

聚焦离子束加工的硅酸钇波导中铕离子的 光学与超精细跃迁*

肖懿鑫¹⁾²⁾ 朱天翔¹⁾²⁾ 梁澎军¹⁾²⁾ 王奕洋¹⁾²⁾

周宗权^{1)2)3)†} 李传锋^{1)2)3)‡}

1) (中国科学技术大学, 中国科学院量子信息重点实验室, 合肥 230026)

2) (中国科学技术大学, 量子网络安徽省重点实验室, 合肥 230026)

3) (合肥国家实验室, 合肥 230088)

(2024 年 8 月 1 日收到; 2024 年 9 月 16 日收到修改稿)

量子存储是大尺度量子网络的重要组成部分, 基于波导等微纳结构的可集成量子存储可以提供更好的可扩展性并实现更低的光电能耗. 在众多量子存储候选介质中, $^{151}\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ 晶体具有长达 6 h 的自旋相干寿命和 1 h 的相干光存储时间, 成为长寿命存储的优异候选材料. 本文通过聚焦离子束在 $^{151}\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ 晶体表面加工出三角形悬臂波导, 波导截面的边长为 2 μm , 长度为 20 μm , 并对三角形悬臂波导中的 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的 $^7\text{F}_0-^5\text{D}_0$ 光学跃迁以及 $^7\text{F}_0$ 基态的超精细跃迁开展了研究. 结果显示, 在 2 μm 尺度的悬臂波导中 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子基本保持了和块状晶体中 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子一致的跃迁展宽及相干寿命, 可以支持量子存储任务的实现. 该工作为实现纳米尺度的 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子可集成量子存储器以及单个 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的探测打下基础.

关键词: 稀土掺杂晶体, 量子存储, 聚焦离子束, 量子信息

PACS: 03.67.-a, 42.50.Ex, 42.50.Ct, 76.30.Kg

DOI: 10.7498/aps.73.20241070

CSTR: 32037.14.aps.73.20241070

1 引言

量子存储器可以实现光量子比特的存储^[1-3], 基于量子存储的量子中继^[4,5]可以有效地克服信道损耗, 从而建立起长程的量子纠缠网络^[6,7]. 此外, 量子存储器还可以支持多光子产生^[8-11]、高效率光子探测^[12,13]以及分布式量子计算^[14]等任务的实现. 稀土掺杂晶体^[15,16]是目前被广泛使用于量子存储的固体材料, 其优异的光学及超精细跃迁相干特性能够支持长寿命的量子存储^[17-22], 并且还具

备大带宽^[23,24]和多模式^[24-27]存储等优点. 稀土掺杂晶体作为固体材料, 天然地具备易于加工和实现集成化应用的优点. 飞秒激光加工^[28-32]、聚焦离子束^[33-36]和电子束曝光^[37,38]等加工技术已成功应用于稀土掺杂晶体, 实现可集成的量子存储器件.

Eu^{3+} 离子具有长达 6 h 的核自旋相干时间以及 1 h 的相干光存储时间^[19,22], 成为了长寿命量子存储的重要候选介质^[21,22]. 在飞秒激光加工技术的推动下, $^{151}\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ 波导的量子存储研究也取得了系列进展^[29-31]. 近期的工作已成功在 $^{151}\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ 晶体中实现了可集成的自旋波量子存储^[39].

* 科技创新 2030—“量子通信与量子计算机”重大项目 (批准号: 2021ZD0301200) 和国家自然科学基金 (批准号: 12222411, 11821404) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zq_zhou@ustc.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: cfli@ustc.edu.cn

相比于飞秒激光加工, 聚焦离子束的加工精度更高, 在稀土掺杂晶体中可以实现纳米量级的加工精度^[33,34]. 聚焦离子束可以在晶体表面刻蚀出三角形的悬梁臂结构 (triangular nanobeam)^[40]. 该悬梁臂由于具有高折射率特性, 能够使光束在其中发生全反射, 从而有效束缚激光沿悬梁臂传播. 此前, Yb^{3+} ^[36], Nd^{3+} ^[41,42] 和 Er^{3+} ^[34,43] 离子已通过聚焦离子束技术加工出微纳结构, 并成功实现可集成的量子存储器和单个离子的探测. 然而, Eu^{3+} 离子的光学跃迁波长相对较短, 使其在聚焦离子束加工方面面临更大的挑战^[35]. 聚焦离子束加工的波导中的 Eu^{3+} 离子的光跃迁和超精细跃迁特性仍缺乏表征, 这阻碍了聚焦离子束技术在基于 Eu^{3+} 离子的可集成量子存储及单离子探测方面的应用^[36,41].

本文利用聚焦离子束技术在 $^{151}\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ 晶体中刻蚀出三角形的悬梁臂波导, 对波导内 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的光学和超精细跃迁特性进行了详细表征, 具体包括基于荧光手段测量的光学上能级布居数寿命、光学与自旋非均匀展宽, 基于瞬态光谱烧孔测量的光学均匀线宽, 以及基于自旋回波序列测量的自旋相干寿命, 以探索聚焦离子束这一工艺路线对于 $^{151}\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ 晶体加工的适用性和可行性.

2 实验设置

2.1 波导加工

图 1(a) 展示了通过聚焦离子束 (Crossbeam 550 FIB-SEM) 刻蚀后的 $^{151}\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ 晶体的电子束成像照片. 该晶体中 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 的掺杂浓度为 0.07%, 尺寸沿晶体 D_1 , D_2 , b 轴方向分别为 $5\text{ mm} \times 1\text{ mm} \times 4\text{ mm}$. $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 的能级结构如图 1(b) 所示. 在晶体的 $5\text{ mm} \times 4\text{ mm}$ 抛光面上刻蚀出悬梁臂波导, 悬梁臂的长度 (沿 b 轴) 为 $20\text{ }\mu\text{m}$, 宽度 (沿 D_1 轴) 为 $2\text{ }\mu\text{m}$. 悬梁臂的输入输出端加工了一对 45° 斜面, 使激光在斜面上全反射耦合进悬梁臂中, 再从另一端斜面出射. 加工过程中离子束电流从 10 pA 到 3 nA 变化, 便于快速地刻蚀出光滑且平整的表面. 在聚焦离子束加工过程中, 样品表面会积累电荷, 导致加工时发生漂移现象^[35]. 为了抑制此现象, 利用电子束蒸镀技术使晶体表面均匀地覆盖一层厚度为 50 nm 的铜金属薄膜, 从而提升晶体表面的导电性能. 在聚焦离子束加工完成后, 通过氧化剂去掉金属镀层以便于光学探测. 为了修复

加工过程中引入的缺陷并提高悬梁臂波导的耦合效率, 对加工样品进行了退火. 退火过程是经过 6 h 升到 $800\text{ }^\circ\text{C}$, 再维持此温度 6 h , 最后经历 6 h 降至室温, 此退火过程重复了两次.

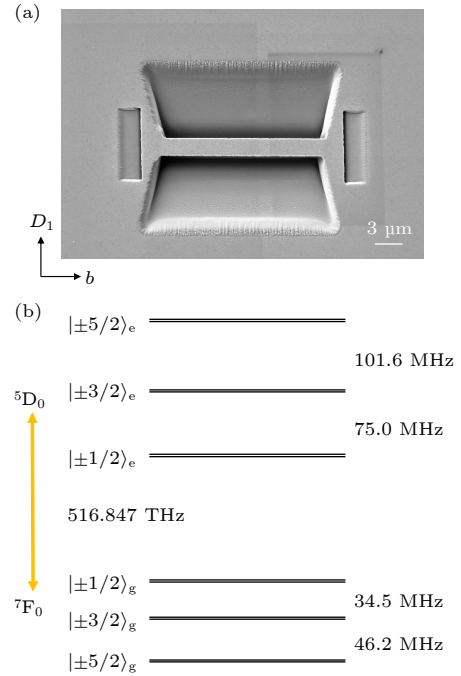


图 1 (a) 浓度为 0.07% 的 $^{151}\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ 晶体经过聚焦离子束加工后的扫描电子显微镜图像, 在晶体 $D_1 \times b$ 面的俯视图中, 三角形悬梁臂波导的宽度沿 D_1 轴为 $2\text{ }\mu\text{m}$, 长度沿 b 轴为 $20\text{ }\mu\text{m}$, 悬梁臂的输入输出端面为 45° 斜面. (b) Y_2SiO_5 晶体中的 site-1 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子在地磁场环境下的基态 ${}^7\text{F}_0$ 和激发态 ${}^5\text{D}_0$ 的超精细能级结构图

Fig. 1. (a) Scanning electron microscope (SEM) image of $^{151}\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ crystal (doping level: 0.07%) fabricated by focused ion beam milling. In the top view of the $D_1 \times b$ plane, the width (D_1 axis) and length (b axis) of the triangular nanobeam structure are $2\text{ }\mu\text{m}$ and $20\text{ }\mu\text{m}$, respectively. Two slopes at 45° relative to the surface of the crystal are milled at both ends of the triangular nanobeam. (b) Energy-level diagram for the ground state ${}^7\text{F}_0$ and the excited state ${}^5\text{D}_0$ of site-1 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ ions in Y_2SiO_5 crystal at the geomagnetic field.

2.2 实验装置

图 2 是测量样品光学与超精细跃迁性质的实验装置图. 本文使用的激光器是倍频半导体激光器 (Toptica, TA-SHG), 通过超稳 F-P 腔锁定后的激光线宽低于 1 kHz . 首先, 双通过的声光调制器对激光的频率和幅度进行调制. 然后, 单通过的声光调制器作为快速光开关进一步提高脉冲的关断比. 单模光纤将光传输到图中右侧的波导耦合

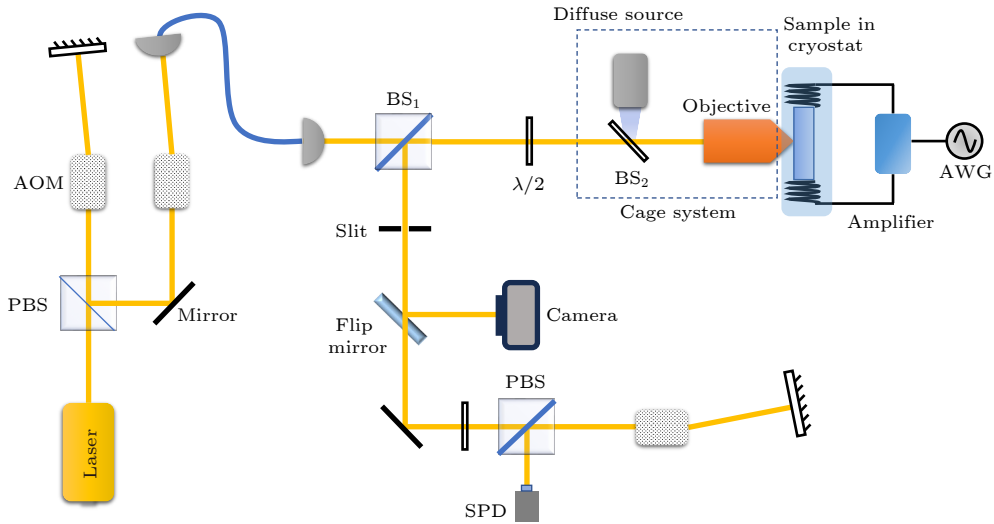


图2 实验装置图. 黄色直线代表 580 nm 激光的路径, 蓝色曲线代表单模光纤, PBS 是偏振分束器, BS 是非偏振分束器, AOM 是声光调制器, AWG 是任意波形发生器, SPD 是单光子探测器, $\lambda/2$ 是半波片. 激光通过调制光路再由单模光纤传输到耦合光路, 虚线方框以内的部分为笼式系统, 其中发散的白光源 (diffuse source) 经过 BS_2 照射到晶体表面. 蓝色阴影区代表低温恒温器, 内部装有待测样品与亥姆霍兹线圈. 样品出射的信号光再一次经过笼式系统, 在 BS_1 另一端通过狭缝 (slit). 可以通过可翻转的反射镜 (flip mirror) 反射光场在相机上观察成像, 也可以通过 AOM 光开关后由 SPD 进行探测

Fig. 2. Experimental setup. The yellow line represents the transmission path for 580-nm laser and the blue curve represents a single-mode fiber. PBS, polarization beam splitter; BS, beam splitter; AOM, acousto-optic modulator; AWG, arbitrary waveform generator; SPD, single photon detector; $\lambda/2$ represents a half-wave plate. The 580-nm laser is modulated by AOMs and collected with a single-mode fiber. The cage system within the dotted box includes a diffuse source which is a white-light source to illuminate the crystal surface through BS_2 . The blue shadowed area indicates a cryostat with the sample and Helmholtz coils inside. The signal light emitted from the sample is transmitted through the cage system again and spatially filtered by a slit at the another side of BS_1 . If the flip mirror is turned on then the sample can be imaged on the camera, otherwise, the signal is detected by a SPD after being gated by a double-passed AOM.

光路, 在分束器 (BS_1) 后通过半波片控制入射光的偏振方向使波导的耦合效率达到最大. 该偏振方向同时对准了晶体的 D_1 轴使得 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 吸收达到最大. 本文搭建了一套共聚焦的笼式系统用于将激光耦合到悬梁臂波导中, 同时收集悬梁臂波导另一端输出的激光. 所使用的物镜是 Mitutoyo 的 LCD Plan Apo NIR HR 50x, 它具有 0.65 的数值孔径和 9.6 mm 的工作距离. 此物镜能够校正 0.7 mm 玻璃厚度的低温腔窗片所产生的像差. BS_1 的反射端是信号输出端. 通过相机观察晶体加工的表面成像以及光斑的位置, 借此辅助完成耦合的粗调过程. 最后的探测装置包括双通过的声光调制器构成的快速光开关, 用于保护单光子探测器. 悬梁臂波导的输入-输出耦合效率为 22%, 波导出射光的单模收集效率为 60%.

晶体样品放置于 3 K 工作温度的低温恒温器中, 搭配上三轴低温位移台便于耦合激光与悬梁臂波导. 除特别声明外, 实验中样品的工作温度都设置在 3 K. 亥姆霍兹线圈安装在晶体两侧 (两侧的

线圈匝数分别为 4 匝), 用于发射射频信号以实现 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的自旋操控. 该射频信号由任意波形发生器产生, 并经过 250 W 的脉冲式射频放大器放大.

3 实验内容与分析

3.1 光学跃迁测试

和典型的激光直写波导 (20 μm 直径, 12 mm 长度) 相比^[31], 悬梁臂波导内的 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子数量下降了约 6 个量级. 这导致悬梁臂波导的 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子吸收光谱难以直接测试, 故本文利用光致激发荧光测量的实验手段^[44]. 如图 3(a) 所示, 利用光学泵浦对布居数进行初始化后, 观察光致激发荧光随时间的衰减曲线, 可以得到光学上能级布居数寿命 T_1 为 (1.9 ± 0.1) ms, 与块状晶体的光学 T_1 一致^[45]. 为了进一步调控上能级布居数寿命, 可以加工高 Q 值的光子晶体腔, 通过 Purcell 效应来提高 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子激发态的自发辐射速率, 从而提高光学泵浦以及自旋极化的效率^[42].

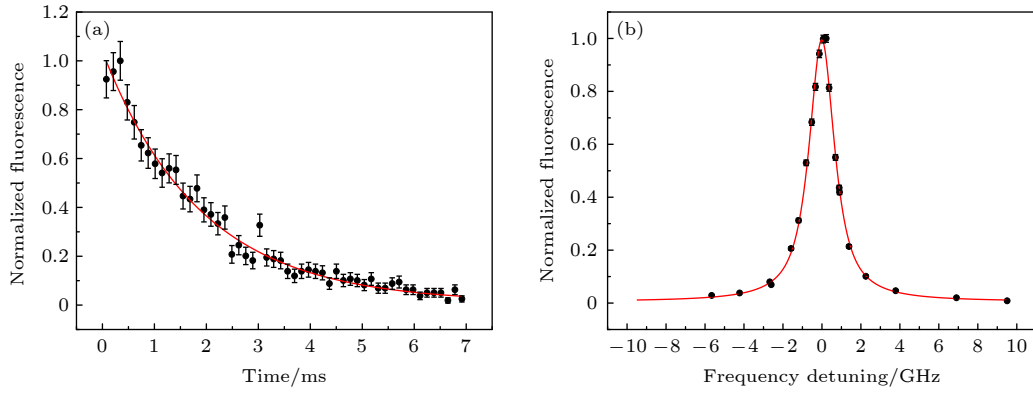


图 3 (a) Y_2SiO_5 悬梁臂波导中 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 的 ${}^7\text{F}_0 \rightarrow {}^5\text{D}_0$ 跃迁荧光寿命图. 黑色圆点为数据点, 红色曲线是拟合的指数衰减曲线, 误差条表示为一个标准差, 本文中误差条均代表同一含义. (b) Y_2SiO_5 悬梁臂波导中 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 的 ${}^7\text{F}_0 \rightarrow {}^5\text{D}_0$ 跃迁荧光激发谱. 黑色圆点为数据点, 红色曲线是由 (1) 式拟合的 pseudo-Voigt 型曲线, 中心频率点代表 516.8478 THz

Fig. 3. (a) Fluorescence decay for the ${}^7\text{F}_0 \rightarrow {}^5\text{D}_0$ transition of $^{151}\text{Eu}^{3+}$ in the Y_2SiO_5 nanobeam. The black dots are the fluorescence data and the red curve is fitted by a single exponential decay. Error bars indicate one standard deviation with the same meaning in whole paper. (b) Fluorescence excitation spectrum for the ${}^7\text{F}_0 \rightarrow {}^5\text{D}_0$ transition of $^{151}\text{Eu}^{3+}$ in the Y_2SiO_5 nanobeam. The black dots are fluorescence data, and the red curve is fitted by pseudo-Voigt function according to Eq.(1). The center frequency is 516.8478 THz.

光学跃迁和超精细跃迁的非均匀展宽反映的是每个离子局域环境的差别, 直接体现了微纳加工过程的破坏性. 从存储器的角度看, 光学非均匀展宽加宽会导致有效吸收降低, 从而导致存储效率下降^[39]. 为此, 本文首先测试了波导内 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的光学非均匀展宽.

为了确保每个测试周期中 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的布居数能恢复到热平衡态, 避免光谱烧孔效应^[45], 测试中样品温度控制在 18 K, 实验的循环周期设置为 200 ms. 激发光脉冲是时间宽度 1 ms 和扫描带宽 3.8 MHz 的啁啾脉冲. 通过改变激发光脉冲的中心频率, 并测量激发脉冲 10 μs 后 2 ms 探测窗口的荧光计数来分析光学跃迁展宽.

实验结果如图 3(b) 黑点所示. $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的光学非均匀展宽线型采用 pseudo-Voigt 函数拟合^[44,46,47]:

$$V(\omega) = V_0 + A[\mu L(\omega) + (1 - \mu)G(\omega)], \quad (1)$$

其中, $L(\omega)$ 和 $G(\omega)$ 分别代表洛伦兹线型和高斯线型, μ 为洛伦兹线型在混合线型中的权重系数, V_0 为本底, A 为曲线面积. 曲线的半高全宽为非均匀展宽. 拟合后的光学非均匀展宽为 (1.58 ± 0.05) GHz, 其中 μ 为 0.93 ± 0.06 , 表明当前的光学非均匀展宽由洛伦兹线型所主导^[46]. 相比于块状晶体的光学非均匀展宽^[44,45], 波导内 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的展宽增大了约 0.26 GHz. 展宽提高的原因可能是晶体在安装过程中受到的应力不均匀导致的加宽^[48], 以及

晶体在 μm 量级的表面品质有所下降. 相比激光直写加工过程^[30], 聚焦离子束技术的实际加工展宽更小, 破坏性更低. 加工过程采用的退火技术可能修复了晶体缺陷, 从而减弱加工过程中光学非均匀展宽的加宽. 这一结果启发我们对于激光直写波导, 也可以采用退火等修复手段进一步降低加工展宽.

$^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的光跃迁及超精细跃迁的相干性都会受到周围磁噪声的干扰. 而聚焦离子束会从结构表面注入镱离子, 这可能对 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的光学和超精细跃迁都引入额外的退相干过程, 因此对 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的相干性测试对于评价这一加工手段的可行性至关重要. 光学均匀线宽^[38,49] 直接反映了光学相干寿命的上限, 体现了光学跃迁的相干性, 并实际制约了光谱烧孔等操作的分辨率^[45,50]. 在加工过程中, 我们采用金属薄膜和极低的离子束电流, 用于减少注入的镱离子数目, 以保护 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的相干性. 本文使用瞬态光谱烧孔^[51,52] 来测量光学均匀线宽. 在样品的非均匀展宽之内, 输入三束频率间隔相等且光强一致的激光. 当三束光的频率间隔大于均匀线宽时, 每束激光会独立激发样品, 它们产生的荧光信号约等于一束光的 3 倍. 当三束光的频率间隔小于均匀线宽时, 荧光信号的总量约为一束光的 $\sqrt{3}$ 倍. 因此荧光信号会随着三束光频率间隔的增大而增大, 变化过程呈洛伦兹线型:

$$L(\Delta) = L_0 + \frac{2A_L}{\pi} \frac{w_L}{4\Delta^2 + w_L^2}, \quad (2)$$

其中 Δ 为频率间隔, L_0 为本底, A_L 为曲线面积, w_L 为曲线的半高全宽. 光学均匀线宽的上限是半高全宽的一半 [49].

为了增强荧光信号, 参考文献 [31] 设计泵浦脉冲来初始化样品布居数. 此过程首先是在 f_0 中心频率处制备一个带宽 9.6 MHz 的烧孔, 然后在 $(f_0 \pm 27.9)$ MHz 的两个中心频率处分别制备带宽 46.2 MHz 的烧孔. 这样即可在中心频率 f_0 处获得带宽 9.6 MHz 的增强吸收带. 每个烧孔脉冲的时间宽度为 1 ms, 且两步初始化过程的时间间隔为 1 ms. 两步初始化过程的脉冲重复次数分别为 120 次和 240 次. 激发光采用三束强度一致的单频脉冲, 时间宽度为 0.15 ms, 频率分别为 $f_0, f_0 \pm \Delta f$. 测量这三束光产生的荧光随 Δf 的变化. 完整的脉冲时序图如图 4(a) 所示. 在单频激发脉冲功率分别为 220, 440 和 660 nW 下, 所测得的荧光变化曲

线如图 4(b)–(d) 所示. 三者拟合出的均匀线宽分别为 (22 ± 3) kHz (图 4(b)), (46 ± 6) kHz (图 4(c)), (71 ± 10) kHz (图 4(d)). 由于图 4(b) 的荧光信号较弱, 故设定实验重复次数为 1500 次, 剩余两组实验的重复次数设定为 1000 次. 可以看到均匀线宽随激光功率增强而变大, 这符合瞬时光谱扩散 (ISD) 效应的预期. 拟合数据得到的瞬时光谱扩散系数 S_{ISD} 为 $(0.96 \pm 0.01) \times 10^{-12}$ Hz·cm³. 该结果与此前块状晶体的实验也在相同的量级上 [45]. 本文采用的激发光功率密度偏大, 导致了较强的瞬时光谱扩散效应, 进一步降低激发功率有望测到显著降低的光学均匀线宽. 然而受制于当前实验的信噪比, 激发光功率已难以进一步降低. 预期未来可以通过提升器件效率以及制造腔结构等手段, 来获取更弱激发功率条件下的光学均匀线宽数据. 保持长寿命的光学相干性是实现傅里叶极限的单光子发

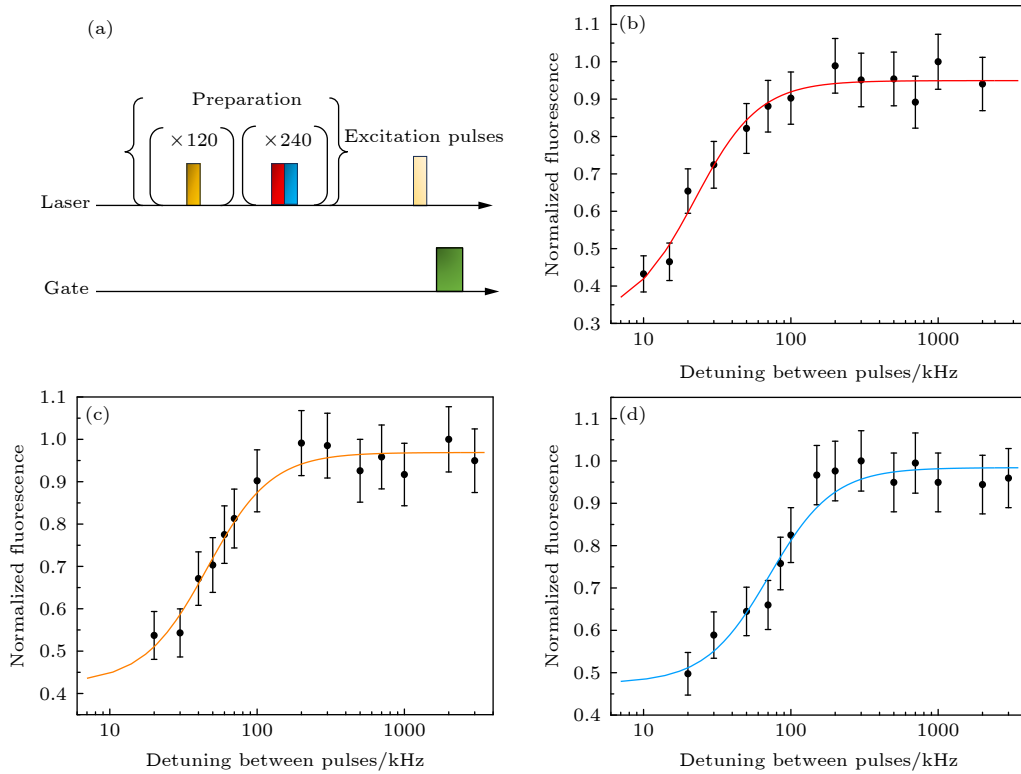


图 4 (a) 测试 Y_2SiO_5 悬梁臂波导中 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 光学均匀线宽的脉冲时序图. 首先是准备阶段, 其目的是为了初始化布居数. 在准备阶段结束 40 ms 后, 同时输入三束功率和频率间隔一致且时间宽度 0.15 ms 的高斯单频激发光. 在 10 μs 后, 光开关打开一个 2 ms 的窗口用于测量荧光信号. (b)–(d) 220 nW (b), 440 nW (c) 和 660 nW (d) 的激发光下, 荧光信号随激发光的频率间隔的变化曲线图. 不同颜色的曲线是拟合的洛伦兹曲线

Fig. 4. (a) Pulse sequence for measuring the optical homogeneous linewidth of $^{151}\text{Eu}^{3+}$ in the Y_2SiO_5 nanobeam. Preparation process initializes the atomic population for each repeat of measurements. 40 ms after the preparation process, we apply the excitation pulses which are three Gaussian pulses with a duration of 0.15 ms with equal frequency spacing. 10 μs after the excitation, the detection gate opens for 2 ms to detect the fluorescence signal. (b)–(d) Fluorescence signal depending on the frequency spacing of excitation pulses, with excitation powers of 220 nW (b), 440 nW (c) and 660 nW (d). Solid lines are fitted in accordance with Lorentzian lineshape.

射的必要条件, 这对于量子网络中独立量子节点间的全同性光子干涉也具有重要意义^[53].

3.2 超精细跃迁测试

为了实现基于 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 自旋波的应用, 接下来进一步表征悬梁臂波导中 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的超精细跃迁特性. $^7\text{F}_0$ 基态的 $|\pm 1/2\rangle_g \leftrightarrow |\pm 3/2\rangle_g$ 超精细跃迁的分析是基于光学探测磁共振 (ODMR) 技术^[44]. 图 5(a) 展示了利用荧光测试自旋相干寿命的脉冲序列. 所施加的射频 (RF) 序列是自旋回波 (spin echo) 序列^[54]. 布居数被初始在 $|\pm 3/2\rangle_g$ 上, 在 $t = 0$ 的时刻, 利用晶体旁的亥姆霍兹线圈产生 $\pi/2$ 射频脉冲使 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子进入 $|\pm 1/2\rangle_g$ 与 $|\pm 3/2\rangle_g$ 的叠加态. 经过一段自由演化时间 τ , 再次施加一

个 π 射频脉冲, 其相位需要与第一个脉冲相差 90° , 使得自旋态演化方向翻转 180° . 经过同样的演化时间 τ 后, $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子系综会重新会聚产生自旋回波. 在此刻施加一个 $\pi/2$ 射频脉冲, 其相位与第一个脉冲一致, 可以将布居数转移到 $|\pm 1/2\rangle_g$ 上以便基于光学荧光手段的探测. 在射频脉冲序列结束后, 施加与 $|\pm 1/2\rangle_g$ 共振的激发光脉冲产生荧光信号. 这一荧光信号会随着演化时间的延长而衰减, 从而获得 $|\pm 1/2\rangle_g$ 与 $|\pm 3/2\rangle_g$ 超精细跃迁的相干寿命.

实验中使用的 π 射频脉冲是通过自旋章动 (spin nutation) 测得的^[55], 如图 5(b) 所示. π 脉冲的宽度为 $65\ \mu\text{s}$, 而 $\pi/2$ 脉冲的脉宽为 π 脉冲的一半. 从图 5(b) 可以得到 Rabi 频率为 $\Omega_R/2\pi = (7.6 \pm 0.2)\ \text{kHz}$, 振荡的衰减常数为 $\tau_R = (120 \pm 10)\ \mu\text{s}$.

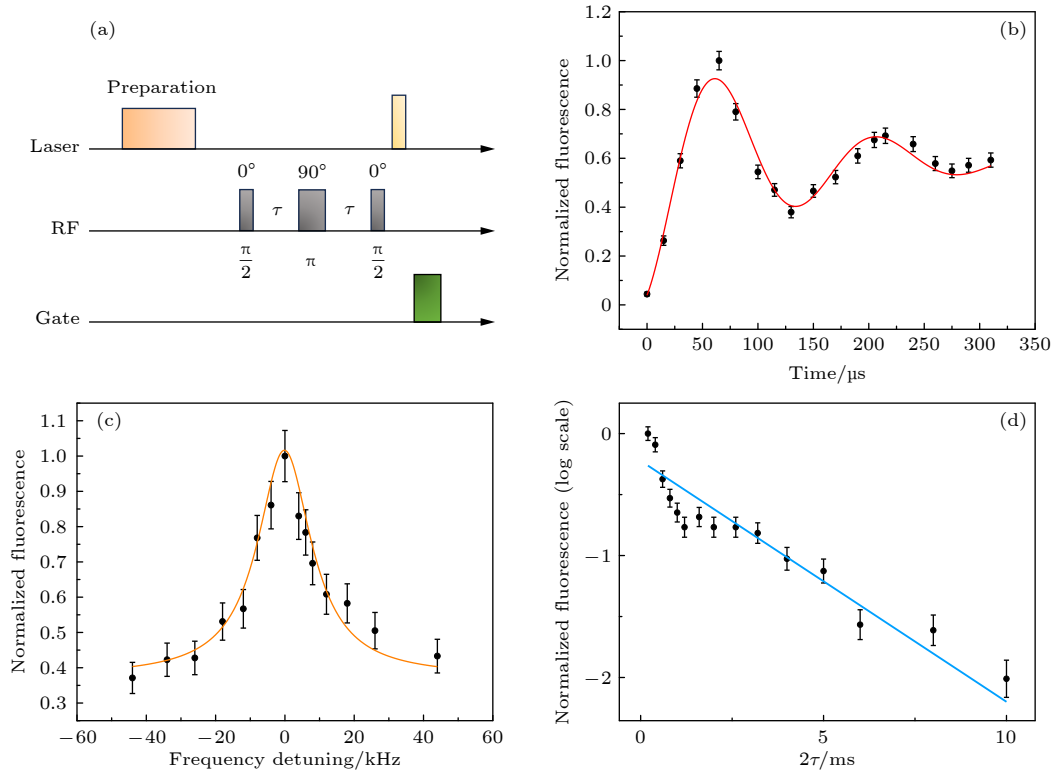


图 5 (a) 测试 Y_2SiO_5 悬梁臂波导中 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的自旋相干寿命的序列图. 在准备阶段后, 通过线圈施加 $\pi/2 - \pi - \pi/2$ 的自旋回波 (spin echo) 脉冲序列, 每个射频脉冲的时间间隔 τ 相等, 射频脉冲的相位依次为 $0^\circ - 90^\circ - 0^\circ$. 射频脉冲结束后, 施加一个啁啾带宽 $3\ \text{MHz}$ 和时间宽度 $500\ \mu\text{s}$ 的啁啾型光脉冲, 并随后探测 $2\ \text{ms}$ 的荧光信号; (b) Y_2SiO_5 悬梁臂波导中 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子 $|\pm 1/2\rangle_g \leftrightarrow |\pm 3/2\rangle_g$ 的 spin nutation 测试. 红色曲线是拟合的阻尼正弦函数曲线; (c) Y_2SiO_5 悬梁臂波导中 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子 $|\pm 1/2\rangle_g \leftrightarrow |\pm 3/2\rangle_g$ 的超精细跃迁谱, 橙色曲线是拟合的 pseudo-Voigt 型曲线; (d) 荧光信号随自旋回波序列的总时间的变化图

Fig. 5. (a) Pulse sequence for measuring spin coherence lifetime of $^{151}\text{Eu}^{3+}$ in the Y_2SiO_5 nanobeam. The spin-echo sequence (RF pulses $\pi/2 - \pi - \pi/2$) are applied by the Helmholtz coils after the preparation process. The phases of the RF pulses are $0^\circ - 90^\circ - 0^\circ$. After the RF pulses, the sample is excited by a chirp pulse with a duration of $500\ \mu\text{s}$ and a bandwidth of $3\ \text{MHz}$, and then fluorescence signal is detected with a 2-ms window. (b) Spin nutation measurement on the $|\pm 1/2\rangle_g \leftrightarrow |\pm 3/2\rangle_g$ transition of $^{151}\text{Eu}^{3+}$ in the Y_2SiO_5 nanobeam. The red curve is fitted by damped sine lineshape. (c) Fluorescence-detected spectrum for $|\pm 1/2\rangle_g \leftrightarrow |\pm 3/2\rangle_g$ transition. The orange curve is fitted by pseudo-Voigt lineshape. (d) Fluorescence signal as a function of the total time of the spin-echo sequence.

因为自发辐射和退相干过程, Rabi 振荡会随时间衰减. 根据公式 $1/\tau_R = 3/(4T_1^{\text{spin}}) + 1/(2T_2^{\text{spin}})$ [56], 其中 T_1^{spin} 为自旋布居数寿命, T_2^{spin} 为超精细跃迁的纯退相干时间 (pure dephasing time). Eu^{3+} 离子的自旋布居数寿命长达 23 天, 计算时可忽略 [45], 推算出超精细跃迁的纯退相干时间为 $(60 \pm 5) \mu\text{s}$, 对应的自旋非均匀展宽为 $(17 \pm 1) \text{kHz}$.

自旋非均匀展宽会导致每个离子的零一阶塞曼 (ZEFOZ) 磁场点有细微差别, 直接限制系综自旋相干寿命的上限 [57]. 另外, 超精细跃迁的非均匀展宽加宽会导致动力学解耦所需求的 π 脉冲的保真度降低. 综合而言, 跃迁展宽会导致存储器存储寿命和存储效率的下降. 进一步利用 ODMR 直接测量自旋跃迁的非均匀展宽, 即通过扫描射频脉冲频率测量光脉冲激发的荧光强度来获得跃迁谱, 具体测量序列与前期工作 [44] 一致. 如图 5(c) 所示, 得到 $|\pm 1/2\rangle_g \leftrightarrow |\pm 3/2\rangle_g$ 超精细跃迁的自旋非均匀展宽为 $(19 \pm 3) \text{kHz}$. 此结果相较于同浓度的块状晶体增加了 3.6 kHz [44], 并且提高的比例与光学非均匀展宽相近. 这一对比说明导致自旋非均匀展宽增加的机制与光学非均匀展宽增加的机制应类似, 且退火技术可能同样修复了加工过程中超精细跃迁的非均匀展宽.

保持长的自旋相干寿命, 是实现长寿命量子存储的必要条件, 对于实用化量子中继及可移动量子存储器的实现具有重要意义 [19]. 图 5(d) 展示悬梁臂波导中 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的 $|\pm 1/2\rangle_g \leftrightarrow |\pm 3/2\rangle_g$ 跃迁的退相干过程. 在短时间内, 实验数据出现振荡过程, 这是由于地磁场引起的超精细能级的微小劈裂导致的调制效果 [58,59]. 按照单指数 $\exp(-2\tau/T_2)$ 拟合实验数据 [58,59], 得到的自旋相干寿命 T_2 为 $(5.1 \pm 0.6) \text{ms}$. 这一结果也与我们在相同条件下的块状晶体中测得的自旋相干寿命一致, 表明聚焦离子束刻蚀对于 $^{151}\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ 在地磁场下的自旋相干寿命没有可观测的影响. 本工作为在纳米尺度实现 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的长寿命自旋波量子存储奠定了基础.

4 结 论

本文首次利用聚焦离子束刻蚀工艺在 $^{151}\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ 晶体的表面刻出三角形悬梁臂波导, 研究了悬梁臂波导中的 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的光学和超精细跃迁特性. 表征了悬梁臂波导中 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的光学

上能级布居数寿命、光学与自旋非均匀展宽等性质, 并测试了光学均匀线宽与自旋相干寿命. 这些结果均与块状晶体中的对应参数基本保持一致, 表明聚焦离子束刻蚀对 $^{151}\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ 晶体的损伤程度很低, 展现该材料在利用聚焦离子束技术实现集成化量子存储器方面的应用潜力. 本文基于聚焦离子束刻蚀的悬梁臂波导的截面宽度为 $2 \mu\text{m}$, 相比在 $^{151}\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ 晶体上加工的激光直写波导 [31], 当前波导截面宽度下降了一个量级, 而 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的光学及自旋非均匀展宽的增加并不显著, 对晶体的损伤程度更低, 这对于 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子在超长寿命量子存储中的应用具有重要意义 [44,57], 体现了聚焦离子束刻蚀相比飞秒激光刻蚀的潜在优势. 聚焦离子束加工的波导具有更小的尺寸, 相比于激光直写波导, 可以进一步提高单一器件上的量子存储通道的数量, 利用非球透镜阵列可以实现对量子存储器的阵列耦合.

后续工作可以在悬梁臂波导上进一步刻蚀周期性矩形凹槽, 实现光子晶体腔的加工 [33-35,40]. 此加工过程的主要挑战在于凹槽的周期控制精度需达到 1nm 量级, 并保持凹槽的侧面垂直于波导上表面 [35], 这些加工误差将直接影响光子晶体腔的 Q 值. 相比本文中的波导加工, 尽管凹槽结构的引入增大了刻蚀面积, 但由于刻蚀过程中采用更低电流的离子束, 预计镱离子的注入量将保持在较低水平, 预期 Y_2SiO_5 晶体内部的磁环境噪声不会发生显著变化. 高 Q 值的光子晶体腔可以有效增强 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子与光场的相互作用, 基于 Purcell 效应降低 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的光学上能级布居数寿命, 从而提升其发光速率. 由于光学跃迁相干寿命受限于光学跃迁布居数寿命, 故腔内 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的光学相干寿命会相应地缩减, 而腔内 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的自旋相干寿命则不受影响. 最终, 有望实现基于单个 $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 离子的量子光源以及长寿命量子存储.

参考文献

- [1] Lukin M D 2003 *Rev. Mod. Phys.* **75** 457
- [2] Zhou Z, Liu C, Li C, Guo G, Oblak D, Lei M, Faraon A, Mazzera M, De Riedmatten H 2023 *Laser Photonics Rev.* **17** 2300257
- [3] Lei Y, Kimiaee Asadi F, Zhong T, Kuzmich A, Simon C, Hosseini M 2023 *Optica* **10** 1511
- [4] Briegel H J, Dür W, Cirac J I, Zoller P 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 5932
- [5] Sangouard N, Simon C, de Riedmatten H, Gisin N 2011 *Rev.*

Mod. Phys. **83** 33

- [6] Cirac J I, Zoller P, Kimble H J, Mabuchi H 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 3221
- [7] Kimble H J 2008 *Nature* **453** 1023
- [8] Lvovsky A I, Sanders B C, Tittel W 2009 *Nat. Photonics* **3** 706
- [9] Hong C K, Mandel L 1986 *Phys. Rev. Lett.* **56** 58
- [10] Nunn J, Reim K, Lee K C, Lorenz V O, Sussman B J, Walmsley I A, Jaksch D 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 260502
- [11] Davidson O, Yogev O, Poem E, Firstenberg O 2023 *Phys. Rev. Lett.* **131** 033601
- [12] Imamoglu A 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 163602
- [13] Clausen C, Sangouard N, Drewsen M 2013 *New J. Phys.* **15** 025021
- [14] Liu X, Hu X M, Zhu T X, Zhang C, Xiao Y X, Miao J L, Ou Z W, Li P Y, Liu B H, Zhou Z Q, Li C F, Guo G C 2024 *Nat. Commun.* **15** 8529
- [15] Thiel C, Böttger T, Cone R 2011 *J. Lumin.* **131** 353
- [16] De Riedmatten H, Afzelius M, Staudt M U, Simon C, Gisin N 2008 *Nature* **456** 773
- [17] Longdell J J, Alexander A L, Sellars M J 2006 *Phys. Rev. B* **74** 195101
- [18] Fraval E, Sellars M J, Longdell J J 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 077601
- [19] Zhong M, Hedges M P, Ahlefeldt R L, Bartholomew J G, Beavan S E, Wittig S M, Longdell J J, Sellars M J 2015 *Nature* **517** 177
- [20] Rančić M, Hedges M P, Ahlefeldt R L, Sellars M J 2018 *Nature Phys.* **14** 50
- [21] Ortu A, Holzäpfel A, Etesse J, Afzelius M 2022 *npj Quantum Inf.* **8** 29
- [22] Ma Y, Ma Y Z, Zhou Z Q, Li C F, Guo G C 2021 *Nat. Commun.* **12** 2381
- [23] Saglamyurek E, Sinclair N, Jin J, Slater J A, Oblak D, Bussi eres F, George M, Ricken R, Sohler W, Tittel W 2011 *Nature* **469** 512
- [24] Usmani I, Afzelius M, De Riedmatten H, Gisin N 2010 *Nat. Commun.* **1** 12
- [25] Businger M, Nicolas L, Mejia T S, Ferrier A, Goldner P, Afzelius M 2022 *Nat. Commun.* **13** 6438
- [26] Yang T S, Zhou Z Q, Hua Y L, Liu X, Li Z F, Li P Y, Ma Y, Liu C, Liang P J, Li X, Xiao Y X, Hu J, Li C F, Guo G C 2018 *Nat. Commun.* **9** 3407
- [27] Seri A, Lago-Rivera D, Lenhard A, Corrielli G, Osellame R, Mazzera M, de Riedmatten H 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 080502
- [28] Chen F, De Aldana J R V 2014 *Laser Photonics Rev.* **8** 251
- [29] Liu C, Zhu T X, Su M X, Ma Y Z, Zhou Z Q, Li C F, Guo G C 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 260504
- [30] Zhu T X, Liu C, Zheng L, Zhou Z Q, Li C F, Guo G C 2020 *Phys. Rev. Appl.* **14** 054071
- [31] Zhu T X, Liu C, Jin M, Su M X, Liu Y P, Li W J, Ye Y, Zhou Z Q, Li C F, Guo G C 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 180501
- [32] Liu D C, Li P Y, Zhu T X, Zheng L, Huang J Y, Zhou Z Q, Li C F, Guo G C 2022 *Phys. Rev. Lett.* **129** 210501
- [33] Zhong T, Kindem J M, Miyazono E, Faraon A 2015 *Nat. Commun.* **6** 8206
- [34] Miyazono E, Zhong T, Craiciu I, Kindem J M, Faraon A 2016 *Appl. Phys. Lett.* **108** 011111
- [35] Zhong T, Rochman J, Kindem J M, Miyazono E, Faraon A 2016 *Opt. Express* **24** 536
- [36] Kindem J M, Ruskuc A, Bartholomew J G, Rochman J, Huan Y Q, Faraon A 2020 *Nature* **580** 201
- [37] Dibos A M, Raha M, Phenicie C M, Thompson J D 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 243601
- [38] Weiss L, Gritsch A, Merkel B, Reiserer A 2021 *Optica* **8** 40
- [39] Zhu T X, Su M X, Liu C, Liu Y P, Wang C F, Liu P X, Han Y J, Zhou Z Q, Li C F, Guo G C 2024 *National Sci. Rev.* **161**
- [40] Bayn I, Meyler B, Salzman J, Kalish R 2011 *New J. Phys.* **13** 025018
- [41] Zhong T, Kindem J M, Bartholomew J G, Rochman J, Craiciu I, Verma V, Nam S W, Marsili F, Shaw M D, Beyer A D, Faraon A 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 183603
- [42] Zhong T, Kindem J M, Bartholomew J G, Rochman J, Craiciu I, Miyazono E, Bettinelli M, Cavalli E, Verma V, Nam S W, Marsili F, Shaw M D, Beyer A D, Faraon A 2017 *Science* **357** 1392
- [43] Craiciu I, Lei M, Rochman J, Kindem J M, Bartholomew J G, Miyazono E, Zhong T, Sinclair N, Faraon A 2019 *Phys. Rev. Appl.* **12** 024062
- [44] Liang P J, Zhu T X, Xiao Y X, Wang Y Y, Han Y J, Zhou Z Q, Li C F 2024 *Acta Phys. Sin.* **73** 100301 (in Chinese) [梁澎军, 朱天翔, 肖懿鑫, 王奕洋, 韩永建, 周宗权, 李传锋 2024 物理学报 **73** 100301]
- [45] K nz F, Sun Y, Thiel C W, Cone R L, Equall R W, Hutcheson R L, Macfarlane R M 2003 *Phys. Rev. B* **68** 085109
- [46] Stoneham A M 1969 *Rev. Mod. Phys.* **41** 82
- [47] Lafitte-Houssat E, Ferrier A, Welinski S, Morvan L, Afzelius M, Berger P, Goldner P 2022 *Opt. Mater.: X* **14** 100153
- [48] Louchet-Chauvet A, Ahlefeldt R, Chaneli re T 2019 *Rev. Sci. Instrum.* **90** 034901
- [49] Gritsch A, Weiss L, Fr h J, Rinner S, Reiserer A 2022 *Phys. Rev. X* **12** 041009
- [50] Bartholomew J G, de Oliveira Lima K, Ferrier A, Goldner P 2017 *Nano Lett.* **17** 778
- [51] Szabo A 1975 *Phys. Rev. B* **11** 4512
- [52] V lker S 1989 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **40** 499
- [53] Reiserer A 2022 *Rev. Mod. Phys.* **94** 041003
- [54] Meiboom S, Gill D 1958 *Rev. Sci. Instrum.* **29** 688
- [55] Arcangeli A, Lovri  M, Tumino B, Ferrier A, Goldner P 2014 *Phys. Rev. B* **89** 184305
- [56] Robledo L, Bernien H, van Weperen I, Hanson R 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 177403
- [57] Ma Y Z, L  Y C, Yang T S, Ma Y, Zhou Z Q, Li C F, Guo G C 2023 *Phys. Rev. B* **107** 014310
- [58] Alexander A L, Longdell J J, Sellars M J 2007 *J. Opt. Soc. Am. B: Opt. Phys.* **24** 2479
- [59] Hahn E L 1950 *Phys. Rev.* **80** 580

Optical and hyperfine spectroscopic investigations on europium ions doped in yttrium orthosilicate waveguides fabricated by focused ion beam milling*

Xiao Yi-Xin¹⁾²⁾ Zhu Tian-Xiang¹⁾²⁾ Liang Peng-Jun¹⁾²⁾ Wang Yi-Yang¹⁾²⁾
Zhou Zong-Quan^{1)2)3)†} Li Chuan-Feng^{1)2)3)‡}

1) (CAS Key Laboratory of Quantum Information, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

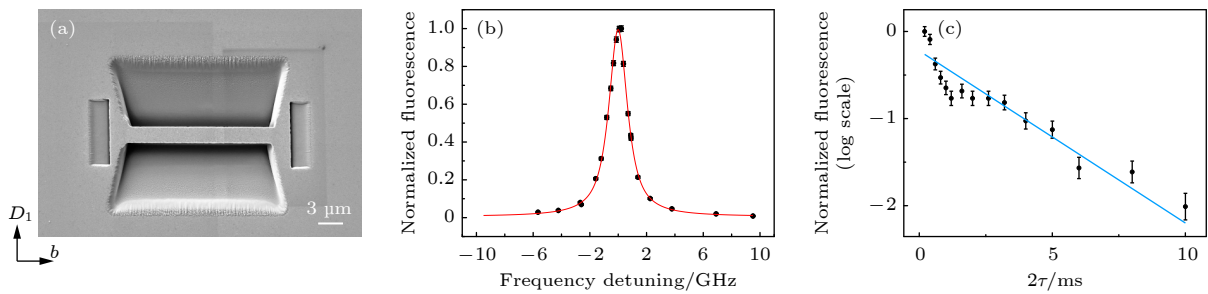
2) (Anhui Province Key Laboratory of Quantum Network, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

3) (Hefei National Laboratory, Hefei 230088, China)

(Received 1 August 2024; revised manuscript received 16 September 2024)

Abstract

Quantum memory is a crucial element in large-scale quantum networks. Integrated quantum memories based on micro-/nano structures, such as waveguides, can significantly enhance the scalability and reduce the consumption of optical and electrical power. $^{151}\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ stands out as an exceptional candidate material for quantum memory, because it possesses a spin coherence lifetime of 6 h and an optical storage lifetime of 1 h. Here we employ focused ion beam technology to fabricate a triangular nanobeam on the surface of a Y_2SiO_5 crystal. The width and length of the nanobeam are 2 μm and 20 μm , respectively. The optical lifetime and inhomogeneous broadening of $^{151}\text{Eu}^{3+}$ in the triangular nanobeam are measured by fluorescence spectroscopy. The optical lifetime is (1.9 ± 0.1) ms and the optical inhomogeneous broadening is (1.58 ± 0.05) GHz at a doping level of 0.07% for $^{151}\text{Eu}^{3+}$. The hyperfine transition spectra are measured by using optically detected magnetic resonance and spin inhomogeneous broadening of (19 ± 3) kHz is obtained. Furthermore, we analyze the coherence properties of optical and hyperfine transitions, respectively, via transient spectral hole burning and spin echo measurement. We obtain an optical homogeneous linewidth down to (22 ± 3) kHz, which is still limited by the instantaneous spectral diffusion. The spin coherence lifetime under the geomagnetic field is (5.1 ± 0.6) ms. The results demonstrate that $^{151}\text{Eu}^{3+}$ ions embedded within the 2 μm triangular nanobeam essentially retain the same optical and hyperfine transition properties as those observed in bulk crystals. Consequently, this research lays a foundation for studying the integrated quantum memories based on $^{151}\text{Eu}^{3+}$ ensembles and the detection of the single $^{151}\text{Eu}^{3+}$ ion based on the focused ion beam technique.



Keywords: rare-earth-doped crystal, quantum memory, focused ion beam, quantum information

PACS: 03.67.-a, 42.50.Ex, 42.50.Ct, 76.30.Kg

DOI: 10.7498/aps.73.20241070

CSTR: 32037.14.aps.73.20241070

* Project supported by the Innovation Program for Quantum Science and Technology (Grant No. 2021ZD0301200) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 1222411, 11821404).

† Corresponding author. E-mail: zq_zhou@ustc.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: cfl@ustc.edu.cn



聚焦离子束加工的硅酸钇波导中铕离子的光学与超精细跃迁

肖懿鑫 朱天翔 梁澎军 王奕洋 周宗权 李传锋

Optical and hyperfine spectroscopic investigations on europium ions doped in yttrium orthosilicate waveguides fabricated by focused ion beam milling

Xiao Yi-Xin Zhu Tian-Xiang Liang Peng-Jun Wang Yi-Yang Zhou Zong-Quan Li Chuan-Feng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 220303 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20241070

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20241070>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

浓度依赖的掺铕硅酸钇晶体的光学和自旋非均匀展宽

Concentration-dependent optical and spin inhomogeneous linewidth of europium-doped yttrium orthosilicate crystals

物理学报. 2024, 73(10): 100301 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240116>

微纳尺度稀土掺杂晶体的量子相干性能及其应用研究进展

Research progress of quantum coherence performance and applications of micro/nano scale rare-earth doped crystals

物理学报. 2023, 72(12): 120302 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222166>

基于掺铒晶体的光量子存储和调控

Quantum memory and manipulation based on erbium doped crystals

物理学报. 2022, 71(6): 064203 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211803>

量子存储性能及应用分析

Performance and application analysis of quantum memory

物理学报. 2023, 72(20): 206701 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20231203>

基于 $\text{EuCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 晶体的光存储

Atomic frequency comb optical memory in $\text{EuCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ crystal

物理学报. 2021, 70(16): 160302 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210648>

基于光子晶体微腔的回波光量子存储

Optical echo memory based on photonic crystal cavities

物理学报. 2022, 71(11): 114201 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220083>