

ОРИГИНАЛЬНАЯ СТАТЬЯ

УДК 543.429.22+544.022.341

doi: 10.26907/2541-7746.2024.2.187-199

ВЛИЯНИЕ УСЛОВИЙ ФОТОВОЗБУЖДЕНИЯ
НА СПИНОВУЮ ПОЛЯРИЗАЦИЮ
АЗОТ-ВАКАНСИОННЫХ ЦЕНТРОВ
В ИЗОТОПНО-ОБОГАЩЕННОМ
КАРБИДЕ КРЕМНИЯ 6H-²⁸SiC

Ф.Ф. Мурзаханов¹, Г.В. Мамин¹, М.А. Садовникова¹,
Д.В. Шуртакова¹, О.П. Казарова², Е.Н. Мохов², М.Р. Гафуров¹

¹Казанский (Приволжский) федеральный университет, г. Казань, 420008, Россия

²Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,
г. Санкт-Петербург, 194021, Россия

Аннотация

Спиновые дефекты в полупроводниках привлекают интерес как материальная основа для реализации квантово-информационных и вычислительных технологий. В данной работе исследованы спиновые свойства отрицательно заряженных азот-вакансионных (NV^-) центров в обогащенном изотопом ²⁸Si кристалле карбида кремния 6H-SiC методами высокочастотного (94 ГГц) электронного парамагнитного резонанса (ЭПР). Благодаря наличию у NV^- -центров оптического канала возбуждения удается произвести инициализацию электронного спина дефекта лазерным источником, многократно повысив интенсивность регистрируемого сигнала ЭПР. Исследованы зависимости наблюдаемой спиновой поляризации при различных длинах волн оптического возбуждения ($\lambda = 640 - 1064$ нм), выходной мощности (от 0 до 500 мВт) и температуры (50 – 300 К) кристалла. Полученные результаты позволяют определить оптимальные экспериментальные условия для достижения наибольшей эффективности передачи энергии оптического кванта в спиновую систему. Это открывает новые возможности для создания мультикубитных спин-фотонных интерфейсов, оперирующих в инфракрасной области, на основе NV^- -центров в 6H-SiC.

Ключевые слова: спин-оптическое свойство, спиновая инициализация, спиновая поляризация, электронный парамагнитный резонанс, карбид кремния, NV^- -центр

Введение

Развитие современных информационно-вычислительных технологий способствует более глубокому пониманию различных экспериментальных явлений или процессов практически во всех научных сферах и дисциплинах, включая физику конденсированного состояния и материаловедение. При этом на текущий момент вычислительная мощность современных процессоров уже достигает своего предела из-за физического ограничения наноразмерных транзисторов и конечной величины скорости света. На стыке тысячелетий был предложен принципиально новый

подход, предлагающий использовать логические операции на основе явлений из теории квантовой механики [1]. В роли элементарной единицы информации предлагается использовать квантовый бит или кубит, физическая реализация которого может быть основана на использовании электронного или ядерного спина атома, поляризации фотона и энергетических состояний сверхпроводящего джозефсоновского контакта или ультрахолодных ридберговских атомов [2]. Данные системы характеризуются двумя основополагающими свойствами – суперпозиция и квантовая запутанность, или скоррелированность двух и более кубитов. Сочетание данных свойств позволит квантовому компьютеру находить решение не методом «перебора» и «поиска минимума», как в классическом случае, а практически мгновенно при считывании состояния кубита, который может занимать любое положение в сфере Блоха между условными уровнями (волновыми функциями) 0 и 1 [3].

С одной стороны, кубит должен быть хорошо изолирован от внешних шумов в виде тепловых или иных флуктационных воздействий, которые неконтролируемо изменяют его исходное состояние или приводят к нежелательным фазовым сдвигам, что в конечном итоге нарушает когерентную эволюцию системы. С другой стороны, реализация квантового алгоритма в течение времени фазовой когерентности (памяти) подразумевает проведение ряда контролируемых воздействий оптически, микроволновыми или радиочастотными импульсами на кубиты, называемые квантовые ворота или вентили, с последующим считыванием финального (конечного) состояния. На практике точность работы (операций) с физическими кубитами неидеальна, требуется проведение квантовой коррекции ошибок. При этом, несмотря на продемонстрированное вычислительное превосходство квантовых симуляторов над классическими аналогами при решении одной и той же модельной задачи, квантовые технологии по-прежнему находятся в зачаточном состоянии, требуя существенного развития как материальной базы, так и знаний об алгоритмах квантовой обработки информации [4].

Одним из направлений для развития современных квантовых технологий является поиск и апробация новых твердотельных платформ, в которых могут быть реализованы надежные, соответствующие основным критериям кубиты. Растущую популярность приобретают дефекты в полупроводниковых материалах [5]. К наиболее известным примерам можно отнести азот-вакансионный (NV^-) центр в алмазе [6], вакансионные центры в семействе карбидов кремния (SiC) [7] и вакансию бора в двумерном кристалле гексагонального нитрида бора (hBN) [8]. Все указанные выше системы характеризуются наличием уровня энергии в запрещенной зоне полупроводника, высокоспиновым состоянием (электронный спин $S = 1$) с расщеплением в нулевом магнитном поле D , возможностью спиновой инициализации при помощи оптического кванта и спектром люминесценции в видимом и ближнем инфракрасном (ИК) диапазонах, что дало название соответствующим дефектам – центры окраски. Высокоспиновые центры окраски привлекают к себе внимание благодаря эффективному взаимодействию с оптическим квантом, который может выступать в качестве канала для скоростной передачи энергии (данных), а центр окраски необходим для хранения и обработки квантовой информации. Квантовые устройства, основанные на когерентной связи между импульсом поляризованного света («летающий» кубит) и спиновым состоянием кубита (стационарный тип) получили название «спин-фотонные интерфейсы». Сочетание двух принципиально различающихся кубитных систем с возможностью преобразования микроволновой энергии в свет для обмена и распространения информации на большие расстояния позволяет расширить функциональные возможности квантовых технологий для более широкого класса фундаментальных и прикладных задач [9].

Среди перечисленных выше центров окраски наиболее изученным является NV^- -центр в алмазе. Другие дефекты и матрицы изучены в гораздо меньшей степени. В данной работе методом фотоиндуцированного электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) была исследована спиновая поляризация NV^- -центров в кристалле SiC гексагонального политипа 6H в зависимости от длины волны возбуждающего оптического импульса, мощности лазерного источника и температуры исследуемого кристалла с целями демонстрации возможности «конвертирования» оптического кванта энергии в микроволновую с образованием спинового выстраивания и инверсии заселенности.

1. Материал

Полупроводниковые кристаллы 6H-SiC с изотопным обогащением ядрами ^{28}Si (ядерный спин $I = 0$) для уменьшения влияния ядерной подсистемы на процессы фазовой когерентности ансамбля электронных спинов были выращены путем высокотемпературной сублимации из газовой фазы (physical vapor transport) с предварительным использованием прекурсора, обогащенного изотопом ^{28}Si (до $\approx 99\%$). Содержание изотопа ^{29}Si ($I = 1/2$) в выращенных образцах было определено методом ЭПР и составило порядка 1%, что более чем в четыре раза меньше относительно его естественной распространенности (4.67%) [10]. Концентрация примесного азота в кристалле была равна $C \approx 10^{17} \text{ см}^{-3}$. С целью создания вакансионных центров образцы 6H- ^{28}SiC были облучены электронами с энергией 2 МэВ и номинальной дозой $4 \times 10^{18} \text{ см}^{-2}$. Для образования стабильных отрицательно заряженных азот-вакансионных комплексов кристаллы после облучения отжигались при температуре $T = 900^\circ \text{C}$ в атмосфере аргона в течение 2 часов. Для дальнейшего исследования NV^- -центров методами спектроскопии ЭПР были подготовлены образцы размером $0.45 \times 0.45 \times 0.67 \text{ мм}^3$.

2. Метод

Спектры ЭПР в W-диапазоне (94 ГГц) были получены на коммерческом спектрометре Bruker Eleksys E680 (Карлсруэ, ФРГ), оснащенный гелиевым продувным криостатом и сверхпроводящим магнитом для создания магнитной индукции на образце вплоть до значений $B_0 = 6 \text{ Тл}$. В импульсном режиме использовалась последовательность Хана ($\pi/2 - \tau - \pi$) с длительностью микроволнового (сверхвысокочастотного, СВЧ) импульса $\pi/2 = 40 \text{ нс}$ и временем задержки между импульсами $\tau = 1.2 \text{ мкс}$. При этом регистрировалась интегральная интенсивность электронного спинового эха (ЭСЭ) в зависимости от величины магнитного поля B_0 . Эксперименты по фотоиндуцированному ЭПР были проведены с использованием непрерывных твердотельных лазеров с длинами волн λ : 640 нм, 785 нм, 808 нм, 980 нм и 1064 нм и выходной мощностью P вплоть до 500 мВт.

3. Результаты и обсуждения

Несмотря на кажущуюся простоту химической формулы кристаллов карбида кремния (SiC состоит из двух ковалентно связанных атомов углерода C и кремния Si с равным атомарным соотношением), их особенностью является наличие множества структурных модификаций (более 250), называемое полиморфизмом, которое обусловлено вариативностью положения атомов вдоль кристаллографической оси c [11]. На рис. 1а) показана структура SiC гексагонального политипа 6H, которая содержит три структурно-неэквивалентных позиции для каждого

из атомов, отмеченных как $k1$, h и $k2$. Данные позиции отличаются локальным межатомным расстоянием и симметрией во второй координационной сфере, где h – гексагональная, а k – квазикубическая симметрия. При внедрении примеси азот занимает позицию углерода N_C . Облучение кристалла потоком высокоэнергетических частиц приводит к выбиванию с приблизительно равной вероятностью атомов кремния и углерода с соответствующим образованием дефектов по Френкелю [12]. Вакансионные центры подвержены диффузии даже при комнатной температуре, поэтому указанный выше температурный отжиг (раздел 1) приводит к появлению в SiC прочно связанной пары дефектов N_C и V_{Si} , микроскопическая структура которых уже не разрушается даже при 2000°C .

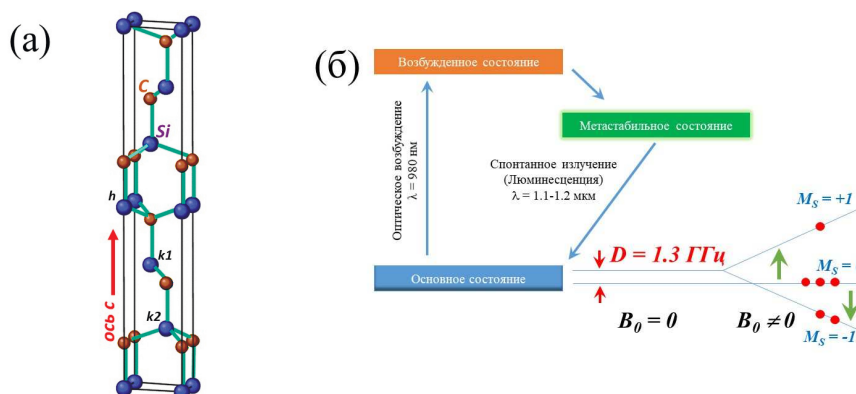


Рис. 1. а) Структура объемного кристалла карбида кремния SiC гексагонального политипа 6H, состоящего из атомов углерода (коричневый шарик) и кремния (синий). Символами h , $k1$ и $k2$ обозначены чередующиеся структурно-неэквивалентные позиции атомов [13]; б) схема оптической поляризации азот-вакансионных состояний лазерным источником. Благодаря механизму интеркомбинационной конверсии при переходе дефекта с возбужденного орбитального (3E) состояния на основное (3A) происходит заселение спинового подуровня с $M_S = 0$. Стрелками показаны переходы ЭПР, образующие сигнал поглощения и излучения (инверсия населенности) микроволновой энергии

Образование примесного уровня дефекта в запрещенной зоне SiC обеспечивает внутрицентровые оптические переходы с сохранением зарядового состояния. Особенностью высокоспиновых центров окраски в широкозонных полупроводниках алмаза и карбида кремния при фотоиндуцировании является наличие спин-зависимого цикла «возбуждение-рекомбинация», показанного на рис. 1 б). Как правило, механизм интеркомбинационной конверсии, участвующий при излучательном переходе с метастабильного состояния в основное, приводит к заселению немагнитного уровня с $M_S = 0$. Данный эффект получил название оптической спиновой инициализации центров окраски. Спектры ЭПР исследуемых в данной работе центров окраски в 6H-SiC в зависимости от длины волны лазерного возбуждения показаны на рис. 2. Наблюдается группа линий в области спектроскопического g -фактора $g = 2.003$ и дублетные структуры с расщеплением около 1300 МГц и $\approx 2600\text{ МГц}$. Выявлено, что интенсивность резонансного поглощения при $g = 2.003$ (зеленая линия) не зависит от наличия оптического возбуждения, и поэтому их природа и свойства не исследовались в данной работе. На основе ранее полученных результатов методом стационарного ЭПР в X-диапазоне ($9,4\text{ ГГц}$) [13] две оставшиеся структуры были отнесены к отрицательно заряженным азот-вакансионным центрам. Стоит сказать, что разбиение линии и соответствующее образование низ-

кополевой и высокополевой компонент связано с так называемым расщеплением спиновых уровней величинами D и E в нулевом магнитном поле (англ. zero-field splitting), или тонкой структурой. Такой вид спектра характерен для высокоспиновых центров ($S \geq 1$), взаимодействующих с локальным градиентом электрического поля через спин-орбитальную связь. Для описания NV^- -центров с электронным спином $S = 1$ принято использовать следующий полный спиновый гамильтониан:

$$H = g\mu_B \mathbf{BS} + D \left(S_z^2 - \frac{2}{3} \right) + E(S_x^2 - S_y^2) + A_{\parallel} S_z I_z + A_{\perp} (S_x I_x + S_y I_y) + P \left(I_z^2 - \frac{2}{3} \right), \quad (1)$$

где μ_B – магнетон бора, $S_{x,y,z}$ и $I_{x,y,z}$ – проекции электронного и ядерного спина, A и P – величины сверхтонкого и квадрупольного взаимодействий.

Во многих политапах SiC (3C, 4H, 6H, 15R) можно выделить две точечные группы симметрии для центров окраски: аксиальные центры с симметрией C_{3v} и базальные центры с симметрией C_{1h} [14]. На рис. 2 а) в спектрах ЭПР аксиальные NV^- -центры обладают тонкой структурой D , приблизительно равной 1,3 ГГц, и, соответственно, расщеплением в параллельной ориентации кристалла относительно B_0 величиной $2D = 93$ мТл (≈ 2600 МГц). Меньшая величина связана с тем, что основная z -ось микроскопической структуры базального центра отклонена на $\approx 70^\circ$ C относительно кристаллографической оси c кристалла. Ранее было показано, что базальные центры при оптимальных экспериментальных условиях имеют величину D примерно такого же порядка (1.25 ГГц), что и аксиальные [13]. Также на спектрах ЭПР можно заметить, что каждая компонента тонкой структуры содержит по три линии, которые связаны с тремя NV^- -центрами в разных позициях кристалла ($k1k2$, hh и $k2k1$), но с одинаковой точечной группой симметрии. Каждая из этих трех структурно-неэквивалентных позиций NV^- -центров немного отличается локальным окружением во вторых координационных сферах и расстоянием между вакансией кремния и атомом азота, что в спектрах ЭПР сказывается на величине D .

Как видно на рис. 2 а), компоненты тонкой структуры NV^- -центров инвертированы по фазе относительно друг друга, что, как упоминалось выше для аналогичных дефектов, связано с оптически индуцируемым нарушением термодинамического бальмановского равновесия спиновой системы с преимущественным заселением состояния с $M_S = 0$. Таким образом, низкополевая компонента соответствует сигналу поглощения микроволновой энергии, а высокополевая – излучению между состояниями с $M_S = 0$ и $M_S = -1$ с инверсией населенности. Эффективная спиновая поляризация наблюдается для длин волн от 785 нм до 1064 нм, и ниже данного диапазона (от 640 нм) отклик спиновых дефектов на свет полностью пропадает. Рис. 1 б) демонстрирует, что оптическое возбуждение с $\lambda = 1064$ нм образует существенное перераспределение интенсивностей между NV_{k1k2} и NV_{k2k1} . Спектры фотоиндуцированного ЭПР с $\lambda = 808$ нм и 785 нм содержат только слабо интенсивные аксиальные центры. Отсутствие сигналов ЭПР от базальных центров при оптическом возбуждении с данными длинами волн, возможно, связано с вероятностью переходов между орбитальными (оптическими) уровнями, существенно меньшими из-за разницы в симметрии [15]. Использование лазера с $\lambda = 640$ нм благодаря большему кванту энергии (1,94 эВ) приводит к «переносу» центра в более высокие возбужденные уровни, близкие к зоне проводимости, находящиеся вне оптимальной полосы оптического поглощения материала.

Преимуществом возбуждения центров окраски длинами волн 980 нм и 1064 нм является близость данного диапазона к инфракрасной области, вместе со спектром люминесценции с 1,1 – 1,2 мкм данных дефектов [7]. Подобный результат открывает новые возможности и перспективы интегрирования кубитных структур для

квантовых технологий на основе NV^- -центров в 6H-SiC с существующей оптоволоконной электроникой для конечного сочетания квантовых, электрических и оптических способов высокоскоростной обработки, передачи и хранения информации. Данные длины волн могут быть пригодными для изучения биологических объектов (полоса пропускания также в области ближнего ИК-диапазона), где NV^- -центры в 6H-SiC могут выступать в качестве высокочувствительных биосенсоров.

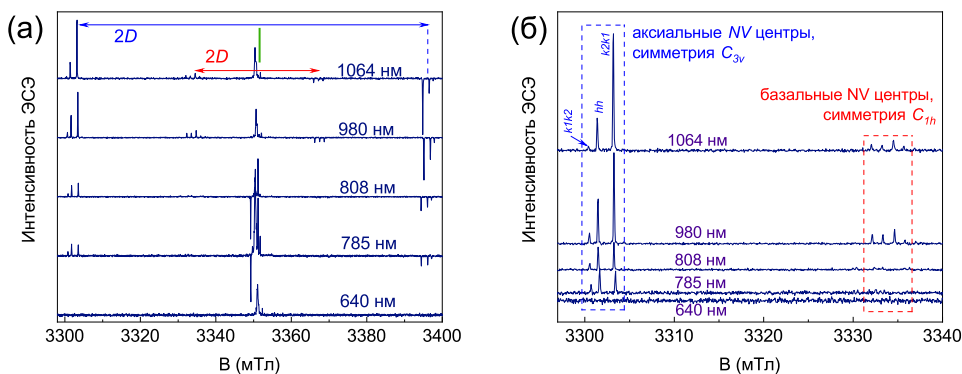


Рис. 2. а) Спектры ЭПР центров окраски в 6H-SiC с полной разверткой по магнитному полю; б) детальный вид низкополевых компонент тонкой структуры в зависимости от длины волны оптического возбуждения. Эксперименты проведены при $T = 297$ K

В качестве источника оптического возбуждения для дальнейших исследований был выбран лазер с $\lambda = 980$ нм. На рис. 3 показана зависимость сигнала ЭПР от величины выходной мощности лазерного источника. Выявлено, что в приведенных экспериментальных условиях значения $P = 25$ и 125 мВт являются граничными значениями для наблюдения фотоиндуцированных спектров ЭПР (при $P = 25$ мВт сигнал от NV^- -центров практически сравним с уровнем шума и только существенно большее количество накоплений позволяет обнаружить дефекты). Дальнейшее уменьшение мощности приводит к полной потере сигнала от исследуемых центров. Увеличение мощности лазера приводит также к линейному отклику NV^- -центров по спиновой поляризации, что ранее было обнаружено для вакансии бора в hBN [16]. Данный эффект полезен для предварительной «настройки» кубитов, когда определенным оптическим импульсом задается его начальное состояние перед реализацией квантового алгоритма, описываемого диагональными элементами матрицы плотности. При дальнейшем увеличении P от 125 мВт наступает насыщение спиновой системы и интенсивность сигнала ЭПР резко падает. Негативным последствием использования большой оптической мощности является локальный нагрев кристалла, что ведет к уменьшению времен электронной релаксации. Длинное время релаксации (время фазовой когерентности) NV^- -центров играет критически важную роль, т. к. данные динамические характеристики определяют временные рамки, в пределах которых можно применять импульсные последовательности и манипулировать спиновой намагниченностью.

На рис. 3б) для каждого NV^- -центра можно наблюдать дополнительные структуры из трех линий, расщепление между которыми приблизительно равно 1 МГц. Данные расщепления обусловлены слабым электрон-ядерным взаимодействием между электронным спином вакансии кремния и магнитным моментом ядра ^{14}N с ядерным спином $I = 1$ и природной распространённостью $99,69\%$. На основе ранее полученных результатов в спектрах двойного электрон-ядерного ре-

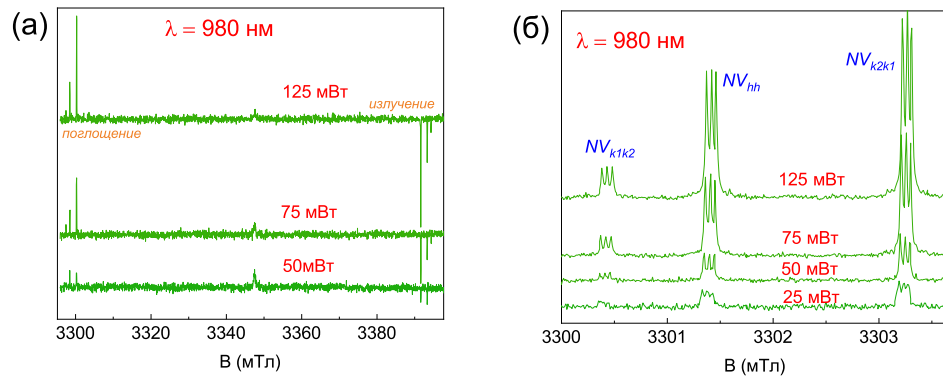


Рис. 3. Спектры ЭПР в зависимости от мощности лазерного источника с $\lambda = 980$ нм: а) полная развертка; б) для демонстрации спиновой поляризации детально прописанные низкополевые компоненты с наблюдением сверхтонких структур от ядер азота ^{14}N . Эксперименты проведены при $T = 297$ К

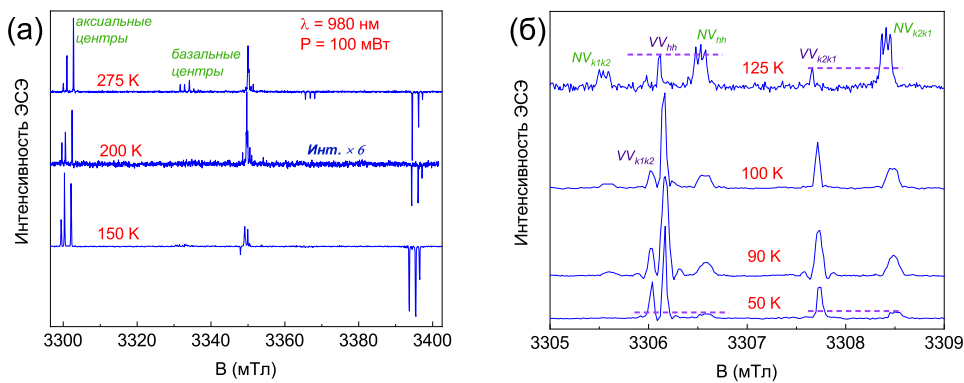


Рис. 4. Спектры ЭПР в зависимости от температуры кристалла 6H-SiC при непрерывном возбуждении лазерным источником с $\lambda = 980$ нм и выходной мощностью 50 мВт: а) полная развертка; б) для демонстрации спиновой поляризации детально прописанные низкополевые компоненты с наблюдением двух типов центров окраски

зонанса (ДЭЯР) NV^- -центров было обнаружено квадрупольное взаимодействие, которое в спектрах ЭПР не наблюдается (неразрешенная структура). Сверхтонкое и квадрупольное расщепление описывается тремя последними слагаемыми в спиновом гамильтониане (1) и для детального анализа требует использования ДЭЯР спектроскопии, что выходит за рамки представленного исследования.

Рис. 4, на котором приведены температурные зависимости спектров фотоиндуцированного ЭПР ($\lambda = 980$ нм, $P = 100$ мВт), демонстрирует, что спиновая поляризация возможна в широком диапазоне температур. Сигнал ЭПР наблюдается вплоть до $T = 297$ К, что является важной частью будущих исследований спиновых кубитов для квантовых технологий при комнатной температуре [17]. Интенсивность спектров ЭПР возрастала обратно пропорционально уменьшению температуры кристалла до 150 К в силу закона Больцмана. Однако начиная со 125 К методом ЭПР были зарегистрированы дополнительные сигналы, которые были отнесены к центрам, состоящим из вакансии кремния и вакансии углерода, называемые дивакансиями [18]. При возникновении дивакансий интенсивность

NV^- -центров существенно уменьшалась и при $T = 50$ К сигнал практически не наблюдался. Данный эффект может быть связан с переносом заряда между близко локализованными центрами окраски, который изменяет зарядовое состояние NV^- -центра и, как следствие, «переводит» дефект в немагнитное синглетное состояние с $S = 0$. Таким образом, температурный диапазон 297 – 150 К является оптимальным для обнаружения оптически поляризованных NV^- -центров методами ЭПР спектроскопии.

Заключение

В данной работе приведены результаты по изучению спиновой поляризации NV^- -центров в кристалле карбида кремния $6H-^{28}SiC$ методами высокочастотного электронного парамагнитного резонанса в импульсном режиме. Показана зависимость спинового выстраивания NV^- от длины волны оптического возбуждения, мощности лазерного источника и температуры исследуемого кристалла. Наиболее оптимальной длиной волны для резонансного возбуждения дефектов всех типов симметрии (C_{3v} и C_{1h}) и позиций ($k1k2$, hh , $k2k1$) NV^- -центра является 980 нм в диапазоне мощностей от 50 до 125 мВт. При данных условиях были зарегистрированы сигналы при $T = 297$ К, что является важным результатом для реализации квантовых технологий при комнатной температуре без использования вакуумных и криогенных установок, существенно понижая стоимость исследований. Эффективная спиновая поляризация NV^- -центров обеспечивается в широком температурном интервале 150 – 300 К. При температурах ниже 125 К происходит образование новых спиновых дефектов – дивакансий, концентрация которых существенно больше, чем NV^- -центров. Это отрицательно сказывается на интенсивности сигнала и, соответственно, спиновой поляризации NV^- -центров из-за зарядового изменения электронной конфигурации в синглетное немагнитное состояние. Полученные в ходе данного исследования результаты могут послужить отправной точкой в области практической реализации квантово-вычислительных алгоритмов и создания спин-фотонных интерфейсов на базе азот-вакансионных дефектов в карбиде кремния.

Благодарности. Работа была поддержана грантом Российского Научного Фонда № 24-22-00448.

Конфликт интересов. Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

Список литературы

1. Ladd T.D., Jelezko F., Laflamme R., Nakamura Y., Monroe C., O'Brien J. Quantum computers // Nature. 2010. V. 464, No 7285. P. 45–53. <https://doi.org/10.1038/nature08812>.
2. Weber J.R., Koehl W.F., Varley J.B., Janotti A., Buckley B.B., Van de Walle C.G., Awschalom D.D. Quantum computing with defects // Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A. 2010. V. 107, No 19. P. 8513–8518. <https://doi.org/10.1073/pnas.1003052107>.
3. Nandhini S., Singh H., Akash U.N. An extensive review on quantum computers // Adv. Eng. Software. 2022. V. 174. Art. 103337. <https://doi.org/10.1016/j.advengsoft.2022.103337>.
4. Zhang G., Cheng Y., Chou J.-P., Gali A. Material platforms for defect qubits and single-photon emitters // Appl. Phys. Rev. 2020. V. 7, No 3. Art. 031308. <https://doi.org/10.1063/5.0006075>

5. *Heremans F.J., Yale C.G., Awschalom D.D.* Control of spin defects in wide-bandgap semiconductors for quantum technologies // *Proc. IEEE*. 2016. V. 104, No 10. P. 2009–2023. <https://doi.org/10.1109/JPROC.2016.2561274>.
6. *Doherty M.W., Manson N.B., Delaney P., Jelezko F., Wrachtrup J., Hollenberg L.C.L.* The nitrogen-vacancy colour centre in diamond // *Phys. Rep.* 2013. V. 528, No 1. P. 1–45. <https://doi.org/10.1016/j.physrep.2013.02.001>.
7. *von Bardeleben H.J., Cantin J.L., Cs  r   A., Gali A., Rauls E., Gerstmann U.* NV centers in 3C, 4H, and 6H silicon carbide: A variable platform for solid-state qubits and nanosensors // *Phys. Rev. B*. 2016. V. 94, No 12. Art. 121202. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.94.121202>.
8. *Murzakhanov F.F., Yavkin B.V., Mamin G.V., Orlinskii S.B., Mumdzhi I.E., Gracheva I.N., Gabbasov B.F., Smirnov A.N., Davydov V.Yu., Soltamov V.A.* Creation of negatively charged boron vacancies in hexagonal boron nitride crystal by electron irradiation and mechanism of inhomogeneous broadening of boron vacancy-related spin resonance lines // *Nanomaterials*. 2021. V. 11, No 6. Art. 1373. <https://doi.org/10.3390/nano11061373>.
9. *Mi X., Benito M., Putz S., Zajac D.M., Taylor J.M., Burkard G., Petta J.R.* A coherent spin–photon interface in silicon // *Nature*. 2018. V. 555, No 7698. P. 599–603. <https://doi.org/10.1038/nature25769>.
10. *Soltamov V.A., Kasper C., Poshakinskiy A.V., Anisimov A.N., Mokhov E.N., Sperlich A., Tarasenko S.A., Baranov P.G., Astakhov G.V., Dyakonov V.* Excitation and coherent control of spin qubit modes in silicon carbide at room temperature // *Nat. Commun.* 2019. V. 10, No 1. Art. 1678. <https://doi.org/10.1038/s41467-019-09429-x>.
11. *Bechstedt F., K  ckell P., Zywietz A., Karch K., Adolph B., Tenelsen K., Furthm  ller J.* Polyttypism and properties of silicon carbide // *Phys. Status Solidi B*. 1997. V. 202, No 1. P. 35–62. [https://doi.org/10.1002/1521-3951\(199707\)202:1<35::AID-PSSB35>3.0.CO;2-8](https://doi.org/10.1002/1521-3951(199707)202:1<35::AID-PSSB35>3.0.CO;2-8).
12. *Weber W.J., Gao F., Devanathan R., Jiang W., Wang C.M.* Ion-beam induced defects and nanoscale amorphous clusters in silicon carbide // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B*. 2004. V. 216. P. 25–35. <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2003.11.016>.
13. *Khazen K., von Bardeleben H.J., Zargaleh S.A., Cantin J.L., Mu Z., Weibo G., Biktagirov T., Gerstmann U.* High-resolution resonant excitation of NV centers in 6H – SiC: A matrix for quantum technology applications // *Phys. Rev. B*. 2019. V. 100, No 20. Art. 205202. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.100.205202>.
14. *Murzakhanov F.F., Sadovnikova M.A., Mamin G.V., Nagalyuk S.S., von Bardeleben H.J., Schmidt W.G., Biktagirov T., Gerstmann U., Soltamov V.A.* ¹⁴N Hyperfine and nuclear interactions of axial and basal NV centers in 4H-SiC: A high frequency (94 GHz) ENDOR study // *J. Appl. Phys.* 2023. V. 134, No 12. Art. 123906. <https://doi.org/10.1063/5.0170099>.
15. *Singh L.R.* Site symmetry dependence on luminescence emission of Y₂O₃:Eu³⁺ dispersed in silica matrix // *Mater. Technol.* 2022. V. 37, No 11. P. 1906–1913. <https://doi.org/10.1080/10667857.2021.2005983>.
16. *Murzakhanov F.F., Sadovnikova M.A., Gracheva I.N., Mamin G.V., Baibekov E.I., Mokhov E.N.* Exploring the properties of the V_B[–] defect in hBN: Optical spin polarization, Rabi oscillations, and coherent nuclei modulation // *Nanotechnology*. 2024. V. 35, No 15. Art. 155001. <https://doi.org/10.1088/1361-6528/ad1940>.

17. Murzakhanov F., Sadovnikova M., Mamin G., Sannikov K., Shakirov A., von Bardeleben H.J., Mokhov E., Nagalyuk S. Room temperature coherence properties and ^{14}N nuclear spin readout of NV centers in 4H-SiC // Appl. Phys. Lett. 2024. V. 124, No 3. <https://doi.org/10.1063/5.0186997>.
18. Son N.T., Ivanov I.G. Charge state control of the silicon vacancy and divacancy in silicon carbide // Appl. Phys. Lett. 2021. V. 129, No 21. Art. 215702. <https://doi.org/10.1063/5.0052131>.

Поступила в редакцию 11.04.2024

Принята к публикации 4.06.2024

Мурзаханов Фадис Фанилович, кандидат физико-математических наук, младший научный сотрудник НИЛ «Многофункциональные материалы для квантовых сенсоров»

Казанский (Приволжский) федеральный университет
ул. Кремлевская, д. 18, г. Казань, 420008, Россия

E-mail: murzakhanov.fadis@yandex.ru

Мамин Георгий Владимирович, кандидат физико-математических наук, доцент кафедры квантовой электроники и радиоспектроскопии

Казанский (Приволжский) федеральный университет
ул. Кремлевская, д. 18, г. Казань, 420008, Россия

E-mail: georgemamin@gmail.com

Садовникова Маргарита Александровна, аспирант, младший научный сотрудник НИЛ «Многофункциональные материалы для квантовых сенсоров»

Казанский (Приволжский) федеральный университет
ул. Кремлевская, д. 18, г. Казань, 420008, Россия

E-mail: margaritaasadov@gmail.com

Шуртакова Дарья Владимировна, кандидат физико-математических наук, младший научный сотрудник НИЛ «Многофункциональные материалы для квантовых сенсоров»

Казанский (Приволжский) федеральный университет
ул. Кремлевская, д. 18, г. Казань, 420008, Россия

E-mail: darja-shurtakva@mail.ru

Казарова Ольга Петровна, старший инженер

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН
ул. Политехническая, д. 26, г. Санкт-Петербург, 194021, Россия

E-mail: mokhov@mail.ioffe.ru

Мохов Евгений Николаевич, доктор физико-математических наук, заведующий лабораторией физики диэлектриков и полупроводников

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН
ул. Политехническая, д. 26, г. Санкт-Петербург, 194021, Россия

E-mail: evgenymokhov@yandex.ru

Гафуров Марат Ревгерович, доктор физико-математических наук, директор Института физики

Казанский (Приволжский) федеральный университет
ул. Кремлевская, д. 18, г. Казань, 420008, Россия

E-mail: mgafurov@gmail.com

ISSN 2541-7746 (Print)
ISSN 2500-2198 (Online)

UCHENYE ZAPISKI KAZANSKOGO UNIVERSITETA.
SERIYA FIZIKO-MATEMATICHESKIE NAUKI
(Proceedings of Kazan University. Physics and Mathematics Series)

2024, vol. 166, no. 2, pp. 187–199

ORIGINAL ARTICLE

doi: 10.26907/2541-7746.2024.2.187-199

**Influence of Photoexcitation Conditions
on the Spin Polarization of Nitrogen-Vacancy Centers
in Isotopically Enriched Silicon Carbide 6H-²⁸SiC**

F.F. Murzakhanov^{a}, G.V. Mamin^a, M.A. Sadovnikova^{a**}, D.V. Shurtakova^{a***},
O.P. Kazarova^{b****}, E.N. Mokhov^{b*****}, M.R. Gafurov^{a*****}*

^aKazan Federal University, Kazan, 420008 Russia

^bIoffe Institute, Russian Academy of Sciences, St. Petersburg, 194021 Russia

E-mail: *murzakhanov.fadis@yandex.ru, **margaritaasadov@gmail.com, ***darja-shurtakva@mail.ru,
****mokhov@mail.ioffe.ru, *****evgenymokhov@yandex.ru, *****mgafurov@gmail.com

Received April 11, 2024; Accepted June 4, 2024

Abstract

Spin defects in semiconductors are attracting interest as a material basis for quantum information and computing technologies. In this work, the spin properties of negatively charged nitrogen-vacancy (NV^-) centers in a 6H-SiC silicon carbide crystal enriched with the ²⁸Si isotope were studied by high-frequency (94 GHz) electron paramagnetic resonance (EPR) methods. Due to an optical excitation channel at the NV^- centers, it was possible to initialize the electron spin of the defect using a laser source, which led to a significant increase in the intensity of the recorded EPR signal. The dependences of the observed spin polarization were analyzed at different optical excitation wavelengths ($\lambda = 640 - 1064$ nm), output power (0 – 500 mW), and temperature (50 – 300 K) of the crystal. The results obtained reveal the optimal experimental conditions for maximizing the efficiency of optical quantum energy transfer to the spin system. This opens up new possibilities for using NV^- centers in 6H-SiC to create multi-qubit spin-photon interfaces operating in the infrared region.

Keywords: spin-optical property, spin initialization, spin polarization, electron paramagnetic resonance, silicon carbide, NV^- center

Acknowledgements. This study was supported by the Russian Science Foundation (project no. 24-22-00448).

Conflicts of Interest. The authors declare no conflicts of interest.

Figure Captions

Fig. 1. a) The structure of a SiC bulk crystal of the hexagonal 6H polytype consisting of carbon atoms (brown ball) and silicon (blue ball). h , $k1$, and $k2$ are alternating structurally nonequivalent atomic positions [13]; b) the scheme of optical polarization of nitrogen-vacancy states by a laser source. Due to the mechanism of intersystem crossing during the transition of a defect from the excited orbital ($3E$) state to the ground ($3A$) state, the spin sublevel is populated with $M_S = 0$. The arrows indicate EPR transitions that form the signal of absorption and emission (population inversion) of microwave energy.

Fig. 2. a) EPR spectra of the color centers in 6H-SiC with full magnetic field sweep; b) detailed view of low-field components of the fine structure depending on the optical excitation wavelength. Experiments were carried out at $T = 297$ K.

Fig. 3. EPR spectra depending on the power of the laser source with $\lambda = 980$ nm: a) full sweep; b) to demonstrate spin polarization and detailed low-field components with the observation of hyperfine structures from nitrogen nuclei ^{14}N . Experiments were carried out at $T = 297$ K.

Fig. 4. EPR spectra depending on the temperature of the 6H-SiC crystal under the continuous excitation by a laser source with $\lambda = 980$ nm and output power 50 mW: a) full sweep; b) to demonstrate spin polarization and detailed low-field components with the observation of two types of color centers.

References

1. Ladd T.D., Jelezko F., Laflamme R., Nakamura Y., Monroe C., O'Brien J. Quantum computers. *Nature*, 2010, vol. 464, no. 7285, pp. 45–53. <https://doi.org/10.1038/nature08812>.
2. Weber J.R., Koehl W.F., Varley J.B., Janotti A., Buckley B.B., Van de Walle C.G., Awschalom D.D. Quantum computing with defects. *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.*, 2010, vol. 107, no. 19, pp. 8513–8518. <https://doi.org/10.1073/pnas.1003052107>.
3. Nandhini S., Singh H., Akash U.N. An extensive review on quantum computers. *Adv. Eng. Software*, 2022, vol. 174, art. 103337. <https://doi.org/10.1016/j.advengsoft.2022.103337>.
4. Zhang G., Cheng Y., Chou J.-P., Gali A. Material platforms for defect qubits and single-photon emitters. *Appl. Phys. Rev.*, 2020, vol. 7, no. 3, art. 031308. <https://doi.org/10.1063/5.0006075>.
5. Heremans F.J., Yale C.G., Awschalom D.D. Control of spin defects in wide-bandgap semiconductors for quantum technologies. *Proc. IEEE*, 2016, vol. 104, no. 10, pp. 2009–2023. <https://doi.org/10.1109/JPROC.2016.2561274>.
6. Doherty M.W., Manson N.B., Delaney P., Jelezko F., Wrachtrup J., Hollenberg L.C.L. The nitrogen-vacancy colour centre in diamond. *Phys. Rep.*, 2013, vol. 528, no. 1, pp. 1–45. <https://doi.org/10.1016/j.physrep.2013.02.001>.
7. von Bardeleben H.J., Cantin J.L., Cs  r   A., Gali A., Rauls E., Gerstmann U. NV centers in 3C, 4H, and 6H silicon carbide: A variable platform for solid-state qubits and nanosensors. *Phys. Rev. B*, 2016, vol. 94, no. 12, art. 121202. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.94.121202>.
8. Murzakhanov F.F., Yavkin B.V., Mamin G.V., Orlinskii S.B., Mumdzhi I.E., Gracheva I.N., Gabbasov B.F., Smirnov A.N., Davydov V.Yu., Soltamov V.A. Creation of negatively charged boron vacancies in hexagonal boron nitride crystal by electron irradiation and mechanism of inhomogeneous broadening of boron vacancy-related spin resonance lines. *Nanomaterials*, 2021, vol. 11, no. 6, art. 1373. <https://doi.org/10.3390/nano11061373>.
9. Mi X., Benito M., Putz S., Zajac D.M., Taylor J.M., Burkard G., Petta J.R. A coherent spin–photon interface in silicon. *Nature*, 2018, vol. 555, no. 7698, pp. 599–603. <https://doi.org/10.1038/nature25769>.
10. Soltamov V.A., Kasper C., Poshakinskiy A.V., Anisimov A.N., Mokhov E.N., Sperlich A., Tarasenko S.A., Baranov P.G., Astakhov G.V., Dyakonov V. Excitation and coherent control of spin qubit modes in silicon carbide at room temperature. *Nat. Commun.*, 2019, vol. 10, no. 1, art. 1678. <https://doi.org/10.1038/s41467-019-09429-x>.

11. Bechstedt F., Käckell P., Zywiec A., Karch K., Adolph B., Tenelsen K., Furthmüller J. Polytypism and properties of silicon carbide. *Phys. Status Solidi B*, 1997, vol. 202, no. 1, pp. 35–62.
[https://doi.org/10.1002/1521-3951\(199707\)202:1<35::AID-PSSB35>3.0.CO;2-8](https://doi.org/10.1002/1521-3951(199707)202:1<35::AID-PSSB35>3.0.CO;2-8).
12. Weber W.J., Gao F., Devanathan R., Jiang W., Wang C.M. Ion-beam induced defects and nanoscale amorphous clusters in silicon carbide. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B*, 2004, vol. 216, pp. 25–35. <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2003.11.016>.
13. Khazen K., von Bardeleben H.J., Zargaleh S.A., Cantin J.L., Zhao M., Gao W., Biktagirov T., Gerstmann U. High-resolution resonant excitation of NV centers in 6H – SiC: A matrix for quantum technology applications. *Phys. Rev. B*, 2019, vol. 100, no. 20, art. 205202. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.100.205202>.
14. Murzakhanov F.F., Sadovnikova M.A., Mamin G.V., Nagalyuk S.S., von Bardeleben H.J., Schmidt W.G., Biktagirov T., Gerstmann U., Soltamov V.A. ^{14}N Hyperfine and nuclear interactions of axial and basal NV centers in 4H-SiC: A high frequency (94 GHz) ENDOR study. *J. Appl. Phys.*, 2023, vol. 134, no. 12, art. 123906.
<https://doi.org/10.1063/5.0170099>.
15. Singh L.R. Site symmetry dependence on luminescence emission of $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Eu}^{3+}$ dispersed in silica matrix. *Mater. Technol.*, 2022, vol. 37, no. 11, pp. 1906–1913.
<https://doi.org/10.1080/10667857.2021.2005983>.
16. Murzakhanov F.F., Sadovnikova M.A., Gracheva I.N., Mamin G.V., Baibekov E.I., Mokhov E.N. Exploring the properties of the V_{B}^- defect in hBN: Optical spin polarization, Rabi oscillations, and coherent nuclei modulation. *Nanotechnology*, 2024, vol. 35, no. 15, art. 155001. <https://doi.org/10.1088/1361-6528/ad1940>.
17. Murzakhanov F., Sadovnikova M., Mamin G., Sannikov K., Shakirov A., von Bardeleben H.J., Mokhov E., Nagalyuk S. Room temperature coherence properties and ^{14}N nuclear spin readout of NV centers in 4H-SiC. *Appl. Phys. Lett.*, 2024, vol. 124, no. 3, art. 034001. <https://doi.org/10.1063/5.0186997>.
18. Son N.T., Ivanov I.G. Charge state control of the silicon vacancy and divacancy in silicon carbide. *J. Appl. Phys.*, 2021, vol. 129, no. 21, art. 215702.
<https://doi.org/10.1063/5.0052131>.

Для цитирования: Мурзаханов Ф.Ф., Мамин Г.В., Садовникова М.А., Шуртакoва Д.В., Казарова О.П., Мохoв Е.Н., Гафурoв М.Р. Влияние условий фoтoвoзбуждения на спиновую поляризацию азoт-вакансионных центров в изoтoпнo-обoгaщеннoм карбиде кремния 6H- ^{28}SiC // Учен. зап. Казан. ун-та. Сер. Физ.-матем. науки. 2024. Т. 166, кн. 2. С. 187–199. URL: <https://doi.org/10.26907/2541-7746.2024.2.187-199>.

For citation: Murzakhanov F.F., Mamin G.V., Sadovnikova M.A., Shurtakova D.V., Kazarova O.P., Mokhov E.N., Gafurov M.R. Influence of photoexcitation conditions on the spin polarization of nitrogen-vacancy centers in isotopically enriched silicon carbide 6H- ^{28}SiC . *Uchenye Zapiski Kazanskogo Universiteta. Seriya Fiziko-Matematicheskie Nauki*, 2024, vol. 166, no. 2, pp. 187–199.
URL: <https://doi.org/10.26907/2541-7746.2024.2.187-199>. (In Russian)