

Intégration d'émetteurs de photons uniques dans des matériaux monocouches (2D) avec des structures photoniques/plasmoniques pour une meilleure efficacité d'émission et de détection

De nos jours, le développement de circuits photoniques intégrés a conduit à des avancées significatives dans le domaine de l'information quantique¹. Les principaux éléments constitutifs des circuits photoniques quantiques sont les sources à photons uniques (SPS)^{2,3}; systèmes à deux niveaux qui émettent un seul photon à la fois. L'objectif est d'améliorer l'efficacité d'émission et de détection des sources à photons uniques en les intégrant dans des cristaux photoniques⁴, des microcavités⁵, des résonateurs de lumière⁶, des structures plasmoniques⁷, etc. Les études sur les SPS intégrés incluent les boîtes quantiques de semi-conducteurs III-V^{8,9}, les nanotubes de carbone¹⁰, les centres colorés du diamant¹¹...

Cependant, lorsqu'il s'agit de semi-conducteurs tridimensionnels, ces circuits intégrés sont confrontés à plusieurs défis tels que le positionnement exact des SPS¹², leur faible efficacité d'extraction de lumière¹³ et leur transfert difficile vers le matériau hôte¹⁴. Les sources alternatives d'émetteurs de photons uniques sont les matériaux monocouches (ou bidimensionnel - 2D)¹⁵⁻¹⁹. Ces matériaux se sont révélés avoir des applications prometteuses dans les dispositifs nanoélectroniques, principalement en raison de leur grande taille latérale et de leurs faibles dimensions²⁰⁻²². Le plus courant de ces matériaux est le graphène qui a attiré beaucoup d'attention en raison de sa grande mobilité des porteurs et de sa sensibilité aux charges environnementales^{23,24}. Or, le graphène ne possède pas de bande interdite ou gap, ce qui entrave son application dans les dispositifs de photodétection.

C'est pourquoi des études se sont récemment tournées vers les dichalcogénures de métaux de transition bidimensionnels (TMDC) tels que le diséléniure de tungstène (WSe_2)²⁵, le disulfure de tungstène (WS_2)²⁶, le disulfure de molybdène (MoS_2)²⁷ et le diséléniure de molybdène (MoSe_2)²⁸ en raison de leur bande interdite directe, la grande mobilité des porteurs et leur flexibilité

mécanique qui en font des candidats idéaux pour l'électronique nouvelle génération ^{29,30}. Il a été démontré qu'en réduisant leur épaisseur à une seule monocouche, les semi-conducteurs TMDC présentent un changement de gap d'indirect à direct, modifiant ainsi leurs propriétés optiques ^{27,31,32}. Cela les rend particulièrement adaptés à la fabrication de transistors et de dispositifs optoélectroniques. Il a également été démontré que l'alliage et le dopage de matériaux (tels $\text{Mo}_x\text{W}_{1-x}\text{S}_2$, $\text{MoS}_{2(1-x)}\text{Se}_{2x}$, $\text{Mo}_{(1-x)}\text{W}_{(x)}\text{S}_{(1-y)}\text{Se}_y$, $\text{MoTe}_x\text{Se}_{2-x}$, $\text{Mo}_{1-x}\text{Sn}_x\text{S}_2, \dots$) permet de moduler de manière significative leurs propriétés optiques, électriques et magnétiques, contrôlant ainsi le gap, c'est-à-dire réglant leur photoluminescence, absorption et mobilité ³³⁻³⁶.

La création de SPS dans les matériaux 2D peut être réalisée en effectuant des perturbations de contrainte ponctuelles incontrôlées qui réduisent localement le gap entraînant la recombinaison des excitons ³⁷⁻³⁹, ou en ayant recours au bombardement par les ions d'hélium ⁴⁰. Cependant, peu de recherches ont été menées sur l'intégration des matériaux 2D dans les structures photoniques/plasmoniques. Ces matériaux offrent plus d'avantages par rapport à d'autres types de sources de photons uniques, ce qui permet de surmonter les défis susmentionnés et de faciliter leur intégration dans des dispositifs photoniques/plasmoniques. Premièrement, les matériaux 2D peuvent conduire à une efficacité d'extraction élevée. L'un des problèmes qui se pose lorsqu'on travaille avec des émetteurs de photons uniques dans des semi-conducteurs tridimensionnels est leur faible efficacité d'extraction. Optiquement, les semi-conducteurs ont un indice de réfraction élevé dans la région du visible. Bien qu'il s'agisse d'une propriété utile pour les structures photoniques qui reposent sur la grande différence des indices de réfraction, elle conduit à un petit angle critique pour la réflexion interne totale qui pose des problèmes majeurs dans l'extraction de la photoluminescence des émetteurs. Heureusement, les matériaux 2D n'ont pas ce problème car les émetteurs sont intégrés dans une monocouche qui évite une réflexion interne totale ⁴¹, ce qui facilite la détection de leur émission de photons et la localisation de leur position exacte. Deuxièmement, les matériaux 2D peuvent être facilement intégrés dans des

dispositifs photoniques. C'est également un défi majeur auquel on est confronté lorsqu'on travaille avec d'autres matériaux semi-conducteurs parce que la structure photonique/plasmonique est généralement fabriquée sur le matériau contenant les émetteurs, ou parce qu'il faut utiliser des techniques compliquées telles que le pick-and-place¹⁴, ce qui pourrait conduire à la détérioration de la qualité de l'émission de photons uniques.

Notre objectif dans ce projet est d'étudier l'intégration d'émetteurs de photons uniques dans des matériaux 2D avec des structures photoniques/plasmoniques (cavités, guides d'ondes, nanoantennes) afin d'améliorer l'émission et la détection de photons uniques. Pour réaliser un couplage efficace entre l'émetteur intégré et le dispositif, un processus d'optimisation complet doit être suivi. D'abord, la caractérisation de nouveaux matériaux 2D doit être effectuée afin de choisir une source efficace d'émetteurs de photons uniques. La composition et l'épaisseur des différents alliages, structures hybrides, ainsi que leur effet sur la photoluminescence et l'intensité Raman seront analysés. La génération de photons uniques sera également testée et optimisée à la température ambiante et cryogénique (interféromètre de type Hanbury Brown et Twiss pour les mesures de corrélation de second ordre, et la méthode de comptage de photons uniques corrélés dans le temps (TCSPC) pour effectuer des mesures de durée de vie).

Deuxièmement, la conception de la structure photonique/plasmonique doit être abordée (en utilisant des simulations numériques) pour satisfaire les conditions de couplage avec le matériau 2D choisi. Cela comprend l'optimisation de la forme, des dimensions et du matériau de la structure pour régler sa fréquence de résonance afin d'obtenir un couplage efficace. Enfin, l'intégration du matériau 2D avec la structure photonique/plasmonique sera réalisée. L'effet de ce dispositif intégré sur l'émission des émetteurs doit être étudié, ce qui, à notre avis, conduira à une amélioration de l'efficacité d'émission et de détection des photons uniques. Nous sommes confiants que ce travail aboutira à des résultats prometteurs et ouvrira la voie à l'amélioration de circuits optiques quantiques avancés.

1. O'Brien, J. L., Furusawa, A. & Vučković, J. Photonic quantum technologies. *Nat. Photonics* **3**, 687 (2009).
2. Aharonovich, I., Englund, D. & Toth, M. Solid-state single-photon emitters. *Nat. Photonics* **10**, 631 (2016).
3. Knill, E., Laflamme, R. & Milburn, G. J. A scheme for efficient quantum computation with linear optics. *nature* **409**, 46–52 (2001).
4. Goban, A. *et al.* Atom–light interactions in photonic crystals. *Nat. Commun.* **5**, 3808 (2014).
5. Vahala, K. J. Optical microcavities. *nature* **424**, 839 (2003).
6. Aoki, T. *et al.* Observation of strong coupling between one atom and a monolithic microresonator. *Nature* **443**, 671 (2006).
7. Rahbany, N., Geng, W., Bachelot, R. & Couteau, C. Plasmon–emitter interaction using integrated ring grating–nanoantenna structures. *Nanotechnology* **28**, 185201 (2017).
8. Davanco, M. *et al.* Heterogeneous integration for on-chip quantum photonic circuits with single quantum dot devices. *Nat. Commun.* **8**, 889 (2017).
9. Geng, W. *et al.* Localised excitation of a single photon source by a nanowaveguide. *Sci. Rep.* **6**, 19721 (2016).
10. Khasminskaya, S. *et al.* Fully integrated quantum photonic circuit with an electrically driven light source. *Nat. Photonics* **10**, 727 (2016).
11. Sipahigil, A. *et al.* An integrated diamond nanophotonics platform for quantum-optical networks. *Science* **354**, 847–850 (2016).
12. Faraon, A., Santori, C., Huang, Z., Acosta, V. M. & Beausoleil, R. G. Coupling of nitrogen-vacancy centers to photonic crystal cavities in monocrystalline diamond. *ArXiv Prepr. ArXiv12020806* (2012).
13. Babinec, T. M. *et al.* A diamond nanowire single-photon source. *Nat. Nanotechnol.* **5**, 195–199 (2010).
14. Kim, J.-H. *et al.* Hybrid integration of solid-state quantum emitters on a silicon photonic chip. *Nano Lett.* **17**, 7394–7400 (2017).
15. Srivastava, A. *et al.* Optically active quantum dots in monolayer WSe₂. *Nat. Nanotechnol.* **10**, 491–496 (2015).
16. He, Y.-M. *et al.* Single quantum emitters in monolayer semiconductors. *Nat. Nanotechnol.* **10**, 497–502 (2015).
17. Tonndorf, P. *et al.* Single-photon emission from localized excitons in an atomically thin semiconductor. *Optica* **2**, 347–352 (2015).
18. Koperski, M. *et al.* Single photon emitters in exfoliated WSe₂ structures. *Nat. Nanotechnol.* **10**, 503–506 (2015).
19. Chakraborty, C., Kinnischtzke, L., Goodfellow, K. M., Beams, R. & Vamivakas, A. N. Voltage-controlled quantum light from an atomically thin semiconductor. *Nat. Nanotechnol.* **10**, 507–511 (2015).
20. Geim, A. K. & Grigorieva, I. V. Van der Waals heterostructures. *Nature* **499**, 419–425 (2013).
21. Roldán, R. *et al.* Theory of 2D crystals: graphene and beyond. *Chem. Soc. Rev.* **46**, 4387–4399 (2017).
22. Ajayan, P., Kim, P. & Banerjee, K. Two-dimensional van der Waals materials. *Phys. Today* **69**, 38–44 (2016).
23. Rogers, J. A., Lagally, M. G. & Nuzzo, R. G. Synthesis, assembly and applications of semiconductor nanomembranes. *Nature* **477**, 45–53 (2011).
24. Novoselov, K. S. *et al.* Two-dimensional atomic crystals. *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **102**, 10451–10453 (2005).
25. Xi, J., Zhao, T., Wang, D. & Shuai, Z. Tunable Electronic Properties of Two-Dimensional Transition Metal Dichalcogenide Alloys: A First-Principles Prediction. *J. Phys. Chem. Lett.* **5**, 285–291 (2014).

26. Zhao, W. *et al.* Evolution of Electronic Structure in Atomically Thin Sheets of WS₂ and WSe₂. *ACS Nano* **7**, 791–797 (2013).
27. Mak, K. F., Lee, C., Hone, J., Shan, J. & Heinz, T. F. Atomically Thin MoS₂: A New Direct-Gap Semiconductor. *Phys. Rev. Lett.* **105**, 136805 (2010).
28. Arora, A., Nogajewski, K., Molas, M., Koperski, M. & Potemski, M. Exciton band structure in layered MoSe₂: from a monolayer to the bulk limit. *Nanoscale* **7**, 20769–20775 (2015).
29. Wang, Q. H., Kalantar-Zadeh, K., Kis, A., Coleman, J. N. & Strano, M. S. Electronics and optoelectronics of two-dimensional transition metal dichalcogenides. *Nat. Nanotechnol.* **7**, 699–712 (2012).
30. Xu, M., Liang, T., Shi, M. & Chen, H. Graphene-like two-dimensional materials. *Chem. Rev.* **113**, 3766–3798 (2013).
31. Splendiani, A. *et al.* Emerging Photoluminescence in Monolayer MoS₂. *Nano Lett.* **10**, 1271–1275 (2010).
32. Molina-Sánchez, A. & Wirtz, L. Phonons in single-layer and few-layer MoS₂ and WS₂. *Phys. Rev. B* **84**, 155413 (2011).
33. Liu, H., Antwi, K. A., Chua, S. & Chi, D. Vapor-phase growth and characterization of Mo_{1-x}W_xS₂ (0 ≤ x ≤ 1) atomic layers on 2-inch sapphire substrates. *Nanoscale* **6**, 624–629 (2014).
34. Chen, Y. *et al.* Composition-dependent Raman modes of Mo_{1-x}W_xS₂ monolayer alloys. *Nanoscale* **6**, 2833–2839 (2014).
35. Feng, Q. *et al.* Growth of large-area 2D MoS₂ (1-x)Se_{2x} semiconductor alloys. *Adv. Mater.* **26**, 2648–2653 (2014).
36. Lin, Z. *et al.* Facile synthesis of MoS₂ and Mo_xW_{1-x}S₂ triangular monolayers. *Appl Mater.* **2**, 92514 (2014).
37. Palacios-Berraquero, C. *et al.* Large-scale quantum-emitter arrays in atomically thin semiconductors. *Nat. Commun.* **8**, 1–6 (2017).
38. Kern, J. *et al.* Nanoscale Positioning of Single-Photon Emitters in Atomically Thin WSe₂. *Adv. Mater.* **28**, 7101–7105 (2016).
39. Branny, A., Kumar, S., Proux, R. & Gerardot, B. D. Deterministic strain-induced arrays of quantum emitters in a two-dimensional semiconductor. *Nat. Commun.* **8**, 1–7 (2017).
40. Klein, J. *et al.* Site-selectively generated photon emitters in monolayer MoS₂ via local helium ion irradiation. *Nat. Commun.* **10**, 1–8 (2019).
41. Peyskens, F., Chakraborty, C., Muneeb, M., Thourhout, D. V. & Englund, D. Integration of single photon emitters in 2D layered materials with a silicon nitride photonic chip. *Nat. Commun.* **10**, 1–7 (2019).