

## Фотонное эхо в германии с мелкими донорами

© В.В. Цыпленков, В.Н. Шагин

Институт физики микроструктур Российской академии наук,  
607680 Нижний Новгород, Россия

E-mail: Tsyplenkov1@yandex.ru

Поступила в Редакцию 2 марта 2022 г.

В окончательной редакции 25 марта 2022 г.

Принята к публикации 25 марта 2022 г.

Выполнено теоретическое исследование условий наблюдения эффекта фотонного эха в кристалле германия, легированного мелкими донорами. Проведен численный расчет поляризации среды, возбуждаемой последовательностью двух оптических импульсов на частоте, близкой к частоте примесного перехода. Рассмотрено влияние на эхо параметров импульсов возбуждения, таких как длительность импульсов, величины неоднородного уширения примесных переходов, а также скорости релаксации населенности и когерентности в системе. Ключевым аспектом при экспериментальной реализации эффекта фотонного эха является контроль температуры кристалла в условиях фотовозбуждения, так как скорость релаксации когерентности в системе сильно зависит от температуры кристаллической решетки.

**Ключевые слова:** германий, мелкие доноры, когерентные эффекты, фотонное эхо.

DOI: 10.21883/FTP.2022.08.53136.22

### 1. Введение

Научная активность многих исследователей в настоящее время направлена на изучение квантовых оптически управляемых когерентных состояний различных систем и создания на их основе новых полупроводниковых устройств, сопряженных с развитой кремниевой и германиевой технологией [1–6]. Одними из кандидатов рассматриваются кулоновские центры в полупроводниках. Примесные центры в германии достаточно хорошо исследованы, однако до сих пор нет полной информации об их временах релаксации населенностей состояний и когерентности. Эксперимент по наблюдению фотонного эха является эффективным методом демонстрации возможности создания когерентного ансамбля диполей, образованных донорными центрами, находящихся в суперпозиции состояний, и измерению поперечного времени релаксации в системе. Эффект фотонного эха успешно продемонстрирован в кремнии, легированном мелкими донорами фосфора при возбуждении системы на переходе  $1s(A_1) - 2p_{\pm}$  [7]. Цель настоящей работы — теоретическая проверка возможности и определения условий наблюдения этого эффекта в германии с мелкими донорами. Проведено численное моделирование поляризации среды (германий с мелкими донорами), возбуждаемой последовательностью двух оптических импульсов ( $\pi/2$ - и  $\pi$ -импульсы) на частоте, близкой к частоте разрешенного в электродипольном приближении перехода. При моделировании параметров среды использовались образцы, соответствующие реальным образцам германия с концентрациями легирования  $10^{12} - 10^{15} \text{ см}^{-3}$ . Также целью анализа была проверка возможности использования в качестве источника возбуждения Новосибирского лазера на свободных электронах (NovoFEL), длительность импульсов которого

$\sim 100$  пс, что меньше характерных времен жизни состояний доноров в Ge менее чем в 10 раз и длиннее, чем обратная ширина неоднородно уширенной линии примесных переходов при концентрациях легирования  $10^{14} - 10^{15} \text{ см}^{-3}$ . Показано, что при данных параметрах в  $n$ -Ge после воздействия  $\pi$ -импульса поляризация среды начинает возрастать и через время, приблизительно равное времени задержки между импульсами, достигает максимума, что соответствует фотонному эху в исследуемой системе.

### 2. Теоретическая модель

Теоретическое описание строилось в рамках полуклассической модели, в которой примесный атом считался двухуровневой квантовой системой, а электромагнитное поле (два последовательных импульса электромагнитного излучения на частоте, близкой к частоте примесного перехода) описывалось классически. Использовалось приближение вращающейся волны. 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,  $\mu$  — дипольный момент перехода,  $E_{1,2}(t)$  — зависящие от времени амплитуды полей двух импульсов внешнего излучения,  $\nu$  — круговая частота этого излучения,  $\tau$  — временная задержка между двумя импульсами,  $\varphi$  — разность фаз излучения в первом и втором импульсах, определяемая  $\tau$ .

Если пренебречь релаксацией как населенности (поперечная релаксация), так и когерентности (поперечная релаксация), то описание взаимодействия атома с полем

в данном случае удобно строить, используя метод амплитуд вероятности [8], при котором волновая функция системы может быть выражена следующей суперпозицией:

$$\Psi(t) = \alpha_1(t)\varphi_1 e^{-i\omega_1 t} + \alpha_2(t)\varphi_2 e^{-i\omega_2 t}, \quad (2)$$

где  $\varphi_1$  и  $\varphi_2$  — невозмущенные полем волновые функции атома (собственные функции оператора  $H_0$ ),  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  — частоты, соответствующие энергиям уровней атома. Подставляя волновую функцию (2) в гамильтониан (1), после несложных математических операций можно получить систему уравнений относительно амплитуд вероятности, которая задает динамику системы под действием последовательности двух резонансных импульсов электромагнитного поля:

$$\begin{cases} \alpha'_1 = -\frac{i}{2}\alpha_2 \left( \Omega_1(t)e^{i\delta t} + \Omega_2(t-\tau)e^{i(\delta t+\varphi)} \right), \\ \alpha'_2 = -\frac{i}{2}\alpha_1 \left( \Omega_1(t)e^{-i\delta t} + \Omega_2(t-\tau)e^{-i(\delta t+\varphi)} \right), \end{cases} \quad (3)$$

где  $\Omega_1$  и  $\Omega_2$  — зависящие от времени частоты Раби для полей, связанных с первым и вторым импульсами соответственно, и определяемые выражением:

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

Здесь  $\mu_{21}$  — матричный элемент перехода,  $\delta$  — величина отстройки.

Однако учитывать релаксацию в системе относительно амплитуд вероятности крайне сложно. Удобно перейти к описанию системы через вещественные величины, такие как населенности уровней и вещественные и мнимые части дипольного момента примесного центра<sup>1</sup>:

$$\begin{cases} N' = -\Omega_1 R_2 - \Omega_2 T_2 - \gamma_1(1+N), \\ R'_2 = N(\Omega_1 + \Omega_2 \cos \varphi) + \delta R_1 - \gamma_r R_2, \\ T'_2 = N(\Omega_1 \cos \varphi + \Omega_2) + \delta T_1 - \gamma_r T_2, \\ R'_1 = N\Omega_2 \sin \varphi - \delta R_2 - \gamma_r R_1, \\ T'_1 = -N\Omega_1 \sin \varphi - \delta T_2 - \gamma_r T_1, \end{cases} \quad (5)$$

В эту систему обычным образом дополнительно введены релаксационные слагаемые, определяющие скорости

<sup>1</sup> Можно также решать уравнения непосредственно относительно элементов матрицы плотности, что эквивалентно используемому в настоящей работе подходу, однако недиагональные элементы являются быстро осциллирующими функциями, а диагональные — плавными функциями времени, что усложняет процедуру численного счета. Если избавиться от быстро осциллирующей части, сводя систему к вещественным параметрам, характеризующим населенность состояний и амплитуду дипольного момента, то при наличии произвольного относительного сдвига фаз осцилляций поля в двух импульсах возбуждения система строго не сводится к трем вещественным параметрам (векторам Блоха), и требуется введение еще двух параметров, учитывающих фазовый сдвиг.

продольной ( $\gamma_1$ ) и поперечной ( $\gamma_r$ ) релаксации (релаксация населенности и когерентности соответственно). Вектора  $N_1$ ,  $R_1$ ,  $R_2$ ,  $T_1$ ,  $T_2$  следующим образом выражаются через амплитуды вероятностей:

$$\begin{aligned} N &= \alpha_2 \alpha_2^* - \alpha_1 \alpha_1^*, \\ R_1 &= \alpha_1^* \alpha_2 e^{i\delta t} + \alpha_1 \alpha_2^* e^{-i\delta t}, \\ iR_2 &= \alpha_1^* \alpha_2 e^{i\delta t} - \alpha_1 \alpha_2^* e^{-i\delta t}, \\ T_1 &= \alpha_1^* \alpha_2 e^{i(\delta t+\varphi)} + \alpha_1 \alpha_2^* e^{-i(\delta t+\varphi)}, \\ iT_2 &= \alpha_1^* \alpha_2 e^{i(\delta t+\varphi)} - \alpha_1 \alpha_2^* e^{-i(\delta t+\varphi)}, \end{aligned} \quad (6)$$

т.е.  $N$  представляет собой разность населенностей верхнего и нижнего уровней, а величины  $R_1$ ,  $R_2$ ,  $T_1$ ,  $T_2$  характеризуют дипольный момент, возбуждаемый последовательностью двух сдвинутых по фазе друг относительно друга импульсов возбуждения. Система (6) аналогична уравнениям относительно векторов Блоха [8], однако в случае двух импульсов возбуждения с разными фазами система сводится к пяти, а не к трем уравнениям. Реальный дипольный момент атома выражается следующим образом:

$$P = \mu_{21}(R_1 \cos \omega t - R_2 \sin \omega t), \quad (7)$$

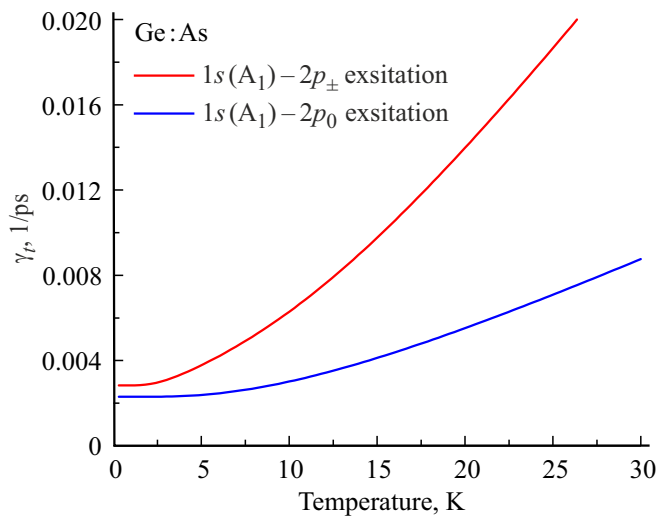
где  $\omega$  — частота атомного перехода.

Поляризуемость среды находится суммированием дипольных моментов доноров в единичном объеме, считая, что частоты атомных переходов имеют нормальное распределение с дисперсией, соответствующей ширине неоднородно уширенного примесного перехода.

Чтобы не решать пространственную задачу, считалось, что импульсы следуют друг за другом по одной траектории. Следовательно, направление распространения эха совпадает с направлением импульсов возбуждения. Такое допущение не ограничивает общности физических выводов о зависимости эха от рассматриваемых параметров системы, однако упрощает вычисления.

Следует упомянуть, что при усреднении по ансамблю диполей (донорные центры) влияние фазового сдвига излучения во втором импульсе возбуждения относительно первого нивелируется из-за разброса собственных частот диполей (частот примесных переходов). В принципе это позволяет положить в выражениях (6)  $\varphi = 0$ , при этом система (5) сведется к обычным уравнениям Блоха относительно всего трех параметров (см., например, [8]). Однако в настоящей работе мы не будем прибегать к таким дополнительным допущениям.

Важное место в моделировании эффекта фотонного эха занимает оценка скоростей релаксации населенности ( $\gamma_1$ ) и когерентности ( $\gamma_r$ ) в системе. Полагается, что основным механизмом как продольной, так и поперечной релаксации является взаимодействие с фононами. Однако взаимодействие с фононами вызывает также тепловые переходы между уровнями примесных центров без изменения средней по ансамблю доноров населенности состояний, но которые приводят к потере



**Рис. 1.** Рассчитанные зависимости от температуры скорости релаксации когерентности в Ge:As для переходов  $1s(A_1) - 2p_0$  и  $1s(A_1) - 2p_{\pm}$ .

когерентности. Скорость релаксации когерентности оценивалась по следующей формуле:

$$\gamma_i = \sum_i \gamma_{\downarrow i} (n_i(T, E_i) + 1) + \sum_j \gamma_{\uparrow j} n_j(T, E_j), \quad (8)$$

где  $\gamma_{\downarrow i}$ ,  $\gamma_{\uparrow j}$  — темпы различных спонтанных переходов при взаимодействии с фононами, нумерованных индексами  $i$  и  $j$ , вниз (излучение фонона) и вверх (поглощение фонона) по энергии соответственно,  $n_{i,j}(T, E_i)$  — зависящие от температуры решетки ( $T$ ) числа заполнения фононов с энергиями  $E_i$  и  $E_j$ , соответствующих энергиям  $i$ -го и  $j$ -го переходов. Суммирование по  $i$  и  $j$  включает переходы как из верхнего  $2p$ , так и нижнего  $1s$  состояний, образующих суперпозицию (2). В Ge:As энергетический зазор между основным и первым возбужденным состоянием  $1s(T_2)$  составляет 4.24 мэВ, и между этими состояниями также происходят тепловые переходы (состояние  $1s(T_2)$  имеет заметную населенность при температуре  $> 10$  К) без изменения средней населенности, но также разрушающие когерентность. В Ge:Sb энергетический зазор между основным и  $1s(T_2)$  состоянием составляет значение всего 0.46 мэВ, и указанные процессы существенны даже при температуре жидкого гелия. Поэтому использование образцов германия, легированных донорами сурьмы, для реализации эксперимента по наблюдению фотонного эха видится малоперспективным.

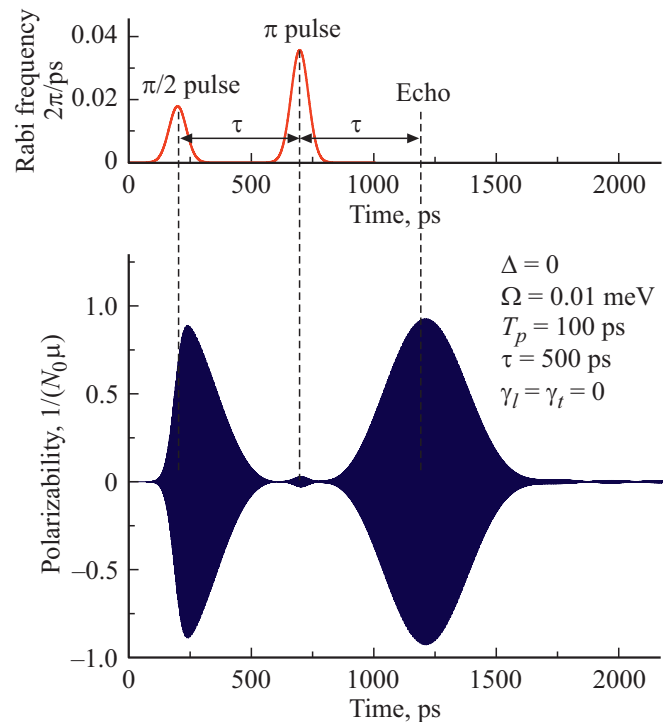
Используя рассчитанные в работах [9,10] темпы спонтанных переходов, а также принимая во внимание экспериментальные данные по временам жизни возбужденных состояний доноров Sb и As в германии [11,12], можно дать оценку скорости потери когерентности по формуле (8), которая дает более высокие значения темпов релаксации когерентности по сравнению с продольной скоростью релаксации ( $\gamma_1$ ). Зависимость  $\gamma_i$  от температуры,

считая, что числа заполнения подчиняются статистике Бозе-Эйнштейна, в случае возбуждения когерентных суперпозиций на двух различных переходах  $1s(A_1) - 2p_0$  и  $1s(A_1) - 2p_{\pm}$  в Ge:As представлена на рис. 1.

Из проведенных расчетов видно, что скорость релаксации когерентности имеет сильную температурную зависимость, поэтому при реализации эксперимента по наблюдению эффекта фотонного эха в германии необходимо обеспечить хорошее охлаждение образца в условиях оптического возбуждения. При возбуждении доноров в состоянии  $2p_{\pm}$  скорость релаксации когерентности более быстро возрастает с увеличением температуры, что связано с тем, что это состояние имеет меньшие энергетические зазоры с близлежащими состояниями и расположено достаточно близко по энергии к зоне проводимости.

### 3. Результаты моделирования

На рис. 2 показана рассчитанная динамика поляризуемости среды при отсутствии релаксации в системе. Длительности импульсов возбуждения взяты 100 пс (соответствует длительности импульсов NovoFEL), неод-



**Рис. 2.** Сверху — зависимость от времени частот Раби, повторяющими форму импульсов возбуждения; снизу — зависимость поляризуемости Ge:As от времени в пренебрежении релаксацией в системе. Здесь  $\Delta$  — величина отстройки частоты излучения от частоты перехода (по центрам линий),  $\Omega$  — ширина неоднородно уширенной линии (мэВ),  $T_p$  — длительность импульсов (пс),  $\tau$  — время задержки (пс),  $\gamma_l$ ,  $\gamma_t$  — скорости продольной и поперечной релаксации,  $N_0$  — концентрация легирования,  $\mu$  — матричный элемент электродипольного перехода.

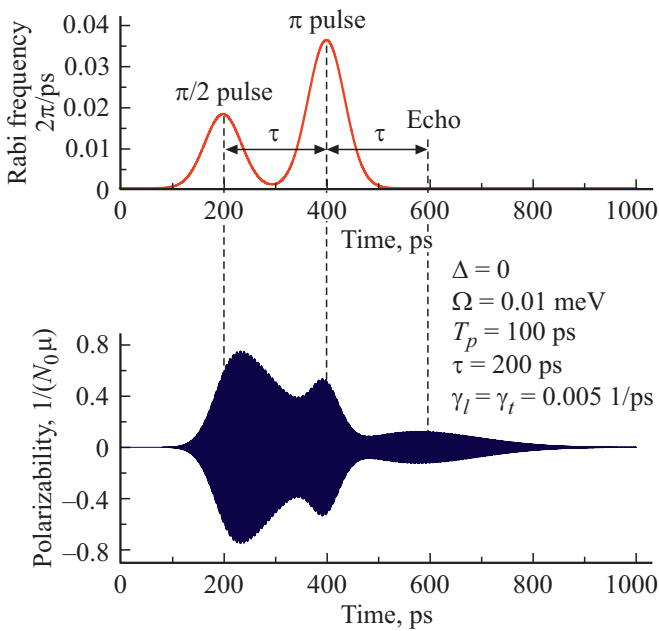


Рис. 3. Зависимость поляризуемости Ge:As при наличии релаксации в системе.

нородное уширение — 0.01 мэВ, что, основываясь на данных по фототермоионизационной спектроскопии германия с примесями фосфора, галлия, алюминия [13], для  $2p_{\pm}$  состояния ориентировочно должно соответствовать концентрации легирования  $\sim 10^{12} - 10^{13} \text{ см}^{-3}$ . Моделирование показывает, что после воздействия  $\pi$ -импульса через время, равное времени задержки между импульсами, поляризуемость среды, возбужденная первым импульсом и срелаксировавшая из-за расфазирования осцилляций различных диполей, полностью восстанавливается, что демонстрирует эффект фотонного эха.

Рис. 3 демонстрирует динамику поляризуемости среды при той же длительности импульсов, той же величине неоднородного уширения, но при учете релаксации населенности и когерентности в среде. Были использованы значения  $\gamma_l = \gamma_t = 5 \cdot 10^9 \text{ с}^{-1}$ . Такие значения для доноров As в Ge приблизительно соответствуют оценочной температуре решетки в оптическом криостате, охлаждаемом до 5 К, при резонансном возбуждении излучением NovoFEL. При таких значениях темпов релаксации и длительности лазерных импульсов необходимо, чтобы импульсы следовали друг за другом с минимальной задержкой. Расчет показывает значительное снижение амплитуды эха при наличии существенной релаксации в среде.

На рис. 4 показаны различия в динамике поляризуемости в *n*-Ge в случае быстрой релаксации и в случае ее отсутствия при наличии относительно большого неоднородного уширения линии примесного перехода — 0.1 мэВ (ориентировочно соответствует концентрации легирования  $10^{14} - 10^{15} \text{ см}^{-3}$ ). Видно, что при большой величине неоднородного уширения наблюдается более

сложная динамика поляризуемости среды, не повторяющая форму импульсов возбуждения, но сам эффект фотонного эха все равно реализуется в полной мере.

Таким образом, большая скорость релаксации когерентности является основным препятствием для экспериментальной реализации эффекта в *n*-Ge. Очевидно, для преодоления этого желательно использование источников возбуждения с меньшей длительностью импульсов. Таковыми являются, например, лазеры на свободных электронах FELIX (Нидерланды) и FELBE (Дрезден–Россендорф), длительность импульсов которых не превышает 10 пс. На рис. 5 рассчитана динамика поляризуемости при возбуждении системы источником с длительностью импульсов 10 пс при достаточно больших величинах неоднородного уширения (0.1 мэВ) и темпов релаксации  $\gamma_l = \gamma_t = 5 \cdot 10^9 \text{ с}^{-1}$ . Поскольку при таких длительностях импульсов эффект может быть реализован на значительно меньших временах по сравнению со случаем возбуждения NovoFEL, восстанавливаемая  $\pi$ -импульсом поляризуемость среды при тех же условиях имеет существенно большее значение, что, безусловно, положительно отразится на мощности регистрируемого

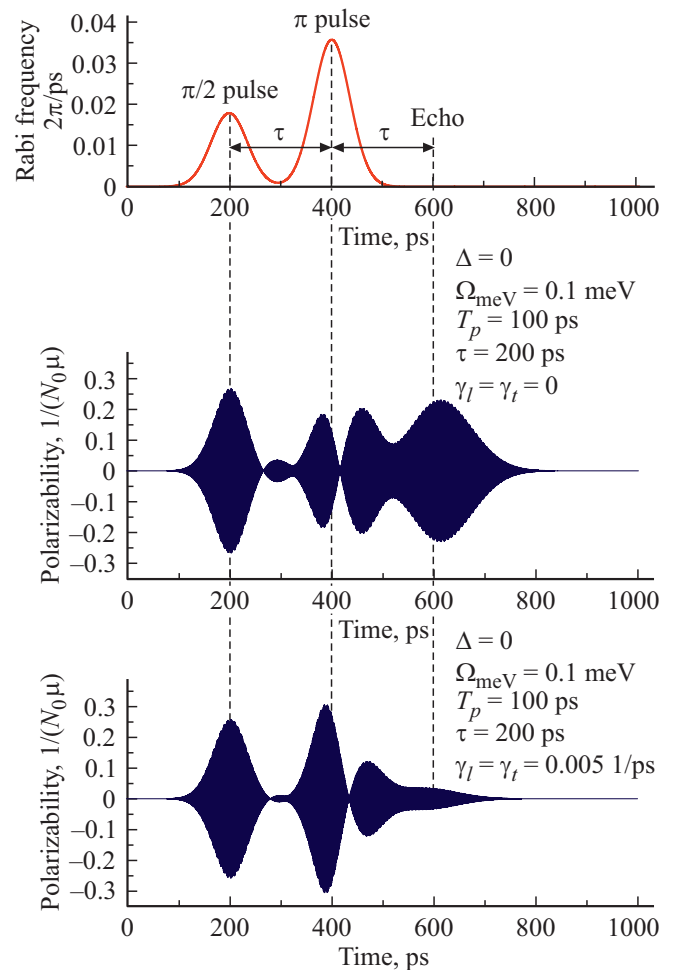
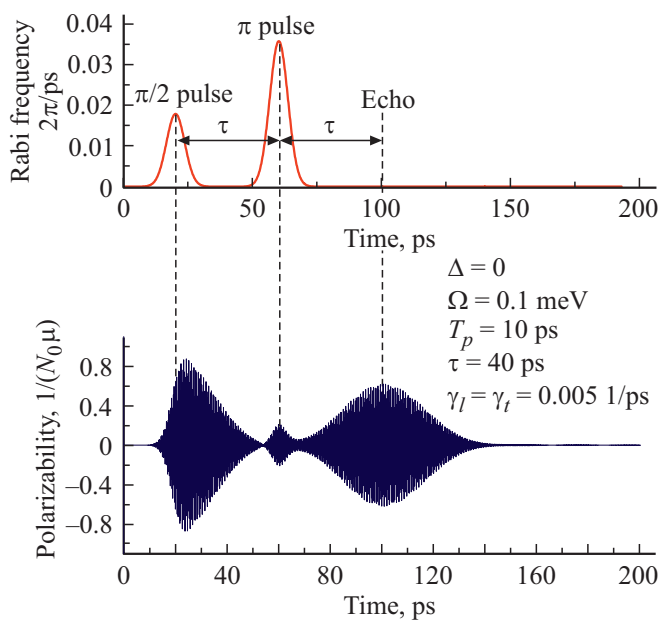


Рис. 4. Зависимость поляризуемости Ge:As при достаточно большом неоднородном уширении линии примесного перехода при отсутствии и наличии релаксации в системе.



**Рис. 5.** Зависимость поляризуемости Ge:As при достаточно большом неоднородном уширении линии примесного перехода, быстрой релаксации и коротких длительностях импульсов возбуждения.

фотонного эха (спонтанного излучения сфазированных диполей).

#### 4. Заключение

В работе проведено моделирование динамики поляризуемости  $n$ -Ge при резонансном внутрицентровом оптическом возбуждении парой импульсов при учете релаксации населенности и когерентности в среде. Показано, что температура образца является критическим фактором для наблюдения эффекта фотонного эха, так как скорость релаксации когерентности сильно зависит от нее. Показано, что при значениях величины неоднородного уширения примесных переходов  $\sim 0.1$  мэВ (соответствует концентрации легирования  $\sim 10^{14} - 10^{15} \text{ см}^{-3}$  [13])<sup>2</sup>, длительности импульсов возбуждения  $\sim 100$  пс (соответствует длительности импульсов NovoFEL) и наличии в системе достаточно быстрой релаксации эффект фотонного эха все равно может быть

<sup>2</sup> Концентрационная зависимость величины неоднородного уширения может обуславливаться различными факторами, включающими перекрытие волновых функций соседних примесей, влияние полей ионизованных примесей, случайные поля, обусловленные дефектами, связанными с введением примесей и т. п. Хотя неоднородное уширение линий примесных переходов может определяться не только концентрацией примесей (например, изотопическим составом материала, числом несвязанных с примесями дефектов в кристалле и др.), концентрационная зависимость имеет большое значение. В работе [13] проведены измерения ширины линии примесного перехода для акцепторов и доноров фосфора в германии в зависимости от концентрации центров. Полагается, что такая зависимость не будет существенно зависеть от конкретного вида примеси, и в качестве оценки данный результат будет применим и для других доноров.

наблюдаем. Однако использование источников с более короткими импульсами значительно повышают шансы успешного наблюдения эффекта. Когерентные суперпозиции в Ge:As, возбуждаемые на переходе  $1s(A_1) - 2p_0$ , имеют большее время релаксации когерентности, что увеличивает шансы наблюдения эффекта по сравнению со случаем возбуждения переходов  $1s(A_1) - 2p_{\pm}$ . Однако последний переход имеет заметно большее значение матричного элемента, что позволяет использовать меньшие значения мощности оптических импульсов. Это приводит к меньшему нагреву образца, а следовательно, меньшему увеличению скорости релаксации когерентности. Поэтому трудно указать более перспективный для успешной реализации эксперимента переход, так как определяющее значение будет иметь скорость отвода тепла от образца, что сильно зависит от конкретной конфигурации эксперимента.

#### Финансирование работы

Работа поддержана РФФ (соглашение № 19-72-20163).

#### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

#### Список литературы

- [1] Pla, J.J. K.Y. Tan, J.P. Dehollain, W.H. Lim, J.J.L. Morton, F.A. Zwanenburg, D.N. Jamieson, A.S. Dzurak, A. Morello. *Nature*, **496**, 334 (2013).
- [2] A.M. Stoneham, A.J. Fisher, P.T. Greenland. *J. Phys.: Condens. Matter*, **15**, L447 (2003).
- [3] M. Fuechsle, J.A. Miwa, S. Mahapatra, H. Ryu, S. Lee, O. Warschkow, L.C.L. Hollenberg, G. Klimeck, M.Y. Simmons. *Nature Nanotechnol.*, **7**, 242 (2012).
- [4] L.C.L. Hollenberg, C.J. Wellard, C.I. Pakes, A.G. Fowler. *Phys. Rev. B*, **69**, 233301 (2004).
- [5] A.P. Heberle, J.J. Baumberg, E. Binder, T. Kuhn, K. Kohler, K.H. Ploog. *IEEE J. Select. Top. Quant. Electron.*, **2**, 769 (1996).
- [6] K.J. Morse, R.J.S. Abraham, A. DeAbreu, C. Bowness, T.S. Richards, H. Riemann, N.V. Abrosimov, P. Becker, H.-J. Pohl, M.L.W. Thewalt, St. Simmons. *Science Advances/Quantum Physics*, **3**, e1700930, (2017).
- [7] P.T. Greenland, S.A. Lynch, A.F.G. van der Meer, B.N. Murdin, C.R. Pidgeon, B. Redlich, N.Q. Vinh, G. Aeppli. *Nature*, **465** (7301), 1057 (2010).
- [8] М.О. Скалли, М.С. Зубайри. *Квантовая оптика* (М., Физматлит, 2003).
- [9] В.В. Цыпленков, В.Н. Шагин. *ФТП*, **52**, 1469 (2018).
- [10] В.В. Цыпленков, В.Н. Шагин. *ФТП*, **53**, 1372 (2019).
- [11] 13. Р.Х. Жукавин, К.А. Ковалевский, С.М. Сергеев, Ю.Ю. Чопорова, В.В. Герасимов, В.В. Цыпленков, Б.А. Князев, Н.В. Абросимов, С.Г. Павлов, В.Н. Шагин, Г. Шнайдер, Н. Дессманн, О.А. Шевченко, Н.А. Винокуров, Г.Н. Кулипанов, Г.-В. Хьюберс. *Письма ЖЭТФ*, **106** (9), 555 (2017).

- [12] 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, Г.-В. Хьюберс, В.Н. Шастин. Письма ЖЭТФ, **110**, 677 (2019).
- [13] Б.А. Андреев. *Инфракрасная спектроскопия электрически активных примесей в кремнии и германии*. Докт. дис. (Н. Новгород, 2004).

Редактор А.Н. Смирнов

## Photon echo in germanium with shallow donors

*V.V. Tsyplenkov, V.N. Shastin*

Institute for Physics of Microstructures,  
Russian Academy of Sciences,  
603950 Nizhny Novgorod, Russia

**Abstract** A theoretical study was made of the conditions for observing the photon echo effect in a germanium crystal doped with shallow donors. A numerical calculation of the medium polarization excited by a sequence of two optical pulses at a frequency close to the impurity transition frequency has been made. The effect of excitation pulse parameters, such as the pulse duration, the inhomogeneous broadening of impurity transitions and the relaxation rate of population and coherence in the system on the echo is considered. The key aspect in the experimental implementation of the effect is the control of the crystal temperature under photoexcitation, since the rate of coherence relaxation in the system strongly depends on the temperature of the crystal lattice.