

Оптическое возбуждение спин-триплетных состояний двухэлектронных доноров в кремнии

© В.В. Цыпленков, Р.Х. Жукавин, В.Н. Шагин

Институт физики микроструктур Российской академии наук — филиал Федерального государственного бюджетного научного учреждения „Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики им. А.В. Гапонова–Грехова Российской академии наук“, 603087 д. Афоново, Нижегородская обл., Кстовский район, Россия
E-mail: Tsyplenkov1@yandex.ru

Поступила в Редакцию 5 мая 2023 г.

В окончательной редакции 29 июня 2023 г.

Принята к публикации 6 июля 2023 г.

Предлагается способ резонансного оптического возбуждения ортосостояний двухэлектронных доноров в кремнии, прямые переходы в которые из основного состояния при слабой спин-орбитальной связи крайне подавлены. Возбуждение предлагается осуществлять, используя точки антипересечения орто- и парасостояний в условиях одноосного сжатия кристалла, в которых состояния нельзя однозначно отнести ни к одной группе состояний с определенным спином, вследствие чего оптический переход становится разрешенным. Структура энергетических уровней двухэлектронных примесей такова, что возбуждения такого состояния практически однозначно ведут к заселению нижележащего состояния ортотипа, которое, как ожидается, является сильно долгоживущим в случае слабой спин-орбитальной связи. В настоящей работе проводятся теоретические оценки сечений оптических переходов в окрестности точки антипересечения уровней в зависимости от деформации при сильной и слабой спин-орбитальной связи.

Ключевые слова: двухэлектронные доноры, пара- и ортосостояния, оптические переходы, спин-орбитальное взаимодействие.

DOI: 10.21883/FTP.2023.05.56198.18k

1. Введение

Нейтральные двухэлектронные донорные центры в кремнии (Mg и доноры VI группы) имеют две группы состояний (спин-синглетные (пара-) и спин-триплетные (ортосостояния)), которые в отсутствие спин-орбитального взаимодействия оптически не связаны друг с другом. Это позволяет рассматривать их как удобную основу для создания кубита, которые в отличие от предложений использования в качестве кубита однократно ионизированных доноров VI группы [1] имеют большой энергетический зазор между уровнями, что, возможно, будет иметь положительное влияние на температурную устойчивость потенциального кубита.

При слабой спин-орбитальной связи или ее отсутствии (доноры S и Mg) контролируемое оптическое возбуждение состояний ортогруппы крайне затруднено, а резонансное возбуждение невозможно. В донорах с сильной спин-орбитальной связью (Se, Te) возможно прямое резонансное возбуждение, но обратной стороной этого является маленькое время жизни возбуждаемого ортосостояния. Возбуждение через ионизацию доноров с последующим захватом электрона другим донорным центром приводит к случайному образованию в некотором количестве доноров, находящихся в ортосостояниях. Однако такой способ является неконтролируемым, и невозможность направленно возбуждать ортосостояния

не позволяет осуществлять управление потенциальным кубитом.

В настоящей работе предлагается способ нерезонансного, но контролируемого оптического возбуждения, теоретически позволяющего возбуждать ортосостояния донорных центров с эффективностью практически 100%. Суть способа состоит в использовании точки антипересечения уровней спин-триплетных ${}^31s(B_2)$ и спин-синглетных ${}^11s(B_2)$ уровней в однооснодеформированном кристалле кремния, в которой даже при незначительной спин-орбитальной связи спин не является определенным (рис. 1), и оптические переходы возможны. Ниже по энергии лежит лишь отщепленная деформацией одна из компонент долинного триплета — ортосостояние ${}^31s(E)$ (нижнее состояние с симметрией E на рис. 1), не замешанное спин-орбитальным взаимодействием с парасостоянием, и релаксационный переход в него обеспечивает возбуждение донора в спин-триплетное состояние. Таким образом, возбуждая примесь из основного состояния со спином, равным нулю ($S = 0$), в $1s$ состояние в окрестности точки антипересечения, например оптическим π -импульсом, последующим релаксационным процессом обеспечивается заселение состояния с $S = 1$. Вероятность перехода в другое состояние при этом очень мала. Следует отметить, что сила спин-орбитальной связи при таком способе возбуждения влияет только на величину диапазона деформаций, при котором возможны переходы

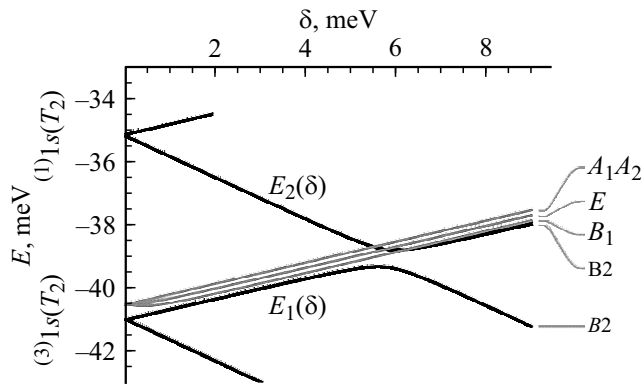


Рис. 1. Уровни $1s(T_2)$ состояния доноров Se в Si в зависимости от междолинного расщепления, вызванного деформацией вдоль оси $\{100\}$. Буквы справа показывают симметрию состояния.

в антипересекающиеся уровни, которая при малой ее величине может быть также очень мала, но всегда присутствующая неоднородность деформации при одноосном сжатии снижает требования к точности величины прикладываемого давления и всегда обеспечит какой-то процент таких переходов.

2. Теоретическая часть и результаты

В первую очередь следует отметить, что решаемая в настоящей работе задача об оптических переходах в отщепленные состояния $1s$ долинного триплета в окрестности точки антипересечения пара- и ортосостояний не является новой и решалась коллективом авторов работ [2,3]. Однако в опубликованных материалах не содержится информации о структуре волновой функции, что необходимо для оценки зависимости сечения оптического перехода от деформации кристалла. Поэтому в данной работе проводится вычисление этой волновой функции с опорой на значения матричных элементов оператора спин-орбитального взаимодействия, оценки которых даны в работах [2,3].

Построение волновой функции в точке антипересечения $1s(T_2)$ пара- и ортосостояний в условиях деформации и спин-орбитального взаимодействия (см. схему уровней на рис. 1) осуществлялось с использованием экспериментально измеренных параметров спин-орбитальной связи для различных доноров [2,3], а также известного факта, что спин-орбитальное взаимодействие связывает лишь два уровня с одинаковой симметрией (в рассматриваемом случае это симметрия B_2) расщепленного состояния $1s(T_2)$. Последнее позволило ограничиться матрицей возмущения (спин-орбитальное взаимодействие) размерности 2×2 . Диагонализация матрицы дает спектр состояний и волновые функции антипересекающихся уровней.

В настоящей работе при описании волновых функций состояний двухэлектронных центров использовались

следующие модельные представления [4]. Волновая функция возбужденного состояния строится на основе представления, что орбитали двух электронов существенно отличаются, что приводит к тому, что один из электронов (внутренний) локализуется близко к центру и „чувствует“ лишь потенциал атомного остова с зарядом $+2$, а второй электрон (внешний) движется в поле атомного остова, экранированного первым внутренним электроном, т.е. в кулоновском потенциале с зарядом $+1$. Таким образом, волновая функция строится из водородоподобных функций с учетом перестановочной симметрии электронов. В отсутствии спин-орбитального взаимодействия волновые функции основного и возбужденных пара- (спиновый синглет) и ортосостояний (спиновый триплет) могут быть записаны в следующем виде [4]:

$$\Psi_{g.s.}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \varphi_1(\mathbf{r}_1)\varphi_1(\mathbf{r}_2)s_1(\uparrow)s_2(\downarrow),$$

$$\Psi^{\text{para}}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \frac{1}{\sqrt{2}} (\varphi_{1s}^+(\mathbf{r}_1)\varphi_2(\mathbf{r}_2) + \varphi_{1s}^+(\mathbf{r}_2)\varphi_2(\mathbf{r}_1)) \times (s_1(\uparrow)s_2(\downarrow) - s_1(\downarrow)s_2(\uparrow)),$$

$$\Psi_1^{\text{ortho}}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \frac{1}{\sqrt{2}} (\varphi_{1s}^+(\mathbf{r}_1)\varphi_3(\mathbf{r}_2) - \varphi_{1s}^+(\mathbf{r}_2)\varphi_3(\mathbf{r}_1)) \times (s_1(\uparrow)s_2(\uparrow)),$$

$$\Psi_2^{\text{ortho}}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \frac{1}{\sqrt{2}} (\varphi_{1s}^+(\mathbf{r}_1)\varphi_3(\mathbf{r}_2) - \varphi_{1s}^+(\mathbf{r}_2)\varphi_3(\mathbf{r}_1)) \times (s_1(\downarrow)s_2(\downarrow)),$$

$$\Psi_3^{\text{ortho}}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \frac{1}{\sqrt{2}} (\varphi_{1s}^+(\mathbf{r}_1)\varphi_3(\mathbf{r}_2) - \varphi_{1s}^+(\mathbf{r}_2)\varphi_3(\mathbf{r}_1)) \times (s_1(\uparrow)s_2(\downarrow) + s_1(\downarrow)s_2(\uparrow)), \quad (1)$$

где $\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2$ — координаты первого и второго электронов, $\varphi_{1s}^+(\mathbf{r}_{1,2})$ — волновая функция основного состояния однократно ионизованного донора, $\varphi_1(r_{1,2})$ и $\varphi_{2,3}(r_{1,2})$ — одноэлектронные волновые функции в основном (с индексом 1) и возбужденном (с индексами 2 и 3) состоянии, s_1 и s_2 — спиновые функции первого и второго электронов, в скобках указано направление спина. Возможным небольшим отличием функций φ_3 для различных состояний спинового триплета в рассматриваемом в настоящей работе случае можно пренебречь.

Гамильтониан системы примем в виде

$$H = H_0 + H_{s.o.}, \quad (2)$$

где H_0 — невозмущенный гамильтониан, описывающий состояния двухэлектронного центра в условиях одноосного сжатия кристалла, $H_{s.o.}$ — оператор спин-орбитального взаимодействия, выступающий в роли возмущения. Функции $\Psi^{\text{para}}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$ и $\Psi^{\text{ortho}}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$, задаваемые формулами (1), являются собственными функциями оператора H_0 . При наличии одноосной деформации

сжатия кристалла функции $\varphi_1(r_{1,2})$ и $\varphi_{2,3}(r_{1,2})$ представляют собой определенные комбинации однодолинных волновых функций. В рассматриваемом в данной работе случае функция $\varphi_1(r_{1,2})$ является шестидолинной, т.е. представляет собой сумму волновых функций $1s$ состояний¹, каждая из которых связана с одной долиной, с коэффициентами (c_i) такими же, как для $1s(A_1)$ состояния водородоподобного донорного центра в кремнии [5], т.е. имеет вид

$$\varphi_1(r_{1,2}) = \sum_i c_i F_i \xi_i, \quad (3)$$

где F_i — огибающая волновой функции основного состояния $1s$ типа, ξ_i — функция Блоха дна зоны проводимости i -ой долины, суммирование проводится по всем шести долинам кремния. Функция $\varphi_2(r_{1,2})$ представляет собой $1s$ состояние, образованное вкладом двух противоположащих долин, лежащих на оси вдоль прикладываемого к кристаллу давления [5]:

$$\varphi_2(r_{1,2}) = \frac{1}{\sqrt{2}} (G_1 \xi_1 - G_2 \xi_2), \quad (4)$$

где $G_{1,2}$ — огибающие волновой функции отщепленной компоненты долинного триплета $1s$ типа в первой и второй долине, лежащих на оси вдоль оси прикладываемого к кристаллу давления. Следует отметить, что такая долинная комбинация функции $\varphi_2(r_{1,2})$ обеспечивает то, что она перестает быть четной, и оптические переходы из основного состояния, которое четно, принципиально становятся возможны, однако наблюдаются не во всех донорах. Функция $\varphi_3(r_{1,2})$ — $1s$ состояние, состоящее из вкладов четырех долин, лежащих на осях, перпендикулярных направлению давления. Вследствие вырожденности состояния коэффициенты, определяющие долинны вклады, могут быть выбраны так [3]:

$$\varphi_3(r_{1,2}) = \frac{1}{2} ((G_3 \xi_3 - G_4 \xi_4) \pm i(G_5 \xi_5 - G_6 \xi_6)), \quad (5)$$

где $G_{3,4,5,6}$ — огибающие волновых функций отщепленной компоненты долинного триплета $1s$ типа в четырех долинах, лежащих вдоль осей, перпендикулярных оси прикладываемого к кристаллу давления. Такая долинная конфигурация волновых функций обеспечивает наличие ненулевой проекции орбитального момента.

Наличие возмущения приводит к перемешиванию пара- и ортосостояний, так что волновую функцию в окрестности точки антипересечения отщепленных уровней необходимо искать в виде следующей суперпозиции:

$$\Psi = \alpha \cdot \Psi^{\text{para}}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) + \beta \cdot \frac{1}{\sqrt{3}} (\Psi_1^{\text{ortho}}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) + \Psi_2^{\text{ortho}}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) + \Psi_3^{\text{ortho}}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)), \quad (6)$$

¹ Здесь и далее указанный тип состояния $1s$ соответствует классификации огибающей волновой функции водородоподобного центра в методе эффективных масс.

Значения энергии обменного взаимодействия ($E_2 - E_1$) и параметра ξ , определяющего спин-орбитальное расщепление, для доноров VI группы. Для доноров S оптические переходы из основного состояния в ортосостояние (${}^3 1s(T_2)$) экспериментально не наблюдаются

	Si:Te [3]	Si:Se [2]	Si:S ²
$E_2 - E_1$, мэВ	9	6	6
ξ , мэВ	1.5	0.4	0.07

где α и β — коэффициенты разложения. При принятом допущении, что можно ограничиться матрицей возмущения размерности 2×2 , уравнение для нахождения собственных значений энергии при учете спин-орбитального взаимодействия будет иметь вид

$$\det \begin{pmatrix} V_{11} + E_2 - \frac{2}{3} \delta - E & V_{12} \\ V_{21} & V_{22} + E_1 + \frac{1}{3} \delta - E \end{pmatrix} = 0, \quad (7)$$

где $E_{1,2}$ — энергии расщепленных обменным взаимодействием уровней пара- (${}^1 1s(T_2)$) и ортосостояний (${}^3 1s(T_2)$) при нулевой деформации, δ — междолинное расщепление, вызванное одноосной деформацией сжатия в кристаллографическом направлении $\{100\}$ (давление в 1 кбар соответствует приблизительно междолинному расщеплению в 8.5 мэВ), E — искомые энергии уровней при учете спин-орбитального взаимодействия, V_{11} , V_{12} , V_{21} , V_{22} — матричные элементы оператора спин-орбитального взаимодействия, которые в работах [2,3] выражены через единственный параметр ξ . Значение параметра ξ измеряется экспериментально через расщепление уровней. Матричные элементы, определяющие расщепление ортосостояния (${}^3 1s(T_2)$), имеют следующие значения:

$$V_{21} = V_{12} = \frac{\xi}{\sqrt{2}}, \quad V_{11} = -\frac{\xi}{2},$$

а матричный элемент V_{22} , очевидно, равен нулю, так как парасостояние (${}^1 1s(T_2)$) имеет нулевое значение спина. Значения же параметра ξ для различных доноров VI группы представлены в таблице.

Представленные на рис. 1 зависимости энергии уровней от деформации представляют собой результат решения (жирная линия) уравнения (7) для Si:Se. Обозначим нижнюю компоненту антипересекающихся уровней с симметрией (B_2) через $E_1(\delta)$, а верхнюю — $E_2(\delta)$, коэффициенты α и β для нижней компоненты α_1 и β_1 , а для

² Оптические переходы в Si:S в состояние спинового триплета (${}^3 1s(T_2)$) не наблюдаются из-за малой величины спин-орбитальной связи ξ . Однако близость энергетического спектра Si:Se и Si:S позволяет предположить, что величина обменного взаимодействия ($E_2 - E_1$) для этих доноров практически одинакова. Параметр ξ оценен, используя данные спектральных измерений в кремнии с однократно ионизованными донорами Si:S⁺ [6], в котором заметно расщепление уровня $1s(T_2)$ из-за спин-орбитального взаимодействия, в сравнении с Si:Se⁺. Полагалось, что отношение спин-орбитальных расщеплений в Si:S⁺ и Si:Se⁺ совпадает с отношением расщеплений в Si:S и Si:Se.

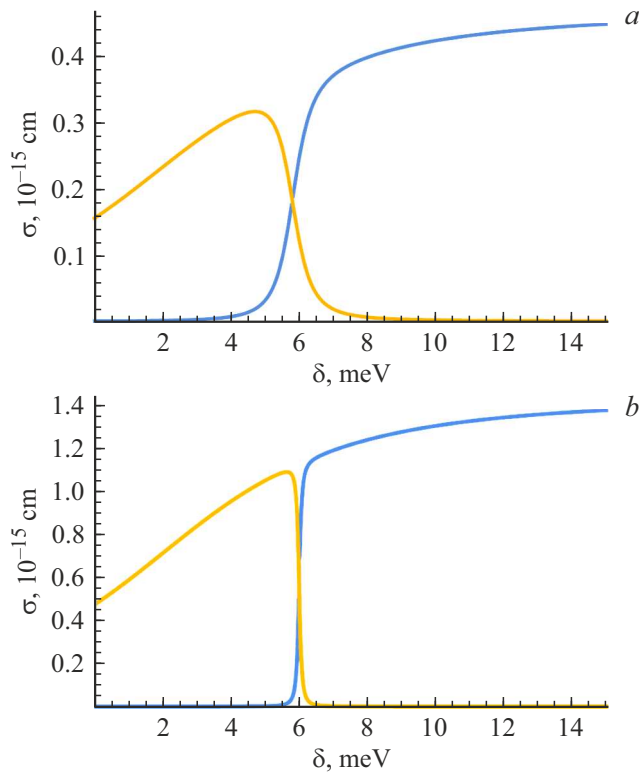


Рис. 2. Сечения переходов в обе компоненты антипересекающихся уровней с симметрией B_2 в зависимости от величины междолинного расщепления, вызванного деформацией вдоль оси $[100]$ для доноров с относительно большой (Селен (Se)) (a) и малой (Сера (S)) (b) спин-орбитальной связью.

верхней соответственно α_2 и β_2 . Тогда коэффициенты $\alpha_1, \beta_1, \alpha_2, \beta_2$ могут быть выражены следующим образом:

$$\begin{aligned} \alpha_1 &= \frac{\frac{\xi}{\sqrt{2}}}{\sqrt{\frac{\xi^2}{2} + (E_1 + \frac{\delta}{3} - E_1(\delta))^2}}, \\ \beta_1 &= \frac{E_1 + \frac{\delta}{3} - E_1(\delta)}{\sqrt{\frac{\xi^2}{2} + (E_1 + \frac{\delta}{3} - E_1(\delta))^2}}, \\ \alpha_2 &= \frac{\frac{\xi}{2} - E_2 + \frac{2}{3}\delta + E_2(\delta)}{\sqrt{\frac{\xi^2}{2} + (\frac{\xi}{2} - E_2 + \frac{2}{3}\delta + E_2(\delta))^2}}, \\ \beta_2 &= \frac{\frac{\xi}{\sqrt{2}}}{\sqrt{\frac{\xi^2}{2} + (\frac{\xi}{2} - E_2 + \frac{2}{3}\delta + E_2(\delta))^2}}. \end{aligned} \quad (8)$$

Так как основное состояние донора является парасостоянием, а оптические переходы между чистыми пара- и ортосостояниями невозможны, то матричный элемент оптического перехода из основного состояния донора $(^1)1s(A_1)$ в состояния, соответствующие уровням $E_1(\delta)$ и $E_2(\delta)$, пропорционален коэффициентам разложения α_1, α_2 соответственно, т.е. пропорционален весовому

вкладу парасостояния $(^1)1s(B_2)$ в общей волновой функции состояний, связанных с этими уровнями. Таким образом, используя известное сечение поглощения (σ) при переходе в состояние $(^1)1s(T_2)$ [7], можно вычислить зависимость сечения поглощения в уровни $E_1(\delta)$ и $E_2(\delta)$ от одноосной деформации, которая будет даваться выражением

$$\sigma_{1,2}(\delta) = \alpha_{1,2}(\delta)c(\delta)\sigma, \quad (9)$$

где множитель $c(\delta)$ отражает зависимость от междолинного расщепления вклада в волновую функцию основного состояния донора $1s(A_1)$ долин вдоль оси деформации [5]. На рис. 2 показаны рассчитанные зависимости сечения поглощения на переходе в состояния, связанные с уровнями энергии $E_1(\delta)$ и $E_2(\delta)$, в нейтральных донорах Se и S в кремнии. Так как состояние $(^1)1s(B_2)$ образовано вкладами лишь двух долин, лежащих на оси вдоль прикладываемого давления, электродипольные оптические переходы возможны лишь при поляризации излучения вдоль той же оси.³

Результаты для селена соответствуют экспериментальным данным [2]. Для доноров же серы из-за малого значения параметра спин-орбитальной связи ξ при обычной спектроскопии не видно линий, как связанных с переходами в долинный ортотриплет $(^3)1s(T_2)$, так и расщепления в окрестности точки антипересечения пара- и орто- $1s$ уровней [2]. Последнее связано с тем, что при малой спин-орбитальной связи такое расщепление так же мало (порядка ξ), что требует использования спектроскопии высокого разрешения. По оценкам авторов данной работы, разрешение должно быть < 0.07 мэВ.

3. Заключение

Проведенные в настоящей работе вычисления спектра и волновых функций $1s$ пара- и ортосостояний при учете спин-орбитального взаимодействия показывают возможность внутрицентрового оптического возбуждения ортосостояний в двухэлектронных донорах в однооснодеформированном кремнии. Теоретически при таком способе возможно осуществлять возбуждения даже при малых величинах спин-орбитального взаимодействия, расщепления, связанные с которым, не заметны при обычной спектроскопии поглощения. Например, факт существования оптических переходов в окрестности точки антипересечения в донорах серы можно зафиксировать, регистрируя населенность единственного наиболее низко расположенного возбужденного уровня энергии, связанного с ортосостоянием $(^3)1s(E)$, которое связано с нижними долинами зоны проводимости в деформированном кремнии. Таким образом, данный способ кроме возбуждения потенциально кубита, реализованного на паре $1s$ уровней пара- и ортосостояний, может быть полезен

³ Нечетность полной волновой функции парасостояния $(^1)1s(B_2)$ обеспечивается симметрией долинных вкладов в нее. Вдоль осей, ортогональных оси долин, образующих это состояние, волновая функция является четной и оптические переходы в электродипольном приближении из основного состояния донора запрещены.

для спектроскопии ортосостояний в донорах с малой спин-орбитальной связью, в которых непосредственное их наблюдение невозможно.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] 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. *Sci. Adv.*, **3**, e1700930 (2017).
- [2] K. Bergman, G. Grossmann, H.G. Grimmeiss, M. Stavola. *Phys. Rev. Lett.*, **56**, 2827 (1986)
- [3] K. Bergman, G. Grossmann, H.G. Grimmeiss, M. Stavola, C. Holm, P. Wagner. *Phys. Rev. B*, **37**, 10738 (1988).
- [4] Г. Бете, Э. Солпитер. *Квантовая механика атомов с одним и двумя электронами* (М., Гос. изд-во физ.-мат. лит., 1960).
- [5] D.K. Wilson, G. Feher. *Phys. Rev.*, **124** (4), 1068 (1961).
- [6] M. Steger, A. Yang, M.L.W. Thewalt, M. Cardona, H. Riemann, N.V. Abrosimov, M.F. Churbanov, A.V. Gusev, A.D. Bulanov, I.D. Kovalev, A.K. Kaliteevskii, O.N. Godisov, P. Becker, H.-J. Pohl, E.E. Haller, J.W. Ager, III. *Phys. Rev. B*, **80**, 115204 (2009).
- [7] S.G. Pavlov, L.M. Portsel, V.B. Shuman, A.N. Lodygin, Yu.A. Astrov, N.V. Abrosimov, S.A. Lynch, V.V. Tsyplenkov, H.-W. Hübers. *Phys. Rev. Mater.*, **5**, 114607 (2021).

Редактор А.Н. Смирнов

Optical excitation of spin-triplet states of two-electron donors in silicon

V.V. Tsyplenkov, R.Kh. Zhukavin, V.N. Shastin

The Institute for Physics of Microstructures of the Russian Academy of Sciences, 603087 Afonino, Nizhny Novgorod region, Kstovsky district, Russia

Abstract In this paper, we propose a method for resonant optical excitation of ortho states of two-electron donors in silicon, direct transitions to which from the ground state are extremely suppressed in case of a weak spin-orbit coupling. Excitation is proposed to be carried out using the points of anti-crossing of ortho and para states under conditions of uniaxial stress of the crystal. In these points the states cannot be unambiguously assigned to any group of states with a certain spin, as a result of which the optical transition becomes allowed. The structure of the energy levels of two-electron impurities is such that the excitation of such state almost unambiguously leads to the population of the underlying ortho-type state, which is expected to be very long-lived in the case of weak spin-orbit coupling. In the present work, theoretical estimates of the cross sections for optical transitions in the vicinity of the level anticrossing point as a function of strain for strong and weak spin-orbit coupling are made.