Письма в ЖЭТФ, том 116, вып. 3, с. 139 – 145

Обнаружение осцилляций Рамсея в германии, легированном мелкими донорами, при возбуждении перехода $1s \to 2p_0$

Р. Х. Жукавин[+ 1)], *П. А. Бушуйкин*[+], *В. В. Кукотенко*[*×], *Ю. Ю. Чопорова*[*×], *Н. Дессманн*[○ 2)], *К. А. Ковалевский*[+], *В. В. Цыпленков*[+], *В. В. Герасимов*[*×], *Б. А. Князев*[*×], *Н. В. Абросимов*[∇], *В. Н. Шастин*[+]

[+]*Институт физики микроструктур РАН, 603950 Н. Новгород, Россия*

[*]*Институт ядерной физики им. Г. И. Будкера Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия*

[×]*Новосибирский национальный исследовательский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия*

[○]*FELIX Laboratory, Radboud University, Nijmegen 6525 ED, The Netherlands*

[∇]*Leibniz-Institut fur Kristallzuchtung, 12489 Berlin, Germany*

Поступила в редакцию 3 июня 2022 г.
После переработки 15 июня 2022 г.
Принята к публикации 15 июня 2022 г.

Представлены результаты экспериментальных исследований по наблюдению осцилляций Рамсея при воздействии импульсов терагерцового излучения на состояния мелкого донора в германии. В качестве источника возбуждения использовался лазер на свободных электронах (NovoFEL). При проведении экспериментов применялась стандартная методика, предполагающая воздействие последовательности двух оптических импульсов на частоте излучения, близкой к частоте примесного перехода $1s(A_1) \to 2p_0$. Когерентное состояние ансамбля доноров наблюдалось с помощью измерения фототока, обусловленного термическим выбросом электронов в зону проводимости из состояния $2p_0$. Полученный эффект оказался достаточно устойчив к используемым экспериментальным условиям, в частности, температурному режиму, что дает надежду на дальнейшее усовершенствование при переходе к искусственно созданным системам на основе мелких доноров в германии.

DOI: 10.31857/S1234567822150022, EDN: jffhsc

Введение. Состояния кулоновских центров в полупроводниках [1] привлекают внимание исследователей в качестве кандидатов для создания различных квантовых устройств. Данное обстоятельство вызвано тем, что такие объекты являются естественными нульмерными образованиями, и к настоящему моменту существуют технологии контролируемого позиционирования одиночных кулоновских центров в полупроводниковой матрице с возможностью последующей манипуляции их состоянием [2]. Наибольший интерес вызывают донорные центры в алмазе, кремнии и германии, что обусловлено, в частности, возможностью создания моноизотопной матрицы (кремний), и большими временами релаксации определенных состояний кубита (кремний, алмаз) [2–4]. Как известно, доноры в германии обладают большими радиусами основных состояний [5], что в случае реализации модели Кейна [6] снижает требования к технологии создания массивов кубитов. На данном этапе интерес вызывают методы квантовой оптики для манипуляций когерентными состояниями, включающие, в частности, фотонное эхо и интерференцию Рамсея. Последнее используется в различных экспериментальных исследованиях, таких как точное определение резонансных частот [7] и эталон секунды [8]. Как известно, метод интерферометрии Рамсея использует два оптических импульса равной интенсивности с длительностью менее продольного T_1 и поперечного T_2 релаксационных времен двухуровневой системы. Первый импульс возбуждает в системе когерентные суперпозиции состояний доноров (осциллирующие диполи), второй взаимодействует со сформированными в среде диполями, находящимися в определенной фазе и имеющими определенную амплитуду. В результате воздействия последовательности двух оптических импульсов с резонансной частотой населенность верхнего уровня донорного перехода определяется разностью фаз излучений первого и второго импульсов возбуждения (осциллирующая функция с частотой перехода/возбуждающего излучения).

1) e-mail: zhur@ipmras.ru
2) N. Deßmann.

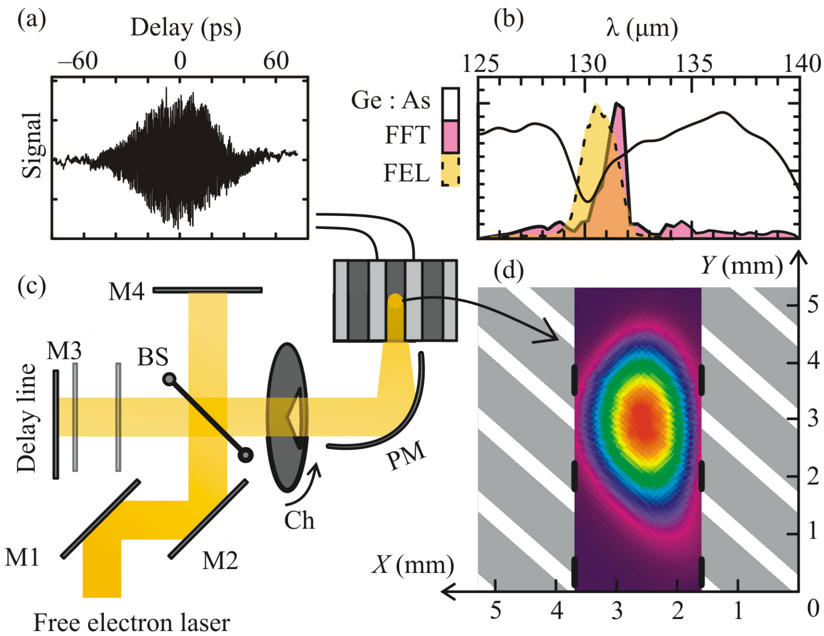

Рис. 1. (Цветной онлайн) Эксперимент по детектированию осцилляций Рамсея электрическим методом: (a) – сигнал напряжения V, снимаемый с двух средних контактов на образце; (b) – Пример преобразования Фурье полученного сигнала (см. описание эксперимента) (розовый), линия лазера на свободных электронах NovoFEL (желто-зеленый), спектральная линия $1s(\mathrm{A}_1) \rightarrow 2p_0$ в Ge : As (черный); (c) – оптическая схема эксперимента с линией задержки (M1, 2, 3 – плоское зеркало, PM – параболическое зеркало, BS – делитель пучка), Ch – модулятор; (d) – изображение луча излучения лазера в месте образца, снятое с помощью пироэлектрической камеры

Воздействие первого импульса может быть рассмотрено как запись информации, а действие второго – как последующая манипуляция или контроль существования суперпозиции состояний. Измерение зависимости населенности второго уровня как функция времени задержки между импульсами (определяет разность фаз излучения в первом и втором импульсах) в работе [9] проводилось путем измерения фототока, аналогично методу PTIS [10], в котором величина тока пропорциональна населенности возбужденного уровня и обусловлена термической ионизацией носителей заряда при конечных температурах. В работе [9] была продемонстрирована возможность сочетания оптической записи когерентного состояния и некогерентного электрического контроля на примере состояний доноров фосфора в кремнии.

Данная работа посвящена экспериментальному исследованию возможности наблюдения интерференции Рамсея в системе доноров мышьяка в германии. Мелкие доноры обладают переходами, соответствующими существующим компактным источникам стимулированного терагерцового излучения, для которых продемонстрированы режимы генерации коротких импульсов (quantum cascade lasers [11], p-Ge лазер [12]). Выбор мышьяка обусловлен наибольшей энергией связи среди доноров пятой группы ($E_0 = 14.18$ мэВ, [1]), что снижает требования к температуре, а также достаточно большими временами жизни возбужденных состояний [13] в сравнении с донорами в кремнии [14], что позволяет использовать длительности импульсов ~ 100 пс, характерные для используемого в экспериментах лазера на свободных электронах NovoFEL.

Эксперимент. Кристаллы германия были выращены методом Чохральского с концентрацией мышьяка $N_0 = 5.2 \times 10^{13}$ см$^{-3}$ (образец 1) и $N_0 = 1.2 \times 10^{13}$ см$^{-3}$ (образец 2). Концентрация компенсирующих примесей имела величину $\sim 10^{12}$ см$^{-3}$. Образцы имели размеры $0.5 \times 5 \times 10$ мм^3. Угол между полированными гранями 5×10 мм составлял $\sim 1.5°$. Образец помещался в проточный гелиевый криостат Janis ST-100 с окнами TPX (полоса пропускания для длин волн больше 15 мкм).

В качестве источника использовалась установка NovoFEL при Сибирском центре синхротронного и терагерцового излучения [15], состоящая из трех лазеров на свободных электронах (ЛСЭ). В данном эксперименте использовался терагерцовый ЛСЭ с возможностью перестройки в диапазоне $\lambda = 90{-}340$ мкм, длительностью импульса ~ 100 пс и частотой повторения 5.6 МГц. Входной импульс излучения ослаблялся с помощью поляризатора и делился на две, приблизительно равные по интенсивности, части с помощью делителя на основе полипропилена. В соответствие со схемой (рис. 1) один из импульсов проходил через линию задержки, позволяющую варьировать в автоматическом режиме задержку между импульсами от $\tau = -200$ пс до $\tau = 500$ пс от нулевой разности хода. После прохождения интерферометра оба импульса снова сводились через тот же делитель. С помощью параболического зеркала излучение фокусировалось на поверхности образца в пятно диаметром ~ 1 мм. Излучение обоих пучков модулировалось с помощью прерывателя на частоте 140 Гц, располагающегося перед входным окном криостата с образцом. Средняя суммарная мощность излучения, падающего на образец, не превышала 10 мВт. В основном, в эксперименте использовалась длина волны $\lambda = 131.3$ мкм, соответствующая переходу $1s(A_1) \to 2p_0$ (9.44 мэВ), а также $\lambda = 160$ мкм (7.7 мэВ) для сравнения с нерезонансным фотовозбуждением.

На образцы были нанесены 4 контакта Ti/Au на расстоянии 2 мм друг от друга (рис. 1). Все измерения проводились по четырехконтактной схеме. Между внешними контактами пропускался постоянный ток до 20 мкА, а с внутренних контактов снималось напряжение и подавалось на осциллограф для снятия кинетики или на синхронный усилитель (SR-830 lock-in amplifier) с возможностью последующей записи и автоматического построения величины сигнала как функции положения подвижного зеркала. Предполагалось, что регистрируемое падение напряжения между парой средних контактов оказывается прямо пропорциональна населенности уровня $2p_0$, что вызвано выбросом электронов в зону проводимости как благодаря взаимодействию с равновесными фононами, так и вторичному поглощению квантов возбуждения.

Результаты и обсуждение. На рисунке 2 показаны интерферограммы для случая нерезонансного и резонансного возбуждения перехода $1s(A_1) \to 2p_0$ в образце 1. Рисунок 2a демонстрирует сигнал детектора как функцию времени задержки между двумя импульсами рамсеевской пары для длины волны 160 мкм (нерезонансный случай). Форма огибающей полученного сигнала соответствует автокорреляционной функции импульса возбуждения, который можно аппроксимировать гауссовой функцией с дисперсией, соответствующей длительности импульса. На рисунках 2b, c показаны сигналы интерференции при резонансном возбуждении образцов с концентрациями 1.2×10^{13} см$^{-3}$ и 5.2×10^{13} см$^{-3}$, соответствующий вид огибающих в логарифмическом масштабе показан на рис. 2d (образец 1) и рис. 2e (образец 2). Как следует из сравнения резонансного и нерезонансного случаев для огибающих, для резонанса имеется отклонение от гауссовой формы, сопровождающееся увеличением длительности. Рисунок 3 демонстрирует результаты измерения спектров для образцов 1 и 2 для различных участков интерферограммы с помощью преобразования Фурье. Показано, что спектры для обоих образцов во всех участках интерферограммы, включая времена задержки до 400 пс, превышающие длительность импульса возбуждения, содержат линию ~130 мкм, что соответствует переходу $1s(A_1) \to 2p_0$ донора As.

Согласно теории, оптимальным при наблюдении осцилляций Рамсея является использование $\pi/2$ импульсов (при параметрах излучения NovoFEL для n-Ge средняя мощность излучения 8.5 мВт), соответствующих возбуждению системы на "экватор" сферы Блоха. Однако в эксперименте такое значение мощности может приводить к перегреву образца и, следовательно, к возрастанию скорости релаксации когерентности до неприемлемых значений. Поэтому, чтобы избежать перегрева образца, в основном использовались существенно меньшие значения мощности импульсов возбуждения (не более 1 мВт).

Осцилляции Рамсея можно описать в рамках двухуровневой системы с использованием полуклассического подхода [16] для описания взаимодействия поля с веществом, в котором примесный атом считается двухуровневой квантовой системой, а электромагнитное поле описывается классически. Используется приближение вращающейся волны [16]. Гамильтониан системы в пренебрежении взаимодействием с колебаниями решетки имеет вид:

$$H = H_0 + \mu E_1(t)\cos(\nu t) + \mu E_2(t-\tau)\cos(\nu t + \varphi), \quad (1)$$

где H_0 – гамильтониан невозмущенной системы, собственные функции которого Ψ_1 и Ψ_2 с энергиями $\hbar\omega_1$ и $\hbar\omega_2$, μ – дипольный момент перехода, $E_{1,2}(t)$ – зависящие от времени амплитуды полей двух импульсов внешнего излучения длительностью t_0, ν – круговая частота этого излучения, φ – разность фаз излучения в первом и втором импульсах, τ – временная задержка между двумя импульсами. Волновую функцию в рамках такого описания можно записать в виде:

$$\Psi(t) = a_1(t)\Psi_1 e^{-i\omega_1 t} + a_2(t)\Psi_2 e^{-i\omega_2 t}, \quad (2)$$

где $a_1(t)$, $a_2(t)$ – искомые амплитуды. Подставляя волновую функцию (2) в гамильтониан (1), после

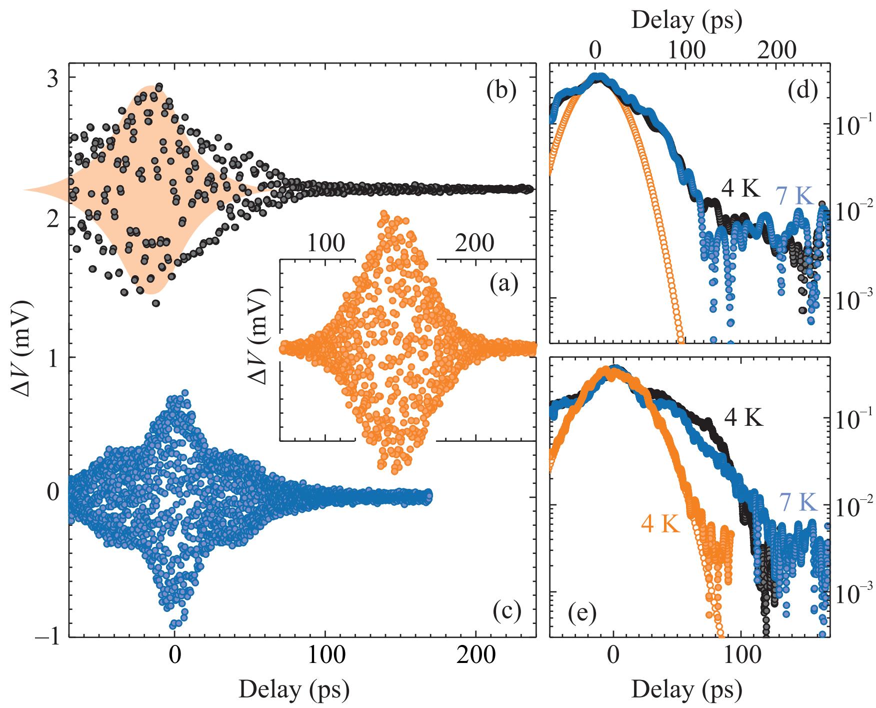

Рис. 2. (Цветной онлайн) Экспериментальный сигнал осцилляции Рамсея при фотовозбуждении на длине волны лазера $\lambda = 131$ мкм: (a) – интерферограмма для образца 2 ($N_{\mathrm{As}} = 5.3 \times 10^{13}$ см$^{-3}$), средняя мощность $P = 200$ мкВт, $T^* = 7$ K; (b) – интерферограмма для образца 1 ($N_{\mathrm{As}} = 1.2 \times 10^{13}$ см$^{-3}$), средняя мощность $P = 0.6$ мВт, $T^* = 4$ K, область, закрашенная оранжевым цветом, повторяет форму сигнала (a); (c) – интерферограмма автокорреляции на $\lambda = 160$ мкм; (d), (e) – огибающие сигнала (b) и (c) соответственно (черный – $T^* = 4$ K, синий $T^* = 7$ K, оранжевый – сигнал автокорреляции, нормированный по величине, оранжевый пустой – функция Гаусса, моделирующая сигнал (a)). T^* – температура "холодного столика" криостата

несложных преобразований можно получить систему уравнений для $a_1(t)$ и $a_2(t)$:

$$\begin{cases} a_1' = -\frac{i}{2} a_2(\Omega_1(t) e^{i\delta t} + \Omega_2(t-\tau) e^{i(\delta t + \varphi)}), \\ a_2' = -\frac{i}{2} a_1(\Omega_1(t) e^{-i\delta t} + \Omega_2(t-\tau) e^{-i(\delta t + \varphi)}), \end{cases} \quad (3)$$

где Ω_1 и Ω_2 – зависящие от времени t частоты Раби для полей, связанных с первым и вторым импульсами соответственно и определяемые выражениями:

$$\Omega_{1,2}(t) = \frac{\mu_{21} E_{1,2}(t)}{\hbar}, \quad (4)$$

где δ – отстройка частоты излучения от частоты атомного перехода, μ_{21} – матричный элемент дипольного перехода между рассматриваемыми уровнями атома. Форма импульсов излучения (следовательно, $\Omega_1(t)$ и $\Omega_2(t)$) аппроксимировались Гауссовой кривой. Учет неоднородного уширения в среде производился усреднением по δ найденных $a_1(t)$ и $a_2(t)$ и величин, производных от них, считая, что δ – случайная величина с нормальным распределением.

Описанный теоретический подход не позволяет учитывать релаксационные процессы в системе (время релаксации населенности (T_1) и релаксации когерентности (T_2)), и длительность наблюдаемых осцилляций Рамсея определяется обратной величиной неоднородного уширения линии ($\Delta\nu$) возбуждаемого примесного перехода. Таким образом, используемый теоретический подход адекватно описывает реальную ситуацию в случае, когда $\frac{1}{2\pi\Delta\nu} < T_1, T_2$, где $\Delta\nu$ – ширина неоднородно уширенной линии перехода, что в представленном случае выполняется, а существенное уменьшение $\Delta\nu$ требует сильного понижения концентрации легирования, при котором наблюдение эффекта станет затруднительным из-за низкой чувствительности. Вместе с тем, он дает понимание влияния на форму и длительность осцилляций таких параметров, как ширина линии, поле волны, отстройка и длительность импульса.

Рисунок 4 представляет примеры численного расчета населенности верхнего состояния ансамбля примесных центров от времени задержки между импульсами при различных значениях мощности излучения в импульсах и величины неоднородного уширения Δ (определена как ширина неоднородно уширенной линии перехода на полувысоте) примесного

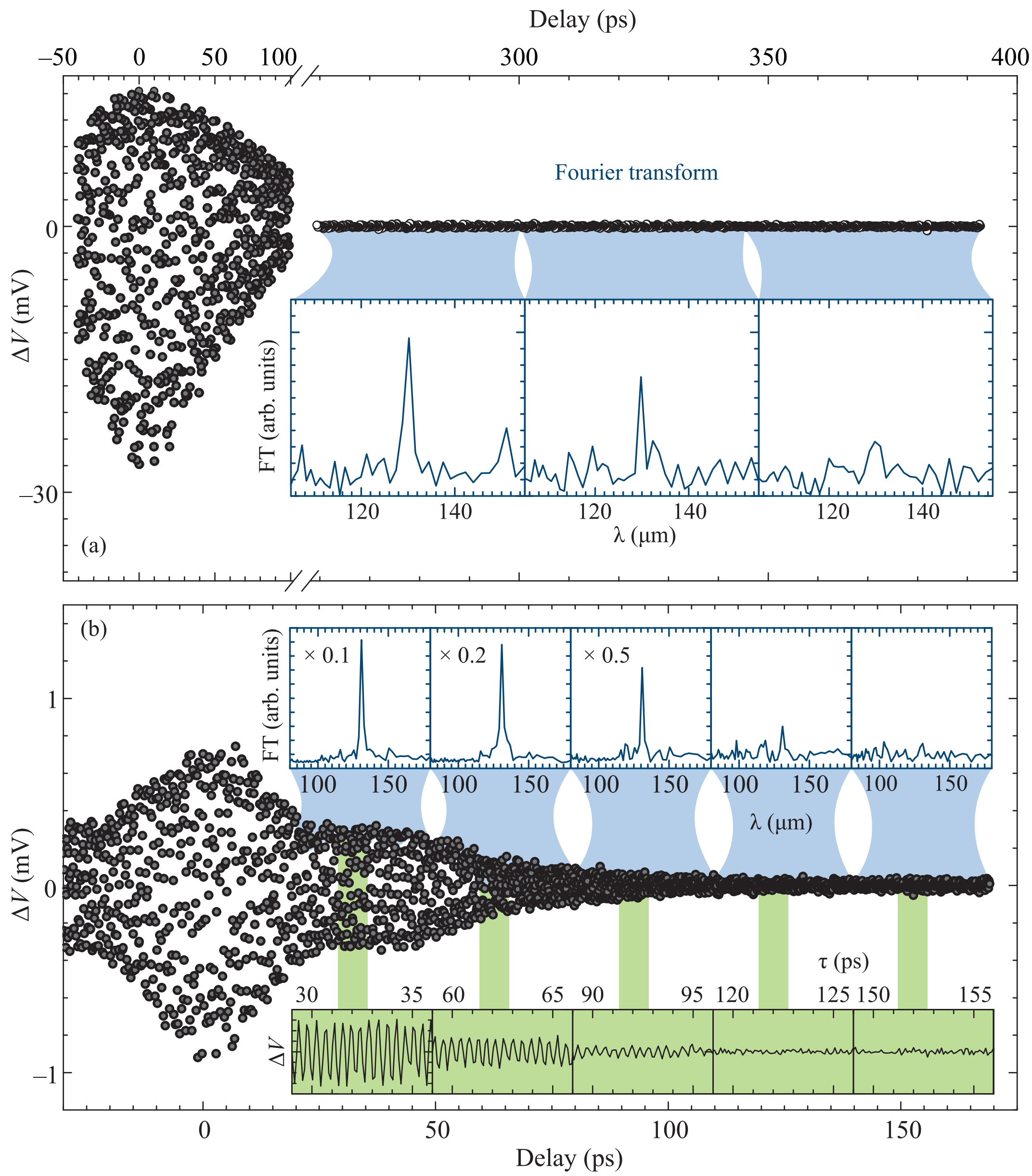

Рис. 3. (Цветной онлайн) Интерферограммы осцилляций Рамсея: (a) – образец 1 ($N_{\mathrm{As}} = 1.2 \times 10^{13}\,\mathrm{см}^{-3}$), средняя мощность $P = 9.5$ мВт, $T^* = 4$ К; (b) – образец 2 ($N_{\mathrm{As}} = 5.2 \times 10^{13}\,\mathrm{см}^{-3}$), средняя мощность $P = 200$ мкВт, $T^* = 7$ К. Голубые вставки показывают Фурье преобразование сигнала в указанных областях. Зеленые вставки демонстрируют изменение сигнала ΔV на масштабе 7 пс. T^* – температура холодного столика криостата

перехода. Расчет выполнен в пренебрежении релаксацией в системе. Зависимость представляет собой быстро осциллирующую функцию с частотой перехода/излучения накачки (осцилляции Рамсея).

Таким образом,квадраты соответствующих коэффициентов $a_{1,2}(t)$ пропорциональны населенностям уровней 1 и 2 соответственно. Как упомянуто выше, в данном эксперименте населенность верхнего уровня $2p_0$ определяет населенность континуума зоны проводимости через термоиндуцированные процессы выброса электронов, т.е. представляет собой процесс фототермоионизации. Однако, наряду с резонансным воздействием на среду возможно и нерезонансное ввиду наличия населенности состояний донора при температуре, отличной от нуля.

Сигнал фототока (рис. 2a), детектируемый в случае значительной отстройки от частоты перехода $1s(A_1) \rightarrow 2p_0$ и определяемый конечной населенностью возбужденных состояний как основной, так и остаточной примеси в образце, может служить в

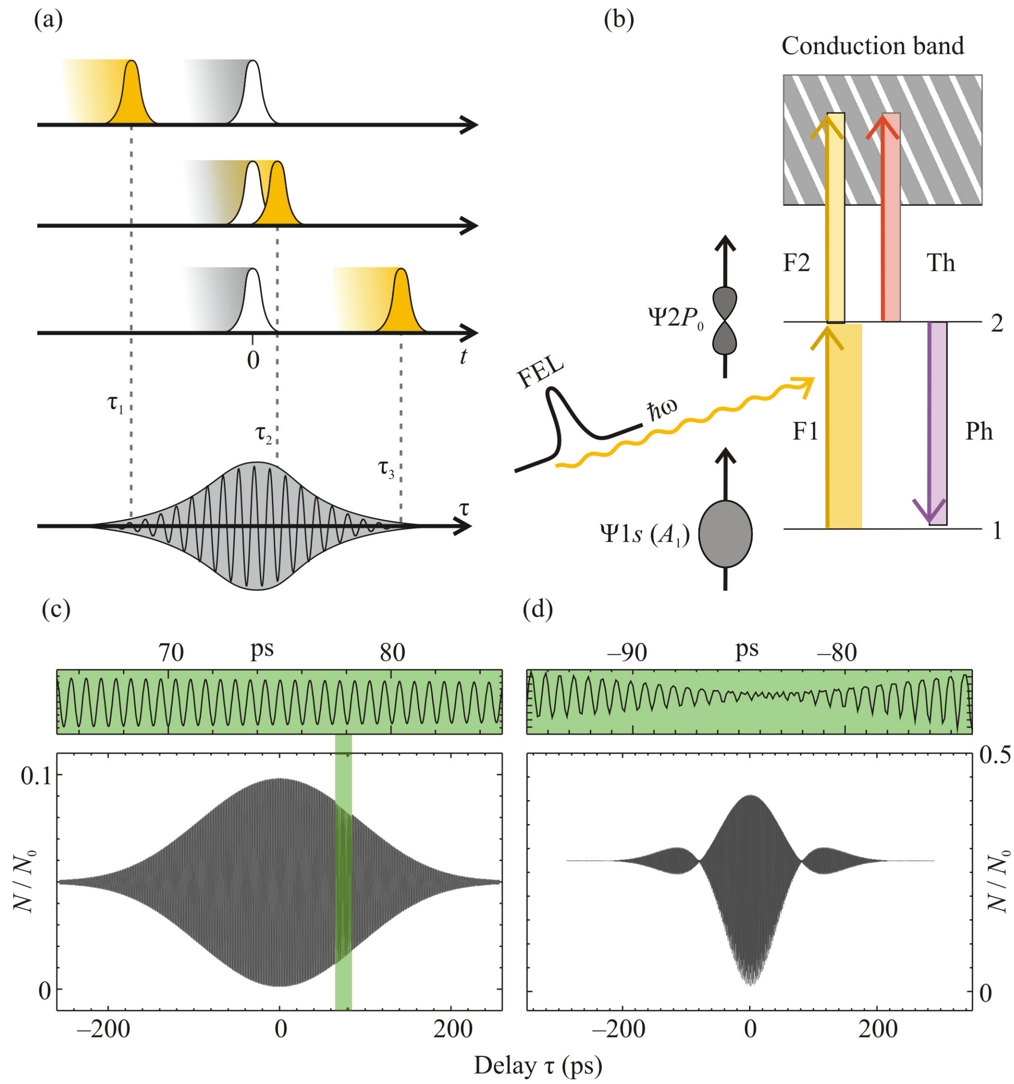

Рис. 4. (Цветной онлайн) Моделирование осцилляций населенностей уровня $2p_0$ при фотовозбуждении на частоте перехода $1s(A_1) \to 2p_0$ в Ge : As: (a) – последовательности двух оптических импульсов с разной величиной задержки τ; (b) – модель двухуровней системы для примеси As в Ge с указанием основных каналов возбуждения и релаксации (F1,F2 – оптические переходы под действием излучения FEL, Th – безизлучательный переход с участием равновесных фононов, Ph – релаксация на акустических фононах); (c), (d) – рассчитанные населенности состояния $2p_0$ от задержки τ с использованием следующих параметров (N_0 – концентрация легирования): средняя мощность $P = 0.43$ мВт (c), $P = 8.5$ мВт (d); длительность импульсов $t_0 = 100$ пкс; неоднородное уширение $\Delta = 0.02$ мэВ (c), $\Delta = 0.06$ мэВ (e). Зеленые вставки демонстрируют изменения N на масштабе 20 пс

качестве примера автокорреляционной функции импульса ЛСЭ и аппроксимируется функцией Гаусса. Как видно из рис. 2d, e форма огибающей интерферограммы в резонансом случае имеет значительное отклонение от автокорреляционной функции. Таким образом, можно констатировать, что детектируемый сигнал в случае резонансного воздействия представляет собой сумму автокорреляционной функции и более длинного сигнала, который определяется временами существования макроскопической поляризации среды. Данное предположение подтверждается анализом Фурье сигнала интерферограммы. Как следует из рис. 3, длительность осцилляций Рамсея заметно превышает длительность автокорреляционной функции импульса излучения. При этом образец с меньшей концентрацией демонстрирует наличие линии 131 мкм в большем диапазоне времени задержки, вплоть до задержек 300–400 пс, что можно связать с меньшей величиной неоднородного уширения линии перехода. Оценить характерное время спадания амплитуды осцилляций T_2 оказывается затруднительно ввиду сложной формы сигнала, причинами которой являются фактор уширения линии перехода и небольшая отстройка от центра линии поглощения (см., например, рис. 4d). Ранее проведенные эксперименты по измерению времен продольной релаксации T_1 для доноров в германии показали, что для уровня $2p_0$ время жизни оказывается порядка 800 пс, т.е. при уменьшении концентрационного уширения можно надеяться на значительное увеличение времени поперечной релаксации, а значит и существования осцилляций Рамсея. Стоит отметить, что в представленном эксперименте эффект оказался достаточно устойчив к температуре образца, которая несколько отличалась от температуры холодного "столика" и была в районе 20–25 K, что оценивалось путем сравнения вольт-амперных характеристик образцов при охлаждении в жидком гелии и оптическом криостате при различных температурах. Еще более длинные времена релаксации были получены для сурьмы в германии (2 нс) с деформацией [17], что также представляет собой дополнительную возможность, если будет осуществлен переход к гетероструктурам n-типа со встроенной деформацией.

Заключение. Экспериментально показана возможность наблюдения осцилляций Рамсея при возбуждении состояния $2p_0$ донора мышьяка в германии импульсным терагерцовым излучением лазера на свободных электронах при криогенных температурах. Регистрация осцилляций населенности состояния $2p_0$ осуществлялась благодаря наличию термического выброса электронов в зону проводимости,что можно рассматривать как демонстрацию некогерентного считывания когерентного состояния. Используемые в представленной работе образцы с концентрацией доноров $N_0 = 1.2 \times 10^{13}\,\text{см}^{-3}$ позволили наблюдать осцилляции Рамсея вплоть до времен 400 пс, что позволяет надеяться на дальнейшее увеличение времени при использовании образцов с меньшей шириной линии. Анализ экспериментальных данных и проведенные модельные расчеты показывают, что наблюдаемая форма огибающей осцилляций Рамсея зависит от ширины линии, отстройки от резонанса и интенсивности возбуждения.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (# 19-72-20163). Авторы благодарят за участие в работе операторов лазера на свободных электронах NovoFEL. При выполнении экспериментов на ЛСЭ использовалось оборудование Сибирского центра синхротронного и терагерцового излучения.

1. A. K. Ramdas and S. Rodriguez, Rep. Prog. Phys. **44**, 1297 (1981).
2. M. Fuechsle, J. A. Miwa, S. Mahapatra, H. Ryu, S. Lee, O. Warschkow, L. C. L. Hollenberg, G. Klimeck, and M. Y. Simmons, Nature Nanotech. **7**, 242 (2012).
3. A. M. Stoneham, A. J. Fisher, and P. T. Greenland, J. Phys. Condens. Matter **15**, 447 (2003).
4. L. C. L. Hollenberg, C. J. Wellard, C. I. Pakes, and A. G. Fowler, Phys. Rev. B **69**, 233301 (2004).
5. A. J. Sigillito, R. M. Jock, A. M. Tyryshkin, E. E. Haller, K. M. Itoh, and S. A. Lyon, Phys. Rev. B **94**, 125204 (2016).
6. B. E. Kane, in *Scalable Quantum Computers: Paving the Way to Realization*, ed. by S. L. Braunstein, H.-K. Lo, and P. Kok, Wiley-VCH Verlag Berlin GmbH, Berlin (2000), ch. 17, p. 253.
7. N. F. Ramsey, Phys. Rev. **78**, 695 (1950).
8. L. Essen and J. V. L. Parry, Nature **176**(4476), 280 (1955).
9. K. L. Litvinenko, E. T. Bowyer, P. T. Greenland, N. Stavrias, J. Li, R. Gwilliam, B. J. Villis, G. Matmon, M. L. Y. Pang, B. Redlich, A. F. G. van der Meer, C. R. Pidgeon, G. Aeppli, and B. N. Murdin, Nature **6**, 6549 (2015).
10. Y. Kamiura, J. Broeckx, P. Clauws, and J. Vennik, Solid State Commun. **38**(10), 883 (1981).
11. A. V. Muravjov, R. C. Strijbos, C. J. Fredricksen, H. Weidner, W. Trimble, S. H. Withers, S. G. Pavlov, V. N. Shastin, and R. E. Peale, Appl. Phys. Lett. **73**, 3037 (1998).
12. D. Bachmann, M. Rosch, M. J. Süess, M. Beck, K. Unterrainer, J. Darmo, J. Faist, and G. Scalari, Optica **3**, 1087 (2016).
13. Р. Х. Жукавин, К. А. Ковалевский, Ю. Ю. Чопорова, В. В. Цыпленков, В. В. Герасимов, П. А. Бушуйкин, Б. А. Князев, Н. В. Абросимов, С. Г. Павлов, Х.-В. Хьюберс, В. Н. Шастин, Письма в ЖЭТФ **110**, 677 (2019).
14. N. Q. Vinh, B. Redlich, A. F. G. van der Meer, C. R. Pidgeon, P. T. Greenland, S. A. Lynch, G. Aeppli, and B. N. Murdin, Phys. Rev. X **3**, 011019 (2013).
15. Y. Y. Choporova, V. V. Gerasimov, B. A. Knyazev, S. M. Sergeev, O. A. Shevchenko, R. Kh. Zhukavin, N. V. Abrosimov, K. A. Kovalevsky, V. K. Ovchar, H.-W. Hübers, G. N. Kulipanov, V. N. Shastin, H. Schneider, and N. A. Vinokurov, Physics Procedia **84**, 152 (2016).
16. М. О. Скалли, М. С. Зубайри, *Квантовая оптика*, Физматлит, М. (2003).
17. Р. Х. Жукавин, К. А. Ковалевский, С. М. Сергеев и др. (Collaboration), Письма в ЖЭТФ **106**, 555 (2017).