

# Отрицательно заряженные азотно-вакансионные центры в кристалле карбида кремния $6H\text{-}^{28}\text{SiC}$

© Ф.Ф. Мурзаханов<sup>1</sup>, Г.В. Мамин<sup>1</sup>, М.А. Садовникова<sup>1</sup>, Д.В. Шуртакова<sup>1</sup>, О.П. Казарова<sup>2</sup>, М.Р. Гафуров<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Институт физики, Казанский (Приволжский) федеральный университет, 420008 Казань, Россия

<sup>2</sup> Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: murzakhanov.fadis@yandex.ru

Поступила в Редакцию 19 апреля 2024 г.

В окончательной редакции 14 августа 2024 г.

Принята к публикации 30 октября 2024 г.

Техниками высокочастотного электронного парамагнитного резонанса идентифицированы высокоспиновые ( $S = 1$ ) центры окраски в изотопно-модифицированном кристалле  $6H\text{-}^{28}\text{SiC}$ . Определены компоненты спинового гамильтониана ( $g$ ,  $D$ ,  $A$ ) отрицательно заряженных азотно-вакансионных ( $NV^-$ ) центров и изучено влияние режимов оптического возбуждения на их релаксационные характеристики. Полученные результаты доказывают потенциальную возможность использования  $NV^-$ -дефектов в  $6H\text{-}^{28}\text{SiC}$  для материальной реализации кубитов и спин-фотонных интерфейсов.

**Ключевые слова:** спиновые дефекты, карбид кремния, оптическая поляризация.

DOI: 10.61011/FTP.2024.09.59307.6309A

## 1. Введение

Квантово-механическая теория навсегда изменила классический взгляд на, казалось бы, привычный и хорошо изученный мир, представив интерпретацию физических явлений и наблюдений в принципиально новом виде. По прошествии более одного столетия с момента ее зарождения квантовая механика вновь дает исследователям надежду на прорыв, на этот раз вычислительного тупика, связанного с достижением предела в производительной мощности современных компьютеров [1]. Предполагается, что развитие квантовых технологий уже через короткое время позволит решить ряд междисциплинарных проблем и задач, непосильных классическим аналогам [1,2].

Материальная база квантовых процессоров может быть представлена в виде набора кубитов в структурно-защищенной матрице, являющихся основой для организации квантовых симуляторов [2]. Из всего многообразия физических реализаций кубитов особо выделяющимися кандидатами являются дефекты в широкозонных полупроводниковых кристаллах, обладающие высокоспиновым состоянием и спектрами оптического поглощения и излучения в видимом и инфракрасном (ИК) диапазонах [3,4]. Эффективное взаимодействие оптического кванта возбуждения и электронного состояния дефекта делает центр окраски привлекательным объектом для создания спин-фотонных интерфейсов, способных работать при комнатной температуре вместе с существующей оптоэлектронной техникой. Кристалл карбида кремния ( $\text{SiC}$ ) может служить матрицей-хозяином для большого семейства центров окраски, являясь полупроводником с широким спектром применения [5,6].

## 2. Материал

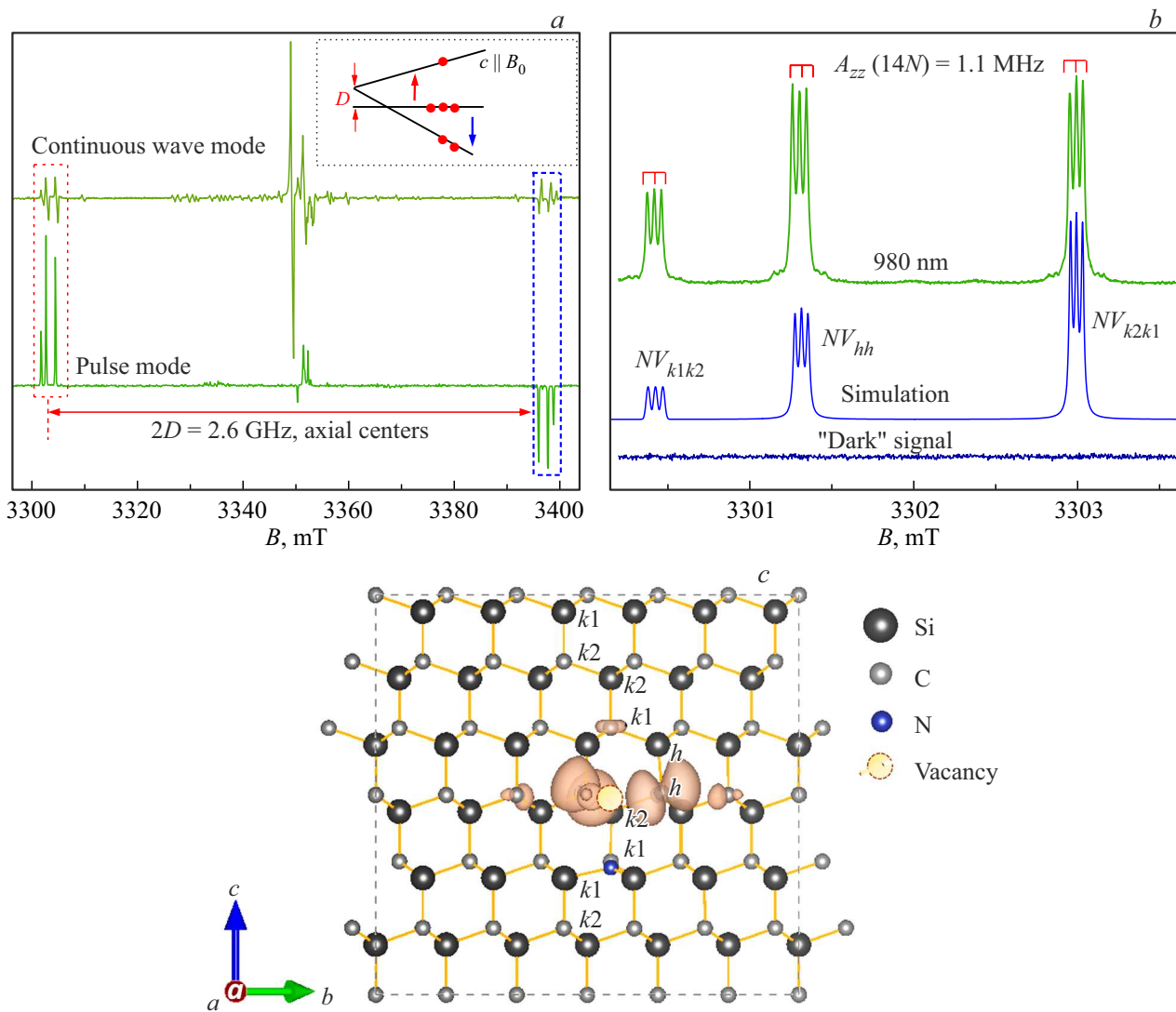
В данной работе исследованы кристаллы  $6H\text{-SiC}$  с изотопным обогащением ядрами  $^{28}\text{Si}$  (ядерный спин  $I = 0$ ), выращенные путем высокотемпературной сублимации из газовой фазы в твердую [7]. Концентрация азота в кристалле  $6H\text{-}^{28}\text{SiC}$  составляла  $C \approx 10^{17} \text{ см}^{-3}$ . Образцы  $6H\text{-}^{28}\text{SiC}$  были облучены электронами с энергией 2 МэВ и дозой  $4 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ , после чего отжигались при температуре  $T = 900^\circ\text{C}$  в атмосфере аргона в течение 2 ч.

## 3. Методика эксперимента

Образцы изучены методом высокочастотного (94 ГГц, W-диапазон) электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) с использованием спектрометра Bruker Elexsys E680. Необратимый распад электронного спинового эха (ЭСЭ) был получен с помощью последовательности Хана ( $\pi/2 - \tau - \pi - \tau - \text{ЭСЭ}$ ) с длительностью импульсов  $\pi/2 = 40 \text{ нс}$ ,  $\pi = 80 \text{ нс}$  и межимпульсным интервалом  $\tau = 1.2 \text{ мкс}$ . Время поперечной релаксации ( $T_2$ ) получено при фиксированном  $B_0$  и увеличении интервала  $\tau$  с шагом 64 нс. Используются непрерывные твердотельные лазеры с  $\lambda = 980$  и 1064 нм с выходной мощностью  $P$  до 500 мВт.

## 4. Обсуждение результатов

Без облучения светом в широком температурном диапазоне (297–50 К) сигнал ЭПР в образцах был меньше чувствительности спектрометра. При включении лазера наблюдаются спектры ЭПР исследуемых центров

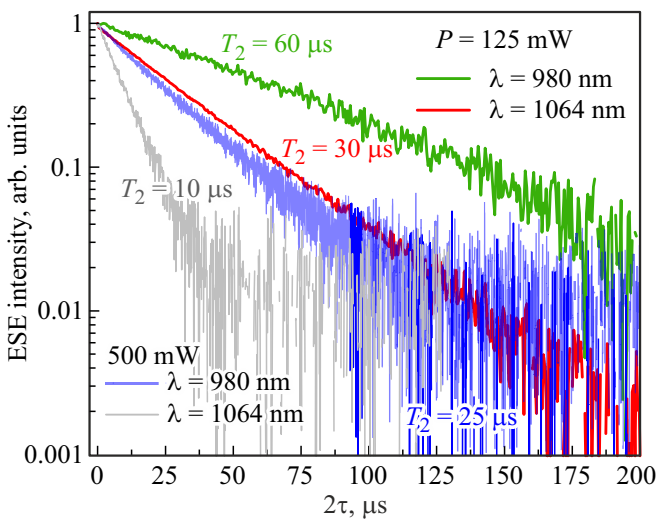


**Рис. 1.** *a* — спектры ЭПР (980 нм) в стационарном (вверху) и импульсном (внизу) режимах при  $c \parallel B_0$ . На вставке показаны спиновые уровни дефекта с  $S = 1$  под действием оптического возбуждения; *b* — низкополевая компонента тонкой структуры  $NV^-$ -центра в импульсном режиме (зеленая линия — эксперимент (980 нм), синяя линия — симуляция с параметрами спинового гамильтониана, приведенными в тексте статьи), выделенная прямоугольником на рис. 1, *a*. „Темновой“ сигнал представлен фиолетовым цветом; *c* — модель дефекта  $NV^-$ -центра в кристаллической решетке  $6H$ -SiC. (Цветной вариант рисунка представлен в электронной версии статьи).

окраски в кристалле  $6H$ - $^{28}\text{SiC}$  (рис. 1, *a* и *b*), состоящие из резонансных поглощений дефектов различной природы. Интересующие компоненты выделены прямоугольниками (рис. 1, *a*), которые связаны с отрицательно заряженными  $NV^-$ -центрами с электронным спином  $S = 1$ . Тонкая структура с центром тяжести спектра при  $g = 2.003$  (спиновая природа магнетизма) вызвана расщеплением спиновых подуровней в нулевом магнитном поле величиной  $D \approx 1.3$  ГГц из-за спин-спиновой взаимоделия [8]. Оптическое возбуждение приводит к преимущественному заселению состояния с  $M_S = 0$  (см. вставку на рис. 1, *a*), образуя тем самым инверсию населенности и сигнал микроволнового излучения (высокополевая компонента). Учитывая отсутствие сигнала

ЭПР в кристаллах без светового воздействия, можно предположить, что степень поляризации электронной системы близка к 100%, необходимая для стадии „инициализации“ квантовых компьютеров. На рис. 1, *b* показана детально зарегистрированная низкополевая компонента тонкой структуры, состоящая из трех вкладов из-за наличия структурно-неэквивалентных позиций  $NV^-$ -центра ( $k_1k_2$ ,  $hh$ ,  $k_2k_1$ ) в  $6H$ - $^{28}\text{SiC}$  (рис. 1, *c*).

Небольшое различие в микроструктуре и распределении спиновой плотности дефектов сказывается на величине  $D$ , что дает возможность селективного возбуждения каждого центра окраски. Таким образом, в  $6H$ - $^{28}\text{SiC}$  в электронной подсистеме присутствуют три независимых кубита, возбуждаемых на трех разных частотах.



**Рис. 2.** Кривые распада поперечной намагниченности  $NV^-$ -центра в полулогарифмическом масштабе при  $T = 150$  К под действием оптического возбуждения с мощностью 500 мВт (синие и серые цвета) и 125 мВт (красные и зеленые цвета) для длин волн 980 (синие и зеленые линии) и 1064 нм (серые и красные линии). (Цветной вариант рисунка представлен в электронной версии статьи).

Расстояние между центрами  $NV_{k1k2}$  и  $NV_{k2k1}$  составляет 70 МГц, что позволяет использовать стандартные радиочастотные генераторы для квантовых манипуляций ядерной подсистемой или СВЧ генераторы для манипуляций электронными кубитами. Наличие магнитного ядра  $^{14}\text{N}$  со спином  $I = 1$  вблизи вакансии кремния приводит к образованию дополнительного сверхтонкого расщепления  $(2I + 1)$  каждой компоненты тонкой структуры на три равноудаленные линии величиной порядка  $A_{zz} = 1.1$  МГц. Когерентная электрон-ядерная связь обеспечивает дополнительную степень свободы при проведении экспериментов с многоимпульсными последовательностями [9,10] и потенциальную реализуемость квантовых алгоритмов/операций на основе данных спиновых дефектов [11].

Важным свойством квантовых компьютеров является обратимость действия квантовых „гейтов“. Простейшим явлением для наблюдения обратимости в спиновых системах является электронное спиновое эхо [11]. Метод заключается в регистрации электронного спинового эха при прикладывании микроволновых импульсов заданной длительности с возможностью инвертирования процессов распада спиновой намагниченности из-за неоднородного распределения локальных магнитных полей. С увеличением межимпульсного интервала в последовательности Хана создаются временные границы, в пределах которых потеря спиновой когерентности из-за необратимого спин-спинового взаимодействия становится существенной. Таким образом, время жизни кубитов, реализованных на спиновых дефектах, определяется необратимыми процессами спин-спиновой

релаксации, в отличие от обратимых по времени процессов (взаимодействие с неоднородным распределением локальных магнитных полей)  $T_2^*$ . Аппроксимация этих зависимостей экспоненциальным законом позволяет получить время фазовой когерентности спинового пакета, являющееся одной из важных характеристик любого кубита (рис. 2). Поляризация состояния  $M_S = 0$  связана с квантовыми переходами под действием лазерного излучения с трех основных уровней  $M_S = -1, 0, +1$  на один из трех  $M_S = 0$  через несколько промежуточных уровней. Если рассматривать одиночный  $NV^-$ -центр, то такие переходы приведут или к полному восстановлению продольной намагниченности, для случая возбуждения через зону проводимости, или к сдвигу фазы прецессии за счет ненулевого времени жизни состояний на возбужденных уровнях, в случае возбуждения через уровни изолированных дефектов. Переходя к ансамблю спинов, в среднем такие процессы будут вызывать дополнительную декогеренцию спинового пакета и, следовательно, уменьшение времени спин-спиновой релаксации. Так как количество таких переходов связано с количеством оптических квантов (мощностью оптической накачки) и энергии одного кванта, нами было проведено исследование распада поперечной намагниченности от мощности и длины волны лазера. Кроме того, это будет оказывать влияние и на вероятность такого перехода, которая зависит от интенсивности линии поглощения на длине волны лазера, связанной с  $NV^-$ -центрами. Лазерное излучение подавалось через световод в непрерывном режиме, а для уменьшения мощности использовалась несинхронизированная с последовательностью СВЧ импульсов широтно-импульсная модуляция с периодом 10 мкс. Таким образом, при накоплении сигнала 8192 раз был получен усредненный распад поперечной ансамблевой намагниченности. На рис. 2 показаны кривые релаксации спинового дефекта под действием непрерывного излучения с длинами волн 980/1064 нм и мощностью 125/500 мВт. Обнаружено, что влияние зависимости частоты излучения минимально.

Дополнительные измерения были проведены при ослаблении мощности оптического излучения до 125 мВт с помощью широтно-импульсной модуляции лазера. При изменении средней мощности лазера в 4 раза произошло двукратное удлинение времени фазовой когерентности. Данный факт указывает на то, что мощность лазера в 125 мВт близка к оптимальной (на рис. 2, зеленый цвет), и необратимый распад фазовой когерентности вызывается спин-спиновой релаксацией и спиновой диффузией, которая в свою очередь проявляется как отклонение от прямой [12]. При оптимальных условиях ( $T = 150$  К, 980 нм, 125 мВт) время поперечной релаксации для ансамбля частиц с  $C_N \approx 10^{17}$  см $^{-3}$  составляет  $T_2 = 60$  мкс, что уже больше, чем для ранее изученных дефектов при более низкой температуре кристалла (вакансия бора в  $hBN$  — 15 мкс [4] и дивакансии в  $4H$ -SiC — 40 мкс [5] при  $T = 7$  К).

## 5. Заключение

Таким образом, результаты, полученные в данной работе методом фотоиндуцированного ЭПР, показывают, что  $NV^-$ -центр в  $6H\text{-}^{28}\text{SiC}$  является многообещающей платформой для реализации квантово-информационных технологий на основе спин-фотонных взаимодействий.

### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

### Список литературы

- [1] T.D. Ladd, F. Jelezko, R. Laflamme, Y. Nakamura, C. Monroe, J.L. O'Brien. *Nature*, **464** (7285), 45 (2010). DOI: 10.1038/nature08812
- [2] J.R. Weber, W.F. Koehl, J.B. Varley, A. Janotti, B.B. Buckley, C.G. Van de Walle, D.D. Awschalom. *Proc. Natl. Acad. Sci.*, **107** (19), 8513 (2010). DOI: 10.1073/pnas.1003052107
- [3] F.J. Heremans, C.G. Yale, D.D. Awschalom. *Proc. IEEE*, **104** (10), 2009 (2016). DOI: 10.1109/JPROC.2016.2561274
- [4] F.F. Murzakhanov, G.V. Mamin, S.B. Orlinskii, U. Gerstmann, W.G. Schmidt, T. Biktagirov, I. Aharonovich, A. Gottscholl, A. Sperlich, V. Dyakonov, V.A. Soltamov. *Nano Lett.*, **22** (7), 2718 (2022). DOI: 10.1021/acs.nanolett.1c04610
- [5] F.F. Murzakhanov, B.V. Yavkin, G.V. Mamin, S.B. Orlinskii, H.J. von Bardeleben, T. Biktagirov, U. Gerstmann, V.A. Soltamov. *Phys. Rev. B*, **103** (24), 245203 (2021). DOI: 10.1103/PhysRevB.103.245203
- [6] H.J. von Bardeleben, J.L. Cantin, A. Csóré, A. Gali, E. Rauls, U. Gerstmann. *Phys. Rev. B*, **94** (12), 121202 (2016). DOI: 10.1103/PhysRevB.94.121202
- [7] V.A. Soltamov, C. Kasper, A.V. Poshakinskiy, A.N. Anisimov, E.N. Mokhov, A. Sperlich, S.A. Tarasenko, P.G. Baranov, G.V. Astakhov, V. Dyakonov. *Nature Commun.*, **10** (1), 1678 (2019). DOI: 10.1038/s41467-019-09429-x
- [8] K. Khazen, H.J. Von Bardeleben, S.A. Zargaleh, J.L. Cantin, M. Zhao, W. Gao, T. Biktagirov, U. Gerstmann. *Phys. Rev. B*, **100** (20), 205202 (2019). DOI: 10.1103/PhysRevB.100.205202
- [9] F.F. Murzakhanov, M.A. Sadovnikova, G.V. Mamin, S.S. Nagalyuk, H.J. von Bardeleben, Schmidt, W.G., T. Biktagirov, U. Gerstmann, V.A. Soltamov. *J. Appl. Phys.*, **134**(12), 123906 (2023). DOI: 10.1063/5.0170099
- [10] F. Murzakhanov, M. Sadovnikova, G. Mamin, K. Sannikov, A. Shakirov, H.J. von Bardeleben, E. Mokhov, S. Nagalyuk. *Appl. Phys. Lett.*, **124** (3), 034001 (2024). DOI: 10.1063/5.0186997
- [11] T. Takui, L. Berliner, G. Hanson. *Electron spin resonance (ESR) based quantum computing* (Springer, N.Y., 2016) v. 31, p. 255. DOI: 10.1007/978-1-4939-3658-8
- [12] S. Agnello, R. Boscaino, M. Cannas, F.M. Gelardi. *Phys. Rev. B*, **64** (17), 174423 (2001). DOI: 10.1103/PhysRevB.64.174423H

Редактор Г.А. Оганесян

## Negatively charged nitrogen-vacancy centers in a silicon carbide crystal of $6H\text{-}^{28}\text{SiC}$

F.F. Murzakhanov<sup>1</sup>, G.V. Mamin<sup>1</sup>, M.A. Sadovnikova<sup>1</sup>, D.V. Shurtakova<sup>1</sup>, O.P. Kazarova<sup>2</sup>, M.R. Gafurov<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Institute of Physics, Kazan Federal University, 420008 Kazan, Russia

<sup>2</sup> Ioffe Institute, 194021 St. Petersburg, Russia

**Abstract** High-spin ( $S = 1$ ) color centers in isotope-modified crystal  $6H\text{-}^{28}\text{SiC}$  have been identified by high-frequency electron paramagnetic resonance techniques. The components of the spin Hamiltonian ( $g$ ,  $D$ ,  $A$ ) of negatively charged nitrogen-vacancy ( $NV^-$ ) centers are determined and the influence of optical excitation modes on their relaxation characteristics is studied. The obtained results prove the potential possibility of using  $NV^-$  defects in  $6H\text{-}^{28}\text{SiC}$  for the material implementation of qubits and spin-photon interfaces.