面向量子应用的纳米尺度克拉默斯稀土离子光学相干性质

Mohammed K. Alqedra, [1,*] Chetan Deshmukh, [2,*] Shuping Liu, [3,4] Diana Serrano, [3] Sebastian P. Horvath, [1] Safi Rafie-Zinedine, [1] Abdullah Abdelatief, [1] Lars Rippe, [1] Stefan Kr¨oll, [1] Bernardo Casabone, [2] Alban Ferrier, [3,5] Alexandre Tallaire, [3] Philippe Goldner, [3] Hugues de Riedmatten, [2,6] 和 Andreas Walther[1]

[1] *Department of Physics, Lund University, P.O. Box 118, SE-22100 Lund, Sweden*
[2] *ICFO-Institut de Ciencies Fotoniques, The Barcelona Instituteof Science and Technology, 08860 Castelldefels, Barcelona, Spain*[3] *Chimie ParisTech, PSL University, CNRS, Institut de Recherche de Chimie Paris, 75005 Paris, France*[4] *Shenzhen Institute for Quantum Science and Engineering,Southern University of Science and Technology, 518055 Shenzhen, China*[5] *Faculté des Sciences et Ingénierie, Sorbonne Université, UFR 933, 75005 Paris, France*
[6] *ICREA-Institució Catalana de Recerca i Estudis Avaçats, 08015 Barcelona, Spain*（日期：2023年3月6日）

arXiv:2303.02054v1 [quant-ph] 3 Mar 2023

掺杂稀土（RE）离子的纳米材料是多种量子技术应用的理想候选材料。在稀土离子中，所谓的克раmers 离子在低磁场下具有 GHz范围的自旋跃迁，因此可用于高带宽多模量子存储、快速量子比特操作以及与超导电路接口。此外，它们在红外区域也具有相关的光学跃迁。特别是，Er^{3+} 在电信波段具有光学跃迁，而 Nd^{3+} 则具有一个接近 890 nm 的高发射率跃迁。本文测量了这些材料在量子技术应用中具有重要意义的光谱学性质。我们发现，Er^{3+} 的非均匀线宽为 10.7 GHz，Nd^{3+}的非均匀线宽为 8.2 GHz；Er^{3+} 的激发态寿命 T_1 为 13.68 ms，而 Nd^{3+}的激发态寿命 540 μ为 s。我们研究了两个样品的均匀线宽随温度的变化：在 3 K 测得的 Er^{3+} 线宽最窄，为 379 kHz（$T_2 = 839$ ns）；在 1.6 K 测得的 Nd^{3+} 线宽最窄，为 62 kHz（$T_2 = 5.14$ μs）。此外，我们还考察了光谱扩散导致的均匀线宽随时间的展宽，以及均匀线宽对磁场的依赖性，以进一步了解可能影响相干时间的机制。结合这些结果，我们讨论了两种应用：单量子比特态读出和傅里叶极限单光子源。

I. 引言

掺杂在无机晶体中的稀土（RE）离子已被广泛研究，可作为量子应用的固态平台，包括量子存储器 [1–4], 、量子信息处理器 [5–8], 、量子传感器 [9, 10] 以及微波到光学转换器 [11, 12]。人们对此感兴趣，主要是因为在低温下，4f-4f跃迁具有极长的光学相干时间和自旋相干时间。其他原因还包括其高密度光谱存储能力；这一能力得益于分布在宽得多的非均匀展宽线（GHz）上的窄均匀展宽线（千赫兹）。因此，即使不同离子彼此相距仅数纳米，也能利用不同频率通道寻址其自旋态，从而有望实现高量子比特密度 [13–15]。对单个稀土离子进行高保真探测，对量子网络和量子计算等多种应用至关重要 [16, 17]。然而，稀土离子的4f-4f跃迁具有偶极禁戒特性，因此其自发辐射速率很低，这使得探测极具挑战性。

近年来，通过珀塞尔增强对微弱4f 跃迁的发射，已经使用不同类型的腔实现了单个稀土离子的探测 [18–22]。要将掺杂稀土离子的晶体集成到小模体积光学腔中，对基质晶体进行纳米结构化至关重要。在这方面，氧化钇（Y_2O_3）已成为一种极具前景的基质材料，这是因为掺杂到纳米尺度 Y_2O_3 中的稀土离子展现出了优异的相干特性 [23–27]。最近，掺杂到 Y_2O_3 纳米颗粒中的稀土离子也与高精细度光纤微腔耦合，实现了珀塞尔增强发射 [22, 28]。

在稀土离子中，所谓的克раmers 离子具有奇数个4f电子，包括铒（Er^{3+}）、钕（Nd^{3+}）和镱（Yb^{3+}）。由于它们具有较大的磁矩，因此能提供独特的可能性。即使在低磁场下，其自旋跃迁也可调谐至GHz范围，可用于高带宽多模量子存储 [29, 30]，快速量子比特操作 [19, 31]，，以及与超导量子比特接口 [32, 33]。

本文研究了两种最适用于量子应用的克раmers 离子：Er^{3+} 和 Nd^{3+}。Er^{3+} 中位于 1.5 μm 的 $^4I_{13/2} - {}^4I_{15/2}$ 跃迁处于电信波段，因此可轻松集成到现有商用光纤网络中，用于量子通信。Nd^{3+} 中的 $^4F_{3/2} – {}^4I_{9/2}$ 跃迁具有所有稀土离子中最高的振子强度之一，且分支比很高，

* 这些作者的贡献相同。

这两者共同使其非常有望在光学腔中实现高协同性 [34, 35]。

在本文中，我们对掺杂于 Y $^4I_{13/2} - {}^4I_{15/2}$ O^{3+} 纳米颗粒中的铒 $^4F_{3/2} - {}^4I_{9/2}$ 跃迁，以及掺杂于 Y^{3+} O_2纳米颗粒中的钕$_3$ 跃迁的光学光谱学性质进行了实验表征。在第 IIIA 节中，我们报告激发态寿命（T_1）以及非均匀线宽。在第 IIIB 节中，我们表征铒$^{3+}$ 和钕$^{3+}$ 的均匀线宽随温度的变化。在第 IIIC 节中，我们测量铒$^{3+}$中的时间依赖光谱扩散。在第 IIID 节中，我们研究钕$^{3+}$ 的均匀线宽对磁场的依赖关系。最后，根据我们的结果，我们在第 IV 节中概述两种可能的量子应用，即傅里叶极限单光子源和单量子比特态读出。

II. 实验

A. 材料

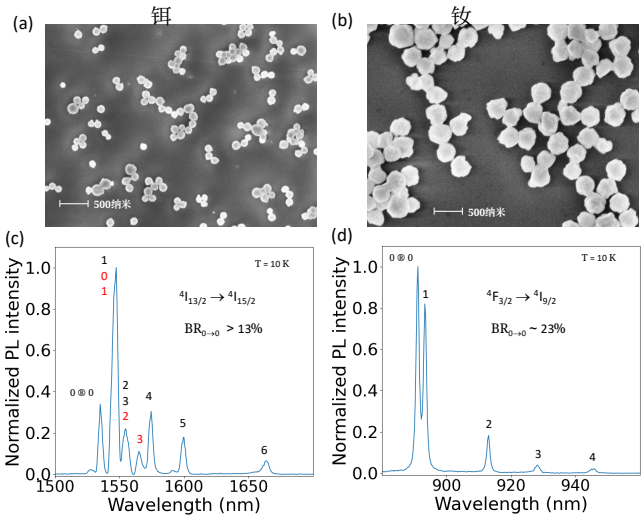


图 1. (a) Er^{3+}:Y_2O_3 纳米颗粒的扫描电子显微镜（SEM）图像，平均尺寸为 150 ± 13 nm；以及 (b) Pr^{3+}-Nd^{3+}:Y_2O_3 纳米颗粒的扫描电子显微镜图像，平均尺寸为 380 ± 24 nm。(c) 在 10 K 下，通过在 975 nm 激发 $^4I_{11/2}$ 能级，获得的 Er^{3+}:Y_2O_3 在 $^4I_{13/2} - {}^4I_{15/2}$ 跃迁处的荧光光谱。光谱中的不同峰被归属于从$^4I_{13/2}$ 多重态的最低能级跃迁至基态多重态（$^4I_{15/2}$）中不同能级的跃迁，分别对应位点 1（黑色）和位点 2（红色）。1548 nm 和 1555 nm 处的峰包含多条无法分辨的发射线。我们估计 1535 nm 处的 $0 \rightarrow 0$ 发射线的分支比下限为 13%。(d) 通过在 813 nm 激发 $^4F_{5/2}$能级，获得的 Pr^{3+}-Nd^{3+}:Y_2O_3 在 $^4F_{3/2} - {}^4I_{9/2}$ 跃迁处的光谱；测得 892 nm 处 $0 \rightarrow 0$ 发射线的分支比为 23%。

本研究考察了两批 Y_2O_3 纳米颗粒：一批掺杂 Er^{3+} (200 ppm 原子百分比)，其平均颗粒尺寸为 150 nm，另一批共掺杂 Nd^{3+} (100 ppm 原子百分比)和 Pr^{3+} (500 pm 原子百分比)离子，平均颗粒尺寸为 380 nm（图1(a)-(b)）。纳米颗粒通过均匀沉淀后进行高温退火制得。合成路线的详细描述见 [36, 37]。退火温度设为 900

°C，持续 6 h，用于 Er^{3+} 样品；Nd^{3+}-Pr^{3+} 样品则在 1200 °C 下处理 6 h。Er^{3+} 采用较低温度，以避免纳米颗粒尺寸较小而在退火过程中发生团聚。此外，Er^{3+} 纳米颗粒在纯 O_2 等离子体中处理两次，每次三分钟，以修复缺陷 [36]。通过扫描电子显微镜（SEM）评估颗粒尺寸、形貌和分散性，（图1(a)-(b)）。采用 Williamson-Hall 方法对纳米颗粒进行X射线衍射（XRD）分析，确定其为多晶，Er^{3+}和 Nd^{3+}-Pr^{3+} Y_2O_3的晶粒尺寸分别为 58 ± 11 nm 和 102 ± 10 nm。后者还证实，纳米颗粒呈纯立方相，空间群为 Ia-3（JCPDS 01-080-6433）。在该结构中，稀土离子占据两种不同的晶体位点，其点群对称性分别为C_2 和 S_6。本研究将考察位于 C_2 位点的 Er^{3+} 和 Nd^{3+} 离子的光谱学性质。

掺杂 Er^{3+} （200 ppm 原子百分比）和 Nd^{3+} （100 ppm 原子百分比）的 Y_2O_3 陶瓷也通过固相反应合成，作为块体参考样品。这些样品由商用 Y_2O_3 和 Er_2O_3 （或 Nd_2O_3）氧化物粉末（纯度为 99.99%）混合制成。将粉末在 5 MPa 压力下压制成压片，然后在空气气氛中于 1500 °C 退火 48 小时。所得陶瓷被切割成厚度为 ~ 260 μm 的薄片，用于光学测量。

B. 实验步骤

对于 Er^{3+} 的测量，关注的跃迁是$^4I_{13/2}$(0)$-{}^4I_{15/2}$(0)，波长约为 1535 nm，位于电信波段。激发光由一台波长为 1535 nm 的外腔二极管激光器产生，随后经掺铒光纤放大器放大，峰值功率达到 ~ 500 mW。放大后的光经过双程声光调制器（AOM）进行脉冲调制。随后，光通过中心波长为 1535 ± 3 nm 的带通滤光片，再由一枚焦距为 35 mm 的球面透镜聚焦到样品上。样品处的典型峰值功率为 ~ 150 mW。样品装在带针孔的铜样品架上，并置于闭循环低温恒温器的冷指上，最低可冷却至 3 K。安装在冷指上的加热器可用于升高样品温度。样品后的散射光随后由两枚球面透镜松散聚焦到雪崩光电二极管（APD）上，每枚透镜的焦距均为 60 mm。APD 的信号由示波器记录。对于双脉冲光子回波测量，

两个脉冲的持续时间均为 250 ns，脉冲间延迟在 150 ns 至 3 μs 之间变化。对于三脉冲光子回波测量，三个脉冲的持续时间均为 250 ns，前两个脉冲之间的延迟固定为 150 ns，而第二个与第三个脉冲之间的延迟在 3 μs 至 40 μs 之间变化。采用外差方案探测回波，其中外差脉冲的持续时间为 1 μs，频率失谐为 24 MHz。APD 产生的拍频信号通过截止频率为 $\sim$ 5MHz 的高通滤波器以滤除电子噪声，随后由示波器记录。所有测量均借助永磁体施加了一个大小为 $\sim$ 100 G的弱磁场。

对于 Nd^{3+}的测量，使用工作波长为 892 nm 的连续波钛宝石激光器照射 $^4F_{3/2}(0) - {}^4I_{9/2}(0)$ 跃迁。此外，还使用了双程声光调制器进行脉冲整形。为校准激光强度波动，在样品前将 10% 的入射光聚焦到参考探测器上。其余光束的功率为 $\sim$ 10 mW，并聚焦于样品上。使用铜制样品架将样品固定在浴式低温恒温器内，恒温器工作温度为 2.15 K。该低温恒温器配备了可产生最高 7 T 磁场的超导磁体系统。进行温度依赖性测量时，低温恒温器配置为使用氦交换气体进行冷却。收集样品后的散射光，并将其聚焦到雪崩光电二极管上。进行非均匀展宽谱线和寿命测量时，在探测器前安装了 900 nm 长通滤光片，以滤除激发光，同时允许部分荧光发射通过（见图1(d)）。进行相干性测量时，采用双脉冲光子回波序列，使用脉宽为 400 ns 的脉冲并直接探测回波。

图1(c)- (d)所示的低温发射光谱是在10 K下使用闭循环低温恒温器记录的。采用由Nd^{3+}:YAG Q开关激光器（Ekspla NT342BSH，脉冲宽度为6 ns，重复频率为10 Hz）泵浦的可调谐光学参量振荡器（OPO）进行激发。使用配备以下可见光和红外光栅的Acton SP2300光谱仪记录光谱：以1200纳米为中心的300条/mm光栅、以500纳米为中心的300条/mm光栅，以及600条/mm光栅，中心波长为1。2 μm。使用增强型电荷耦合器件相机（Princeton Instruments）和锗探测器检测Nd

$^{3+}$ 和 Er^{3+} 的发射，分别为。对于 Er^{3+}，激发波长设为 975 nm，同时收集来自 $^4I_{13/2} - {}^4I_{15/2}$ 跃迁的发射。我们注意到，图 1(c) 中的光谱包含来自 C_2 和 S_6 位点的谱线。我们估计 > 13 % 的分支比，对应于 Er $0 \to 0$ 离子在 $^{3+}$ 中的 C_2线，其中 0 表示给定 J多重态的最低晶场能级。然而，这只是一个下限值，因为并非所有S_6 发射线都能与 C_2的发射线分辨开来。对于 Nd^{3+}，激发波长设为 813 nm，同时在 $^4F_{3/2} - {}^4I_{9/2}$ 跃迁上于 880 至 940 nm 之间进行收集。我们估计其分支比为 23%，对应于 $0 \to 0$ 线；该值根据图 1(d) 中的光谱估算，并考虑了文献中给出的 $^4F_{3/2} - {}^4I_{9/2}$ 跃迁的分支比 [38]。与 Er^{3+}不同，Nd^{3+} 离子在S_6 中的$_2O_3$位点没有发射。

III. 结果

A. 非均匀线宽和寿命

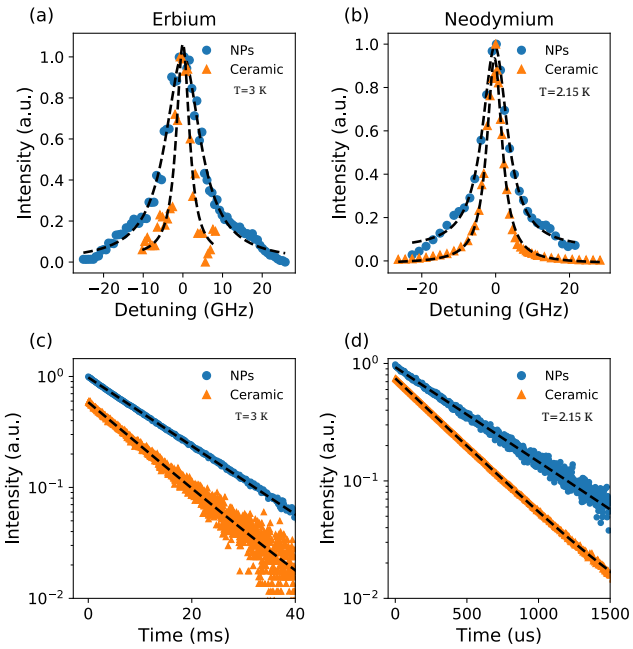


图2。（a）Er^{3+} 的 $0 \to 0$ 线的非均匀线宽在陶瓷（橙色三角形）中测得为3.98 GHz，在纳米颗粒（蓝色圆形）中测得为10.7 GHz；（b）Nd^{3+}的非均匀线宽在陶瓷（橙色三角形）中测得为5.03 GHz，在纳米颗粒（蓝色圆形）中测得为8.20 GHz。（c）Er^{3+}:Y_2O_3 激发态的寿命在陶瓷（橙色三角形）中测得为10.91 ms，在纳米颗粒（蓝色圆形）中测得为13.68 ms；（c）Nd^{3+}的寿命在陶瓷（橙色三角形）中测得为 373 μs，在纳米颗粒（蓝色圆形）中测得为 540 μs。

所有样品的光学非均匀谱线如图 2(a)-(b) 所示。对于 Er^{3+}:Y_2O_3, ，陶瓷样品中非均匀展宽谱线的中心位于 1535.43 nm，线宽为 3.98 GHz；而纳米颗粒中的谱线红移至 1535.48 nm，线宽为 10.7 GHz。这与 Er 3×10^{-4} :$Y^{3+}O_2$纳米颗粒通过 Williamson-Hall 分析得出的 2.$_3$ 拉伸应变一致。这里观测到的拉伸应变和光谱红移可能是由于样品采用了较低的退火温度（900 ℃）；较低温度通常不利于修复氧空位型缺陷 [36]。对于 Nd $^{3+}$:Y_2O_3, ，非均匀展宽谱线的中心位于

陶瓷样品中的中心位于 892.17 nm，线宽为 5 GHz；而纳米颗粒中的谱线蓝移至 892.16 nm，线宽为 8.2 GHz。XRD谱分析显示，此处存在 -2.5×10^{-5} 的轻微压缩应变。纳米颗粒样品中存在、而陶瓷样品中不存在的 Pr^{3+} (500 ppm) 共掺杂很可能是轻微蓝移和压缩应变的原因。共掺杂也可以解释 Pr^{3+}-Nd^{3+}:Y_2O_3 纳米颗粒中非均匀展宽谱线线宽的增宽[39]。对于 Er^{3+}:Y_2O_3 纳米颗粒，线宽增宽同样很可能与样品中较多的缺陷有关，这些缺陷与较低的退火温度以及额外的 O_2 等离子体处理[36]有关。

图2(c)-(d) 显示了所有样品的激发态寿命测量结果。对于 Er^{3+}:Y_2O_3, ，在 3 K 时测得的激发态寿命为：陶瓷样品中为 10.91 ms，纳米颗粒中为 13.68 ms；对于 Nd^{3+}:Y_2O_3 ，在 2.15 K 时，陶瓷样品中为 373 μs，而共掺杂纳米颗粒中为 540 μs。与陶瓷样品相比，纳米颗粒中自发辐射速率的降低，可以用纳米颗粒样品周围有效折射率的降低来解释。这与先前的研究结果一致：将 Eu^{3+} 掺杂纳米颗粒嵌入 PMMA层后，其自发辐射速率相比未嵌入时有所提高 [22, 40]。

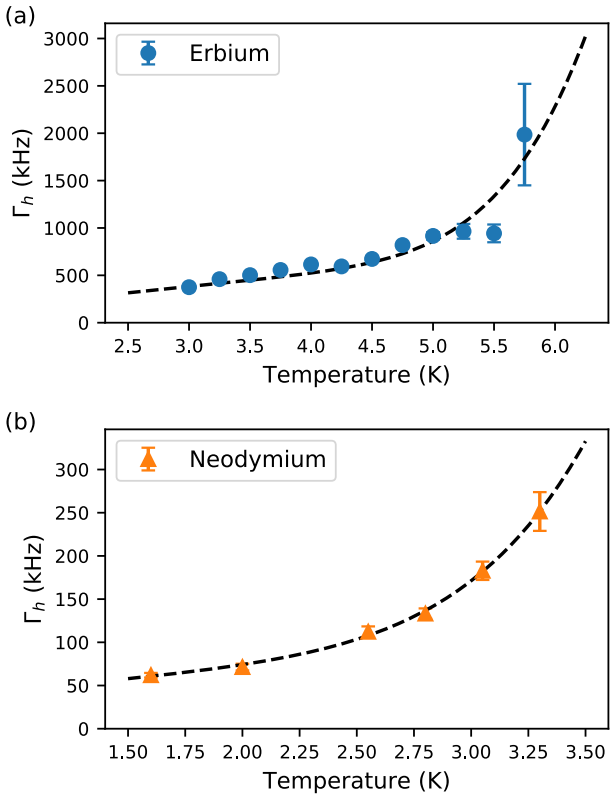


图 3. (a) Er 的均匀线宽$^{3+}$:Y_2O_3 纳米颗粒在磁场为 100 G 和 9.8 GHz。(b) Pr^{3+} 中 Nd 的均匀线宽$^{3+}$-Nd^{3+}:Y_2O_3 纳米颗粒在零磁场下随温度变化的测量结果。对公式（2）拟合得到 Γ_0 的上限为 34 千赫兹，且 $\alpha_M = 2.7$ Hz/K^9。误差条表示由拟合得到的 95% 置信区间。

B. 均匀线宽与温度的关系

通过在双脉冲光子回波序列中记录回波衰减，测量了所有样品的均匀线宽（详情见第IIB 节）。对于 Er^{3+}，在 3 K 温度和 100 G 磁场下，我们测得陶瓷样品的均匀线宽为 68 kHz（$T_2 = 4.65$ μs），而纳米颗粒的均匀线宽为 379 kHz（$T_2 = 839$ ns）。这表明，纳米颗粒中的退相干主要由缺陷和表面相关噪声主导，这与 Eu^{3+} 掺杂纳米颗粒中的情况一致 [36, 41]。随后，我们研究了均匀线宽随温度的变化，结果如图3(a) 所示。对于 $T < 4.5$ K，观察到线性变化，这表明 Er^{3+} 离子与双能级系统（TLS）发生相互作用；这些系统被认为源于纳米晶体中的残余无序 [41]。在较高温度下，温度依赖性增强。这可能是由于单声子吸收或自旋-晶格弛豫（SLR）引起基态或激发态布居变化，也可能是磁噪声或弹性拉曼散射（ERS）直接作用于光学跃迁所致 [37]。在所考察的温度范围内，Er^{3+} 的自旋-晶格弛豫（SLR）预计由 Orbach过程主导，该过程与最低能级之间的晶场分裂有关 ΔE，基态和激发态多重态的分裂分别为 39 和 31 cm^{-1} [42]。假设磁噪声源于 Er^{3+} 基态自旋本身，则所有对 Γ_h 的温度相关贡献均呈指数行为，除了对于低温下与 T^7 成正比的 ERS 项 [43]。实验 Γ_h 值可以拟合为以下表达式：

$$\Gamma_h(T) = \Gamma_0 + \alpha_{TLS}T + \alpha_{ERS}T^7 + \frac{\alpha_M}{exp(\frac{\Delta E}{k_bT}) - 1} \quad (1)$$

其中 k_B 是玻尔兹曼常数。在 $\Delta E = 39 cm^{-1}$条件下，我们得到 $\Gamma_0 = 9.8$ 千赫兹、 $\alpha_{TLS} = 121.7$ 千赫兹/K，以及 $\alpha_M = 11$GHz，且α_{ERS}的贡献可以忽略。根据 Er:Y 中的参数，可估算自旋寿命为数十 μs_2SiO_5 ，温度为 5 K [44], 时均匀展宽仅为数十千赫兹，因此我们将式 1 中的第二项归因于 Er^{3+} 基态自旋弛豫引起的磁噪声。

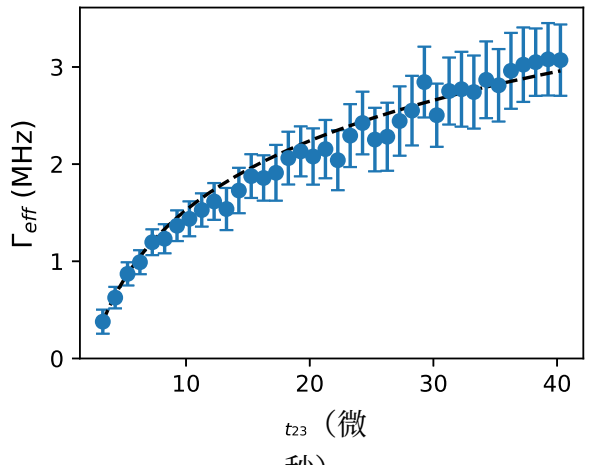
对于共掺杂颗粒中的 Nd^{3+} ，我们测得在无磁场、温度为 1.6 K 时，纳米颗粒的均匀线宽为 62 千赫兹（$T_2 = 5.14$ μs）。与 Er^{3+}掺杂颗粒相比，线宽更窄，这归因于 Nd^{3+} 颗粒尺寸较大且退火温度较高，从而降低了

与缺陷相关的展宽 [36]。这使得 Γ_h Nd 的数值$^{3+}$ 与在类似条件下合成的 Eu^{3+} 掺杂颗粒中测得的数值相近 [41]。图中展示了 1.6–3.25 K 范围内均匀线宽随温度的变化。3(b)。其分析采用了上文针对 Er^{3+} 纳米颗粒所述的方法，因为 Pr^{3+} 是非顺磁性的，不应对 Nd^{3+} 均匀展宽产生显著影响。然而，由于所研究的最高温度仅为 3.25 K，而 Nd^{3+} 基态和激发态能级分裂分别为 29 和 196 cm^{-1} (分别为 20 和 135 K)，自旋-晶格弛豫应主要由与 T^9 [45] 成正比的双声子拉曼过程主导，单声子吸收则可忽略。此外，低温下的激发态弛豫速率项也应可忽略 [41]。采用以下方程对数据进行拟合，所得结果最佳：

$$\Gamma_h(T) = \Gamma_0 + \alpha_{TLS} T + \alpha_M T^9 \qquad (2)$$

并给出了 Γ_0 的上限为34千赫兹， α_{TLS} =为40千赫兹/开尔文， $\alpha_{\mathrm{M}} = 2.7$ 为赫兹/开尔文^9。 α_{TLS} 小于铒$^{3+}$ 纳米颗粒的对应值，这表明结构缺陷浓度降低，这可能也归因于Nd^{3+}纳米颗粒尺寸较大且退火温度较高。

C. 铒纳米颗粒中的光谱扩散



Er 的有效均匀线宽$^{3+}$:Y_2O_3纳米颗粒随 t_{23} 的变化，测量采用三脉冲光子回波序列。虚线为对方程 4的拟合，得到 $\Gamma(t_0)$ = 379 千赫兹和 $\gamma = 2.3$ 兆赫兹。误差条表示拟合所得参数估计的一个标准差。

现在，我们采用三脉冲光子回波（3PPE）技术研究 Er^{3+}:Y_2O_3 纳米颗粒中的光谱扩散。该技术使我们能够探测均匀线宽在远长于相干时间的时间尺度上的展宽。为量化展宽 Γ_{eff} 随时间的变化，我们将 3PPE 技术中前两个脉冲之间的间隔 t_{12} 固定为 150 ns，同时改变第二个和第三个脉冲之间的间隔 t_{23} ，使其从 3 μs 变化到 40 μs。在这种 3PPE 技术中，回波振幅的衰减由 [46]给出：

$$E = E_0 \exp\left(\frac{-t_{23}}{T_1}\right) \exp(-2t_{12}\pi\Gamma_{\mathrm{eff}}), \qquad (3)$$

其中 T_1 为激发态寿命。我们测得 T_1 =13.68 毫秒（如上所测），且 3 μ秒 $\leq t_{23} \leq$ 40 μ秒。因此，对于我们的参数，第一项可忽略，回波振幅的所有衰减预计都来自 Γ_{eff}的展宽。我们首先记录回波振幅随 t_{23}的衰减。对于 $t_{23} = 3$ μ秒的第一个点，我们将 Γ_{eff} 设为 Γ_h 的取值，该值由 2PPE 技术获得，即 $\Gamma_{\mathrm{eff}} = 379$ 千赫兹。通过估算之后所有 t_{23}时回波振幅的相对衰减，我们提取出 Γ_{eff} 随 t_{23}的变化，如图 4所示。对于与双能级系统（TLS）耦合的系统，预计 Γ_{eff} 具有以下行为 [47]：

$$\Gamma_{\mathrm{eff}}(t_{12}, t_{23}) = \Gamma(t_0) + \gamma_{sd} \log_{10}\left(\frac{t_{23}}{t_0}\right), \qquad (4)$$

其中 t_0 是 $t_{12} + t_{23}$ 的最小值， γ_{sd} 是耦合系数。对于我们的情况， $t_0 \approx 3$ μs，且$\Gamma_0 = 379$ 千赫兹。将上文得到的 Γ_{eff} 拟合到方程（4），得到 $\gamma_{sd} = 2.3$ 兆赫兹。对于 Γ_{sd}而言，这是一个相对较高的数值。例如，Veissier 等人 [47] 测得 $\Gamma_{sd} = 0.4$ 在温度为 0.7 K 时，掺铒光纤的数值为兆赫兹。要对此进行研究，还需要进一步考察光谱扩散随温度的变化。

D. 钕纳米颗粒中均匀线宽与磁场的关系

具有电子自旋的克рамers 离子可能比其他离子对施加的磁场更敏感，因此对于量子应用而言，T_2 随磁场的变化关系值得关注。在不同磁场下，对 Nd^{3+}纳米颗粒进行了相干性测量。在图 5(a) 中绘出了回波面积随磁场的变化；施加某些磁场时，可以在回波衰减中观察到明显的调制。为提取相干时间和调制频率，我们将回波衰减拟合到以下方程 [26]：

$$I(t) = I \times e^{(-4t/T_2)} \times [1 + (m \times cos^2(\omega t/2))]^2 \qquad (5)$$

其中， T_2 为光学相干时间， m 为调制幅度， ω 为调制频率。

光学 Γ_h 随磁场的变化关系如图5(b)所示。调制频率范围为 200 千赫兹至 900 千赫兹。Zhong 等人等 在 Nd^{3+}:YVO_4, 中测得了类似的调制，并将其归因于 Nd^{3+}

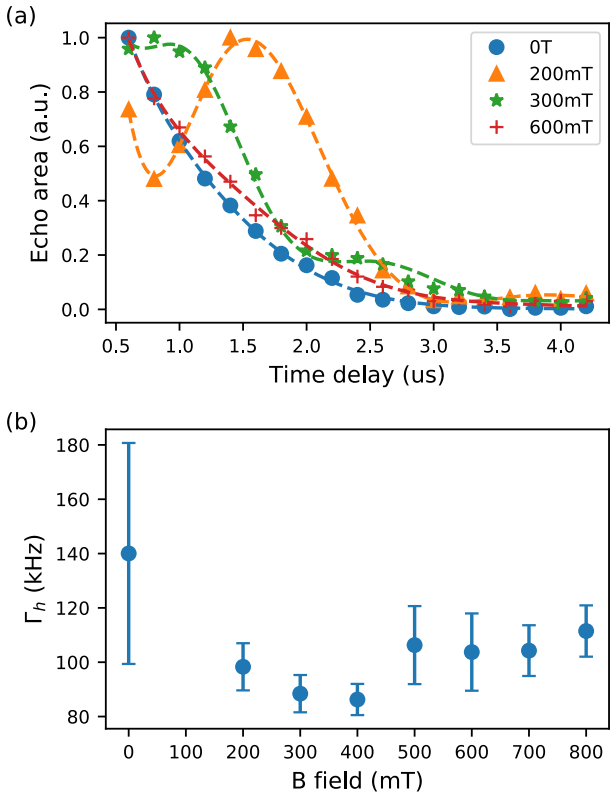


图5。（a）在Nd^{3+} 纳米颗粒中测得的0 T（蓝色）、200 mT（红色）、300 mT（绿色）和600 mT（品红色）下的光子回波衰减。（b）光学均匀线宽随磁场的变化。误差条表示根据拟合获得的95% 置信区间。

电子自旋与周围的 Y^{3+} 核自旋 [20]之间的相互作用。如图5(a)中的回波衰减曲线所示，在 0 T 时未观察到调制，因此拟合参数的误差条较大。正如补充材料中所述的哈密顿量所预测的那样，超超精细调制强烈依赖于磁场的大小；但由于采样受限，400 mT 之后未观察到调制频率增加。图5(b)中，约 100 千赫兹处均匀线宽的饱和可归因于超超精细极限，此时退相干由 Nd^{3+} 与周围钇核之间的相互作用决定 [34, 48, 49]。可能导致这种饱和的另一种效应是隧穿双能级系统 [25, 50]，，它会引起局部环境的波动，从而造成一定程度的退相干。结果表明，光学均匀线宽基本不受磁场影响，尤其是在零磁场下仍保持相当窄的线宽。这一特性十分有利，因为它使量子应用有望在无磁场条件下运行，从而简化装置，并避免其他物种（如量子比特离子）发生能级分裂。

IV. 应用

A. 单量子比特态读出

量子计算机（QC）的可扩展性要求能够快速且高保真度地检测单个量子比特的状态。由于稀土离子天然具有禁戒的电偶极跃迁，基于稀土离子的量子计算机方案面临这一挑战。然而，近期已有多项尝试利用Purcell增强效应来检测单个稀土离子 [19–21, 28]。在增强效应足够强的情况下，可以直接检测量子比特状态，或者使用另一个邻近离子作为读出量子比特 [19, 21, 51]。为避免腔增强导致量子比特激发态发生任何衰减，下面的讨论将考虑第二种方法。在这种方法中，可以通过将一个自旋量子比特状态激发到光学激发态，来检测邻近读出离子的量子比特离子状态。利用偶极阻塞机制 [51]，这会使读出离子的能级发生移动（如果布居的是另一个状态，则不会发生移动）。这意味着，可以通过区分离子发射光子与不发射光子（仅有背景）的光子计数来实现状态检测。为确保读出时间不会成为限制量子计算机速度的因素，读出应在与门操作时间尺度相当的时间尺度内完成。稀土系统中拟议门操作的典型持续时间为几微秒量级 [52]。此外，读出离子的均匀线宽会随着寿命缩短而变宽，因此应小于其与待检测的邻近量子比特离子之间的偶极-偶极相互作用所产生的频移。只有这样，在读出两个量子比特状态时，才能在光子计数中获得高对比度。

为了了解本研究测得的参数如何影响系统读取量子计算机（QC）的能力，我们考察当前的 Pr^{3+}-Nd^{3+}:Y_2O_3 系统，其中 Pr^{3+} (500 ppm) 作为量子比特，Nd^{3+} (100 ppm) 作为候选读出离子。随后，我们讨论一个以 Eu^{3+} 作为量子比特的理想系统。

较高的 Pr^{3+} 浓度增加了附近存在强相互作用量子比特离子与读出离子的概率，而这是偶极阻塞机制发挥作用的必要条件。根据我们测得的数据，评估 Nd^{3+} 离子的读出保真度表现会很有价值。

将发射体耦合到腔时，发射体的激发态寿命会缩短至 $T_c = T_1/(C+1)$，其中T_1 为自然寿命，T_c 为 Purcell 增强后的寿命，而 C 为 Purcell因子，其定义为 [53]

$$C = \zeta \frac{3\lambda^3}{4\pi^2}\frac{Q}{V_m} \tag{6}$$

其中，λ 为发射波长，Q 为谐振器的品质因数，V_m 为其模体积，ζ 为相应跃迁的分支比。

本研究所考察的纳米颗粒非常适合集成到基于光纤的微型腔

中。然而，颗粒造成的散射损耗是实现高 Q 值的主要挑战之一。尤其是对于 380 nm 的 Nd^{3+} 掺杂颗粒，在 892 nm 波长下，预计每次通过的散射损耗为 $\sim 8\%$。已制备出尺寸为 80 nm 的颗粒 [28],；若改用这类颗粒，散射损耗将降至 ~ 5 ppm。在此水平下，使用总透射率为 10 ppm 的腔镜 [54]，可获得加载腔精细度 3×10^5。对于精细度如此之高的加载腔，可达到 Q $\sim 2 \times 10^6$ 和 $V_m \sim 5\lambda^3$。根据公式 6，这对应于 Purcell 增强因子 C ~ 5000，以及$T_c \sim 100$ ns 的增强寿命。同样，使用类似的腔镜，加载本文所研究的 150 nm Er^{3+} 掺杂颗粒的腔也可达到 Q $\sim 10^5$ 和 $V_m \sim 5\lambda^3$。将颗粒尺寸减小至 100 nm 可降低散射损耗，从而使 Q 提高 3 倍。假设开放腔具有这些参数，则可得到 C ~ 5500 和 $T_c \sim 2$。对于 Er^{3+}，为将 Er^{3+} 激发态寿命缩短至 ~ 100 ns，从而实现快速、可靠的读出，其时间尺度与前文所述的门操作时间相当，需要精细度为 4×10^6、腔长为 $\sim 1\lambda$；这相当难以实现。本文仅将 Nd^{3+} 视为候选读出离子，其可实现的增强寿命为 100 ns。

假设开放腔具有上述讨论的参数，则预期的读出离子 Nd^{3+}的寿命将增强至 100 ns。若假定光学效率为合理的 10%，预计探测率为 10^6 光子/秒。由于光纤既用作腔镜，也用作输出耦合器，因此预计收集效率较高，其主要受腔与光纤之间的模式失配限制。

Debnath 等人提出了一种方案，通过对来自读出离子的探测光子进行贝叶斯分析，提取有关量子比特离子态的信息 [55]。在该方案中，探测率（在我们的案例中为 1 兆赫兹）取代了衰减率。为了根据该方案估算我们系统的读出保真度，我们假设相互作用位移（偶极阻塞）约为 5 兆赫兹，而腔增强寿命为 100 ns，对应的估计均匀线宽为 1.6 兆赫兹。考虑到量子比特激发态发射率为探测率的 ~ 140 倍（Pr^{3+}:Y_2O_3 [26] 的测量值为 $T_1 \sim 140$ μs），该方案估算经过约 10 μs 后，读出保真度可达 $\sim 94\%$。值得注意的是，10–100 兆赫兹的相互作用位移与相距几纳米的离子之间的位移相符；在我们的掺杂浓度下，这正是稀土离子之间的典型间距。如果改用 Eu^{3+} 作为候选量子比特，其激发态寿命为 ~2 ms，那么经过 10 μs 后，保真度可提升至 $\sim 99\%$ [15]）。该保真度受量子比特离子有限寿命的限制，因为如果它在探测期间自发衰变，就会导致态信息丢失。不过，可以通过将一个量子比特专门用作读出离子的缓冲量子比特，将任何需要读出的其他量子比特的态转移到该缓冲量子比特上，从而缓解这一问题；具体细节见参考文献 [51]。这样，缓冲离子便能保护量子比特的态信息免受衰变事件的影响。在量子比特与缓冲离子之间循环几次，可以显著提高读出保真度，使其达到 99.9%。代价是将探测时长延长至 $\sim$ 25-40 μs；其上限仅受转移脉冲期间量子比特衰变的限制，因为这些脉冲用于将量子比特态投影到缓冲离子上。

B. 傅里叶极限单光子的来源

单个铒离子由于在电信波长发射，是用作量子网络中量子节点的理想候选者。此外，固态基质中空间上彼此接近的铒离子可实现多量子比特操作，这在量子网络中极为理想。将单发射体用作量子节点的一项关键要求是，发射的光子应当不可区分。在光谱域，这意味着光子应达到傅里叶变换极限。要从单个铒离子中提取傅里叶极限光子，我们需要满足 $T_2 = 2T_1$，其中 T_1 是激发态的寿命，T_2 是相干时间。对于本研究中在温度为 3 K 时测得的 Er^{3+}:Y_2O_3 纳米颗粒参数，即 $T_1 = 13.7$ ms 和$T_2 = 839$ ns，我们有 $T_2 \ll 2T_1$。在量子网络测量中，来自不同远程铒发射体的光子必须在分束器处发生干涉；此时，不仅瞬时线宽必须达到寿命极限，中心频率也不能漂移，以确保两个光子之间保持较高的频率重叠。这意味着必须考虑长期光谱扩散效应，在这种情况下，相关参数应为 T_2^*。不过请注意，缓慢的漂移可以通过例如外部电场进行补偿。

为满足不可区分光子的条件，我们需要增加 T_2（或 T_2^*），或者减小T_1。如上所述，当前样品在低温下的 T_2 受到限制，这是由于与邻近双能级系统（TLS）耦合所产生的光谱扩散。TLS 行为是非晶材料的典型特征 [47],，在我们的系统中可能源于缺陷的存在以及纳米颗粒较差的晶体质量。由于 TLS 对均匀线宽的贡献取决于温度，因此进一步冷却样品可以显著延长相干时间。在当前样品中，均匀线宽每降低一开尔文便减小 121 千赫兹；外推至 0 K 时，其数值达到 10 千赫兹（$T_2 \approx 32$ μs）。在高温（> 1200°C）下对样品进行退火也可以减小 TLS 的影响，但这同样会导致纳米颗粒的平均尺寸增大，从而难以将其集成到

微腔中，因为散射损耗更高。一种替代方法是先制备尺寸更大、质量更高的纳米颗粒，再通过化学刻蚀将其缩小到所需尺寸；该方法已显示出良好前景[36]。通过将掺杂铕的 400 nm Y_2O_3 纳米颗粒化学刻蚀至 150 nm，他们成功展示了 T_2 的 10 μs。近期在毫开尔文温度下对 Y_2O_3 陶瓷开展的研究结果显示，其光学均匀线宽低于千赫兹 [25]。

尽管如此，很明显，无论是为了产生不可区分光子，还是为了使发射高效，我们都需要进一步降低 T_1。这可以通过将发射体耦合到光学腔并利用上述式 6 [28]中所述的珀塞尔效应来实现。本工作研究的平均尺寸为150 nm的Er^{3+}:Y_2O_3 纳米颗粒引入了 ≈ 35 ppm的散射损耗。为了高效提取由我们耦合到微腔的纳米颗粒中离子发射的光子，这种散射损耗需要小于腔中的所有其他损耗。例如，我们当前的纳米颗粒可以与具有 $Q \sim 10^6$ 和 $V_m \sim 5\ \lambda^3$的腔高效耦合。采用本工作测得的下限 $\zeta > 0.13$，我们预计可获得 $C > 2{,}000$的Purcell增强，这对应于$T_c < 7\ \mu$s。为了产生不可区分光子，届时我们将需要 $T_2 \sim 14\ \mu$s，这既可通过改进样品制备实现，也可通过进一步冷却样品实现。或者，如果能够制备平均直径为 ≈ 100 nm的纳米颗粒，则散射损耗会降至 ≈ 4 ppm；在这种情况下，便可使用具有 $Q \sim 10^7$ 的腔，从而得到 $C \sim 20{,}000$和 $T_c \sim 700$ ns。在这种情况下，$T_2 \sim 1.4\ \mu$s便足以产生不可区分光子；通过将本工作研究的样品冷却至 ~ 1.5 K即可达到这一条件。

V. 结论

我们研究了低温下 Er^{3+} 和 Nd^{3+} 在 Y_2O_3 陶瓷和纳米颗粒中的光学相干性。分别测得 Er^{3+} 中的${}^4I_{13/2} - {}^4I_{15/2}$跃迁和 Nd^{3+}中的 ${}^4F_{3/2} - {}^4I_{9/2}$跃迁的非均匀线宽为 10.7 GHz 和 8.2 GHz。此外，分别测得上述两种跃迁的激发态寿命为 13.68 ms 和 540 μs。我们采用双脉冲技术测量了两种离子在不同温度下的均匀线宽。在 Er^{3+} 跃迁中，基温为 3 K 时测得的均匀线宽为 379 kHz；而在 Nd^{3+} 中，基温为 1.6 K 时测得的线宽为 62 kHz。我们利用三脉冲光子回波技术研究了 Er^{3+} 中光谱扩散导致的均匀线宽随时间变化的展宽，并测得双能级系统（TLS）的耦合常数为 2.3 MHz。

最后，我们提出了两种量子应用：单量子比特态读出和傅里叶极限单光子源。预计所研究的离子与光纤微腔结合后，在这些应用中表现出色，因为这种组合能够实现强Purcell增强。要达到所需的Purcell增强水平，需要使用品质因数在 10^6-10^7 范围内、模体积约为 $\sim 5\ \lambda^3$ 的腔。

VI. 致谢

本研究得到了欧盟Horizon 2020研究与创新计划（项目编号712721，NanOQTech；项目编号820391，SQUARE）、瑞典研究理事会（2021年-03755）以及由克努特和爱丽丝·瓦伦堡基金会（KAW 2017.0449）资助的瓦伦堡量子技术中心（WACQT）的支持。ICFO感谢西班牙政府（PID 2019-106850RB-I00（QRN）和 Severo Ochoa CEX2019-000910-S，由 MCIN/AEI/10.13039/501100011033资助）、MCIN（资金来自欧盟下一代欧盟（PRTR-C17.I1））、Fundaci´o Cellex、Fundaci´o Mir-Puig以及加泰罗尼亚政府（CERCA、AGAUR）的资金支持。

[1] M. P. Hedges, J. J. Longdell, Y. Li, and M. J. Sellars, Nature **465**, 1052 (2010). [2] T. Zhong, J. M. Kindem, J. G. Bartholomew, J. Rochman, I. Craiciu, E. Miyazono, M. Bettinelli, E. Cavalli, V. Verma, S. W. Nam, F. Marsili, M.D. Shaw, A. D. Beyer, and A. Faraon, Science **357**, 1392 (2017年). [3] A. Seri, A. Lenhard, D. Riel¨ander, M. G¨undo˘gan, P. M. Ledingham, M. Mazzera, and H. de Riedmatten, Physical Review X **7**, 021028 (2017年). [4] A. Ortu, A. Holz¨apfel, J. Etesse, and M. Afzelius, npj Quantum Inf. **8**, 1 (2022年). [5] J. J. Longdell, M. J. Sellars, and N. B. Manson, Physical Review Letters **93**, 130503 (2004).

[6] P. Goldner、A. Ferrier 和 O. Guillot-No¨el，载于 *Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths* 46，《》，第卷，由 J.-C. G. B¨unzli 和 V. K. Pecharsky 编（Elsevier，2015年），第 1–78 页。[7] R. L. Ahlefeldt、M. J. Pearce、M. R. Hush 和 M. J. Sellars，Physical Review A **101**，012309（2020年）。[8] A. Kinos、L. Rippe、D. Serrano、A. Walther 和 S. Kr¨oll，Physical Review A **105**，032603（2022年）。[9] M. J. Thorpe、L. Rippe、T. M. Fortier、M. S. Kirchner 和 T. Rosenband，《自然·光子学》**5**，688（2011年）。[10] C. L. Degen、F. Reinhard 和 P. Cappellaro，Reviews of Modern Physics **89**，035002（2017年）。

[11] J. G. Bartholomew、J. Rochman、T. Xie、J. M. Kindem、A. Ruskuc、I. Craiciu、M. Lei 和 A. Faraon，《自然·通讯》11（2020年），10.1038/s41467-020-16996- x。[12] L. A. Williamson、Y.-H. Chen 和 J. J. Longdell，Physical Review Letters 113，203601（2014年）。[13] R. W. Equall、Y. Sun、R. L. Cone 和 R. M. Macfarlane，Physical Review Letters 72，2179（1994年）。[14] C. W. Thiel、T. B ¨ottger 和 R. L. Cone，Journal of Luminescence 131，353 2011（）。[15] M. Zhong、M. P. Hedges、R. L. Ahlefeldt、J. G. Bartholomew、S. E. Beavan、S. M. Wittig、J. J. Longdell 和 M. J. Sellars，Nature 517，177（2015年）。[16] F. K. Asadi、N. Lauk、S. Wein、N. Sinclair、C. O'Brien 和 C. Simon，《量子》2，93（2018年），1712.05356v3。[17] D. P. DiVincenzo，《物理进展》48，771（2000年）。[18] A. M. Dibos、M. Raha、C. M. Phenicie 和 J. D. Thompson，Physical Review Letters 120，243601（2018年）。[19] S. Chen、M. Raha、C. M. Phenicie、S. Ourari 和 J. D. Thompson，Science 370，592（2020年）。[20] T. Zhong、J. M. Kindem、J. G. Bartholomew、J. Rochman、I. Craiciu、V. Verma、S. W. Nam、F. Mar-sili、M. D. Shaw、A. D. Beyer 和 A. Faraon，Physical Review Letters 121，183603（2018年）。[21] J. M. Kindem、A. Ruskuc、J. G. Bartholomew、J. Rochman、Y. Q. Huan 和 A. Faraon，Nature 580，201 2020（）。[22] B. Casabone、J. Benedikter、T. H ¨ummer、F. Oehl、K. de Oliveira Lima、T. W. H ¨ansch、A. Ferrier、P. Gold-ner、H. de Riedmatten 和 D. Hunger，《新物理学杂志》20，095006（2018年）。[23] N. Harada、A. Ferrier、D. Serrano、M. Persechino、E. Briand、R. Bachelet、I. Vickridge、J.-J. Ganem、P. Goldner 和 A. Tallaire，《应用物理学杂志》128，055304（2020年）。[24] S. Liu、A. Fossati、D. Serrano、A. Tallaire、A. Ferrier 和 P. Goldner，ACS Nano 14，9953（2020年）。[25] R. Fukumori、Y. Huang、J. Yang、H. Zhang 和 T. Zhong，Physical Review B 101，214202（2020年）。[26] D. Serrano、C. Deshmukh、S. Liu、A. Tallaire、A. Ferrier、H. de Riedmatten 和 P. Goldner，Physical Review B 100，144304 2019（）。[27] J. G. Bartholomew、K. de Oliveira Lima、A. Ferrier 和 P. Goldner，《纳米快报》17，778（2017年）。[28] B. Casabone、C. Deshmukh、S. Liu、D. Serrano、A. Fer-rier、T. H ¨ummer、P. Goldner、D. Hunger 和 H. de Ried-matten，《自然·通讯》12（2021年），10.1038/s41467-021-23632-9。[29] P. Jobez、N. Timoney、C. Laplane、J. Etesse、A. Ferrier、P. Goldner、N. Gisin 和 M. Afzelius，Physical Review A 93，032327 2016（）。[30] C. Laplane、P. Jobez、J. Etesse、N. Gisin 和 M. Afzelius，Physical Review Letters 118，210501（2017年）。[31] A. Ruskuc、C.-J. Wu、J. Rochman、J. Choi 和 A. Faraon，Nature 602，408（2022年）。[32] X. Fernandez-Gonzalvo、Y.-H. Chen、C. Yin、S. Rogge 和 J. J. Longdell，Physical Review A 92，062313（2015年）。[33] G. Dold, C. W. Zollitsch, J. O'Sullivan, S. Welinski, A. Ferrier, P. Goldner, S. E. de Graaf, T. Lindstr¨om, and J. J. L. Morton, Physical Review Applied 11, 054082 (2019年). [34] Y. Sun, C. W. Thiel, R. L. Cone, R. W. Equall, and R. L. Hutcheson, Journal of Luminescence 98, 281 (2002). [35] X. Cui, J. Lu, C. Gao, C. Hou, W. Wei, and B. Peng, Applied Physics A 103, 27 (2011年). [36] S. Liu, A. Fossati, D. Serrano, A. Tallaire, A. Ferrier, and P. Goldner, ACS Nano 14, 9953 (2020年). [37] K. de Oliveira Lima, R. R. Gon.calves, D. Giaume, A. Fer- rier, and P. Goldner, 发光学杂志 168, 276 (2015年). [38] B. M. Walsh, J. M. McMahon, W. C. Edwards, N. P. Barnes, R. W. Equall, and R. L. Hutcheson, Journal of the Optical Society of America B 19, 2893 (2002). [39] D. Serrano, J. Karlsson, L. Zheng, Y. Dong, A. Ferrier, P. Goldner, A. Walther, L. Rippe, and S. Kr¨oll, J. Lu- min. 170, 102 (2016年). [40] K. de Oliveira Lima, R. Rocha Gon.calves, D. Giaume, A. Ferrier, and P. Goldner, 发光学杂志 168, 276 (2015年). [41] J. G. Bartholomew, K. de Oliveira Lima, A. Ferrier, and P. Goldner, Nano Let- ters 17, 778 (2017年), pMID: 28099025, https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.6b03949. [42] N. C. Chang, J. B. Gruber, R. P. Leavitt, and C. A. Mor- rison, 化学物理学杂志 76, 3877 (1982). [43] R. M. Macfarlane, Journal of Luminescence 100, 1 (2002). [44] I. N. Kurkin and K. P. Chernov, Physica B 101, 233 (1980). [45] P. L. Scott and C. D. Jeffries, Physical Review 127, 32 (1962). [46] T. B¨ottger, C. W. Thiel, Y. Sun, and R. L. Cone, Physical Review B 73, 075101 (2006). [47] L. Veissier, M. Falamarzi, T. Lutz, E. Saglamyurek, C. W. Thiel, R. L. Cone, and W. Tittel, Physical Review B 94 (2016年), 10.1103/physrevb.94.195138. [48] B. Car, L. Veissier, A. Louchet-Chauvet, J.-L. Le Gou¨et, and T. Chaneli`ere, Physical Review Letters 120, 197401 (2018年). [49] B. Car, J.-L. Le Gou¨et, and T. Chaneli`ere, Physical Review B 102, 115119 (2020年). [50] W. A. Phillips, Journal of Low Temperature Physics 7, 351 (1972). [51] A. Walther, L. Rippe, Y. Yan, J. Karlsson, D. Serrano, A. N. Nilsson, S. Bengtsson, and S. Kr¨oll, Physical Review A 92, 022319 (2015年). [52] A. Kinos, L. Rippe, S. Kr¨oll, and A. Walther, Physical Review A 104, 052624 (2021年). [53] E. M. Purcell, 物理评论 69, 681 (1946). [54] F. Rochau, I. S´anchez Arribas, A. Brieussel, S. Stapfner, D. Hunger, and E. M. Weig, Physical Review Applied 16, 014013 (2021年). [55] K. Debnath, A. H. Kiilerich, and K. Mølmer, Physical Review A 103, 043705 (2021年).