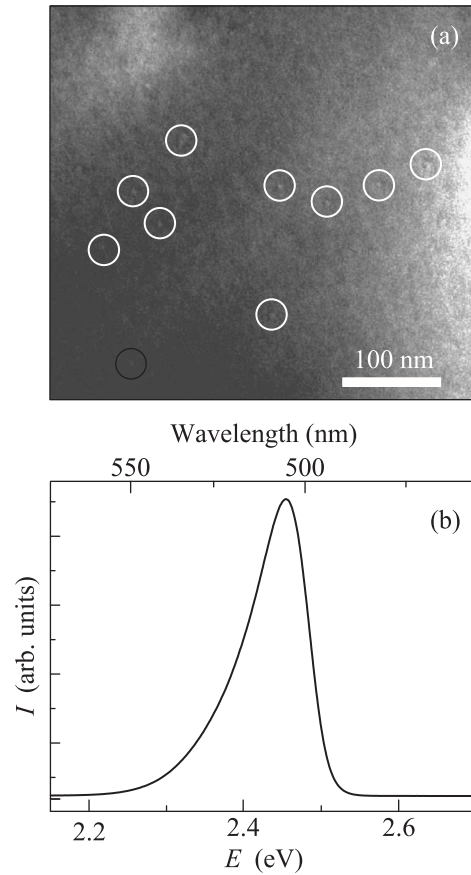


Рис. 2. (а) – Планарное ПЭМ изображение гетероструктуры с КТ. Белыми кружками отмечены КТ CdSe. (б) – Типичный спектр низкотемпературной (77 К) ФЛ гетероструктуры с КТ CdSe

Для идентификации положения линии излучения экситона в одной и той же КТ при разных температурах использовалась формула Варшни:

$$E_{(0)}(T) = E_{(0)}(0) - \alpha T^2 / (\beta + T), \quad (1)$$

где $E_{(0)}(0)$ – значение ширины запрещенной зоны при 0 К, а константы α и β – термические коэффициенты Варшни [16]. Для КТ CdSe использовались типичные значения $\alpha = 0.57$ мэВ/К и $\beta = 320$ К [6]. На рисунке 3а красными треугольниками отмечены центр линии излучения одиночной КТ при 8 К и соответствующее положение линии при 80 К, определенное с помощью формулы (1). Спектральный диапазон измерения корреляционной функции указан пунктирными линиями. Корреляционные функции второго порядка $g^{(2)}(\tau)$, измеренные в этих спектральных диапазонах при температурах 8 и 80 К, представлены на рис. 3б, соответственно. Функции нормированы согласно формуле: $C_N(t) = c(t)/(N_1 N_2 \omega T)$, где $c(t)$ – число совпадений,

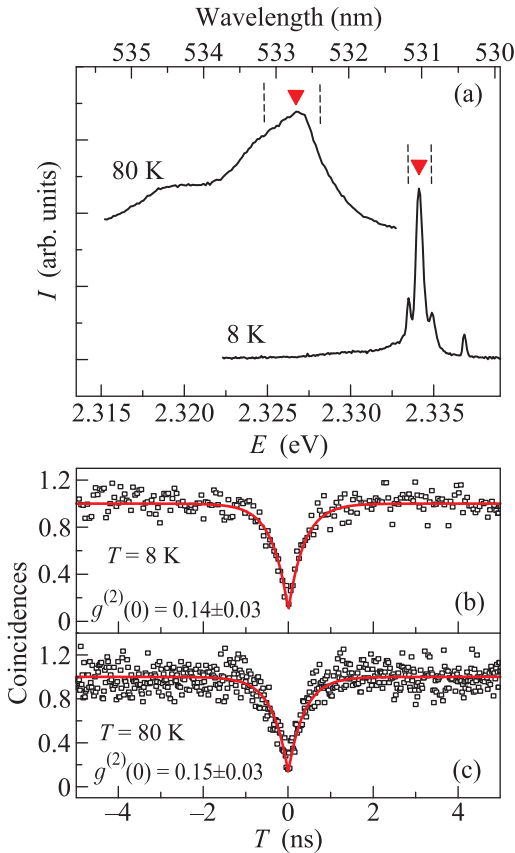


Рис. 3. (Цветной онлайн) а) – Спектры μ -ФЛ одиночной КТ, измеренные в фотонной наноструктуре при температурах 8 и 80 К. (b), (c) – Нормированные корреляционные функции второго порядка однофотонного излучения, измеренные для одиночной линии в фотонной наноструктуре при температурах 8 и 80 К, соответственно

$N_{1,2}$ – количество фотонов в секунду на каждом из детекторов, ω – временное разрешение и T – общее время накопления [17]. Измеренные корреляционные функции могут быть аппроксимированы с помощью формулы:

$$g^{(2)}(\tau) = a - b_1 e^{-|\tau|/c_1}. \quad (2)$$

Значение параметра c_1 дает оценку ширины провала корреляционной функции при нулевой задержке, которая напрямую соотносится со временем жизни излучающего экситона. Для полученных зависимостей аппроксимированное значение параметра c_1 составило 380 пс. Данное значение времени жизни согласуется с полученными ранее данными [18]. Среднее значение числа фотонов, регистрируемых одним детектором в секунду как при 8, так и при 80 К, составило $\sim 10^5$, что с учетом аппаратной функции измерительного оборудования соответствует интенсивности на первой линзе порядка 1 МГц. Близкие интенсивности излучения, полученные при разных тем-

пературах, свидетельствуют о хорошем структурном качестве и малом количестве дефектов в исследуемой гетероструктуре. Полученное значение $g^{(2)}(0)$ не превышает 0.2, что подтверждает однофотонный характер излучения.

4. Заключение. Исследованы излучательные характеристики фотонных наноструктур с КТ CdSe, изготовленных с помощью МПЭ и электронной литографии. Полученная плотность КТ, составляющая менее 10^{10} см^{-2} , позволила исследовать одиночные линии излучения индивидуальных КТ, ограниченных в пределах одной фотонной наноструктуры с диаметром основания нанокolonны 180 нм и высотой 1 $\mu\text{м}$. Изготовленные структуры продемонстрировали поток одиночных фотонов со средней интенсивностью порядка 1 МГц при практически важной температуре жидкого азота. Значение корреляционной функции второго порядка $g^{(2)}(0)$ для исследуемой структуры составило менее 0.2, что делает возможным ее использование в системах квантовой криптографии, применяемых в атмосферных линиях связи. Возможность дальнейшего уменьшения $g^{(2)}(0)$ связывается со снижением поверхностной плотности КТ в результате оптимизации ростовых режимов, а также реализацией резонансной оптической накачки [19], тогда как дальнейшее увеличение интенсивности однофотонного излучения требует обеспечения лучшего контроля над формой фотонной наноструктуры при постростовой обработке.

Авторы из Физико-технического института им. А.Ф.Иоффе благодарят Российский Научный Фонд (проект # 14-22-00107) за поддержку в исследовании излучательных характеристик фотонных наноструктур. Постростовая обработка структур была выполнена при поддержке Российского Фонда Фундаментальных Исследований (проект #18-02-01212). МПЭ рост структур выполнялся при поддержке Фонда Перспективных Исследований. ПЭМ-измерения выполнены с использованием оборудования федерального центра коллективного пользования “Материаловедение и диагностика в передовых технологиях” (ФТИ им. А.Ф.Иоффе).

1. S. N. Molotov and S. S. Nazin, JETP. Lett. **63**, 8 (1996).
2. K. Takemoto, Y. Nambu, T. Miyazawa, Y. Sakuma, T. Yamamoto, S. Yorozu, and Y. Arakawa, Sci. Rep. **5**, 14383 (2015).
3. R. Arians, A. Gust, T. Kümmell, C. Kruse, S. Zaitsev, G. Bacher, and D. Homme, Appl. Phys. Lett. **93**, 173506 (2008).

4. K. Sebald, P. Michler, T. Passow, D. Hommel, G. Bacher, and A. Forchel, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 2920 (2002).
5. A. Tribu, G. Sallen, T. Aichele, R. Andre, J.-P. Poizat, C. Bougerol, S. Tatarenko, and K. Kheng, *Nano Lett.* **8**, 4326 (2008).
6. O. Fedorych, C. Kruse, A. Ruban, D. Hommel, G. Bacher, and T. Kümme, *Appl. Phys. Lett.* **100**, 061114 (2012).
7. C. Santori, D. Fattal, J. Vuckovic, G. S. Solomon, and Y. Yamamoto, *New J. of Phys.* **6**, 89 (2004).
8. J. Cloudon, J. Bleuse, N.S. Malik, M. Bazin, P. Jaffrennou, N. Gregersen, C. Sauvan, P. Lalanne, and J.-M. Gerard, *Nat. Photon.* **4**, 174 (2010).
9. I. Friedler, C. Sauvan, J.P. Hugonin, P. Lalanne, J. Claudon, and J.M. Gérard, *Opt. Express* **17**, 2095 (2009).
10. A. Polimeni, A. Patanè, M. Henini, L. Eaves, and P.C. Main, *Phys. Rev. B* **59**, 5064 (1999).
11. R. Arians, T. Kummell, G. Bacher, A. Gust, C. Kruse, and D. Hommel, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 101114 (2007).
12. S.V. Ivanov, A.A. Toropov, S.V. Sorokin, T.V. Shubina, I.V. Sedova, A.A. Sitnikova, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, A. Waag, H.-J. Lugauer, G. Reuscher, M. Keim, and G. Landwehr, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 498 (1999).
13. I. Robin, R. Andre, C. Bougerol, T. Aichele, and S. Tatarenko, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 233103 (2006).
14. M.V. Rakhlin, K.G. Belyaev, I.V. Sedova, S.V. Sorokin, S.V. Gronin, A.A. Usikova, A.A. Sitnikova, P.N. Brunkov, S.V. Ivanov, and A.A. Toropov, *Phys. Stat. Sol. C* **13**, 514 (2016).
15. S.V. Ivanov, A.A. Toropov, T.V. Shubina, S.V. Sorokin, A.V. Lebedev, I.V. Sedova, P.S. Kop'ev, G.R. Pozina, J.P. Bergman, and B. Monemar, *J. of Appl. Phys.* **83**, 3168 (1998).
16. V.P. Varshni, *Physica* **34**, 149 (1967).
17. R. Brouri, A. Beveratos, J.-P. Poizat, and P. Grangier, *Opt. Lett.* **25**, 1294 (20010).
18. T. Flissikowski, A. Hundt, M. Lowisch, M. Rabe, and F. Henneberger, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 3172 (2001).
19. X. Ding, Y. He, Z.-C. Duan, N. Gregersen, M.-C. Chen, S. Unsleber, S. Maier, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, C.-Y. Lu, and J.-W. Pan, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 020401 (2016).