

综述

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*郭牧城¹⁾²⁾ 汪福东¹⁾²⁾³⁾ 胡肇高¹⁾²⁾ 任苗苗¹⁾²⁾
孙伟业¹⁾²⁾ 肖婉婷¹⁾²⁾ 刘书萍^{1)2)3)†} 钟满金^{1)2)3)‡}

1) (南方科技大学深圳量子科学与工程研究院, 深圳 518055)

2) (深圳国际量子研究院, 深圳 518048)

3) (南方科技大学, 广东省量子科学与工程重点实验室, 深圳 518055)

(2022 年 11 月 11 日收到; 2023 年 3 月 25 日收到修改稿)

稀土离子掺杂晶体具有稳定的固态物性和出色的能级跃迁相干特性, 在量子信息应用研究, 尤其是发展量子存储设备方面独具潜力. 除了宏观的块状稀土离子单晶, 微纳尺度稀土离子晶体在高度集成的杂化量子系统和微型化量子设备方面也具有广泛的应用前景, 且其制备难度较低, 在体积、形状和组分调控上更具灵活性. 因此, 开发高性能的微纳尺度稀土离子晶体系统, 并对其量子态进行精密探测与操控, 已成为量子信息领域的重要研究方向之一. 本文结合稀土离子晶体的高分辨和相干光谱学表征技术, 综述了近年来微纳尺度稀土离子晶体在材料制备加工、量子相干性能测量、物理机理探索以及量子器件开发等方面的研究进展, 对其在量子存储、量子频率转换、量子单光子源以及量子逻辑门等方面取得的最新研究进展进行了总结. 最后, 对微纳尺度稀土晶体材料及其信息器件研究过程中可能的改进方向和策略进行了讨论.

关键词: 量子信息, 量子器件, 稀土离子, 量子调控**PACS:** 03.67.-a, 42.50.Ct, 32.80.Qk, 81.07.-b**DOI:** 10.7498/aps.72.20222166

1 引言

基于量子力学基本原理建立起来的量子信息科学为人们提供了一种全新的信息获取、处理和传输的方式, 有望在全球性安全保密通信、大规模数据运算以及超高灵敏度精密测量与传感等领域带来颠覆性科技成果, 因此已成为当今国际世界普遍重视和高度竞争的高地^[1-5]. 然而, 量子信息技术的真正实用化需要大量高性能量子软硬件设备的

支持, 如量子单光子源^[6]、量子存储器^[7-10]、量子寄存器^[11,12]、量子频率转换器^[13]和量子传感器^[14]等, 而这受限于各种先进新材料、新技术的物理实现, 如图 1 所示.

稀土离子掺杂固态晶体作为光学功能材料的一个重要分支, 近年来被认为是最具实用化潜力的发展光量子硬件设备的材料体系之一^[15,16]. 原因如下: 首先, 固态稀土离子系统的结构和物化性质稳定, 易于实现器件的加工与集成; 其次, 体系中的稀土离子能级丰富, 是天然的量子比特 (qunatum

* 国家自然科学基金 (批准号: 11904159, 12004168)、广东省基础与应用基础研究基金 (批准号: 2021A1515110191)、广东省“珠江人才计划”引进创新创业团队 (批准号: 2019ZT08X324) 和广东省量子科学与工程重点实验室 (批准号: 2019B121203002) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: liusp@sustech.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: Zhongmj@sustech.edu.cn

bit, qubit) 载体, 且具有独特的电子构型, 即其不饱和 4f 电子壳层上的电子被 5s, 5p 等外层电子屏蔽, 因此 4f-4f 能级间的相互作用受外界环境影响较小, 在低温下具有较窄的均匀线宽 Γ_h , 即较长的相干时间 T_2 ($T_2 = 1/(\pi\Gamma_h)$)^[17–20], 有利于实现长寿命光子量子存储^[21–23]. 此外, 稀土离子种类繁多, 可以实现可见至近红外, 乃至包含 1.5 μm 通信波长的工作范围^[24,25], 能够与当前的光电探测器件和光纤通信设施相兼容, 极大地节约量子通信的技术装备和建设成本. 同时, 通过调控不同光学和核自旋能级间的相互作用也可以实现光波-微波的高效率转换^[26–28], 这使稀土离子系统在连接不同工作频率的量子物理系统方面具有独特优势, 因此在构

建量子通信和量子计算网络等方面具有巨大的应用潜力. 在最近的研究中, 科学家们又阐述了读出单个稀土离子、执行高保真度稀土量子门操作以及高密度集成与互联稀土量子比特的技术方案^[29,30], 展示了利用稀土离子系统开发用于量子网络的量子单光子源、可扩展量子计算机以及多功能片上量子系统的巨大优势, 因此基于单个稀土离子的量子比特高密度集成和光学操控研究也受到了广大同行的密切关注和竞相研究^[31–34].

然而, 较长的 4f-4f 光学和核自旋相干时间意味着单个稀土离子与光子的相互作用极其微弱. 对于量子存储器, 可以通过操控稀土离子系统的方式来规避这一问题. 近年来国际上已经有一系列成功

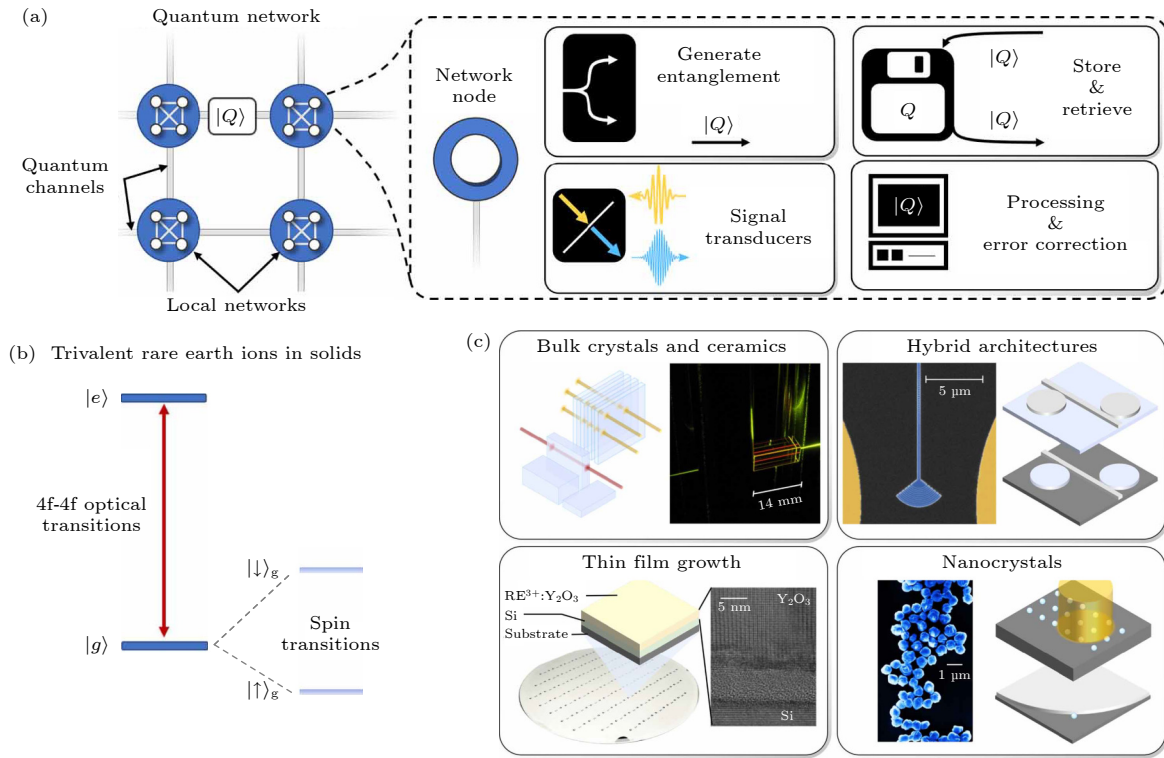


图 1 量子网络技术与固态稀土量子系统研究平台^[59] (a) 要实现鲁棒性和可扩展的量子网络, 每个小规模局域网络中的量子网络节点均需要装备一整套的高性能量子软硬件设备, 包括用于产生纠缠的量子单光子源、用于网络同步的量子存储器和中继站、用于连接不同量子物理系统 (如光波和微波) 的量子转换器 (适配器), 以及用于处理量子信息和执行纠错操作的量子计算机等; (b) 固态稀土离子系统具有丰富且高度相干的 4f-4f 光学跃迁和自旋跃迁, 是发展上述量子网络中各种关键量子硬件设备的主要物理系统之一; (c) 稀土离子掺杂晶体发展的多条路径, 将目前固态稀土量子系统的研究工作转化为大规模复杂量子网络中可操控部署的技术, 依赖于对材料局限性更深入的理解以及微纳尺度稀土晶体材料制备和合成等方面新的突破

Fig. 1. Enabling technologies for quantum networks and rare earth doped crystal platforms^[59]: (a) To realize robust and scalable quantum networks, each network node in small-scale local networks will need to incorporate a suite of quantum technologies. Essential devices include sources of entanglement, quantum memories for network synchronization and repeater stations, converters and transducers to act as adapters for quantum technologies operating in different physical regimes (e.g. microwave and optical), and quantum computers to process information and perform error correction operations. (b) Rare-earth ion crystals possess abundant and highly coherent 4f-4f optical transitions and spin transitions, thus are among the leading material systems to realize the varied devices that are critical to quantum network operation. (c) Multiple avenues for rare earth doped crystal development. Translating current work into deployable technologies in large, complex networks will be accelerated by a deeper understanding of material limitations and new breakthroughs in nanoscale rare earth based material synthesis and fabrication.

的基于稀土离子系综的量子存储实验演示,如长时间相干光存储^[35,36]、纠缠态光子存储^[37–47]、高效率光子存储^[48–51]、量子隐形传态^[52]、多模量子存储与处理^[53]以及高保真量子态层析成像^[54]等.但是,在量子器件的进一步优化与功能拓展研究,尤其是可扩展量子单光子源和量子计算机研究中,必须实现对单个稀土离子的高效率探测和操控,而极弱的光-单稀土离子相互作用给该实验研究带来了极大挑战.此外,即使是 10^{-9} 级的稀土离子掺杂浓度,稀土离子在单晶中的数密度仍可高达 10^{11} 个/ cm^3 ,这进一步加剧了对单个稀土离子进行精确定位和光学寻址的难度^[55].另一方面,稀土离子较长的能级寿命 T_1 和较低的跃迁分支比 ζ ,也导致了较低的单光子发射率^[17],而稀土离子晶体的宏观尺寸又增加了其与光学微腔等结构进行耦合与光学互联的技术难度,制约了高集成度可扩展杂化量子系统(hybrid quantum system)的研究与发展.为了克服以上问题,除了采用高质量稀土离子单晶进行实验外,微纳尺度稀土离子掺杂晶体结构,如纳米粉体、纳米薄膜、稀土离子晶体微腔等,近年来也吸引了国际量子信息学界的高度关注^[56–59].

目前,微纳尺度稀土离子掺杂晶体在材料制备、相干性能调控和应用探索研究上已取得许多突破性的进展,如图1(b)和图1(c)所示.本文将结合本课题组在该方向的实验研究,回顾稀土离子掺杂晶体在量子信息领域中被关注的基本性质和表征技术,重点介绍微纳尺度稀土离子掺杂晶体新平台在材料设计制备、量子相干性能测量及其物理机制探索以及量子器件开发等方面的研究进展,并对其在量子存储、量子频率转换、量子单光子源以及构建量子逻辑门等量子信息应用领域取得的最新进展进行总结和讨论.

2 稀土离子相干性能表征

在量子信息领域,非均匀线宽 Γ_{inh} 和均匀线宽 Γ_{h} 是衡量稀土离子晶体量子相干性能的关键基础指标^[19].非均匀线宽能够影响量子存储器的存储容量和量子处理器的构筑过程,而均匀线宽与相干时间 T_2 密切相关,直接决定了体系的量子特性能维持的时间及各种量子操作被允许的最长时间.下面从稀土掺杂晶体的非均匀线宽和均匀线宽性质出发,对其量子态和相干性能的基础操控和表征手

段进行简要介绍.

2.1 非均匀线宽与均匀线宽

在理想的稀土离子掺杂晶体中,相同格位处的所有稀土离子是全同的,即每个稀土离子能级跃迁的谐振频率和宽度是完全一样的.但在实际晶体中,内应力和缺陷等会引起晶体中的局域环境出现涨落,导致不同空间位置处稀土离子的能级跃迁频率存在一定的失谐,最终表现为晶体的吸收光谱等有不同程度的展宽,即非均匀线宽 Γ_{inh} ^[60,61],如图2所示.非均匀线宽是一种静态的频率展宽,主要受宿主材料的生长制备条件和稀土离子的掺杂浓度等因素影响.在稀土掺杂固态系统中,光学跃迁的非均匀线宽一般在0.5—100 GHz的范围,而超精细能级跃迁的非均匀线宽一般在1—100 MHz的范围内.

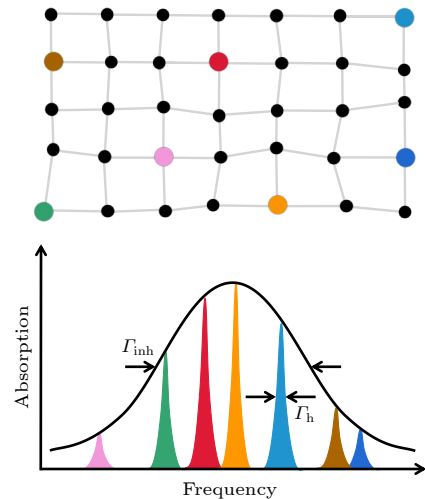


图2 稀土离子掺杂晶体的非均匀线宽(Γ_{inh})和均匀线宽(Γ_{h})示意图.晶格中的单个稀土离子只对非常窄的频率范围内的光有共振吸收(Γ_{h}),但由于局域环境的不同,不同位置处稀土离子吸收的频率略有不同,整体表现为展宽更大的非均匀线宽(Γ_{inh})

Fig. 2. Inhomogeneous broadening (Γ_{inh}) and homogeneous broadening (Γ_{h}) of rare earth doped crystals. Single rare earth ion in the lattice has a sharp absorption peak (Γ_{h}). Due to the different local environment, rare earth ions at different locations have different absorption frequency. The inhomogeneous absorption profile of an ensemble of ions is the sum of the homogeneous profile of the different individual ions (Γ_{inh}).

区别于非均匀线宽,均匀线宽是单个离子跃迁频率的光谱展宽,是稀土离子在被激发的瞬时过程中受到随时间发生动态变化的局域环境涨落产生的展宽.低温下, Γ_{h} 一般由以下多个因素决定^[62,63]:

$$\Gamma_h = \Gamma_{\text{pop}} + \Gamma_{\text{ion-ion}} + \Gamma_{\text{ion-spin}} + \Gamma_{\text{photon}} + \Gamma_{\text{TLS}}, \quad (1)$$

其中, Γ_{pop} 表示激发态的布居寿命 T_1 引起的展宽, 可以通过 $\Gamma_{\text{pop}} = (2\pi T_1)^{-1}$ 计算得到; $\Gamma_{\text{ion-ion}}$ 表示瞬时光谱扩散带来的展宽, 是由于光子激发或其他离子布居弛豫引起的稀土离子的电偶极矩发生变化, 进而导致其局域环境发生瞬时变化造成的展宽, 与所用激光的功率和稀土离子的浓度密切相关; $\Gamma_{\text{ion-spin}}$ 是由晶格中电子或核自旋无序快速翻转引起的磁场波动造成的展宽, 包含宿主离子的核自旋及缺陷中心的贡献; Γ_{photon} 是由声子的散射引起的退相干, 其物理机理包括单声子过程、奥巴赫双声子过程和拉曼双声子过程; Γ_{TLS} 表示与稀土离子有相似晶格构型的局域无序二能级系统 (TLS) 的贡献, 也是与温度相关的退相干因素, 该项也是表征材料局域无序度的一个指标, 因为其在单晶材料中贡献较小, 但在一些无定形态材料如光学玻璃中有着较大贡献. 在不考虑晶体内部各种相互作用所引起的退相位因子时, $\Gamma_h = \Gamma_{\text{pop}}$, 表示稀土离子系统的均匀线宽仅由激发态布居寿命 T_1 引起的展宽决定, 这意味着稀土离子系统相干时间 T_2 的上限为其激发态能级寿命 T_1 的两倍, 即 $T_2 = 2T_1$. 但实际上, 即使在极低温的环境中, 通过选择合适的掺杂主晶和较低的稀土离子掺杂浓度, 并结合施加适合的外磁场引发“冻核”等效应来降低各因素带来的影响, 迄今为止仍很难将 T_2 延长至 T_1 所设极限值. 根据研究, $\Gamma_{\text{ion-spin}}$ 是目前高质量稀土离子单晶材料中对均匀展宽影响较大的一项, Zhong 等^[20] 通过施加确定方向和大小的磁场可以有效降低稀土离子对周围宿主离子翻转的敏感程度, 从而延长 $\text{Eu}^{3+} : \text{Y}_2\text{SO}_5$ (YSO) 的自旋相干时至 6 h, 但该值仍与理论值有较大的差距. 而在稀土离子掺杂玻璃样品中, 由于结构的无定形态引入的局域无序导致二能级系统的动态涨落 Γ_{TLS} 占主要作用. 在不同方法制备出的不同质量的单晶、透明陶瓷以及纳米尺度晶体样品中, 也有 Γ_{TLS} 因素的相关报道.

在实验研究中, 通过低温高分辨吸收或光致发光实验, 利用窄带激光激发和扫描样品的吸收或荧光曲线可以测量稀土离子系统的非均匀线宽. 但是, 稀土离子量子态的初始化和布居调控, 精细能级寿命以及量子叠加态的相干时间测量等, 需要更复杂的技术和程序, 如最基础的“频域”光谱烧孔 (SHB) 或“时域”光子回波等技术.

2.2 光谱烧孔

光谱烧孔是一种利用特定频率的窄带激光选择性地激发一小部分离子, 使得材料在该频率下的吸收减弱, 从而进行高分辨光谱表征的光泵浦技术^[64], 如图 3 所示. 在平衡状态下, 稀土离子的态布居在基态能级上均匀分布, 对晶体使用恒定功率的激光扫描后可以得到样品的吸收光谱, 即非均匀线宽. 如图 3(a) 所示, 当利用一束固定频率 ω_0 的窄带激光将一小群离子从其中一个基态激发, 由于激发态寿命有限, 处于激发态的离子会通过自发辐射弛豫到任意一种基态能级. 然而, 在连续的激光泵浦条件下, 弛豫至相同基态的一些离子又会被再次激发, 而另一些离子弛豫到不同的基态, 不再与频率 ω_0 的激光共振. 在理想情况下, 最后共振频率为 ω_0 的基态上的离子将被清空. 此时, 当一束包含频率 ω_0 的扫描激光作用于稀土掺杂材料时, 由于与该频率共振的离子基本被清空, 因此在频率 ω_0 处基本不会产生吸收, 于是在非均匀吸收光谱中将出现一个“孔”, 如图 3(b) 所示. 由于固态晶体中稀土离子的能级分布十分复杂, 光谱烧孔的同时在其他频率也能探测到边孔、反孔等微结构信息, 这里不再赘述.

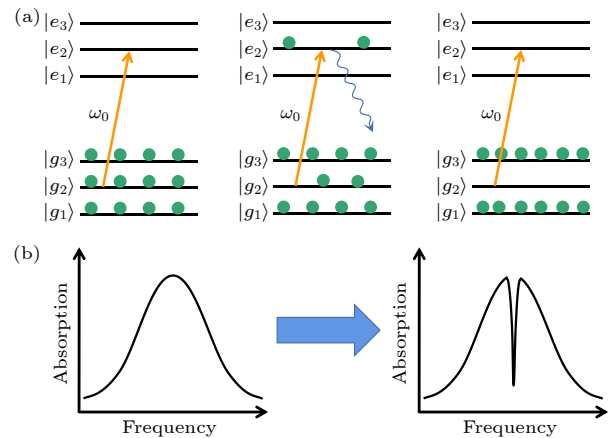


图 3 光谱烧孔原理示意图 (a) 三种超精细基态能级被均匀占据, 频率为 ω_0 的激光将中间态离子泵浦到激发态, 被激发的离子可以衰减到任何一种超精细基态, 但重新回到中间态的离子会再次被激光激发, 使得离子都被转移到另外两种超精细基态; (b) 在非均匀展宽上的烧“孔”

Fig. 3. Schematic representation of holeburning technique: (a) All three hyperfine ground states are equally populated until a laser with frequency ω_0 pumps the ions in the middle state to an optically excited state. The excited ions can decay to any of the hyperfine ground states, but only those that decay to the middle state will be repumped by the laser. All ions are transferred to the other two hyperfine ground states. (b) A spectral “hole” is burned in the inhomogeneous profile.

光谱烧孔的实现需满足两个条件: 一束在特定频率 ω_0 上足够稳定的窄带激光 (burn laser), 并能维持一定时间; 一束在 ω_0 附近的频率范围内连续变化的扫频激光 (probe laser). 在稀土离子掺杂晶体中, 激光泵浦功率、不同跃迁能级的谐振频率以及超精细能级寿命等均会影响“孔”的深度. 通过不断地探测孔强度的衰减, 也可以得到稀土离子超精细能级的寿命 T_1 . 值得注意的是, 由于稀土掺杂材料通常具有超长超精细能级寿命, 因此光谱孔可以持续较长时间.

2.3 光子回波

利用双脉冲光子回波技术测试均匀线宽 Γ_h 时, 所使用的脉冲序列及对应的稀土离子量子态在布洛赫球上的演化如图 4(a) 所示. 这个实验最初是由 Hahn^[65] 为核自旋而开发的, 之后由 Kurnit 等^[66] 转移到光学域. 当外界光场或射频场与一个二能级系统发生共振时, 量子态在布洛赫球上绕 x 轴发生翻转, 翻转的角度可以表示为^[67]

$$\phi = \int \Omega(t) dt, \quad (2)$$

式中, $\Omega(t)$ 表示拉比频率. 为了获得最大强度的回波信号, 样品需要被间隔为 τ 的 $\pi/2$ 和 π 两个脉冲序列激发. 第 1 个 $\pi/2$ 脉冲建立了基态和激发态之间的相干, 等价于把稀土离子布居态激发到一个

50:50 的叠加态. 由于激光或射频带宽引起的不均匀性, 使得被激发的不同位置处的稀土离子表现不同的自由演化速率, 并引起宏观发射偶极子的强度下降, 这被称为自由感应衰减 (FID)^[68,69]. 因此随着时间的推移, 稀土离子系综的相干会被破坏, 即发生退相干过程. 在经过 τ 时间后, 加入一个 π 脉冲, 离子布居态的状态发生 180° 翻转, 不同离子的相位开始重聚. 再次经过 τ 时间后, 量子态演化重新发生聚拢, 产生回波信号.

在双脉冲光子回波中, 相位通过 π 脉冲开始重聚, 可以抵消由静态扰动造成的退相干, 因此通过记录回波强度随两脉冲间隔时间的函数 (如 (3) 式所示), 可以测定由动态扰动引起的退相干时间, 即相干时间 T_2 , 进而计算得到该跃迁频率的均匀线宽 $\Gamma_h = 1/(\pi T_2)$.

$$I(\tau) = I_0 \exp(-4\tau/T_2). \quad (3)$$

值得注意的是, 回波信号的强度要比脉冲强度小得多, 所以在实验上通常使用外差探测, 通过解调得到所需要的回波信号强度.

图 4(b) 给出了三脉冲光子回波的序列及布洛赫球上的离子态演化示意图. 与双脉冲光子回波相比, 三脉冲回波技术可以探测有效线宽 Γ_{eff} 对等待时间的依赖关系. 第 1 个 $\pi/2$ 脉冲建立了由基态与激发态组成的叠加态, 通过 τ 时间的延时, 叠加态的整体相位因为离子的跃迁频率不同而受到干扰,

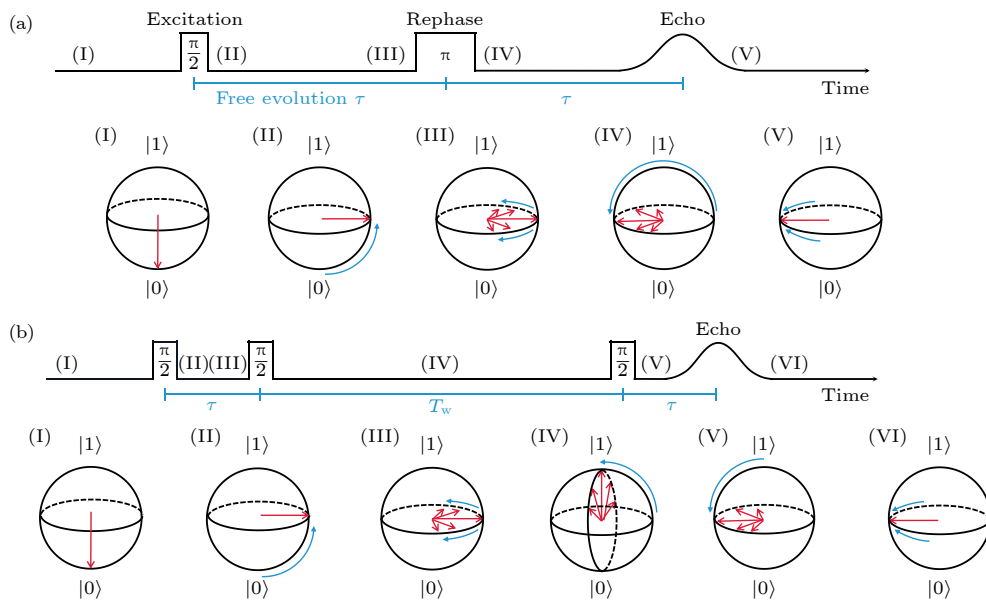


图 4 (a) 双脉冲回波和 (b) 三脉冲回波分别对应的脉冲序列及对应的离子态在布洛赫球上的演化

Fig. 4. Evolution of ion states on the Bloch sphere and corresponding pulse sequence for (a) two pulse echo and (b) three pulse echo respectively.

通过施加第 2 个 $\pi/2$ 脉冲将每个离子积累的相位转换为基态与激发态的布居. 在等待时间为 $T_w > \tau$ 之后施加第 3 个 $\pi/2$ 脉冲时, 在布居中存储的相干性在经过 τ 延迟后重聚, 并发射回波. 回波强度 $I(\tau, T_w)$ 可以表示为 [62,63]

$$I(\tau, T_w) = I_0 \exp(-2T_w/T_1) \exp[-4\tau\pi\Gamma_{\text{eff}}(\tau, T_w)]. \quad (4)$$

如果离子周围环境的扰动频率介于个 $1/T_w$ 与个 $1/\tau$ 之间, 则观察到的回波衰减与双脉冲回波实验观察到的衰减明显不同. 通过这种方式, 三脉冲回波技术允许在超过 T_2 的时间观测尺度上确定有效线宽展宽.

3 微纳尺度稀土离子晶体及其相干性能调控

微纳结构量子材料不仅拥有优异的量子相干性能, 而且易于与光学微腔、二维超导等其他量子系统进行耦合, 在实现对单个量子比特的高信噪比探测与操控方面潜力巨大 [70,71]. 将固态稀土离子系统与纳米结构相结合, 有助于充分发挥固态稀土离子系统的优势, 探索并实现其在量子信息领域的多种新功能或多功能集成, 如通过合适的制备和微纳加工技术获得的微型化、高集成度稀土离子系统有望使得高效率的单光子发射、微波-光波转换和片上光存储成为可能 [72–74], 并在将来实用化的片上量子存储器、可扩展量子单光子源、量子处理器、杂化量子系统、量子传感等量子硬件设备或进一步的功能集成器件中扮演重要“角色” [30,75–77].

在实验研究中, 早在 2000 年就有学者 [78] 通过激光烧蚀等“自上而下”的物理方法制备纳米尺度的稀土离子晶体并研究其量子相干性能. 然而, 光谱烧孔结果表明, 获得的 $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ 纳米晶体高度团聚, 且其中 Eu^{3+} 离子的 $^5\text{D}_0 \leftrightarrow ^7\text{F}_0$ 跃迁均匀线宽可宽至 MHz 级别. 2014 年至 2017 年, Utikal 等 [79,80] 陆续利用物理研磨的方法, 将 $\text{Pr}^{3+}:\text{YSO}$, $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (YAG), $\text{Er}^{3+}:\text{LiNbO}_3$ 等晶体加工成上百纳米至微米量级的晶体. 研究结果进一步证明了即使是小能量的机械加工过程, 也会导致晶体中 kHz 以上的稀土离子均匀线宽展宽, 这可能与机械加工过程中引入的缺陷或应力以及相关的二能级系统密切相关.

随着量子信息理论和实验技术的飞速发展, 法国 CNRS、德国 KIT 和西班牙 ICFO 等众多科研

机构致力于远小于激发波长的稀土离子掺杂纳米粉体和薄膜的可控制备和量子相干性能研究. 通过“自下而上”的化学合成技术路线, 不仅创造了纳米级量子材料的光学和自旋相干时间记录, 并开发出了稀土离子与光学微腔的高效耦合方案, 开辟了微纳尺度稀土量子材料与器件研究的新路径 [81–84]. 同时, 近年来物理与化学刻蚀、聚焦离子束 (FIB)、离子注入等微纳加工技术的进步为微纳尺度稀土离子晶体以及单个稀土离子操控研究提供了更为精确的加工工具, 美国加州理工学院 (Caltech) 和普林斯顿大学 (Princeton University) 等机构利用微纳加工等先进技术手段, 直接将块状稀土离子晶体加工成微纳尺度稀土光子晶体腔, 或制备成各种结构与 Si、超导等量子系统进行集成, 在大幅度增强光与物质的相互作用、加速稀土离子的发射速率以及开发其在量子信息领域的新功能等方面均取得了许多突破性进展 [74,85–89].

3.1 稀土掺杂纳米粉体

采用“自下而上”的化学合成路线制备稀土离子纳米晶体, 不仅可以避免微加工带来的应力和杂质缺陷对材料相干性能造成的负面影响, 同时也可以获得粒径和物化性质相对均一的纳米晶粒, 有利于其与高性能光学微腔的高效率耦合. 在 2013 年, Perrot 等 [56] 利用该策略, 通过热溶剂法获得了粉体粒径为微米量级, 初始晶粒为 60 nm 的 $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ 纳米晶体, 并首次在该强散射多晶介质中观察到了光子回波信号, 获得了 86 kHz 的光学均匀线宽 ($T_2 = 3.7 \mu\text{s}$). 虽然该结果相较于之前报道的最好的 $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ 单晶仍大 2—3 个数量级, 但将稀土离子掺杂纳米晶体用于量子信息领域的研究仍自此开始引起了人们的密切关注与研究, 并接连获得许多重大研发计划, 如欧盟的“玛丽居里”、H2020 科研与创新框架计划以及最近的“量子宣言”旗舰计划等项目的大力支持.

根据 Liu 等 [82] 对稀土离子纳米粉体耦合法布里-珀罗 (Fabry-Pérot, F-P) 微腔的理论分析与实验研究, 由于存在散射损耗, 腔的品质因子 Q 、精细度 F 和耦合效率 η 分别可表示为

$$Q = (2d/\lambda)F, \quad (5)$$

$$F = 2\pi/(T + 2L + B), \quad (6)$$

$$\eta = T/(2T + 2L + B), \quad (7)$$

式中, d 为腔长; λ 为跃迁波长; T 为镜面的平均透射率; L 为平均损耗; B 表示由晶体引入的额外散射损耗, 可由以下公式

$$B = \frac{8\sigma}{\pi\omega_0^2}, \quad (8)$$

$$\sigma = \left(\frac{2\pi}{\lambda}\right)^4 \frac{\alpha^2}{6\pi\epsilon_0^2}, \quad (9)$$

$$\alpha = 3\epsilon_0 V_p \frac{\epsilon_p - \epsilon_m}{\epsilon_p + 2\epsilon_m}, \quad (10)$$

$$V_p = \frac{4}{3}\pi r^3 \quad (11)$$

决定, 其中, σ 为散射截面, ω_0 为腔模束腰, α 为晶体的极化率, ϵ_0 为真空介电常数, ϵ_p 为晶体的介电常数, ϵ_m 为周围介质的介电常数, V_p 为晶体体积, 这里认为晶体是半径为 r 的球形纳米粉体.

由上述所知, 减小多晶纳米粉体的粒径 $2r$ 能显著提高 F-P 腔的精细度 F 、品质因子 Q 以及腔耦合效率, 进而提高其有效 Purcell 因子 P ^[90]:

$$P = \frac{3Q(\lambda/n)^3}{4\pi^2 V} \zeta, \quad (12)$$

其中, n 为折射率, V 为腔模式体积, ζ 为稀土离子能级跃迁分支比.

然而, 粉体粒径越小, 稀土离子的荧光越弱, 越不利于信号的收集. 因此, 在实用化过程中, 为保证光学微腔的性能稳定和较高的 Purcell 因子以及量子设备的高性能, 稀土离子晶体需要满足较为苛刻的性能要求, 如具有可光学探测的合适粒径 (50—100 nm), 粒径均一且无团聚和烧结, 较长的相干时间等. 十分苛刻的性能要求对稀土纳米晶体的制备和后处理技术、对其中光与物质各种相互作用的认识和调控技术皆提出了很大的挑战, 这是目前稀土掺杂纳米晶体研究中亟须解决的关键问题.

2017 年, de Oliveira Lima 等^[91,92] 利用均相沉淀法制备出了分散性较好、粒径 430 nm (初始晶粒约 130 nm)、光学相干时间达 7 μ s ($\Gamma_h = 45$ kHz) 的 $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ 纳米粉体, 并发现高温煅烧处理 (1200 $^\circ\text{C}$) 有助于获得结晶质量高、缺陷浓度低、相干时间长的纳米粉体, 但该温度也对 150 nm 以下粒径的粉体造成非常严重的团聚和烧结. 而低温煅烧难以获得较高的结晶质量, 无法实现量子信息存储. 此后, Liu 等^[81] 在该研究基础上不仅通过醋酸

化学蚀刻法以可控的速率将初始粒径为 400—500 nm 的 $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ 粉体减小到 150 nm 甚至更小, 远低于光激发波长 (580 nm), 同时引进半导体工业中常用的微波等离子体清洗工艺, 也显著地提高了纳米粉体的光学相干性能. 他们制备得到的刻蚀前纳米粉体的光学均匀线宽为 25 kHz ($T_2 = 12.5$ μ s), 是迄今为止在纳米颗粒中获得的最窄的光学均匀展宽, 刻蚀后获得的 150 nm 粒径单分散粉体的光学相干时间也能达到 9.3 μ s, 受刻蚀加工的影响较小, 如图 5(a) 所示. 2020 年, Liu 等^[82] 又成功制备了分散性较好, 粒径小至 100 nm, 且为单晶结构的 $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ 纳米晶体, 并在国际上首次探测到该尺度纳米量子晶体的光子回波信号, 获得了 6 μ s 的光学相干时间, 如图 5(c) 所示. 此外, 除了 non-Kramers 稀土离子, 人们在 Kramers 稀土离子纳米粉体的研究上也取得了一些进展. 如在温度为 3 K, 磁场为 33 mT 的情况下, 获得 150 nm 粒径的 $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ 纳米粉体的光学均匀线宽为 380 kHz; 在温度为 2 K, 磁场为 300 mT 的情况下, 获得 $\text{Nd}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ 纳米粉体的光学均匀线宽为 62 kHz^[93].

然而, 研究结果也显示, 随着粉体粒径的减小, 稀土离子的退相干现象愈加严重. 如图 5 所示, 即使已经获得了单晶结构的 $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ 纳米粉体, 其光学相干时间不仅远低于相应的块体单晶, 与相同体系的大粒径纳米多晶粉体也有一定差距. Bartholomew 等^[92] 通过研究发现, 在低于 10 K 的极低温条件下, 纳米结构中无序二能级系统对 Eu^{3+} 离子的均匀线宽的贡献随温度升高而线性递增, 而其他几乎不受温度影响的退相干因素可能与纳米结构中的电场扰动有关, 如可能存在的表面或界面电荷的动态涨落, 如图 6 所示. 在低于 20 K 的低低温条件下, Eu^{3+} 离子的光学 Γ_h 可用下式拟合^[94]:

$$\Gamma_h = \Gamma_0 + \Gamma_1 + \alpha_{\text{TLS}}T + \alpha_{\text{TPR}}T^7, \quad (13)$$

其中, T 表示温度, Γ_0 表示与温度无关的初始均匀线宽, Γ_1 描述激光器的展宽贡献, α_{TLS} 表示 Eu^{3+} 离子与其周围 TLS 的耦合系数, α_{TPR} 表示双声子拉曼相互作用的速率. 在 6 K 以下, 由于 TPR 过程引起的展宽可以忽略不计, 除去 TLS 的影响外推在 0 K 时 Eu^{3+} 与温度无关的额外均匀展宽仍高达几十 kHz, 远大于由 T_1 决定的 Γ_h 的下限值 $\Gamma_{\text{pop}} = (2\pi T_1)^{-1} = 117$ Hz (Eu^{3+} 离子 $^5\text{D}_0$ 能级寿

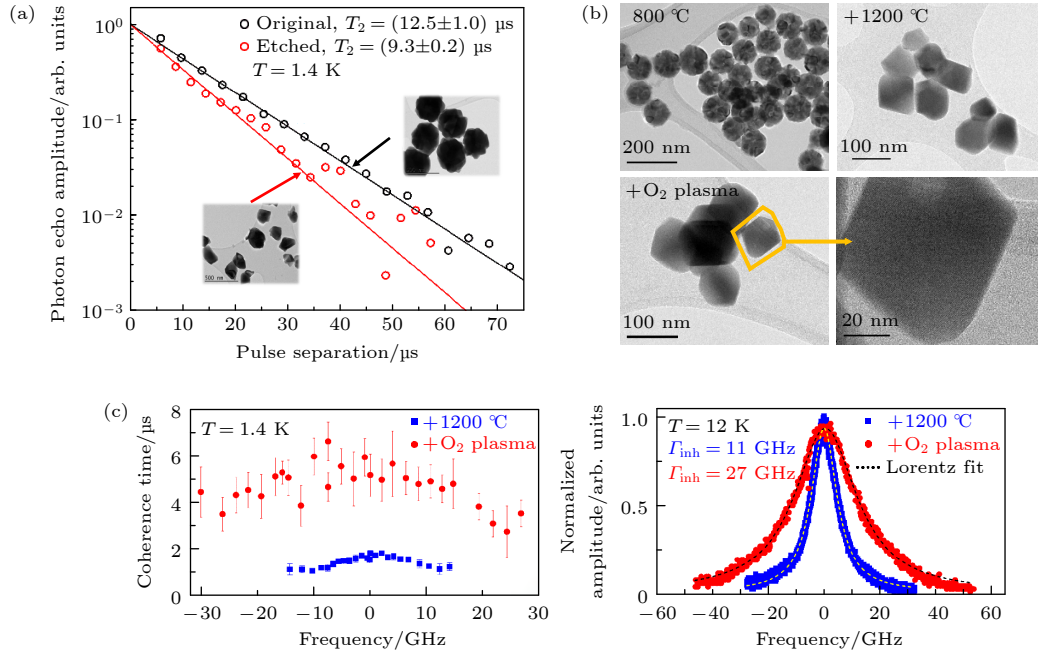


图 5 (a) 化学刻蚀前后 $Eu^{3+} : Y_2O_3$ 纳米粉体的光学回波信号衰减曲线. 内附图为对应的纳米粉体的 TEM 形貌^[81]; (b) $Eu^{3+} : Y_2O_3$ 纳米粉体在初次 800 °C 煅烧 (左上), 二次 1200 °C 煅烧 (右上) 并微波等离子体处理后 (下) 的 TEM 形貌^[82]; (c) Eu^{3+} 离子 $^5D_0 - ^7F_0$ 跃迁在不同制备条件下的光学相干时间 T_2 和非均匀线宽 Γ_{inh} . 样品在 0 处的光学跃迁频率为 (516.0979 ± 0.0002) THz ((580.8830 ± 0.0001) nm)^[82]

Fig. 5. (a) Photon echo decays for initial and etched nanoparticles. The insets are corresponding TEM images^[81]. (b) TEM structural and morphological evolution of the nanoparticles for annealing at 800 °C (top-left), a second annealing at 1200 °C with microwave excitation power (top-right, lower), respectively^[82]. (c) Coherence time T_2 and inhomogeneous linewidth Γ_{inh} of Eu^{3+} ion $^5D_0 - ^7F_0$ transition under different preparation conditions. The optical transition frequency at 0 is (516.0979 ± 0.0002) THz ((580.8830 ± 0.0001) nm)^[82].

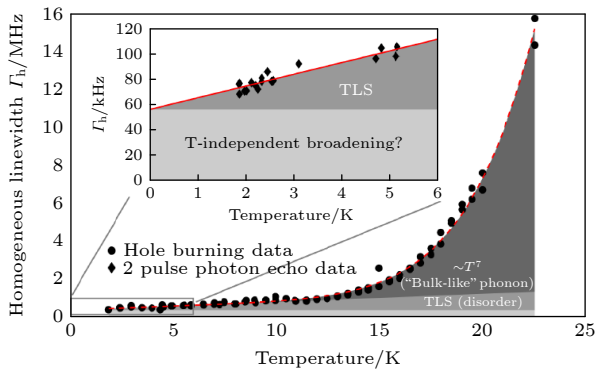


图 6 $Eu^{3+} : Y_2O_3$ 纳米粉体的均匀线宽随温度的变化. 黑色、灰色和浅灰色区域分别表示双声子拉曼效应 (TPR)、局域无序二能级系统 (TSL) 以及与温度无关的光谱展宽的贡献. 在主图和插图中, 阴影区域都代表了与温度无关的展宽 (最浅)、TLS 相互作用展宽和 TPR 相互作用展宽 (最暗)^[92]

Fig. 6. Temperature dependence of the homogeneous line width of $Eu^{3+} : Y_2O_3$ nanoparticles. The black, gray and light-gray regions represent the contribution of two-phonon Raman (TPR) interactions, local disordered two-level system (TSL) interactions and the temperature independent broadening, respectively. In both the main figure and inset the shaded areas represent the temperature independent broadening (lightest), TLS interaction broadening and TPR interaction broadening (darkest)^[92].

命 $T_1 = 1.35$ ms), 如图 5 所示. 此外, 实验结果表明, 施加高达 2.5 T 的磁场后 Γ_h 几乎不受影响, 这意味着磁性缺陷或杂质引起的微扰不是引起光学 Γ_h 宽化的主要贡献. 值得注意的是, 虽然上文提到的氧等离子体后处理工艺均显著宽化了 $Eu^{3+} : Y_2O_3$ 纳米粉体的非均匀展宽, 表示其内部的缺陷或应力增加, 但是 $Eu^{3+} : Y_2O_3$ 纳米粉体的光学相干性能却提高了 3—5 倍, 如图 5(c) 所示, 这可能与粉体中的氧空位缺陷如 V_O^{2+} 、 F^+ 心、 F^- 心以及间隙氧 O_i^- 的状态相关^[82]. 因此, 进一步探索并优化纳米结构中各种缺陷中心的浓度及其相对位置, 调控其与 Eu^{3+} 离子相互作用的强度, 有望进一步优化 $Eu^{3+} : Y_2O_3$ 纳米粉体的光学相干性能.

相较于光学能级, 核自旋能级往往可以提供更长的相干时间. 2018 年, Goldner 课题组^[95] 第一次使用全光学手段寻址到 Y_2O_3 纳米粉体中 Eu^{3+} 离子的核自旋能级, 得到其核自旋相干时间 T_2 为 (1.3 ± 0.2) ms ($\Gamma_{h,spin} = (250 \pm 39)$ Hz). 当施加 9 mT 的磁场或者采用动态解耦序列后, 其核自旋相干时间可延长至 (8.1 ± 0.6) ms, 与块体单晶材料相当.

此外, Serrano 等^[96] 在 2019 年也报道了 $\text{Pr}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ 纳米粉体中 Pr^{3+} 离子的 $^3\text{H}_0(0)$ 基态与 $^1\text{D}_2(0)$ 激发态的自旋能级精细结构, 并获得了接近 1 ms 的 $\pm 3/2 \leftrightarrow \pm 5/2$ 基态能级自旋相干时间, 优于相应的块体陶瓷样品, 再次证明了纳米稀土晶体用来发展量子信息器件的巨大潜力.

除此之外, 在基于稀土离子纳米晶体的应用探索上, 2020 年, Fassoti 等^[97] 通过斯塔克斯量子存储技术方案, 在 100 nm 粒径的 $\text{Eu}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ 单晶结构纳米粉体中演示了超过 5 μs 的频率多路复用光存储, 并得到其输入-输出的相位保真度 (phase fidelity) 超过 0.99, 如图 7(a) 和图 7(b) 所示. 斯塔克斯系数的测量表明, 存储带宽可以扩展到 GHz 量级. 2021 年, Casabone 等^[84] 通过将 $\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ 纳米粉体与图 7(c) 所示的快速且完全可调谐的 F-P 微腔相耦合, 使得 Er^{3+} 离子的自发辐射率得到了约 14 倍的有效 Purcell 增强. 通过静态模型分析可知 (图 7(d)), 约 50% 的离子经历大于 15 的 Purcell 效应, 至少 10% 的离子经历大于 74 的 Purcell 增强. 通过切换反馈的极性, 即快速改变电压偏移 V_n 到 V_p , 可以随意稳定腔到锁腔激光的正负边. 通过该方法可以动态地实现腔与纳米粉体的耦

合, 从而动态控制稀土纳米粉体在光学微腔内的 Purcell 增强发射, 为将来获得完全可调的窄带单光子、基于单个稀土离子的可扩展量子存储与处理器等提供了理论和技术支撑.

3.2 稀土掺杂薄膜

与稀土掺杂纳米粉体相比, 稀土掺杂薄膜更易于实现单个稀土离子的高精度定点掺杂, 且易于与光学谐振腔、石墨烯层、波导结构以及硅光子元器件等进行耦合, 实现单离子的高效调控和光谱表征. 此外, 稀土掺杂薄膜也易于与硅光子技术相兼容, 通过半导体工业中常用的标准光刻和刻蚀技术直接实现微纳尺度量子设备阵列的加工与集成, 因此也是一种潜力巨大的功能多样化且可扩展的稀土离子量子平台.

目前, 人们对面向量子技术应用的稀土离子掺杂微纳薄膜的研究仍处于初步设计、高质量样品制备和相干性能探索阶段. 首先, 在目前研究较多的氧化物薄膜制备过程中, 由于热膨胀系数不同, 较高的退火温度 ($> 950^\circ\text{C}$) 极易引起薄膜开裂, 并使氧化物薄膜与硅基衬底发生化学反应生成硅酸盐相, 导致稀土离子的发光峰位和光谱展宽发生改变^[57,98].

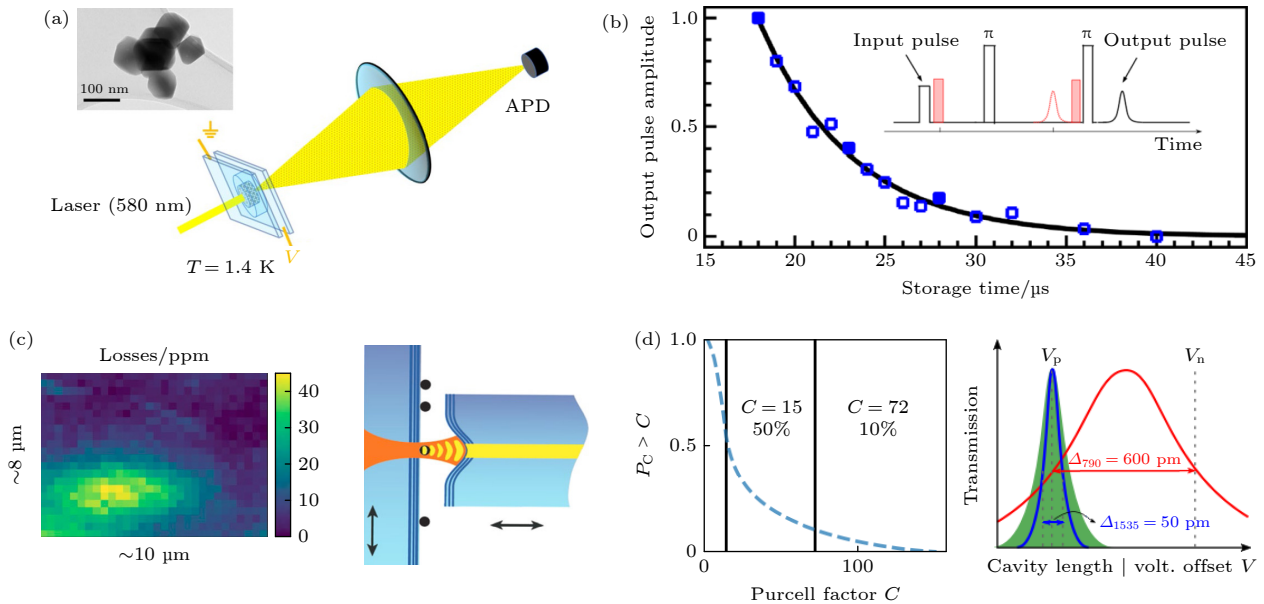


图 7 (a) 基于 $\text{Eu}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ 纳米粉体的 SEMM 量子存储装置示意图^[97]; (b) 存储脉冲序列及输出脉冲幅值随存储时间的函数关系^[97]; (c) $\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ 纳米粉体与可调谐 F-P 光学微腔的耦合示意图^[84]; (d) Er^{3+} 离子经历的 Purcell 增强效应, 其中约 50% 的离子经历大于 15 的 Purcell 效应, 至少 10% 的离子经历大于 72 的 Purcell 增强, 腔长度通过施加移动光纤的电压偏移 V 来控制^[84].

Fig. 7. (a) Scheme of SEMM memory based on $\text{Eu}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ nanoparticles^[97]; (b) storage pulse sequence and output pulse amplitude as a function of the total storage time^[97]; (c) scheme of the tunable fiber-based microcavity with $\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ nanoparticles^[84]; (d) estimated probability of given ions decay with Purcell factor, which 50% of the ions experience a Purcell factor larger than 15 and 10% larger than 72. The cavity length is controlled by applying a voltage offset V that moves the fiber^[84].

其次, 稀土离子掺杂薄膜中存在大量的表面、界面以及各种可能的缺陷、杂质等, 这些皆会在结构中引入一定的无序态和应力, 进而对稀土离子的量子态产生额外的扰动, 加速其退相干. 此外, 薄膜表面可能存在的电噪声过程 (如电荷隧穿、悬空化学键等) 也可能大大降低稀土离子的光学和自旋相干性能. 早在 1994 年, Flinn 等^[99] 在研究 $\text{Eu}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ 量子晶体的同时, 利用化学气相沉积 (CVD) 法也制备了 3 μm 厚的 $\text{Eu}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ 薄膜. 在 1.4 K 温度条件下测试得到薄膜中 Eu^{3+} 离子的均匀线宽为 12 MHz, 其 ${}^7\text{F}_0 \rightarrow {}^5\text{D}_0$ 光学跃迁的非均匀展宽高达 90 GHz, 是相应的单晶样品的 3—17 倍. 2019 年, Scarafagio 等^[57] 利用原子层沉积技术 (ALD) 制备出了厚度小于 100 nm 的超薄 $\text{Eu}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ 纳米薄膜, 其中 Eu^{3+} 离子的光学非均匀线宽达到了 200 GHz 以上, 更无法使用光谱烧孔或光子回波等高分辨光谱技术进一步表征其中稀土离子的光学相干性能.

2020 年, Harada 等^[100] 利用 CVD 工艺制备出了厚度为 200 nm、结晶质量优异的 $\text{Eu}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ 纳米薄膜, 并第一次在该较薄稀土离子掺杂薄膜中探测到了光谱烧孔信号, 获得该样品中 Eu^{3+} 离

子的光学非均匀线宽为 50 GHz, 光学均匀线宽为 11 MHz. 同年, Ferrier 等^[98] 通过详细研究 ALD 薄膜生长工艺和后续高温退火过程中 Eu^{3+} 离子的扩散行为, 在 YSO 单晶衬底上制备得到了 Eu_2O_3 薄膜, 并测得 Eu^{3+} 离子的光学均匀线宽可窄至 2 MHz. 此外, Guha 课题组^[101] 使用分子束外延法 (MBE) 在硅 (111) 晶片上生长了厚度为 500 nm 的 $\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ 薄膜, 并使用光谱技术观测到 Er^{3+} 离子分别在 C_2 和 C_{3i} 晶格位点上的发光光谱, 观察到具有 C_2 对称性位点的光学衰减寿命为 8.1 ms, 在 7 mK 的温度下观察到的最窄的光学非均匀线宽可低至 5.1 GHz. 当使用镧离子部分替代钇离子以改善 Er^{3+} 离子与 Y_2O_3 以及 Y_2O_3 与硅衬底之间的晶格失配时, Er^{3+} 离子的非均匀线宽却增大 7 倍之多^[101]. 同时, 薄膜厚度越薄, Er^{3+} 离子的非均匀线宽展宽效应越显著, 证实了上文提到的各种退相干因素的负面作用. 在 Harada 等^[102] 的最新研究中, 经过精细地优化组分设计以及薄膜生长工艺后, 他们制备得到的 $\text{Eu}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ 纳米薄膜的光学非均匀展宽可减小至 18 GHz, 光学均匀线宽突破至 5 MHz, 如图 8 所示.

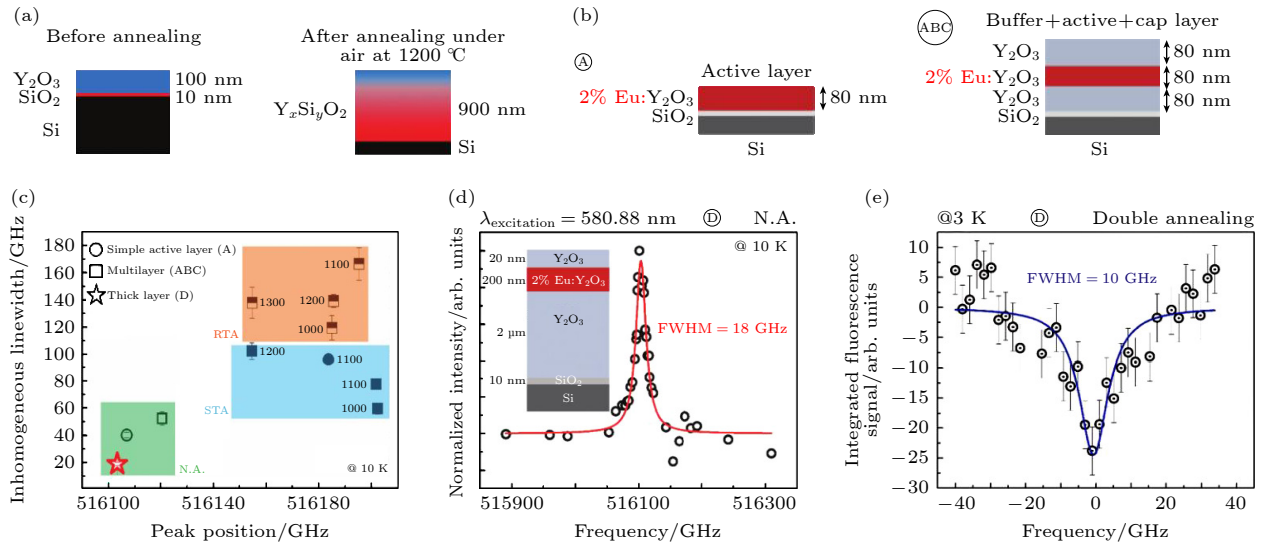


图 8 (a) 退火工艺对 $\text{Eu}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ 薄膜组分的影响示意图; (b) 薄膜组分设计和结构优化 (未掺杂底部缓冲层和顶部覆盖层对 $\text{Eu}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ 进行封装); (c) 不同后处理工艺对薄膜非均匀线宽和峰位的影响, 其中 N.A. 表示未退火处理, STA 表示慢速退火处理, RTA 表示快速退火处理; (d) 制备得到的未后处理较厚 $\text{Eu}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ 薄膜 (样品 D) 的最窄非均匀线宽; (e) 经过 1100 °C-Ar 气氛和 600 °C- O_2 气氛两步退火后样品 D 的光谱烧孔测试, 得到 3 K 温度下孔的宽度为 10 MHz, 即 Eu^{3+} 的均匀线宽窄至 5 MHz^[102]

Fig. 8. (a) Effect of annealing for a single $\text{Eu}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ thin film. (b) Composition design and structure optimization of thin film (Encapsulation of $\text{Eu}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ by undoped buffer and cap layers). (c) Inhomogeneous linewidth and position for different post-treatments. N.A. stands for not annealed (in green/empty symbol); STA, slow thermal annealing (in blue/filled symbol); RTA, rapid thermal annealing (in orange, half-filled symbols). (d) Inhomogeneous linewidth of the as grown thick film (sample D) revealing the lowest broadening; (e) SHB measurements of a 2 mm-thick multilayer sample (labelled D) with 2-step annealing. The hole width of 10 MHz at 3 K, i.e. the homogeneous broadening narrowed to 5 MHz^[102].

虽然稀土离子掺杂微纳薄膜的量子相干性能还有待进一步测试和优化, 但现有研究仍然证明该平台有望实现单光子级别的量子操控, 将在未来量子网络建设中发挥重要作用. 如图 9 所示, 在最新的研究中, Wicker 等^[103]就提出了一种基于 $\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ 薄膜/ Si 异质结构的纳米光子量子节点的制备方法, 在此基础上开发出的小模式体积的光子晶体腔能将单个 Er^{3+} 离子的发射速率从 30 Hz 提高至 16 kHz, 并预测当 $Q \approx 20000$ 时, 离子-腔的耦合协同性 C 可达 0.843, 量子纠缠保真度达 0.963. 此外, Cano 等^[104]利用动态调节石墨烯的费米能, 在 $\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ 薄膜-石墨烯杂化量子系统中实现了对 Er^{3+} 离子发射速率的快速、全电调制, 且其动态控制时间尺度远短于 Er^{3+} 荧光寿命, 使稀土掺杂薄膜在可扩展量子系统中的应用范围得到进一步拓宽.

3.3 稀土离子单晶微纳系统

随着微纳加工技术和量子信息实验技术的不断发展, 除了采用“自下而上”的化学合成路线制备得到稀土离子多晶微纳系统之外, 近年来科学家们

仍在探索和开发稀土离子块体单晶的微型化途径以及基于稀土离子块体单晶的微纳量子系统, 如通过自上而下的方式直接将稀土离子单晶加工成各种微纳光学谐振腔或将其与微腔结构进行耦合. 在腔量子电动力学 (QED) 的框架下, 具有高质量因子和小模体积的微腔可以显著增强离子-光相互作用^[105]. 首先, 在腔 QED 的弱耦合状态下, 有效 Purcell 因子 P 量化了自发发射速率的增强强度. 尽管稀土离子在低温下拥有较长的能级寿命, 当增强强度足够大时, 也允许我们观察到单个稀土离子的单光子发射. 其次, 自由空间中的原子在发射方向上没有偏好, 在任何随机方向上发射的可能性都是相同的. 而对于谐振腔中的原子, 激发态发射光子而进入腔模式的概率由 $\frac{P}{P+1}$ 给出, 因此可以大大提高荧光的收集效率, 降低单离子的探测难度. 此外, 谐振腔可以大幅度提高腔内原子共振模式的跃迁分支比 ζ_c ^[83], 如 (14) 式所示, 这对拥有较低分支比的稀土离子无疑是非常重要的.

$$\zeta_c = \frac{\zeta(P_0 + 1)}{\zeta P_0 + 1}, \quad (14)$$

其中, $P_0 = P/\zeta$.

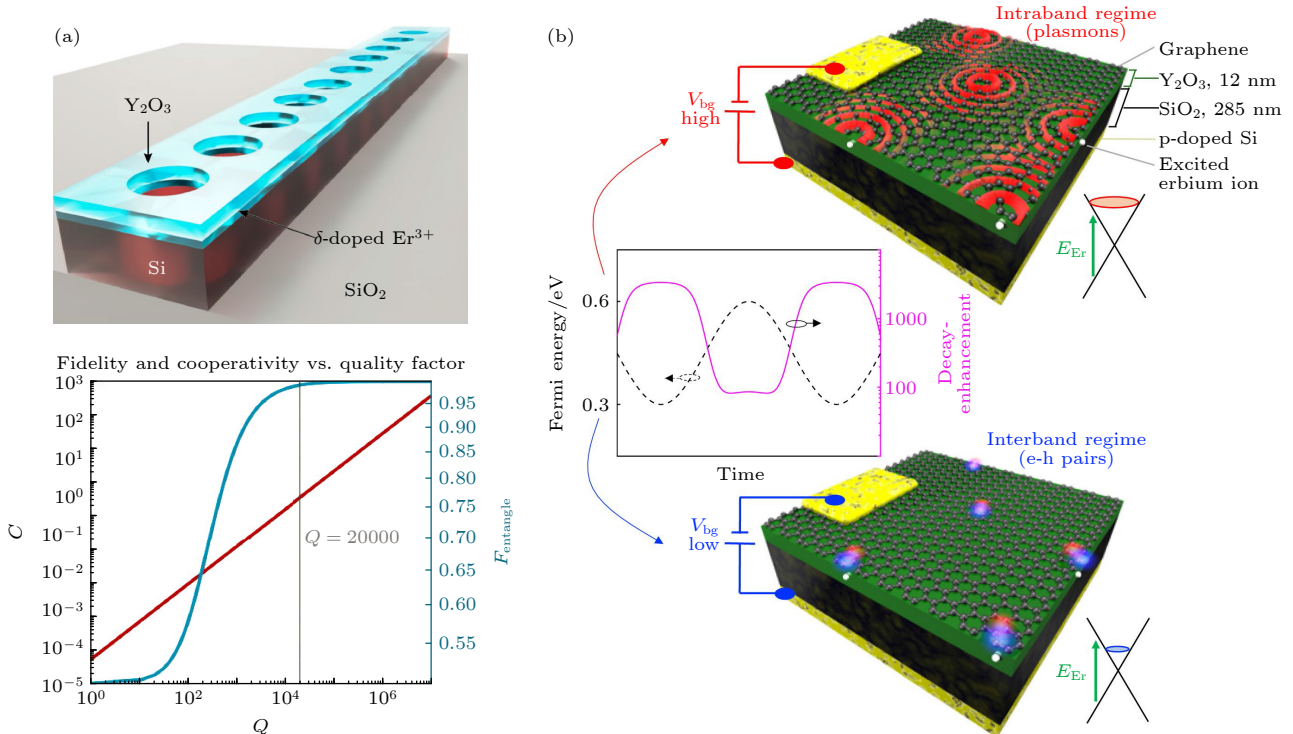


图 9 (a) $\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ - Si 光子晶体腔结构示意图以及离子腔耦合协作性和纠缠保真度随腔质量因子的变化^[103]; (b) $\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ -石墨烯杂化系统的动态调制示意图^[104]

Fig. 9. (a) Schematic of $\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ - Si photonic crystal cavity and the ion-cavity coupling cooperativity and entanglement fidelity as a function of cavity quality factor^[103]; (b) concept of dynamic modulation of hybrid $\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ -graphene system^[104].

如上文所述, 基于腔增强的稀土离子微纳系统已经在纳米粉体和薄膜中得到展示, 而稀土离子单晶-光学腔微纳系统也在不同的腔结构中得到了广泛研究, 其中研究较多的有光子晶体腔、F-P 腔、微环腔或回音壁模式 (WGM) 腔等, 如图 10 所示. 不同结构的微腔与不同种类的稀土离子耦合更是在量子信息领域的不同方向研究中取得了突破性进展.

2015 年, Zhong 等 [85] 通过聚焦离子束等微纳加工技术, 直接在块体稀土离子单晶上加工出了微纳光子晶体腔, 并在 $\text{Nd}^{3+} : \text{YSO}$ 微纳光子晶体腔中观察到了 Nd^{3+} 离子的 $^4\text{I}_{9/2} \leftrightarrow ^4\text{F}_{3/2}$ 光学跃迁的 Purcell 增强 ($P = 45$) 以及偶极诱导透明现象. 在研究 Nd^{3+} 离子在微纳光子晶体腔中的量子相干性能时, 利用光学回波观察到 0.2% 浓度掺杂样品的光学跃迁相干时间为 $T_2 = 2.8 \mu\text{s}$, 与单晶衬底中 Nd^{3+} 离子的 $T_2 = 3.2 \mu\text{s}$ 几乎保持一致. 虽然该值与文献 [18] 报道的最佳相干时间有一定差距, 但也实验验证了其微纳光子晶体腔的 Purcell 增强效应, 证实在 $T_2 < 2T_1$ 时, Nd^{3+} 离子的光学相干性未受微纳加工技术的影响. 紧接着他们又在掺杂 Nd^{3+} 的 YVO_4 (YVO) 光学纳米腔中证明了单光子水平上显著的腔保护效应 [86], 如图 11(a) 所示. 众所周知, Kramers 离子尤其是 Er^{3+} 由于具有电子磁

矩, 使得其光学能级寿命 ($T_1^{\text{optics}} = 11 \text{ ms}$) 与塞曼能级寿命 ($T_1^{\text{spin}} = 100 \text{ ms}$) 相差不大 [108], 这使得单个泵浦光束的自旋初始化效率被限制在 68% 左右, 限制了 Er^{3+} 离子系统作为量子存储器应用的存储效率 [109]. Merkel 等 [110] 也证明了将 Er^{3+} 离子集成到高精度的 F-P 腔中, 保持其出色的光学相干特性 ($T_2 > T_1$) 的同时保留了光谱多路复用的自旋量子位读出潜力. 同时, 三脉冲光子回波实验也观察到有效均匀线宽 (Γ_{eff}) 不随等待时间 T_w 变化 (图 11(b)), 进一步证明了在光学能级寿命内, 即使是相互作用较强的 Er^{3+} 离子也没有光谱扩散. 而通过腔增强减小其光学能级寿命, 可以大幅度提升其自旋初始化效率. 于是 Faron 课题组 [74,87] 相继在 $\text{Er}^{3+} : \text{YSO}$, $\text{Nd}^{3+} : \text{YVO}$ 等纳米光子腔系统中演示了具有高保真的片上量子存储, 图 11(c) 展示了他们在 $\text{Er}^{3+} : \text{YSO}$ 系统中实现的时间多模式存储. 干涉测量的可见度达 $(91.2 \pm 3.4)\%$, 表明了这种片上存储过程的高保真性.

腔增强单个稀土离子的光学发射和探测也在近年来得到不少演示. Zhong 等 [112] 利用上文中的 YVO 微纳光子晶体腔, 检测到了单个 Nd^{3+} 离子的发射. 另一方面, Dibos 等 [72] 利用电子束光刻和反应离子束蚀刻等技术在绝缘硅片 (SOI) 上设计加工出了一维硅光子晶体腔, 并利用冲压技术将其

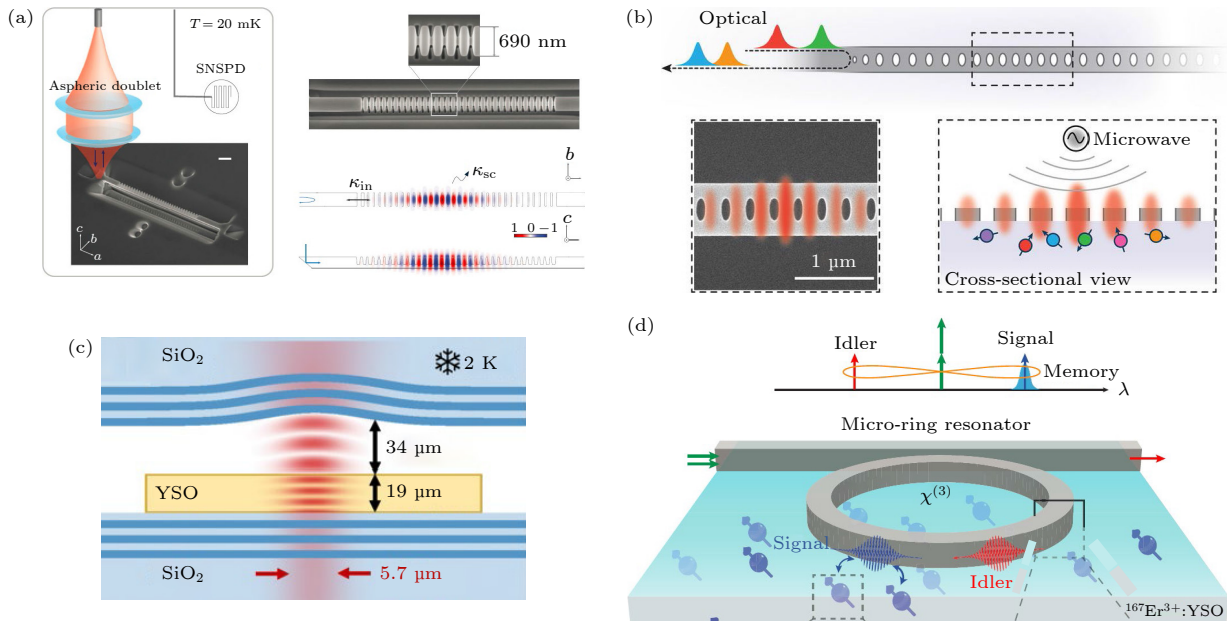


图 10 基于腔增强的稀土离子单晶微纳系统 (a) 稀土离子光子晶体腔 [85]; (b) 一维硅光子晶体腔 [72]; (c) F-P 腔 [106]; (d) 微环腔或回音壁模式 (WGM) 腔 [107]

Fig. 10. Cavity enhanced nanoscale rare earth doped systems: (a) Rare earth ions based photonic crystal cavity [85]; (b) one-dimensional silicon photonic crystal cavity [72]; (c) F-P cavity [106]; (d) microring or whispering gallery modes (WGM) cavity [107].

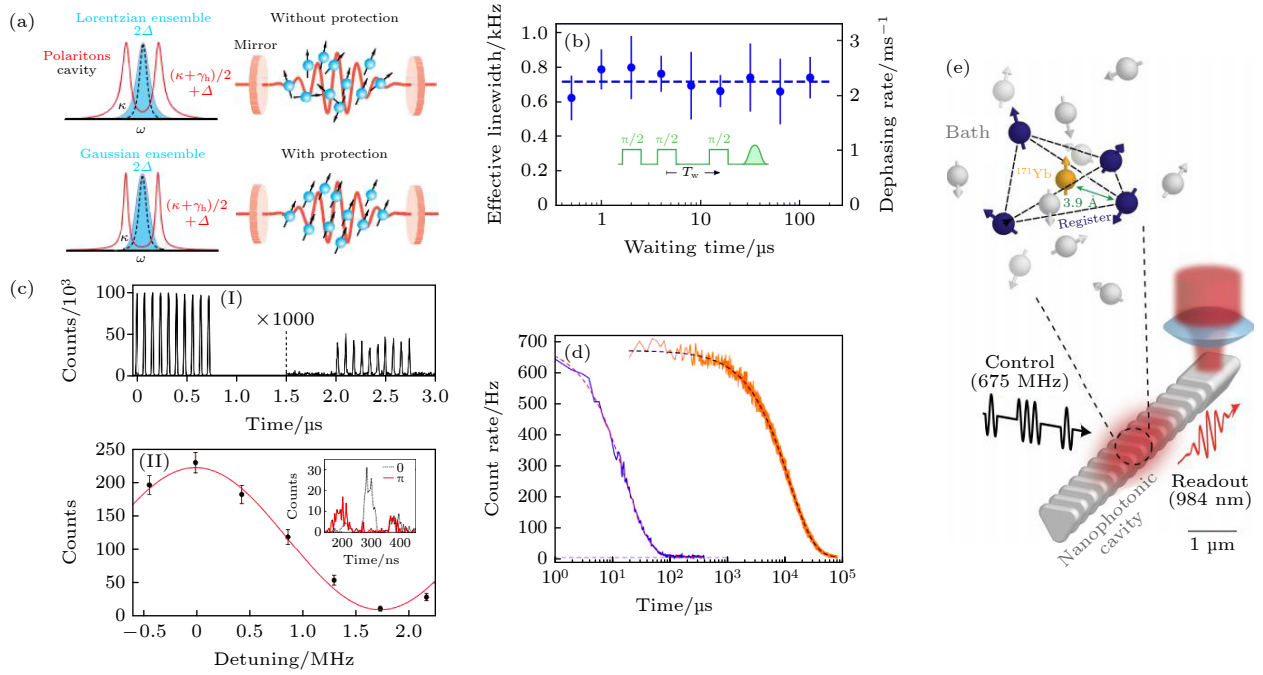


图 11 (a) 腔保护的概念说明: 对于具有洛伦兹线性的系综(上), 由于非均匀展宽的 Δ , 极化不受保护并发生退相, 即线宽展宽. 而具有高斯线性的系综(下)可以被集体超辐射激发并保护, 不受退相影响. 图中箭头表示每个离子偶极子矢量^[86]. (b) 观察到一个不随等待时间 T_w 变化的有效线宽 Γ_{eff} ^[110]. 插图: 三脉冲光子回波序列. (c) 基于 $\text{Er}^{3+} : \text{YSO}$ 光子晶体腔的片上多模量子存储, (I) 存储 10 个时间多模式 2 μs ; (II) 通过双梳过程获得的可见度, 插图为在最大建设性干扰(虚线黑线)和最大破坏性干扰(实红色线)情况下的 4 个输出脉冲(中间两个重叠)^[87]. (d) 激发脉冲后, 单个腔耦合 Er^{3+} 离子(蓝色)与没有腔增强的荧光寿命比较(橙色)^[72]. (e) 在纳米光子腔中进行光学耦合的 ^{171}Yb 量子位元的多体核自旋寄存器示意图^[111]

Fig. 11. (a) Conceptual illustration of cavity protection for an ensemble coupled to a cavity mode: For a Lorentzian ensemble (upper), the polaritons are not protected and undergo dephasing (linewidth broadening) due to inhomogeneous broadening Δ . A Gaussian ensemble (lower) can be fully protected with the collective superradiant excitation free of such dephasing. Arrows represent the phasor of each atomic dipole^[86]. (b) A constant effective linewidth Γ_{eff} independent of the waiting time T_w has been observed^[110]. Inset: Three-pulse photon echo sequence. (c) On-chip multimode and coherent storage in the $\text{Er}^{3+} : \text{YSO}$ nanophotonic cavity. (I) Storage of ten temporal modes for 10 μs ; (II) visibility curve acquired in a double-comb experiment, and inset is four output pulses (middle two overlapping) in the case of maximally constructive (dashed black line) and maximally destructive (solid red line) interference^[87]. (d) Fluorescent lifetime comparison between a single cavity-coupled Er^{3+} ion (blue) and a bulk ensemble without cavity enhancement (orange)^[72]. (e) Schematic of a many-body nuclear spin register for optically coupled ^{171}Yb qubits in a nanophotonic cavity^[111].

与 $\text{Er}^{3+} : \text{YSO}$ 集成, 使光子发射率提高超过 650 倍(图 11(d)), 利用二阶自相关函数证明是单个 Er^{3+} 离子的发射. 在此基础上, Thompson 团队^[88]实现了保真度为 94.6% 的单个稀土离子量子态的光学非破坏测量. 继而又在对 6 个稀土 Er^{3+} 离子进行高保真初始化和单次自旋测量的同时, 展示了使用交流斯塔克位移操控自旋旋转^[89], 这对实现原子缺陷强相互作用、量子信息处理和多体动力学基础研究等领域有着重要意义. 此外, Reiserer 课题组^[106]将 $\text{Er}^{3+} : \text{YSO}$ 晶体加工为 19 μm 的薄片并嵌入到质量系数 $Q = 10^7$ 的可调谐 F-P 腔中, 观察并相干控制大约 100 个单离子的发射, 实现了电信发射器的频谱复用. 以上对单个稀土离子发射和光学探测的研究可以为未来的量子网络提供可以光学控

制的自旋量子比特、量子逻辑门和自旋-光子接口.

在 2022 年的最新研究中, Lau 等^[107]将 $\text{Er}^{3+} : \text{YSO}$ 晶体衬底与环形微腔 WGM 进行耦合, 并提出了一种可以在光子与非线性腔内的原子存储器之间产生多模纠缠的方案, 其准连续波、多模操作、高纠缠速率等特点解决了发射型中继器协议中的损耗和失配带来的难题. Ruskuc 等^[111]首次在 $\text{Yb}^{3+} : \text{YVO}$ 光子晶体腔中加入另一种 $^{51}\text{V}^{5+}$ 离子, 与之前选择低核自旋的宿主晶体不同, 通过控制 $^{51}\text{V}^{5+}$ 离子的核自旋态产生“嘈杂”的磁场环境, 利用 ZenPol 序列成功构建“flip-flop”有效哈密顿量的同时, 将环境自旋相互作用(bath field)与寄存器相互作用(register field)分离(图 11(e)), 也成功将 Yb^{3+} 离子的相干转化到周围的 $^{51}\text{V}^{5+}$ 离子并

按需交换回来, 实验演示了量子寄存器. 在光波-微波转换器应用领域, Bartholomew 等^[113]在 $\text{Yb}^{3+}:\text{YVO}$ 纳米光子晶体腔中演示了微波到光波的相干转换, 提出了一种可以将转化效率提高到 30% 的策略, 并将该协议扩展到了零磁场操作.

因此, 尽管基于光子晶体腔、WGM 腔和 F-P 腔的稀土离子单晶微纳系统综在可调谐性、腔稳定性以及可扩展性等方面还面临着诸多难题, 但以上种种研究成果表明, 基于腔增强的稀土离子单晶微纳系统在量子信息的各个领域都有着突出应用表现. 针对不同的应用场景, 稀土离子微纳系统与不同腔结构的耦合集成也成为未来混合量子系统、片上量子信息处理的重要物理平台.

3.4 其他稀土离子量子系统

除了以上已取得较大研究进展的稀土离子掺杂纳米粉体、薄膜和单晶微纳系统之外, 一些融合了新材料、新技术、新结构或新现象的稀土离子量子平台, 如稀土离子晶体波导、杂化量子系统以及光学透明陶瓷等体系, 在实现微纳尺度量子系统或单个稀土量子态的高信噪比探测与操控方面也具有较大潜力, 相关研究在近两年也取得了较大进步, 这些系统的开发为量子物理系统的光学探测和相干控制以及可扩展量子信息器件的研究提供了多条可行路径.

自 2010 年始便有学者利用飞秒激光直写技术 (FLM) 在稀土离子晶体材料如 $\text{Nd}:\text{YAG}$, $\text{Yb}:\text{YAG}$, $\text{Nd}:\text{YVO}$ 和 $\text{Pr}:\text{YLF}$ 中写入波导结构, 以构建集成激光器等器件^[114]. 2016 年, Corrielli 等^[115]通过 FLM 技术首次在 $\text{Pr}^{3+}:\text{YSO}$ 稀土离子单晶中写入光波导结构, 通过光子回波等实验证明了 Pr^{3+} 离子的相干性能不受波导制备工艺的影响, 并进一步利用原子频率梳 (AFC) 存储方案, 在该波导结构中成功演示了 Pr^{3+} 离子的激发态和自旋态的按需光存储. 在 2020 年, Liu 等^[116]利用相同技术在 $^{151}\text{Eu}^{3+}:\text{YSO}$ 晶体表面实现了一种片上波导量子存储器, 获得的单光子级别相干脉冲的存储保真度达到 $(99.3 \pm 0.2)\%$, 接近在基于块体单晶的量子存储器中获得的最高值. 另外, LiNbO_3 作为另外一种重要的光学材料, 在光电调制器、相干光子转换和量子存储器等领域具有各种应用前景^[117–121]. Sinclair 等^[122]将 Tm^{3+} 离子加入到 LiNbO_3 波导结构中, 成功演示了基于稀土离子系统的集成光量子

存储和量子处理器. 但直至 2017 年, Sinclair 等^[123]才在 800 mK 的温度下在 $\text{Ti}^{4+}:\text{Tm}^{3+}:\text{LiNbO}_3$ 波导结构中获得与相应块体单晶相比拟的光学相干时间, 达到 117 μs . 虽然目前还不清楚 Ti 扩散法制备波导制造过程对稀土离子相干性能的影响, 但该结果较之前在 3 K 温度下测得的光学相干时间 1.5 μs 已有突破性提高, 证明了稀土离子掺杂的工业 $\text{Ti}:\text{LiNbO}_3$ 波导在片上量子技术应用中的适用性.

另一方面, 有研究者将离子注入技术、CVD 技术与量子光控和半导体制造技术相结合, 用来构筑功能更加强大的稀土离子/硅基薄膜、稀土离子/金刚石色心等可扩展杂化量子系统, 实现了可集成和扩展化的量子计算和通信平台. 实际上, 早在 1993 年, Vredenberg 等^[124]便将稀土 Er^{3+} 离子注入到 SiO_2 中, 在 Si/SiO_2 形成的 F-P 腔中观察到了 Er^{3+} 离子的自发辐射增强现象, 并使 Er^{3+} 离子的 $^4\text{I}_{13/2} \leftrightarrow ^4\text{I}_{15/2}$ 跃迁能级寿命 T_1 从 14.8 ms 缩减到 9.1 ms. 2013 年, Yin 等^[125]将 Er 和 O 原子注入到硅单电子晶体管中, 开发出一种混合光电技术, 即通过电学手段高效检测出注入到其中单格位单个 Er^{3+} 离子的 $^4\text{I}_{15/2} \leftrightarrow ^4\text{I}_{13/2}$ 光学跃迁, 实现了单个缺陷的电子和核自旋态的光学寻址和操纵, 为未来光量子计算和硅技术之间的互连提供了技术支撑^[126]. 2021 年, Wicker 等^[127]通过将 Er^{3+} 和 $^{16}\text{O}^{+}$ 离子注入到绝缘硅片上, 在 100 mK 的低温下初步表征得到片上 Er^{3+} 离子的非均匀展宽为 2 GHz, 光学能级寿命 T_1 为 2.3 ms. 在此基础上, 他们又通过标准 CMOS 制造技术加工出稀土/硅纳米光子晶体腔杂化系统, 得到腔的品质因子 Q 为 6000, 离子注入分布中心附近的 Purcell 因子 P 约达到 800. 然而, 由于目前仍缺乏对 Er^{3+} 离子在硅晶体中的具体格位信息, 其相干光谱学表征仍有待进一步探索.

在其他杂化量子系统研究中, 自 2002 年开始, Bharuth-Ram 等^[128]便尝试将稀土 ^{141}Ce 和 ^{149}Gd 原子注入到金刚石晶体中, 但由于稀土离子半径较大, 无法与后者的晶格适配, 稀土离子/金刚石色心混合系统的制备仍存在很大挑战. 直至 2014 年, Magyar 等^[129]改进制备过程, 通过在微波 CVD 生长金刚石晶体过程中引入 Eu^{3+} 离子的前驱体, 在荧光测试中成功观察到金刚石晶格中 Eu^{3+} 离子的特征辐射发光及其较长的荧光衰减. 然而同样地, 由于无法从该光谱中得到可分辨的晶体场结构信息, 对稀土离子周围局部环境的分析和量子相干性

能的表征仍需进一步探究. 最新报道中, Xia 等^[130]通过离子注入技术直接将 Yb^{3+} 离子注入到 LiNbO_3 薄膜中并加工成 WGM 腔结构, 通过动态地调节 Yb^{3+} 离子的 Purcell 效应来控制其发射速率, 进而得到了单个 Yb^{3+} 离子的离散发射峰, 初步结果表明该发射峰具有优异的光谱稳定性.

此外, 由于多晶透明陶瓷具有制备温度较低, 在体积、形状、组分结构控制等方面更具灵活性, 且制备工艺成熟, 产品已商业化等特点, 因此近年来在量子信息领域受到了广泛关注与研究. 在这方面, Y_2O_3 , YAG 等立方晶系的材料体系同样是首先被重点关注的宿主基质. 据 Kunkel 等^[62] 的详细研究, 在不添加烧结助剂, 通过热等静压 HIP 及后退火等技术制备得到的 0.1% $\text{Eu}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ 透明陶瓷的非均匀线宽可窄至 9 GHz, 均匀线宽窄至 3.2 kHz ($T_2 = 100 \mu\text{s}$), 均与 Macfarlane 等^[131] 报道的最优 2% $\text{Eu}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ 单晶的性能 ($T_h = 2.5 \text{ KHz}$, $T_2 = 130 \mu\text{s}$) 相比拟, 但其制备温度较单晶的制备温度低了约 800°C, 极大地降低了制备难度和成本. 相应地, 在核自旋性能表征上, $^{151}\text{Eu}^{3+}$ 和 $^{153}\text{Eu}^{3+}$ 离子在 Y_2O_3 透明陶瓷中同样具有较长的核自旋相干时间, 在 3 mT 磁场条件下达到了 16 ms, 与在 $\text{Eu}^{3+} : \text{YSO}$ 单晶中测得的数值相近 ($T_{2,\text{spin}} = 19 \text{ ms}$)^[132]. 除了研究 Eu^{3+} 离子的相干性能之外, Fukumori 等^[133] 于 2020 年在温度低于 100 mK, 磁场为 0.7 T 的条件下测得 20×10^{-6} Er^{3+} 离子掺杂的 Y_2O_3 透明陶瓷的光学均匀线宽可窄至 580 Hz, 是目前所有稀土离子掺杂透明陶瓷中测得的最小值. 进一步地, 在 2022 年的最新研究中, Gupta 等^[134] 成功在 $^{167}\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ 透明陶瓷中获得 7.1 ms 量级的核自旋相干时间. 通过对退相干机制的全面分析, 发现弹性 TLS, Er^{3+} 与 Y^{3+} 之间的超精细相互作用, 以及磁性杂质是影响 $\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{O}_3$ 透明陶瓷相干性能的主要因素. 因此, 通过改进材料的制备工艺和优化系统的量子控制能力, 有望进一步延长系统的相干时间, 并构筑量子逻辑门, 获得具有信息处理能力的可与现有电信技术相兼容的长相干量子设备.

4 总结与展望

微纳尺度固态稀土离子系统能够突破块状晶体的尺寸和掺杂浓度限制, 有利于实现单个稀土离

子量子态的高信噪比探测与操控, 获得其在量子信息应用领域的多种新功能或多功能集成^[93]. 因此, 随着量子信息科学与技术的快速发展和材料制备与微纳加工技术的不断成熟, 微纳尺度稀土离子晶体及其量子相干性能调控日益受到广大物理学家和材料学家的重视与竞相研究. 本文总结了稀土离子掺杂晶体在量子信息领域中被关注的基本性质和表征技术, 以及微纳尺度稀土离子晶体新平台包括纳米粉体、薄膜、腔增强微纳单晶、波导结构、透明陶瓷以及混合量子系统等在材料设计制备、量子相干性能测量与控制、以及退相干物理机理探索等方面的研究进展, 并对其在量子存储、量子频率转换、量子单光子源以及功能集成量子器件等量子器件开发取得的最新进展进行了总结和讨论.

目前, 受材料合成、控制和加工工程方面的影响, 本文提到的这些融合了新材料、新技术、新结构或新现象的稀土离子量子新平台仍有待进一步优化, 其量子相干性能和量子信息器件的发展依赖于各种技术的进步, 如材料合成制备、组分优化和精密加工技术的改进以及光学、电学、磁学、激光源和低温制冷等控制精度的提高等.

可用的策略包括: 首先, 改进材料制备和后处理工艺技术以降低缺陷或残余无序态对稀土离子相干态的影响. 如利用微波等离子体后处理工艺有效调节微纳晶体中的相关点缺陷, 可以显著提高稀土离子的量子相干性能; 使用新的材料制备技术直接制备出高结晶质量的纳米晶体, 避免高温煅烧工艺对材料形态和组分产生的不利影响.

其次, 开发对电噪声不敏感的新材料体系, 如通过采用非极性局部对称或小斯塔克系数的基质, 有助于稀土离子在微纳结构中实现稳定、狭窄的光学和核自旋跃迁. 在最近的研究中, 有学者在稳定无磁矩的宿主晶体 (如 MgO , PbWO_4 , ZnO , TiO_2 等) 中观察到近表面掺杂离子都展现出较窄的非均匀线宽. 然而, 与之相反, 通过掺杂一些具有较大磁矩与高自旋的离子而产生“嘈杂”的磁场环境, 搭配具有微纳尺度的光子晶体谐振腔, 则可以利用这种受限的、密集的核自旋系统构筑确定性的局部量子处理器.

此外, 尝试开发一些除 Y_2O_3 之外的稀土离子纳米粉体或薄膜, 如单斜晶系的 YSO, 四方晶系的 YVO 以及其他新材料新结构等^[85]. 在 YVO 结构中, 由于对称性导致的无电偶极矩特性可以进一

步探究纳米结构中电场扰动的来源, 进一步明确纳米结构中稀土离子的退相干机制. 在最新的研究报道中, Serrano 等^[135]开发了一种粉末形态的单核 Eu^{3+} 分子晶体, 并在该体系中观察到了 30 kHz 的光学均匀线宽, 与在 $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$ 纳米粉体中观察到的最窄线宽相当. 与之前研究的大多数有机分子都缺乏自旋自由度不同, 该研究在该 Eu^{3+} 分子晶体中成功演示了大于 95% 的核自旋极化、0.86% 的 AFC 相干光存储效率以及离子-离子相互作用的全光学控制, 为探索其高带宽二量子位量子门的研究奠定了基础.

另一方面, 在实验过程中通过各种技术手段来控制微纳结构中的各种光-电-磁与稀土离子之间的相互作用, 如利用块体单晶中采用的冻核效应、动态解耦技术以及 ZEFOZ 技术等^[20], 同样有望进一步提高和拓宽微纳尺度稀土离子晶体的量子相干性能. 同时, 进一步降低实验温度至 mK 量级, 也有助于降低 TLS 与稀土离子之间的相互作用, 进一步提高微纳尺度稀土离子晶体的量子相干性能, 开辟其新的应用领域.

参考文献

- [1] Xu F, Ma X, Zhang Q, Lo H K, Pan J W 2020 *Rev. Mod. Phys.* **92** 025002
- [2] Sangouard N, Simon C, de Riedmatten H, Gisin N 2011 *Rev. Mod. Phys.* **83** 33
- [3] Kimble H J 2008 *Nature* **453** 1023
- [4] Kok P, Munro W J, Nemoto K, Ralph T C, Dowling J P, Milburn G J 2007 *Rev. Mod. Phys.* **79** 797
- [5] Wehner S, Elkouss D, Hanson R 2018 *Science* **362** eaam9288
- [6] Paesani S, Borghi M, Signorini S, Mainos A, Pavesi L, Laing A 2020 *Nat. Commun.* **11** 2502
- [7] Hedges M P, Longdell J J, Li Y, Sellars M J 2010 *Nature* **465** 1052
- [8] 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
- [9] Saglamyurek E, Jin J, Verma V B, Shaw M D, Marsili F, Nam S W, Oblak D, Tittel W 2015 *Nat. Photonics* **9** 83
- [10] Guo M C, Liu S P, Sun W Y, Ren M M, Wang F D, Zhong M J 2023 *Front. Phys.* **18** 21303
- [11] Dutt M V G, Childress L, Jiang L, Togan E, Maze J, Jelezko F, Zibrov A, Hemmer P R, Lukin M D 2007 *Science* **316** 1312
- [12] Tamini u T H, Cramer J, van der Sar T, Dobrovitski V V, Hanson R 2014 *Nat. Nanotechnol.* **9** 171
- [13] O'Brien C, Lauk N, Blum S, Morigi G, Fleischhauer M 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 063603
- [14] Degen C L, Reinhard F, Cappellaro P 2017 *Rev. Mod. Phys.* **89** 035002
- [15] Wolfowicz G, Heremans F J, Anderson C P, Kanai S, Seo H, Gali A, Galli G, Awschalom D D 2021 *Nat. Rev. Mater.* **6** 906
- [16] Thiel C W, B ttger T, Cone R L 2011 *J. Lumin.* **131** 353
- [17] Hull R, Parisi J, Osgood R M, Warlimont H, Liu G, Jacquier B 2005 *Spectroscopic Properties of Rare Earth in Optical Materials* (Vol. 1) (Berlin: Springer-Verla) pp204–213
- [18] Macfarlane R M 2002 *J. Lumin.* **100** 1
- [19] 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
- [20] 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
- [21] Tittel W, Afzelius M, Chane li re T, Cone R L, Kr  ll S A, Moiseev S, Sellars M 2010 *Laser Photonics Rev.* **4** 244
- [22] Ortu A, Holz pfel A, Etesse J, Afzelius M 2022 *npj Quantum Inf.* **8** 29
- [23] Simon C, Afzelius M, Appel J, de la Giroday A B, Dewhurst S J, Gisin N, Hu C Y, Jelezko F, Kr  ll S, M  ller J H, Nunn J, Polzik E S, Rarity J G, de Riedmatten H, Rosenfeld W, Shields A J, Sk  ld N, Stevenson R M, Thew R, Walmsley I A, Weber M C, Weinfurter H, Wrachtrup J, Young R J 2010 *Eur. Phys. J. D* **58** 1
- [24] Duan L M, Lukin M D, Cirac J I, Zoller P 2001 *Nature* **414** 413
- [25] Hiraishi M, IJspeert M, Tawara T, Adachi S, Kaji R, Omi H, Gotoh H 2019 *Opt. Lett.* **44** 4933
- [26] Welinski S, Woodburn P T, Lauk N, Cone R L, Simon C, Goldner P, Thiel C W 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 247401
- [27] Probst S, Rotzinger H, W  nsch S, Jung P, Jerger M, M Siegel, Ustinov A V, Bushev P A 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 157001
- [28] Fernandez-Gonz  lvo X, Chen Y H, Yin C, Rogge S, Longdell J J 2015 *Phys. Rev. A* **92** 062313
- [29] Kornher T, Xiao D W, Xia K, Sardi F, Zhao N, Kolesov R, Wrachtrup J 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 170402
- [30] Kinos A, Hunger D, Kolesov R, M  lmer K, de Riedmatten H, Goldner P, Talla re A, Morvan L, Berger P, Welinski S, Karrai K, Rippe L, Kr  ll S, Walther A 2021 *arXiv: 2103.15743 [Quantum Physics]*
- [31] Kinos A, Rippe L, Kr  ll S, Walther A 2021 *Phys. Rev. A* **104** 052624
- [32] Kinos A, Rippe L, Serrano D, Walther A, Kr  ll S 2022 *Phys. Rev. A* **105** 032603
- [33] Wang P, Luan C Y, Qiao M, Um M, Zhang J, Wang Y, Yuan X, Gu M, Zhang J, Kim K 2021 *Nat. Commun.* **12** 233
- [34] de Riedmatten H, Afzelius M, Staudt M U, Simon C, Gisin N 2008 *Nature* **456** 773
- [35] Ma Y, Ma Y Z, Zhou Z Q, Li C F, Guo G C 2021 *Nat. Commun.* **12** 2381
- [36] Heinze G, Hubrich C, Halfmann T 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 033601
- [37] Clausen C, Usmani I, Bussi eres F, Sangouard N, Afzelius M, de Riedmatten H, Gisin N 2011 *Nature* **469** 508
- [38] Liu X, Hu J, Li Z F, Li X, Li P Y, Liang P J, Zhou Z Q, Li C F, Guo G C 2021 *Nature* **594** 41
- [39] Rakonjac J V, Lago-Rivera D, Seri A, Mazzera M, Grandi S, de Riedmatten H 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 210502
- [40] Usmani I, Clausen C, Bussi eres F, Sangouard N, Afzelius M, Gisin N 2012 *Nat. Photonics* **6** 234
- [41] Rakonjac J V, Corrielli G, Lago-Rivera D, Seri A, Mazzera M, Grandi S, Osellame R, de Riedmatten H 2022 *Sci. Adv.* **8** eabn3919
- [42] Lago-Rivera D, Grandi S, Rakonjac J V, Seri A, de

- Riedmatten H 2021 *Nature* **594** 37
- [43] Tiranov A, Strassmann P C, Lavoie J, Brunner N, Huber M, Verma V B, Nam S W, Mirin R P, Lita A E, Marsili F, Afzelius M, Bussi eres F, Gisin N 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 240506
- [44] Kutluer K, Distante E, Casabone B, Duranti S, Mazzeri M, Riedmatten H 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 030501
- [45] Zhou Z Q, Hua Y L, Liu X, Chen G, Xu J S, Han Y J, Li C F, Guo G C 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 070502
- [46] Ferguson K R, Beavan S E, Longdell J J, Sellars M J 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 020501
- [47] Beavan S E, Hedges M P, Sellars M J 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 093603
- [48] Sabooni M, Li Q, Kr  ll S, Rippe L 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 133604
- [49] Jobez P, Usmani I, Timoney N, Laplane C, Gisin N, Afzelius M 2014 *New J. Phys.* **16** 083005
- [50] Schraft D, Hain M, Lorenz N, Halfmann T 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 073602
- [51] Davidson J H, Lefebvre P, Zhang J, Oblak D, Tittel W 2020 *Phys. Rev. A* **101** 042333
- [52] Bussi eres F, Clausen C, Tiranov A, Korzh B, Verma V B, Nam S W, Marsili F, Ferrier A, Goldner P, Herrmann H, Silberhorn C, Sohler W, Afzelius M, Gisin N 2014 *Nat. Photonics* **8** 775
- [53] Usmani I, Afzelius M, de Riedmatten H, Gisin N 2010 *Nat. Commun.* **1** 12
- [54] Rippe L, Julsgaard B, Walther A, Ying Y, Kr  ll S 2008 *Phys. Rev. A* **77** 022307
- [55] Kolesov R, Xia K, Reuter R, St  hr R, Zappe A, Meijer J, Hemmer P R, Wrachtrup J 2012 *Nat. Commun.* **3** 1029
- [56] Perrot A, Goldner P, Giaume D, Lovri  M, Andriamiadamanana C, Gon alves R R, Ferrier A 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 203601
- [57] Scarafagio M, Tallaire A, Tielrooij K J, Cano D, Grishin A, Chavanne M H, Koppens F, Ringu  d  A, Cassir M, Serrano D, Goldner P, Ferrier A 2019 *J. Phys. Chem. C* **123** 13354
- [58] McAuslan D L, Longdell J J, Sellars M J 2009 *Phys. Rev. A* **80** 062307
- [59] Becher C, Gao W, Kar S, Marciniak C D, Monz T, Bartholomew J G, Goldner P, Loh H, Marcellina E, Goh K E J, Koh T S, Weber B, Mu Z, Tsai J Y, Yan Q, Huber-Loyola T, H  f ling S, Gyger S, Steinhauer S, Zwiller V 2023 *Mater. Quantum Technol.* **3** 012501
- [60] Levenson M D L, Yen W, 1987 *Lasers, Spectroscopy and New Ideas* (Vol. 1) (Berlin: Springer-Verla) pp205–206
- [61] Stoneham A M 1969 *Rev. Mod. Phys.* **41** 82
- [62] Kunkel N, Bartholomew J, Welinski S, Ferrier A, Ikesue A, Goldner P 2016 *Phys. Rev. B* **94** 184301
- [63] B  ttger T, Thiel C W, Sun Y, Cone R L 2006 *Phys. Rev. B* **73** 075101
- [64] Goldner P, Ferrier A, Guillot-No  l O 2015 *Rare Earth-doped Crystals for Quantum Information Processing* (Vol. 1) (Amsterdam: Elsevier) pp1–78
- [65] Hahn E L 1950 *Phys. Rev. B* **80** 580
- [66] Kurnit N A, Abella I D, Hartmann S R 1964 *Phys. Rev. Lett.* **13** 567
- [67] Scully M O, Zubairy M S 1997 *Quantum Optics* (Vol. 1) (Cambridge: University Press) pp156–158
- [68] Abragam A 1983 *The Principles of Nuclear Magnetism* (Vol. 1) (Oxford: Oxford University Press) pp19–36
- [69] Brewer R G, Shoemaker R L 1972 *Phys. Rev. A* **6** 2001
- [70] Zhong T, Goldner P 2019 *Nanophotonics* **8** 2003
- [71] Kunkel N, Goldner P 2018 *Z. Anorg. Allg. Chem.* **644** 66
- [72] Dibos A M, Raha M, Phenicie C M, Thompson J D 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 243601
- [73] Williamson L A, Chen Y H, Longdell J J 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 203601
- [74] Zhong T, Kindem J M, Bartholomew J G, Rochman J, Craiciu I, Miyazono E, Bettinelli M, Cavalli E, Soni V, Nam S W, Marsili F, Shaw M D, Beyer A D, Faraon A 2017 *Science* **357** 1392
- [75] Ahlefeldt R L, Pearce M J, Hush M R, Sellars M J 2020 *Phys. Rev. A* **101** 012309
- [76] Grimm M, Beckert A, Aepli G, M  ller M 2021 *PRX Quantum* **2** 010312
- [77] Gouzien E, Sangouard N 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 140503
- [78] Meltzer R S, Hong K S 2000 *Phys. Rev. B* **61** 3396
- [79] Utikal T, Eichhammer E, Petersen L, Renn A, G  tzinger S, Sandoghdar V 2014 *Nat. Commun.* **5** 3627
- [80] Eichhammer E, Utikal T, G  tzinger S, Sandoghdar V 2015 *New J. Phys.* **17** 083018
- [81] Liu S, Serrano D, Fossati A, Tallaire A, Ferrier A, Goldner P 2018 *RSC Advances* **8** 37098
- [82] Liu S, Fossati A, Serrano D, Tallaire A, Ferrier A, Goldner P 2020 *ACS Nano* **14** 9953
- [83] Casabone B, Benedikter J, H  t  mmer T, Oehl F, de Oliveira Lima K, Haensch T W, Ferrier A, Goldner P, de Riedmatten H, David H 2018 *New J. Phys.* **20** 095006
- [84] Casabone B, Deshmukh C, Liu S, Serrano D, Ferrier A, H  t  mmer T, Goldner P, Hunger D, de Riedmatten H 2021 *Nat. Commun.* **12** 3570
- [85] Zhong T, Kindem J M, Miyazono E, Faraon A 2015 *Nat. Commun.* **6** 8206
- [86] Zhong T, Kindem J M, Rochman J, Faraon A 2017 *Nat. Commun.* **8** 14107
- [87] 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
- [88] Raha M, Chen S, Phenicie C P, Ourari S, Dibos A M, Thompson J D 2020 *Nat. Commun.* **11** 1605
- [89] Chen S, Raha M, Phenicie C M, Ourari S, Thompson J D 2020 *Science* **370** 592
- [90] Rice P R, Carmichael H J 1988 *IEEE J. Quantum Electron* **24** 1351
- [91] de Oliveira Lima K, Rocha Gon alves R G, Giaume D, Ferrier A, Goldner P 2015 *J. Lumin.* **168** 276
- [92] Bartholomew J G, de Oliveira Lima K, Ferrier A, Goldner P 2017 *Nano Lett.* **17** 778
- [93] Alqedra M K, Deshmukh C, Liu S, Serrano D, Horvath S P, Rafie-Zinedine S, Abdelatif A, Rippe L, Kr  ll S, Casabone B, Ferrier A, Tallaire A, Goldner P, de Riedmatten H, Walther A 2023 arXiv: 2303.02054 [Quantum Physics]
- [94] Ferrier A, Thiel C W, Tumino B, Ram  rez M O, Baus   L E, Cone R L, Ikesue A, Goldner P 2013 *Phys. Rev. B* **87** 041102
- [95] Serrano D, J Karlsson, Fossati A, Ferrier A, Goldner P 2018 *Nat. Commun.* **9** 2127
- [96] Serrano D, Deshmukh C, Liu S, Tallaire A, Ferrier A, Riedmatten H, Goldner P 2019 *Phys. Rev. B* **100** 144304
- [97] Fossati A, Liu S, Karlsson J, Ikesue A, Tallaire A, Ferrier A, Serrano D, Goldner P 2020 *Nano Lett.* **20** 7087
- [98] Ferrier A, Harada N, Scarafagio M, Briand E, Ganem J, Vickridge I, Seyeux A, Marcus P, Serrano D, Goldner P, Tallaire A 2020 *J. Phys. Chem. C* **124** 19725
- [99] Flinn G P, Jang K W, Ganem J J, Jones M L, Meltzer R S, Macfarlane R M 1994 *J. Lumin.* **58** 374

- [100] Harada N, Ferrier A, Serrano D, Persechino M, Briand E, Bachelet R, Vickridge I, Ganem J J, Goldner P, Tallaire A [2020 *J. Appl. Phys.* **128** 055304](#)
- [101] Singh M K, Prakash A, Wolfowicz G, Wen J, Huang Y, Rajh T, Awschalom D D, Zhong T, Guha S [2020 *APL Materials* **8** 031111](#)
- [102] Harada N, Tallaire A, Serrano D, Seyeux A, Marcus P, Portier X, C Labbé, Goldner P, Ferrier A [2022 *Mater. Adv.* **3** 300](#)
- [103] Wicker C, Huang Y, Qiao H, Singh M, Prakash A, Dibos A, Guha S, Zhong T [2020 *2020 IEEE Photonics Conference \(IPC\), Virtual Conference, September 28–October 1, 2020* p1](#)
- [104] Cano D, Ferrier A, Soundarapandian K, Reserbat-Plantey A, Scarafagio M, Tallaire A, Seyeux A, Marcus P, de Riedmatten H, Goldner P, Koppens F H L, Tielrooij K J [2020 *Nat. Commun.* **11** 4094](#)
- [105] Probst S, Tkalec A, Rotzinger H, Rieger D, Le Floch J M, Goryachev M, Tobar M E, Ustinov A V, Bushev P A [2014 *Phys. Rev. B* **90** 100404](#)
- [106] Ulanowski A, Merkel B, Reiserer A [2022 *Sci. Adv.* **8** eabo4538](#)
- [107] Lau H K, Qiao H, Clerk A A, Zhong T [2022 arXiv: 2208.00886 \[Quantum Physics\]](#)
- [108] Lauritzen B, Hastings-Simon S R, Riedmatten H de, Afzelius M, Gisin N [2008 *Phys. Rev. A* **78** 043402](#)
- [109] Miyazono E, Zhong T, Craiciu I, Kindem J, Faraon A [2016 *Appl. Phys. Lett.* **108** 011111](#)
- [110] Merkel B, Ulanowski A, Reiserer A [2020 *Phys. Rev. X* **10** 041025](#)
- [111] Ruskuc A, Wu C J, Rochman J, Choi J, Faraon A [2022 *Nature* **602** 408](#)
- [112] Zhong T, Kindem J M, Bartholomew J G, Rochman J, Craiciu I, Verma V, Nam S W, Marsili F D, Shaw M D, Beyer A, Faraon A [2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 183603](#)
- [113] Bartholomew J G, Rochman J, Xie T, Kindem J M, Ruskuc A, Craiciu I, Lei M, Faraon A [2020 *Nat. Commun.* **11** 3266](#)
- [114] Calmano T, Siebenmorgen J, Hellmig O, Petermann K, Huber G [2010 *Appl. Phys. B* **100** 131](#)
- [115] Corrielli G, Seri A, Mazzeri M, Osellame R, Riedmatten H de [2016 *Phys. Rev. Appl.* **5** 054013](#)
- [116] 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](#)
- [117] Weis R S, Gaylord T K [1985 *Appl. Phys. A* **37** 191](#)
- [118] Sinclair N, Saglamyurek E, Mallahzadeh H, Slater J A, George M, Ricken R, Hedges M P, Oblak D, Simon C, Sohler W, Tittel W [2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 053603](#)
- [119] Curtz N, Thew R, Simon C, Gisin N, Zbinden H [2010 *Opt Express* **18** 22099](#)
- [120] Li M, Ling J, He Y, Javid U A, Xue S, Lin Q [2020 *Nat. Commun.* **11** 4123](#)
- [121] Guarino A, Poberaj G, Rezzonico D, Degl' Innocenti R, Günter P [2007 *Nat. Photonics* **1** 407](#)
- [122] Sinclair N, Saglamyurek E, George M, Ricken R, la Mela C, Sohler W, Tittel W [2010 *J. Lumin.* **130** 1586](#)
- [123] Sinclair N, Oblak D, Thiel C W, Cone R L, Tittel W [2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 110504](#)
- [124] Vredenberg A M, Hunt N E J, Schubert E F, Jacobson D C, Poate J M, Zydzik G J [1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 517](#)
- [125] Yin C, Rancic M, de Boo G G, Stavrias N, McCallum J C, Sellars M J, Rogge S [2013 *Nature* **497** 91](#)
- [126] Lansbergen G P, Rahman R, Wellard C J, Woo I, Caro J, Collaert N, Biesemans S, Klimeck G, Hollenberg L C L, Rogge S [2008 *Nat. Phys.* **4** 656](#)
- [127] Wicker C, Huang Y, Qiao H, Zhong T [2021 *Conference on Lasers and Electro-Optics San Jose, California, United States, May 9–14, 2021* pFTh1 P.6](#)
- [128] Bharuth-Ram K, Vetter U, Hofsäss H, Ronning C, and Dietrich M [2002 *Nucl. Instrum. Meth. B* **190** 835](#)
- [129] Magyar A, Hu W, Shanley T, Flatté M E, Hu E, Aharonovich I [2014 *Nat. Commun.* **5** 3523](#)
- [130] Xia K, Sardi F, Sauerzapf C, Kornher T, Becker H W, Kis Z, Kovacs L, Dertli D, Foglszinger J, Kolesov R, Wrachtrup J [2022 *Optica* **9** 445](#)
- [131] Macfarlane R M, Shelby R M [1981 *Opti. Commun.* **39** 169](#)
- [132] Karlsson J, Kunkel N, Ikesue A, Ferrier A, Goldner P [2017 *J. Phys.: Condens. Matter* **29** 125501](#)
- [133] Fukumori R, Huang Y, Yang J, Zhang H, Zhong T [2020 *Phys. Rev. B* **101** 214202](#)
- [134] Gupta S, Wu X, Zhang H, Yang J, Zhong T [2022 arXiv: 2207.02708 \[Quantum Physics\]](#)
- [135] Serrano D, Kuppusamy S K, Heinrich B, Fuhr O, Hunger D, Ruben M, Goldner P [2022 *Nature* **603** 241](#)

REVIEW

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

Guo Mu-Cheng¹⁾²⁾ Wang Fu-Dong¹⁾²⁾³⁾ Hu Zhao-Gao¹⁾²⁾ Ren Miao-Miao¹⁾²⁾
 Sun Wei-Ye¹⁾²⁾ Xiao Wan-Ting¹⁾²⁾ Liu Shu-Ping^{1)2)3)†} Zhong Man-Jin^{1)2)3)‡}

1) (*Shenzhen Institute for Quantum Science and Engineering, Southern University of Science and Technology (SUSTech), Shenzhen 518055, China*)

2) (*Shenzhen International Quantum Academy (SIQA), Shenzhen 518048, China*)

3) (*Guangdong Provincial Key Laboratory of Quantum Science and Engineering, Southern University of Science and Technology (SUSTech), Shenzhen 518055, China*)

(Received 11 November 2022; revised manuscript received 25 March 2023)

Abstract

Rare-earth ion doped crystals possess stable solid state physicochemical properties and long optical coherence time and spin coherence time, thus showing important development prospect in quantum information science and technology area. Investigations on macroscopic bulk rare-earth single crystals have obtained many promising results, especially in the field of optical quantum memory. With the rapid development of quantum information science, a variety of new functions or multifunctional integrations are found in rare earth crystal systems, such as on chip quantum storage, microwave to optical frequency conversion, scalable quantum single photon sources, and quantum logic gates. As a result, beyond the macroscopic bulk rare-earth single crystals, micro/nano-scale rare-earth crystals have received much attention in recent years and they are regarded as promising candidates in highly integrated hybrid quantum systems and miniaturized quantum devices. Moreover, wet chemical method synthesized micro/nano-scale rare-earth crystals have lower growth difficulty and more flexible manipulation in volume, shape and composition. Therefore, exploring high-performance micro/nano-scale rare-earth crystals and precisely manipulating their quantum states have become one of the important directions in today's quantum information science and technology research. In this review, we first briefly introduce the basic concepts and high resolution spectroscopic techniques that are commonly used in rare earth ion doped crystals for quantum information science and technologies, such as hole burning technique and photon echo technique. Then we summarize comprehensively recent research status and development trends of rare earth ion doped polycrystalline nanoparticles, thin films, single crystal based micro systems, and some other micro/nano-scale rare earth platforms in terms of material fabrication, quantum coherence property, dephasing mechanisms, and also quantum device explorations. The latest research advances in quantum information applications such as quantum storage, quantum frequency conversion, quantum single photon sources and quantum logic gates are given. Finally, we discuss the possible optimization directions and strategies to improve the component design, material synthesis and quantum performance of micro/nano-scale rare earth crystals and their related quantum devices. This review highlights that the micro/nano-scale rare earth crystals may offer many new possibilities for designing quantum light-matter interfaces, thus are promising quantum systems to develop scalable and integrated quantum devices in the future.

Keywords: quantum information, quantum device, rare earth ions, quantum manipulation

PACS: 03.67.–a, 42.50.Ct, 32.80.Qk, 81.07.–b

DOI: 10.7498/aps.72.20222166

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11904159, 12004168), the Basic and Applied Basic Research Foundation of Guangdong Province, China (Grant No. 2021A1515110191), the “Pearl River Talent Plan” Innovative and Entrepreneurial Research Team Program of Guangdong Province, China (Grant No. 2019ZT08X324), and the Guangdong Provincial Key Laboratory of Quantum Science and Engineering, China (Grant No. 2019B121203002).

† Corresponding author. E-mail: liusp@sustech.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: Zhongmj@sustech.edu.cn

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

郭牧城 汪福东 胡肇高 任苗苗 孙伟业 肖婉婷 刘书萍 钟满金

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

Guo Mu-Cheng Wang Fu-Dong Hu Zhao-Gao Ren Miao-Miao Sun Wei-Ye Xiao Wan-Ting Liu Shu-Ping Zhong Man-Jin

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 120302 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20222166

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222166>

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

复杂氧化物中电子相分离的量子调控

Quantum manipulation of electronic phase separation in complex oxides

物理学报. 2018, 67(22): 227502 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20182007>

量子相干

Quantum coherence

物理学报. 2019, 68(3): 030304 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181779>

量子存储研究进展

Research progress of quantum memory

物理学报. 2019, 68(3): 030307 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190039>

基于拉曼协议的量子存储

Raman protocol-based quantum memories

物理学报. 2019, 68(3): 034203 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20182215>

混合量子-经典算法: 基础、设计与应用

Hybrid quantum-classical algorithms: Foundation, design and applications

物理学报. 2021, 70(21): 210302 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210985>

Fe原子吸附的铋烯/WS₂异质结的磁电子性质及调控效应

Magneto-electronic properties and manipulation effects of Fe-adsorbed Sb/WS₂ heterostructure

物理学报. 2022, 71(21): 218503 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220949>