

Abschlussbericht – Teil II

Das übergeordnete Ziel des Teilvorhabens TV-UB im Rahmen des EQUAISE-Verbundprojektes war die Modellierung der optischen und quantenoptischen Eigenschaften von Einzelphotonenquellen auf Basis von verspannten zweidimensionalen halbleitenden Übergangsmetall-Dichalkogeniden (engl.: transition metal dichalcogenide, kurz TMDC). Dies sollte in direkter und enger Zusammenarbeit mit den anderen Partnern in EQUAISE und insbesondere mit den Partnern an der Universität Oldenburg (UOL) geschehen. Hierbei standen die Exploration von Verspannungseffekten als Engineering-Methode sowie die Charakterisierung der Quanteneigenschaften der Emission im Fokus.

Das Teilvorhaben ist aufgeteilt in zwei Arbeitspakete mit komplementären Zielsetzungen: In Arbeitspaket 1 (**AP1**) wurden die optischen Eigenschaften von Quantenemittern aus verspannten TMDC-Lagen basierend auf atomistischen *ab initio* Berechnungen der Arbeitsgruppe UOL-Cocchi ausgewertet, um die Einstellbarkeit der Emission durch Verspannungseffekte zu untersuchen und effektive Modellparameter zur Verwendung in Arbeitspaket 2 (**AP2**) zu extrahieren. In **AP2** wiederum sollten mittels quantenoptischer Modelle die Quantenemissionseigenschaften der entsprechenden Emitter charakterisiert werden. In ständiger Wechselwirkung mit den experimentellen Partnern, insbesondere UOL-Schneider, sollten Möglichkeiten zum Engineering der Quantenemitter entwickelt werden, um die Praxisrelevanz zu maximieren. Die Ergebnisse liefern nicht nur direkte Antworten auf die wissenschaftlichen Herausforderungen, sondern ermöglichen die zielgerichtete Weiterentwicklung zukünftiger Einzelphotonenquellen und deren Integration in Photoniksysteme.

AP1: Optische Eigenschaften von Quantenemittern aus atomar dünnen zweidimensionalen verspannten Halbleitermaterialien

Die Berechnung optischer Eigenschaften von Festkörpern erfolgt im Wesentlichen in zwei Schritten; Zunächst werden die elektronischen Ein-Teilchen-Eigenschaften berechnet, also das Energiespektrum quasi-freier Elektronen in Form von Bandstrukturen und zugehörigen Quantenzuständen. Mithilfe dieser Daten werden Wechselwirkungs-Matrixelemente, also Kopplungsstärken, der Licht-Materie-Wechselwirkung sowie der Elektron-Elektron-Coulomb-Wechselwirkung bestimmt. Falls auch Kopplungseffekte durch Gitterschwingungen berücksichtigt werden sollen, so werden zusätzlich Matrixelemente der Elektron-Phonon-Wechselwirkung benötigt. In einem zweiten Schritt werden Bandstrukturen und Wechselwirkungs-Matrixelemente zusammengeführt, um die lineare optische Antwort des Materials zu berechnen.

Im einfachsten Fall werden die Elektronen und Löcher, positiv geladene Elektron-Fehlstellen in den Valenzbändern, näherungsweise als unabhängig betrachtet. Dann entsprechen die Resonanzen der optischen Antwort direkt der Energiedifferenz der Band-zu-Band-Übergänge zwischen Valenz- und Leitungsbändern, während die Oszillatorstärke, das heißt das spektrale Gewicht, der jeweiligen Resonanzen durch die Licht-Materie-Wechselwirkungs-Matrixelemente bestimmt sind. Reale optische Eigenschaften von Halbleitern sind jedoch oft signifikant durch die attraktive Wechselwirkung zwischen

Elektronen und Löchern beeinflusst, welche zu gebundenen Zuständen unterhalb der Frei-Teilchen-Bandlücke führen sowie zu einer Umverteilung der Oszillatorstärke oberhalb der Bandlücke. Dies gilt insbesondere in zweidimensionalen Materialien, welche eine relativ starke Coulomb-Wechselwirkung aufweisen. In diesem realistischeren Fall wechselwirkender Elektronen und Löcher muss zunächst unter Verwendung der Bandstrukturen und Coulomb-Wechselwirkungs-Matrixelemente eine sogenannte Bethe-Salpeter-Gleichung (engl. Bethe-Salpeter equation, BSE) gelöst werden, um Energien und Wellenfunktionen der wechselwirkenden Zwei-Teilchen-Zustände, also insbesondere der Exzitonen, zu bestimmen. Diese Informationen werden dann final mit der Licht-Materie-Wechselwirkung verrechnet, um die optische Antwort zu generieren.

Im Fall von homogenen Halbleiter-Kristallen wird aufgrund der Gitterperiodizität eine relativ geringe Anzahl elektronischer Freiheitsgrade in der Kristall-Einheitszelle benötigt, um die Materialeigenschaften zu charakterisieren. Dann ist es in der Regel möglich, alle oben genannten Schritte konsistent *ab initio* durchzuführen, typischerweise durch Verknüpfung von Dichtefunktionaltheorie (DFT) zur Berechnung der Ein-Teilchen-Eigenschaften und Matrixelemente mit der Lösung einer BSE. Schon die Anwesenheit eines Substrates unterhalb eines zweidimensionalen Kristalles verkompliziert allerdings die Situation, da die Elektronen aus mehreren Lagen des Substratmaterials zusätzlich inkludiert werden müssten, etwa um Abschirmeffekte zu beschreiben. Diese Effekte reduzieren die Stärke der Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern und sind daher essentiell, um zuverlässig Exziton-Bindungsenergien berechnen zu können. In zweidimensionalen Materialien ist die quantitative Beschreibung dieser Effekte bekanntermaßen nichttrivial durch die starke räumliche Inhomogenität der Abschirmung. In derartigen Situationen bietet sich bereits eine gewisse Abweichung von der stringenten *ab initio* Behandlung an, indem die Abschirmung durch ein makroskopisches Modell beschrieben wird. Die besondere Herausforderung in nanostrukturierten zweidimensionalen Materialien, wie verspannten Bläschen, besteht in der Brechung der fundamentalen Gitterperiodizität, was eine Erhöhung der Anzahl der elektronischen Freiheitsgrade um mehrere Größenordnungen mit sich zieht. Eine akkurate Behandlung inklusive der Coulomb-Wechselwirkung auf *ab initio*-Basis ist dann definitiv ausgeschlossen.

Im Fall der in diesem Arbeitspaket behandelten Nanostrukturen bewegt sich die Anzahl der Atome in der Einheitszelle in der Größenordnung einiger 100, so dass Ein-Teilchen-Rechnungen auf DFT-Ebene noch möglich ist, alle weiteren Effekte aber modellhaft, d.h. mit geringerer Genauigkeit beschrieben werden. Die DFT-Rechnungen wurden vom Projektpartner UOL-Cocchi durchgeführt. Gegenstand von **AP1.1** war es, eine Schnittstelle (engl. Interface) zu schaffen, welche eine Verknüpfung der *ab initio* Elektronenstrukturechnungen von UOL-Cocchi mit Halbleiteroptikmethoden für die Berechnung der optischen Eigenschaften der zu untersuchenden Quantenemitter herstellt. Dies geschah, auf Basis früherer Arbeiten, mithilfe der Projektion auf sogenannte Wannier-Orbitale, welche an den einzelnen Atomen der Einheitszelle lokalisierte elektronische Wellenfunktionen darstellen. Die Schnittstelle, im Folgenden *Wannier-Interface* genannt, besteht darin, dass von UOL-Cocchi mittels des frei verfügbaren Paketes *Wannier90* für jede Nanostruktur ein Hamilton-Operator erstellt wurde, welcher die projizierte Information der

jeweiligen DFT-Rechnung enthält. Formal handelt es sich hierbei um einen sogenannten Gitter-Hamilton-Operator, engl. *lattice Hamiltonian*. Dieser Hamiltonian wurde für jede Nanostruktur, zusammen mit den jeweiligen Daten zur Geometrie des Kristallgitters sowie den Atompositionen in der Einheitszelle, in Form numerischer Daten an UB übergeben. Ein wichtiger Punkt hierbei ist, dass bereits bei der Projektion auf die Wannier-Orbitale eine gewisse Auswahl von relevanten Orbitalen getroffen wird, welche die elektronischen Eigenschaften im interessierenden Energiebereich gut beschreiben. Der Lattice Hamiltonian ist also technisch gesehen eine Matrix, welche durch die relevanten Wannier-Orbitale als Basisfunktionen aufgespannt wird. Durch Diagonalisierung des Lattice Hamiltonian kann die elektronische Bandstruktur in Form von Eigenwerten sowie die Zusammensetzung der Bloch-Wellenfunktionen aus Wannier-Orbitalen in Form von Eigenvektoren rekonstruiert werden, wobei die Genauigkeit der DFT-Rechnung im zuvor ausgewählten Energiebereich idealerweise erhalten bleibt. Aus dem Lattice Hamiltonian können darüber hinaus auch, in einer gewissen Näherung, Licht-Materie-Wechselwirkungs-Matrixelemente berechnet werden. Die Implementierung des Wannier-Interface in Form der oben beschriebenen Prozessabläufe sowie in Form von Code stellt den Übergabepunkt **Ü1** dar, welcher erfolgreich erreicht werden konnte.

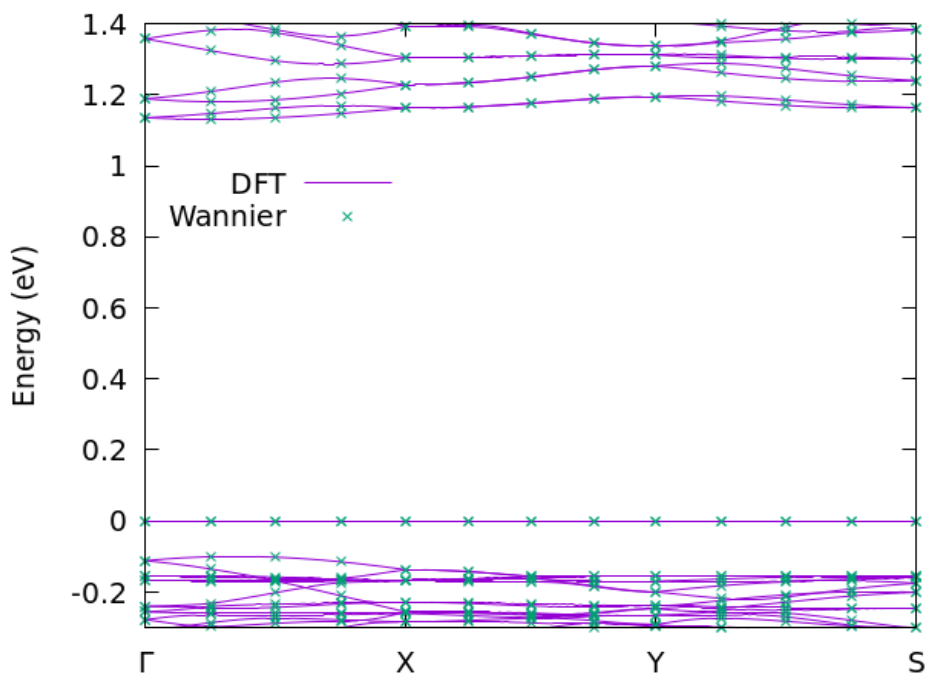


Abb.1: Bandstruktur einer Nanoblase aus WS₂, berechnet mittels Dichtefunktionaltheorie (DFT) sowie aus dem Wannier-Interface (Wannier).

In Abbildung 1 werden beispielhaft Bandstrukturen für eine WS₂-Nanoblase im Energiebereich um die fundamentale Bandlücke direkt aus einer DFT-Rechnung und rekonstruiert aus dem entsprechenden Lattice Hamiltonian miteinander verglichen. Offenbar können die Rohdaten aus der DFT hervorragend reproduziert werden.

In einem nächsten Schritt sollte in **AP1.2**, basierend auf den Ergebnissen von **AP1.1**, ein Modell für die Berechnung optischer Eigenschaften von verspannungsinduzierten Nanostrukturen erstellt werden. Da Bandstrukturen und Licht-Materie-Wechselwirkungs-Matrixelemente bereits direkt aus dem Lattice Hamiltonian generiert werden können, musste hierzu noch eine geeignete Beschreibung der abgeschirmten Coulomb-Wechselwirkung gefunden werden. Da wie oben beschrieben die Anzahl der elektronischen Freiheitsgrade eine voll-mikroskopische Herangehensweise unmöglich macht, musste ein modellhafter Zugang gewählt werden. Analog zu früheren Arbeiten, in denen die dielektrische Abschirmung in Strukturen aus unverspannten zweidimensionalen Lagen und Substraten modelliert wurde, wurde ein makroskopisches Abschirmmodell avisiert. Dies bedeutet, dass die jeweils beteiligten Materialien vereinfacht als Blöcke mit einer effektiven Dicke und einer effektiven dielektrischen Funktion dargestellt wurden. Die dielektrischen Funktionen werden hierbei als frequenzunabhängige, jedoch anisotrope (tensorielle) Größen behandelt, da die dielektrische Abschirmung in TMDCs innerhalb der Ebene und senkrecht zur Ebene stark voneinander abweicht.

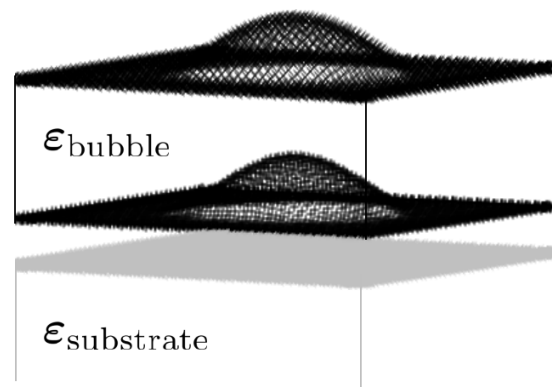


Abb.2: Modell der dielektrischen Abschirmung in einer Struktur aus Nanoblase (engl. bubble) und einem Substrat (engl. substrate). Beide Komponenten werden durch effektive materialspezifische dielektrische Tensoren beschrieben. Zwischen der oberen TMDC-Lage, aus der die Blase geformt wird, und dem Substrat kann im allgemeinen eine schmale (Vakuum-)Lücke entstehen. Schwarze Kreuze symbolisieren die Atompositionen der Nanoblase, wie sie aus der DFT-Rechnung übernommen wurden.

In Abbildung 2 ist zur Illustration eine beispielhafte Struktur aus Nanoblase und Substrat dargestellt. Typischerweise wird das Substrat hierbei aus tieferliegenden Schichten desselben TMDC-Materials gebildet. Das räumliche Modell kann nun zur numerischen Berechnung einer nichtlokalen dielektrischen Abschirmung der Coulomb-Wechselwirkung zwischen Ladungen innerhalb der oberen TMDC-Lage bzw. Blase herangezogen werden. Hierzu wird die sogenannte Poisson-Gleichung numerisch gelöst, welche eine Verbindung zwischen der Ladungsdichteverteilung und dem durch diese hervorgerufenen abgeschirmten elektrostatischen Potential bei vorgegebener Ortsabhängigkeit des dielektrischen Tensors herstellt. Die erzeugende Ladungsdichte ist hierbei durch eine Testladung gegeben, welche mit einer gewissen räumlichen Breite über einen atomaren Gitterplatz der Blasen-Einheitszelle verschmiert ist. Daraus folgt durch die Poisson-Gleichung das elektrostatische Potential an jedem der anderen Gitterplätze. Wird diese Prozedur sukzessive für Testladungen auf allen Gitterplätzen durchgeführt, so resultiert eine

Matrix von abgeschirmten Coulomb-Wechselwirkungs-Potentialen zwischen allen Paaren von Wannier-Orbitalen. Diese Coulomb-Matrix in der Wannier-Darstellung kann mittels der Information aus dem ursprünglichen Lattice Hamiltonian in eine Coulomb-Wechselwirkung zwischen Bloch-Zuständen der relevanten Valenz- und Leitungsbänder übersetzt werden.

Wie oben beschrieben, wurden die Bandstrukturen und Coulomb-Matrixelemente verwendet, um eine BSE für die jeweilige Nanostruktur numerisch zu lösen, um Zwei-Teilchen-Zustände und -Energien zu erhalten. Diese wurden mit den Licht-Materie-Wechselwirkungs-Matrixelementen zu linearen optischen Spektren verrechnet.

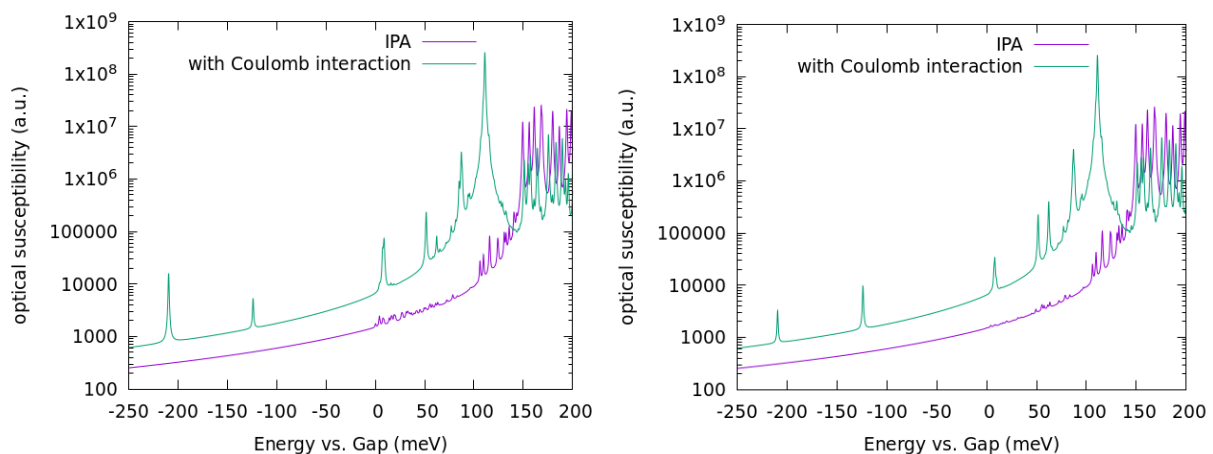


Abb.3: Lineare optische Spektren einer Nanoblase aus WS_2 . Die Energien sind relativ zur fundamentalen Bandlücke dargestellt. Links: lineare Polarisation in x-Richtung, rechts: lineare Polarisation in y-Richtung. Gezeigt werden Rechnungen unter der Annahme unabhängiger Teilchen (engl. independent particle approximation, IPA) sowie inklusive Coulomb-Wechselwirkung (engl. Coulomb interaction) zwischen Elektronen und Löchern.

Beispielhaft werden optische Spektren für eine WS_2 -Nanoblase in Abbildung 3 gezeigt. Man erkennt, dass die attraktive Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern zu gebundenen Zuständen bis zu 200 meV unterhalb der fundamentalen Bandlücke (entspricht Energie 0) führt. Auch oberhalb der Bandlücke entstehen neue Resonanzen, welche eine deutlich höhere Oszillatorstärke aufweisen als die optischen Übergänge quasi-freier Teilchen. Eine leichte Polarisationsabhängigkeit der Oszillatorstärken ist zu erkennen, was auf die Anisotropie der Nanostruktur zurückzuführen ist. Insgesamt stellt sich jedoch heraus, dass der energetisch tiefste optische Übergang vergleichsweise schwach ist. Dieser entspricht einem Übergang zwischen dem dispersionsfreien, also räumlich lokalisierten, Valenzbandzustand und dem tiefsten Leitungsband (siehe Abbildung 1). Dieser Sachverhalt schränkt die Eignung der untersuchten Nanostruktur als Einzelphotonenquelle stark ein, da hier eine effiziente optische Kopplung des energetisch tiefsten Zustandes erforderlich ist. Eine genauere Untersuchung der mikroskopischen Ursachen dieser ineffizienten optischen Kopplung erfolgt derzeit in Kooperation mit UOL-Cocchi. Nichtsdestotrotz konnte erfolgreich die Simulation von Absorptionsspektren auf Basis des Wannier-Interface sowie eines neu entwickelten Abschirmmodelles demonstriert werden. Der Meilenstein **M1** ist somit erreicht worden.

Eine systematische Untersuchung der optischen Eigenschaften von Nanostrukturen abhängig vom Parameter der Verspannung (engl. strain), also die Evaluation der Möglichkeit

des Strain-Tunings von Quantenemittern, sollte in **AP1.3** in Zusammenarbeit mit UOL-Cocchi erfolgen. Aufgrund des vorzeitigen Projektendes konnte diese Untersuchung nicht mehr vollständig abgeschlossen werden, wird jedoch gegenwärtig nach Projektende weiterverfolgt. Hierbei kann die oben beschriebene Prozedur auch auf die zweite Realisierung von Quantenemittern aus verspannten zweidimensionalen Lagen, die sogenannten Nanopillars, ausgeweitet werden. Entsprechende gemeinsame Publikationen hierzu sind derzeit in Arbeit.

Geplant war zudem, in **AP1.4** Wechselwirkungs-Matrixelemente in der Zwei-Teilchen- bzw. Exziton-Basis zu extrahieren, um daraus materialrealistische Parameter für die quantenoptische Modellierung in **AP2** zu bestimmen. Dieser Übergabepunkt **Ü2** wurde komplementär realisiert, da sich im Laufe der wissenschaftlichen Arbeit zusammen mit UOL-Schneider im Rahmen von **AP2** herausgestellt hat, dass eine Extraktion von Parametern durch die Anpassung von Modellen direkt an experimentell zugängliche Daten (wie z.B. Emissionsspektren) effizient und mit hoher Genauigkeit möglich ist. Dieses Vorgehen wird im folgenden Abschnitt detailliert erläutert.

AP2: Beschreibung der Quantenemissionscharakteristik im Rahmen von Dichtematrixmodellen

Eine quantenoptische Beschreibung von Einzelphotonenquellen findet typischerweise im Rahmen von vereinfachten Modellen und nicht direkt *ab initio* bzw. voll mikroskopisch statt. Das bedeutet, dass eine effektive Behandlung des Emitters sowie seiner Umgebung inklusiver einer optischen Kavität unter Berücksichtigung einer möglichst geringen Anzahl von Freiheitsgraden erfolgt. Um die hierfür erforderlichen Modellparameter zu bestimmen, können entweder mikroskopische Daten aus einer *ab initio* Rechnung extrahiert und geeignet verrechnet werden oder es kann ein physikalisch motiviertes Modell direkt an ein entsprechendes Experiment angepasst werden. Wie bereits zuvor erläutert, wurde hier nicht wie geplant erstere, sondern stattdessen letztere Methode verwendet.

Während die Anzahl der Freiheitsgrade bei quantenoptischen Berechnungen modellhaft gering gehalten wird, werden auf der Theorieebene höchstgradig akkurate Dichtematrixmethoden herangezogen. Bei diesen werden die elektronischen Freiheitsgrade sowie die Photonen der angekoppelten Kavitäten voll quantenmechanisch beschrieben, um Zugriff beispielsweise auf die Photonenstatistik und die Kohärenzeigenschaften zu bekommen. Einen signifikanten Einfluss auf die (quanten)optischen Eigenschaften haben typischerweise Gitterschwingungen (Phononen) des umgebenden Halbleitermaterials, deren Einfluss daher in das Modell eingearbeitet werden sollte. Durch die Beschreibung mittels Dichtematrix werden die vollen Korrelationen zwischen allen beteiligten Freiheitsgraden, also Emitter, Kavitätsphotonen und Phononen, berücksichtigt, was die höchstmögliche quantenmechanische Genauigkeit, aber auch die höchstmögliche numerische Komplexität impliziert, da die Größe des Zustandsraumes exponentiell mit der Anzahl der Freiheitsgrade skaliert. Ein wichtiger Aspekt von **AP2** war dementsprechend, Genauigkeit und numerischen Rechenaufwand so gegeneinander abzuwägen, dass ein möglichst breiter Korridor von experimentell relevanten Parametern untersucht werden konnte.

Für den praktischen Einsatz als Quantenlichtquelle sind nicht nur Emissionsrate und Einzel-Photonen-Reinheit, sondern vor allem die Ununterscheidbarkeit (engl. indistinguishability) der Photonen im Sinne einer Hong-Ou-Mandel (HOM)-Interferenz entscheidend. Diese ist für viele Quanteninformationsanwendungen zwingend erforderlich. Eine zentrale Entwicklung während der Bearbeitung des Projektes war, dass eine unerwartet starke Limitierung von Quantenemittern in zweidimensionalen Materialien durch die Wechselwirkung mit Phononen erkannt wurde, welche die Kohärenz des Quantenemitters zerstört (sog. Dephasierung). Hierauf wurde daher ein besonderer Fokus gelegt.

Im Rahmen von **AP2.1** wurde ein Dichtematrixmodell entwickelt und numerisch implementiert, welches Zugang zu quantenoptischen Eigenschaften von Emittern basierend auf zweidimensionalen Materialien ermöglicht. Das Modell ist in Publikation [2] ausführlich dokumentiert. Kurz zusammengefasst enthält es den Quantenemitter als Zwei-Niveau-System mit einer bestimmten radiativen Rekombinationszeit, eine Kavität charakterisiert durch Licht-Materie-Kopplungsstärke und Photonen-Verlustrate, sowie ein Spektrum zweidimensionaler longitudinal akustischer Phononen des umgebenden Halbleitermaterials. Emitter und Kavität unterliegen einer Jaynes-Cummings-Kopplung, während der angeregte Zustand des Emitters per Deformationspotential an die akustischen Phononen gekoppelt ist. Die Bestimmung der Emitter-Phonon-Kopplungsparameter ist ausführlich in Publikation [1] dokumentiert, welche aus der Kooperation mit dem experimentellen Partner UOL-Schneider resultiert. Hierbei wurden Emissionsspektren eines Quantenemitters in WSe_2 bei variierender Verstimmung zwischen Emitter und Kavität mit einem Modell angefitet, welches die charakteristischen Phonon-Seitenbänder abbildet. Maßgeblich war hierbei, dass die Fits erfolgreich für verschiedene Verstimmungen unter der Randbedingung durchgeführt wurden, dass die Kopplung an die Phononen unverändert bleibt. Ein zentrales Ergebnis von [1] war darüber hinaus, dass die Kohärenz von Quantenemittern in zweidimensionalen Materialien gezielt mittels einer offenen Kavität (engl. open cavity) verbessert werden kann. Den Phononen wird, zusätzlich zu ihrer Energiedispersion und den Kopplungsmatrixelemente, eine bestimmte Lebensdauer zugeschrieben, welche durch die mittlere freie Weglänge der Phononen bestimmt ist. Die freie Weglänge wiederum wird durch die Probenqualität und -geometrie festgelegt und ist aus Sicht des Modells ein einstellbarer Parameter. Durch die Implementierung des Modells wurde der Übergabepunkt **Ü3** erreicht.

In **AP2.2** sollte das in **AP2.1** entwickelte quantenoptische Modell ausgewertet werden, um die Emissionsreinheit und das Photon-Antibunching mittels der Photon-Autokorrelationsfunktion $g^{(2)}(0)$ unter Berücksichtigung von Phononeneffekten zu bestimmen. Aus damals aktuellen Messungen von UOL-Schneider ergab sich jedoch, dass für die entsprechenden Quantenemitter ein wesentlich dringenderer Klärungsbedarf bezüglich der Photonen-Ununterscheidbarkeit im Vergleich zur Emissionsreinheit bestand. Daher wurde der Modellierung der Ununterscheidbarkeit in **AP2.4** der Vorrang gegeben. Infolge dessen wurde **TZ1** aus **AP2.2** im Laufe der verkürzten Projektdauer nicht abgeschlossen.

Das in **AP2.1** entwickelte quantenoptische Modell wurde in **AP2.3** genutzt, um unter Verwendung der von Neumann-Lindblad-Gleichung sowie der Quantenregressionsformel

Bewegungsgleichungen für die Dynamik von zweizeitigen quantenmechanischen Erwartungswerten aufzustellen, welche die HOM-Interferenz quantifizieren. Die Prozedur ist im Detail in Publikation [2] beschrieben. Die Bewegungsgleichungen wurden außerdem numerisch implementiert und getestet.

Die konkrete Auswertung des quantenoptischen Modells zur Quantifizierung der HOM-Ununterscheidbarkeit abhängig von verschiedenen Parametern war Gegenstand von **AP2.4**. Die Berechnungen erfolgten für den WSe₂-basierten Quantenemitter aus Publikation [1] auf Grundlage der dort extrahierten Elektron-Phonon-Kopplungsparameter. Die zusätzlich benötigte radiative Rekombinationszeit des Emitters wurde ebenfalls experimentellen Daten entnommen. Die verwendeten Methoden sowie die Resultate sind in Publikation [2] dokumentiert. Hierbei wurde die HOM-Ununterscheidbarkeit in Abhängigkeit von der Licht-Materie-Kopplungsstärke, von der Kavitäts-Verlustrate sowie von der Lebensdauer der Phononen studiert. Als zentrales Ergebnis wurde gefunden, dass die HOM-Ununterscheidbarkeit in zweidimensionalen Quantenemittern allgemein reduziert ist gegenüber in Volumenmaterial eingebetteten Emittlern, was in der vergleichsweise effizienteren Elektron-Phonon-Kopplungseffizienz begründet ist. Die Kopplungseffizienz wiederum kann auf die fundamentale phononische Zustandsdichte (engl. density-of-states, DOS) zurückgeführt werden. Diese führt dazu, dass in zweidimensionalen Materialien das Phonon-Seitenband bei kleinen Phononfrequenzen wesentlich stärker wird und so spektral mit der zentralen Emissionslinie des Emitters überlappt. Zudem hat die endliche Lebensdauer der Phononen, also ihr Zerfall, einen nachteiligen Effekt auf die Photon-Ununterscheidbarkeit durch die Verursachung von sogenanntem „pure dephasing“. Da die Phonon-Lebensdauer bei niedrigen Temperaturen von der mittleren freien Weglänge der Phononen in der jeweiligen Probe bzw. dem Bauteil bestimmt wird, also vom Abstand des Emitters zur Oberfläche oder eventuellen Gitterfehlern, haben Größe und Qualität des Bauteils einen indirekten Einfluss auf die HOM-Ununterscheidbarkeit. Eine Verbesserung der HOM-Ununterscheidbarkeit ist außerdem möglich durch Verstärkung der Licht-Materie-Kopplung mittels einer Kavität, da dies die radiative Rekombination gegenüber der Phonon-induzierten Dephasierung beschleunigt. Allerdings kann ohne weitere Maßnahmen nicht mit HOM-Ununterscheidbarkeiten von höher als 0,3 bis 0,4 gerechnet werden. Einen möglichen Ausweg könnte in Zukunft das gezielte Engineering der phononischen Eigenschaften sein, etwa durch die Konstruktion geeigneter Übergitter, um die Elektron-Phonon-Kopplungseffizienz bei kleinen Frequenzen zu reduzieren. Wenngleich **AP2** also das eher negative Ergebnis liefert, dass zweidimensionale Quantenemitter intrinsisch durch Phononen limitiert sind, so ist dies doch eine essentielle Erkenntnis für das gesamte Verbundprojekt. Es ist anzumerken, dass in **AP2** nicht die Nanoblasen aus **AP1** betrachtet wurden, sondern bedingt durch die Entwicklungen bei den experimentellen Partnern eine andere Art von spannungsinduziertem Quantenemitter. Es wurden allerdings allgemeine Vorhersagen abgeleitet, die so auch für die zuvor betrachteten Nanoblasen als Emitter gelten. Das Teilziel **TZ2** wurde hiermit erreicht. Die Publikationen [1] und [2] bereiten den Weg für Analyse von Nanoblasen-Emittern mit denselben Methoden. Eine Publikation zu Emissionsspektren von WS₂-Nanoblasen gemeinsam mit UOL-Schneider ist in Arbeit.

Fazit

Insgesamt bewerten wir die Projektarbeit als außerordentlich erfolgreich, denn sowohl die angestrebte Modellentwicklung, als auch die Auswertung mit direktem Bezug zu den Arbeiten der experimentellen Partner konnte erfolgreich durchgeführt werden. Es sind fünf Publikationen aus dem Teilprojekt veröffentlicht worden, und drei weitere werden noch folgen. Die gewonnenen Einsichten, insbesondere Publikation [2], sind richtungsweisend, indem eine fundamentale Limitierung für zweidimensionale Quantenemitter aufgezeigt werden konnte, mit der sich die Forschung jetzt weiter beschäftigen muss. Auch im internationalen Vergleich hat EQUAISE und dieses Teilprojekt Ergebnisse auf dem höchsten Niveau beitragen können und vertritt den aktuellen Stand der Wissenschaft. Die Ergebnisse wurden auf mehreren internationalen Kongressen disseminiert.

Verwendung der im Projekt angeschafften Gegenstände > 800€

Im Projekt wurde die beantragte Workstation (6k€) angeschafft und für die Durchführung der numerischen Berechnung genutzt. Die damit erarbeiteten Ergebnisse sind eingeflossen in die Publikationen [1,2,3,6,7,8].

Ergebnisverwertung

Die im Rahmen des Projekts entwickelten Methoden und Modelle stehen der weiteren Forschungsarbeit zur Verfügung, nicht nur innerhalb von EQUAISE, sondern durch die Veröffentlichung auch der gesamten Forschungslandschaft. Ebenso wurde die Schnittstelle zu der experimentellen Umsetzung etabliert und erfolgreich demonstriert, so dass auf die Arbeiten in Publikation [1] weitere auf der gleichen Basis der Parameterfestsetzung folgen können. Die innerhalb des Projektes gewonnene Erkenntnis über fundamentale Limitierungen von in zweidimensionale Materialien eingebetteten Quantenemittern durch Elektron-Phonon-Wechselwirkung wird das Feld des Phonon-Engineerings weiter in den Blickpunkt rücken.

Die in **AP1** etablierten Methoden zur Verknüpfung von DFT, Wannier-Interface, Abschirmmodell und Halbleiter-Optik stellen eine wichtige Säule in der materialrealistischen Beschreibung von Halbleiterelementen für die Quantentechnologien dar. Darüber hinaus steht über die Reproduktion der Emissionsspektren zur Parameterfindung für Dichtematrixmodelle inklusive Phononen zukünftig eine weitere Methode zur Verfügung, um vergleichbare Problemstellungen mit verschiedensten Quantenemittern untersuchen zu können.

Bibliographie der im Teilprojekt veröffentlichten Ergebnisse

- [1] Victor N. Mitryakhin, et al. "Engineering the Impact of Phonon Dephasing on the Coherence of a WSe₂ Single-Photon Source via Cavity Quantum Electrodynamics" *Physical Review Letters* **132**, 206903 (2024).
- [2] Alexander Steinhoff, et al. "Impact of phonon lifetimes on the single-photon indistinguishability in quantum emitters based on 2D materials" *Physical Review B* **111**, 195431 (2025).
- [3] Bo Han, et al. "In situ spontaneous emission control of MoSe₂-WSe₂ interlayer excitons with high quantum yield" *Photonics Research* **13**, 210 (2025).
- [4] Frederik Lohof, et al. "Confined-state physics and signs of fermionization of moiré excitons in WSe₂/MoSe₂ heterobilayers" *2D Materials* **10**, 034001 (2023).
- [5] Joanna Kutrowska-Girzycka, et al. "Exploring the effect of dielectric screening on neutral and charged-exciton properties in monolayer and bilayer MoTe₂" *Applied Physics Review* **9**, 041410 (2022).
- [6] Publikation mit UOL-Cocchi zu elektronischen Eigenschaften von Nano-Blasen, draft fertig
- [7] geplante Publikation mit UOL-Cocchi zu optischen Eigenschaften und Strain-Tuning von Nano-Blasen
- [8] geplante Publikation mit UOL-Schneider zu Spektren von Nanoblasen