

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук

на правах рукописи

Бреев Илья Дмитриевич

Спин-оптические и спин-деформационные свойства вакансионных центров в гексагональном карбиде кремния и гетероструктурах на его основе

1.3.8 - физика конденсированного состояния

Автореферат диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Санкт-Петербург – 2022

Работа выполнена в федеральном государственном бюджетном учреждении науки Физико-техническом институте им. А. Ф. Иоффе Российской академии наук

Научный руководитель:

Анисимов Андрей Николаевич, кандидат физико-математических наук, ФГБУН ФТИ им. А.Ф. Иоффе РАН, научный сотрудник

Научный консультант:

Баранов Павел Георгиевич, доктор физико-математических наук, профессор, ФГБУН ФТИ им. А.Ф. Иоффе РАН, заведующий лаборатории микроволновой спектроскопии кристаллов

Официальные оппоненты:

Власов Игорь Иванович, кандидат физ.-мат. наук, ФГБУН Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, заведующий лаборатории углеродной нанофотоники

Власенко Леонид Сергеевич, доктор физ.-мат. наук, ФГБУН ФТИ им. А.Ф. Иоффе РАН, главный научный сотрудник

Ведущая организация: ФГАОУ ВО Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого

Защита состоится _____ в _____ на заседании диссертационного совета ФТИ 34.01.01 Федерального государственного бюджетного учреждения науки Физико-технического института им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук по адресу Санкт-Петербург, Политехническая ул., д. 26.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте Физико-технического института им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, www.ioffe.ru.

Автореферат разослан «__» _____ 20__ года

Отзывы и замечания по автореферату в одном экземпляре, заверенные печатью, просьба высылать по вышеуказанному адресу на имя ученого секретаря диссертационного совета.

Ученый секретарь
диссертационного совета
ФТИ 34.01.01

Калашникова А. М., PhD

Общая характеристика работы

Актуальность темы

Одной из быстро развивающихся областей современной физики является область квантовых технологий. Совершенствование физических методов позволяет, считывать, записывать и управлять состоянием отдельных квантовых систем, используя законы квантовой механики. Практическое использование квантовых технологий можно разделить на три сферы: квантовые вычисления, квантовая криптография и квантовые сенсоры.

В настоящее время уже созданы системы для квантовых вычислений, функционирующих при сверхнизких температурах, и состоящих из не более чем нескольких десятков квантовых битов (кубитов). Использование таких систем в перспективе позволит значительно ускорить некоторые типы операций по сравнению с классическими компьютерами. В число таких операций входят задачи поиска, машинного обучения, симуляции сложных систем, в том числе и квантовых [1]. Также на основе фундаментальных свойств кубитов возникла область квантовой криптографии, которая обеспечивает создание защищенных протоколов обмена данными [2].

Кроме того, в последние годы появился новый класс приложений, который использует квантовые системы, как сенсоры различных физических величин: магнитного и электрического поля, времени, частоты, температуры и давления. В основе квантовых сенсоров заложено одно из главных свойств квантовых систем – сильная чувствительность к внешним возмущениям [3]. Если ранее квантово-механические свойства уже использовались в приложениях для сенсоров, то новым шагом в этом направлении стало использование квантовых систем на уровне одного атома, в которых квантовое запутывание используется, как источник увеличения чувствительности, а сами системы специальным образом подготавливаются для сенсорных приложений.

В числе многообещающих кандидатов на роль кубитов – центры окраски в широкозонных полупроводниках. Они могут слабо взаимодействовать с атомами кристаллической решетки, что обеспечивает большие времена когерентности, а их взаимное квантовое запутывание можно осуществлять по оптическому каналу. Если совместить эти возможности с эффективным спин-фотонным интерфейсом, то в совокупности они смогут обеспечить создание квантовых сетей, быстрые оптические манипуляции спиновым состоянием и запутывание множества кубитов на большом расстоянии. Важным преимуществом использования широкозонных полупроводников для квантовых технологий является возможность их промышленного изготовления.

За последние 25 лет были обнаружены системы, обладающие множеством подходящих характеристик для использования в качестве кубитов, такие как NV центр в алмазе, вакансии кремния в алмазе, дивакансии в карбиде кремния и

вакансии бора в гексагональном нитриде бора. Среди схожих систем в выгодном свете предстают вакансионные центры кремния в гексагональном карбиде кремния или V_{Si} центры со спином $3/2$, исследованию которых посвящена данная работа. Они имеют большие времена когерентности, а также обладают свойством спинового выстраивания при оптической накачке, в том числе при комнатной температуре. В свою очередь гексагональный карбид кремния является перспективной платформой для центров окраски благодаря развитым технологиям его промышленного производства.

Более того карбид кремния по параметрам решетки совместим с нитридом галлия и нитридом алюминия, что обеспечивает возможность создания гетероструктур на их основе. Нитрид алюминия обладает пьезоэлектрическими свойствами, что можно применять для создания контролируемых механических напряжений. Также степень преломления нитрида алюминия выше, чем у карбида кремния, что может быть использовано для создания фотонных структур с ограничением света в карбиде кремния для усиления эффективности взаимодействия фотонов с центрами окраски.

Целью данной работы является исследование спин-оптических и спин-деформационных свойств V_{Si} центров со спином $3/2$ в гексагональных поли типах карбида кремния и гетероструктурах на его основе.

Для достижения поставленной цели необходимо было решить следующие **задачи**:

1. Определить величину механических деформаций в образцах гексагонального карбида кремния и в гетероструктурах на его основе с помощью метода комбинационного рассеяния света.
2. Определить связь между механическими деформациями и спиновыми свойствами V_{Si} центров в гексагональных поли типах карбида кремния с помощью метода оптически детектируемого магнитного резонанса и спектроскопии анти-пересечения уровней.
3. Исследовать особенности оптического излучения V_{Si} центров в гексагональных поли типах карбида кремния и его поляризации в широком диапазоне температур с помощью поляризационной спектроскопии фотolumинесценции, совмещенной с оптически детектируемым магнитным резонансом.
4. Исследовать температурное поведение V_{Si} центров в гексагональных поли типах карбида кремния с помощью методов оптически детектируемого магнитного резонанса, спектроскопии анти-пересечения уровней и осцилляций Раби.

Научная новизна:

1. Получено распределение механических напряжений на интерфейсе гетероструктур $AlN/4H-SiC$ и $AlN/6H-SiC$ с субмикронным

пространственным разрешением и обнаружены механические напряжения на интерфейсе вплоть до 1 ГПа, а также предложена модель их образования.

2. Установлена зависимость расщепления в нулевом магнитном поле спиновой системы V_{Si} центров в карбиде кремния 4H-SiC и 6H-SiC от статических механических напряжений и предложена теоретическая модель связи спинового Гамильтониана с механическими напряжениями.
3. Для 6H-SiC установлена поляризация излучения V_{Si} центров и направление преимущественного излучения. Сделаны теоретические выводы о структуре возбужденного состояния и энергетическом порядке расположения спиновых подуровней для разных V_{Si} центров.
4. Обнаружено критическое температурное поведение V_{Si} центров V3 в 6H-SiC в окрестности критической температуры $T_c=16$ К, а также описаны предполагаемые причины подобного поведения. Кроме того, была продемонстрирована возможность когерентного контроля V_{Si} центров V3 в 6H-SiC при температурах ниже критической.

Практическая значимость:

Полученные результаты раскрывают потенциал для использования V_{Si} центров в карбиде кремния 4H-SiC и 6H-SiC в качестве кубитов и квантовых сенсоров.

1. Получены распределения механических напряжений на интерфейсе гетероструктур AlN/4H-SiC и AlN/6H-SiC, которые можно применить для улучшения процессов роста больших монокристаллов AlN на подложках SiC.
2. Исследована зависимость V_{Si} центров от механических напряжений, что позволит учесть дрейф их спиновых свойств при промышленном производстве, а также использовать механические напряжения для управления и настройки спинового состояния V_{Si} центров.
3. Исследованы оптические свойства, позволяющие сделать вывод о структуре возбужденного состояния, что является ключевой информацией для определения полной картины оптического цикла накачки и релаксации, а также выбрать наиболее подходящие спиновые центры для использования в планарных фотонных кристаллах.
4. Обнаружено критическое температурное поведение V_{Si} центров в 6H-SiC, которое является одним из ключевых факторов для точного определения механизма оптического выстраивания спиновых подуровней и структуры спинового состояния.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. На интерфейсе гетероструктур AlN/4H-SiC и AlN/6H-SiC с толщиной слоёв 228/242 и 253/420 мкм, соответственно, выращенных методом физического осаждения из газовой фазы образуются механические деформации сжатия в SiC, достигающие $\varepsilon \sim -0,1$ %.

2. Расщепление тонкой структуры основного состояния V_{Si} центров со спином $3/2$ при сжатии кристаллической решетки увеличивается в центрах $V2$ в $6H-SiC$ и $V2$ $4H-SiC$, и уменьшается в центрах $V1/V3$ $6H-SiC$. Расщепление тонкой структуры возбужденного состояния V_{Si} центров со спином $3/2$ при сжатии кристаллической решетки увеличивается для центра $V2$ в $6H-SiC$ и уменьшается для $V1/V3$ в $6H-SiC$.
3. Поляризация фотолюминесценции V_{Si} центра $V3$ со спином $3/2$ в $6H-SiC$ со стороны перпендикулярной оси с ортогональна поляризации фотолюминесценции V_{Si} центра $V2$ со спином $3/2$ в $6H-SiC$ с векторами поляризации перпендикулярно и параллельно оси с, соответственно. Это связано с инвертированной структурой возбужденного состояния.
4. Расщепление тонкой структуры возбужденного состояния V_{Si} центров со спином $3/2$ в $6H-SiC$ с увеличением температуры уменьшается для центра $V2$ и центра $V3$. Центр $V3$ в $6H-SiC$ имеет критическую температуру 16 К, при которой происходит инверсия процесса оптического выстраивания спиновых подуровней в основном состоянии.

Достоверность полученных результатов достигается путем применения современных, надежных и зарекомендовавших себя экспериментальных методов измерений с использованием высокоточного оборудования. Достоверность подтверждается соответствием полученных результатов с предыдущими исследованиями, описанными в литературных источниках, а также высокой степенью соответствия экспериментальных данных с теоретическими предсказаниями и расчётами.

Апробация работы

Результаты исследования были представлены соискателем лично на 11 всероссийских и международных конференциях в формате устных и стендовых докладов:

1. «Оптическая квантовая термометрия и магнитометрия, основанная на антипересечении и кросс релаксации спиновых центров окраски в карбиде кремния», международная конференция «Физика.Спб», Санкт-Петербург, Россия, 23.10.2018 – 25.10.2018, постерный доклад
2. «Спектроскопия анти-пересечения и кросс-релаксации в кристаллах карбида кремния и её применение в квантовой термометрии и магнитометрии», 2ое место за лучший доклад, XX Всероссийская молодежная конференция по физике полупроводников и наноструктур, полупроводниковой опто- и наноэлектронике, Санкт-Петербург, Россия, 26.11.2018 – 30.11.2018, устный доклад
3. «Оптически детектируемый магнитный резонанс без приложения СВЧ поля на спиновых центрах окраски в кристаллах карбида кремния и его применение для измерения температуры», Международная зимняя школа

- по физике полупроводников, Санкт-Петербург, Россия, 28.02.2019-04.03.2019, устный доклад
4. «Physical Foundations of Submicron Quantum Probing of Magnetic Fields and Temperatures with Application of Spin Centers in SiC», International conference on quantum optics and quantum information, Minsk, Belarus, 13.05.2019-17.05.2019, устный доклад
 5. "Raman scattering in AlN crystals grown on SiC and AlN substrates by sublimation method", 4th International Workshop on Ultraviolet Materials and Devices, St. Petersburg, Russia, 08.09.19-13.09.19, постерный доклад
 6. «Квантовые сенсоры температуры на основе спиновых центров окраски в SiC», Третья международная конференция «Физика — наукам о жизни», Санкт-Петербург, 14.10.19–18.10.19, постерный доклад
 7. «Оптическая конфокальная спектроскопия SiC и AlN методом комбинационного рассеяния света и оптически детектируемого магнитного резонанса», международная конференция «Физика.Спб», Санкт-Петербург, Россия, 22.10.2019 – 24.10.2019, постерный доклад
 8. «Исследование механических напряжений в области интерфейса в гетероструктурах AlN/SiC методами КРС и ОДМР», XXV международный симпозиум «Нанозифика и наноэлектроника», Нижний Новгород, Россия, 9.03.2021-12.03.2021, постерный доклад
 9. Бреев И.Д., Лихачев К.В., Яковлева В.В., Баранов П.Г., Анисимов А.Н., «Спиновые особенности оптически активных центров в карбиде кремния (SiC) и гетероструктурах на его основе», 2-я конференция Физика конденсированных состояний, Черногловка, Россия, 31.05.2021-04.06-2021, устный доклад
 10. «Исследование воздействия механических напряжений в области интерфейса в гетероструктурах AlN/SiC на спиновые свойства VSi центров.», международная конференция Физика.СПб 2021, Санкт-Петербург, Россия, 18.10.2021-22.10.2021, постерный доклад
 11. «Investigation of SiC nanoparticles with V-centers using PL scanning and ODMR», международная конференция Metanano 2021, онлайн, 13.09.21-17.09.21, постерный доклад

Результаты работы неоднократно докладывались на рабочих семинарах лаборатории микроволновой спектроскопии кристаллов. По тематике работы соискателем было получено третье место за лучшую работу молодых ученых ФТИ им. А.Ф. Иоффе за 2020/2021 год. Соискателем был выигран и выполнен проект Умник-2020 II Квантовые технологии. Также соискатель выиграл стипендию Президента для молодых ученых и аспирантов в 2022 году.

Личный вклад соискателя заключается в модернизации экспериментальной установки по регистрации оптически детектируемого магнитного резонанса, личном написании программы для управления модулями установки, самостоятельном проведении множества экспериментов по регистрации

спектров комбинационного рассеяния света на сколе гетероструктур AlN/SiC, спектров оптически детектируемого магнитного резонанса гетероструктур AlN/SiC, спектров поляризационной фотолюминесценции 6H-SiC и спектров анти-пересечения уровней гетероструктур AlN/SiC и образца 6H-SiC. Соискатель участвовал в построении теоретических моделей связи спиновой структуры V_{Si} центров с механическими напряжениями в решетке, в объяснении процессов возникновения механических напряжений на интерфейсе гетероструктур AlN/SiC и в целом интерпретации полученных экспериментальных данных. Формулировка цели работы и постановка задач осуществлялась совместно с научным руководителем и научным консультантом.

Публикации.

По результатам выполненных исследований было опубликовано 13 работ индексируемых в базе данных Web of Science. Четыре работы входят в состав журналов первого квартала, в двух из которых соискатель является первым и ключевым автором. По материалам работы было опубликовано 17 тезисов конференций.

Содержание работы

Во **введении** сформулирована цель диссертационной работы и связанные с ней задачи, обоснована её актуальность, научная новизна и значимость, сформулированы положения, выносимые на защиту. Во введении указан личный вклад соискателя и апробация работы.

Первая Глава представляет собой обзор литературы касательно объектов исследования и используемых в диссертации экспериментальных методов. Описано современное состояние исследований V_{Si} центров в карбиде кремния, история их обнаружения, кристаллическая и спиновая структура, особенности динамического поведения. Также в главе представлено описание методов исследования, применяющихся для исследования спин-оптических и спин-деформационных свойств V_{Si} центров в карбиде кремния. В конце главы показана схема экспериментальной установки, используемой в работе.

В параграфе **1.1** описывается материал карбид кремния, особенности его роста и производства кристаллических подложек. Дается описание его политипизации, а также примеры применения карбида кремния в промышленности и исследованиях.

Параграф **1.2** посвящен отрицательно заряженным вакансионным центрам кремния, или V_{Si} центрам, со спином $3/2$. Рассказано про обнаружение этих центров и их идентификацию, а также про конкурирующие модели их кристаллической структуры. Описаны особенности спиновой структуры основного и возбужденного состояния V_{Si} центров, их оптические свойства, нуль-фононные линии и особенности поляризации. В конце параграфа описаны

времена релаксации V_{Si} центров, а также времена жизни в возбужденном состоянии.

В таблице 1 представлены основные параметры V_{Si} центров со спином $3/2$ в основном состоянии, такие как: энергия нуль-фононной линии, величина параметра тонкого расщепления D , g -фактор и тип оптического выстраивания населенностей спиновых подуровней при оптической накачке.

Затем, в параграфе **1.3** описаны экспериментальные методы, используемые в диссертации. Описан метод комбинационного рассеяния света (КРС) и фононные моды 4Н-SiC и 6Н-SiC. Также дано краткое описание метода оптической спектроскопии с использованием поляризационной фотолюминесценции (ФЛ). Дано описание непрерывного и импульсного метода оптически детектируемого магнитного резонанса (ОДМР), и метода спектроскопии анти-пересечения уровней (АПУ).

Таблица 1. Таблица свойств V_{Si} центров в политипах 4Н-SiC и 6Н-SiC [4].

Политип	4Н-SiC		6Н-SiC		
Наименование центра	V1	V2	V1	V2	V3
Е, эВ / λ , нм	1,438/862	1,352/917	1,433/865	1,397/887	1,368/906
D МГц / 10^{-4} см^{-1}	39/13	33/11	-13,5/-4,5	64/21,35	-13,5/-4,5
g -фактор	2,0032	2,0032	2,0032	2,0032	2,0032
Оптическое выстраивание спиновых подуровней	-	$\pm 1/2$	$\pm 1/2$ инверт.	$\pm 3/2$ инверт.	$\pm 1/2$ инверт.

В конце, в параграфе **1.4** дано описание схемы используемой в диссертации экспериментальной установки, совмещающей в себе возможности проведения поляризационной оптической спектроскопии, оптически детектируемого магнитного резонанса и спектроскопии анти-пересечения уровней, а также возможность достигать на образце температуры жидкого гелия.

Во **второй Главе** представлены результаты исследования распределения механических напряжений на гетероинтерфейсе AlN/SiC в гетероструктурах AlN/4Н-SiC и AlN/6Н-SiC спектроскопией КРС. В данной главе проведён анализ экспериментальных данных и сделаны выводы об источниках возникновения механических напряжений.

В параграфе **2.1** представлено описание геометрии эксперимента и особенностей проведения спектроскопии КРС, а также особенности подготовки и роста гетероструктур AlN/4H-SiC и AlN/6H-SiC.

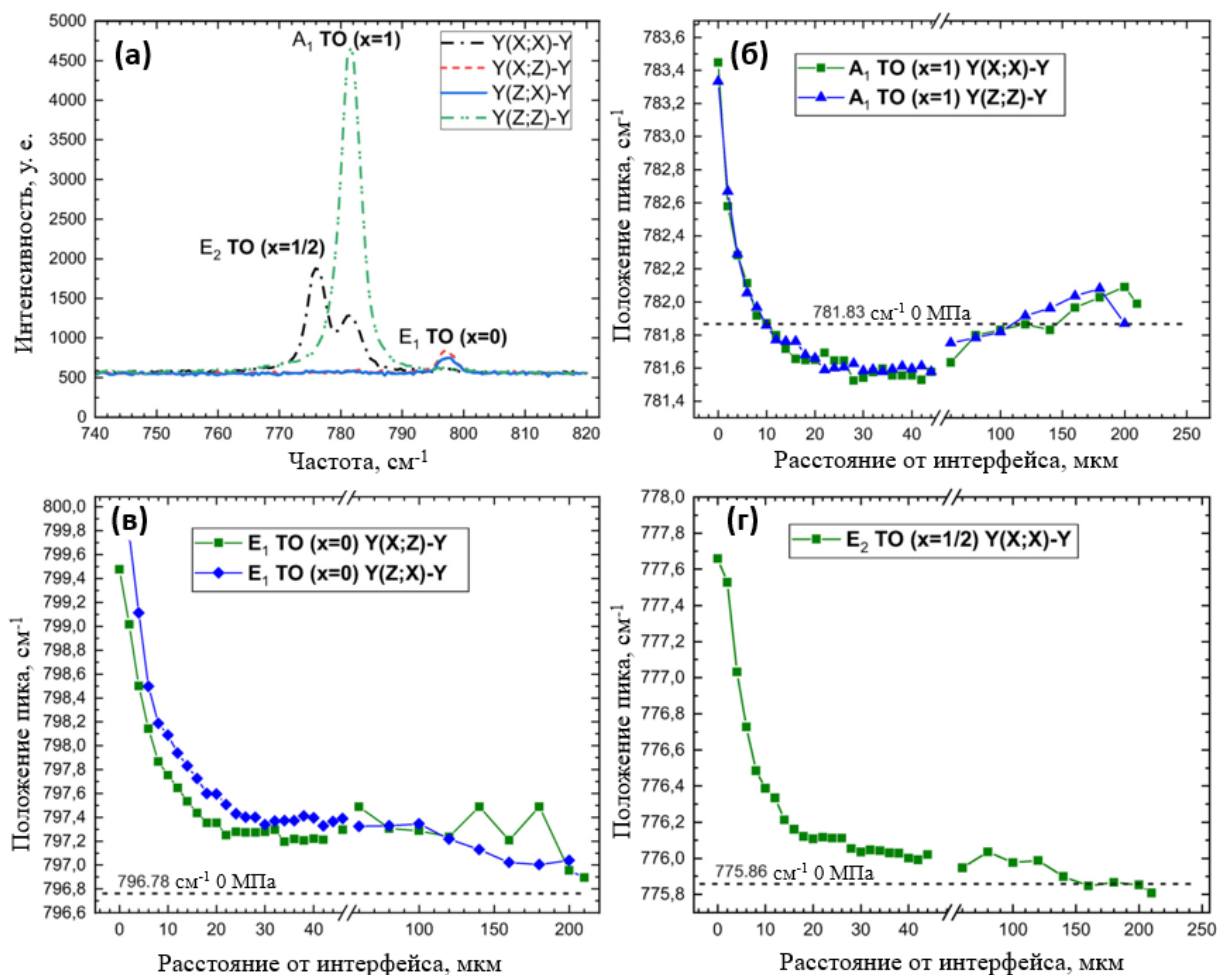


Рис. 1. (а) Спектры КРС для 4H-SiC включенного в гетероструктуру AlN/4H-SiC в 4 геометриях рассеяния КРС, изображенных разными цветами.

Соответствующие фоновые моды показаны для каждого пика КРС. (б)-(г) Поведение пиков КРС поперёк интерфейса и по всей глубине слоя 4H-SiC для фоновых мод (б) A_1 TO ($x = 1$), (в) E_1 TO ($x = 0$), и (г) E_2 TO ($x = 1/2$).

В параграфе **2.2** изложен полный набор полученных экспериментальных данных методом КРС. В **§2.2.1** было изучено поведение пиков комбинационного рассеяния света (КРС) в 4H-SiC поперёк гетероинтерфейса и по всей глубине слоя 4H-SiC в 4 различных геометриях комбинационного рассеяния света (КРС). Больше всего нас интересовал диапазон поперечных оптических (ТО) фоновых мод 760-810 см⁻¹. На Рис. 1 (а), спектры КРС слоя 4H-SiC, включенного в гетероструктуру 4H-SiC/AlN показаны для 4 геометрий КРС: $\bar{Y}(X; X)\bar{Y}$ (черная пунктирная линия с 1 точкой), $\bar{Y}(X; Z)\bar{Y}$ (красная пунктирная линия), $\bar{Y}(Z; Z)\bar{Y}$

(зеленая пунктирная линия с двумя точками) и $Y(Z; X)\bar{Y}$ (синяя сплошная линия), где есть три фононные моды КРС в диапазоне ТО: E_2 ТО ($x = 1/2$), A_1 ТО ($x = 1$), и E_1 ТО ($x = 0$). Была проведена аппроксимация пиков КРС 4Н-SiC в диапазоне ТО функцией Фогта. На Рис. 1 (б) – (г) изображены положения пиков КРС для гетероструктуры AlN/4Н-SiC в 4 геометриях КРС.

В похожем ключе, в §2.2.2 было исследовано поведение пиков КРС в 6Н-SiC поперёк гетероинтерфейса AlN/6Н-SiC и по всей глубине слоя 6Н-SiC в 4 разных геометриях рассеяния КРС. Затем, была проведена процедура аппроксимации пиков КРС 6Н-SiC функцией Фогта.

В §2.2.3 представлены результаты по регистрации спектров КРС в слое AlN в геометрии рассеяния X(Y)-X. Был проведён анализ положения и полуширины пика КРС фононной моды E_2 high в зависимости от расстояния до интерфейса по всей глубине слоя AlN в гетероструктурах AlN/4Н-SiC и AlN/6Н-SiC.

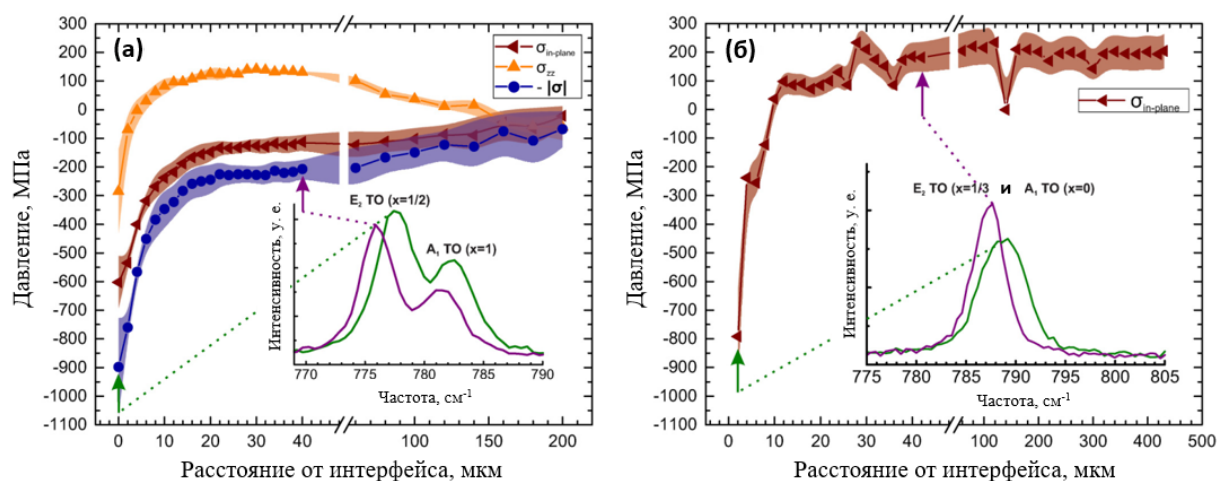


Рис. 2. (а) Распределение величины компонент тензора механических напряжений $\sigma_{in-plane}$ (бордовые треугольники), σ_{zz} (оранжевые треугольники), и распределение отрицательного модуля тензора напряжений $-|\sigma|$ (темно синие круги) вдоль всей глубины слоя 4Н-SiC в гетероструктуре AlN/4Н-SiC с диапазонами ошибки, изображенными как закрашенные цветами области на заднем плане. На вставке показаны спектры КРС в слое 4Н-SiC у интерфейса и в глубине. (б) Распределение компоненты тензора механических напряжений $\sigma_{in-plane}$ (бордовые треугольники) вдоль всей глубины слоя 6Н-SiC в гетероструктуре AlN/6Н-SiC с диапазонами ошибки, изображенными как закрашенные светло-бордовым цветом области на заднем плане. На вставке показаны спектры КРС в слое 6Н-SiC у интерфейса и в глубине.

В §2.2.4 чтобы глубже понять свойства интерфейса между AlN и 6Н-SiC, была проанализирована гетероструктура AlN/6Н-SiC методом сканирующей трансмиссионной электронной микроскопии (СТЭМ) сопряженной с энергодисперсионной рентгеновской спектроскопией (ЭДРС). Хотя интерфейс

имеет некоторую степень морфологического несовершенства, видно, что нет никаких признаков твердого раствора AlN и SiC.

В параграфе **2.3** представлены результаты вычислений тензоров механических напряжений и деформации в слоях 4H-SiC и 6H-SiC. В **§2.3.1** аналитически выведено значение компонент тензора механических напряжений $\sigma_{in-plane}$ и σ_{zz} по сдвигу пиков КРС в 4H-SiC, а также модуля тензора механических напряжений $|\sigma|$. Результаты представлены на Рис. 2 (а) для $\sigma_{in-plane}$ (бордовые треугольники), σ_{zz} (оранжевые треугольники) и $-|\sigma|$ (темно синие круги). В **§2.3.2** проведена оценка компоненты тензора напряжений $\sigma_{in-plane}$ для 6H-SiC, которая изображена на Рис. 2 (б). На вставках показаны спектры КРС, изображающие сдвиг пиков у интерфейса и в глубине.

В **§2.3.3** используя тензор эластических констант **C** и компоненты тензора напряжений для слоя 4H-SiC в гетероструктуре AlN/4H-SiC из Рис. 2 (а), были вычислены $\varepsilon_{in-plane}$ и ε_{zz} , которые достигали -0,1% и -0,03%, соответственно.

В параграфе **2.4** идёт обсуждение полученных экспериментальных и расчётных результатов. Сравниваются параметры кристаллической решетки, достигаемые на интерфейсе гетероструктур AlN/SiC с параметрами той же решетки при охлаждении с сохранением всех кристаллических связей.

В заключение, в параграфе **2.5** подводятся итоги проведенных исследований и излагаются результаты достигнутых научных выводов.

В **третьей Главе** было показано экспериментально влияние механических напряжений в кристаллах SiC на спиновые свойства V_{Si} центров, а именно на величину расщепления в нулевом поле в основном и возбужденном состояниях, а также была построена теоретическая модель связи этих параметров.

В параграфе **3.1** описываются особенности роста образцов гетероструктур AlN/4H-SiC и AlN/6H-SiC и содержание в них примесей, а также процесс образования V_{Si} центров со спином 3/2 в карбиде кремния. Также кратко описаны используемые модули экспериментальной установки.

В параграфе **3.2** представлены экспериментальные результаты по исследованию зависимости положения сигнала оптически детектируемого магнитного резонанса от механических напряжений в гетероструктурах AlN/6H-SiC и AlN/4H-SiC. Исследование локальных напряжений в гетероструктуре AlN/6H-SiC представлено в **§3.2.1** методом КРС, с использованием методов и расчётов из второй Главы. В **§3.2.2** описана спектроскопия ОДМР в слое 6H-SiC в гетероструктуре AlN/6H-SiC. На Рис. 3 (а) и (б) изображены спектры оптически детектируемого магнитного резонанса (ОДМР), полученные при комнатной температуре на расстоянии 20 мкм от гетероинтерфейса AlN/6H-SiC и прямо на нём, соответственно.

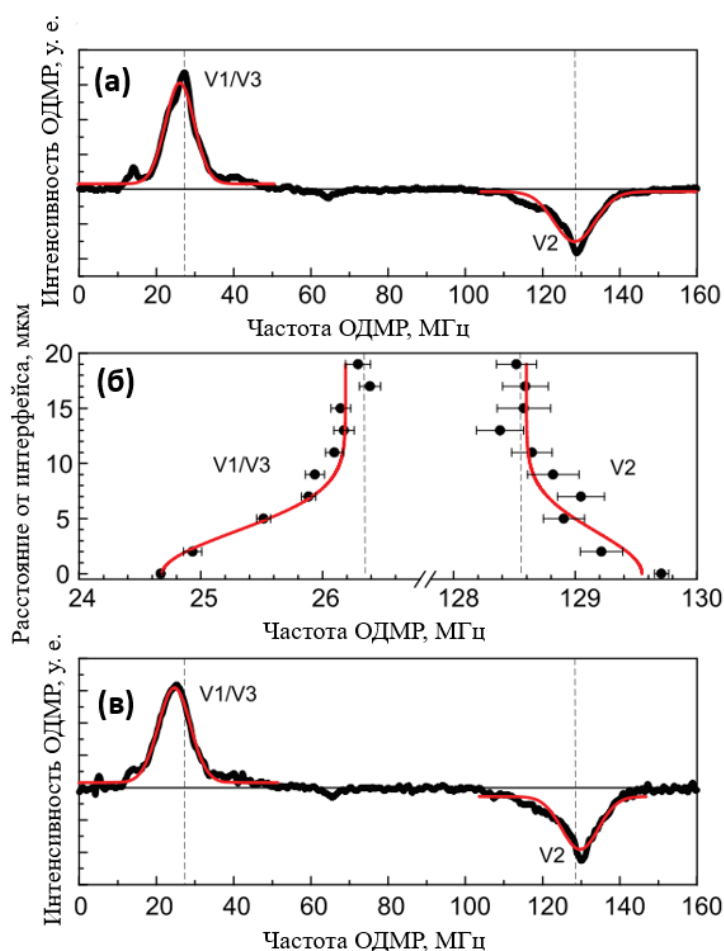


Рис. 3. (а) Спектр ОДМР 6H-SiC на расстоянии 20 мкм от гетероинтерфейса AlN/6H-SiC. (б) Символами показаны положения пиков ОДМР как функция расстояния от гетероинтерфейса. Пики ОДМР V1/V3 и V2 сдвинуты на -1,5 и 1,0 МГц, соответственно. Красная линия нарисована для наглядности. (в) Спектр ОДМР 6H-SiC на гетероинтерфейсе AlN/6H-SiC. Вертикальными пунктирными линиями показаны положения пиков ОДМР в ненапряженном кристалле 6H-SiC. Красными линиями в (а) и(в) показаны аппроксимационные функцией Гаусса экспериментальные данные.

Мы можем ясно видеть два пика, обозначенные как V1/V3 и V2, которые относят к V_{Si} центрам с разным кристаллографическим окружением [5]. Мы отмечаем, что хотя пик V1/V3 может быть связан с разными V_{Si} центрами, они не могут быть различены в спектрах ОДМР. Спектральное положение пика ОДМР в нулевом магнитном поле определяется константой расщепления в нулевом поле $\nu = 2|D|/h$ для соответствующего V_{Si} центра. Чтобы найти положение пиков ОДМР и определить $2|D|$ для каждого V_{Si} центра мы провели аппроксимацию функцией Гаусса, как показано на Рис. 3 (а) и 6(в) сплошными линиями. На Рис. 3 (б) показана величина $2|D|$ для центров V1/V3 и V2 как функция расстояния от гетероинтерфейса. Мы также измерили независимо положения пиков ОДМР для центров V1/V3 и V2 в ненапряженном кристалле 6H-SiC (т.е. без слоя AlN) в

таких же условиях, эти положения показаны вертикальными пунктирными линиями на Рис. 3.

На гетероинтерфейсе, пик ОДМР V1/V3 сдвинут в сторону меньших частот, в то время как пик ОДМР V2 сдвинут в сторону высоких частот по сравнению с значениями в ненапряженном кристалле 6H-SiC. Константы расщепления в нулевом поле для этих центров имеют противоположный знак [6]; он отрицательный для V1/V3 и положительный для V2 (Рис. 3).

Учитывая, что кристалл 6H-SiC сжат на гетероинтерфейсе (т.е. компоненты напряжений σ_{\parallel} и σ_{\perp} отрицательные), наблюдаемые сдвиги линий ОДМР соответствуют положительному изменению δD , вызванному деформацией. Мы определили константу спин-деформационного взаимодействия $\mathcal{E} = 0,75$ ГГц/деформация для V1/V3 центров и $\mathcal{E} = 0,5$ ГГц/деформация для V2 центров.

В **§3.2.3** были зарегистрированы спектры анти-пересечения уровней основных состояний V_{Si} центров V3/V1 и V2 в гетероструктуре AlN/6H-SiC на интерфейсе и на расстоянии 20 мкм от интерфейса в слое 6H-SiC и проведена аппроксимация резонансных сигналов первой производной функции Гаусса. Был обнаружен сдвиг резонансных линий при приближении области регистрации спектра к интерфейсу, который согласуется с величиной сдвига пиков ОДМР.

Также, впервые были получены спектры АПУ возбужденных состояний V_{Si} центров V3/V1 и V2 в гетероструктуре AlN/6H-SiC на интерфейсе и на расстоянии 20 мкм от интерфейса в слое 6H-SiC. Был обнаружен сдвиг резонансных линий при приближении области регистрации спектра к интерфейсу. Можно установить, что АПУ возбужденного состояния центров V1/V3 испытывает сдвиг в сторону меньших полей, эквивалентный изменению частоты резонанса ОДМР на -13 ± 2 МГц, а АПУ возбужденного состояния центра V2 испытывает сдвиг в сторону больших полей, эквивалентный изменению частоты резонанса ОДМР на $3,6 \pm 0,6$ МГц. Это является свидетельством противоположного знака расщепления в нулевом поле данных возбужденных состояний.

В **§3.2.4** аналогично было проведено исследование локальных механических напряжений в слое 4H-SiC гетероструктуры AlN/4H-SiC при помощи метода КРС и вычислений, представленных во второй Главе.

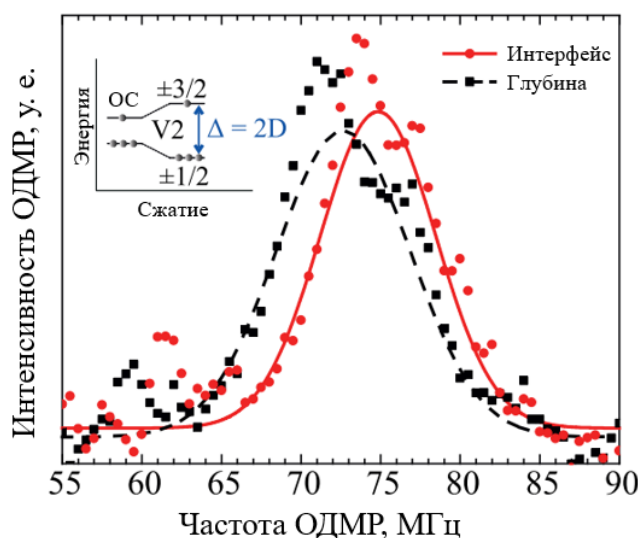


Рис. 4. Спектр ОДМР центра V2 в 4H-SiC вблизи гетерограницы. Красная линия – спектр, полученный на гетерогранице AlN/SiC; черная линия – спектр, полученный на расстоянии 25 мкм от гетерограницы AlN/SiC. Слева на вставке показано расщепление основного состояния спиновых подуровней V_{Si} в нулевом магнитном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

В §3.2.5 проведена спектроскопия ОДМР в слое 4H-SiC в гетероструктуре AlN/4H-SiC. На Рис. 4 изображены спектры ОДМР, зарегистрированные при комнатной температуре на гетерогранице AlN/4H-SiC и на расстоянии 25 мкм от нее. Положение резонанса, относящегося к вакансионным центрам V2 [5], 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 положение линии ОДМР и значений компонент тензора деформаций, были рассчитаны компоненты тензора спин-деформационного взаимодействия.

В параграфе 3.3 подводится итог этой части диссертации и обсуждаются результаты выявления связи спиновых характеристик V_{Si} центров с механическими напряжениями.

В четвертой Главе изложены результаты оптических исследований 6H-SiC, содержащих V_{Si} центры. Исследуются поляризационные зависимости спектров ФЛ и ОДМР при комнатной температуре и температуре жидкого гелия.

В параграфе **4.1** обсуждается симметрия V_{Si} центров $V1/V1'$, $V2$, и $V3$, которые отличаются по отклонению их от кубической симметрии T_d в сторону тригональной симметрии C_{3v} .

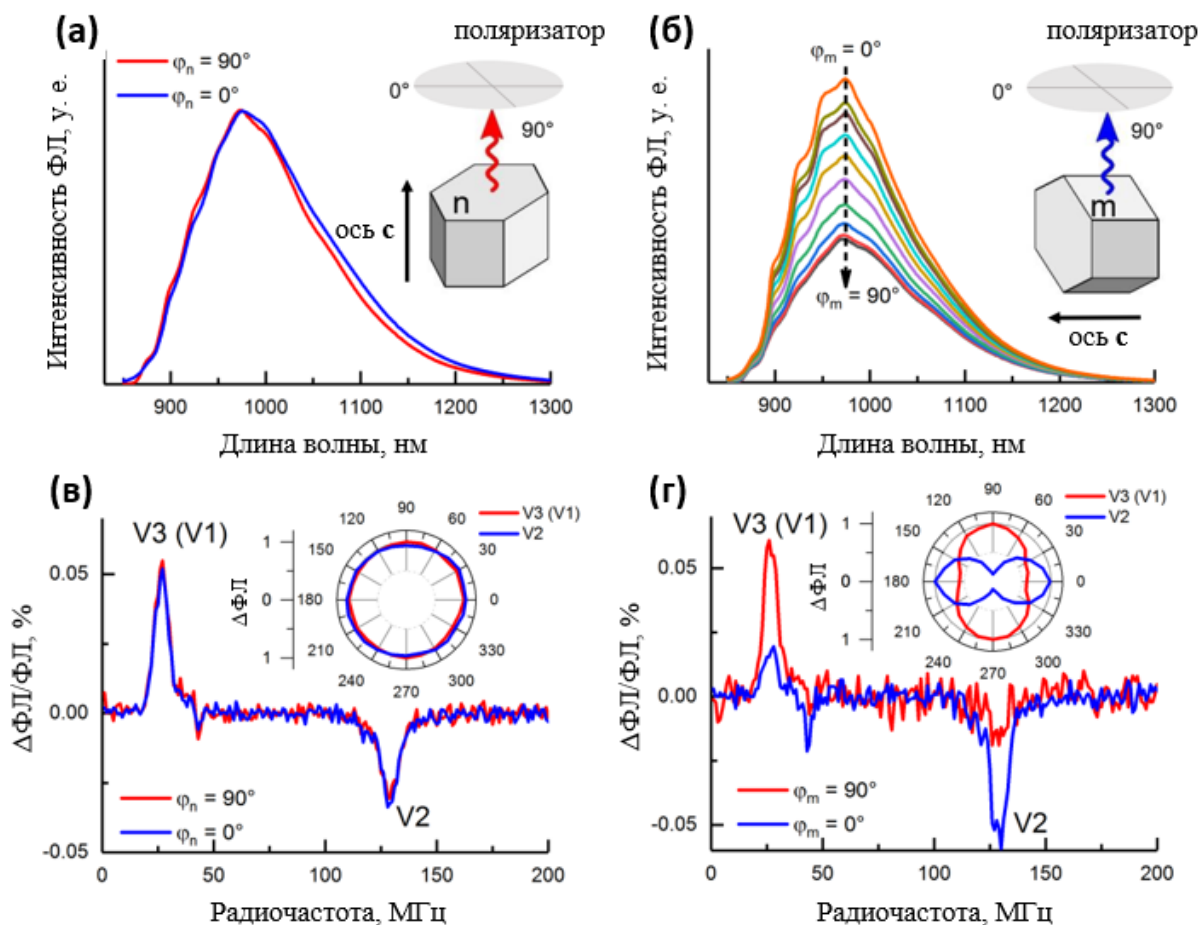


Рис. 5. Поляризационная зависимость ФЛ V_{Si} центров в 6H-SiC при комнатной температуре. (а), (б) Спектры ФЛ V_{Si} центров полученные со стороны n (перпендикулярно к оси c) и стороны m (параллельно оси c), соответственно, собранные через линейный поляризатор. На вставке изображена геометрия эксперимента и ориентация поляризатора. (в), (г) ОДМР спектры центров $V3(V1)$ и $V2$ при углах $\varphi_{n,m} = 0^\circ$ (синяя линия) и $\varphi_{n,m} = 90^\circ$ (красная линия) ориентации поляризатора. Вставка: Нормированные графики в полярных координатах $\Delta\Phi_L$ ($\varphi_{n,m}$) для стороны n (в) и стороны m (г), соответственно.

В параграфе **4.2** представлены результаты по измерению ориентационной зависимости поляризации V_{Si} центра в 6H-SiC при комнатной температуре (Рис. 5). Фотолюминесценция (ФЛ), собранная с грани кристалла n , то есть, вдоль оси c , является неполяризованной (Рис. 5 (а)). В отличие от этого, ФЛ собранная грани кристалла m , то есть перпендикулярно оси c , является частично поляризованной вдоль оси c (Рис. 5 (б)). При комнатной температуре, излучение от разных V_{Si} центров накладывается спектрально, и становится невозможно его

различить. Чтобы разделить спектральные вклады от разных V_{Si} центров, мы используем спектроскопию с приложением микроволновой частоты [7]. На Рис. 5(в) и (г) представлены ОДМР спектры с пиком при 28 МГц, соответствующим центру V1/V3 и отрицательный пик при 128 МГц, соответствующим центру V2 [8]. Излучение центра V2 Δ ФЛ/ФЛ явно линейно поляризовано, с вектором поляризации $e_z \parallel c$ (вставка на Рис. 5 (г)). Поляризация V3/V1 центров не может быть отделена при комнатной температуре и их суммарный вклад в Δ ФЛ/ФЛ предпочтительно поляризован вдоль перпендикулярного направления, с векторами поляризации $e_x, e_y \perp c$.

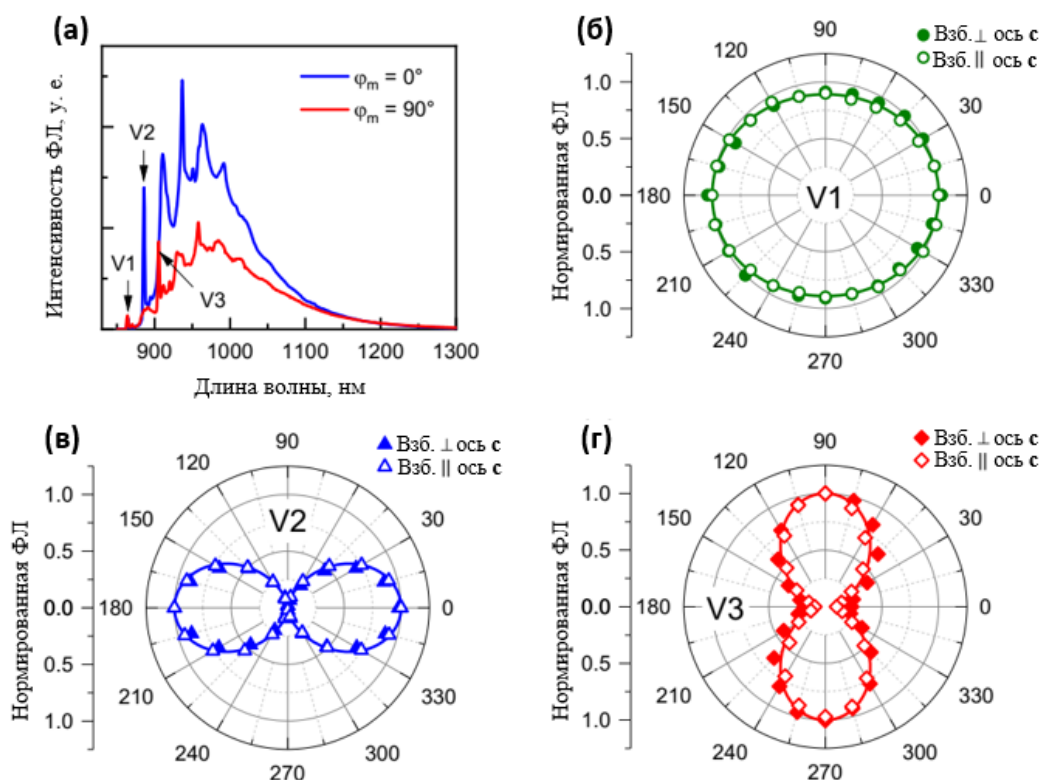


Рис. 6. Поляризационные зависимости НФЛ V_{Si} центров в 6H-SiC при $T = 15$ К. (а) ФЛ спектры, полученные со стороны m при углах поляризатора $\varphi_m = 0^\circ$ (синяя линия) и $\varphi_m = 90^\circ$ (красная линия) относительно оси c . (б), (в), (г) Поляризационные зависимости интенсивностей НФЛ центров V1, V2 и V3 в полярных координатах, соответственно. Сплошные и полые символы – экспериментальные данные для поляризации возбуждающего излучения перпендикулярной и параллельной оси c . Сплошные линии – аппроксимация формулой (4.1) с параметром $\cos 2\theta$ равным 0.06, 0.96 и -0.89 для НФЛ центров V1, V2 и V3, соответственно.

После вычитания фона, НФЛ центра V2 демонстрирует практически 100% поляризации с $e_z \parallel c$ (Рис. 6(в)). Аппроксимация даёт параметр степени поляризации $\cos 2\theta = 0.96$ ($\theta = 8^\circ \approx 0^\circ$). НФЛ центра V3 ортогонально поляризован $e_x, e_y \perp c$ с небольшим, но не исчезающим вкладом $e_z \parallel c$ (Рис. 6(г)).

Аппроксимация даёт $\cos 2\theta = -0.89$ ($\theta = 76^\circ \approx 90^\circ$). Мы убедились, что наблюдаемая поляризация ФЛ не зависит от поляризации возбуждающего лазера (сплошные и полые символы на Рис. 6 (б) – (г)). Более того, мы наблюдаем практически такие же угловые зависимости при $t = 100$ К, что обозначает, что они не связаны с термической населенностью в возбужденном состоянии (ВС), что таким образом указывает на собственные свойства соответствующих V_{Si} центров.

В параграфе **4.3** обсуждается построение эффективного спин-гамильтониана возбужденного состояния и проводится сравнение оптических правил отбора и поляризационных зависимостей, наблюдаемыми в эксперименте.

В заключении, в параграфе **4.4** представлены выводы исследования об инвертированной структуре возбужденного состояния V_{Si} центров со спином $3/2$ в $6H-SiC$, а также последствия этих результатов для практической имплементации спин-фотонных повторителей.

В **пятой Главе** было исследовано температурное поведение V_{Si} центров в $6H-SiC$ при помощи метода спектроскопии анти-пересечения уровней, ОДМР и ЭПР, а также был проведен анализ времен неоднородной спин-спиновой релаксации при разных температурах.

В параграфе **5.1** продемонстрирован температурный сдвиг тонкого расщепления возбужденного состояния V_{Si} центров $V2$ и $V3$ в $6H-SiC$. Широкие резонансы АПУВС (анти-пересечения уровней возбужденного состояния) демонстрируют температурную зависимость и позволяют определить расщепление в нулевом поле $2D'$ для возбужденного состояния, а также линейный температурный коэффициент изменения расщепления $\beta = 2dD'/dT$ [9]. Все эти параметры представлены в таблице 2.

Таблица 2. Температурная зависимость расщепления в нулевом поле в основном ($2D$) и возбужденном ($2D'$) состояниях. Температурный сдвиг получен из $\beta = 2dD'/dT$ при комнатной температуре из АПУВС [9].

Центр	$2D$	$2D'$ при $T = 300$ К	β при $T = 300$ К
V2	128 МГц	1050 МГц	-1,16 МГц/К
V3	-28 МГц	-350 МГц	0,84 МГц/К

В параграфе **5.2** проводилось исследование спектров ОДМР V_{Si} центров в $6H-SiC$. Чтобы исследовать эффект температуры на спиновые свойства, мы зарегистрировали спектры ОДМР в диапазоне 5-300 К. На Рис. 7 представлены спектры ОДМР V_{Si} центров в $6H-SiC$ в диапазоне температуры 5 – 25 К в окрестности критической температуры T_c для диапазона частот резонанса основного состояния центра $V3$ в $6H-SiC$. По мере того, как температура спадает ниже 20 К сигнал ОДМР спадает, и форма резонансной линии становится сильно

асимметричной. Ниже 10 К резонанс снова принимает симметричную форму, но его знак становится отрицательным. При это интенсивность ФЛ остаётся практически постоянной.

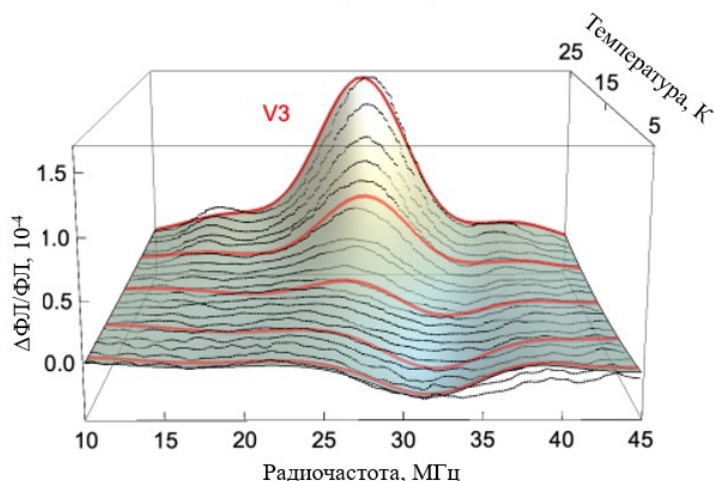


Рис. 7. Зависимость сигнала ОДМР от температуры. Температурное изменение сигнала ОДМР для центра V3 в 6H-SiC в окрестности критической температуры, где меняется знак сигнала. Точки – экспериментальные данные, поверхность и красные линии – результаты аппроксимации уравнением 16. Лучшие параметры аппроксимации $T_c = 16$ К и $\gamma = 1,4$ К/МГц.

Изменение фазы сигнала от центра V3 мы связываем с изменением цикла оптической накачки и релаксации, которое приводит к изменению предпочтительного направления оптического выстраивания центров в основном состоянии.

Для квантовых спин-фотонных приложений, важно продемонстрировать когерентный контроль центра V3 при низких температурах ниже T_c . Результаты таких исследований описаны в параграфе **5.3**. Было проведено измерение осцилляций Раби спина центра V3. Для сравнения были измерены осцилляции Раби для спина центра V2, имеющего обычную структуру возбужденного состояния при такой же температуре. Полученное время неоднородной спин-спиновой релаксации T_2^* составляет 219 ± 16 нс и 129 ± 20 для центров V2 и V3, соответственно. Эти величины похожи на ранее обнаруженные значения для экспериментов при комнатной температуре в 6H-SiC [10], которые составляли 204,81 нс и 99,29 нс, соответственно.

В параграфе **5.4** пятой Главы представлены выводы о температурном поведении центров V2 и V3 в 6H-SiC и его связи с инвертированной структурой их возбужденного состояния, которая обсуждалась в Главе четыре.

В **заклучении** приведены основные результаты работы, которые сформулированы следующим образом:

1. Было исследовано распределение механических напряжений на интерфейсе гетероструктур AlN/4H-SiC и AlN/6H-SiC с субмикронным пространственным разрешением и обнаружены механические напряжения на интерфейсе вплоть до 1 ГПа, а также предложена модель их образования.
2. Была установлена зависимость расщепления в нулевом магнитном поле спиновой системы V_{Si} центров в карбиде кремния 4H-SiC и 6H-SiC от статических механических напряжений и предложена теоретическая модель связи спинового Гамильтониана с механическими напряжениями.
3. Была исследована поляризация излучения V_{Si} центров, а также направление преимущественного излучения и сделаны теоретические выводы о структуре возбужденного состояния и энергетическом порядке расположения спиновых подуровней для разных V_{Si} центров.
4. Было обнаружено критическое температурное поведение V_{Si} центров в 6H-SiC в окрестности критической температуры $T_c = 16$ К, а также предложены причины такого поведения. Кроме того, была продемонстрирована слабая зависимости неоднородного времени спин-спиновой релаксации V_{Si} центров в 6H-SiC от температуры.

Список основных публикация автора по теме диссертации

- A1. Anisimov A.N., Soltamov V.A., Breev I.D. et al. All-optical quantum thermometry based on spin-level cross-relaxation and multicenter entanglement under ambient conditions in SiC // AIP Advances, Vol. 8, No. 085304 2018 <https://doi.org/10.1063/1.5037158>
- A2. Анисимов А.Н., Солтамов В.А., Бреев И.Д. и др. Физические основы применения сканирующего зонда со спиновыми центрами в SiC для субмикронного квантового зондирования магнитных полей и температур // Письма в ЖЭТФ, т. 108, No. 9, с. 643 – 649, 2018
- A3. Бреев И.Д., Анисимов А.Н., Вольфсон А.А., Казарова О.П., Мохов Е.Н. Комбинационное рассеяние света в кристаллах AlN, выращенных методом сублимации на затравках SiC и AlN // Физика и техника полупроводников, т. 53, No. 11, С. 1593-96, 2019
- A4. Анисимов А.Н., Бабунц Р.А., Бреев И.Д., Бундакова А.П., Ильин И.В., Музафарова М.В., Баранов П.Г. Сканирующий оптический квантовый магнитометр, основанный на явлении выжигания провалов // Письма в ЖТФ, т. 45, No. 10, С. 22-26, 2019
- A5. Breev I.D., Anisimov A.N., Baranov P.G., Mokhov E.N. Optical confocal spectroscopy of SiC and AlN interfaces using Raman scattering and Optically Detected Magnetic Resonance // Journal of Physics Conference Series, vol. 1400, No. 6, 2019
- A6. Breev I.D., Anisimov A.N., Babunts R.A., Baranov P.G. Optically Detected Magnetic Resonance Spectroscopy in Silicon Carbide using Temperature Sweep // Journal of Applied Spectroscopy, vol. 87, No. 1, p. 25-28, 2020

- A7. Breev I.D., Likhachev K.V., Yakovleva V.V., Hubner R., Astakhov G.V., Baranov P.G., Mokhov E.N., Anisimov A.N. Stress distribution at the AlN/SiC heterointerface probed by Raman spectroscopy // *Journal of Applied Physics*, vol. 129, No. 5, C. 055304, 2021
- A8. Singh H., Anisimov A.N., Breev I.D., Baranov P.G., Suter D. Optical spin initialization of spin-3/2 silicon vacancy centers in 6H-SiC at room temperature // *Phys. Rev. B*, vol. 103, No. 10, C. 104103, 2021
- A9. Breev I.D., Poshakinskiy A.V., Yakovleva V.V., Nagalyuk S.S., Mokhov E.N., Hubner R., Astakhov G.V., Baranov P.G., Anisimov A.N. Stress-controlled zero-field spin splitting in silicon carbide // *Appl. Phys. Lett.*, vol. 118, No. 084003, 2021
- A10. Бабунц Р.А., Анисимов А.Н., Бреев И.Д., Гурин А.С., Бундакова А.П., Музафарова М.В., Мохов Е.Н., Баранов П.Г. Полностью оптическая регистрация сверхтонких электронно-ядерных взаимодействий в спиновых центрах в кристаллах 6H-SiC с модифицированным изотопным составом ^{13}C // *Письма в ЖЭТФ*, т. 114, No. 8, С. 533 – 540, 2021
- A11. Soltamov V.A., Yavkin B.V., Mamin G.V., Orlinskii S.B., Breev I.D., Bundakova A.P., Babunts R.A., Anisimov A.N., Baranov P.G. Electron nuclear interactions in spin-3/2 color centers in silicon carbide: A high-field pulse EPR and ENDOR study // *Phys. Rev. B*, vol. 104, No. 12, P. 125205, 2021
- A12. Бреев И.Д., Лихачев К.В., Яковлева В.В., Вейшторт И.П., Скоморохов А.М., Нагалюк С.С., Мохов Е.Н., Астахов Г.В., Баранов П.Г., Анисимов А.Н. Влияние механических напряжений на расщепление спиновых подуровней в 4H-SiC // *Письма в ЖЭТФ*, т. 114, No. 5, С. 323-327, 2021 A5
- A13. Breev I.D., Shang Z., Poshakinskiy A.V. et. al. Inverted fine structure of a 6H-SiC qubit enabling robust spin-photon interface // *npj Quantum Inf.*, vol.8, No. 1, P. 23, 2022

Список литературы

1. Weber J.R., Koehl W.F., Varley J.B. Quantum computing with defects // *PNAS*, Vol. 107, No. 19, 2010. pp. 8513-8518.
2. Pirandola S., Andersen U.L., Banchi L. Advances in quantum cryptography // *Adv. Opt. Photon.*, Vol. 12, No. 4, 2020. pp. 1012–1236.
3. Degen C.L., Reinhard F., Cappellaro P. Quantum sensing // *Reviews of Modern Physics*, Vol. 89, No. 3, 2017. P. 035002.
4. Soltamov V.A., Yavkin B.V., Mamin G.V., Orlinskii S.B., Breev I.D., Bundakova A.P., Babunts R.A., Anisimov A.N., Baranov P.G. Electron nuclear interactions in spin-3/2 color centers in silicon carbide: A high-field pulse EPR and ENDOR study // *Phys. Rev. B*, Vol. 104, No. 125205, 2021.

5. Orlinski S.B., Schmidt J., Mokhov E.N. Silicon and carbon vacancies in neutron-irradiated SiC: A high-field electron paramagnetic resonance study // *Phys. Rev. B*, Vol. 67, 2003. P. 125207.
6. Biktagirov T., Schmidt W.G., Gerstmann U. Polytypism driven zero-field splitting of silicon vacancies in 6H-SiC // *Phys. Rev. B*, Vol. 98, 2018. P. 195204.
7. Shang Z., Berencén Y., Hollenbach M., Zhou S., Kraus H., Ohshima T., Astakhov G.V. Microwave-Assisted Spectroscopy of Vacancy-Related Spin Centers in Hexagonal SiC // *Phys. Rev. Appl.*, Vol. 15, No. 034059, 2021.
8. Baranov P.G., Bundakova A.P., Soltamova A.A. Silicon vacancy in SiC as a promising quantum system for single defect and single-photon spectroscopy // *Phys. Rev. B*, Vol. 83, 2011. P. 125203.
9. Anisimov A.N., Simin D., Soltamov V.A. Optical thermometry based on level anticrossing in silicon carbide // *Scientific Reports*, Vol. 6, 2016. P. 33301.
10. Harpreet S., Anisimov A.N., Nagalyuk S.S. Experimental characterization of spin-3/2 silicon vacancy centers in 6H-SiC // *Phys. Rev. B*, Vol. 101, 2020. P. 134110.