

文章编号:1005-4642(2021)10-0001-10



高精度量子点荧光成像定位技术

陈星宇^{a,b}, 苏榕彬^{a,b}, 韦玉明^{a,b}, 刘顺发^{a,b},
姚北萌^{a,b}, 喻颖^{a,c}, 刘进^{a,b}, 李俊韬^{a,b}, 王雪华^{a,b}

(中山大学 a. 光电材料与技术国家重点实验室;
b. 物理学院; c. 电子与信息工程学院, 广东 广州 510275)

摘要: 自组装半导体量子点是目前研究的类原子系统中有可能实现理想量子光源的物理系统. 由于量子点位于高折射率材料中, 只有约 2% 的单光子能从上半空间射出, 严重制约了量子点光子技术的发展. 通过设计微纳结构可以控制光子流的出射方向, 提高收集效率. 但是在没有预先定制图案的片子上生长的量子点, 其位置和光谱都存在一定随机性. 为了最大效率利用腔的作用, 需要将量子点置于腔模场强最大处, 并让量子点发光光谱与腔谐振峰重合. 本文设计了高精度量子点荧光成像定位系统, 可实现 10 nm 的定位精度, 极大地提高了单光子的提取效率.

关键词: 单光子源; 荧光成像; 量子点; 光学定位

中图分类号: O472.3

文献标识码: A

DOI: 10.19655/j.cnki.1005-4642.2021.10.001

20 世纪初创立的量子力学, 揭示了不同于经典物理的原理和规律. 从最初的原理性验证到近几十年对量子原理的应用开发, 形成了量子通信^[1-3]、量子计算^[4-6]和量子精密测量^[7-8]等热门研究领域. 1984 年量子密钥分配和 BB84 协议^[1]的提出和 1994 年 Shor 大数因式分解算法^[4]及 1996 年 Grover 搜索算法^[5]的提出, 引起了量子研究的热潮. 之后, 量子保密通信^[2]实现了从 2 km 距离到 400 km 距离, 从地面到地空, 从干线到网络的突破, 从理论的绝对安全到现实系统安全性的提高^[3,9-10], 都取得了重要进展.

在量子信息处理中, 量子比特和多体的量子纠缠是基本要素和重要资源. 许多物理系统可以承载量子信息, 比如超导回路、囚禁离子、量子点、拓扑量子比特、金刚石色芯等. 单光子作为飞行量子比特, 与环境作用小, 可以在自由空间或光纤中长距离传播而不失相干性. 单光子的偏振态、频率^[11]、空间模式^[12]及时间模式^[13-14]都可以用来编码量子信息. 承载量子信息的单光子一方面可以直接用于光量子计算和信息处理, 例如高效多光子波色采样^[15]、量子随机行走^[16]; 另一方面

可以作为媒介, 例如做自旋-光子界面^[17-18], 传递 2 个固态量子系统的相互作用. 结合硅基光子学, 单光子除了能在自由空间被操控, 还能在高集成、可扩展的芯片上被稳健有效地操控^[19]. 因此, 确定性的触发式高品质单光子源是量子信息处理中不可或缺的量子器件.

自组装半导体量子点是当前性能最优的单光子源物理体系之一, 在低温下可以发射高质量单光子. 共振激发下, 其单光子纯度可达 99% 以上, 超过 1 000 个光子的不可分辨率达 92%^[20]. 然而, 该类型量子点位于高折射率的半导体材料中, 由于全内反射, 半导体材料内的光子难以被有效提取. 为了提高光子的收集效率, 各种微纳结构被利用, 如微柱^[21-24]、纳米线^[25-28]、微透镜^[29-33]和环形布拉格牛眼腔^[34-35]与量子点耦合. 但是, 在没有预先定制图案的片子上生长的量子点, 其位置和光谱都存在一定的随机性, 如图 1 所示. 在不采取量子点定位的情况下, 量子点与腔膜重合实现高的收集效率存在概率性^[36]. 高收集效率器件的成品率成为限制量子点单光子源进一步应用的短板.

收稿日期: 2021-04-22; **修改日期:** 2021-09-18

基金项目: 国家重点研发计划资助(No. 2016YFA0301300)

作者简介: 陈星宇(1991—), 男, 河南虞城人, 中山大学物理学院 2020 级博士研究生, 研究方向为片上量子光源. E-mail: chenxy676@mail2.sysu.edu.cn

通讯作者: 王雪华(1964—), 男, 湖南衡阳人, 中山大学物理学院教授, 博士, 研究方向为微纳光子学. E-mail: wangxueh@mail.sysu.edu.cn



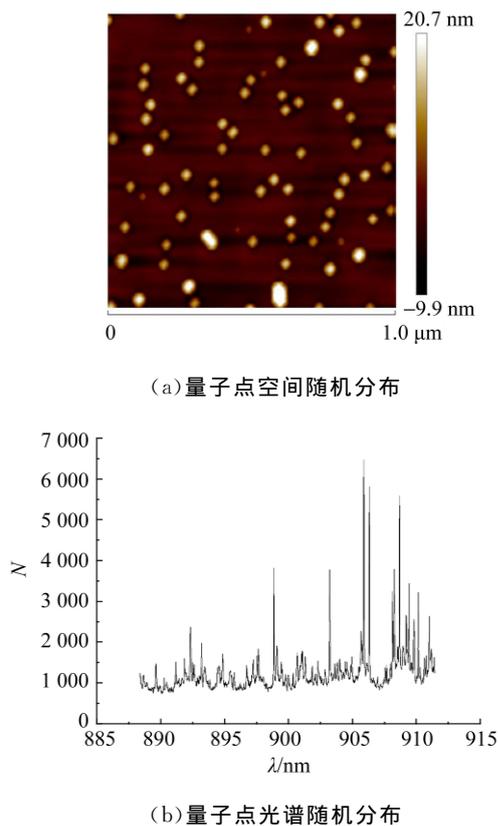


图 1 量子点分布

1 量子点定位技术

为了最大利用腔的作用,需要将量子点置于腔模场强最大的位置,并让量子点发光光谱与谐振峰重合. 其中任一点都不容易实现,要求两点同时达到,则成品率更低,从而进一步限制了该技术的集成和扩展. 解决这个问题有 2 种途径:

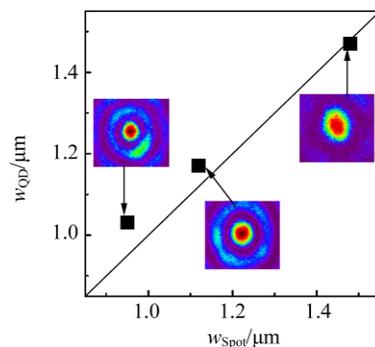
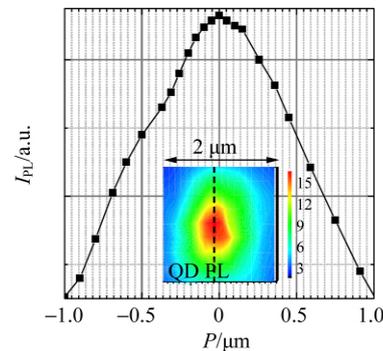
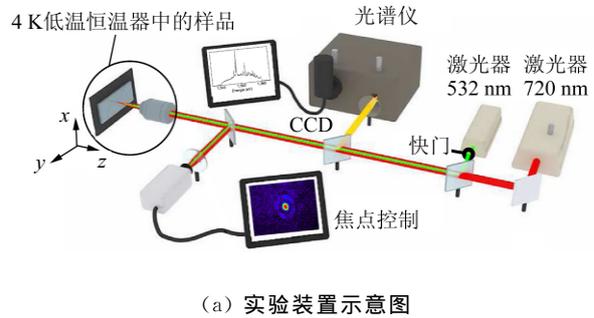
1) 研究定位生长量子点技术,由于预刻蚀界面缺陷的存在,目前定位生长的量子点性质比自组装随机生长的量子点差,退相干严重^[37-38];

2) 采用后定位方法处理,即在生长后的片子上标定出随机量子点的位置和光谱,然后根据量子点的位置和光谱,设计并制备微纳结构. 后定位方法的整体精度由定位精度和制备精度决定. 目前后定位方法主要有:双光束原位光刻^[39-40]、电子束原位光刻^[29,41-43]、量子点荧光成像定位结合电子束套刻^[35,44]以及可移动微腔技术^[45-46].

1.1 双色光束原位光刻技术

2008 年,Senellart 研究组首次利用该技术进行微柱腔的原位制备^[39]. 如图 2(a)所示,整个实验装置由冷台、位移台、CCD、光谱仪、2 台不同波长的激光器及分束器等组成. 样品涂有正性光刻

胶,并放在冷台中的压电位移台上. 显微镜物镜用于将 2 束激光聚焦到样品的同一区域. 红色激光束用于激发量子点的荧光,不影响光刻胶;绿色激光束用于曝光光刻胶. 光谱仪和 CCD 相机用于对激发的荧光进行光谱分析.

图 2 双色光束原位光刻定位技术^[39]

首先,通过扫描量子点不同位置的荧光发光强度来确定量子点位置. 图 2(b)显示了在红色激光激发下,量子点激子线发出的荧光强度与样品位置的关系,其中样品扫描精度为 20 nm. 由

图 2(b) 可得,量子点激子发射的荧光具有高斯型强度分布特征,其发光的空间宽度约为 $1 \mu\text{m}$. 进一步实验表明[图 2(c)],量子点荧光发光的空间宽度由激发样品的激发光的聚焦光斑尺寸决定. 该结果表明,量子点的俘获效率很高,激发点外的扩散可以忽略不计. 因此,可通过图 2(b) 中量子点荧光强度的最大值对应的位置信息来确定量子点位置.

在图 2 所示的实验中,收集信号的信噪比为 0.4%,对应将量子点从激发点中心移动到 50 nm 范围内不会导致量子点信号发生可测量的变化,因此得到该量子点位置定位方法的精度为 50 nm. 通过使用更尖锐的激发光束剖面或通过监测量子点的非线性光学跃迁,可以进一步提高该方法的精度.

通过该方法使红色激光束聚焦在量子点中心位置后,打开绿色激光,曝光量子点上的光刻胶,确定量子点位置. 在该位置根据量子点光谱进行微纳结构制备,最终实现微腔结构与量子点位置的重合,以及微腔共振腔与量子点光谱的重合.

由于光刻曝光的精度较低,因此该方法整体精度在亚微米级,主要用于微柱、微透镜等呈圆形的微米级光学结构的制备^[39].

1.2 电子束原位光刻技术

电子束原位光刻技术原理如图 3(a) 所示,将样品放置在具有冷台的扫描电子显微镜中. 电子束激发样品发光,通过数值孔径为 0.8 的椭圆面反射镜收集并聚焦在光谱仪中,实现光谱探测.

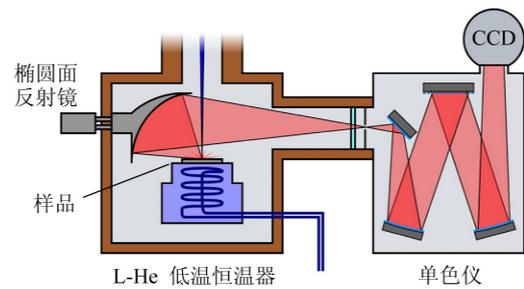
样品的具体制备过程如图 3(b) 所示.

1) 对表面旋涂 1 层具有良好低温性能的光刻胶的样品进行位置扫描,得到量子点的位置信息. 由电子束激发量子点发光,并通过光谱仪记录量子点阴极发光的光谱信号;

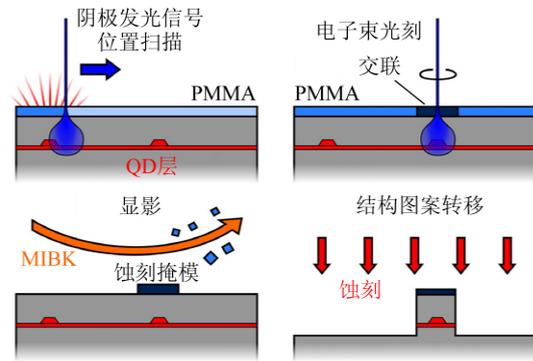
2) 在相关阴极发光信号的积分强度上,通过二维高斯拟合提取目标量子点的位置. 在这一步中,检测到的量子点发光点的大小主要取决于电子束的强度.

3) 通过电子束将微纳结构的图案写入量子点上方的光刻胶中,并将样品移至于常温环境中进行显影,以去除过度曝光区域以外的所有电子胶.

4) 将样品进行等离子刻蚀,将光刻胶的图案转移到样品上并去除残余的光刻胶,围绕量子点得到所需要的微纳结构.



(a) 实验装置示意图



(b) 样品制备示意图

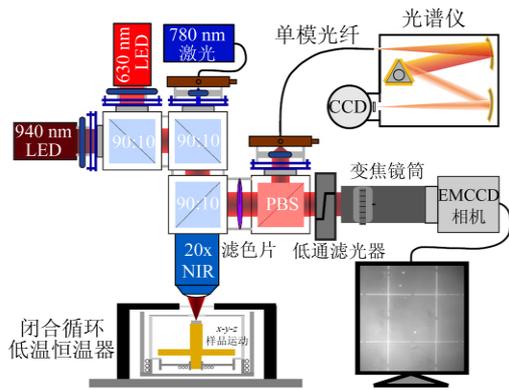
图 3 电子束原位光刻技术^[43]

该方法整体精度可达 70 nm ^[41], 可用于加工纳米级精度的微结构, 例如光子晶体、波导等任意图案. 采用调节曝光剂量的灰度曝光手段, 还可以实现微透镜等三维原位光刻^[29].

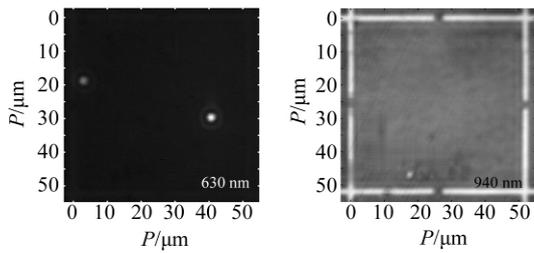
1.3 量子点荧光成像定位结合电子束套刻技术

该技术分为量子点定位和电子束曝光(Electron-beam lithography, EBL) 结构 2 个步骤, 其中定位后的 EBL 制备工艺与现有硅光子器件工艺兼容. 在定位样品之前, 在含有量子点的材料上作出一系列金属对准标记. 通常金属标记有 2 套: 一套标记用于定位量子点的相对坐标, 即荧光成像定位; 另一套用于 EBL 套刻对准.

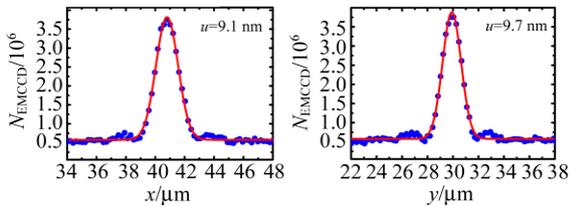
成像定位装置见图 4(a). 将样品放置冷台中, 940 nm 红外 LED 用于照明样品; 630 nm 红色 LED 或 780 nm 激光用于激发样品的荧光, 分别对应于进行大面积或单个量子点的激发. 通过成像电子倍增电荷耦合器件(Electron multiplied charged couple device, EMCCD)对量子点的光致发光和金属标记的反射光进行成像, 量子点的荧光光谱通过光谱仪记录. 通过分析成像结果, 可以得到量子点与金属标记物的相对位置[图 4(b)~(c)], 其位置精度小于 30 nm .



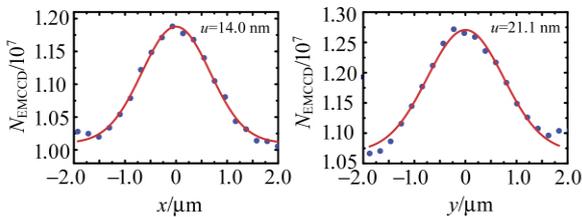
(a) 成像定位装置示意图



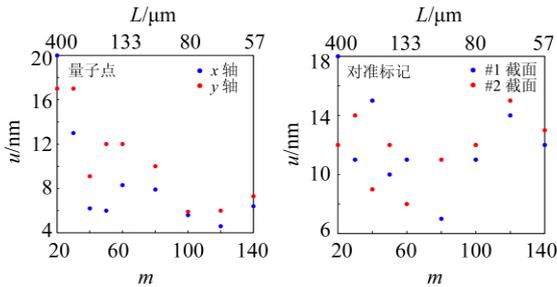
(b) 单个量子点荧光成像 (c) 金属标记物反射成像



(d) 量子点荧光成像数据及高斯函数拟合



(e) 金属标记物成像数据及高斯拟合函数



(f) 高斯拟合峰值位置不确定性与放大倍率的关系

图 4 量子点荧光成像定位结合电子束套刻技术^[35]

在样品表面旋涂 1 层光刻胶,进行 EBL 套刻. 该步骤利用金属标记物的坐标,围绕量子点进行微纳结构的 EBL 曝光. 然后将曝光后的样品进行显影、等离子刻蚀、去胶,然后将结构图案转移到样品上.

该方法整体精度可接近 40 nm,该精度包含量子点成像定位的精度和电子束套刻的精度. 由于采用了 EBL 技术,因此该方法可以用于制备各种高精度微纳结构,如高品质因子微腔.

1.4 可移动微腔技术

可移动微腔是开放的腔体,如图 5 所示,由具有高反射凹面镜的功能化光纤和包含量子点的平面分布布拉格反射镜组成. 光纤用于激发和收集量子点荧光,其端面与样品之间的距离由压电致动器精确控制,以调整腔体. 通常样品的反射率要大于外部凹面镜的反射率,以防止信号光从底部泄露. 光纤端面的凹面镜通过键合法制备:在基板上通过凸面模板制备布拉格结构凹面镜,将单模光纤定位在凹面镜中心的正上方,最后用紫外光固化环氧树脂将光纤和凹面镜粘合,并将其与基板分离. 包含量子点的平面分布布拉格反射镜由分子束外延方法制备:在 GaAs 基底上交替生长 $\lambda/4n$ 厚度的 AlAs/GaAs 层,然后生长 1 层厚度为 $4\lambda/n$ 的 GaAs 层(n 为材料的折射率),其中量子点层在 GaAs 层中间.

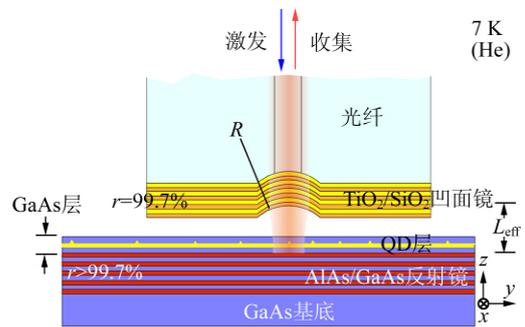


图 5 可移动微腔示意图^[45]

该结构能产生稳定的腔体. 通过横向移动,能实现量子点与腔膜横向位置的对准;通过纵向移动,可以实现腔体与单模光纤模式匹配以及精确调节,例如通过精确调节腔长来实现基于激子双激子发射的纠缠光子源所需要的双共振耦合. 该方法可达到亚纳米级的精度^[46],但稳定性差,不利于集成.

上述定位方法中,双色光束原位光刻技术和电子束原位光刻技术将量子点激发和曝光集成到同一光路中方便操作,但逐点扫描的速度较慢,微纳结构制备精度也较低;量子点荧光成像定位结合电子束套刻技术通过成像得到量子点位置,速度较快,同时 EBL 曝光为高精度微纳结构的制备提供了可能性;可移动微腔技术可以移动光纤或者样品,实现腔膜和量子点的对准,精度最高,但操作复杂,稳定性差.除此之外,还有原子力显微镜协助原位生长量子点^[47],但量子点容易畸变.

2 高精度量子点荧光成像定位系统

为进一步提高量子点定位的精度,在上述量子点荧光成像定位结合电子束套刻方法的基础上,发展了定位技术.具体步骤如下:

- 1) 制备金属标记物,为量子点提供相对坐标;
- 2) 对带有标记物的样品进行荧光成像,得到量子点和标记的图像(光路如图 6 所示);
- 3) 对成像图进行分析,确定量子点相对于标记物的位置.

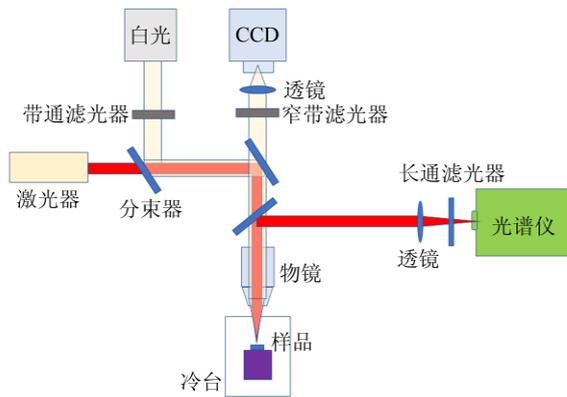


图 6 高精度量子点荧光成像定位系统示意

2.1 金属标记物的制备

定位用的标记方法是 2 套金属标记相结合. $10\ \mu\text{m} \times 10\ \mu\text{m}$ 方形标记用于 EBL 套刻认准, $2\ \mu\text{m}$ 宽脉络型标记用于成像时校准量子点位置. 制备流程如图 7 所示.

1) 匀胶: 转移完的样品依次经过三氯乙烯超声, 丙酮超声, 异丙醇超声, 去离子水超声, 氮气吹干等工序; 然后在匀胶机上匀聚甲基丙烯酸甲酯 (Polymethyl methacrylate, PMMA), 并在热板上烘烤, 胶厚约 $600\ \text{nm}$.

2) 电子束曝光: 进行电子束曝光标记版图.

使用甲基异丁基酮 (Methyl isobuty ketone, MI-BK) 显影, 异丙醇定影, 在 PMMA 胶上形成标记版图.

3) 镀金属并去胶: 用电子束蒸镀方法蒸镀 Ti 层和 Au 层, 然后利用丙酮溶解去除 PMMA 后得到金属标记.

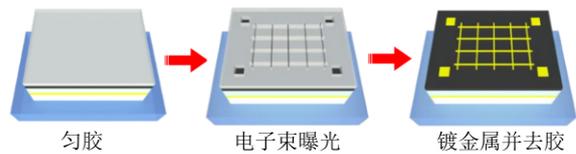
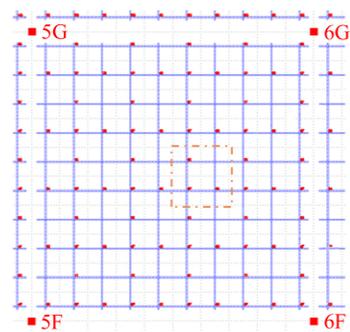


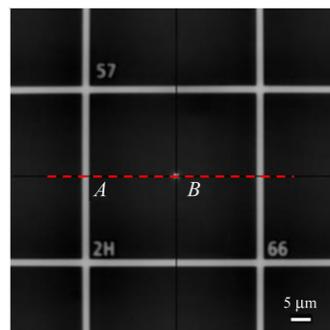
图 7 定位金属标记制备流程示意图

2.2 成像质量分析

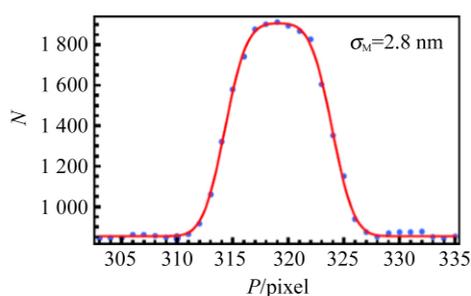
如图 8(a) 所示, 红色方块为用于 EBL 套刻的方形标记, 方块之间相隔 $500\ \mu\text{m} \times 500\ \mu\text{m}$. 通过荧光成像得到图 8(b), 图中的亮点是量子点荧光成像, 亮条纹对应 8(a) 图中的脉络型标记. 通过拟合亮点和脉络型标记的强度, 得到脉络型标记和量子点的中心, 如图 8(c)~(d) 所示. 最后, 根据荧光成像图中量子点相对于脉络型标记左下角点的相对坐标, 以及版图中脉络型标记相对方形标记的位置, 得到量子点相对方形标记的坐标, 用于后续 EBL 套刻定位制备结构.



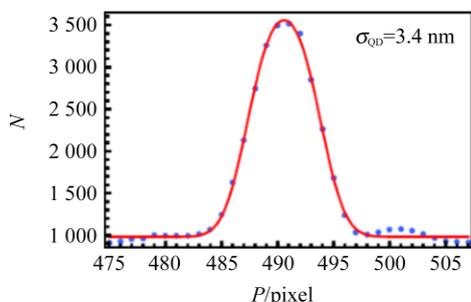
(a) 标记的版图



(b) EMCCD 量子点荧光和背景标记成像



(c) 标记成像数据拟合



(d) 量子点成像数据拟合

图 8 量子点荧光成像

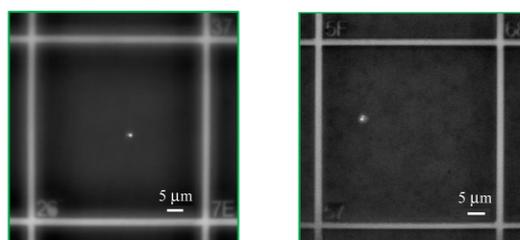
以上过程中,实现准确定位最关键的步骤在于量子点荧光和背景同时成像,定位精度随成像质量降低而降低.要实现高质量成像,有下面几点要求:

1)消除冷台窗口的影响.成像时样品置于冷台里面,成像光路在冷台外面,由于冷台石英窗口的存在,如果用普通物镜,成像质量较差^[35].这个问题有2种解决方法:一种是将耐低温的物镜一起置于冷台里面;另一种是在冷台外用补偿物镜.本文采用第2种方法,使用 Olympus 公司的补偿物镜(LCPLN50XIR).

2)背景标记照明成像所用的波长和量子点荧光波长要在成像系统的消色差范围内.滤色片、半反半透镜等元件位于物镜后和成像透镜前的平行光部分,一般不会产生影响.主要要求物镜和成像透镜是消色差器件,否则无法实现背景和量子点同时共聚焦成像.图9(a)为脉络型标记处于离焦状态,图9(b)为多个量子点发光在空间上相互叠加.

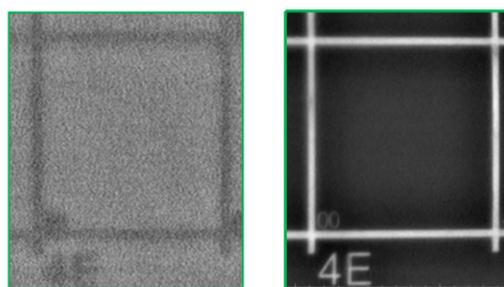
3)照明光对 Au 标记的反射率要大于无标记区,保证背景成像的对比度.比如在本文应用中,除了 Au 标记,在 GaAs 层和 SiO₂ 层下面还有 1 层 Au 反射层^[48],标记成像选用不同波长的光照

明,成像效果差别明显.如图10所示,不同波长的光是用带宽10nm的带通滤色片加在白光之后滤得.图11给出了厚度为100nm的4种金属的反射率,可以发现对于波长大于500nm的光,Au的反射率大于50%.对于波长小于500nm的光,Au已经不是好的反射体而类似吸收体,因而成像效果最差,信噪比最低.



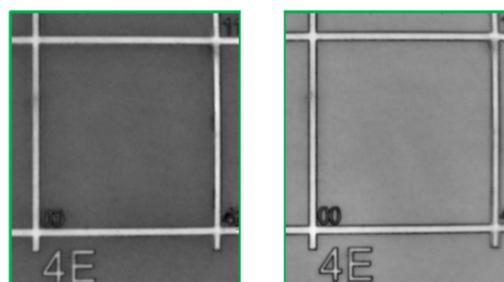
(a) 无法同时共聚焦 (b) 邻近量子点成像相互影响

图 9 量子点荧光成像质量影响因素



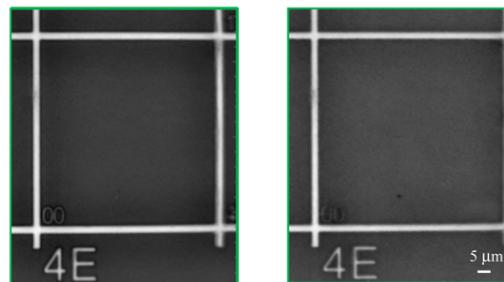
(a) 480 nm

(b) 520 nm



(c) 560 nm

(d) 600 nm



(e) 640 nm

(f) 680 nm

图 10 不同波长照明光下背景标记成像

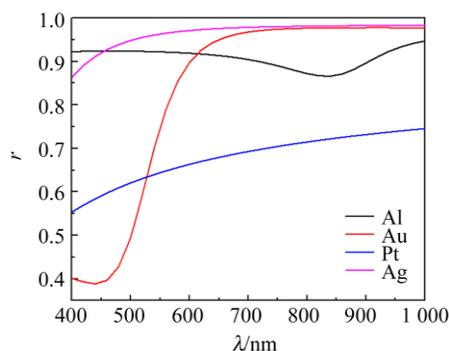


图 11 不同金属层的反射率

图 10(a)显示波长为 480 nm 时 Au 标记颜色比 GaAs 深,说明此时 Au 层的反射已经低于 GaAs 界面. 4 K 下 GaAs 的带边在 820 nm 附近,若用大于 800 nm 的光照明,GaAs 层不存在吸收或吸收很弱,反射主要来自于 Au 标记和 SiO₂ 下面的 Au 反射层,两者几乎 100% 反射,不存在对比度. 由于 Au 标记侧壁散射,因此 Au 标记的边缘比其他区域黑. 成像波长在 500 ~ 700 nm 之间. 至于最佳成像波长选择,可以通过 10 nm 带通滤色片来扫描得到. 因为空气/GaAs, GaAs/SiO₂, SiO₂/Au 3 个界面的反射光存在干涉效应,应使反射光在 GaAs 层里面相干相长增强吸收. 在金属反射率变化不大时, GaAs 层的吸收越强,成像对比度越高. 从图 10 可以看出,这个样品的最佳成像波长在 640 nm 附近.

4) 激发量子点时附带的非量子点荧光部分要很好地滤除. 用 780 nm 连续激光采用上激发方式激发量子点,非量子点荧光主要有激光的散射光、GaAs 缺陷态发光(820 nm 附近)、浸润层发光(870 nm 附近)等. 这些可以用相应的陷波滤光片滤除.

5) 量子点密度需要足够低,保证 1 个激发光斑内只有 1 个量子点. 若量子点过密,量子点的成像强度分布会叠加上附近其他量子点的强度,使最强点位置偏移量子点中心,强度包络也不再是高斯分布,如图 9(b) 所示.

6) 去除照明背景的影响. 非均匀照明背景会使定位结果叠加上系统性偏差. 为了减小非均匀照明背景的影响,一种方法是减小脉络型标记所围的面积,利用较均匀的中间照明成像;另一种是采用图像后处理,通过低通滤波去除背景.

2.3 成像数据后处理

由于照明光强度中间强、边缘弱,如图 12(a) 所示,图像经常带有非均匀背景,相对于标记和量子点,这属于低频信号,可以通过图像处理技术去背景. 图 12(b) 是由图 12(a) 减去低频信号得到,可以看到,非均匀背景已经被去除,提高了图像对比度.

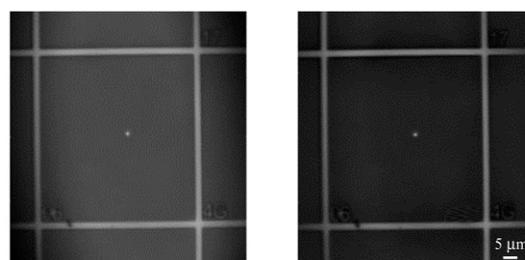


图 12 图像处理:低通滤波去背景

得到高质量的量子点荧光与背景标记同时成像的图像后,需要从中提取出量子点和标记的中心位置. 由于艾里斑效应,横向几十 nm 的量子点荧光成像是弥散的光斑(~ 800 nm). 如果只取最亮像素点为量子点坐标,此时精度不会大于 1 pixel. 本文成像系统中,1 pixel 代表的距离约 112 nm. 为了提高定位精度,取最亮像素点附近的点一起进行拟合.

如图 8(b) 所示,以最亮像素点 ($x_{\max}, y_{\max}, I_{\max}$) 为中心,做 1 条横向直线,取直线上点的数据. 取量子点左右各 10 个点的数据用高斯函数(1)进行拟合,结果如图 8(d) 所示,得到量子点中心位置横坐标 x_0 :

$$f(x) = A \exp \left[\frac{-(x-x_0)^2}{2\sigma^2} \right], \quad (1)$$

其中, A 为常量, σ 为拟合高斯函数的半高全宽.

取标记附近数据点,因为标记有宽度,故采用高斯函数和矩形函数的卷积式(2)进行拟合:

$$f(x) = \left[A \exp \left(\frac{-x^2}{2\sigma^2} \right) \right] * \text{rect} \left(\frac{x-x_{L/R}}{w} \right), \quad (2)$$

其中, w 是 Au 标记的宽度. 如图 8(c) 所示,通过式(2),可得到左边脉络标记的坐标 x_L 和右边脉络标记的坐标 x_R .

同理,做纵向直线,得量子点中心位置纵坐标 y_0 、上边脉络标记坐标 y_T 和下方脉络标记坐标

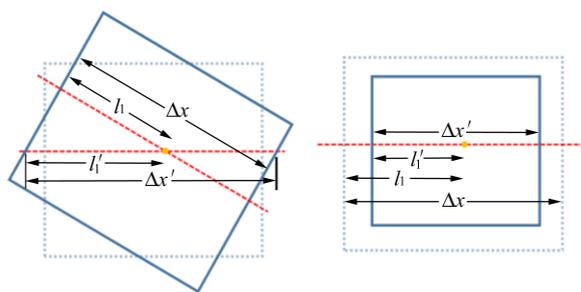
y_B . 假设设计的脉络型标记的网格大小是 $\Delta x \times \Delta y$ (本文中 $\Delta x = \Delta y = 50 \mu\text{m}$), 可得量子点相对于标记左下角的坐标为

$$x_r = \frac{x_0 - x_L}{x_R - x_L} \Delta x, \quad (3)$$

$$y_r = \frac{y_0 - y_B}{y_T - y_B} \Delta y, \quad (4)$$

这里是比例式, 与成像系统的放大倍率、EMCCD 像素尺寸和标记正值与否没有关系, 如图 13 所示, 它们的比例关系不变:

$$\frac{l_1'}{\Delta x'} = \frac{l}{\Delta x}. \quad (5)$$



(a) 图像旋转

(b) 图像缩放

图 13 量子点定位算法

通过处理对比度、信噪比、图形畸变等优化成像质量后, 采用本文拟合方法得出的定位精度可达到 10 nm.

在制备微纳结构时, 高精度量子点定位可以帮助准确识别量子点的相对位置, 从而在后续 EBL 套刻制备中, 将量子点置于腔膜强度最大处, 实现最大限度地利用微腔的普赛尔(Purcell)增强效应来提高单光子的亮度和全同性. 利用荧光定位技术, 进行了量子点的高精度定位, 然后根据量子点在平板上的位置制备出圆布拉格牛眼微腔、圆环腔、微柱腔等纳米结构^[48-51], 并在该结构上率先实现了高质量单光子源^[50], 高亮度轨道角动量单光子源^[49], 高亮度左右旋分离单光子源^[50]以及高亮度、高纠缠保真度和高全同性的纠缠光子对^[48].

如表 1 所示, 在本文工作中^[48], 尽管腔膜与量子点波长有偏差, 但是依然实现了较大的 Purcell 增强, 这充分证明了量子点空间位置的优越性, 即量子点位于腔膜较大处. 由于腔膜的 Purcell 增强, 单光子被高效提取.

表 1 采用荧光定位系统的样品单光子性能^[48]

器件	单光子效率	腔波长/nm	X 波长/nm	X Purcell 因子
1	0.86	772.43	770.05	3.5
2	0.80	769.36	770.86	2.6
3	0.76	767.39	777.51	3.1
4	0.70	767.18	778.91	3.1

注: X 波长表示激子线波长, X Purcell 因子表示腔膜对应于激子线峰位的 Purcell 因子.

3 结束语

低温环境下, 自组装半导体量子点可以发射高质量单光子, 成为当前最优的单光子源体系之一. 但是, 位置和光谱的随机性, 严重影响了量子点与微纳结构确定性耦合, 制约了单光子的提取效率. 本文提出的量子点荧光成像定位技术实现了 10 nm 的高定位精度, 通过优化电子束套刻精度, 可实现近 10 nm 的整体定位精度. 如此高的定位精度可实现微结构与量子点高度耦合, 极大地提高了单光子的提取效率.

参考文献:

- [1] Bennett C H, Brassard G. Quantum cryptography: Public key distribution and coin tossing [J]. In Proceedings of IEEE International Conference on Computers Systems and Signal Processing, 1984, 560: 175-179.
- [2] Waks E, Inoue K, Santori C, et al. Secure communication: Quantum cryptography with a photon turnstile [J]. Nature, 2002, 420(6917): 762.
- [3] Lo H K, Curty M, Qi B. Measurement-device-independent quantum key distribution [J]. Physical Review Letters, 2012, 108(13): 130503.
- [4] Shor P W. Algorithms for quantum computation: discrete logarithms and factoring [C]//Proceedings 35th Annual Symposium on Fundamentals of Computer Science, 1994: 124-134.
- [5] Grover L K. A fast quantum mechanical algorithm for database search [C]//Proceedings 28th Annual ACM Symposium on the Theory of Computing, 1996: 212-219.
- [6] Kandala A, Mezzacapo A, Temme K, et al. Hardware-efficient variational quantum eigensolver for small molecules and quantum magnets [J]. Nature, 2017, 549(7671): 242-246.

- [7] Moller C B, Thomas R A, Vasilakis G, et al. Quantum back-action-evading measurement of motion in a negative mass reference frame [J]. *Nature*, 2017,547:191-195.
- [8] Dixon P B, Starling D J, Jordan A N, et al. Ultra-sensitive beam deflection measurement via interferometric weak value amplification [J]. *Physical Review Letters*, 2009,102(17):173601.
- [9] Lydersen L, Wiechers C, Wittmann C, et al. Hacking commercial quantum cryptography systems by tailored bright illumination [J]. *Nature Photonics*, 2010,4(10):686-689.
- [10] Lo H K, Curty M, Tamaki K. Secure quantum key distribution [J]. *Nature Photonics*, 2015,8(8):595-604.
- [11] Olislager L, Woodhead E, Huy K P, et al. Creating and manipulating entangled optical qubits in the frequency domain [J]. *Physical Review A*, 2014,89(5):052323.
- [12] Mair A, Vaziri A, Weihs G, et al. Entanglement of the orbital angular momentum states of photons [J]. *Nature*, 2001,412(6844):313-316.
- [13] Simon C, Poizat J P. Creating single time-bin-entangled photon pairs [J]. *Physical Review Letters*, 2005,94(3):030502.
- [14] Jayakumar H, Predojevic A, Kauten T, et al. Time-bin entangled photons from a quantum dot [J]. *Nature Communications*, 2014,5:4251.
- [15] Wang H, He Y, Li Y H, et al. High-efficiency multiphoton boson sampling [J]. *Nature Photonics*, 2017,11(6):361-365.
- [16] Tang H, Lin X F, Feng Z, et al. Experimental two-dimensional quantum walk on a photonic chip [J]. *Science Advances*, 2018,4(5):eaat3174.
- [17] Lodahl P, Mahmoodian S, Stobbe S. Interfacing single photons and single quantum dots with photonic nanostructures [J]. *Reviews of Modern Physics*, 2015,87(2):347-400.
- [18] He Y, He Y M, Wei Y J, et al. Quantum state transfer from a single photon to a distant quantum-dot electron spin [J]. *Physical Review Letters*, 2017,119(6):060501.
- [19] Wang J W, Paesani S, Ding Y H, et al. Multidimensional quantum entanglement with large-scale integrated optics [J]. *Science*, 2018,360(6389):285-291.
- [20] Wang H, Duan Z C, Li Y H, et al. Near-transmission-limited single photons from an efficient solid-state quantum emitter [J]. *Physical Review Letters*, 2016,116(21):213601.
- [21] Ding X, He Y, Duan Z C, et al. On-demand single photons with high extraction efficiency and near-unity indistinguishability from a resonantly driven quantum dot in a micropillar [J]. *Physical Review Letters*, 2016,116(2):020401.
- [22] Somaschi N, Giesz V, Santis L D, et al. Near-optimal single-photon sources in the solid state [J]. *Nature Photonics*, 2016,10(5):340-345.
- [23] Lermer M, Gregersen N, Dunzer F, et al. Bloch-wave engineering of quantum dot micropillars for cavity quantum electrodynamics experiments [J]. *Physical Review Letters*, 2012,108(5):057402.
- [24] Gazzano O, de Vasconcellos S M, Arnold C, et al. Bright solid-state sources of indistinguishable single photons [J]. *Nature Communications*, 2013,4:1425.
- [25] Claudon J, Bleuse J, Malik N S, et al. A highly efficient single-photon source based on a quantum dot in a photonic nanowire [J]. *Nature Photonics*, 2010,4(3):174-177.
- [26] Munsch M, Malik N S, Dupuy E, et al. Dielectric gaas antenna ensuring an efficient broadband coupling between an inas quantum dot and a gaussian optical beam [J]. *Physical Review Letters*, 2013,110(17):177402.
- [27] Reimer M E, Bulgarini G, Akopian N, et al. Bright single-photon sources in bottom-up tailored nanowires [J]. *Nature Communications*, 2012,3:737.
- [28] Bulgarini G, Reimer M E, Bavinck M B, et al. Nanowire waveguides launching single photons in a gaussian mode for ideal fiber coupling [J]. *Nano Letters*, 2014,14(7):4102-4106.
- [29] Gschrey M, Thoma A, Schnauber P, et al. Highly indistinguishable photons from deterministic quantum-dot microlenses utilizing three-dimensional in situ electron-beam lithography [J]. *Nature Communications*, 2015,6:7662.
- [30] Devaraj V, Baek J, Jang Y D, et al. Design for an efficient single photon source based on a single quantum dot embedded in a parabolic solid immersion lens [J]. *Optics Express*, 2016,24(8):8045-8053.
- [31] Fischbach S, Schlehahn A, Thoma A, et al. Sin-

- gle quantum dot with microlens and 3d-printed micro-objective as integrated bright single-photon source [J]. *ACS Photonics*, 2017, 4(6):1327-1332.
- [32] Thoma A, Schnauber P, Bohm J, et al. Two-photon interference from remote deterministic quantum dot microlenses [J]. *Applied Physics Letters*, 2017, 110(1):011104.
- [33] Heindel T, Thoma A, von Helversen M, et al. A bright triggered twin-photon source in the solid state [J]. *Nature Communications*, 2017, 8:14870.
- [34] Davanco M, Rakher M T, Schuh D, et al. A circular dielectric grating for vertical extraction of single quantum dot emission [J]. *Applied Physics Letters*, 2011, 99(4):041102.
- [35] Sapienza L, Davanco M, Badolato A, et al. Nanoscale optical positioning of single quantum dots for bright and pure single-photon emission [J]. *Nature Communications*, 2015, 6:7833.
- [36] Wang H, He Y M, Chung T H, et al. Towards optimal single-photon sources from polarized microcavities [J]. *Nature Photonics*, 2019, 13(11), 770-775.
- [37] Yang L, Carter S G, Bracker A S, et al. Optical spectroscopy of site-controlled quantum dots in a schottky diode [J]. *Applied Physics Letters*, 2016, 108(23):233102.
- [38] Lyasota A, Jarlov C, Gallo P, et al. Deterministic coupling of a system of multiple quantum dots to a single photonic cavity mode [J]. *Applied Physics Letters*, 2017, 111(5):053103.
- [39] Dousse A, Lanco L, Suffczynski J, et al. Controlled light-matter coupling for a single quantum dot embedded in a pillar microcavity using far-field optical lithography [J]. *Physical Review Letters*, 2008, 101(26):267404.
- [40] Sartison M, Portalupi S L, Gissibl T, et al. Combining in-situ lithography with 3d printed solid immersion lenses for single quantum dot spectroscopy [J]. *Scientific Reports*, 2017, 7:39916.
- [41] Kaganskiy A, Gschrey M, Schlehahn A, et al. Advanced in-situ electron-beam lithography for deterministic nanophotonic device processing [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2015, 86(7):073903.
- [42] Gschrey M, Gericke F, Schussler A, et al. In situ electron-beam lithography of deterministic single-quantum-dot mesa-structures using low-temperature cathodoluminescence spectroscopy [J]. *Applied Physics Letters*, 2013, 102(25):251113.
- [43] Gschrey M, Schmidt R, Schulze J H, et al. Resolution and alignment accuracy of low-temperature in situ electron beam lithography for nanophotonic device fabrication [J]. *Journal of Vacuum Science & Technology B*, 2015, 33(2):021603.
- [44] Liu J, Davanco M I, Sapienza L, et al. Cryogenic photoluminescence imaging system for nanoscale positioning of single quantum emitters [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2017, 88(2):023116.
- [45] Muller A, Flagg E B, Metcalfe M, et al. Coupling an epitaxial quantum dot to a fiber-based external-mirror microcavity [J]. *Applied Physics Letters*, 2009, 95(17):173101.
- [46] Greuter L, Starosielec S, Najer D, et al. A small mode volume tunable microcavity: Development and characterization [J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 105(12):121105.
- [47] Herranz J, Gonzalez L, Wewior L, et al. Study of growth parameters for single in As QD formation on GaAs(001) patterned substrates by local oxidation lithography [J]. *Crystal Growth & Design*, 2015, 15(2):666-672.
- [48] Liu J, Su R B, Wei Y M, et al. A solid-state source of strongly entangled photonpairs with high brightness and in distinguish ability [J]. *Nature Nanotechnology*, 2019, 14:586-593.
- [49] Chen B, Wei Y M, Zhao T M, et al. Bright solid-state sources for single photons with orbital angular momentum [J]. *Nature Nanotechnology*, 2021, 16(3):302-307.
- [50] Liu S F, Wei Y M, Su R L, et al. A deterministic quantum dot micropillar single photon source with >65% extraction efficiency based on fluorescence imaging method [J]. *Scientific Reports*, 2017, 7:13986.
- [51] Bao Y J, Lin Q L, Su R B, et al. On-demand spin-state manipulation of single-photon emission from quantum dot integrated with metasurface [J]. *Science Advances*, 2020, 6(31):8761.

(下转 28 页)

Effect of wavefront aberration on 3D point-spread function in two-photon fluorescence microscopy

JIN Cheng, KONG Ling-jie

(Department of Precision Instrument, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

Abstract: Two-photon microscopy has been widely adopted in biomedical study, such as neuroscience and immunology. However, suffering from wavefront aberrations resulting from the inherent optical properties and sample alignment, etc, the imaging quality will be degraded. Here, we analyzed the effect of wavefront aberrations, described by Zernike polynomials, on 3D point-spread function in two-photon fluorescence microscopy. Besides, we performed experiments for verification with the spherical aberration as an example.

Key words: optical microscopy; two-photon fluorescence microscopy system; wavefront aberration; point-spread function; Zernike polynomials

[责任编辑:郭 伟]

(上接 10 页)

High precision quantum dot fluorescence imaging positioning technique

CHEN Xing-yu^{a,b}, SU Rong-bin^{a,b}, WEI Yu-ming^{a,b}, LIU Shun-fa^{a,b},
YAO Bei-meng^{a,b}, YU Ying^{a,c}, LIU Jin^{a,b}, LI Jun-tao^{a,b}, WANG Xue-hua^{a,b}

(a. State Key Laboratory of Optoelectronic Materials and Technologies;

b. School of Physics; c. School of Electronics and Information Technology,

Sun Yat-Sen University, Guangzhou 510275, China)

Abstract: Self-assembled semiconductor quantum dots are one of the most likely candidate the physical systems to realize ideal quantum light sources among atom-like systems. But only about 2 percent of single photons can be escaped since the quantum dots are located in the high refractive index materials. The nano structures (e. g. the cavity) can affect the emission direction and then improve the collection efficiency. In order to maximize this effect, it is necessary to place the quantum dot in the place where the cavity mode is the strongest, and match its emission spectrum to the cavity resonator peak. However, the position and spectrum of the quantum dots are random in the wafer as the pattern has not been designed. The quantum dots are prepared at the maximum of the cavity mode to reach the maximal effect of the cavity and realize the resonance between the dot spectrum and the harmonic cavity peaks. In this paper, a high precision quantum dot fluorescence imaging technique with the 10 nm resolution was proposed to solve this problem and increase the efficiency of single photons extraction.

Key words: single-photon source; fluorescence imaging; quantum dots; optical positioning

[责任编辑:任德香]