介电超表面中砷化镓量子点同时产生反聚束与超聚束光子

Sanghyeok Park,[1,2] Oleg Mitrofanov,[3] Kusal M. Abeywickrama,[4] Samuel Prescott,[3] Jaeyeon Yu,[1,2] StephanieC Malek,[1,2] Hyunseung Jung,[1,2] Emma Renteria,[5] Sadhvikas Addamane,[1,2] Alisa Javadi,[4] Igal Brener,[1,2,*] 以及 Prasad P Iyer[1,2,*]

[1]桑迪亚国家实验室，美国新墨西哥州阿尔伯克基 87185[2]集成纳米技术中心，桑迪亚国家实验室，美国新墨西哥州阿尔伯克基 87185[3]伦敦大学学院，电子与电气工程，英国伦敦 WC1E 7JE[4]电气与计算机工程系，俄克拉荷马大学，美国俄克拉荷马州诺曼 73019[5]高技术材料中心，新墨西哥大学，美国新墨西哥州阿尔伯克基 87185*ibrener@sandia.gov，ppadma@sandia.gov

半导体量子点具有丰富的激子复合体能级，包括发射反聚束单光子的中性激子，以及能够通过级联发射产生超聚束光子的带电激子复合体。若能从单个发射体中实现这两种发射模式，将为新型量子协议开辟途径，包括先进的量子成像。然而在实际中，带电激子复合体的发射本质上较弱，亮度通常比中性激子低几个数量级，因此难以实现同时双模式运行。在此，我们通过将量子点嵌入介电米氏共振超表面，克服了这一限制；该超表面可使单个砷化镓量子点的中性和带电激子跃迁均实现数量级的光致发光增强。在相同的非共振泵浦条件下，中性激子的发射呈现反聚束特性（$g(2)(0) < 0.5$），而带正电激子复合体的发射呈现超聚束特性（$g(2)(0) > 3.5$），且二者计数率相近（~12 kHz）。至关重要的是，只有当带电激子发射与米氏共振在光谱上重叠时才会出现超聚束，而在未图案化平板中则不会出现，这表明光子学工程对于获取这些微弱的量子光态至关重要。这些结果展示了一种可扩展且对位置容差较高的平台，可用于充分利用固态发射体的完整激子结构。

引言

随着先进量子光源的发展，量子通信、传感和计算等量子信息技术迅速进步。在这些新兴技术中，利用非经典光（如单光子、纠缠光子和压缩光子）的量子成像已展现出突破经典分辨率、灵敏度和信息提取极限的能力 [1-5]。鬼成像 [6], 遥感 [7], 和亚散粒噪声成像 [8] 等技术利用定制的光子统计特性，已展现出以更少光子、更低噪声和更高对比度重建图像的能力。近期有研究指出，在单一协议中同时使用反聚束和超聚束光子，或可开启量子成像的新模式，例如偏振敏感成像和边缘增强成像 [9]。 更广泛地说，能够在相同泵浦条件下产生不同光子统计特性的量子光源，可为探索量子通信、传感和信息处理的替代策略提供灵活平台。

外延生长的半导体量子点（QDs）是明亮且可扩展的固态量子光源，可承载多个具有不同量子光学特征的激子态[10–13]。孤立激子（中性 X0 或带电 X^+/X^-）发射反聚束光子[14, 15], , 而双激子（XX0、XX^+/XX^-）可通过级联发射过程产生超聚束光子[16, 17]。这种内在的多样性使量子点成为多用途量子光源的理想候选者。然而，要同时实现这两种发射模式仍然困难。在未施加栅极偏压的量子点中，带电激子复合体通常表现出较弱的光致发光（PL）强度，往往比中性激子低几个数量级[18, 19]。面临的挑战是，在不影响中性激子性能的前提下增强微弱的带电激子发射，同时还要兼顾外延生长量子点固有的光谱和空间非均匀性。

通过光子环境工程，可选择性增强或抑制激子发射，并高效地将光耦合到自由空间中[20-27]。支持相对宽带米氏共振的介电超表面提供了一种尤其易于扩展的解决方案。与需要精确光谱调谐和纳米级发射体定位的高品质因数腔不同，米氏共振具有适中的品质因数和数十纳米的带宽，因此能够同时增强多个光谱上分离的跃迁[26, 28-30]。超表面均匀的空间模式分布使增强效果不易受量子点位置和尺寸变化的影响，无需进行生长后筛选或调谐[31, 32]。超表面已用于增强外延和胶体量子点的单光子发射，并实现稳定的空间与光谱发射调控 [19, 29, 33]。然而，大多数研究仅针对单一种类的激子。借助其宽带特性和稳健性，米氏超表面能够增强发射

同时增强激子复合体多重态中的发射，且不受量子点位置和尺寸的影响，从而开辟了一种利用完整激子结构实现多功能量子光生成的新途径。

在此，我们展示了利用这种超表面平台，从单个局部液滴刻蚀砷化镓量子点同时产生反聚束光和超聚束光。该平台使中性激子和带电激子复合体的光致发光均增强了一个数量级，从而能够利用通常过弱而无法使用的发射机制。通过磁光致发光光谱法，我们确认中性激子（X0）和正带电复合物分别是反聚束发射和超聚束发射的来源。光子关联测量表明，只有当带电激子发射在光谱上与超表面的电偶极子和磁偶极共振重叠时，才会出现超聚束特征，这证实了光子学工程对于实现这些微弱跃迁至关重要。在相同的非共振泵浦条件下，反聚束发射和超聚束发射均实现了相当的光子计数率（~10-12 kHz），证明了这种双模式量子光源具有实际应用可行性。这些结果确立了一种可扩展且与位置无关的方法，可充分利用半导体量子点的完整激子态流形。

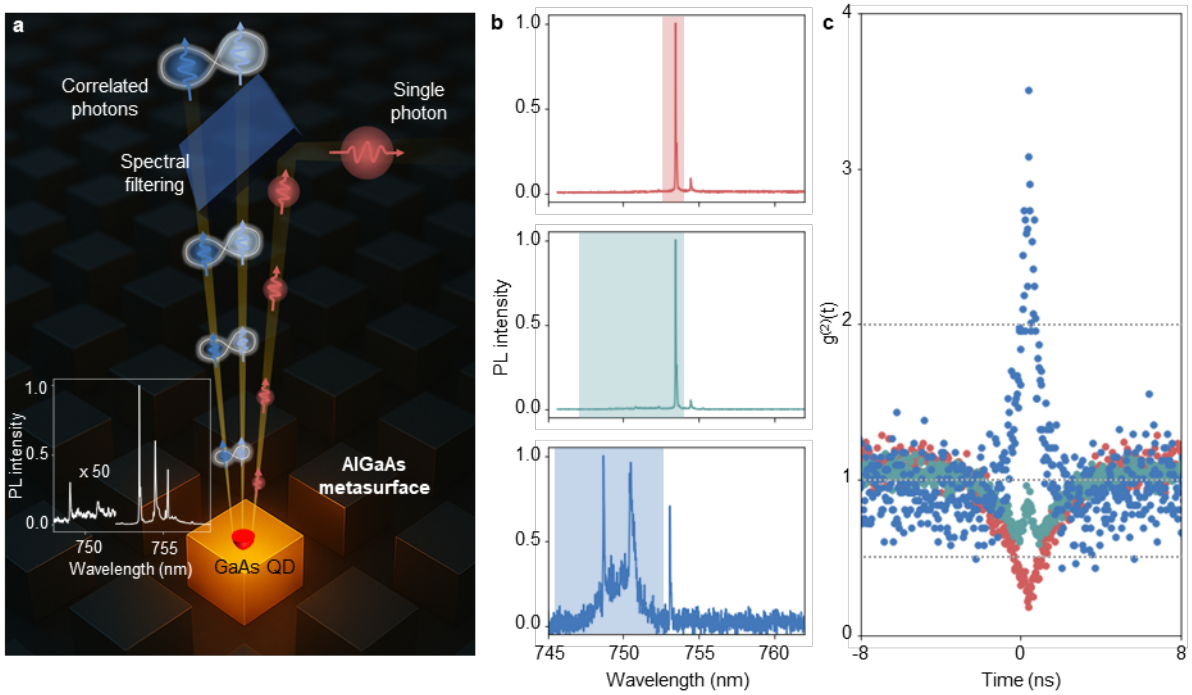


图 1 | **从砷化镓同时产生反聚束光子态与超聚束光子态**

超表面中的量子点。（a）嵌入砷化铝镓超表面中的砷化镓量子点（QD）示意图。经过结构设计的光子环境可使其发射单光子（红色箭头）和时间关联光子（超聚束）态（蓝色箭头）。插图：非共振激发下量子点的归一化光致发光（PL）光谱。（b）来自单个量子点的经光谱滤波并归一化的光致发光光谱。阴影区域表示选定的光谱窗口。上方光谱（红色）分离出 753 nm 处主峰的发射；中间光谱（绿色）包含主峰和较弱的短波长特征；下方光谱（蓝色）分离出 750 nm 附近的短波长发射。（c）相应的 Hanbury Brown 和 Twiss 二阶关联测量结果表明，使用光学滤波器分离出最亮的激子峰（红色曲线）时，呈现单光子发射，$g^{(2)}(0) < 0.5$；分离出较短波长的发射（蓝色曲线）时，则观察到激子复合体发射，$g^{(2)}(0) > 2$。光谱中同时包含这两种特征的发射（绿色曲线）在反聚束凹陷（$g^{(2)}(0) < 1$）内显示一个峰（$g^{(2)}(0) \sim 1$）。

结果

激子复合体发光的二阶关联测量：图1a是核心概念的艺术示意图：一个嵌入砷化铝镓基米氏共振超表面中的砷化镓量子点。这种结构化的光子环境同时增强来自同一量子点的单光子（红色箭头所示）以及时间关联多光子（超聚束）态（蓝色箭头所示）的发射。米氏共振器为$Al_{0.4}Ga_{0.6}As$立方体，以方形晶格排列在

经倒装芯片工艺制备的蓝宝石衬底上[34]。制备工艺的细节在方法部分中概述。通过改变立方体的宽度和方形晶格的周期，该超表面被设计为在约量子点发光波长（750 nm，图1a插图）处支持电偶极子（ED）和磁偶极子（MD）模式。通过使超表面模式与量子点发射光谱对准，我们在激子复合体的发射波长范围内将量子点的光致发光增强了一个数量级（补充信息 S1）[28, 29]。

超表面中孤立砷化镓量子点的发射会根据所施加的光谱滤波呈现反聚束或超聚束光子统计。这种双重功能源于超表面对多个激子复合体的光致发光发射同时增强。图 1b 显示了连续波非共振激发（520 nm）下量子点的光致发光光谱；测量前已使用两个带边滤光片进行光谱滤波（方法）。图 1c 则展示了使用 Hanbury Brown 和 Twiss（HBT）装置测得的相应二阶光子关联 $g^{(2)}(\tau)$。当对最亮峰的发射进行光谱分离时，可观察到明显的反聚束行为（$g^{(2)}(0)<0.5$）。相比之下，较短波长处的发射呈现超聚束行为（$g^{(2)}(0)>2$）。我们观察到从反聚束态到超聚束态的清晰转变。在相同泵浦功率密度（18 W/cm^2）下，两种不同的光子统计都表现出相近的光子计数率（~ 12 kHz）。因此，通过施加光谱滤波，我们可以选择性地从超表面中的孤立量子点获取不同类型的量子光。

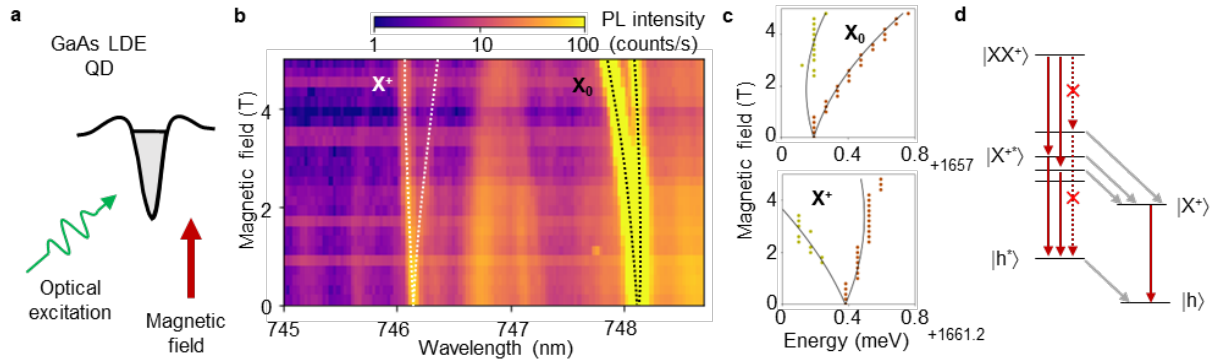


图 2 | **超表面中砷化镓量子点激子态的磁光致发光表征**。(a) 实验装置示意图：在法拉第几何下，量子点受到 532 nm 非共振激光（绿色箭头）激发，同时施加外加磁场（红色箭头）。(b) 磁光致发光图，显示量子点发射随波长（横轴）和磁场（纵轴，最高 5 T）的变化。识别出两种激子跃迁：748 nm 附近的中性激子（X0）和 746 nm 附近的正带电激子（X^+）。虚线表示根据塞曼效应与抗磁位移组合模型进行的拟合。(c) 提取的 X0（上）和 X^+（下）态的能量位置随磁场的变化，并用模型 $E(B) = E_0 \pm \frac{1}{2} g\mu_B B + \gamma B^2$拟合。(d) 量子点中可能发生的级联复合过程，其中正带电激子 X^+ 由带电双激子态产生，从而形成级联衰变通道（红色箭头）。实线箭头表示辐射衰变通道，虚线箭头表示禁戒衰变通道。灰色箭头表示非辐射跃迁。

砷化镓量子点的磁光致发光：我们进行了磁光致发光（磁光致发光）测量，以确认所观察到的超聚束源于带正电激子复合体。实验在 4 K 下进行，在法拉第几何中施加 0 至 5 T（特斯拉）的外加磁场，并采用非共振光激发（图 2a）。详情见方法部分。该装置能够分辨激子跃迁的能量劈裂及其随磁场强度变化的位移，从而揭示量子点发光的性质和电荷态[34, 35]。磁光致发光光谱呈现出关键的激子发射线：波长为 ~ 748 nm（1658 meV）的电中性激子，表现为反聚束发射；以及波长为 ~ 746 nm（1662 meV）的正带电激子（X^+），表现为超聚束发射。图 2b 展示了量子点发射光谱随磁场（纵轴）和波长（横轴）的变化。通过拟合依赖于磁场的能量位移，我们提取了塞曼分裂和

抗磁位移，所依据的是量子点的既有模型，表示为 $E(B) = E_0 \pm \frac{1}{2} g\mu_B B + \gamma B^2$，其中 g 为朗德 g 因子，γ 为抗磁系数。图中标出了两个不同的激子特征：电中性激子 X^0 和正带电激子 X^+。叠加在图上的虚线曲线对应基于塞曼效应和抗磁位移模型的拟合，可用于提取 g 因子和抗磁系数。图 2c 显示了 X^0 和 X^+ 态的提取能量随磁场的变化。拟合得到的 g 值（1.67）和 γ （13.1 μeV/T^2）证实，该态在砷化镓量子点中表现出 X^0 态的典型行为 [34]。我们得出结论，较短波长的峰（~ 746 nm）源自正带电激子态，这是由其负束缚能[36] 和反常抗磁位移[34, 37]所致。对于较小的量子点，空穴间排斥可能主导正带电激子中的能量重整化，使束缚能变为负值[36], ；而抗磁系数的负值γ （-10.0 μeV/T^2），即所谓的反常抗磁位移，已被认为与砷化镓量子点中的正带电激子有关[34]。

图 2d 展示了量子点内可能发生的级联复合过程。与中性双激子级联发射不同，带电双激子级联发射包含激发电荷载流子处于 p 壳层的衰变通道（激发态带电激子，$|X^{+*}\rangle$）。带电双激子包含两个空穴和两个处于 s 壳层的电子，另有一个空穴处于 p 壳层。首先，一个电子-空穴对（s 壳层）发生衰变，留下激发态带电激子 $|X^{+*}\rangle$。它可以具有四种不同的自旋构型，如图 2d [16, 17] 所示的四个能级。由于自旋选择定则，两个辐射衰变通道（从 $|XX^+\rangle$ 到单重态$|X^{+*}\rangle$，以及到三重态 $|X^{+*}\rangle$、$m_z = 3/2$）是禁戒的。由从 $|XX^+\rangle$ 到 $|X^{+*}\rangle$ 以及从 $|X^{+*}\rangle$ 到 $|0^*\rangle$ 的辐射衰变组成的级联衰变可以产生时间关联光子对。[16, 17]。遗憾的是，光谱分辨率不足以通过清晰分辨 747 nm 附近峰的塞曼分裂和抗磁位移，来完全确定发射线的来源。但泵浦功率二次方依赖关系使我们得出结论：至少一个光致发光峰来自带电双激子（见补充信息 S2）。级联发射过程可以产生高度关联的光子对，这与观测到的超聚束现象一致（补充信息 S3）。

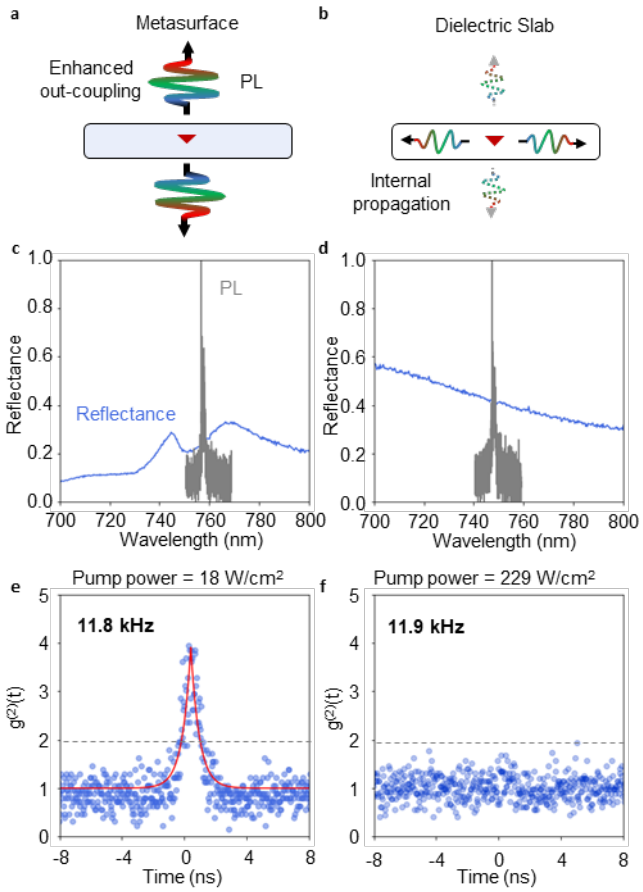


图 3 | **光子环境在实现带电激子复合体超聚束发射中的作用**。(a, b) PL 发射示意图：(a) 超表面中的 QD；(b) 介电薄膜中的 QD（无光子结构）。超表面可以提高 PL 向自由空间的出耦合效率和辐射复合速率。(c) 泵浦功率密度为 18 W/cm2 时正带电激子复合体的 PL 光谱，以及米氏超表面的反射率。(d) 泵浦功率密度为 229 W/cm2 时的 PL 光谱，以及 140 nm 厚 $Al_{0.4}Ga_{0.6}As$ 平板的反射率。(e) 嵌入惠更斯超表面的 QD 的 PL 二阶关联测量。显示出明显的超聚束行为，峰值 $g^{(2)}(0) = 3.90$。(f) 嵌入介电薄膜中的 QD 的 PL 二阶关联测量。发射光子的 $g^{(2)}(0)$ 为 < 2。与超表面情况（11.8 kHz）达到相近的光子计数率（11.9 kHz），需要高出十倍的激发功率（229 W/cm2）。

增强砷化镓量子点中带电激子发射的出射耦合：只有当砷化镓量子点嵌入超表面时，才能观测到带正电激子复合体的超聚束光子发射，这表明经过设计的光子环境对于实现这一非经典发射状态至关重要。为了解这种依赖关系，我们比较了两种不同构型中的砷化镓量子点：嵌入惠更斯超表面，以及置于厚度相同的未图案化 Al0.4Ga0.6As 平板中（图 3a、b）。超表面支持两个重叠的米氏共振，即电偶极（ED）模式和磁偶极（MD）模式，其亚波长周期性使发射优先朝向上方和下方 [28, 29, 38]。图 3(c) 显示了反射光谱，其中这些共振特征与量子点发射波长重叠。相比之下，未图案化平板的反射光谱没有明显特征（图 3d）。由于砷化铝镓（n ~ 3.5）与空气之间存在较大的折射率差，平板中量子点的大部分发射都通过全内反射沿横向传播，耦合到自由空间的光极少 [28, 29]。光子环境的这些显著差异——超表面中出射耦合增强，而平板中发射受导引、几乎没有光提取至自由空间——对可观测到的光子统计产生了深远影响。

光子环境对于实现超聚束现象起着关键作用。我们测量了两种环境中带电激子复合体的二阶光子关联函数g(2)(τ)，并通过光谱滤波分离带正电激子复合体的发光。图3(e)和(f)展示了各光子环境中带正电量子点激子复合体发光的二阶光子关联函数。尽管两者的总光子计数率相当（~12 k Hz），但激发条件差异显著：未图案化平板所需的激发功率密度（229 W/cm2）是超表面（18 W/cm2）的10倍。超表面嵌入量子点表现出强烈的超聚束，g(2)(0) = 3.90，表明存在时间相关的光子突发，这是带电双激子复合体级联发射的特征。与之形成鲜明对比的是，平板嵌入量子点的g(2)(0) < 2仍处于经典区间，没有明显的聚束。泵浦条件的巨大差异对于理解为何仅在超表面情形下观察到超聚束至关重要。在以相同计数率探测平板发光所需的高泵浦功率下，光谱展宽、热效应以及非关联背景态的激活会稀释时间关联，从而抹去超聚束特征。超表面将光子有效出耦到自由空间，使得在超聚束得以保持的低泵浦功率下能够触及本征级联动力学。量子点发光（尤其是来自较弱带电激子跃迁的发光）与重叠的电偶极子和磁偶极子共振之间的光谱对准，对于这一效应至关重要。我们在具有不同米氏共振构型的其他超表面设计中证实了这一行为，它们均显示出带电激子复合体的超聚束发光（补充信息S4）。除了通过宽带低Q米氏共振实现亮度增强之外，超表面还可提供高Q共振滤波

用于特定跃迁的光谱与偏振选择性隔离 [39, 40] 这种双重能力——同时增强多个跃迁并结合选择性滤波——使超表面嵌入量子点成为按需调控和路由多种量子光态的通用平台[10, 12]。

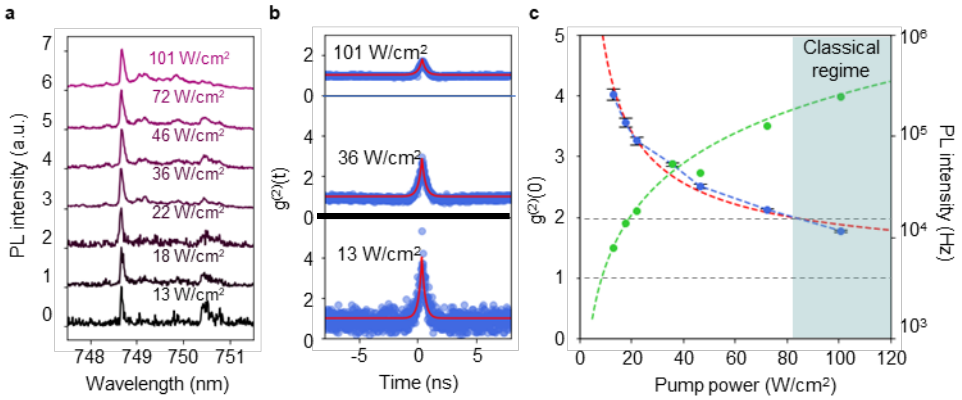


图 4 | **米氏超表面中砷化镓量子点的光致发光功率依赖性** (a) 在 13 至 101 W/cm2 范围内测得的功率依赖性光致发光光谱。(b) 在选定功率密度（13、36 和 101 W/cm2）下进行的二阶关联测量。(c) 提取的 $g^{(2)}(0)$ 值随泵浦功率 P 的变化。其呈次线性反比趋势，可近似表示为 $g^{(2)}(0) \sim 1+a/P^{0.63}$。

超聚束发射的泵浦功率依赖性：除了能够观测到超聚束发射外，超表面较低的工作功率区间对于维持强量子关联也至关重要。为量化这一效应，我们测量了正带电激子复合体的超聚束随功率的变化。图 4(a) 展示了超表面中量子点的正带电激子复合体在连续波非共振泵浦功率逐渐增大（范围为 13 W/cm2 至 101 W/cm2）时的光致发光光谱。图 4(b) 展示了在选定泵浦功率密度（13、36 和 101 W/cm2）下测得的相应二阶关联函数 g(2)(τ)。在低泵浦功率（13 W/cm2）下，关联函数在零延迟时间处呈现显著峰值，g(2)(0) 超过 4，表明级联发射产生了强超聚束和高度关联的多光子态。随着泵浦功率增加，该峰值逐渐减弱，关联函数也逐步趋近经典区间（$g(2)(0) \leq 2$）。

两种相互竞争的物理机制可以解释为何在较高泵浦功率下观测到的光子关联减弱。首先，热涨落加剧和电荷积累会导致激子谱线发生光谱展宽[41-44], 从而降低级联发射的时间相干性。其次，较高的激发会激活原本较弱的激子态，产生不相关的光子背景，进而降低级联衰变过程中关联光子对的相对贡献。这些效应共同导致时间关联持续减弱，从而使观测到的 g(2)(0) 降低。重要的是，这一行为进一步印证了我们此前对未图案化平板的观察：在那里，要获得可探测的发射，所需泵浦功率高出一个数量级以上，而此时这些

破坏性效应会完全抑制超聚束。为了量化光子关联随泵浦强度增加而减弱的程度，我们用唯象模型拟合实验数据：$g^{(2)}(0) = 1 + a/P^b$，其中 a 和 b 是经验拟合参数。图 4(c) 展示了 g(2)(0) 随泵浦功率的变化，清楚地呈现亚线性衰减，指数 $b \approx 0.63$ ($a \approx 16$ $(W/cm^2)^{0.63}$)。要对这一特定指数给出严格的理论解释，需要求解复杂的速率方程，并考虑多体相互作用、电荷俘获动力学以及载流子扩散[45-47], 这超出了本文的研究范围。 重要的是，超表面的共振增强使我们能够在足够低的泵浦功率下观测到本征的超聚束行为，此时量子关联仍然很强。在工作范围内的较高功率下，我们仍实现了超过 100 kHz 的光子计数率，同时保持 $g(2)(0) > 2$，这证明了该平台在利用微弱带电激子态产生非经典光方面的实用价值。

结论

我们展示了在相同的非共振泵浦条件下，借助基于砷化铝镓的介电超表面平台，可由单个砷化镓量子点同时产生反聚束和超聚束光子态。通过磁光致发光光谱学，我们确认中性激子（X0）是反聚束发射的来源，而带正电双激子复合物（XX^{+}）则产生超聚束光子，其 g(2)(0) 超过 3.5。超表面通过宽带米氏共振，使中性和带电激子跃迁的光致发光均增强一个数量级，从而在低泵浦功率下使两种发射模式的光子计数率（~12 kHz）相当。关键的是，光子关联测量显示，只有当带电激子发射的光谱与超表面共振重叠时才会出现超聚束，这证实了光子学工程对于实现这些本征较弱跃迁的重要作用。功率依赖测量表明，共振增强所允许的低工作功率能够保持强量子关联；激发增强则会因光谱展宽和非关联背景发射而削弱时间关联。超表面方法克服了传统光子平台的根本局限：无需精确的光谱调谐或确定性发射体定位，即可实现宽带增强，为充分利用半导体量子点的完整激子流形以及先进单光子发射器 [48] 开辟了一条可扩展的途径。本研究确立了光子超表面作为按需调控量子光态的通用平台，为先进量子信息处理和充分利用固态发射体丰富激子结构的光子技术开辟了道路。[9]。

方法：

反射光谱法：使用宽带钨卤素白光源和可见光谱仪（Ocean Optics，Jazz）采集超表面和无图案介质薄板的反射光谱。入射光束经焦距为 50 mm 的平凸透镜聚焦到样品上。为进行归一化，将超表面的反射率以银镜的反射率为参照。归一化之前，从超表面和银镜的光谱中扣除了暗计数。

光致发光光谱法：将样品冷却至 10 K，并使用闭循环低温恒温器（Montana Instruments）进行光致发光测量。采用 520 nm 二极管激光器进行非共振激发，并通过显微物镜（NA = 0.4）聚焦至 ~1 μm 的光斑。发射的光致发光信号经同一显微物镜收集，并使用焦距为 50 cm 、配备 1800 条 / 毫米光栅和 1340 × 100 背照式 CCD 阵列探测器（Teledyne Princeton Instruments）的光谱仪进行分析。为在光谱域滤除来自激子复合体的光致发光，使用了一对长通滤光片和短通滤光片（TLP01-790、TSP01-790，AVR Optics）。为测量二阶关联函数，使用一对超导纳米线单光子探测器（Quantum Opus）和时间相关单光子计数系统（PicoHarp 300，PicoQuant）记录光子到达时间。使用 pyscan 进行时间标记光子关联测量；pyscan 是由集成纳米技术中心开发的开源测量套件（可通过 github.com/sandialabs/pyscan 获取）。

磁光致发光光谱法：将样品置于氦低温恒温器（AttoDRY800，Attocube）中冷却至 4 K，进行磁光致发光测量。采用 532 nm 二极管激光器提供非共振激发，并使用非球面透镜（f = 3.1mm，NA = 0.7，C330TMD-B，Thorlabs）。发射的光致发光信号经同一透镜收集，并使用配备 1200 线/mm 光栅和 CCD 阵列探测器的光谱仪进行分析（Horiba Scientific Instruments）。为测量二阶关联函数，使用一对超导纳米线单光子探测器（Single Quantum）和时间标记器系统（Swabian Instruments）记录光子到达时间。为在光谱域滤除激子复合体的光致发光，使用了一对长通和短通滤光片（TLP01-790，TSP01-790，AVR Optics）

数值计算：反射率光谱采用严格耦合波分析计算（开源 Python 软件包：grcwa [49]），光子能带结构则采用导模展开法计算（开源 Python 软件包：legume [50]）。所用 $Al_{0.4}Ga_{0.6}As$ 的折射率数据来自 [51]。

制备：样品通过分子束外延生长在半绝缘砷化镓（100）衬底（VA1166）上。经过 630 °C 原位氧化物脱附后，于 600 °C 开始生长。该异质结构由 300 nm 砷化镓缓冲层、500 nm Al0.75Ga0.25As刻蚀停止层以及 140 nm Al0.4Ga0.6As层构成，后者中心含有局部液滴刻蚀砷化镓量子点（LDE GaAs QDs），并由 5 nm 砷化镓层包覆。

量子点通过铝液滴刻蚀，随后采用迁移增强外延制备。在 Al0.4Ga0.6As层生长至一半时暂停生长，并在砷浸泡条件下将衬底温度升至 620 °C。去除过量砷后，沉积 0.6 单层铝，并在低砷条件下退火以形成纳米空洞。随后通过 24 个周期交替沉积镓和砷来生长砷化镓量子点，之后进行退火。

使用电子束光刻在双层 PMMA 抗蚀剂（PMMA 495/950 A2）上制备超表面图案，并在 BCl3/Cl2/Ar/N2 等离子体中进行反应离子刻蚀（分别为 10、10、10 和 3.5 cm^3/min）。去除抗蚀剂后，使用环氧树脂（EPO-TEK 353ND）将样品倒装键合到蓝宝石衬底上。通过机械研磨和使用 NH4

OH/H2O2 进行选择性湿法刻蚀，随后使用 HCl 去除 Al0.75Ga0.25As 刻蚀停止层，从而在蓝宝石衬底上留下量子点超表面层。详情见 [29]。

致谢

本研究得到美国能源部（DOE）基础能源科学办公室材料科学与工程部的支持，部分工作在集成纳米技术中心完成。该中心是科学办公室用户设施，由桑迪亚国家技术与工程解决方案有限责任公司代表美国能源部科学办公室运营。S.P. 获英国工程与自然科学研究委员会（EP/S022139/1）资助。A.J. 和 K.A. 感谢基础能源科学办公室通过 QuPIDC能源前沿研究中心提供的资助，奖项编号为 DE- SC0025620。桑迪亚国家实验室是一所多任务实验室，由桑迪亚国家技术与工程解决方案有限责任公司管理和运营。该公司是霍尼韦尔国际公司的全资子公司，依据合同 DE-NA0003525 为美国能源部国家核安全管理局运营。本论文介绍客观的技术成果与分析。文中可能表达的任何主观观点或意见，并不一定代表美国能源部或美国政府的观点。我们感谢 Ashwin Kumar Boddeti博士提供宝贵见解并参与有益讨论。

参考文献

(1) Seitz, P.; Theuwissen, A. J. P. 单光子成像，Springer. 2011. (2) Moreau, P.-A; Toninelli, E.; Gregory, T.; Padgett, M. J. 利用光量子态成像。《自然评论：物理》2019, 1 (6), 367−380. (3) Defienne, H.; Bowen, W. P.; Chekhova, M.; Lemos, G. B.; Oron, D.; Ramelow, S.; Treps, N.; Faccio, D. 量子成像进展。《自然·光子学》2024, 18 (10), 1024−1036. (4) Gatto Monticone, D.; Katamadze, K.; Traina, P.; Moreva, E.; Forneris, J.; Ruo-Berchera, I.; Olivero, P.; Degiovanni, I. P.; Brida, G.; Genovese, M. 利用非经典光子统计突破共聚焦显微镜中的阿贝衍射极限。《物理评论快报》2024, 113 (14), 143602. (5) Tenne, R.; Rossman, U.; Rephael, B.; Israel, Y.; Krupinski-Ptaszek, A.; Lapkiewicz, R.; Silberberg, Y.; Oron, D. 通过量子图像扫描显微术提升超分辨率。《自然·光子学》2019, 13 (2), 116−122. (6) Pittman, T. B.; Shih, Y. H.; Strekalov, D. V.; Sergienko, A. V. 利用双光子量子纠缠进行光学成像。《物理评论A》1995, 52 (5), 3429−3432. (7) Lemos, G. B.; Borish, V.; Cole, G. D.; Ramelow, S.; Lapkiewicz, R.; Zeilinger, A. 利用未探测光子进行量子成像。《自然》2014, 512 (7515), 409−412. (8) Brida, G.; Genovese, M.; Ruo-Berchera, I. 亚散粒噪声量子成像的实验实现。《自然·光子学》2010, 4 (4), 227−230. (9) Ye, Z.; Wang, H. -B.; Xiong, J.; Wang, K. 伪自然光中的反聚束与超聚束光子关联，《光子学研究》2022, 10 (3), 668-677. (10) Heindel, T.; Kim, J.-H.; Gregersen, N.; Rastelli, A.; Reitzenstein, S. 用于光子量子信息技术的量子点。《光学与光子学进展》2023, 15 (3), 613−738. (11) Wang, H.; Qin, J.; Ding, X.; Chen, M.-C.; Chen, S.; You, X.; He, Y.-M.; Jiang, X.; You, L.; Wang, Z. 在1 0 14维希尔伯特空间中，利用20个输入光子和一个60模式干涉仪进行玻色子采样。《物理评论快报》2019, 123 (25), 250503. (12) Senellart, P.; Solomon, G.; White, A. 高性能半导体量子点单光子源。Nat. Nanotechnol 2017, 12 (11), 1026−1039.

(13) Uppu, R.; Pedersen, F. T.; Wang, Y.; Olesen, C. T.; Papon, C.; Zhou, X.; Midolo, L.; Scholz, S.; Wieck, A. D.; Ludwig, A.; Lodahl, P. 可扩展集成单光子源。《科学进展》2020, 6 (50), No. eabc8268. (14) Somaschi, N.; Giesz, V.; De Santis, L.; Loredo, J. C.; Almeida, M. P.; Hornecker, G.; Portalupi, S. L.; Grange, T.; Antón, C.; Demory, J.; Gómez, C.; Sagnes, I.; Lanzillotti-Kimura, N. D.; Lemaítre, A.; Auffeves, A.; White, A. G.; Lanco, L.; Senellart, P. 固态中的近乎最优单光子源。《自然·光子学》2016, 10, 340-345 (15) Gazzano, O.; Michaelis de Vasconcellos, S.; Arnold, C.; Nowak, A.; Galopin, E.; Sagnes, I.; Lanco, L.; Lemaître, A.; Senellart, P. 明亮的固态不可区分单光子源。《自然·通讯》2013, 4, 1425

(16) Shirane, M.;Igarashi, Y.; Ota, Y.;Nomura, M.; Kumagai, N.; Ohkouchi, S.; Kirihara, A.;Ishida, S.;Iwamoto, S.;Yorozu, S.; Arakawa, Y. 单个量子点中光子带隙内的带电和中性双激子–激子级联。《物理学E：低维系统与纳米结构》2010, 42, 2563-2566。

(17) Kettler, J.; Paul, M.; Olbrich, F.; Zeuner, K.;Jetter, M.; Michler, P.; Florian, M.;Carmesin, C.; Jahnke, F. 近电信波长量子点中的中性和带电双激子–激子级联。《物理评论B》2016, 94 (4), 045303

(18) Zhai, L.; Löbl, M. C.; Nguyen, G. N.; Ritzmann, J.; Javadi, A.; Spinnler, C.; Wieck, A. D.; Ludwig, A.; Warburton, R. J. 用于量子光子学的低噪声GaAs量子点。《自然·通讯》。2020, 11 (1), 4745 (19) Prescott, S.; Iyer, P. P.; Park, S.; Malek, S.; Noh, J.; Chen, P.; Doiron, C. F.; Addamane, S; Brener, I; Mitrofanov, O. 用于增强量子点发射光耦出的电压可调非局域超表面。Nano Letters 2026年。已接收 (20) Iyer, P. P.; DeCrescent, R. A.; Mohtashami, Y.; Lheureux, G.; Butakov, N. A.; Alhassan, A.; Weisbuch, C.; Nakamura, S.; DenBaars, S. P.; Schuller, J. A. InGaN/GaN量子阱超表面的单向发光。《自然·光子学》2020, 14 (9), 543-548. (21) Curto, A. G.; Volpe, G.; Taminiau, T. H.; Kreuzer, M. P.; Quidant, R.; van Hulst, N. F. 与纳米天线耦合的量子点的单向发射，《科学》2010, 329 (5994), 930-933.

(22) Paniagua-Domínguez, R.; Yu, Y. F.; Khaidarov, E.; Choi, S.; Leong, V.; Bakker, R. M.; Liang, X.; Fu, Y. H.; Valuckas, V.; Krivitsky, L. A.; Kuznetsov, A. I. 具有近乎单位数值孔径的金属透镜。Nano Lett. 2018, 18, 2124–2132. (23) Fang, H. H.; Han, B.; Robert, C.; Semina, M. A.; Lagarde, D.; Courtade, E.; Taniguchi, T.; Watanabe, K.; Amand, T.; Urbaszek, B.; Glazov, M. M.; Marie, X. 范德华异质结构中的激子辐射寿命调控。物理评论快报 2019, 123, 067401. (24) Bucher, Tobias; Vaskin, A.;Mupparapu, R.; Löchner, F. J. F.;George, A.; Chong, K. E.; Fasold, S.; Neumann, C.; Choi, D.-Y.; Eilenberger, F.; Setzpfandt, F.;Kivshar, Y. S.; Pertsch, T.; Turchanin, A.; Staude, I. 通过米氏共振超表面调控MoS2单层的光致发光。ACS Photonics 2019, 6 (4), 1002-1009 (25) Park, S.; Kim, D.; Seo, M.-K.. 用于长寿命层间激子产生的等离激元光子晶体镜。ACS Photonics 2019, 8 (12), 3619-3626.

(26) Park, S.; Kim, D.; Choi, Y.-S.; Baucour, A.; Kim, D.; Yoon, S.; Watanabe, K.; Taniguchi, T.; Shin, J.; Kim, J.; Seo, M.-K. 通过位置和偏振依赖的真空场干涉调控二维激子的辐射衰减动力学。Nano Letters 2023, 23 (6), 2158-2165

(27) Park, S.; Kim, J.; Kim, D.; Watanabe, K.; Taniguchi, T.; Seo, M.-K. 二维激子复合物图谱的演示。ACS Nano 2024, 18 (7), 5647-5655。

(28) Prescott, S.; Iyer, P. P.; Addamane, S.; Jung, H.; Luk, T. S.; Brener, I.; Mitrofanov, O. 通过米氏超表面增强嵌入式单量子发射体的光子出耦。Nanophotonics 2025年，14（11），1917-1925。（29）Iyer, P. P.; Prescott, S.; Addamane, S.; Jung, H.; Renteria, E.; Henshaw, J.; Mounce, A.; Luk, T. S.; Mitrofanov, O.; Brener, I. 利用惠更斯超表面控制嵌入其中的单个砷化镓量子点的量子化自发发射。Nano Letters 2024，24（16），4749-4757。（30）Murai, S.; Castellanos, G. W.; Raziman, T. V.; Curto, A. G.; Rivas, J. G. 介电超表面中磁共振和电共振增强光发射。Advanced Optical Materials 2020，8（16），1902024。（31）Capretti, A.; Lesage, A.; Gregorkiewicz, T. 集成量子点与介电米氏谐振器：兼具二者优势的分级超材料。ACS Photonics 2017，4（9），2187-2196。

(32) Yuan, Y.; Qian, C.; Yang, L.; Ru, X.-C.; Li, Y.; Yang, J.; Fu, B.; Yan, S.; Li, H.; Zuo, Z.; Wang, C.; Hu, X.; Yao, H.-B.; Jin, K.; Gong, Q.; Xu, X. 使用非局域等离激元超表面实现CsPbI3量子点稳健的Purcell效应。《物理评论快报》2025年，134（24），243804。（33）Park, Y.; Kim, H.; Lee, J.-Y.; Ko, W.; Bae, K.; Cho, K.-S. 使用介电超表面控制胶体量子点发射方向。Nanophotonics 2020，9（5），1023-1030（34）Huber, D.; Lehner, B. U.; Csontosová, D.; Reindl, M.; Schuler, S.; Covre da Silva, S. F.; Klenovský, P.; Rastelli, A. 横向弱限域砷化镓量子点中的单粒子图像失效。《物理评论B》2019，100（23），235425。（35）Huo, Y. H.; Witek, B. J.; Kumar, S.; Cardenas, J. R.; Zhang, J. X.; Akopian, N.; Singh, R.; Zallo, E.; Grifone, R.; Kriegner, D.; Trotta, R.; Ding, F.; Stangl, J.; Zwiller, V.; Bester, G.; Rastelli, A.; Schmidt, O. G. 量子点中的轻空穴激子。Nature Physics 2014，10（1），46–51。（36）Abbarchi, M.; Kuroda, T.; Mano, T.; Sakoda, K.; Mastrandrea, C. A.; Vinattieri, A.; Gurioli, M.; Tsuchiya, T. 砷化镓量子点中激子复合体的能量重整化。《物理评论B》2010，82（20），201301。（37）Fu, Y. J.; Lin, S. D.; Tsai, M. F.; Lin, H.; Lin, C. H.; Chou, H. Y.; Cheng, S. J.; Chang, W. H. 单个半导体量子点中负三激子的异常抗磁位移。《物理评论B》2010，81（11），113307。（38）Decker, M.; Staude, I.; Falkner, M.; Dominguez, J.; Neshev, D. N.; Brener, I.; Pertsch, T.; Kivshar, Y. S. 高效率介电惠更斯表面。Advanced Optical Materials 2015年，3（6），813-820。（39）Malek, S. C.; Norden, T.; Doiron, C. F.; Santiago-Cruz, T.; Yu, J.; Cerjan, A.; Padmanabhan, P.; Brener, I. 双重区折叠非局域超表面显著增强四波混频。ACS Nano 2025年，19（40），35609-35617。（40）Malek, S. C.; Doiron, C. F.; Brener, I.; Cerjan, A. 通过合理设计实现稳健的多共振非局域超表面。Nanophotonics 2025年，14（4），449-458。（41）Abbarchi, M.; Troiani, F.; Mastrandrea, C.; Goldoni, G.; Kuroda, T.; Mano, T.; Sakoda, K.; Koguchi, N.; Sanguinetti, S.; Vinattieri, A.; Gurioli, M. 自组装砷化镓/砷化铝镓量子点光致发光中的光谱扩散与谱线展宽。Applied physics letters 2008年，93，162101（42）Basso Basset, F.; Bietti, S.; Tuktamyshev, A.; Vichi, S.; Bonera, E.; Sanguinetti, S. 具有窄尺寸分布的自组装砷化镓量子点中的光谱展宽。J. Appl. Phys. 2019，126，024301

(43) Rakhlin, M.; Belyaev, K.; Klimko, G.; Mukhin, I.; Kirilenko, D.; Shubina, T.; Ivanov, S.; Toropov, A. 用于红色光谱范围单光子发射的InAs/AlGaAs量子点。《科学报告》2018, 8 (1), 5299。(44) Zhou, T.; Tang, M.; Xiang, G.; Xiang, B.; Hark, S.; Martin, M.; Baron, T.; Pan, S.; Park, J.-S.; Liu, Z. 在正轴Si(001)上生长的连续波量子点光子晶体激光器。《自然-通讯》2020, 11 (1), 977。(45) Wang, Z.; Rasmita, A.; Long, G.; Chen, D.; Zhang, C.; Garcia, O. G.; Cai, H.; Xiong, Q.; Gao, W. 单个钙钛矿量子点的光驱动巨超聚束。Advanced Optical Materials 2021, 9 (21), 2100879。(46) Meuret, S.; Tizei, L. H. G.; Cazimajou, T.; Bourrellier, R.; Chang, H. C.; Treussart, F.; Kociak, M. 阴极发光中的光子聚束。《物理评论快报》2015年, 114 (19), 197401。(47) Kuroda, T.; Belhadj, T.; Abbarchi, M.; Mastrandrea, C.; Gurioli, M.; Mano, T.; Ikeda, N.; Sugimoto, Y.; Asakawa, K.; Koguchi, N.; Sakoda, K.; Urbaszek, B.; Amand, T.; Marie, X. 单个GaAs量子点关联光子的聚束可见度。《物理评论B》2009, 79 (3), 035330。(48) Park, S.; Azizur-Rahman, K. M.; Shima, D.; Balakrishnan, G.; Yu, J.; Jung, H.; Mah, J. J.; Prescott, S.; Chen, P.; Addamane, S.; Pete, D.; Mounce, A.; Luk, T. S.; Iyer, P. P.; Brener, I.; Mitrofanov, O. 通过量子受限电荷漏斗效应向量子点实现高效单光子发射。《通讯材料》2025年, 6 (1), 286。(49) Jin. W.; Li. W.; Orenstein. M.; Fan. S. 用于相对论光帆推进的轻质宽带反射器逆向设计。ACS Photonics 2020, 7 (9), 2350-2355。(50) Zanotti, S.; Minkov, M.; Nigro, D.; Gerace, D.; Fan, S.; Andreani, L. C. Legume：光子晶体平板导模展开法的免费实现。《计算机物理通讯》2024, 304, 109286。(51) Aspnes, D. E.; Kelso, S. M.; Logan, R. A.; Bhat, R. AlxGa1−x As的光学性质。Journal of Applied Physics 1986, 60 (2), 754-767。

补充信息

介电超表面中砷化镓量子点同时产生反聚束和超聚束光子

Sanghyeok Park, [1,2] **Oleg Mitrofanov,** [3] **Kusal M. Abeywickrama,** [4] **Samuel Prescott,** [3] **Jaeyeon Yu,** [1,2] **Stephanie C Malek,** [1,2] **Hyunseung Jung,** [1,2] **Emma Renteria,** [5] **Sadhvikas Addamane,** [1,2] **Alisa Javadi,** [4] **Igal Brener,** [1,2,*] **和 Prasad P Iyer**[1,2,*]

[1]桑迪亚国家实验室，阿尔伯克基，新墨西哥州 *87185*，美国 [2]集成纳米技术中心，桑迪亚国家实验室，阿尔伯克基，新墨西哥州 *87185*，美国 [3]伦敦大学学院，电子与电气工程，伦敦 *WC1E 7JE*，英国 [4]物理与天文学系，量子研究与技术中心，俄克拉荷马大学，诺曼，俄克拉荷马州 *73019*，美国[5]高技术材料中心，新墨西哥大学，阿尔伯克基，新墨西哥州 *87185*，美国

**ibrener@sandia.gov*，*ppadma@sandia.gov*

S1. 增强　　介电超表面中砷化镓量子点内激子复合体的光致发光增强

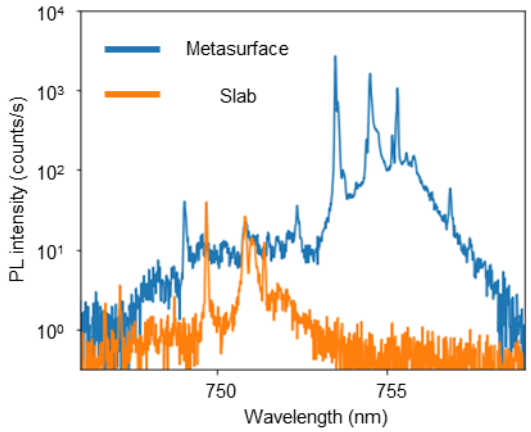


图 S1. 嵌入介电米氏超表面的量子点（蓝色）与位于未图案化平板中的量子点（橙色）的光致发光光谱对比。

图 S1 比较了嵌入介电米氏超表面的量子点（QDs）与裸平板中的量子点的光致发光（PL）光谱。为便于直接比较，光致发光强度按泵浦功率归一化。尽管两个样品均呈现出与激子跃迁相对应的相似光谱特征，超表面嵌入量子点在整个光谱范围内的光致发光强度却高出一个数量级以上。

S2. 量子点光致发光光谱的泵浦功率依赖性

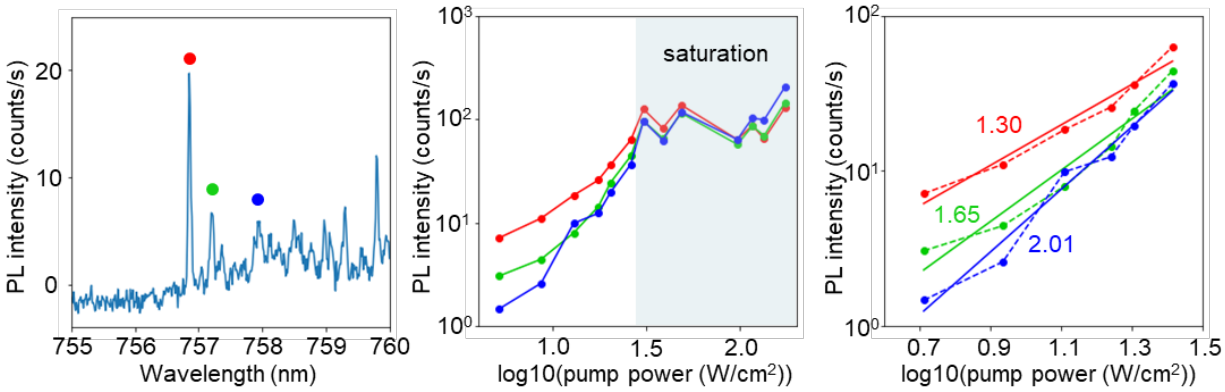


图 S2. 介电超表面中嵌入的砷化镓量子点的三条带正电激子发射线的光致发光特性。(a) 光致发光光谱，其中突出显示了以红色、绿色和蓝色标记的三条激子跃迁。(b) 三个标记峰的光致发光强度随功率的变化

以双对数坐标绘制，显示在 ~50 W/cm2 以上逐渐趋于饱和（阴影区域）。(c) 对低于饱和功率的三条发射线的光致发光强度与泵浦功率进行双对数拟合。提取的斜率分别为 1.30（红色）、1.65（绿色）和 2.01（蓝色）。

我们研究了单个量子点中多个激子跃迁的激发功率依赖性。图 S2a 展示了在非共振激发下测得的光致发光光谱，激发功率为 8.6 W/cm^2，，其中三个具有代表性的峰分别以红色、绿色和蓝色标出。这些峰对应不同的正带电激子复合体。在图 S2b 中，三个峰的光致发光强度均单调增加，随后在 ~50 W/cm2 处达到饱和。在饱和前区域，蓝色峰呈现出泵浦功率二次方依赖关系。这一趋势证实蓝色峰来自带电双激子 [1-4]。

S3. 正带电激子复合体的超聚束发射

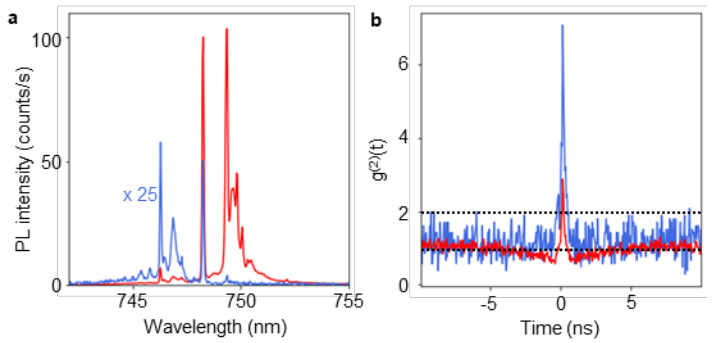
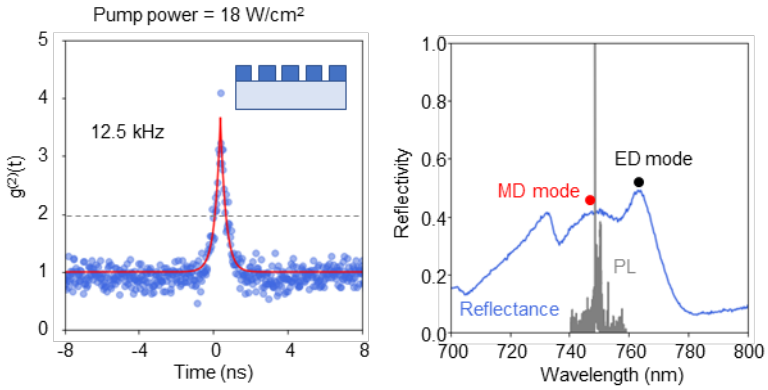


图 S3. 图 2 中砷化镓量子点的光致发光光谱和二阶光子关联。(a) 在超表面中的砷化镓量子点在不同光谱滤波条件下采集的光致发光光谱。未进行光谱滤波的光致发光光谱以红色表示，经过 748 nm 短通滤波的光谱以蓝色表示。为便于观察，将短通滤波后的信号强度放大 25 倍。(b) 测得的未滤波（红色）和短通滤波（蓝色）条件下的二阶关联函数 $g^{(2)}(\tau)$。短通滤波后的信号呈现出明显的光子聚束，表明存在关联的多光子发射。

用于磁光致发光研究的量子点也呈现出与正文讨论相似的光致发光和光子关联特征。在图 S3a 中，经过短通滤波的光致发光光谱仅显示波长短于中性激子的发射特征，这些特征主要与带正电激子复合体有关；而红色光谱则包含所有激子跃迁。这些短波长特征呈现出极强的时间光子关联，$g^{(2)}(0)$ 显著大于 2，表明存在超聚束（图 S3b）。相比之下，未滤波的光谱显示出因对多个激子态进行平均而被削弱的

关联，这与图 1c 中绿点所示的二阶关联测量结果一致。这种一致性证实，所观察到的光子统计并非某个单独量子点所特有，而是我们量子点超表面平台的代表性特征。

S4. 嵌入米氏超表面的砷化镓量子点的超聚束发射



图S4. (a) 嵌入米氏超表面的量子点发射的二阶光子关联 $g^{(2)}(\tau)$，显示在零延迟处有明显的超聚束峰。计数率为 11.8 kHz。红线表示基于与系统响应卷积所得的拟合结果。插图：超表面几何结构示意图。(b) 同一米氏超表面器件的光致发光（PL）光谱（黑色）和反射光谱（蓝色），显示出宽光谱范围的米氏共振，可增强多个激子发射峰。

图S4(a)展示了与介电米氏超表面耦合的量子点所测得的 $g^{(2)}(\tau)$ 函数。观察到明显的光子超聚束行为，$g^{(2)}(0) = 3.55$，表明存在时间相关的光子突发。超表面显著增强了弱激子复合体的发射强度，从而促进了此类非线性光子统计的增强。

图S4(b)比较了量子点的光致发光光谱与超表面的反射率。光谱特征的重叠表明，宽带电偶极和磁偶极米氏共振增强了多个激子跃迁的发射，使得在可检测的计数率下能够观测到复杂的光子统计。关于详细的模式分析和光学结构的影响，请参见[5,6]。

S5. 惠更斯超表面中量子点的二阶关联函数对偏振的依赖性

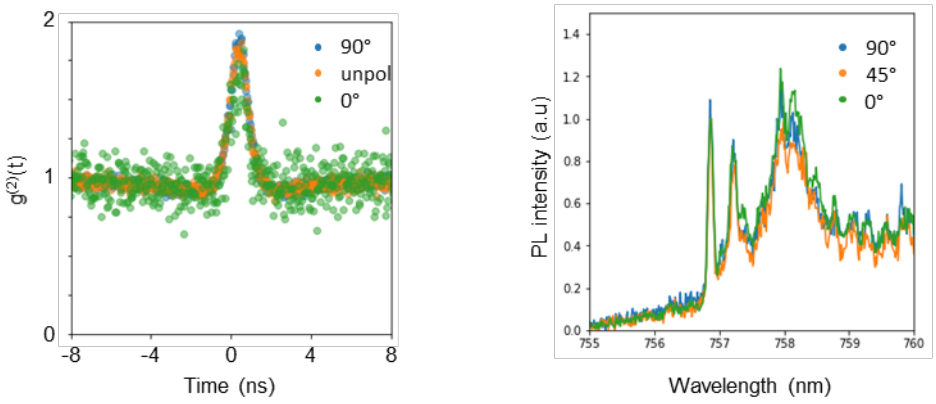


图 S5. 二阶关联与光致发光光谱的偏振依赖性。(a) 通过设置为 0°、90° 的偏振片以及无偏振滤波测得的选定发射峰的二阶关联函数 g(2)(τ)。所有曲线在零延迟附近均表现出相当的聚束峰，表明不存在优先的线偏振。(b) 通过检偏器角度为 0°、45° 和 90° 采集的偏振分辨光致发光光谱。发射强度和光谱特征在不同偏振下几乎保持不变，证实了超聚束光子发射的非偏振特性。

图 S5 展示了偏振分辨测量，用以研究嵌入超表面的量子点所发出超聚束光的偏振特性。二阶关联函数 $g^{(2)}(\tau)$（图 S5a）显示，无论通过 0°、90°偏振片还是不使用偏振片进行分析，时间聚束特征都几乎相同，这表明其发光并非线偏振。类似地，通过不同检偏器测得的光致发光光谱（图 S5b）具有一致的光谱形状和强度分布，进一步支持超聚束光子流不具有偏振的结论。这些结果为今后开展依赖圆偏振的交叉关联测量研究提供了依据。

参考文献

[1] Heindel, T., Thoma, A., von Helversen, M. 等 固态中明亮的触发式孪生光子源。 自然通讯 **8**，14870（2017）。https://doi.org/10.1038/ncomms14870[2] Benson, O., Santori, C., Pelton, M. & Yamamoto, Y. 来自单个量子点的受控纠缠光子。 物理评论快报 **84**，2513（2000）。[3] Huber, D., Reindl, M., Huo, Y. 等 来自对称砷化镓量子点的高度不可区分且强纠缠光子。 自然通讯 **8**，15506（2017）。https://doi.org/10.1038/ncomms15506[4] He, YM., Iff, O., Lundt, N. 等。单层 WSe_2中双激子级联发射的单光子。自然通讯 7，13409（2016）。https://doi.org/10.1038/ncomms13409[5] Prescott, S.; Iyer, P. P.; Addamane, S.; Jung, H.; Luk, T. S.; Brener, I.; Mitrofanov, O. 用于增强嵌入式单个量子发射体光子出耦的米氏超表面。Nanophotonics 2025年，14（11），1917-1925。[6] Iyer, P. P.; Prescott, S.; Addamane, S.; Jung, H.; Renteria, E.; Henshaw, J.; Mounce, A.; Luk, T. S.; Mitrofanov, O.; Brener, I. 嵌入惠更斯超表面的单个砷化镓量子点中量子化自发发射的调控。Nano Letters 2024，24（16），4749-4757。