Письма в ЖЭТФ, том 114, вып. 5, с. 323 – 327

Влияние механических напряжений на расщепление спиновых подуровней в 4H-SiC

И. Д. Бреев[+], *К. В. Лихачев*[+*], *В. В. Яковлева*[+], *И. П. Вейшторт*[+×], *А. М. Скоморохов*[+×], *С. С. Нагалюк*[+], *Е. Н. Мохов*[+], *Г. В. Астахов*[+∘], *П. Г. Баранов*[+], *А. Н. Анисимов*[+1)]

[+]*Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе РАН, 194021 С.-Петербург, Россия*

[*]*Университет ИТМО, 197101 С.-Петербург, Россия*

[×]*Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет, 197376 С.-Петербург, Россия*

[∘]*Институт физики ионных пучков и исследования материалов, Центр Гельмгольца Дрезден-Россендорф (HZDR), 01328 Дрезден, Германия*

Поступила в редакцию 22 июля 2021 г.
После переработки 28 июля 2021 г.
Принята к публикации 29 июля 2021 г.

Продемонстрировано влияние статической механической деформации на расщепление спиновых подуровней центров окраски на основе вакансий кремния со спином $S = 3/2$ в карбиде кремния при комнатной температуре. Исследована деформированная гетерограница структуры AlN/4H-SiC. Определены значения напряжения вблизи гетероинтерфейса, при помощи конфокальной спектроскопии комбинационного рассеяния света. Применяя метод оптически детектируемого магнитного резонанса (ОДМР) впервые экспериментально получена величина спин-механического взаимодействия для центра V2 в 4H-SiC. Такой подход позволил определить величину констант спин-деформационного взаимодействия для центра V2 в 4H-SiC: $\Xi = -0.1 \pm 0.25$ ГГц/деформация, $\Xi' = -0.8 \pm 0.1$ ГГц/деформация. Результаты работы могут быть применены для контроля спиновых состояний в SiC за счет контролируемой пьезоэлектрической деформации AlN. По результатам данной работы становится возможным оценить параметр тонкой структуры спиновых центров D, используя метод комбинационного рассеяния света. Такого рода оценка позволит прогнозировать магнитометрические параметры наносенсоров на основе нанокристаллов SiC.

DOI: 10.31857/S1234567821170067

Спиновые центры в объемном и нанокристаллическом карбиде кремния (SiC) рассматриваются как перспективная платформа для квантовых устройств. Предлагается использовать их для квантовой обработки информации [1–3], элементов нанофотоники [4] и квантовой сенсорики [5]. Центры на основе вакансий кремния (V_{Si}^-) со спином ($S = 3/2$), обозначаемые обычно по бесфононным линиям V1, V2, ... в гексагональных (4H-SiC, 6H-SiC) и ромбических (15R-SiC, 21R-SiC) политипах в SiC обладают перспективными спиновыми свойствами в основном и возбужденном состояниях [6–13]. Такие центры в SiC представляют особый интерес, поскольку их спиновое состояние может быть выстроено и считано с помощью метода оптического детектирования магнитного резонанса (ОДМР) при высоких температурах, достигающих 250 °C [14]. Используя метод ОДМР, возможно проводить высокочувствительную квантовую магнитометрию [11, 15, 16] и термометрию [15, 17]. Помимо этого одиночные центры V_{Si} [18, 19] демонстрируют высокий контраст считывания [6, 20] и высокую спектральную стабильность [21], что является основой для создания квантовых повторителей [22, 23].

Точный контроль спиновых и оптических свойств V_{Si}^- в SiC имеет решающее значение для квантовой сенсорики и квантовой передачи информации. Наиболее часто применяемый подход основан на смещении Штарка нульфононной линии и расщеплении спинового подуровня в нулевом магнитном поле [24–26]. В качестве альтернативы эффекту Штарка может быть применено резонансное воздействие при помощи акустических волн [27, 28]. В этой работе мы показываем, что механическое напряжение изменяет расщепление D между спиновыми подуровнями со спином $S = 3/2$ и $S = 1/2$ у V2 в 4H-SiC. Для этого мы исследуем гетероструктуру AlN/4H-SiC, где механическое напряжение в кристалле возникает вблизи границы раздела из-за различных параметров ре-

1) e-mail: aan0100@gmail.com

шетки и параметров термического расширения AlN и 4H-SiC [29]. Используя конфокальную спектроскопию комбинационного рассеяния света (КРС) и метод ОДМР, мы одновременно определяем напряжение решетки через сдвиг фононных мод КРС 4H-SiC и расщепление спиновых подуровней. Учитывая, что AlN является пьезоэлектриком, который также используется для изготовления электроакустических преобразователей на SiC [27], наши результаты могут быть применены для локального контроля спиновых состояний в SiC за счет деформаций.

Гетероструктура AlN/4H-SiC была выращена сублимационным сэндвич-методом [30]. Подложка 4H-SiC выращивается при температуре 2200 °C в атмосфере аргона. Скорость роста кристаллов составляла около 100 мкм/ч. Концентрация фоновых примесей, полученная с помощью метода вторично-ионной масс-спектрометрии (ВИМС), составляет: N = 7.3×10^{16} см$^{-3}$; B = 4.4×10^{16} см$^{-3}$; Al = 4.2×10^{16} см$^{-3}$. Перед началом роста AlN кристалл 4H-SiC полируют и нарезают на пластины. Кристаллы AlN выращивают при следующих параметрах: температура в камере составляет около 2000 °C, температурный градиент составляет около 5 K/мм, давление азота в камере варьируется в диапазоне 0.3–1 атм.

Для создания V_{Si} было осуществлено облучение электронами с энергией 2 МэВ с потоком 10^{18} см$^{-2}$. При таком облучении достигается однородное распределение V_{Si} и оптимальное соотношение сигнал-шум ОДМР [31]. После облучения кристаллы скалывались перпендикулярно поверхности роста. Поверхности сколов оптически гладкие, что позволяло проводить конфокальное оптическое сканирование без дополнительной полировки.

Для измерения спектров КРС, фотолюминесценции (ФЛ) и ОДМР мы использовали оптическую базу конфокального микроскопа ("Spectra" NT-MDT SI), оснащенного спектрометром (SOL Instruments), ПЗС матрицей (Andor) и фотодетектором (Hamamatsu C12483-250). Сбор сигнала осуществлялся с использованием объектива с NA = 0.9 и входным пинхолом 100 мкм, что обеспечивало сбор сигнала из объема менее 5 мкм^3. В режиме регистрации спектров КРС и ФЛ оптическое возбуждение происходило при помощи полупроводникового лазера (λ = 532 нм, мощностью возбуждения около 5 мВт). В режиме регистрации ОДМР возбуждение ФЛ происходило при помощи полупроводникового лазера (λ = 785 нм, мощностью возбуждения около 100 мВт). Резонансная радиочастота передается на антенну, расположенную в непосредственной близости от образца. Резонансная частота подается с амплитудной модуляцией. В процессе регистрации ОДМР было скомпенсировано внешнее магнитное поле вдоль оси симметрии V_{Si} (c-оси) до уровня 10 мкТл. Упрощенная схема регистрации ОДМР приведена на рис. 1.

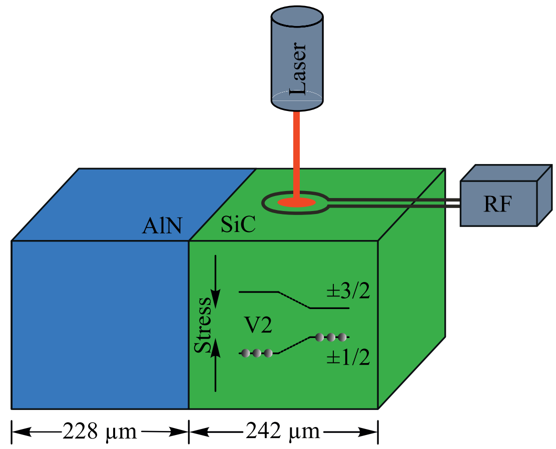

Рис. 1. (Цветной онлайн) Схематическое представление гетероструктуры AlN/4H-SiC. Упрощенная схема регистрации ОДМР демонстрирует возбуждающий лазер (523 или 785 нм) (Laser) и генератор радиочастоты (RF). На зеленом фоне схематично показаны линии спиновых подуровней V_{Si} (не масштабируемое) в деформированной области SiC (справа от гетерограницы) и недеформированной области SiC (вблизи гетерограницы). Сплошные круги схематично показывают электроны, выстроенные оптически при лазерной накачке

Применяя вышеописанные методы, были получены спектры КРС и ОДМР для 4H-SiC, в зависимости от расстояния до гетерограницы. Примеры спектров КРС непосредственно на границе раздела и на расстоянии 25 мкм от нее приведены на рис. 2. На нем показаны три резонанса КРС, которые связаны с E_2 TO, A_1 TO и E_1 TO фононными модами в 4H-SiC [32, 33]. Сплошной линией показана аппроксимация линий для вычисления положения КРС мод. На данных спектрах наблюдаются сдвиги положения резонансов КРС вблизи гетерограницы AlN/4H-SiC от значений в недеформированном кристалле. В частности, $\Delta w_{E_2} = 1.24$ см$^{-1}$ для моды E_2 с частотой 775.86 см$^{-1}$ и $\Delta w_{A_1} = 2.5$ см$^{-1}$ для моды A_1 с частотой 781.83 см$^{-1}$.

Изменение положения центров резонансов КРС происходит из-за деформации кристалла (сжатие) 4H-SiC вблизи границы раздела, что схематично показано на рис. 3. Одноосная деформация характеризуется компонентами напряжений вдоль ($\sigma_{\parallel}$) и пер-

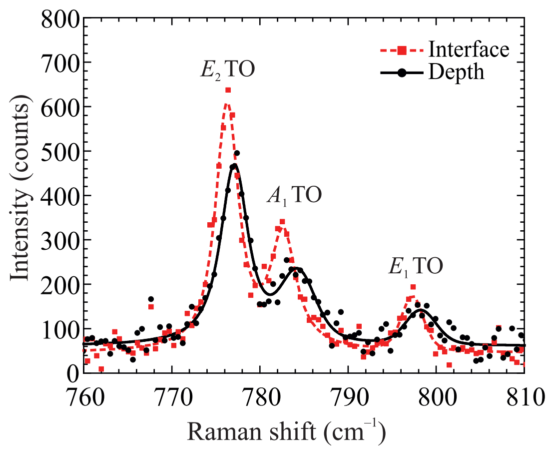

Рис. 2. (Цветной онлайн) Спектр КРС AlN/4H-SiC: красная линия – вблизи границы раздела; черная линия – на расстоянии 25 мкм от границы раздела. Пики, связанные с E_2 TO, A_1 TO и E_1 TO фононными модами, подписаны на рисунке

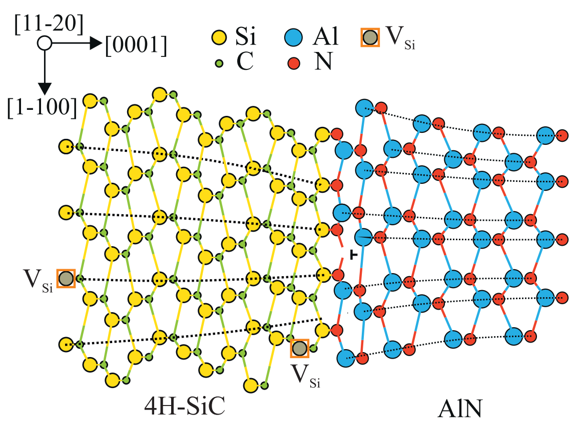

Рис. 3. (Цветной онлайн) Схематичное изображение деформации решетки в AlN и 4H-SiC из-за изменения напряжений вблизи границы раздела

пендикулярно ($\sigma_\perp$) оси c. Смещение положения центров резонансов КРС определяется формулой $\Delta w_i = 2a_i'\sigma_\perp + b_i'\sigma_\parallel$. Используя значения деформационных потенциалов для фононных мод A_1 TO и E_2 TO [34] и константы эластичности [35], мы вычислили профиль распределения напряжений и деформаций от 0 до 32 мкм от гетерограницы. Максимальные значения компонент тензора напряжений наблюдаются на гетерогранице и составляют $\sigma_\perp = -0.19$ ГПа и $\sigma_\parallel = -0.87$ ГПа. Компоненты тензора деформаций в этой точке равны, соответственно, $u_\perp = -0.18 \times 10^{-3}$ и $u_\parallel = -1.54 \times 10^{-3}$. Используемая методика расчетов зависимости деформаций от расстояния до границы была ранее подробно описана в [29].

Рассчитанные по данной методике деформации позволяют проанализировать их влияние на вакансионные центры. Эффективный спиновый Гамильтониан с учетом деформаций при отсутствии внешнего магнитного поля можно представить в виде [36, 37]:

$$H = \left(S_z^2 - \frac{3}{4}\right) \times \left[\Xi\left(u_{zz} - \frac{u_{xx} + u_{yy}}{2}\right) + \right. \\ \left. + \Xi'\left(u_{zz} + \frac{u_{xx} + u_{yy}}{2}\right) + D_0\right], \qquad (1)$$

где D_0 – параметр тонкой структуры без учета механических напряжений, Ξ и Ξ' – компоненты тензора спин-деформационного взаимодействия, $u_{\alpha\beta}$ – компоненты тензора деформаций. Гамильтониан (1) записывается с учетом механических деформаций в одноосном приближении для симметрии $C_{\infty v}$, когда их влияние на вакансионные центры описывается тензором спин-деформационного взаимодействия $\Xi_{\alpha\beta}$ со значимыми компонентами Ξ и Ξ'. В случае одноосной деформации по оси z ($u_{zz} = u_\parallel, u_{xx} = u_{yy} = u_\perp$) расщепление спиновых подуровней $V_{\rm Si}$ в нулевом магнитном поле Δ будет зависеть от компонент тензора напряжений как:

$$\Delta = 2\left[\Xi(u_\parallel - u_\perp) + \Xi'(u_\parallel + u_\perp) + D_0\right]. \qquad (2)$$

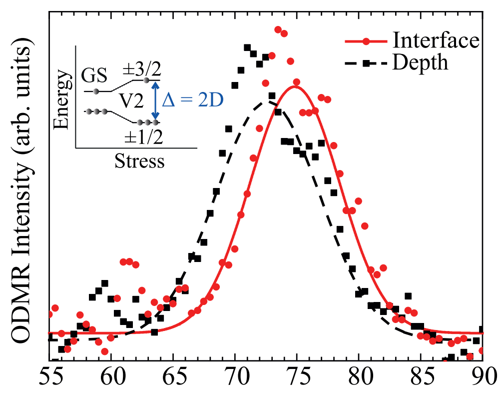

Рис. 4. (Цветной онлайн) Спектр ОДМР центра V2 в 4H-SiC вблизи гетерограницы. Красная линия – спектр, полученный на гетерогранице AlN/SiC; черная линия – спектр, полученный на расстоянии 25 мкм от гетерограницы AlN/SiC. Слева на вставке показано расщепление основного состояния спиновых подуровней $V_{\rm Si}$ в нулевом магнитном поле Δ. Регистрация спектров происходит при комнатной температуре

На рисунке 4 изображены ОДМР-спектры, зарегистрированные при комнатной температуре на гетерогранице AlN/4H-SiC (Interface) и на расстоянии

25 мкм от нее (Depth). Положение резонанса, относящегося к вакансионным центрам V2 [38], определяется расщеплением спиновых подуровней в нулевом магнитном поле $\nu = |\Delta|/h$. Для определения положения центра ОДМР резонанса была проведена аппроксимация функцией Гаусса.

Вблизи гетерограницы ОДМР резонанс центра V2 сдвигается в область более высоких частот по сравнению с ОДМР резонансом на свободной поверхности 4H-SiC. Используя уравнение (2), положение линии ОДМР и значений компонент тензора деформаций, были рассчитаны компоненты тензора спин- деформационного взаимодействия $\Xi = -0.1 \pm 0.25$ ГГц/деформация, $\Xi' = -0.8 \pm 0.15$ ГГц/деформация и $D_0 = 36 \pm 0.15$ МГц. Используя полученные значения Ξ и Ξ', рассчитаны зависимости положения центра резонанса ОДМР (синяя линия на рис. 5). Данная зависимость хорошо

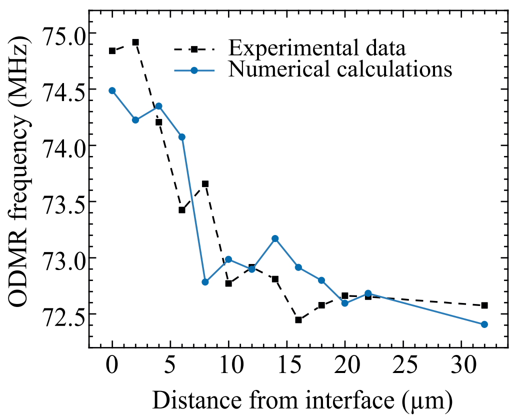

Рис. 5. (Цветной онлайн) Положение центра резонансной линии ОДМР в зависимости от расстояния до границы раздела; синей линией обозначен результат расчета с использованием деформаций

согласуется с экспериментально полученным значением резонанса ОДМР (черная пунктирная линия на рис. 5). Расчет положения ОДМР резонанса вычислено с использованием фононных сдвигов измеренных по спектрам КРС.

Заключение. В работе оценено влияние механической деформации на спиновые свойства вакансионного центра V2 в 4H-SiC. Рассчитаны компоненты тензора спин-деформационного взаимодействия. Наблюдаемый сдвиг в ОДМР спектре вызван механическим напряжением, что показывает возможность механического контроля расщепления D между спиновыми уровнями со спином $\pm 1/2$ и $\pm 3/2$ для V2 центров в SiC. Нам удалось разработать метод оценки тонкой структуры D по спектрам КРС, что перспективно для расчета спиновых свойств в наночастицах SiC. В свою очередь, такого рода оценка позволит прогнозировать магнитометрические параметры наносенсоров на основе нанокристаллов SiC [15]. В дополнении можно добавить, что используя пьезоэлектрические свойства AlN на основе гетероструктур AlN/SiC становится возможным создать пьезонастраиваемые спиновые структуры, перспективные в области квантовой коммуникации, как элементы нанофотоники.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке фонда Российского фонда фундаментальных исследований # 20-52-76010. А. Н. Анисимов благодарит Совет по грантам Президента Российской Федерации за финансовую поддержку данной работы, Стипендия # СП-2179.2021.5.

Авторы выражают благодарность А. В. Пошахинскому за обсуждение результатов работ.

1. G. V. Astakhov and V. Dyakonov, *Defects in Advanced Electronic Materials and Novel Low Dimensional Structures. Defects for Quantum Information Processing in SiC*, Woodhead Publishing (2018), p. 211.
2. S. Castelletto and A. Boretti, J. Phys. **2**, 022001 (2020).
3. N. T. Son, C. P. Anderson, A. Bourassa, K. C. Miao, C. Babin, M. Widmann, M. Niethammer, J. Ul Hassan, N. Morioka, I. G. Ivanov, F. Kaiser, J. Wrachtrup, and D. D. Awschalom, Appl. Phys. Lett. **116**, 190501 (2020).
4. D. M. Lukin, M. A. Guidry, and J. Vučković, PRX Quantum **1**, 020102 (2020).
5. S. A. Tarasenko, A. V. Poshakinskiy, D. Simin, V. A. Soltamov, E. N. Mokhov, P. G. Baranov, V. Dyakonov, and G. V. Astakhov, Phys. Status Solidi B **255**, 1700258 (2018).
6. P. G. Baranov, A. P. Bundakova, A. A. Soltamova, S. B. Orlinskii, I. V. Borovykh, R. Zondervan, R. Verberk, and J. Schmidt, Phys. Rev. B **83**, 125203 (2011).
7. P. G. Baranov, H. J. von Bardeleben, F. Jelezko, and J. Wrachtrup, *Magnetic Resonance of Semiconductors and their Nanostructures*, Springer Vienna, Vienna (2017).
8. V. A. Soltamov, A. A. Soltamova, P. G. Baranov, and I. I. Proskuryakov, Phys. Rev. Lett. **108**, 226402 (2012).
9. D. Riedel, F. Fuchs, H. Kraus, S. Väth, A. Sperlich, V. Dyakonov, A. Soltamova, P. Baranov, V. Ilyin, and G. V. Astakhov, Phys. Rev. Lett. **109**, 226402 (2012).
10. A. L. Falk, B. B. Buckley, G. Calusine, W. F. Koehl, V. V. Dobrovitski, A. Politi, C. A. Zorman, P. X. L. Feng, and D. D. Awschalom, Nat. Commun. **4**, 1819 (2013).

11. D. Simin, V. A. Soltamov, A. V. Poshakinskiy, A. N. Anisimov, R. A. Babunts, D. O. Tolmachev, E. N. Mokhov, M. Trupke, S. A. Tarasenko, A. Sperlich, P. G. Baranov, V. Dyakonov, and G. V. Astakhov, Phys. Rev. X **6**, 031014 (2016).
12. А. Н. Анисимов, Р. А. Бабунц, И. Д. Бреев, В. А. Солтамов, Е. Н. Мохов, П. Г. Баранов, Письма в ЖЭТФ **112**(12), 813 (2020).
13. H. Kraus, V. A. Soltamov, D. Riedel, S. Väth, F. Fuchs, A. Sperlich, P. G. Baranov, V. Dyakonov, and G. V. Astakhov, Nat. Phys. **10**, 157 (2014).
14. H. Kraus, V. A. Soltamov, F. Fuchs, D. Simin, A. Sperlich, P. G. Baranov, G. V. Astakhov, and V. Dyakonov, Sci. Rep. **4**, 5303 (2015).
15. A. N. Anisimov, V. A. Soltamov, I. D. Breev, M. M. Khalisov, R. A. Babunts, A. V. Ankudinov, and P. G. Baranov, JETP Lett. **108**, 610 (2018).
16. 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, and V. Dyakonov, Nat. Commun. **10**, 1678 (2019).
17. A. N. Anisimov, D. Simin, V. A. Soltamov, S. P. Lebedev, P. G. Baranov, G. V. Astakhov, and V. Dyakonov, Sci. Rep. **6**, 33301 (2016).
18. M. Widmann, S.-Y. Lee, T. Rendler et al. (Collaboration), Nat. Mater. **14**, 164 (2015).
19. F. Fuchs, B. Stender, M. Trupke, D. Simin, J. Pflaum, V. Dyakonov, and G. V. Astakhov, Nat. Commun. **6**, 7578 (2015).
20. R. Nagy, M. Widmann, M. Niethammer, D. B. R. Dasari, I. Gerhardt, Ö. O. Soykal, M. Radulaski, T. Ohshima, J. Vučković, N. T. Son, I. G. Ivanov, S. E. Economou, C. Bonato, S.-Y. Lee, and J. Wrachtrup, Phys. Rev. Appl. **9**, 034022 (2018).
21. R. Nagy, M. Niethammer, M. Widmann, Y.-C. Chen et al. (Collaboration), Nat. Commun. **10**, 1954 (2019).
22. N. Morioka, C. Babin, R. Nagy et al. (Collaboration), Nat. Commun. **11**, 2516 (2020).
23. D. M. Lukin, C. Dory, M. A. Guidry, K. Y. Yang, S. D. Mishra, R. Trivedi, M. Radulaski, S. Sun, D. Vercruysse, G. H. Ahn, and J. Vučković, Nature Photon. **14**, 330 (2020).
24. A. L. Falk, P. V. Klimov, B. B. Buckley, V. Ivády, I. A. Abrikosov, G. Calusine, W. F. Koehl, A. Gali, and D. D. Awschalom, Phys. Rev. Lett. **112**, 187601 (2014).
25. M. Rühl, L. Bergmann, M. Krieger, and H. B. Weber, Nano Lett. **20**, 658 (2020).
26. D. M. Lukin, A. D. White, R. Trivedi et al. (Collaboration), npj Quantum Inf. **6**, 80 (2020).
27. S. J. Whiteley, G. Wolfowicz, C. P. Anderson, A. Bourassa, H. Ma, M. Ye, G. Koolstra, K. J. Satzinger, M. V. Holt, F. J. Heremans, A. N. Cleland, D. I. Schuster, G. Galli, and D. D. Awschalom, Nature Phys. **15**, 490 (2019).
28. A. Hernández-Mínguez, A. V. Poshakinskiy, M. Hollenbach, P. V. Santos, and G. V. Astakhov, Phys. Rev. Lett. **125**, 107702 (2020).
29. I. D. Breev, K. V. Likhachev, V. V. Yakovleva, R. Hübner, G. V. Astakhov, P. G. Baranov, E. N. Mokhov, and A. N. Anisimov, J. Appl. Phys. **129**, 055304 (2021).
30. E. N. Mokhov and A. A. Wolfson, *Growth of AlN and GaN crystals by sublimation*, in *Single Crystals of Electronic Materials: Growth and Properties*, ed. by R. Fornary, Woodhead Publishing, Elsevier, Amsterdam (2018).
31. C. Kasper, D. Klenkert, Z. Shang, D. Simin, A. Gottscholl, A. Sperlich, H. Kraus, C. Schneider, S. Zhou, M. Trupke, W. Kada, T. Ohshima, V. Dyakonov, and G. V. Astakhov, Phys. Rev. Appl. **13**, 044054 (2020).
32. N. Sugiyama, M. Yamada, Y. Urakami, M. Kobayashi, T. Masuda, K. Nishikawa, F. Hirose, and S. Onda, Mater. Res. Soc. Symp. Proc. **1693**, 107 (2014).
33. D. W. Feldman, J. H. Parker, J. W. J. Choyke, and L. Patrick, Phys. Rev. **170**, 698 (1968).
34. R. Sugie and T. Uchida, J. Appl. Phys. **122**, 195703 (2017).
35. K. Kamitani, M. Grimsditch, J. C. Nipko, C.-K. Loong, M. Okada, and I. Kimura, J. Appl. Phys. **82**, 3152 (1997).
36. A. V. Poshakinskiy and G. V. Astakhov, Phys. Rev. B **100**, 094104 (2019).
37. P. Udvarhelyi and A. Gali, Phys. Rev. Appl. **10**, 054010 (2018).
38. S. B. Orlinski, J. Schmidt, E. N. Mokhov, and P. G. Baranov, Phys. Rev. B **67**, 125207 (2003).