arXiv:2305.03244v1 [physics.optics] 5 May 2023

碳化硅膜中等离激元增强的明亮单自旋缺陷

Ji-YangZhou,[†,‡] Qiang Li,[†,‡] Zhi-He Hao,[†,‡] Wu-Xi Lin,[†,‡,¶] Zhen-XuanHe,[†,‡]Rui-JianLiang,[†] Liping Guo,[§] Hao Li,[‖] Lixing You,[‖] Jian-ShunTang,[†,‡,¶] Jin-Shi Xu,[*,†,‡,¶] Chuan-Feng Li,[*,†,‡,¶] 和 Guang-Can Guo[†,‡,¶]

†中国科学院量子信息重点实验室，中国科学技术大学，中国合肥 *230026*。

‡中国科学院量子信息与量子物理卓越创新中心，中国科学技术大学，中国合肥*230026*。

¶合肥国家实验室，中国科学技术大学，合肥 *230088*，中国

§武汉大学教育部人工微纳结构重点实验室及物理科学与技术学院，中国武汉，*430072*‖中国科学院上海微系统与信息技术研究所信息功能材料国家重点实验室，中国上海，*20050*,

中国

电子邮箱：jsxu@ustc.edu.cn；cfli@ustc.edu.cn

摘要

碳化硅（SiC）中可通过光学方式寻址的自旋缺陷，已成为各种量子技术颇具吸引力的平台。然而，较低的光子计数率严重限制了它们的应用。我们通过

利用金膜共面波导产生的表面等离激元，将4H-SiC膜中单个双空位缺陷的亮度提升了7倍，自旋控制强度提升了14倍。通过调节单个缺陷与金膜表面之间的距离，我们进一步研究了等离激元增强效应的机制。我们采用三能级模型确定相应的跃迁速率，结果与单个缺陷亮度的提升相符。寿命测量也证实了缺陷与表面等离激元之间的耦合。我们提出的方案成本低，无需复杂的微加工和精巧的结构，也适用于其他材料中的自旋缺陷。这项工作将推动基于自旋缺陷的量子应用在成熟的碳化硅材料中发展。

关键词：碳化硅、表面等离激元、单个缺陷、荧光增强、寿命

具有光学寻址自旋的固态材料中的缺陷，在分布式量子计算[1–3]、量子传感[4–6]和量子网络[7–10]等多种量子应用中发挥了重要作用。近年来，碳化硅（SiC）自旋缺陷引起了广泛关注。碳化硅是一种成熟的半导体，具有许多理想特性，包括英寸晶圆生长和完善的制造技术。研究人员已在碳化硅中发现了多种明亮的单光子发射体[11,12] 和自旋缺陷[13–18] 。其中，碳化硅中的双空位缺陷由一个硅原子及其相邻的一个碳原子缺失形成，具有出色的性能，包括红外荧光[19–21] 和室温自旋可控性[22–24]。双空位具有较长的自旋相干时间[25], 、窄至寿命极限的光学线宽[26,27], ，并能够抵抗光电离效应[28,29]。其中一种双空位缺陷称为 PL6 缺陷，它被确定为邻近层错的双空位构型[30], ，具有较高的读出对比度，单光子计数率高达每秒 15 万次[15], ，与金刚石中的氮空位中心[31]相当。尽管双空位缺陷已取得重大进展，但若要将其应用于量子信息任务，更高的量子效率和光致发光（PL）强度将大有裨益。为进一步增强碳化硅中自旋缺陷的亮度，可以采用多种增强方案

包括固体浸没透镜[14,32,33]，、纳米柱[34,35]，、靶心结构[36–38]、光子晶体波导[39–43]和光纤腔[44–46]。然而，仍有许多棘手问题有待解决，例如复杂的微结构，以及缺陷与结构之间的对准问题，这些问题导致增强效果不尽如人意。

在本研究中，我们展示了室温下利用表面等离激元显著增强 4H-SiC 薄膜中的单个PL6自旋缺陷。表面等离激元是金属表面上的电磁波与自由电子耦合产生的局域集体振荡，可加快辐射和非辐射衰减速率[47–50]。它能够提供宽带增强，覆盖空位缺陷的整个光致发光光谱范围。我们在硅衬底上制备了金薄膜共面波导，并将 4H-SiC 薄膜贴附在衬底上，以实现光致发光增强和自旋相干控制。单个PL6缺陷的亮度增强了 7 倍。通过数值孔径（NA）为 1.3 的油浸物镜收集到的饱和计数率超过每秒百万计数（Mcps）。我们仔细调节了缺陷与金膜之间的距离，以获得最佳的等离激元增强效果。此外，在表面等离激元的作用下，光探测磁共振（ODMR）信号仍保持较高的读出对比度。拉比频率最高加快了 16 倍，接近 70 兆赫（MHz）。增强样品的自旋相干时间和非均匀自旋退相干时间与块体材料中的相近。此外，通过拟合三能级模型的衰减速率揭示了增强效果，这表明激发态寿命缩短，且与增强后的饱和计数相符。为验证拟合结果，我们还直接测量了等离激元增强和未增强的单个PL6缺陷的非共振寿命。结果与拟合结果一致，证实了缺陷与表面等离激元之间的耦合。我们的方案无需复杂的微结构和加工技术，具有实际意义，并可方便地应用于各种材料中的其他类型自旋缺陷。

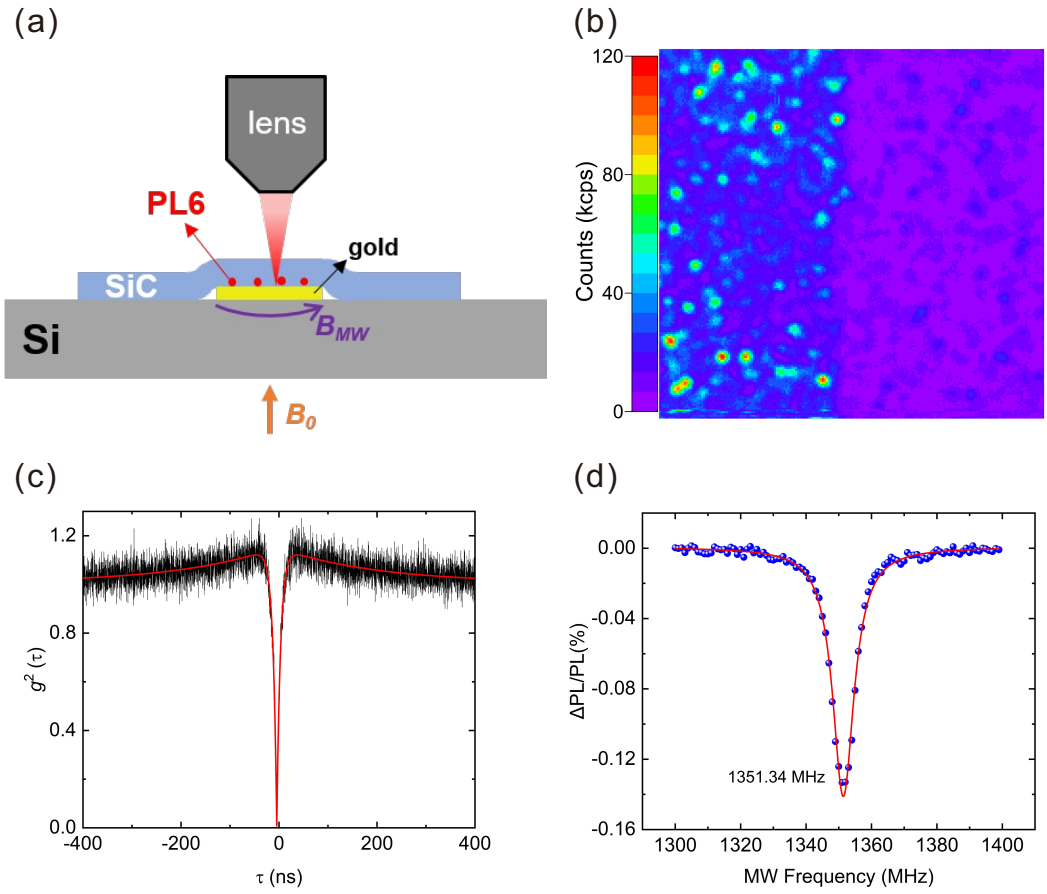

图1：（a）器件结构示意图。厚度为210 nm的金薄膜共面波导覆盖在硅衬底上。离子注入4H-SiC薄膜翻转后，利用范德华力贴附在衬底上，使浅层自旋缺陷靠近金共面波导表面。微波（MW）通过波导传输，并产生磁场（B_{MW}）以操控自旋。施加的外加静磁场（B_0）沿c轴方向。物镜聚焦泵浦激光束并收集光致发光。（b）金共面波导上方（左侧，明亮）及旁侧（右侧，暗）的自旋缺陷共焦扫描图像。金膜带来了光致发光增强。（c）对单个PL6缺陷进行的二阶强度关联 $g^2(\tau)$测量。红线为拟合曲线，其结果为 $g^2(0) = 0.008 \pm 0.002$，显著小于0.5，证实了该缺陷是单光子发射体。（d）无外加静磁场时，单个PL6缺陷的ODMR谱。

本研究中使用的增强器件由一片 4H-SiC 薄膜和一块表面镀有金共面波导的硅衬底组成，如图 1a 所示。SiC 薄膜通过对 SiC晶圆进行机械研磨和化学机械抛光制备而成。

晶圆的衬底上的 SiC外延层（厚度为 $30\ \mu m$）最终被减薄至 $12.5\ \mu m$。随后，使用能量为 30 千电子伏特、剂量为 $1 \times 10^{12}\ cm^{-2}$ 的 N_2^+ 离子对薄膜进行注入。样品在 $1050\ ^\circ C$ 下退火 2 小时，以高效生成单个 PL6 缺陷。离子在物质中的阻止与射程（SRIM）模拟结果表明，双空位集中分布在表面下方 15 nm 处（更多详情请参见补充信息（SI））。我们使用光刻和蒸发镀膜，在硅衬底上制备了厚度为 210 nm 的金共面波导。将 SiC 薄膜翻转后，利用范德华力粘贴在硅衬底上，使离子注入面朝向金波导。这样，近表面的 PL6 缺陷便能足够靠近金表面，进入表面等离激元的有效作用范围。我们使用自制的共焦扫描系统，以连续波 914 nm 激光泵浦样品，并用同一物镜收集光致发光。超导单光子探测器记录光致发光强度。我们使用 Hanbury-Brown-Twiss（HBT）干涉仪测量二阶强度关联。经金波导传输的微波用于操控缺陷自旋。可向样品施加沿 c轴方向的外磁场（B_0）。

图1b所示的共焦扫描图像清晰地显示了金膜上方的缺陷（金膜左侧的明亮区域）与金膜旁边的缺陷（金膜右侧的阴影区域）之间截然不同的亮度。图1c显示了对单个PL6缺陷进行的HBT测量。测得的二阶强度关联 $g^2(\tau)$由红线拟合，在延迟时间 $\tau = 0$处给出 $g^2(0) = 0.008 \pm 0.002$，显著小于0.5，证实了其作为优良单光子发射体的性能。图1d显示了单个PL6缺陷在无静态外磁场条件下的ODMR谱。中心位于1351.34 MHz的共振ODMR信号与先前的结果一致[15]。

我们比较了不同情况下单个PL6缺陷的饱和计数，以展示金共面波导所带来的增强效果。图2a中的红点和黑点分别表示4H-SiC块体中的单个PL6缺陷的光子计数（位于 $30\ \mu m$外延层上）

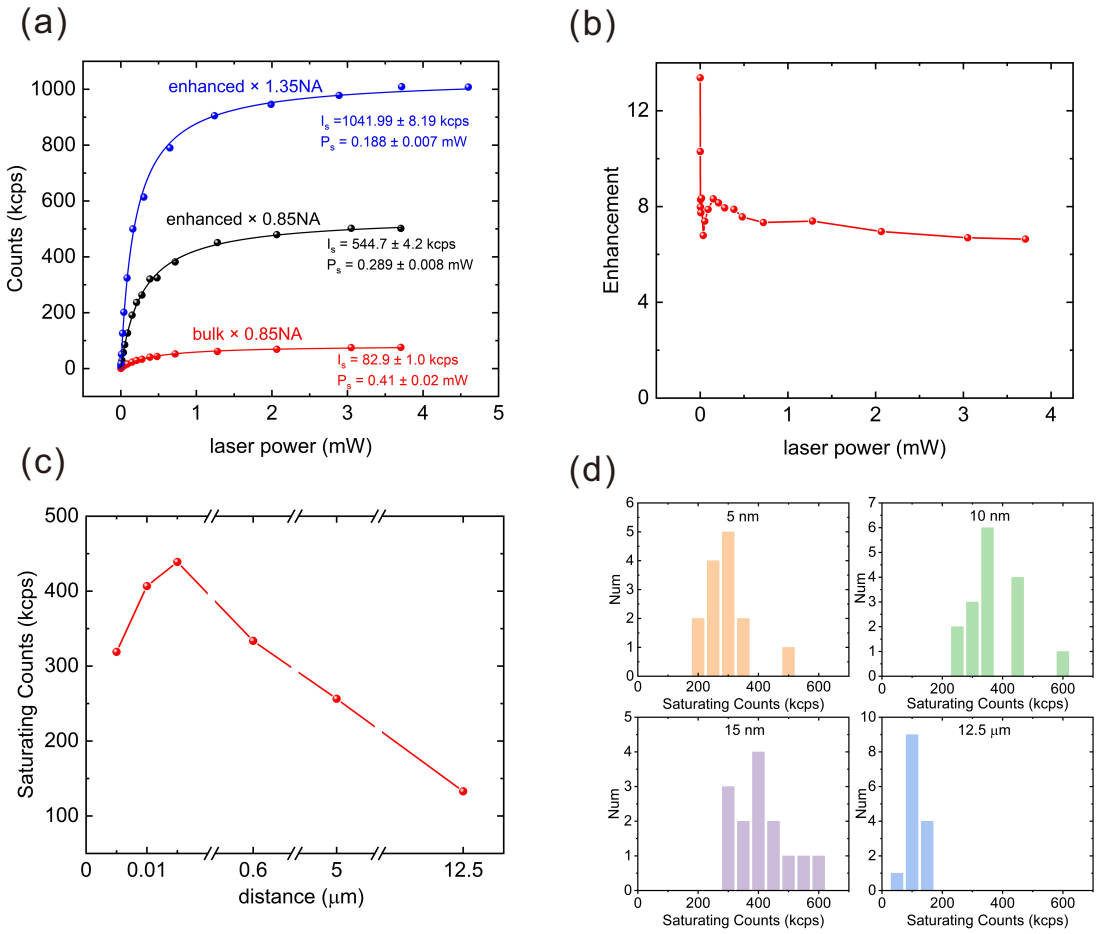

图 2：单个 PL6 缺陷增强后光致发光的表征。(a) 比较金共面波导上的 4H-SiC 薄膜与块体 4H-SiC 中单个 PL6 缺陷的饱和计数（I_s）。油浸物镜（NA =1.3）采集到的最高计数超过 1 Mcps。随着饱和计数增加，饱和激光功率（P_s）降低。(b) 不同激光功率下，NA 为 0.85 的物镜采集到的光致发光计数增强比。该比值通过块体样品的强度除以薄膜样品的强度计算得出。激光功率较低时，该比值达到 14。(c) 金共面波导表面与缺陷之间距离不同时，单个 PL6 缺陷的饱和计数。结果是对数十个单个 PL6 缺陷的饱和计数进行统计所得。(d) 将每秒 50 千计数（kcps）作为区间，对距离分别为 5 nm、10 nm、15 nm 和 12.5 μm 时数十个 PL6 缺陷的饱和计数进行分类。与 15 nm 时的结果相比，5 nm 时的计数分布向左偏移；12.5 μm 时的分布宽度则窄于其他距离。

图 1a 中分别为 350 μm 衬底和 4H-SiC 薄膜的 PL 计数。两组 PL 计数均由数值孔径为 0.85 的物镜采集。红线和黑线分别表示使用函数 $I = I_s P/(P + P_s)$ 进行的相应拟合，其中 I 为光子计数，I_s 为饱和计数，P 为激光功率，P_s 为饱和激光功率。薄膜中单个缺陷的饱和计数为 $I_s = 544.7 \pm 4.2$ kcps，饱和激光功率为 $P_s = 0.289 \pm 0.008$ mW；相比之下，块体材料中的相应数值为 $I_s = 82.9 \pm 1.0$ kcps 和 $P_s = 0.41 \pm 0.02$ mW。在等离激元增强的作用下，饱和计数提高了 6.5 倍，相应的饱和激光功率则降低。

当数值孔径从 0.85 增加到 1.3（油浸物镜）时，增强后的饱和计数增加至 $I_s = 1041.99 \pm 8.19$ kcps，饱和功率进一步降低至$P_s = 0.188 \pm 0.007$ mW。即使在较高的泵浦激光功率下，增强后的光子计数仍然稳定（光子稳定性测量见补充信息）。图 2b 显示了在相应激光功率下，由 0.85 数值孔径物镜采集的增强计数与块体计数之间的荧光增强比。激光功率较低时，增强比可达 14。

为展示距离对 PL 增强的影响，我们系统研究了单个 PL6 缺陷的饱和计数随缺陷与金膜之间距离的变化。根据 SRIM 模拟，植入的单个缺陷位于表面下方约 15 nm 处。薄膜通过范德华力紧密贴合在金膜上，并由零级干涉条纹证实（更多详情请参阅补充信息）。因此，在没有空气间隙的情况下，缺陷与金膜之间的距离即为该距离。为进一步减小距离，我们分别使用反应离子刻蚀（RIE）将薄膜的植入表面刻蚀 5 nm 和 10 nm[51]（刻蚀详情请参阅补充信息）。因此，在紧密贴合区域，缺陷与金膜之间的相应距离分别变为 10 nm 和 5 nm。另一方面，通过使用松散贴合的薄膜获得了更大的距离，这一点由高阶干涉条纹甚至无干涉条纹证实。随后使用台阶仪测量厚度。

轮廓仪。通过减去紧密贴合区域的厚度，我们提取了松散贴合区域中缺陷与金膜之间的距离（更多详情见 SI）。我们选取距离为 0.6 μm 和 5 μm 处的单个 PL6 缺陷的饱和计数进行测量。对于 12.5 μm 的距离，我们将制备好的薄膜正面朝上贴合并进行测量。我们在图 2c 中汇总了各个距离下饱和计数的实验统计结果。最大饱和计数出现在距离为 15 nm 时。当距离大于或小于 15 nm 时，饱和计数均会降低，这表明等离激元增强对距离有很强的依赖性，与先前的研究一致[47]。

考虑到植入的单个 PL6 缺陷的分布情况，图 2c 中的饱和计数是对数十个 PL6 缺陷的测量结果取平均得到的。图 2d 展示了不同距离下饱和计数的统计结果。我们以 50 千计数为间隔，对数十个饱和计数进行了分类。当单个 PL6 缺陷位于表面等离激元作用范围内、靠近金膜时（距离分别为 5 nm、10 nm 和 15 nm），其饱和计数的分布明显宽于不存在等离激元增强效应时的分布（距离为 12.5 μm）。这是因为表面等离激元增强对纳米尺度范围内的缺陷距离非常敏感。距离为 0.6 μm 和 5 μm 时的结果展示于补充信息（SI）中，其分布宽度同样较窄。

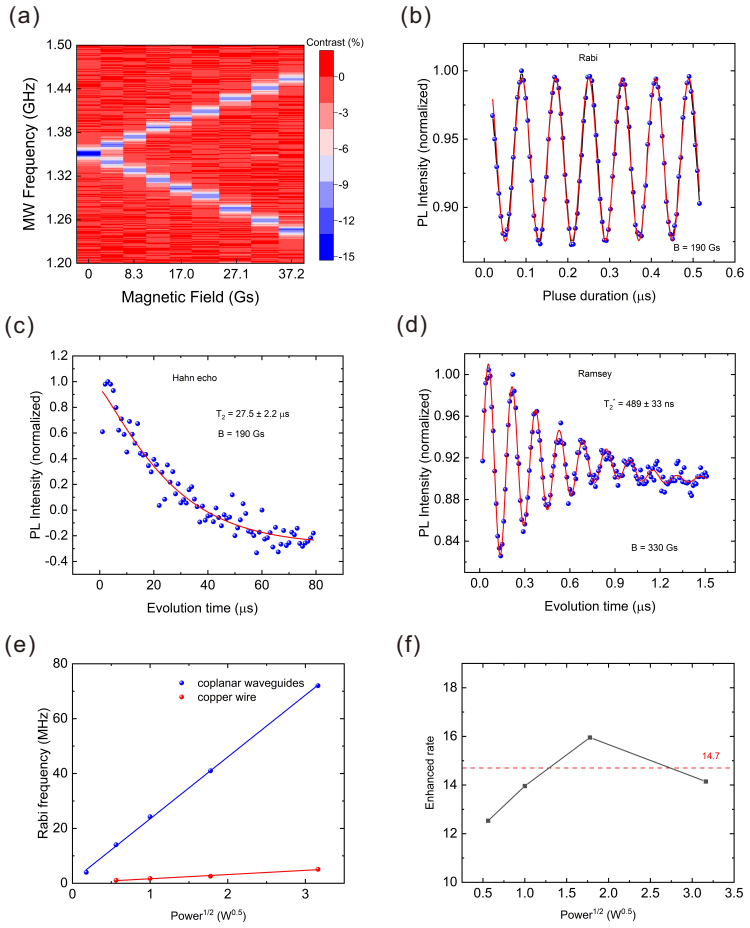

图 3：位于金共面波导上的 4H-SiC 膜中单个 PL6 缺陷的自旋特性。(a) 不同静态磁场下的连续波 ODMR 谱。线性分裂的斜率为 $\pm$ 2.8 MHz/Gs。(b) 静态磁场为 190 Gs 时的拉比振荡。(c) 磁场为 190 Gs 时的 Hahn 回波测量。拟合得到的均匀自旋相干时间 T_2 为 27.5 $\pm$ 2.2 μs。(d) 磁场为 190 Gs 时的 Ramsey 测量。非均匀自旋退相干时间 T_2^* 为 489 $\pm$ 33 ns。(e) 通过金共面波导（蓝点）和铜线（红点）传输不同微波功率时，单个 PL6 缺陷的拉比频率。与铜线相比，金膜显著增强了拉比频率。两种情况下的拉比频率均与微波功率的平方根呈线性关系，分别由蓝线和红线拟合。(f) 不同微波功率下拉比频率的相应增强比。金共面波导使拉比频率最高增强 16 倍。红色虚线 14.7 表示 (e) 中理论拟合值之比。

相干自旋控制对于量子信息处理至关重要。通过施加微波脉冲，我们表征了膜中单个 PL6缺陷的自旋特性。

与金共面波导距离为 15 nm 的膜，处于表面等离激元的作用范围内。图 3(a) 展示了单个 PL6 缺陷的连续波 ODMR 谱随外磁场变化的情况。由于塞曼效应，谱线分裂的斜率为 $\pm$ 2.8 MHz/Gs，这与此前的研究结果高度一致[15,52]。图 3(b)、(c) 和 (d) 分别展示了在 190 Gs 外磁场下相应的拉比振荡、自旋回波和拉姆齐振荡。相应的拉比振荡频率为 12.5 MHz。测得均匀自旋相干时间 T_2 为 27.5 $\pm$ 2.2 μs，非均匀自旋退相干时间 T_2^* 为 489 ± 33 ns。这些典型的相干时间与此前在块体材料[15], 中测得的结果一致，表明表面等离激元效应并未造成性能退化。此外，与使用直径为 50 μm 的铜线提供微波的情况相比，金共面波导具有更高的辐射效率，且磁场分量能够更加垂直于 PL6 缺陷的 c轴。因此，拉比频率能够得到大幅提升。图 3(e) 比较了这两种情况下拉比频率随微波功率的变化关系。使用金共面波导时的拉比振荡频率高于使用铜线时的频率，最高可达 70 MHz。两种情况下的拉比频率均与微波功率的平方根呈线性关系。金波导（蓝线）和铜线（红线）的拟合斜率分别为 22.56 和 1.53。图 3(f) 展示了相应微波功率下两种情况下拉比频率的增强比。金共面波导可使拉比振荡频率最高增强 16 倍。红色虚线所示的 14.7 为线性拟合斜率之比。

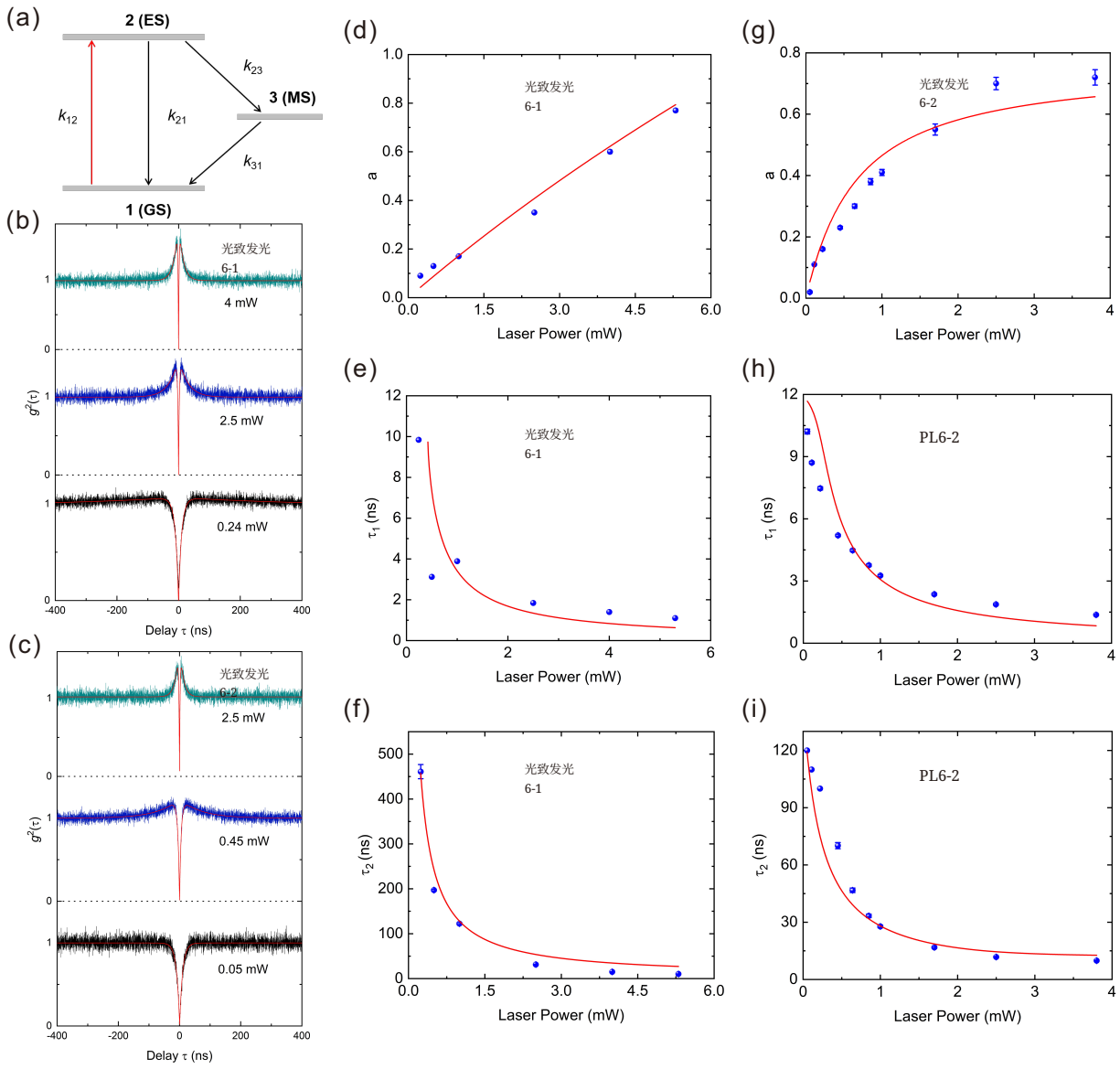

图 4：两个单个PL6缺陷的能级分析。缺陷 PL6-1 和 PL6-2 分别位于距金波导表面 12.5 μm 和 5 nm 的样品中。(a) PL6 缺陷的三能级模型由基态 (GS)、激发态 (ES) 和亚稳态 (MS) 构成。 k_{ij} 表示能级 i 和 j之间的跃迁速率。(b) 和 (c) 分别为 PL6-1 和 PL6-2 的激光功率依赖二阶强度关联。(d-f) 和 (g-i) 分别展示了 PL6-1 和 PL6-2 的关联函数 $g^2(\tau)$ 中拟合参数 a、 τ_1 和 τ_2 随激光功率的变化。误差线表示相应 $g^2(\tau)$拟合的标准差。

为了深入理解表面等离激元增强机制，我们测量了增强和未受等离激元增强的单个PL6缺陷的激光功率依赖强度关联。我们采用三能级模型表征 PL6 缺陷的能级，如图 4(a) 所示。三个能级 1、2 和 3 分别对应基态（GS）、激发态（ES）和亚稳态（MS）。K_{ij} 表示从能级 i 到能级 j的跃迁速率。图 4(b) 和 (c) 分别展示了未受等离激元增强的单个 PL6 缺陷（PL6-1）和经增强的单个 PL6 缺陷（PL6-2）的三组代表性激光功率依赖强度关联。如补充信息（SI）所示，这两个缺陷的饱和计数分别为 161.85 kcps 和 405.48 kcps。

随着激光功率增加，这两种缺陷的聚束效应都变得明显，表明 PL6 缺陷存在亚稳态。我们通过函数 $g^2(\tau) = [g^2_{raw}(\tau) - (1-\rho^2)]/\rho^2$对原始数据$g^2_{raw}(\tau)$进行校正，以消除背景的影响，其中 $\rho = s/(s+b)$。 s 和 b 分别表示信号计数和背景计数。背景校正后的强度函数通过 $g^2(\tau) = 1-(1+a)e^{|\tau|/\tau_1} + ae^{|\tau|/\tau_2}$进行拟合，其中 a、 τ_1 和 τ_2 是与功率相关的拟合参数。图 4(d-f) 和 (g-i) 分别展示了 PL6-1 和 PL6-2 的拟合参数 a、 τ_1和 τ_2 随激光功率的变化。参数 a 反映聚束效应， τ_1 表示反聚束衰减时间， τ_2 反映相对较长的聚束衰减时间[53]。根据三能级模型[11,53]，使用以下方程对这三个参数进行拟合：

$$a = \frac{1-\tau_2 k_{31}}{k_{31}(\tau_2-\tau_1)}, \tag{1}$$

$$\tau_{1,2} = \frac{2}{A \pm \sqrt{A^2-4B}}, \tag{2}$$

其中 $A = k_{12}+k_{21}+k_{23}+k_{31}$, $B = k_{12}(k_{23}+k_{31}) + k_{31}(k_{21}+k_{23})$。我们还研究了另一个增强的单个PL6缺陷（PL6-3）；相应数据见补充信息。这三个单个 PL6 缺陷的拟合参数汇总于表 1。

根据三能级模型，单个 PL6 缺陷的亮度与

表 1：不同 PL6 缺陷的衰减速率 k_{ij} 和饱和计数 .

单个 PL6 缺陷	$1/k_{21}$	$1/k_{23}$	$1/(k_{21}+k_{23})$	饱和计数
PL6-1	200.00 纳秒	15.40 纳秒	14.31 纳秒	161.85 千计数/秒
PL6-2	83.30 纳秒	13.87 纳秒	11.89 纳秒	405.48 千计数/秒
PL6-3	94.34 纳秒	15.50 纳秒	13.32 纳秒	341.29 千计数/秒

k_{21}成正比。所得 k_{21} 与全部三个缺陷的饱和计数一致。PL6-2（PL6-3）与 PL6-1 之间的 k_{21} 比值为 2.4（2.12），与相应饱和计数的比值 2.51（2.11）非常吻合。因此，单个 PL6 缺陷的光致发光增强可能主要是由于表面等离激元增强了 ES 与 GS 之间的跃迁速率。

为验证三能级模型的结果——该模型预测缺陷的跃迁速率会增强、寿命会缩短——我们分别测量了5 nm样品中10个增强型单个 PL6 缺陷和12.5 μm样品中10个未经过表面等离激元增强的缺陷的非共振激发寿命，如图5所示。数据与双指数衰减函数拟合良好，并显示增强型缺陷的寿命相比未经过表面等离激元增强的缺陷明显缩短。寿命汇总于表2和表3中。我们观察到，饱和计数并未随寿命缩短而单调变化。此外，饱和计数最高的 PL6 缺陷，其寿命并未显著缩短。如表2所示，尽管两个 PL6 缺陷的饱和计数几乎相同（289 kcps和268 kcps），但它们的寿命差异显著。结合补充信息（SI）图S1(a)所示的 PL6 缺陷分布，以及发射体靠近金属表面时辐射出耦会受到淬灭这一事实[54–56]，不同的寿命意味着两个缺陷与金表面的距离不同。计数相近表明，淬灭效应降低了距离更近的 PL6 缺陷的饱和计数，尽管它的寿命更短。补充信息中的模拟结果进一步研究了这种淬灭效应。另一方面，计数最高的 PL6 缺陷寿命并未显著缩短，这是因为测得的非共振寿命也包含非辐射衰减速率 k_{23}[11, 53]。表1中的辐射衰减速率 k_{21} 显著提高，这证实该缺陷

也与表面等离激元发生了耦合。

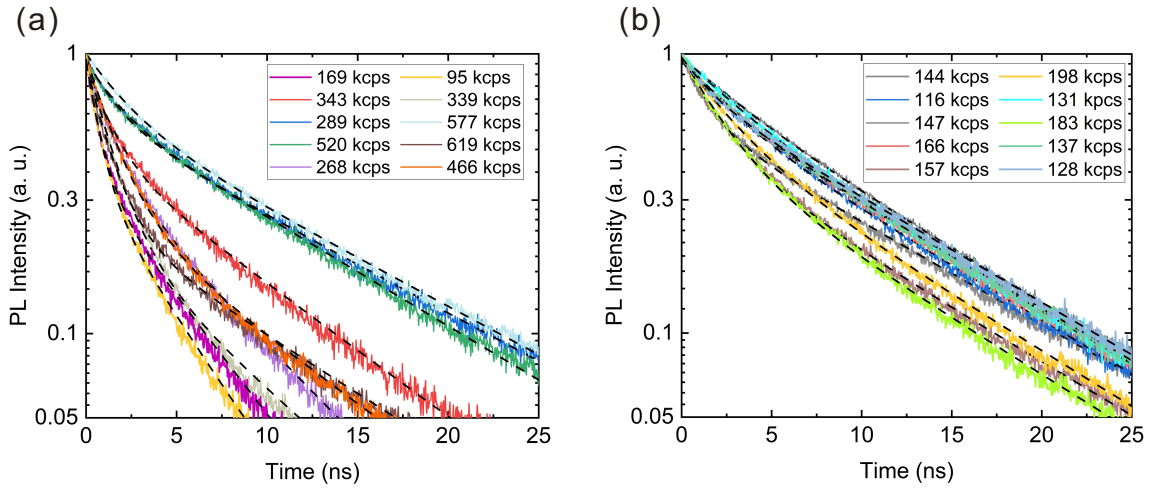

图5：具有不同饱和计数的不同 PL6 缺陷的寿命。增强型 PL6 寿命的明显缩短清楚地证实了缺陷与表面等离激元之间的耦合。衰减曲线与双指数衰减拟合良好，黑色虚线表示拟合结果。（a）十个具有不同饱和计数的增强型 PL6中心的寿命。（b）十个非等离激元增强型 PL6中心的寿命，其饱和计数差异较小。

表2：十个具有不同饱和计数的增强型单个PL6缺陷的寿命。

饱和计数（kcps）	169	343	289	520	268	95	339	577	619	466
寿命（ns）	5.0	8.9	12.3	11.0	6.4	4.3	8.4	10.1	10.1	8.5

表3：十个非等离激元增强型单个PL6缺陷的寿命。

饱和计数（kcps）	144	116	147	166	157	198	131	183	137	128
寿命（ns）	11.7	11.1	11.4	11.3	11.2	10.8	11.6	10.7	11.6	11.4

总之，我们将4H-SiC薄膜贴附在镀有薄金共面波导的硅衬底上，构建了一种简单而高性能的单缺陷增强器件。表面等离激元使荧光增强了7倍，在室温下可超过1 Mcps。与铜线相比，金波导具有较高的微波辐射效率，且其磁分量可垂直于单个 PL6 缺陷的c轴，因此获得的自旋拉比频率提高至原来的16倍，高达70 MHz。我们进一步优化了

通过调节金共面波导与缺陷之间的距离来增强荧光，并在约 15 nm 的距离处获得最大的饱和计数率。我们测量了依赖激光功率的二阶强度关联，以拟合三能级模型中的跃迁速率。拟合参数与实验结果吻合良好，表明表面等离激元加快了单个缺陷的内部跃迁速率并增强了荧光。我们进一步直接测量了等离激元增强和非等离激元增强的单个 PL6 缺陷的寿命，结果与拟合得到的跃迁速率一致，证实了缺陷与表面等离激元之间的耦合。我们的器件无需复杂的制造技术和结构，便可方便地迁移到不同材料中的其他类型缺陷。随着相干自旋控制速度的提高，单个 PL6 缺陷增强的亮度能够进一步改善光致发光激发的信噪比和态读出保真度，这有助于构建基于 SiC[10] 的量子网络。该增强结构还可以与其他增强结构相结合，例如光子腔和牛眼结构，从而进一步增强荧光收集效率。这种增强方案将在利用固态材料中自旋缺陷的量子应用中发挥重要作用。

致谢

本工作得到了量子科学与技术创新计划（项目编号：2021ZD0301400）、中国国家自然科学基金（项目编号：U19A2075、61725504 和 11821404）以及安徽省量子信息技术创新计划（项目编号：AHY060300）的资助。本工作部分研究工作在中国科学技术大学微纳研究与制造中心完成。

可获取补充信息

补充详情　　如下：(1) 离子注入的模拟结果以及　　e

粘贴在硅衬底上的 4H-SiC 薄膜的图像；(2) 三个不同单个 PL6 缺陷的饱和计数；(3) PL6-3 的激光功率依赖的强度关联及拟合参数；(4) 距离金表面 0.6 μm 和 5 μm 处缺陷的统计分布，以及单个 PL6 缺陷的稳定计数记录。(5) 三种不同偶极取向的跃迁速率有限差分时域模拟结果。(6) 使用原子力显微镜测量刻蚀台阶的高度。(7) 使用台阶仪测量衬底上键合薄膜的高度。

注释

作者声明不存在任何竞争性财务利益。

参考文献

(1) Jiang, L.; Taylor, J. M.; Sørensen, A. S.; Lukin, M. D. 基于小型量子寄存器的分布式量子计算。*Phys. Rev. Appl.* **2007年**， *76*， 062323。

(2) Van Meter, R.; Devitt, S. J. 通往可扩展分布式量子计算之路。*Computer* **2016年**, *49*,31-42.

(3) Awschalom, D. D.; Hanson, R.; Wrachtrup, J.; Zhou, B. B. 基于光学接口的固态自旋量子技术。*Nat. Photonics* **2018年**, *12*, 516-527.

(4) Lin, W.-X.; Yan, F.-F.; Li, Q.; Wang, J.-f.; Hao, Z.-H.; Zhou, J.-Y.; Li, H.; You, L.-X.; Xu, J.-S.; Li, C.-F. 注入碳化硅中双空位自旋相干性的温度依赖性。*Phys. Rev. B* **2021年**, *104*, 125305。

(5) Yan, F.-F.; Wang, J.-F.; Li, Q.; Cheng, Z.-D.; Cui, J.-M.; Liu, W.-Z.; Xu, J.-S.; Li, C.-F.; Guo, G.-C. 碳化硅中缺陷自旋在550 K以上的相干控制。*Phys.Rev. Appl.* **2018年**, *10*， 044042。

(6) Wang, J.-F.; Liu, L.; Liu, X.-D.; Li, Q.; Cui, J.-M.; Zhou, D.-F.; Zhou, J.-Y.; Wei, Y.; Xu, H.-A,; Wang, X.; Lin, W.-X.; Yan, J.-W.; He, Z.-X.; Liu, Z.-H.; Hao, Z.-H.; Li, H.-O.; Liu, W.; Xu, J.-S.; Gregoryanz, E.; Li, C.-F.; Guo, G.-C. 使用碳化硅中设计的硅空位中心进行高压下的磁探测。《自然·材料》**2023年**，*22*，489。

(7) Bernien, H.; Hensen, B.; Pfaff, W.; Koolstra, G.; Blok, M. S.; Robledo, L.; Taminiau, T. H.; Markham, M.; Twitchen, D. J.; Childress, L.; Hanson, R. 三米间距固态量子比特之间的先导纠缠。《自然》《自然》**2013年**, *497*, 86-90.

(8) Togan, E.; Chu, Y.; Trifonov, A. S.; Jiang, L.; Maze, J.; Childress, L.; Dutt, M. V. G.; Sorensen, A. S.; Hemmer, P. R.; Zibrov, A. S.; Lukin, M. D. 光学光子与固态自旋量子比特之间的量子纠缠。《自然》**2010年**，*466*，730-734。

(9) Hensen, B.; Bernien, H.; Dreau, A. E.; Reiserer, A.; Kalb, N.; Blok, M. S.; Ruitenberg, J.; Vermeulen, R. F. L.; Schouten, R. N.; Abellan, C.; Amaya, W.; Pruneri, V.; Mitchell, M. W.; Markham, M.; Twitchen, D. J.; Elkouss, D.; Wehner, S.; Taminiau, T. H.; Hanson, R. 利用相距1.3公里的电子自旋实现无漏洞贝尔不等式违背。《自然》**2015年**, *526*, 682-686。

(10) Xu, J.-S.; Li, C.-F.; Guo, G.-C. 基于碳化硅的量子网络。基础研究**2021年**，*1*，220-222。

(11) Wang, J.; Zhou, Y.; Wang, Z.; Rasmita, A.; Yang, J.; Li, X.; von Bardeleben, H. J.; Gao, W. 立方碳化硅中电信波段的明亮室温单光子源。《自然·通讯》**2018年**，*9*，4106。

(12) Li, Q.; Zhou, J.-Y.; Liu, Z.-H.; Xu, J.-S.; Li, C.-F.; Guo, G.-C. 400 K以上近C波段范围内的稳定单光子源。《半导体学报》**2019**，*40*，072902。

(13) Koehl, W. F.; Buckley, B. B.; Heremans, F. J.; Calusine, G.; Awschalom, D. D. 室

温下碳化硅中缺陷自旋量子比特的相干控制。《自然》**2011**，*479*，84-87。

(14) Widmann, M.; Lee, S.-Y.; Rendler, T.; Son, N. T.; Fedder, H.; Paik, S.; Yang, L.-P.; Zhao, N.; Yang, S.; Booker, I.; Denisenko, A.; Jamali, M.; Momenzadeh, S. A.; Gerhardt, I.; Ohshima, T.; Gali, A.; Janzen, E.; Wrachtrup, J. 室温下碳化硅中单自旋的相干控制。《自然·材料》**2015年**, *14*, 164-168.

(15) Li, Q.; Wang, J.-F.; Yan, F.-F.; Zhou, J.-Y.; Wang, H.-F.; Liu, H.; Guo, L.-P.; Zhou, X.; Gali, A.; Liu, Z.-H.; Wang, Z.-Q.; Sun, K; Guo, G.-P.; Tang, J.-S.; Li, H.; You, L.-X.; J.-S.; Li, C.-F.; Guo, G.-C. 室温下利用高读出对比度对碳化硅中的单自旋量子比特进行相干操控。《国家科学评论》**2022**, *9*, nwab122.

(16) He, Z.-X.; Li, Q.; Wen, X.-L.; Zhou, J.-Y.; Lin, W.-X.; Hao, Z.-H.; Xu, J.-S.; Li, C.-F.; Guo, G.-C. 利用聚焦 He+ 离子束在碳化硅中无掩模生成单个硅空位阵列。《*ACS*光子学》**2022**

(17) Wang, J.-F.; Yan, F.-F.; Li, Q.; Liu, Z.-H.; Liu, H.; Guo, G.-P.; Guo, L.-P.; Zhou, X.; Cui, J.-M.; Wang, J.; Zhou, Z.-Q,; Xu, X.-Y,; Xu, J.-S.; Li, C.-F.; Guo, G.-C. 室温下碳化硅中氮空位中心自旋的相干控制。《物理评论快报》**2020**，*124*，223601。

(18) Zhou, J. Y.; Li, Q.; Hao, Z. Y.; Yan, F. F.; Yang, M.; Wang, J. F.; Lin, W. X.; Liu, Z. H.; Liu, W.; Li, H.; You, L. X.; Xu, J. S.; Li, C. A. F.; Guo, G. C. 碳化硅中单个色心偶极取向的实验测定。《*ACS*光子学》**2021年**，*8*，2384-2391。

(19) Yan, F.-F.; Yi, A.-L.; Wang, J.-F.; Li, Q.; Yu, P.; Zhang, J.-X.; Gali, A.; Wang, Y.; Xu, J.-S.; Ou, X.; Li, C.-F.; Guo, G.-C. 碳化硅中注入缺陷自旋的室温相干控制。*npj Quantum Information* **2020**，*6*，1-6。

(20) Somogyi, B.; Zólyomi, V.; Gali, A. 用于体内生物标志物应用的近红外发光立方碳化硅纳米晶：一项从头算研究。*Nanoscale* **2012年**，*4*，7720-7726。

(21) Kraus, H.; Simin, D.; Kasper, C.; Suda, Y.; Kawabata, S.; Kada, W.; Honda, T.; Hijikata, Y.; Ohshima, T.; Dyakonov, V.; Astakhov, G. V. 碳化硅中光学活性相干空位自旋的三维质子束写入。《纳米快报》**2017**，*17*，2865-2870。

(22) Klimov, P. V.; Falk, A. L.; Christle, D. J.; Dobrovitski, V. V.; Awschalom, D. D. 宏观固态自旋系综在环境条件下的量子纠缠。科学进展 **2015年**, *1*, e1501015.

(23) Lin, W.-X.; Wang, J.-F.; Li, Q.; Zhou, J.-Y.; Xu, J.-S.; Li, C.-F.; Guo, G.-C. 半导体材料中光学活性点缺陷的反斯托克斯激发。*Mater.Quantum. Technol.* **2022**，*2*，042001。

(24) Yan, F.-F.; Xu, Z.-P.; Li, Q.; Wang, J.-F.; Zhou, J.-Y.; Lin, W.-X.; Xu, J.-S.; Wang, Y.; Li, C.-F.; Guo, G.-C. 室温下在单个固态自旋量子比特中实现量子流算法。*Phys. Rev. Appl.* **2021**年，*16*，024027。

(25) Christle, D. J.; Falk, A. L.; Andrich, P.; Klimov, P. V.; Ul Hassan, J.; Son, N. T.; Janzen, E.; Ohshima, T.; Awschalom, D. D. 碳化硅中具有毫秒级相干时间的孤立电子自旋。《自然·材料》《自然·材料》 **2015年**，*14*，160-163。

(26) Christle, D. J.; Klimov, P. V.; Casas, C. F. d. l.; Szasz, K.; Ivady, V.; Jok ubavicius, V.; Hassan, J. U.; Syvajarvi, M.; Koehl, W. F.; Ohshima, T.; Son, N. T.; Janzen, E.; Gali, A.; Awschalom, D. D. 碳化硅中具有高保真度红外自旋—光子接口的孤立自旋量子比特。《物理评论X》《物理评论*X*》 **2017**，*7*，021046。

(27) Anderson, C. P.; Bourassa, A.; Miao, K. C.; Wolfowicz, G.; Mintun, P. J.; Crook, A. L.; Abe, H.; Hassan, J. U.; Son, N. T.; Ohshima, T.; Awschalom, D. D. 电学的和

集成于可扩展半导体器件中的单自旋光学控制。《科学》**2019**，*366*，1225-1230。

(28) Wolfowicz, G.; Anderson, C. P.; Yeats, A. L.; Whiteley, S. J.; Niklas, J.; Poluektov, O. G.; Heremans, F. J.; Awschalom, D. D. 碳化硅中自旋缺陷的光学电荷态调控。《自然·通讯》**2017**，*8*，1876。

(29) Wang, J.-F.; Zhou, J.-Y.; Li, Q.; Yan, F.-F.; Yang, M.; Lin, W.-X.; Hao, Z.-Y.; Li, Z.-P.; Liu, Z.-H.; Liu, W.; Sun, K.; Wei, Y.; Tang, J.-S.; Xu, J.-S.; Li, C.-F.; Guo, G.-C. 共振激发下碳化硅中双空位自旋的光学电荷态操控。《光子学研究》**2021年**，*9*，1752-1757。

(30) Ivády, V.; Davidsson, J.; Delegan, N.; Falk, A. L.; Klimov, P. V.; Whiteley, S. J.; Hruszkewycz, S. O.; Holt, M. V.; Heremans, F. J.; Son, N. T.; Awschalom, D. D.; Abrikosov, I.A.; Gali, A. 通过量子阱稳定点缺陷自旋量子比特。《自然·通讯》 **2019**，*10*，5607。

(31) Gruber, A.; Drabenstedt, A.; Tietz, C.; Fleury, L.; Wrachtrup, J.; Borczyskowski, C. v. 对单个缺陷中心进行扫描共聚焦光学显微术和磁共振。《科学》**1997年**，*276*，2012-2014。

(32) Zhang, Q.; Guo, Y.; Ji, W.; Wang, M.; Yin, J.; Kong, F.; Lin, Y.; Yin, C.; Shi, F.; Wang, Y.; Du, J. 利用自旋到电荷转换对金刚石中的单个电子自旋进行高保真单次读出。《自然·通讯》 **2021年**，*12*，1529。

(33) Bernien, H.; Childress, L.; Robledo, L.; Markham, M.; Twitchen, D.; Hanson, R. 来自金刚石中独立氮空位中心的双光子量子干涉。《物理评论快报》**2012年**，*108*，043604。

(34) Momenzadeh, S. A.; Stoehr, R. J.; de Oliveira, F. F.; Brunner, A.; Denisenko, A.; Yang, S.; Reinhard, F.; Wrachtrup, J. 纳米工程化金刚石波导作为一种稳健的

用于浅层氮空位中心纳米磁测量的明亮平台。《纳米快报》**2015年**，*15*，165-169。

(35) Radulaski, M.; Widmann, M.; Niethammer, M.; Zhang, J. L.; Lee, S.-Y.; Rendler, T.; Lagoudakis, K. G.; Son, N. T.; Janzen, E.; Ohshima, T.; Wrachtrup, J.; Vuckovic, J. 利用碳化硅中的单个色心实现可扩展的量子光子学。《纳米快报》2017, 17, 1782-1786。

(36) Andersen, S. K. H.; Bogdanov, S.; Makarova, O.; Xuan, Y.; Shalaginov, M. Y.; Boltas- seva, A.; Bozhevolnyi, S. I.; Shalaev, V. M. 用于高效光子收集的混合等离激元靶心天线。《style id='1'>《ACS光子学》 **2018年**, *5*, 692-698.

(37) Li, L.; Chen, E. H.; Zheng, J.; Mouradian, S. L.; Dolde, F.; Schroder, T.; Karaveli, S.; Markham, M. L.; Twitchen, D. J.; Englund, D. 从圆形牛眼光栅中的氮空位中心高效收集光子。《纳米快报》**2015年**，*15*，1493-1497。

(38) Zheng, J.; Liapis, A. C.; Chen, E. H.; Black, C. T.; Englund, D. 用于从块体金刚石中的量子发射体实现接近 100% 收集效率的啁啾圆形介质光栅。光学快报 **2017**, *25*,32420–32435。

(39) Babin, C.; Stohr, R.; Morioka, N.; Linkewitz, T.; Steidl, T.; Wornle, R.; Liu, D.; Hesselmeier, E.; Vorobyov, V.; Denisenko, A.; Hentschel, M.; Gobert, C.; Berwian, P.; Astakhov, G. V.; Knolle, W.; Majety, S.; Saha, P.; Radulaski, M.; Son, N. T.; Ul-Hassan, J.; Kaiser, F.; Wrachtrup, J. 在保持自旋-光学相干性的同时，制备并将碳化硅色心集成至纳米光子波导。《自然·材料》**2021年**，*21*，67-73。

(40) Bracher, D. O.; Hu, E. L. 外延生长 4H-碳化硅高 Q 值纳米梁光子晶体的制备。《纳米快报》2015年，15，6202-6207。

(41) Li, L.; Schroeder, T.; Chen, E.H.; Walsh, M.; Bayn, I.; Goldstein, J.; Gaathon, O.; Trusheim, M. E.; Lu, M.; Mower, J.; Cotlet, M.; Markham, M. L.; Twitchen, D. J.;

Englund, D. 金刚石中纳米腔增强量子比特的相干自旋控制。《自然·通讯》**2015年**, *6*, 6173。

(42) Crook, A. L.; Anderson, C. P.; Miao, K. C.; Bourassa, A.; Lee, H.; Bayliss, S. L.; Bracher, D. O.; Zhang, X.; Abe, H.; Ohshima, T.; Hu, E. L.; Awschalom, D.D. 通过相干自旋控制实现单个碳化硅色心的珀塞尔增强。《纳米快报》**2020**, *20*, 3427-3434。

(43) Wang, J.-F.; Zhou, H.-L.; Xiong, X.; Li, Q.; Cheng, Z.-D.; Liu, Z.-H.; Yan, F.-F.; Lin, S.-R.; Xu, J.-S.; Wang, G.-Z.; Wu, L.; Li, C.-F.; Guo, G.-C. 纳米发射体与单层石墨烯之间的腔增强能量转移。《碳》**2020**, *161*, 794-799。

(44) Riedel, D.; Söllner, I.; Shields, B. J.; Starosielec, S.; Appel, P.; Neu, E.; Maletinsky, P.; Warburton, R. J. 超纯金刚石中氮-空位中心相干光子产生的确定性增强。《物理评论*X*》**2017**, *7*, 031040。

(45) Ruf, M.; Weaver, M. J.; van Dam, S. B.; Hanson, R. 与法布里-珀罗微腔耦合的相干氮空位中心的共振激发与 Purcell 增强。*Phys. Rev. Appl.* **2021年**, *15*, 024049。

(46) 1. Häußler, S.; Benedikter, J.; Bray, K.; Regan, B.; Dietrich, A.; Twamley, J.; Aharonovich, I.; Hunger, D.; Kubanek, A. 基于单晶金刚石薄膜中的硅空位中心和光纤腔的金刚石光子学平台。*Phys. Rev. B***2019**, *99*, 165310。

(47) Gao, X.; Jiang, B.; Llacsahuanga Allcca, A. E.; Shen, K.; Sadi, M. A.; Solanki, A. B.; Ju, P.; Xu, Z.; Upadhyaya, P.; Chen, Y. P.; Bhave, S. A.; Li, T. 用于量子传感的六方氮化硼中高对比度等离激元增强浅层自旋缺陷。《纳米快报》 **2021年**, *21*, 7708-7714。

(48) Mendelson, N.; Ritika, R.; Kianinia, M.; Scott, J.; Kim, S.; Froch, J. E.; Gazzana, C.; Westerhausen, M.; Xiao, L.; Mohajerani, S.S.; Strauf, S.; Toth, M.; Aharonovich,

I.; Xu, Z. Q. 将层状材料中的自旋缺陷耦合至纳米尺度等离激元腔。先进材料。**2022**，*34*，e2106046.

(49) Yanagimoto, S.; Yamamoto, N.; Sannomiya, T.; Akiba, K. 通过光子关联阴极发光揭示与传播型和局域表面等离激元耦合的纳米金刚石中氮空位中心的 Purcell效应。*Phys. Rev. B* **2021年**, *103*, 205418.

(50) Li, J.-F.; Li, C.-Y.; Aroca, R. F. 等离激元增强荧光光谱。*Chem.Soc. Rev.* **2017**, *46*, 3962-3979.

(51) Li, Q.; Wang, J.-F.; Yan, F.-F.; Cheng, Z.-D.; Liu, Z.-H.; Zhou, K.; Guo, L.-P.; Zhou, X.; Zhang, W.-P.; Wang, X.-X.; Huang, W.; Xu, J.-S.; Li, C.-F.; Guo, G.-C. 碳化硅中注入的浅层硅空位的纳米尺度深度控制。*Nanoscale* **2019**,*11*, 20554-20561.

(52) Wang, J.-F.; Cui, J.-M.; Yan, F.-F.; Li, Q.; Cheng, Z.-D.; Liu, Z.-H.; Lin, Z.-H.; Xu, J.-S.; Li, C.-F.; Guo, G.-C. 碳化硅缺陷自旋光学探测磁共振中的功率展宽优化。*Phys. Rev. B* **2020**，*101*，064102。

(53) Fuchs, F.; Stender, B.; Trupke, M.; Simin, D.; Pflaum, J.; Dyakonov, V.; Astakhov, G. V. 利用超纯碳化硅中的光学活性自旋构建近红外单光子发射体。《自然·通讯》 **2015年**，*6*，7578。

(54) Reineck, P.; Gómez, D.; Ng, S. H.; Karg, M.; Bell, T.; Mulvaney, P.; Bach, U. Au@ SiO2核壳纳米粒子对分子荧光的淬灭效应随距离和波长的变化。*ACS Nano* **2013年**, *7*，6636。

(55) Wang, H. S.; Wang, C.; He, Y. K.; Xiao, F. N.; Bao, W. J.; Xia, X. H.; Zhou, G. J. 用于高活性氧物种表面等离激元共振增强荧光检测的微纳流控器件上富集的核壳Ag@SiO(2)纳米颗粒。分析化学**2014**，*86*，3013。

(56) Yan, Y.; Meng, L.; Zhang, W.; Zheng, Y.; Wang, S.; Ren, B.; Yang, Z.; Yan, X. 使用 Ag@SiO_2 核壳纳米颗粒对自由溶液中金属增强荧光进行高通量单颗粒分析。*ACS Sens.* **2017**, *2*, 1369。