

University of Groningen

## Optical preparation and detection of spin coherence in molecules and crystal defects

Lof, Gerrit

DOI:  
[10.33612/diss.109567350](https://doi.org/10.33612/diss.109567350)

**IMPORTANT NOTE: You are advised to consult the publisher's version (publisher's PDF) if you wish to cite from it. Please check the document version below.**

*Document Version*  
Publisher's PDF, also known as Version of record

*Publication date:*  
2020

[Link to publication in University of Groningen/UMCG research database](#)

*Citation for published version (APA):*  
Lof, G. (2020). *Optical preparation and detection of spin coherence in molecules and crystal defects*. University of Groningen. <https://doi.org/10.33612/diss.109567350>

### Copyright

Other than for strictly personal use, it is not permitted to download or to forward/distribute the text or part of it without the consent of the author(s) and/or copyright holder(s), unless the work is under an open content license (like Creative Commons).

### Take-down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

*Downloaded from the University of Groningen/UMCG research database (Pure): <http://www.rug.nl/research/portal>. For technical reasons the number of authors shown on this cover page is limited to 10 maximum.*

# Wetenschappelijke samenvatting

## Optische voorbereiding en detectie van spincoherentie in moleculen en kristaldefecten

Dit proefschrift presenteert de resultaten van onderzoek bedoeld om verschillende mogelijkheden te onderzoeken van optisch geïnduceerde elektron spincoherentie in moleculen en kristaldefecten. In onze aanpak hebben we een theoretisch onderzoek uitgevoerd van de onderliggende fundamenteen en daaruit voortvloeiende vereisten (Hoofdstuk 2-4), alsook een experimenteel onderzoek van een systeem dat optisch geïnduceerde spincoherentie vertoont (Hoofdstuk 5). Wij zijn ervan overtuigd dat de wetenschappelijke vooruitgang van ons werk bijdraagt aan een betere karakterisatie van verschillende materialen met opto-elektronische functionaliteit en betere middelen aanreikt voor detectie. Tevens zijn we ervan overtuigd dat ons werk relevant is voor nieuwe kwantum-informatica functionaliteiten die gebaseerd zijn op de selectieve koppeling van fotonen en elektronische spintoestanden.

De optische selectieregels zijn voor atomen en kristallen met een hoge symmetrie goed beschreven in natuurkundeboeken. Daarentegen is er minder kennis over hoe optische selectieregels veranderen wanneer de hoge symmetrie geleidelijk wordt verstoord. In Hoofdstuk 2 presenteren we een gedetailleerde analyse van hoe een geleidelijke symmetrieverstoring leidt tot een volledige wijziging van de optische selectieregels. We nemen de transitie tussen  $1s$  en  $2p$  sublevels van het waterstofatoom als een modelsysteem dat verstoord wordt door de plaatsing van geladen deeltjes in diens omgeving. Met het vergroten van de verstoring veranderen sommige optische selectieregels van circulair via elliptisch naar een lineair karakter, terwijl andere veranderen tussen toegestaan en verboden. Ons werk combineert een analytische benadering met kwantitatieve resultaten van numerieke simulaties, daarbij inzicht verschaffend in hoe de verandering plaats vindt als functie van de sterkte van de verstoring. Deze studie verschaft een nuttig theoretisch kader voor complexere systemen. Bovendien bereidt het de weg

voor manipulatie van optische selectieregels. De mogelijkheid om selectieregels te manipuleren staat een betere controle toe van de interactie tussen fotonen en elektronen, wat mogelijk nieuwe manieren toestaat ter controle van informatiestromen binnen het veld van de kwantuminformatica.

Organische moleculen worden steeds meer gebruikt voor opto-elektronische apparaten, vanwege diens chemische afstembaarheid, lage kosten en gemak van verwerking. In dergelijke apparaten kan de ratio van singlet- en tripletexcitonen een belangrijke parameter zijn in de prestatie. Vanwege de vele interessante spin-gelateerde fenomenen die ontdekt zijn in organische halfgeleiders en moleculen is het bovendien zo dat hun toepassing in organische spintronica erg veelbelovend is. Zowel voor de organische opto-elektronica als de spintronica zal de mogelijkheid triplet spintoestanden te controleren en detecteren van grote waarde zijn. Optische polarisatie lijkt een veelbelovende kandidaat te zijn hiervoor. Een manier om correlaties tussen spin en optische polarisatie te bestuderen is de Time-Resolved Faraday Rotation (TRFR) techniek. Via deze volledig optische niet-invasieve pump-probe techniek induceert de pump puls spinpolarisatie, waarna de spindynamica wordt gedetecteerd via de polarisatierotatie van een probe puls. In Hoofdstuk 3 onderzoeken we hoe deze techniek optische controle toestaat en de detectie van triplet-exciton spindynamica in metaal-organische moleculen. In ons voorstel brengt een ultrakorte gepolariseerde pump puls het moleculaire systeem in een superpositie van triplet aangeslagen sublevels. We leiden af hoe de polarisatie van een vergelijkbare maar niet-resonante probe puls wordt beïnvloed bij transmissie, waaruit de vereisten voor polarisatierotatie volgen. Gebruik makend van de resultaten van *ab initio* berekeningen, berekenen we de tijdsafhankelijkheid van de polarisatierotatiehoek en van de verwachtingswaarde van het totale elektronische impulsmoment. Beide vertonen een oscillatie met een frequentie corresponderend met de sublevel splitsing, implicerend dat de oscillatie van de polarisatierotatie een geschikte maat is voor spinprecessie.

Kleurcentra in halfgeleiders met een grote energiekloof zijn aantrekkelijke systemen voor kwantumtechnologieën omdat ze lang-coherente elektronspin combineren met helder optische eigenschappen. Verschillende geschikte centra zijn geïdentificeerd, met name het stikstof-gat defect in diamant. In Hoofdstuk 4 stellen we voor de TRFR techniek te gebruiken (gewoonlijk toegepast op materialen met sterke spin-baan koppeling) om spin-actieve kleurcentra te karakteriseren in materialen met verwaarloosbare spin-baan koppeling, zoals siliciumcarbide en diamant. De fundamenten en het scenario voor een TRFR experiment zijn in detail uitgewerkt voor een homogeen ensemble van paren van missende aan-

---

grenzende silicium- en koolstofatomen liggend langs de groeirichting van siliciumcarbide. Onder sommige omstandigheden is het materiaal dubbelbrekend (twee verschillende brekingsindices). Bovendien oscilleert een van de brekingsindices als functie van tijd onder de aanwezigheid van coherenties. Vanwege deze tijdsafhankelijke dubbelbreking zal een probe puls een polarisatierotatie ondergaan als functie van de pump-probe vertragingstijd. Deze polarisatierotatie is een maat voor de spincoherentie van de triplet aangeslagen toestand.

Integratie van halfgeleider kleurcentra binnen de communicatietechnologie wordt gehinderd door het feit dat diens optische transitie buiten de telecomgolflengtebanden liggen. Verschillende transitie metaal onzuiverheden in siliciumcarbide zenden licht uit nabij telecomgolflengtes, maar de kennis over diens spin- en optische eigenschappen is incompleet. In Hoofdstuk 5 bespreken we volledig optische identificatie en coherente controle van de spins van molybdeen onzuiverheden in siliciumcarbide met transitie in het nabij-infrarode golflengteregime. Onze resultaten identificeren een spin  $S = 1/2$  voor zowel de elektronische grond- als aangeslagen toestand, met zeer anisotropische spineigenschappen die toegepast worden voor de implementatie van optische controle van spincoherentie in de grondtoestand. Onze resultaten tonen optische levensduren van  $\sim 60$  ns en inhomogene spinontfasingstijden van  $\sim 0.3 \mu\text{s}$ . Deze resultaten vertonen relevantie voor kwantumtoepassingen met spin-foton koppelingen.

