

УДК 538.915:535.5

## ИССЛЕДОВАНИЕ БИЭКСИТОННОГО КАСКАДА ИЗЛУЧЕНИЯ В ОДИНОЧНОЙ КВАНТОВОЙ ТОЧКЕ InAs/GaAs В ВЫСОКОДОБРОТНОМ МИКРОРЕЗОНАТОРЕ

© 2023 г. Ю. М. Серов\*, А. И. Галимов, А. А. Торопов

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки

“Физико-технический институт имени А. Ф. Иоффе Российской академии наук”, Санкт-Петербург, Россия

\*E-mail: serovjurij@mail.ru

Поступила в редакцию 05.12.2022 г.

После доработки 23.12.2022 г.

Принята к публикации 27.02.2023 г.

Спектр и кинетика излучения биэкситонного каскада исследованы в условиях двухфотонного возбуждения в одиночной InAs/GaAs квантовой точке, внедренной в микрорезонатор с добротностью 4600, сформированный микроколоноккой с распределенными брэгговскими отражателями. Рассматривается возможность применения обнаруженных эффектов для генерации запутанных фотонных пар.

DOI: 10.31857/S0367676523701533, EDN: VMZVID

### ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время происходит активное развитие методов генерации одиночных фотонов и более сложных квантовых состояний света, необходимых для оптической реализации алгоритмов квантовой криптографии и квантовых вычислений. Один из наиболее перспективных и развитых подходов к генерации одиночных фотонов основан на излучении одиночной InAs/GaAs квантовой точки (КТ), внедренной в микрорезонатор, поскольку данный подход позволяет достичь одновременно высоких значений однофотонной чистоты излучения, степени неразличимости генерируемых фотонов и яркости источника [1] – наиболее существенных параметров, определяющих применимость источника одиночных фотонов для задач квантовой информатики. Среди возможных реализаций микрорезонаторов наибольшее распространение получили микроколонокки с распределенными брэгговскими отражателями (РБО) [2, 3]. Однако, несмотря на достигнутые успехи в генерации одиночных фотонов, получение квантовой запутанности фотонов, необходимой для решения ряда задач квантовой информатики [4], остается значительно менее исследованной областью. Один из известных подходов к генерации запутанных фотонных пар основан на использовании биэкситонного каскада излучения КТ [5], в котором два фотона, излучаемые при последовательной рекомбинации двух электрон-дырочных пар, локализованных в КТ, могут образовывать конкрет-

ное запутанное белловское состояние при условии малого расщепления промежуточного экситонного состояния КТ [6]. Однако применение данного подхода существенно ограничено необходимостью использования микрорезонаторных структур для достижения высокой яркости источника фотонов. Запутанные фотоны в биэкситонном каскаде излучаются с разными энергиями – в двух линиях, экситонной ( $X$ ) и биэкситонной ( $XX$ ) – и разница энергий этих двух фотонов существенно превышает характерную спектральную ширину моды эффективных высокодобротных микрорезонаторов, что препятствует совмещению линий излучения с модой. Для решения данной проблемы экспериментально были реализованы два подхода: применение кольцевых микрорезонаторов с низкой добротностью, но с чрезвычайно малым объемом моды, что позволяет совместить обе линии излучения КТ с широкой модой микрорезонатора, достигнув при этом высокого значения фактора Парселла для обеих линий [7], а также применение фотонных молекул – микрорезонаторов с двумя высокодобротными модами, которые можно подстроить под  $X$  и  $XX$  линии излучения КТ [8]. В ряде теоретических работ [9, 10] рассматривалась возможность применения высокодобротных микрорезонаторов с одной модой для генерации запутанных пар вырожденных фотонов, однако, насколько нам известно, эта идея не получила на сегодняшний день экспериментального воплощения. В данной работе мы сосредоточились на обнаружении и ис-

следовании биэкситонного каскада излучения КТ в подобной системе – микрорезонаторе с относительно высокой добротностью  $Q \approx 4600$ , ширина оптической моды которого существенно меньше расстояния между линиями излучения.

### ОБРАЗЕЦ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Технология изготовления исследуемого образца, подробно описанная в работе [11], основана на росте методом молекулярно-пучковой эпитаксии гетероструктуры с 25(15) парами слоев GaAs/AlGaAs в нижнем (верхнем) РБО и  $\lambda$ -слоем GaAs между РБО, содержащем InAs КТ. На полученной планарной структуре формировались массивы микроколонок диаметром от 0.8 до 2.5 мкм с помощью фотолитографии и реактивного ионного травления.

При проведении оптических измерений в конфокальной схеме образец находился в криостате и охлаждался до 8 К. Фотолюминесценция (ФЛ) конкретной микроколонки возбуждалась перестраиваемым Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> импульсным лазером через микрообъектив, который одновременно служил и для сбора сигнала ФЛ. Для фильтрации отраженного и рассеянного лазерного излучения на пути детектирования при когерентной накачке применялась схема кросс-поляризационной фильтрации [11], после которой спектр ФЛ детектировался с помощью двойного спектрометра с ПЗС-матрицей. При проведении измерений с временным разрешением исследуемая линия выделялась в спектре ФЛ с помощью полосового интерференционного фильтра с шириной полосы пропускания 0.4 нм, который также позволял дополнительно отсеять отраженное от поверхности образца лазерное излучение в случае двухфотонной накачки [12]. Статистика детектирования фотонов измерялась с помощью сверхпроводящего однофотонного детектора и электронной стартовой лампы. Использование вместо лазера галогеновой лампы, сфокусированной на вершине микроколонки, позволило измерять спектры отражения.

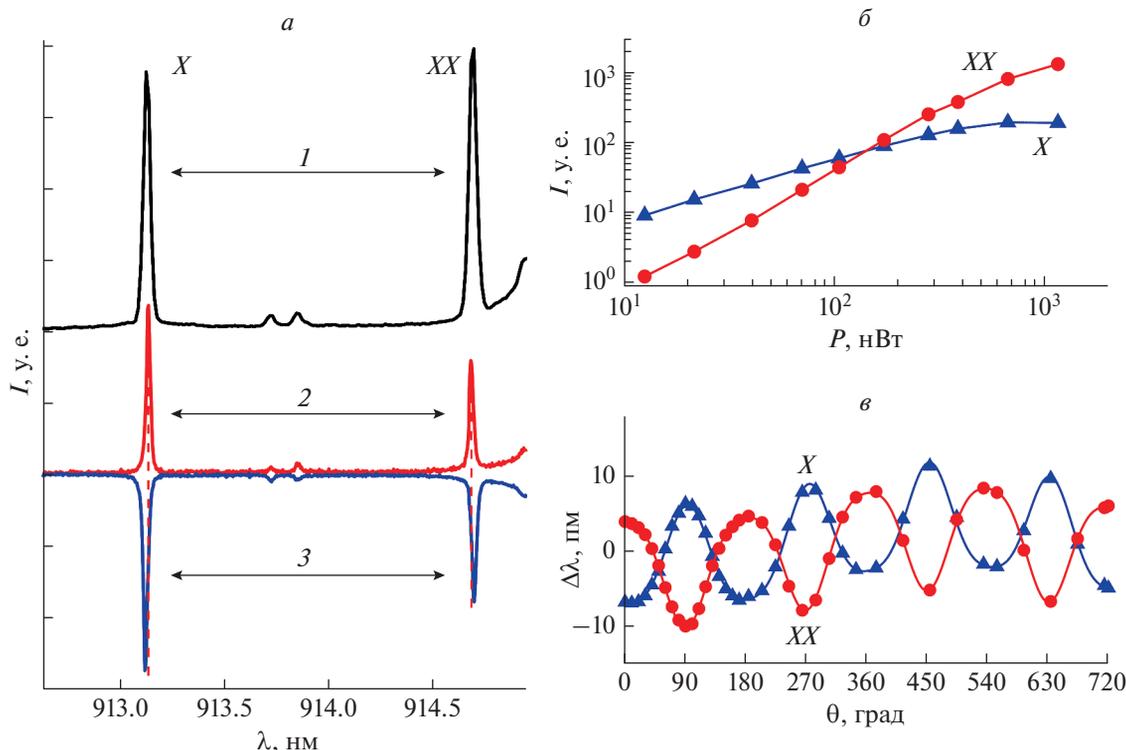
### ИДЕНТИФИКАЦИЯ БИЭКСИТОННОГО КАСКАДА ИЗЛУЧЕНИЯ

В силу случайности процесса формирования InAs КТ в исследуемом образце, каждая микроколонка в массиве может как не содержать ни одной КТ, так и содержать одну или несколько КТ, излучающих в исследуемом спектральном диапазоне вблизи моды микрорезонатора. Для дальнейшего исследования необходимо было выделить микроструктуру, в спектре ФЛ которой наблюдался бы биэкситонный каскад излучения одиночной КТ. Для идентификации подобной структуры проводились измерения спектров ФЛ при

температуре 8 К в условиях надбарьерного возбуждения на длине волны 800 нм, и далее детально исследовались структуры, в спектре ФЛ которых присутствовали несколько линий излучения. Данные линии в общем случае могли быть связаны как с каскадным излучением, так и с флуктуацией заряда КТ или с излучением нескольких КТ. Для установления природы наблюдаемых линий исследовались их мощностные характеристики и измерялся поляризованный спектр в различных линейных поляризациях, выделяемых с помощью полуволновой пластинки и линейного поляризатора, помещенных на пути детектирования. Первичный критерий идентификации основывался на том, что при наличии в спектре линий биэкситонного каскада при изменении мощности возбуждения должно изменяться соотношение интенсивностей этих линий, а при изменении измеряемой поляризации линии должны смещаться в противофазе, как показано на рис. 1а. Наблюдаемое смещение линий связано с наличием в каскадном процессе общего для двух последовательных переходов экситонного состояния, которое в асимметричной КТ оказывается расщеплено [13]. За счет этого линии каскадного излучения так же расщепляются и излучаются в одной линейной поляризации (условно V – вертикальной) при прохождении системы через одно экситонное состояние и в ортогональной поляризации (условно H – горизонтальной) – при прохождении через другое. В силу малой величины расщепления экситонного состояния  $\Delta_{FSS}$ , линейно поляризованные компоненты в составе линий излучения не разрешаются спектрометром непосредственно, но при измерении ортогонально поляризованных H и V спектров удается наблюдать смещения линий. Более детальный анализ мощностных характеристик (рис. 1б), показывающий линейный и квадратичный характер зависимостей для X и XX линий соответственно, и поляризационных смещений (рис. 1в), демонстрирующих спектральную корреляцию положения линий, позволил уверенно идентифицировать линии ФЛ одной из микроструктур как линии биэкситонного каскада излучения.

### КАСКАДНОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ КТ В МИКРОРЕЗОНАТОРЕ

Для дальнейшего анализа влияния микрорезонатора на процесс биэкситонного каскада излучения КТ были исследованы параметры микрорезонатора, а именно положение и ширина оптической моды, определяемые по спектру отражения, показанному на рис. 2 вместе со спектром ФЛ при надбарьерной накачке. Провал в спектре отражения шириной 200 пм (295 мкэВ) соответствует оптической моде с добротностью  $Q \approx 4600$ . Из сопоставления спектров видно, что в спектре ФЛ присут-

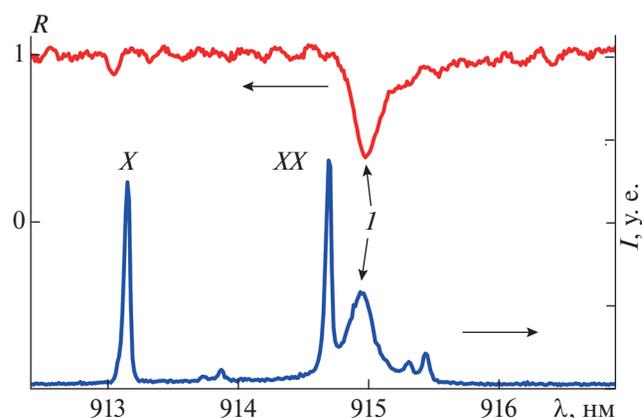


**Рис. 1.** ФЛ микроструктуры при надбарьерном возбуждении при температуре 8 К: неполяризованный спектр ФЛ при мощности возбуждения  $P = 160$  нВт ( $I$ ) и поляризованные спектры (2 – в V поляризации, 3 – в H) при мощности возбуждения 105 нВт ( $a$ ); зависимости интенсивностей  $X$  и  $XX$  линий ФЛ от мощности возбуждения ( $b$ ); наблюдаемые смещения положения  $X$  и  $XX$  линий относительно их среднего положения  $\Delta\lambda = \lambda(\theta) - \lambda_{cp}$  при изменении угла измеряемой линейной поляризации  $\theta$  от горизонтали ( $c$ ).

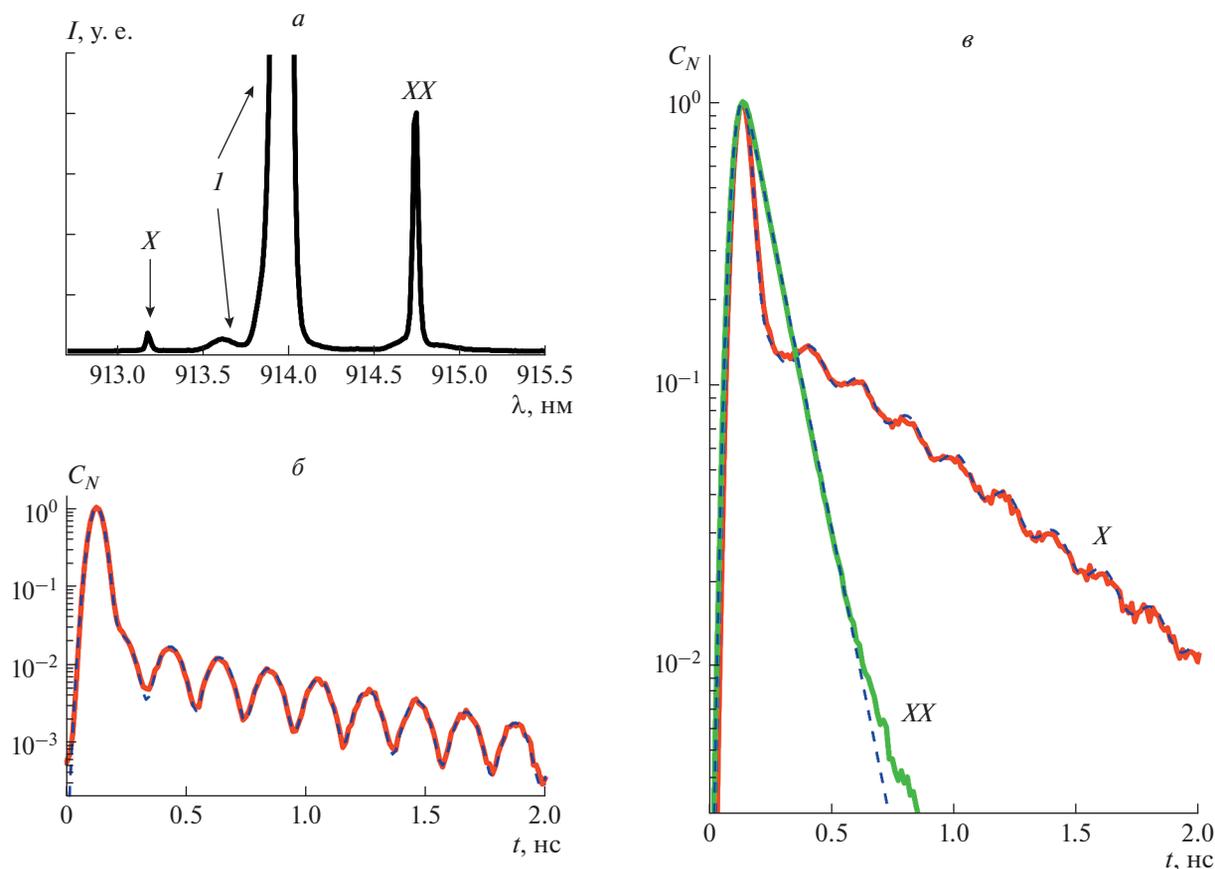
ствует пик фонового излучения в моду микрорезонатора, не связанный, как будет показано далее, с ФЛ исследуемой КТ, а  $X$  и  $XX$  линии излучения при температуре 8 К отстроены от моды микрорезонатора в коротковолновую область. Как было показано в работе [14], подобная отстройка дает возможность согласования моды с линиями излучения КТ за счет повышения температуры.

Надбарьерная накачка, использовавшаяся при первичном исследовании структуры, неэффективна для потенциальной генерации запутанных фотонных пар в силу того, что захват электрон-дырочных пар из матрицы приводит к излучению фотонов в  $X$  и  $XX$  линиях ФЛ и вне каскадного процесса. При этом широко применяемое для генерации одиночных фотонов резонансное возбуждение [2] позволяет возбуждать экситонное состояние КТ ( $|X\rangle$ ), но не биэкситонное ( $|XX\rangle$ ): переход на длине волны  $XX$  линии возможен лишь между  $|X\rangle$  и  $|XX\rangle$  состояниями, что делает невозможной резонансную накачку на этой длине волны для КТ, находящейся в основном состоянии. Известный метод когерентного возбуждения  $|XX\rangle$  состояния КТ – двухфотонное возбуж-

дение [12] – основан на поглощении в КТ двух фотонов накачки с энергией, средней между энергиями фотонов  $X$  и  $XX$  линий. Данный метод широко использовался при исследованиях биэк-



**Рис. 2.** Спектр отражения исследуемой структуры  $R(\lambda)$  (по левой оси) в сопоставлении со спектром ФЛ при надбарьерном возбуждении  $I(\lambda)$  (по правой оси).  $I$  – мода микрорезонатора, наблюдаемая в обоих спектрах.



**Рис. 3.** ФЛ микроструктуры при когерентном возбуждении при температуре 8 К: спектр ФЛ при двухфотонном возбуждении ( $I$  – отраженное и рассеянное лазерное излучение) (а); кривая затухания  $X$  линии ФЛ при ее резонансном возбуждении (б); кривые затухания линий излучения каскада при двухфотонном возбуждении ФЛ (в). На графиках (б) и (в)  $C_N$  – нормированное на максимум число зарегистрированных фотонов в момент времени  $t$ ; пунктирными линиями показаны аппроксимирующие кривые.

ситонного каскада излучения в структурах без эффективного микрорезонатора, а также в работах с низкодобротными микрорезонаторами [7], однако не был реализован для КТ в высокодобротных микрорезонаторах [8, 14], что, вероятно, связано с высоким коэффициентом отражения структуры на длине волны возбуждения между  $X$  и  $XX$  линиями ФЛ (рис. 2). Нам удалось реализовать резонансное возбуждение  $|X\rangle$  состояния КТ и двухфотонное возбуждение  $|XX\rangle$  состояния при высокой мощности возбуждения, при которой кросс-поляризационная схема фильтрации отраженного лазерного света не позволяла полностью отфильтровать его из измеряемого спектра ФЛ. При данных режимах возбуждения широкий пик ФЛ в моде микрорезонатора не наблюдался (рис. 3а), что и позволило определить, что он не связан с ФЛ исследуемой КТ. Спектр ФЛ при двухфотонном возбуждении, показанный на рис. 3а, демонстрирует существенное различие в интенсивностях линий биэкситонного каскада.

Данное различие, не наблюдаемое обычно при данном методе возбуждения [12] в силу каскадной природы процесса, в котором количество переходов между  $|XX\rangle$  и  $|X\rangle$  состояниями совпадает с количеством переходов между  $|X\rangle$  состоянием и основным состоянием КТ, демонстрирует существенное влияние микрорезонатора на процесс излучения. Одной из причин подобного дисбаланса может быть меньшая эффективность вывода и сбора излучения на длине волны  $X$  линии, дальше отстроенной от моды микрорезонатора, чем  $XX$  линия; другая же причина была обнаружена при исследовании кинетики излучения  $|XX\rangle$  и  $|X\rangle$  состояний КТ.

Для исследования кинетики были измерены кривые затухания ФЛ  $X$  линии при ее резонансном возбуждении (рис. 3б) и обеих линий каскадного излучения при двухфотонном возбуждении (рис. 3в), после чего была осуществлена аппроксимация данных кривых. На рис. 3б при резонанс-

ном возбуждении наблюдается пик интенсивности на малых временах, связанный с неполной фильтрацией отраженного лазерного излучения, интенсивность которого велика в силу высокого коэффициента отражения структуры на данной длине волны. Данный пик имеет форму аппаратной функции, которая при аппроксимации предполагалась описываемой функцией Гаусса. Дальнейшее осциллирующее поведение кривой, связанное с осцилляцией волновой функции когерентно возбуждаемого экситона между расщепленными состояниями (квантовые биения), подробно описано в работе [15]. Для получения приемлемого соответствия аппроксимирующей функции из [15] с экспериментом, она была свернута с аппаратной функцией установки, что дало итоговую функцию зависимости интенсивности ФЛ от времени  $I_{X\text{res}}(t)$ :

$$I_{X\text{res}}(t) = \left[ A_1 \exp\left(-\frac{t}{\tau_X}\right) \sin^2\left(\frac{\Delta_{FSS}}{2\hbar} t\right) \right] * \exp\left(-\frac{(t-t_0)^2}{2\sigma^2}\right) + A_2 \exp\left(-\frac{(t-t_0)^2}{2\sigma^2}\right), \quad (1)$$

где первое слагаемое описывает ФЛ КТ с временем жизни экситонного состояния  $\tau_X$  и расщеплением экситонного состояния  $\Delta_{FSS}$ , символ \* означает свертку,  $t_0$  соответствует времени прихода возбуждающего импульса, а  $\sigma$  – ширине аппаратной функции; второе слагаемое описывает отраженное лазерное излучение с теми же параметрами  $t_0$  и  $\sigma$ .

Кривая затухания  $XX$  линии ФЛ при двухфотонном возбуждении аппроксимировалась моноэкспоненциальным затуханием, свернутым с той же аппаратной функцией, параметры которой уже были определены из аппроксимации кинетики ФЛ при резонансном возбуждении:

$$I_{XX\text{TPE}}(t) = \left[ A_3 \exp\left(-\frac{t}{\tau_{XX}}\right) \right] * \exp\left(-\frac{(t-t_0)^2}{2\sigma^2}\right), \quad (2)$$

где  $\tau_{XX}$  – время жизни биэкситонного состояния КТ. Кривая затухания  $X$  линии ФЛ при двухфотонной накачке должна описываться как моноэкспоненциальный процесс, свернутый с полученной ранее кривой затухания  $XX$  линии, так как система в каскадном процессе приходит в  $|X\rangle$  состояние в результате излучения фотона  $XX$  линии. Аппроксимация экспериментальных данных, однако, была осложнена тем, что данная кривая демонстрирует слабо осциллирующее поведение, предположительно связанное с тем, что при высокой мощности накачки  $X$  линия частично возбуждалась резонансно широким спектральным

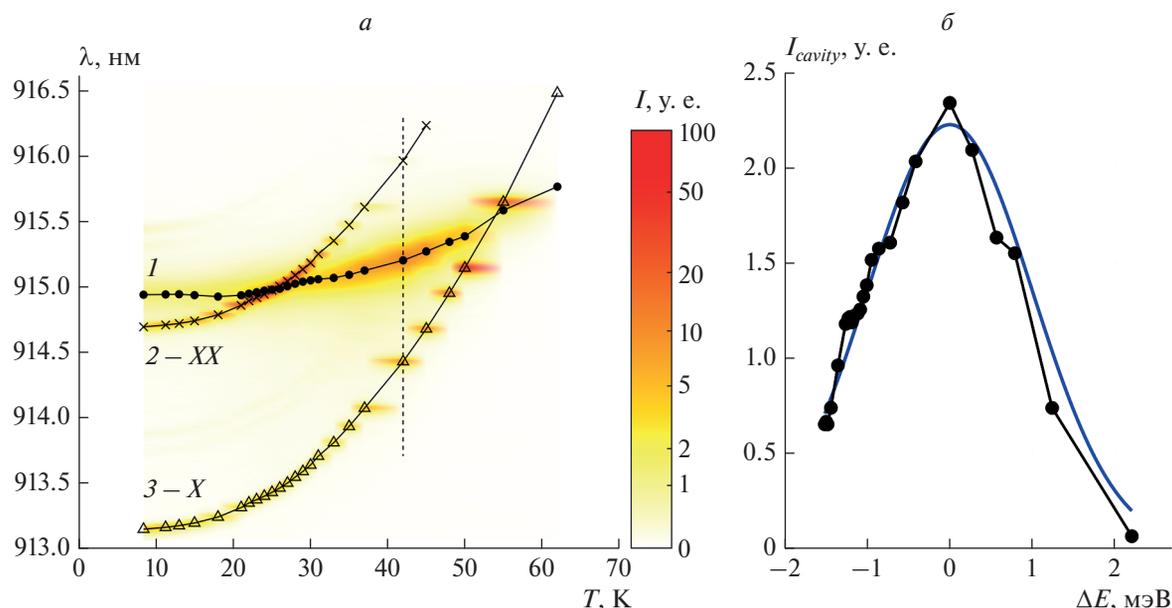
хвостом лазерного излучения в коротковолновой области. В связи с этим к аппроксимирующей функции была добавлена та же функция затухания, что и при резонансном возбуждении данной линии, с точностью до отличающихся амплитудных коэффициентов  $A'_1$  и  $A'_2$ :

$$I_{X\text{TPE}}(t) = \left[ A_4 \exp\left(-\frac{t}{\tau_X}\right) \right] * I_{XX\text{TPE}}(t) + I'_{X\text{res}}. \quad (3)$$

Как видно из рис. 3б и 3в, аппроксимирующие функции хорошо описывают наблюдаемые экспериментальные данные и позволяют определить с высокой точностью расщепление  $\Delta_{FSS} = 20.5$  мкэВ, долю интенсивности ФЛ  $X$  линии, обусловленную побочным резонансным возбуждением (17%) и времена жизни  $|XX\rangle$  и  $|X\rangle$  состояний КТ, равные  $\tau_{XX} = 96$  пс и  $\tau_X = 640$  пс соответственно. Обнаруженная разница времен жизни может быть обусловлена разницей факторов Парселла для исследуемых линий, связанной с их различной спектральной отстройкой от моды микрорезонатора. При этом большее время жизни  $|X\rangle$  состояния подразумевает большее влияние безызлучательных процессов, уменьшающих интенсивность ФЛ данной линии, и также объясняет дисбаланс интенсивностей этих линий в условиях двухфотонного возбуждения.

## ТЕМПЕРАТУРНЫЕ ЗАВИСИМОСТИ

Далее были измерены температурные характеристики при надбарьерном возбуждении, позволяющем определять положение моды микрорезонатора по широкому пику ФЛ. Полученные зависимости положения и интенсивности линий ФЛ от температуры показаны на рис. 4а и демонстрируют возможность подстройки обеих линий ФЛ в моду микрорезонатора при повышении температуры. При анализе данных зависимостей интересный эффект был обнаружен в немонотонном изменении интенсивности ФЛ в моде микрорезонатора: данная интенсивность достигает максимума при температуре 42 К, при которой линии каскадного излучения КТ оказываются расположены симметрично с двух сторон от моды. Согласно теоретическим работам [9, 10] подобное расположение моды микрорезонатора на длине волны двухфотонного перехода может приводить к увеличению вероятности двухфотонного процесса перехода КТ из  $|XX\rangle$  в основное состояние, при котором излучается пара вырожденных запутанных фотонов в моду микрорезонатора. В случае реализации подобного процесса, данное излучение в моду должно усилить интенсивность ФЛ в моде. Подобный эффект наблюдается в полученных экспериментальных данных – рис. 4б демонстрирует отчетливый максимум интенсив-



**Рис. 4.** Температурные характеристики ФЛ при надбарьерном возбуждении: зависимость положения и интенсивности линий ФЛ от температуры (1 – мода микрорезонатора, 2, 3 – биэкситонная и экситонная линии соответственно), интенсивность показана цветом (а); полученный из анализа температурных зависимостей график интенсивности ФЛ в моде микрорезонатора  $I_{cavity}$ , как функция отстройки резонансной энергии моды  $E_{cavity}$  от энергии двухфотонного перехода

$E_{TPE}$ :  $\Delta E = E_{cavity} - E_{TPE} = E_{cavity} - \frac{1}{2}(h\nu_X + h\nu_{XX})$ , где  $h\nu_X$  и  $h\nu_{XX}$  – энергии фотонов X и XX линий соответственно (б).

ности ФЛ моды при нулевой отстройке положения моды от энергии двухфотонного процесса. Таким образом, замеченная особенность температурных зависимостей ФЛ исследуемой структуры может быть связана с предсказанным теоретически процессом генерации вырожденных запутанных фотонных пар.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, в массиве высокодобротных микроколонок с РБО была выделена структура, в спектре ФЛ которой наблюдается биэкситонный каскад излучения одиночной КТ. Для данной структуры было реализовано двухфотонное возбуждение биэкситонного состояния КТ и показано влияние микрорезонатора на спектр и кинетику каскадного процесса ФЛ в данном режиме возбуждения. Исследованные температурные характеристики выявили эффект усиления ФЛ в моде микрорезонатора, который может быть связан с генерацией вырожденных запутанных фотонных пар. Полученные результаты показывают перспективность дальнейшей разработки структур с КТ в одномодовых высокодобротных микрорезонаторах для задач генерации запутанных фотонных состояний.

Работа поддержана госкорпорацией “Росатом” в рамках Дорожной Карты Квантовые Вы-

числения (контракт № 868-1.3-15/15-2021 от 5.10.2021 и контракт № R2152 от 19.11.2021).

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Tomm N., Javadi A., Antoniadis N.O. et al.* // Nature Nanotech. 2001. V. 16. No. 4. P. 399.
2. *Ding X., He Y., Duan Z. et al.* // Phys. Rev. Lett. 2016. V. 116. No. 2. Art. No. 020401.
3. *Wang H., He Y.M., Chung T.H. et al.* // Nature. Photon. 2019. V. 13. No. 11. P. 770.
4. *Prevedel R., Aspelmeyer M., Brukner C.* // JOSA B. 2007. V. 24. No. 2. P. 241.
5. *Young R.J., Stevenson R.M., Shields A.J.* // J. Appl. Phys. V. 101. No. 8. Art. No. 081711.
6. *Zeuner K.D., Jons K.D., Schweickert L.* // ACS Photonics. 2021. V. 8. No. 8. P. 2337.
7. *Wang H., Hu H., Chung T.H. et al.* // Phys. Rev. Lett. 2019. V. 122. No. 11. Art. No. 113602.
8. *Dousse A., Suffczynski J., Beveratos A. et al.* // Nature. 2010. V. 466. No. 7303. P. 217.
9. *Schumacher S., Förstner J., Zrenner A. et al.* // Opt. Express. 2012. V. 20. No. 5. P. 5335.
10. *Heinze D., Zrenner A., Schumacher S.* // Phys. Rev. B. 2017. V. 95. No. 24. Art. No. 245306.
11. *Галимов А.И., Рахлин М.В., Клишко Г.В. и др.* // Письма в ЖЭТФ. 2021. Т. 113. № 4. С. 248; *Galimov A.I., Rakhlin M.V., Klimko G.V. et al.* // JETP Lett. 2021. V. 113. No. 4. P. 252.

12. Müller M., Bounouar S., Jöns K.D. et al. // Nature Photonics. 2014. V. 8. No. 3. P. 224.
13. Bayer M., Ortner G., Stern O. et al. // Phys. Rev. B. 2002. V. 65. No. 19. Art. No. 195315.
14. Sęk G., Krizhanovskii D.N., Kulakovskii V.D. et al. // Acta Phys. Polon. 2016. V. 129. No. 1-A. Art. No. A-44.
15. Ollivier H., Maillette de Buy Wenniger I., Thomas S. et al. // ACS Photonics. 2020. V. 7. No. 4. P. 1050.

## Investigation of the biexciton radiative cascade in a single InAs/GaAs quantum dot embedded in a high-Q microcavity

Yu. M. Serov<sup>a,\*</sup>, A. I. Galimov<sup>a</sup>, A. A. Toropov<sup>a</sup>

<sup>a</sup>*Ioffe Physical-Technical Institute of the Russian Academy of Sciences, St. Petersburg, 194021 Russia*

*\*e-mail: serovjurij@mail.ru*

A biexciton radiative cascade was recorded in the photoluminescence spectra of an InAs/GaAs QD embedded in a  $\lambda$ -cavity with a relatively high-quality factor of 4600, formed in a micropillar with GaAs/AlGaAs distributed Bragg reflectors. The spectrum and kinetics of the radiation, measured under conditions of two-photon excitation, demonstrated a significant effect of the microcavity on the emission process. A possible improvement based on this effect in the generation of entangled photon pairs is discussed.