

Abschlussbericht – Teil I

Zukünftige Quantenanwendungen erfordern nicht-klassische Lichtquellen, die bei Bedarf ununterscheidbare Photonen mit hoher Effizienz und Reinheit emittieren. Eine zwingende Voraussetzung für industrielle Anwendungen ist, dass diese Quellen mit einfachen und kostengünstigen Methoden hergestellt werden können und gleichzeitig mit aktuellen photonischen Integrationstechnologien kompatibel sind. Mit EQUAISE wurde ein neuartiger Ansatz zur Herstellung von Arrays aus nahezu idealen Einzelphotonenquellen verfolgt, bei dem die Quellen ausgehend von zweidimensionalen halbleitenden Übergangsmetall-Dichalkogeniden (engl.: transition metal dichalcogenide, kurz TMDC) realisiert werden. Die für die Emission einzelner Photonen erforderlichen lokalisierten elektronischen Zustände sollten hierbei durch Verspannung der TMDC-Lagen, etwa in Form sogenannter Nano-Blasen, erzeugt werden.

Das übergeordnete Ziel des Teilvorhabens TV-UB war die Modellierung der optischen und quantenoptischen Eigenschaften der Einzelphotonenquellen in direkter und enger Zusammenarbeit mit den anderen Partnern in EQUAISE und insbesondere mit den Partnern an der Universität Oldenburg (UOL). Hierbei standen die Exploration von Verspannungseffekten als Engineering-Methode sowie die Charakterisierung der Quanteneigenschaften der Emission im Fokus.

Arbeitspaket 1 (AP1): Optische Eigenschaften von Quantenemittern aus atomar dünnen zweidimensionalen verspannten Halbleitermaterialien

Die optische Antwort ist bestimmt durch die Wechselwirkung von Elektronen und Löchern in der Bandstruktur des Halbleitermaterials und stellt somit eine Zwei-Teilchen-Größe dar. Die Berechnung der optischen Eigenschaften setzt also auf die Ergebnisse von Elektronenstrukturrechnungen auf und muss Vielteilchen-Wechselwirkungsprozesse berücksichtigen. Erste Ansätze für eine materialrealistische Beschreibung der optischen Eigenschaften sind an der Universität Bremen entstanden, indem eine Schnittstelle zwischen ab-initio-Elektronenstrukturrechnung und halbleiteroptischen Methoden entwickelt wurde. Auf dieser Expertise aufbauend, wurde innerhalb von **AP1** eine Schnittstelle zwischen der ab-initio-Modellierung beim Theoriepartner UOL (Arbeitsgruppe UOL-Cocchi) und dem Teilvorhaben TV-UB entwickelt und implementiert. Die spezielle Herausforderung bestand darin, dass, im Gegensatz zu regulären Festkörperkristallen, bei der Beschreibung von Nanostrukturen die Möglichkeit entfällt, das System als homogen und unendlich weit ausgedehnt zu betrachten, so dass die Modellierung eine große Anzahl von Atomen berücksichtigen muss. Es gelang im Rahmen der Kooperation, die ab-initio-Elektronenstrukturrechnungen der Arbeitsgruppe UOL-Cocchi zu verspannten Nano-Blasen mit Halbleiteroptikmethoden für die Berechnung der optischen Eigenschaften zu verknüpfen. Darüber hinaus wurde zur Berücksichtigung der Elektron-Loch-Coulombwechselwirkung ein ortsaufgelöstes Abschirmmodell für die entsprechenden Nano-Blasen entwickelt. Beide Komponenten zusammen wurden zur Berechnung von simulierten Absorptionsspektren für ein Beispielsystem genutzt, um die prinzipielle Funktionsweise der entwickelten Methode zu demonstrieren (Meilenstein **M1**). Auf der Grundlage dieser erarbeiteten Schnittstelle entsteht jetzt eine Publikationen zur Charakterisierung der Emissionseigenschaften von Nanoblasen-

Emittern. Die nicht komplette Fertigstellung der Publikation mit der Partnergruppe Cocchi ist der vorzeitigen Beendigung des Teilvorhabens Bremen zum 31.03.2025 geschuldet.

Arbeitspaket 2 (AP2): Beschreibung der Quantenemissionscharakteristik im Rahmen von Dichtematrixmodellen

Zur quantenoptischen Beschreibung von Einzelphotonenemittern werden typischerweise Dichtematrixmethoden herangezogen, bei denen die wenigen elektronischen Freiheitsgrade sowie die Photonen der angekoppelten Kavitäten voll quantenmechanisch beschrieben werden, um Zugriff beispielsweise auf die Photonenstatistik und die Kohärenzeigenschaften zu bekommen. Einen signifikanten Einfluss auf die (quanten)optischen Eigenschaften haben typischerweise Gitterschwingungen (Phononen), deren Einfluss daher in das Modell eingearbeitet werden sollte. Hierzu können die notwendigen Modell- und Kopplungsparameter entweder mit ab-initio-Methoden berechnet oder aus experimentellen Ergebnissen extrahiert werden.

In **AP2** wurde ein quantenoptisches Dichtematrixmodell zur Charakterisierung der Emissionseigenschaften von Einzelphotonenemittern entwickelt. Darüber hinaus wurde ein Modell zur Beschreibung der Wechselwirkung von Elektron-Loch-Paaren in einem Quantenemitter mit den Phononen des umgebenden zweidimensionalen TMDC entwickelt und in Kooperation mit den experimentellen Partnern in Oldenburg (Arbeitsgruppe UOL-Schneider) zur Anwendung gebracht. Für Quantenemitter in Monolagen-WSe₂, welches eines der relevanten Materialsysteme darstellt, wurden Überlegungen zum Cavity-Steering des Einflusses von Phonon-induzierter Dephasierung angestellt [1].

Das Modell für die Elektron-Phonon-Wechselwirkung wurde daraufhin in das quantenoptische Dichtematrixmodell eingearbeitet, um direkt den Einfluss von Phonon-induzierter Dephasierung auf die anwendungsrelevante Photonen-Ununterscheidbarkeit (nach Hong-Ou-Mandel) in TMDC-basierten Quantenemittern zu quantifizieren [2]. Eine wichtige gewonnene Einsicht unserer Arbeiten in EQUAISE ist, dass die effiziente Kopplung an zweidimensionale Phononen eine fundamentale Limitierung darstellt. Diese Limitierung kann zwar durch Engineering der Licht-Materie-Kopplung mittels einer Kavität in gewissem Maße abgemildert werden, allerdings sind dennoch in TMDC-basierten Emittern bis auf weiteres deutlich geringere Photonen-Ununterscheidbarkeiten zu erwarten als etwa in etablierten Material-Plattformen wie Halbleiter-Quantenpunkten.

Literatur

[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).