

Nanocristaux de pérovskite en cavité pour l'émission de photons uniques indiscernables

Contexte

La réalisation de sources efficaces, intégrées et accessibles de photons uniques et indiscernables pouvant servir de bits quantiques est essentielle pour le développement des applications en information et communication quantiques [Aha16]. Parmi les sources connues de photons uniques, les plus prometteuses du point de vue de leur efficacité et de leur intégrabilité sont les boîtes quantiques de semiconducteurs fabriquées par épitaxie par jet moléculaire [Sen17]. Néanmoins, ces systèmes présentent encore des limitations puisqu'ils ne fonctionnent qu'à très basse température et requièrent des techniques de fabrication compliquées. Il reste donc crucial d'étudier les propriétés optiques de nano-émetteurs quantiques accessibles et peu coûteux qui pourraient être exploités pour le développement de sources de photons uniques efficaces jusqu'à température ambiante.

Depuis leur première synthèse en 2015 [Pro15], les nanocristaux de pérovskite (pNCs) ont attiré l'attention de nombreuses équipes de recherche internationales du fait de leurs excellentes propriétés optiques [Sut16]. Ces nano-émetteurs présentent une luminescence à température ambiante avec un clignotement réduit, et des rendements quantiques proches de 1 [Rai16, Hu16]. L'accessibilité et la facilité de fabrication à faibles coûts par voie chimique rendent cette nouvelle classe de nanocristaux très attractive. De plus, leur longueur d'onde d'émission est accordable de l'UV au proche infrarouge grâce au contrôle de leur composition et de leur taille, ce qui offre une large variété de pNCs suivant les applications visées. Ces nano-émetteurs sont majoritairement étudiés sous forme d'ensembles pour des applications en optoélectronique (LEDs, lasers, détecteurs). Néanmoins, les premières études sur pNCs individuels ont rapidement montré qu'ils pouvaient émettre des photons uniques jusqu'à température ambiante [Par15], avec potentiellement les propriétés requises pour être indiscernables les uns des autres à basse température [Utz19, Lv19]. Ces résultats qui ont été obtenus seulement 4 ans après la première synthèse de pNCs et les dernières études sur les degrés de pureté des photons uniques à température ambiante [Zhu22] montrent que les pNCs pourraient jouer un rôle dans le développement de sources de photons uniques pour des applications en nanophotonique quantique.

Il est maintenant essentiel de parvenir à une augmentation drastique de l'émission et de la collection des photons uniques émis par les pNCs. Le couplage de nano-émetteurs individuels à des structures photoniques bien optimisées permet en effet de contrôler, d'augmenter et de rediriger l'émission par ingénierie de l'interaction lumière-matière. En particulier, il est possible d'exploiter des effets d'électrodynamique quantique en cavité (cQED), en utilisant des microcavités optiques de grande finesse qui confinent le champ électromagnétique sur de très faibles volumes autour du nano-émetteur quantique (de l'ordre de λ^3). Si ces conditions sont remplies, en régime de couplage faible lumière-matière, l'effet Purcell induit alors une accélération du taux d'émission spontanée du nano-émetteur dans le mode de cavité et par conséquent une augmentation de la brillance de la source de photons uniques. Jusqu'à présent, les pNCs ont encore très peu été intégrés dans des structures photoniques. De tels nanocristaux synthétisés en solution par voies chimiques puis dispersés aléatoirement à la surface d'un substrat sont en effet difficilement intégrables dans des cavités monolithiques et non reconfigurables comme celles utilisées pour les boîtes quantiques épitaxiées. Le couplage d'un pNC unique à une fibre optique étirée [Pier20] et la redirection de l'émission d'un pNC couplé à une microcavité quasi-planaire [Hua22] ont été récemment démontrés, ainsi que l'accélération de l'émission spontanée d'un ensemble de pNCs couplés à une structure plasmonique [Li19]. Cependant, l'augmentation par effet Purcell du taux d'émission spontanée de pNCs individuels couplés à des structures photoniques n'a encore jamais été obtenue.

Objectif et approche scientifiques

L'objectif de ce projet de recherche doctorale est donc d'étudier les propriétés optiques fondamentales de pNCs uniques couplés à des structures photoniques spécialement optimisées pour

des émetteurs synthétisés par voies chimiques.

La synthèse des pNCs est maîtrisée au LPENS et les échantillons obtenus sont des nanocubes de CsPbBr_3 de 8 nm de côté [Ama23]. Les structures photoniques choisies sont les microcavités fibrées qui ont été développées au LPENS initialement pour les nanotubes de carbone [Jea16], en collaboration avec J. Reichel du LKB. Grâce à cette expertise, nous avons conçu une microcavité fibrée adaptée aux longueurs d'onde d'émission des pNCs (500 nm pour CsPbBr_3). Cette microcavité fibrée est constituée d'un miroir plan sur lequel sont déposés les pNCs et d'un miroir déposé à l'extrémité d'une fibre optique qui est mobile dans les 3 directions de l'espace. Une telle géométrie ouverte apporte une grande flexibilité puisque la cavité peut être fermée au-dessus de n'importe quel pNC individuel, tout en le plaçant au centre de la cavité (accord spatial) et en ajustant la longueur de cavité (accord spectral). De plus, un soin particulier a été pris pour développer une plateforme expérimentale où un même pNC peut être entièrement étudié d'abord en espace libre puis en cavité, tous les autres paramètres restant inchangés par ailleurs (environnement, température, excitation), ce qui est essentiel pour caractériser de manière fiable les effets de cQED escomptés. La microcavité fibrée récemment développée présente une finesse $\mathcal{F} = 3000$ pour l'ensemble de la gamme d'émission des pNCs (de 470 nm à 550 nm), et l'émission d'un seul pNC dans le mode de cavité a déjà été observée. Ces résultats préliminaires sont très encourageants et dans ces conditions, un facteur de Purcell de plusieurs dizaines peut être envisagé.

A l'échelle du projet proposé, le régime de couplage faible d'un pNC individuel à un mode électromagnétique de la microcavité fibrée devrait donc être atteint à basse température pendant la **1^{ère} année de thèse**. Ce régime sera mis en évidence notamment en mesurant le temps de vie radiatif des excitons d'un même pNC en espace libre puis en cavité. Une diminution de ce temps traduisant une accélération de l'émission spontanée par effet Purcell devrait être observé en cavité. Des études plus approfondies des propriétés optiques de pNCs en cavité seront alors possibles à partir de la **2^{ème} année de thèse**. Il s'agira de développer des expériences sous excitation strictement résonnante où la création de charges dans l'environnement proche des pNCs (sur des pièges de surface ou dans la matrice de polymère environnante) sera ainsi limitée. L'augmentation du temps de cohérence de l'exciton qui en résultera associée à l'accélération du temps de vie radiatif par effet Purcell pourrait ainsi conduire à l'émission de photons uniques indiscernables. Au cours de la **3^{ème} année de thèse**, des expériences d'interférométrie à 2 photons de type Hong-Ou-Mandel (HOM) seront alors utilisées pour mesurer les degrés d'indiscernabilité des photons émis.

[Aha16] Aharonovich et al., Nat. Photon. 10, 631 (2016) ; [Ama23] Amara et al., arXiv :2301.09571 (2023) ; [Hu16] Hu et al., Nano Lett. 16, 6425 (2016) ; [Hua22] Huang et al., Nano Lett. 22, 8274 (2022) ; [Jea16] Jeantet et al., PRL 116, 247402 (2016) ; [Li19] Li et al., J. Phys. Chem. C 41, 25359 (2019) ; [Lv19] Lv et al., Nano Lett. 19, 4442 (2019) ; [Par15] Park et al., ACS Nano 10, 10386 (2015) ; [Pier20] Pierini et al., ACS Photonics 7, 2265 (2020) ; [Pro15] Protesescu et al., Nano Lett. 15, 3692 (2015) ; [Rai16] Rainò et al., ACS Nano 10, 2485 (2016) ; [Sen17] Senellart-Mardon et al., Nat. Nanotech. 12, 1026 (2017) ; [Sut16] B. R. Sutherland and E. H. Sargent, Nat. Photon. 10, 295 (2016) ; [Utz19] Utzat et al., Science 363, 1068 (2019) ; [Zhu22] Zhu et al., Nano Lett. 22, 3751 (2022).

Publications en lien avec le projet

- [1] *Spectral fingerprint of quantum confinement in single CsPbBr_3 nanocrystals*, M.-R. Amara, Z. Said, C. Huo, A. Pierret, C. Voisin, W. Gao, Q. Xiong, C. Diederichs, arXiv :2301.09571 (2023).
- [2] *Optical spectroscopy of single colloidal CsPbBr_3 perovskite nanoplatelets*, C. Huo, C. F. Fong, M.-R. Amara, C. Bo, H. Zhang, L. Guo, H. Li, W. Huang, C. Diederichs, Q. Xiong, Nano Lett. 5, 3673 (2020).
- [3] *Measuring the photon coalescence time window in the continuous-wave regime for resonantly driven semiconductor quantum dots*, R. Proux, M. Maragkou, E. Baudin, C. Voisin, Ph. Roussignol, C. Diederichs, PRL 114, 067401 (2015).
- [4] *Optically gated resonant emission of single quantum dots*, H. S. Nguyen, G. Sallen, C. Voisin, Ph. Roussignol, C. Diederichs, G. Cassabois, PRL 108, 057401 (2012).
- [5] *Ultra-coherent single photon source*, H. S. Nguyen, G. Sallen, C. Voisin, Ph. Roussignol, C. Diederichs, G. Cassabois, APL 99, 261904 (2011).