Письма в ЖЭТФ, том 116, вып. 9, с. 592 – 598

Цилиндрические микрорезонаторы с квантовыми точками InAs/GaAs – моделирование и анализ оптических характеристик

М. А. Бобров[+*1)], *С. А. Блохин*[+], *Н. А. Малеев*[+], *А. Г. Кузьменков*[+], *А. А. Блохин*[+], *А. П. Васильев*[×], *Ю. А. Гусева*[+], *М. В. Рахлин*[+], *А. И. Галимов*[+], *Ю. М. Серов*[+], *С. И. Трошков*[+], *В. М. Устинов*[*], *А. А. Торопов*[+]

[+]*Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе РАН, 194021 С-Петербург, Россия*

[*]*С.-Петербургский политехнический университет Петра Великого, 195251 С.-Петербург, Россия*

[×]*Научно-технологический центр микроэлектроники и субмикронных гетероструктур РАН, 194021 С.-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 26 сентября 2022 г.
После переработки 26 сентября 2022 г.
Принята к публикации 26 сентября 2022 г.

Представлены результаты исследований оптических характеристик структур цилиндрических вертикальных микрорезонаторов с AlGaAs распределенными брэгговскими отражателями и InAs/GaAs квантовыми точками, предназначенных для изготовления источников одиночных фотонов. Методом конечных разностей во временной области выполнено численное моделирование эффектов влияния на величину фактора Парселла и эффективности вывода излучения таких параметров, как наклон боковых стенок, частичное окисление AlGaAs слоев и отклонение расположения квантовых точек от центральной оси микрорезонатора, а также определены допустимые диапазоны реализации этих параметров, для цилиндрических вертикальных микрорезонаторов спектрального диапазона 920 нм. Сравнение результатов расчетов, выполненных с использованием уточненных значений показателей преломления используемых материалов при криогенных температурах, и измеренных характеристик изготовленных микрорезонаторных структур подтвердило адекватность используемых моделей.

DOI: 10.31857/S1234567822210042, EDN: lgvsmi

Цилиндрические вертикальные микрорезонаторы (ЦВМ, англ. *cylindrical micropillars*) с полупроводниковыми квантовыми точками (КТ, англ. *quantum dot*, QD) являются одним из наиболее перспективных вариантов реализации источников одиночных фотонов (ИОФ, англ. *single-photon source*) для перспективных систем квантовой криптографии [1] и квантовых вычислений [2]. Базовая конструкция ЦВМ представляет собой микроцилиндр с характерным диаметром 1–4 мкм, изготовленный из эпитаксиальной гетероструктуры с двумя распределенными брэгговскими отражателями (РБО, англ. *distributed Bragg reflector*, DBR), между которыми располагается полость микрорезонатора (GaAs), включающая слой InAs/GaAs КТ с низкой поверхностной плотностью [3]. РБО состоят из чередующихся четвертьволновых слоев AlGaAs с высоким и низким содержанием Al, а для формирования КТ используют эффекты самоорганизации в гетероструктурах InGaAs/GaAs [4]. Оптимальная структура ЦВМ имеет строго цилиндрическую форму и гладкие вертикальные стенки [5]. При этом предполагается, что излучающий элемент (КТ) располагается в геометрическом центре оптического микрорезонатора, а длина волны излучения КТ точно совпадает с резонансной длиной волны. При использовании современного эпитаксиального оборудования и тщательных калибровках ростовых параметров соответствие проектным значениям толщины и состава эпитаксиальных слоев, а также точность позиционирования плоскости с КТ уверенно обеспечиваются на уровне $\sim 1\,\%$ и лучше [6]. В то же время при практической реализации структур ЦВМ с КТ следует принимать во внимание возможный наклон боковых стенок микроцилиндра, шероховатость его поверхности, частичное локальное окисление слоев AlGaAs с высоким содержанием Al и отклонение положения излучающей КТ от вертикальной оси микрорезонатора [7]. Исследование степени влияния перечисленных факторов на оптические характеристики ЦВМ с КТ и потенциальные характеристики ИОФ на их основе представляет актуальную задачу.

В настоящей работе выполнено численное моделирование эффектов влияния наклона боковых стенок, частичного окисления AlGaAs слоев и точно-

[1)]e-mail: bobrov.mikh@gmail.com

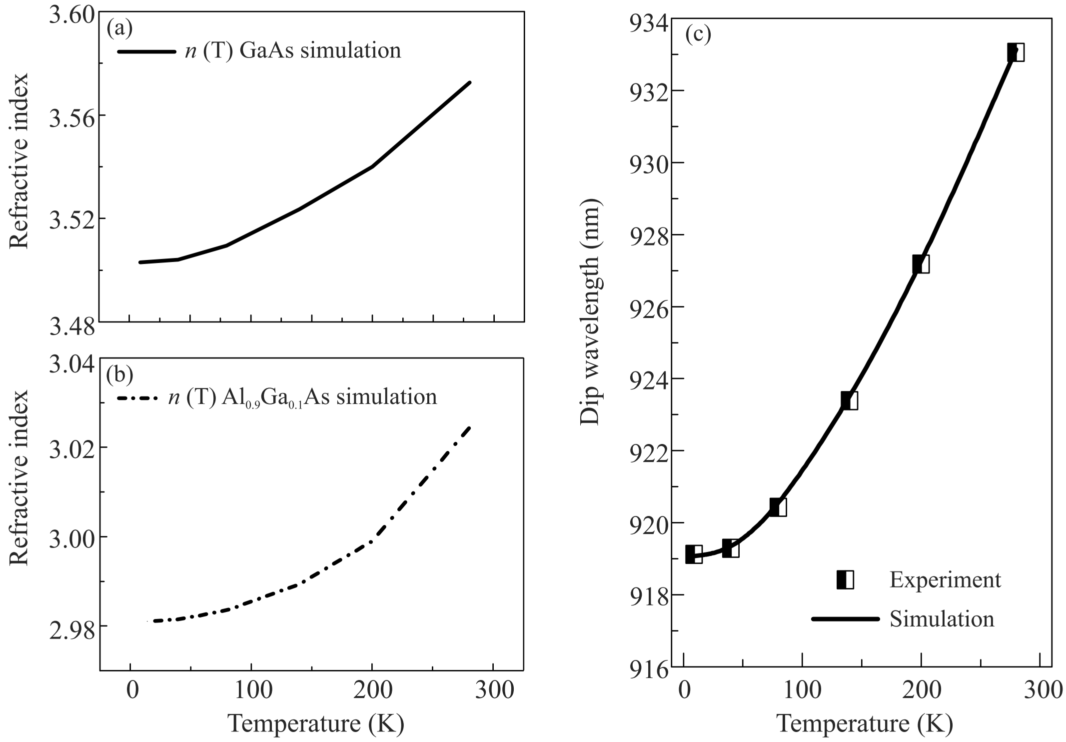

Рис. 1. Уточненные температурные зависимости показателей преломления GaAs (a) и $Al_{0.9}Ga_{0.1}As$ (b). На рисунке (c) приведена расчетная зависимость спектрального положения основной моды планарной гетероструктуры вертикального микрорезонатора от температуры с нанесенными экспериментальными данными (черные полуквадраты)

сти расположения КТ относительно центральной оси микрорезонатора на основные оптические характеристики ЦВМ, функционирующих в качестве ИОФ на длине волны около 920 нм. Проведен сравнительный анализ результатов экспериментальных исследований оптических характеристик изготовленных ЦВМ и выполненных расчетов с использованием уточненных значений показателей преломления используемых материалов при криогенных температурах.

В качестве модельного объекта, выбранного для проведения сравнительных исследований, были использованы структуры ЦВМ, ранее изготовленные с помощью фотолитографии и плазмохимического травления на основе гетероструктур, выращенных методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ, англ. *Molecular-beam epitaxy*, MBE) на подложках GaAs [8]. Гетероструктуры включали два РБО, состоящие из набора пар слоев $Al_{0.9}Ga_{0.1}As/GaAs$, каждый – толщиной $\lambda/4n$, где n – показатель преломления соответствующего материала, а λ – резонансная длина волны. Между РБО располагался GaAs резонаторный слой с толщиной λ/n, в центре которого находился слой InAs КТ с низкой поверхностной плотностью ($\sim 1{-}2 \cdot 10^9\,\text{см}^{-2}$). В исследуемых структурах верхний РБО содержал 15 пар четвертьволновых слоев, а нижний РБО – 28 пар. Параметры РБО были выбраны таким образом, чтобы обеспечить значительное увеличение скорости спонтанного излучения в КТ за счет эффекта Парселла, сохранив при этом достаточно высокую эффективность вывода излучения [9, 10]. Данная конструкция использовалась во всех модельных расчетах.

Для сравнения результатов расчетов с экспериментальными данными были измерены как спектры оптического отражения исходных планарных гетероструктур, так и спектры микроотражения от отдельных структур ЦВМ с различным наклоном стенок цилиндра и диаметром у вершины, который в разных структурах варьировался от 1.8 до 4.6 мкм. Измерения спектров микроотражения проводились в микроскопной системе, собранной на базе проточного гелиевого микрокриостата с низкотемпературными трехкоординатными пьезо-подвижками, обеспечивающими точность юстировки порядка 20 нм [8].

Эффективная однофотонная генерация предполагает охлаждение излучающего ЦВМ до криогенных температур ~ 20 K и ниже. Поэтому при моделировании параметров структуры ЦВМ критически важно правильно выбрать значения показателя преломления слоев $Al_{0.9}Ga_{0.1}As$ и GaAs в интересующей нас спектральной области при рабочих (криогенных) температурах. Уточненные температурные зависимости показателей преломления были получены в результате сопоставления результатов расчетов и измеренной зависимости от температуры резонансной длины волны в исходной планарной микрорезонаторной гетероструктуре, из которой впоследствии изготавливались массивы структур ЦВМ. Положение резонанса определялось в результате моделирования спектров отражения от планарной гетероструктуры методом матриц переноса ТММ (англ. *transfer matrix method*, TMM). Предложенная ранее модель температурной зависимости показателей преломления [11], основанная на линейной экстраполяции экспериментальных данных, полученных при температурах вблизи комнатной, не позволила адекватно описать измеренные зависимости. В результате для подгонки экспериментальных данных нами предложены уточненные полиномиальные зависимости показателей преломления слоев GaAs и $Al_{0.9}Ga_{0.1}As$ от температуры, графики которых представлены на рис. 1a, b.

Для моделирования оптических характеристик ЦВМ с КТ использовался метод численного решения уравнений Максвелла в конечных разностях во временной области (англ. *Finite-difference time-domain method*, FDTD) [12]. При практической реализации разностного метода существует проблема неточного отображения границ раздела двух сред на вычислительную сетку. Геометрически несогласованная с вычислительной сеткой криволинейная поверхность границ раздела материалов искажается эффектом лестничного приближения (англ. *Staircase effect*), что в результате снижает точность расчетов методом FDTD. Для решения данной проблемы без существенного увеличения затрат вычислительных ресурсов использовался метод, основанный на введении эффективной диэлектрической проницаемости вблизи границ раздела двух материалов [13]. При этом одиночная InAs КТ (источник излучения) аппроксимировалась диполем, расположенным в центральной плоскости GaAs активной области ЦВМ между двумя РБО $Al_{0.9}Ga_{0.1}As/GaAs$. Для расчетов спектров отражения и пропускания вокруг структуры ЦВМ формировался детектирующий прямоугольный параллелепипед, отдельные грани которого использовались для определения доли излучения источником в различных направлениях: вверх, вниз и в боковых направлениях. Полученные значения электрических и магнитных полей на детектирующих поверхностях переводились в частотное представление с помощью дискретного преобразования Фурье. Далее, используя рассчитанные значения вектора Пойнтинга во времени, определялся средний поток электромагнитной энергии через каждую детектирующую поверхность. Нормируя полученный поток на мощность импульса возбуждения диполя, были рассчитаны интересующие спектры поглощения и отражения. При расчетах использовались предложенные уточненные зависимости показателей преломления слоев GaAs и $Al_{0.9}Ga_{0.1}As$ от температуры.

Экспериментально были измерены спектры отражения группы ЦВМ при температуре 9 К; при этом точные геометрические размеры и наклон стенок определялись с помощью измерений на сканирующем электронном микроскопе. По измеренным спектрам отражения были определены положения резонансных пиков, отвечающие двум первым модам микрорезонатора (LP01 и LP02), и построены зависимости их спектрального положения от диаметра ЦВМ, измеренного на его вершине. На рисунке 2 представлены зависимости положения резонансных пиков двух первых мод ЦВМ, рассчитанные для двух вариантов конструкций: без наклона боковых стенок (штрихпунктирные кривые) и с наклоном боковых стенок в 3.5° (штриховые кривые); точками показаны экспериментальные данные для ЦВМ с наклоном стенок в 3.5°. Сравнение экспериментальных данных с результатами расчетов показывает хорошее совпадение (ошибка менее 3 %) при учете наклона боковых стенок микрорезонатора, что подтверждает адекватность разработанной модели.

С точки зрения использования структуры ЦВМ в качестве ИОФ важнейшими оптическими характеристиками являются доля излучения диполя, выходящего вверх (англ. *Photon extraction efficiency*, PEE), фактор Парселла (F_p) и добротность микрорезонатора. При расчетах методом FDTD величина PEE оценивалась как отношение потока электромагнитной энергии через верхнюю детектирующую плоскость к общему потоку, испускаемому диполем. Фактор Парселла определялся как отношение добротности микрорезонатора к объему его оптической моды V_m с дополнительным коэффициентом согласно работе [14]. Добротность микрорезонатора определялась как отношение длины волны резонанса фундаментальной моды к ширине резонансного пика на его полувысоте.

Влияние различных факторов подробно анализировалось для ЦВМ с диаметром 2.5 мкм, поскольку такой размер микрорезонатора близок к оптимальному с точки зрения максимума значения произведения параметра PEE на фактор Парселла, что подтверждается опубликованными результатами [15].

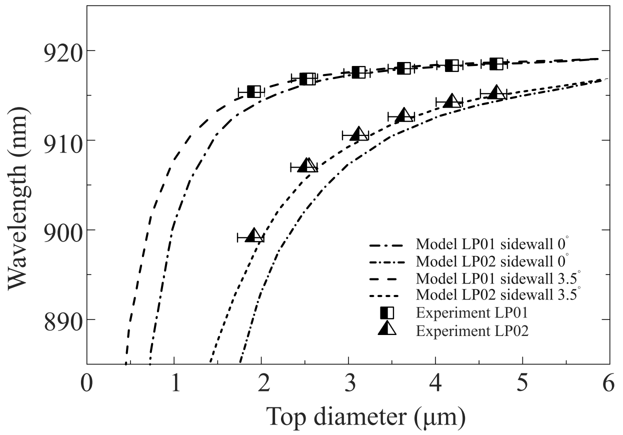

Рис. 2. Зависимости положения резонансных пиков для первых двух мод (LP01 и LP02) ЦВМ от диаметра на вершине микрорезонатора. Символами (квадраты и треугольники) представлены экспериментальные данные, полученные из измеренных спектров отражения; штрихпунктирные кривые – моделирование ЦВМ с вертикальными стенками; штриховые кривые – моделирование ЦВМ с углом наклона боковых стенок 3.5°; длинные штриховые и штрихпунктирные кривые соответствуют моде LP01, короткие штриховые и штрихпунктирные – моде LP02

Все расчеты проводились для рабочей температуры 9 К.

Для определения влияния наклона боковых стенок ЦВМ на ввод излучения ИОФ в оптическое волокно был проведен анализ эффективности сбора фотонов в заданном апертурном угле (англ. *Photon collection efficiency*, PCE). Величина PCE рассчитывалась как отношение мощности излучения диполя в дальнем поле в заданном угле к общей мощности излучения, испускаемого в верхнюю полусферу. На рисунке 3a представлены расчетные зависимости PCE от числовой апертуры для ЦВМ с диаметром на вершине 2.5 мкм. Сплошная кривая соответствует ЦВМ с вертикальными стенками, а штриховая линия – ЦВМ с наклоном боковых стенок 3.5°. Согласно результатам соответствующих измерений, эффективность сбора однофотонного излучения не меняется при использовании объективов с числовыми апертурами NA = 0.7 и NA = 0.45. Данный факт находится в хорошем соответствии с результатами расчетов, согласно которым для ЦВМ с наклоном боковых стенок 3.5° значения параметра PCE для числовых апертур NA = 0.7 и NA = 0.45 отличаются не более, чем на 2 %.

Для оценки степени влияния латерального отклонения положения КТ от вертикальной оси ЦВМ были выполнены расчеты фактора Парселла и параметра PEE для двух вариантов ЦВМ с диаметром 2.5 мкм на вершине (с вертикальными и наклонными боковыми стенками) и различным расположением источника излучения (см. рис. 3b). Видно, что эффективность вывода излучения падает на 20 % при отклонении положения диполя относительно вертикальной оси ЦВМ на 830 мкм для ЦВМ с вертикальными стенками и 910 нм для ЦВМ с наклоном боковых стенок 3.5°. Однако требование сохранения величины F_p не менее 80 % от максимального значения приводит к более жесткому ограничению на максимально допустимое отклонение излучающего диполя от центрального положения. Для ЦВМ с вертикальными стенками отклонение от центра не должно превышать 350 нм, а для ЦВМ с наклоном стенок 3.5° – 400 нм. Такое различие обусловлено тем, что с ростом угла наклона боковых стенок ЦВМ увеличивается и эффективный объем моды (V_m) микрорезонатора, что приводит к расширению допустимой области расположения диполя вокруг вертикальной оси, в пределах которой значения фактора F_p и параметра PEE сохраняются на уровне не ниже 80 % от своих максимальных значений. Таким образом, значения фактора Парселла и эффективности излучения в верхнюю полусферу на уровне не менее 80 % от своих максимальных значений для ЦВМ с наклонными стенками и диаметром 2.5 нм на вершине могут быть обеспечены при попадании КТ в окружность с центром на вертикальной оси микрорезонатора и радиусом 0.4 нм.

Другим возможным эффектом при изготовлении ЦВМ для ИОФ является частичное латеральное окисление слоев $Al_{0.9}Ga_{0.1}As$ микрорезонатора, характерное для слоев с высоким содержанием алюминия при отсутствии защиты поверхности. В процессе такого неконтролируемого и сравнительно медленного окисления образуется оксидный слой с показателем преломления, близким к 1.6, что приводит к формированию у поверхности боковых стенок локальных областей с большим скачком показателя преломления, которые могут приводить к дополнительным оптическим потерям из-за рассеяния излучения. Для выяснения степени влияния данного эффекта на оптические свойства исследуемых ЦВМ было выполнено моделирование структуры ЦВМ с окисленными на 200 нм в латеральном направлении от поверхности стенки микроцилиндра слоями $Al_{0.9}Ga_{0.1}As$. Для сравнения был промоделирован вариант с защитным покрытием боковой поверхности слоем полиамида для предотвращения процессов окисления и обеспечения стабильных во времени характеристик ИОФ.

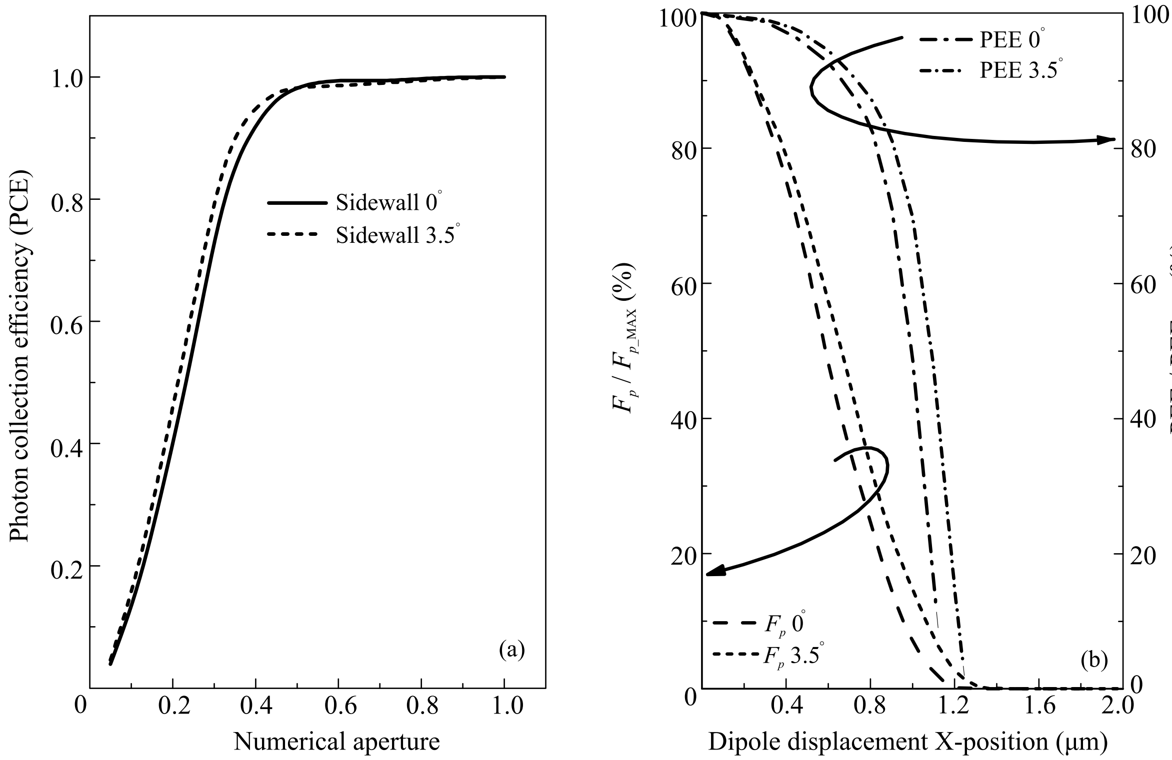

Рис. 3. Результаты расчетов оптических характеристик структур ЦВМ с диаметром на вершине 2.5 мкм. (a) – Зависимости эффективности сбора фотонов от апертурного угла, сплошная кривая соответствует микрорезонатору с вертикальными стенками, штриховая – микрорезонатору с наклоном боковых стенок 3.5°. (b) – Зависимости фактора Парселла и параметра PEE от сдвига положения излучающего диполя относительно вертикальной оси ЦВМ в латеральном направлении, нормированные на максимальные значения соответствующих параметров при точном расположении диполя на центральной оси микрорезонатора

Таблица 1. Результаты расчета влияния наклона стенок, бокового окисления AlGaAs слоев и защитного покрытия ЦВМ на его оптические характеристики; данные приведены для фундаментальной моды LP01 микрорезонатора с диаметром 2.5 мкм на вершине

λ (нм)	**Q**	**F_p**	**DCE NA = 1 (%)**	**DCE NA = 0.42 (%)**	**Комментарии**
913.8	5645	11.2	80.6	74.1	Идеально вертикальные стенки
912.9	5109	13.6	79.6	66.8	Идеально вертикальные стенки + окисленные на 200 нм AlGaAs слои
914.4	4620	8.9	64	61.3	Наклон стенок 3.5°
912.9	4965	12	78.2	63.9	Идеально вертикальные стенки + окисленные на 200 нм AlGaAs слои + защитный полиамид
913.8	5633	10.6	84	78.2	Идеально вертикальные стенки + полиамид сбоку
914.4	4572	8.6	67	63.2	Наклон стенок 3.5° + защитный полиамид

Результаты расчетов для рассмотренных вариантов структур ЦВМ приведены в табл. 1. Микроцилиндр с идеально вертикальными гладкими стенками рассматривался в качестве идеальной структуры ЦВМ, оптические характеристики которой сравнивались с другими вариантами. Для структуры микрорезонатора с вертикальными боковыми стенками и латеральным окислением слоев $Al_{0.9}Ga_{0.1}As$ на глубину 200 нм наблюдается падение фактора эффективности сбора излучения диполя (англ. *Dipole collection efficiency*, DCE) в апертурном угле NA = 0.42 с 74 до 67 %. Одновременно фактор F_p возрастает с 11.2 до 13.6, а длина волны излучения сдвигается на 1 нм в коротковолновую область, что обусловлено уменьшением V_m микрорезонатора. Расчеты, выполненные для структуры с наклоном боковых стенок 3.5°, показывают дальнейшее снижение параметра DCE в апертурном угле NA = 0.42 до уровня 61 %, одновременное снижение F_p до величины 8.9 и сдвиг длины волны излучения на 1 нм в длинноволновую область, что обусловлено увеличением V_m резонатора. При использовании в качестве защитного покрытия оптически прозрачного полиамида с показателем преломления 1.5 для рассмотренных вариантов ЦВМ не происходит существенной деградации основных оптических характеристик. В случае вертикальных стенок и расположения защитного слоя полиамида только со стороны боковых поверхностей микроцилиндра, оптические характеристики ЦВМ оказываются близки к идеальному случаю; при этом можно ожидать их долговременную стабильность из-за отсутствия окисления.

В заключение, в представленной работе выполнены экспериментальные исследования и численное моделирование оптических характеристик структур ЦВМ с AlGaAs РБО и InAs/GaAs КТ. На основе выполненных измерений спектров оптического отражения от планарных микрорезонаторных гетероструктур уточнены температурные зависимости показателей преломления используемых материалов, обеспечивающие необходимую точность моделирования при криогенных температурах. Количественно проанализированы эффекты влияния наклона боковых стенок, частичного окисления AlGaAs слоев и точности расположения КТ относительно центральной оси микрорезонатора на основные оптические характеристики ЦВМ, излучающего на длине волны 920 нм при криогенных температурах. Показано, что для структур ЦВМ с наклоном боковых стенок от 0 (идеально вертикальные стенки) до 3.5° при попадании излучающей КТ в пределы окружности с центром на вертикальной оси микрорезонатора и радиусом ~ 0.4 мкм обеспечивается сохранение значений фактора Парселла и доли излучения диполя, выходящего вверх, на уровне не менее 80 % от их максимальных значений. Также показано, что для создания ИОФ на основе ЦВМ со стабильными характеристиками можно использовать оптически прозрачный полиамид в качестве защитного покрытия боковых стенок без существенного ухудшения основных оптических характеристик.

Экспериментальные исследования Н. А. Малеева, А. Г. Кузьменкова, А. А. Блохина, А. П. Васильева, Ю. А. Гусевой, М. В. Рахлина, А. И. Галимова, Ю. М. Серова, С. И. Трошкова и А. А. Торопова по созданию структур цилиндрических вертикальных микрорезонаторов для источников одиночных фотонов поддержаны госкорпорацией "Росатом" в рамках Дорожной Карты Квантовые Вычисления (контракт # 868-1.3-15/15-2021 от 5.10.2021 и контракт # R2152 от 19.11.2021).

М. А. Бобров и В. М. Устинов выражают благодарность Министерству науки и высшего образования РФ за финансовую поддержку исследований по численному моделированию оптических характеристик цилиндрических вертикальных микрорезонаторов в рамках Программы стратегического академического лидерства "Приоритет-2030" (соглашение 075-15-2021-1333 от 30 сентября 2021 г.).

М. В. Рахлин благодарит Совет по грантам Президента Российской Федерации за поддержку экспериментальных исследований характеристик цилиндрических вертикальных микрорезонаторов.

С. А. Блохин благодарит Российский фонд фундаментальных исследований (РФФИ) совместно с Немецким научно-исследовательским сообществом (ННИО) за финансовую поддержку работ по анализу оптических характеристик цилиндрических микрорезонаторов с квантовыми точками InAs/GaAs в рамках научного проекта РФФИ # 20-52-12006.

1. N. Gisin, G. Ribordy, W. Tittel, and H. Zbinden, Rev. Mod. Phys. **74**, 145 (2002); DOI:10.1103/RevModPhys.74.145.
2. E. Knill, R. Laflamme, and G. J. Milburn, Nature **409**, 46 (2001); DOI:10.1038/35051009.
3. A. K. Verma, F. Bopp, J. J. Finley, B. Jonasa, A. Zrennera, and D. Reutera, Journal of Crystal Growth **15**, 126715 (2022); DOI:10.1016/j.jcrysgro.2022.126715
4. Y. Marzin, J.-M. Gérard, A. Izraël, D. Barrier, and G. Bastard, Phys. Rev. Lett. **73**, 716 (1994); DOI:10.1103/PhysRevLett.73.716.
5. Y.-L. D. Ho, T. Cao, P. S. Ivanov, M. J. Cryan, I. J. Craddock, C. J. Railton, and J. G. Rarity, IEEE J. Quantum Electron. **43**(6), 1558 (2007); DOI:10.1109/JQE.2007.897905.
6. Y. Horikoshi, *General Description of MBE*, Waseda University, Tokyo (2019); DOI:10.1002/9781119354987.CH2.

7. L. Sapienza, M. Davanc, A. Badolato, and K. Srinivasan, Nat. Commun. **6**, 7833 (2015); DOI:10.48550/arXiv.1503.07141.
8. А. И. Галимов, М. В. Рахлин, Г. В. Климко, Ю. М. Задиранов, Ю. А. Гусева, С. И. Трошков, Т. В. Шубина, А. А. Торопов, Письма в ЖЭТФ **113**(4), 248 (2021); DOI:10.31857/S1234567821040054.
9. S. Li, Y. Chen, X. Shang, Y. Yu, J. Yang, J. Huang, X. Su, J. Shen, B. Sun, H. Ni, X. Su, K. Wang, and Z. Niu, Nanoscale Res. Lett. **15**, 145 (2020); DOI:10.1186/s11671-020-03358-1.
10. 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); DOI:10.1103/PhysRevLett.116.020401.
11. J. Talghader and J. S. Smith, Appl. Phys. Lett. **66**(3), 335 (1995); DOI:10.1063/1.114204.
12. A. Taflove and S. H. Hagness, *Computational Electrodynamics: The Finite Difference Time-Domain Method*, Artech House, Boston (2005).
13. W. Yu and R. Mittra, IEEE Microw. Wirel. Compon. Lett. **11**, 25 (2011); DOI:10.1109/7260.905957.
14. E. M. Purcell, Phys. Rev. **69**, 681 (1946); DOI:10.1103/PhysRev.69.674.2.
15. O. Gazzano, S. Michaelis de Vasconcellos, C. Arnold, A. Nowak, E. Galopin, I. Sagnes, L. Lanco, A. Lemaître, and P. Senellart, Nat. Commun. **4**, 1425 (2012); DOI:10.1038/ncomms2434.