

University of Groningen

Two-laser spectroscopy and coherent manipulation of color-center spin ensembles in silicon carbide

Zwier, Olger Victor

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:

2016

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

Citation for published version (APA):

Zwier, O. V. (2016). *Two-laser spectroscopy and coherent manipulation of color-center spin ensembles in silicon carbide*. Rijksuniversiteit Groningen.

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).

The publication may also be distributed here under the terms of Article 25fa of the Dutch Copyright Act, indicated by the "Taverne" license. More information can be found on the University of Groningen website: <https://www.rug.nl/library/open-access/self-archiving-pure/taverne-amendment>.

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

Meer dan een eeuw na zijn eerste begin is kwantummechanica een algemeen erkend wetenschapsgebied, geworteld in grondige experimentele resultaten. Er zijn uitvoerige theoretische kaders opgericht, met als doel de unieke eigenschappen van kwantumsystemen te benutten om apparaten te maken: bijvoorbeeld om onkraakbare cryptografie mogelijk te maken, of computers die sommige problemen exponentieel sneller door kunnen rekenen dan wat nu mogelijk is. Voor zo'n kwantumcomputer zijn duizenden kwantumsystemen (qubits) nodig, met hun toestanden sterk verstrengeld, ongestoord door hun omgeving (bestaande uit deeltjes, velden - alles eigenlijk), maar nog steeds ontvankelijk voor onze signalen ter controle. Echter, kwantumsystemen zijn uiterst fragiel, moeilijk te realiseren en controlleren, en de historisch meest succesvolle systemen schalen slecht van enkel qubit naar meerdere (zoals met laser koelvalen ingevangen ionen, of atomaire gaswolken). Deze schaling is reeds eerder gerealiseerd in het kader van de informatietechnologie, door elektronische circuits in de vaste stof te verwezenlijken, wat leidde tot het huidige informatietijdperk. De grote vraag is nu dus: kunnen we ook schaalbare *kwantumsystemen* maken in de vaste stof? En zo ja, kunnen we deze robuust maken, werkende op kamertemperatuur, en *goedkoop* schaalbaar?

Er zijn vele kandidaat-qubits om deze rol te vervullen, maar in deze scriptie wordt specifiek gekeken naar systemen die van nature voorkomen in de halfgeleider siliciumcarbide (SiC). SiC bestaat uit opeenvolgende hexagonale lagen silicium en koolstof, waarbij de lagen in het grondvlak liggen, en de stapelrichting de c-as heet. Wanneer zo'n kristal van SiC wordt gegroeid, zelfs in de meest minutieus gecontroleerde omgeving, vormen de atomen geen perfect rooster: er zullen defecten zijn. De kleinste hiervan, puntdefecten op de schaal van enkele atomen, zijn ons systeem van interesse, bijvoorbeeld missende atomen, binnengedrongen onzuiverheidsatomen, of kleine complexen van zulke defecten. De elektronen vlakbij het defect herschikken zich om hun energie te minimaliseren (de grondtoestand), waarop hun gezamenlijke spin (hun intrinsiek magnetisch moment) zich

in enkele dicht op elkaar liggende kwantumtoestanden kan bevinden. Deze toestanden zijn erg vaak erg stabiel (tot wel milliseconden) en coherent (de tijdschaal waarop kwantuminformatie blijft bestaan), en vormen ons gezochte qubit. Door een foton (een lichtdeeltje) te absorberen kunnen de elektronen zich weer herschikken in een toestand met hogere energie (de geëxciteerde toestand), die weer zijn eigen spin toestanden heeft. Deze interactie met licht (wat voor zulke defecten in SiC vaak in het infrarode deel van het elektromagnetisch spectrum ligt, maar ook zorgt voor het glinsteren van diamanten) is de reden voor hun naam "kleurcentra", en biedt een aanlokkelijke manier om kwantuminformatie van fotonen naar stilstaande qubits over te brengen, en weer terug. Al deze toestanden liggen diep in het verboden regime van de halfgeleider, wat betekent dat de elektronen sterk gelokaliseerd blijven bij het defect, en weinig interactie voelen met de rest van het materiaal - een *must* voor een potentiële qubit. Er zijn vele kristallografische vormen van SiC (polytypen), elk met zijn eigen unieke scala aan kleurcentra. Veel van deze defecten hebben dezelfde oriëntatie in het materiaal (wat ze makkelijker bruikbaar maakt), de benodigde golflengte van licht ligt op de rand van het telecom regime (handig om ze te kunnen verweven in hedendaagse optische netwerken), en het groeien van SiC is een industrieel volwassen bezigheid. Om al deze redenen is het een aanlokkelijk idee het optimale kleurcentrum in SiC te kunnen kiezen voor iedere applicatie.

Het kan praktisch zijn om voor kwantumtoepassingen een groep defecten te gebruiken, in plaats van enkele defecten. Zo'n groep kan zich gedragen als een collectief kwantumsysteem. Tevens kunnen de defecten, als ze in het pad van het licht liggen, de interactie met licht collectief versterken door gestimuleerde emissie. Voor dergelijke sterke interactie moet voor enkele defecten vaak gecompliceerde nanofabricage worden toegevoegd om het defect heen (zoals optische holtes). Aan de andere kant is de laser energie benodigd om de elektronen te exciteren niet hetzelfde voor alle defecten, vanwege mechanische spanningen in het materiaal. Zonder spanning wordt licht met een zeer specifieke energie geabsorbeerd door het systeem geabsorbeerd (absorptielijnen), maar deze inhomogeniteit zorgt ervoor dat de scherpe lijnen van verschillende defecten samensmelten tot één brede lijn. Hierdoor wordt het onmogelijk om met een enkele laser informatie over de spintoestanden en optische overgangen te verkrijgen, laat staan het systeem voor kwantumtoepassingen te gebruiken. Dit effect staat bekend als inhomogene verbreding van de optische overgangen, en is typisch voor grote groepen kleurcentra.

Deze inhomogeniteit is de bron van de twee rode draden door dit proefschrift.

Aan de ene kant ontwikkelen we een robuuste tweelasertechniek genoemd spin-gelateerde emissie of absorptie (SRE/SRA). Het essentiële ingrediënt is dat een homogene subgroep defecten een sterk vergrote interactie heeft met licht, wanneer meerdere lasers alle grondtoestanden tegelijk aanspreken. Gecombineerd met een nauwkeurig uitgelijnd statisch extern magnetisch veld maakt dit gedetailleerde analyse van de spintoestanden en optische overgangen mogelijk, ongeacht inhomogene verbreding. In dit proefschrift worden meerdere kleurcentra onderzocht met deze techniek. Aan de andere kant gaan we verder dan spectroscopie, door de SRE/SRA te optimaliseren voor *coherente* interactie tussen licht en kleurcentra, wat de essentie van kwantumapplicaties zou zijn. Door met beide lasers dezelfde geëxciteerde spintoestand aan te spreken (een zogeheten Λ -systeem) kan een puur kwantummechanisch destructief interferentieëffect plaatsvinden, waarbij de elektronische spin in zijn grondtoestand blijft. Dit vangen van het systeem in zijn grondtoestand staat bekend als coherent populatie vangen (CPT), terwijl de resulterende ongehinderde transmissie van licht door de defecten elektromagnetische transparantie (EIT) wordt genoemd. Naast dat ze direct inzicht bieden in de coherentie van de groep kleurcentra, zijn EIT en CPT essentiële bouwblokken in meerdere voorgestelde toepassingen van qubits, zoals kwantumherhalers en geheugens voor de kwantumtoestand van fotonen.

Ons eerste onderzoek naar de toestandstructuur van een kleurcentrum in SiC staat beschreven in hoofdstuk 2. Het defect in kwestie is een "divacancy". Deze bestaat uit een koolstofatoom wat ontbreekt in het rooster, naast een evenzoveel afwezig siliciumatoom, wat het defect de vorm geeft van een halter. Deze halter is georiënteerd langs het grondvlak van het rooster, waardoor het zeer asymmetrisch ligt ten opzichte van de omringende kristalstructuur. Voor de grondtoestand van dit defect is eerder aangetoond dat hij uit drie spin energietoestanden bestaat (een triplet), met kleine energieverschillen tussen deze toestanden vanwege de lage symmetrie. Divacancies zijn van nature in relatief kleine aantallen aanwezig in commercieel verkregen 4H-SiC monsters. Om te compenseren voor de lage defectdichtheid maken we gebruik van een speciaal ontworpen monster, waaruit extreem kleine hoeveelheden licht kunnen worden gedetecteerd, terwijl het veel sterkere laserlicht wordt weggefilterd (een techniek genaamd photoluminescentie excitatie). De resulterende spectra komen goed overeen met een simpel model waarin optische excitatie en verval wordt beschreven: we bevestigen de grondtoestand als triplet met de eerder gerapporteerde energieverschillen, en tonen aan dat de geëxciteerde toestand een zelfde structuur heeft. We identificeren een Λ -systeem, en tonen er CPT mee aan: de eerste stap naar volledig optische

kwantum toepassingen met divacancies in SiC.

In hoofdstuk 3 verkennen we de structuur en overgangen van een tweede type divacancy, ditmaal georiënteerd langs de c-as. De energie benodigd voor de optische overgang is volstrekt anders dan die voor een grondvlak-divacancy, zodat het makkelijk is de defecten te onderscheiden. Het monster was bestraald met elektronen met een hoge energie, waardoor een veel hogere defectdichtheid was gecreëerd. Als gevolg hiervan is de absorbtie sterk genoeg om de metingen te doen in transmissie - een stap richting de sterke absorbtie ("optische dichtheid") die nodig is voor daadwerkelijke toepassingen. Het blijkt dat er twee verschillende defecten zijn waarvan de optische overgangen overlappen, beiden met de grondtoestand die eerder al is toegeschreven aan c-as divacancies. Een van deze heeft tevens een triplet geëxciteerde toestand, terwijl deze voor het andere defect niet overtuigend kon worden geïdentificeerd. Echter, door een slimme keuze van laserenergie en oriëntatie van magnetisch veld kunnen we de lasers bijna exclusief laten interacteren met Λ -systemen. Hoofdstuk 4 gaat verder op dit resultaat: we demonstreren EIT in c-as divacancies, en verkennen tot in detail de invloed van inhomogeniteit en het aandrijven van extra optische overgangen op EIT. De elektronische spins blijken kwantuminformatie lang vast te houden onder invloed van lasers, wat perspectief biedt voor volledig optische controle over hun kwantumtoestand. We tonen aan dat EIT onder deze omstandigheden een robuust effect is, hoewel voor praktische toepassingen erg hoge laserintensiteiten nodig zullen zijn. Deze worden voorspeld haalbaar te zijn wanneer het licht wordt opgesloten in erg nauwe optische kanalen, wat een pad voor toekomstig toekomst aan deze defecten toont.

In hoofdstuk 5 bestuderen we SRE (als voor de grondvlak-divacancies) van molybdeen onzuiverheidsatomen, die ook kleurcentra vormen. Hiervoor is beweerd dat ze een triplet grondtoestand hebben, met energiever schillen bijna drie keer zo groot als voor divacancies - potentieel nuttig voor nauwkeurige controle over de interactie met licht. Er was echter nog geen onderzoek gedaan naar de geëxciteerde toestand (behalve aantonen dat hij bestaat), of de coherentie van de toestanden. In strijd met de eerdere literatuur, concluderen we dat onze resultaten voor zowel grondtoestand als geëxciteerde toestand duiden op slechts twee energietoestanden (spin doublets), zonder energiever schillen bij nul magnetisch veld, en anisotrope g-factoren om het gedrag bij magnetisch veld te verklaren.