

Использование поликристаллических алмазов для магнитометрии на основе взаимодействия неэквивалентно ориентированных групп NV-центров

Р.А.Ахмеджанов, Л.А.Гущин, И.В.Зеленский, В.А.Низов, Н.А.Низов, Д.А.Собгайда

Показана и экспериментально продемонстрирована возможность использования поликристаллических алмазов для измерения слабых магнитных полей на основе кросс-релаксационного взаимодействия неэквивалентно ориентированных групп NV-центров.

Ключевые слова: NV-центр, магнитометрия, кросс-релаксация, поликристаллический алмаз.

Уникальные свойства отрицательно заряженных центров азот-вакансий (NV) в алмазе делают их привлекательными для разнообразных приложений, среди которых одним из наиболее перспективных и близких к коммерческому использованию является магнитометрия [1]. Стандартная схема реализации магнитометрии с применением NV-центров основана на методе оптически детектируемого магнитного резонанса (ОДМР) [1–4]. Этот метод заключается в наблюдении во флуоресценции NV-центров, вызываемой оптической накачкой (обычно нерезонансной), провалов при сканировании частоты микроволнового излучения, и позволяет работать в широком диапазоне температур – от криогенной [5, 6] до 700 К [7]. Возможность работы как с одиночными дефектами, так и с их ансамблями позволяет выбирать оптимальное для конкретной задачи соотношение между пространственным разрешением и точностью измерений. Существенным ограничением такого подхода является использование СВЧ излучения, что сужает спектр возможных приложений.

В последнее время предложен ряд схем магнитометрии с NV-центрами без использования СВЧ излучения. Для измерения сильных полей предлагается применять эффект уменьшения интенсивности флуоресценции [8] и изменение контраста спиновой релаксации [9] в магнитном поле, однако данные методы обеспечивают относительно малую чувствительность. Протокол измерения слабых магнитных полей, основанный на эффекте антипересечения спиновых подуровней основного состояния NV-центра, предложен в работе [10]. Этот протокол требует приложения сильного дополнительного магнитного поля (~ 1000 Гс), что несколько ограничивает область его применимости. Перспективным, но довольно сложным в реализации является метод, основанный на эффекте электромагнитно индуцированной прозрачности [11].

В работе [12] нами была предложена и экспериментально продемонстрирована методика измерения магнитного поля, основанная на наблюдении кросс-релаксационных резонансов в NV-центрах в монокристалле алмаза. Суть метода состоит в следующем. В кристалле алмаза возможны четыре различных направления оси NV-центра: $[1, 1, 1]$, $[-1, 1, 1]$, $[1, -1, 1]$, $[1, 1, -1]$. Частоты переходов между подуровнями основного состояния зависят от величины и направления магнитного поля и в общем случае для NV-центров с различными направлениями осей не совпадают. При некоторых направлениях магнитного поля частоты переходов для одной или нескольких групп NV-центров могут совпасть, что приведет к кросс-релаксационному взаимодействию между ними и к изменению в сигнале оптически индуцированной флуоресценции.

Пусть магнитное поле представляет собой сумму неизвестного постоянного и сканируемого полей. В этом случае в зависимости интенсивности флуоресценции от сканируемого поля наблюдаются до девяти кросс-релаксационных резонансов. Положения резонансов зависят от постоянного магнитного поля и, следовательно, могут быть использованы для его измерения. Предложенная методика обеспечивает высокую точность измерений и свободна от необходимости использования СВЧ излучения, сильных магнитных полей и т. п. Однако для прецизионных измерений требуется с высокой точностью ориентировать сканируемое магнитное поле относительно кристаллографических осей кристалла. Кроме того, некоторые сложности могут возникнуть при измерении слабых магнитных полей, недостаточных для полного «расщепления» резонансов.

В настоящей работе рассматривается возможность использования поликристаллических алмазов для реализации магнитометрии на основе кросс-релаксационного взаимодействия NV-центров. Отметим, что возможность использования поликристаллических образцов и нанокристаллов со случайной ориентацией осей для реализации магнитометрии обсуждалась также в работах [13, 14].

В случае поликристаллического образца со случайной ориентацией осей какое-либо выделенное направление отсутствует и, следовательно, сигнал флуоресценции может зависеть только от величины магнитного поля: $F(\mathbf{B}) = F(B)$. Для расчета зависимости $F(B)$ было проведено

Р.А.Ахмеджанов, Л.А.Гущин, И.В.Зеленский, В.А.Низов, Н.А.Низов, Д.А.Собгайда. Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики РАН, Россия, 603950 Н.Новгород, ул. Ульянова, 46; e-mail: zelensky@appl.sci.nnov.ru

Поступила в редакцию 11 июня 2018 г., после доработки – 23 июля 2018 г.

численное моделирование. Энергия диполь-дипольного взаимодействия между NV-центрами в алмазе быстро спадает с увеличением расстояния между ними, поэтому при моделировании предполагалось, что NV-центры с различными направлениями осей в кристалле взаимодействуют попарно, при этом все возможные (шесть) пары с одинаковым весом вносят вклад в общий сигнал флуоресценции. При моделировании флуоресценции от пары взаимодействующих NV-центров предполагалось, что кросс-релаксация приводит к их деполяризации, в результате чего в условиях нерезонансной накачки сигнал флуоресценции уменьшается [1, 12]. Считалось, что интенсивность кросс-релаксационных процессов зависит только от разности частот переходов между подуровнями основного состояния NV-центров. Основное состояние NV-центра представляет собой триплет, при этом подуровни с $m = 0$ и ± 1 расщеплены при нулевом магнитном поле на величину ~ 2.88 ГГц. Для простоты мы аддитивно учитывали вклад, связанный со всеми возможными каналами взаимодействия на переходах $|0\rangle \leftrightarrow |+1\rangle$ и $|0\rangle \leftrightarrow |-1\rangle$. Возможное взаимодействие через переходы $|0\rangle \leftrightarrow |+1\rangle$ и $|-1\rangle \leftrightarrow |+1\rangle$ не учитывалось, т. к. их частоты могут совпадать только в относительно сильных полях. Не учитывалось также взаимодействие через переходы $|-1\rangle \leftrightarrow |+1\rangle$ различных центров, поскольку они запрещены в дипольном приближении. Зависимость сигнала флуоресценции от разности частот переходов $\Delta\omega$ описывалась лоренцевской формой линии:

$$F(\Delta\omega) = 1 - C \left[1 + \left(\frac{\Delta\omega}{\omega_c} \right)^2 \right]^{-1}. \quad (1)$$

Контраст C и характерная ширина ω_c выбирались такими, чтобы результаты расчетов для монокристаллического образца соответствовали экспериментальным результатам, полученным в работе [12]. Для частот ω_+ и ω_- переходов $|0\rangle \leftrightarrow |+1\rangle$ и $|0\rangle \leftrightarrow |-1\rangle$ соответственно использовались следующие выражения [12, 15]:

$$\omega_{\pm} = \frac{2\sqrt{3}D}{3}(3b^2 + 1)^{1/2} \sin\left(\frac{\alpha}{3} + \delta_{\pm}\right), \quad (2)$$

где $\delta_+ = \pi/3$, $\delta_- = 2\pi/3$; $b = \gamma\mu_B B/D$ – безразмерное магнитное поле; $D \approx 2.88$ ГГц; параметр α определяется выражением

$$\cos\alpha = \frac{9b^2 - 27b^2 \cos^2\theta + 2}{2(3b^2 + 1)^{3/2}} \quad (3)$$

(θ – угол между магнитным полем и осью NV-центра).

Рассчитывалась зависимость сигнала флуоресценции от величины магнитного поля для некоторой его ориентации относительно кристаллографических осей кристалла. Затем проводилось усреднение по большому числу случайных ориентаций.

Результаты расчетов представлены на рис. 1, а. Зависимость сигнала флуоресценции для поликристаллического образца показана сплошной кривой. Для сравнения штриховой и пунктирной линиями показаны расчеты для монокристаллического образца и некоторых направлений магнитного поля (вдоль векторов $[1, 2, 3]$ и $[1, 0.25, 0.1]$ соответственно). Видно, что использование поликристаллического образца не приводит к заметному увеличению

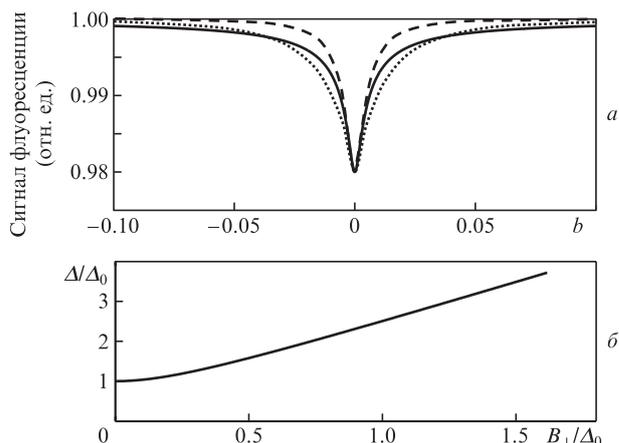


Рис. 1. Зависимости сигнала флуоресценции от безразмерного магнитного поля для поликристаллического (сплошная кривая) и монокристаллического (штриховая и пунктирная кривые соответствуют различным направлениям магнитного поля) образцов (а) и зависимость полуширины резонанса на полувысоте Δ от поперечного магнитного поля B_{\perp} (б); Δ_0 – полуширина кросс-релаксационного резонанса в отсутствие поперечного магнитного поля.

ширины кросс-релаксационного резонанса. Более того, для некоторых направлений магнитного поля резонанс в монокристаллическом алмазе может быть даже шире. Необходимо отметить, что резонанс в случае поликристалла имеет гораздо более «тяжелые» крылья, что, однако, не влияет на точность определения положения центра резонанса.

Следуя работе [12], представим магнитное поле в виде суммы измеряемого (\mathbf{B}_0) и сканируемого (\mathbf{B}_{sc}) магнитных полей. В этом случае зависимость сигнала флуоресценции от величины сканируемого магнитного поля будет выглядеть следующим образом:

$$f(B_{sc}) = F\left(\sqrt{(B_{sc} + B_{\parallel})^2 + B_{\perp}^2}\right), \quad (4)$$

где B_{\parallel} и B_{\perp} – продольная и поперечная по отношению к сканируемому магнитному полю составляющие измеряемого поля.

В профиле сигнала флуоресценции будет наблюдаться единственный кросс-релаксационный резонанс с центром при

$$B_{sc} = -B_{\parallel}. \quad (5)$$

Таким образом, процедура измерений сводится к регистрации положения кросс-релаксационного резонанса, которое позволяет непосредственно определить проекцию измеряемого поля на направление сканируемого. При необходимости можно провести несколько измерений с различным направлением \mathbf{B}_{sc} и определить величину и направление магнитного поля.

Поперечная составляющая магнитного поля не влияет на положение резонанса, однако приводит к его уширению и снижению контраста. Из (4) следует, что сигнал флуоресценции в центре кросс-релаксационного резонанса зависит только от B_{\perp} : $F(B_{\perp})$. Будем считать, что $F(B = \infty) = 1$, тогда выражение для контраста можно записать как

$$C(B_{\perp}) = 1 - F(B_{\perp}). \quad (6)$$

Отсюда следует, что контраст резонанса снижается в два раза при $B_{\perp} = \Delta_0$, где Δ_0 – полуширина кросс-релаксационного резонанса в отсутствие поперечного магнитного поля. Уширение кросс-релаксационного резонанса поперечным полем также может быть рассчитано на основании формулы (4). Зависимость полуширины резонанса на полувысоте Δ от поперечного магнитного поля представлена на рис.1,б. Видно, что для малых полей ($B_{\perp} \ll \Delta_0$) резонанс практически не уширяется, при больших поперечных полях Δ пропорциональна B_{\perp} .

Таким образом, снижение контраста и уширение кросс-релаксационного резонанса поперечным полем можно считать приемлемым для поперечных полей, величины которых меньше или порядка полуширины невозмущенного резонанса (в наших экспериментах это ~ 5 Гс).

Для проверки развитых в работе теоретических представлений был проведен эксперимент, схема которого показана на рис.2,а. В качестве поликристаллического образца использовалась склейка из ~ 25 кристаллов алмаза (НРНТ алмазы с характерным размером ~ 0.25 мм, облученные электронным пучком с интенсивностью 10^{18} электрон./см² и далее отожженные при температуре 800 °С) на стеклянной подложке. Поперечный размер склейки был ~ 2 мм. Для возбуждения использовалось излучение лазера с длиной волны 532 нм, ширина пучка превышала поперечный размер склейки, интенсивность излучения составляла 8 Вт/см². Флуоресценция коллимировалась с помощью линзы и детектировалась фотодиодом, остаточное излучение лазера отсекалось светофильтром. В связи с небольшим количеством кристаллов в склейке, для более эффективной имитации поликристалла измерения проводились при нескольких (одиннадцати) поворотах образца относительно продольной оси и результаты из-

мерений усреднялись. Образец находился в сканируемом магнитном поле, создаваемом соленоидом. С помощью магнитной катушки (на рисунке не показана) к образцу прикладывалось дополнительное магнитное поле, направленное под некоторым углом к сканируемому. Зависимость интенсивности флуоресценции от сканируемого магнитного поля для различных значений тока через магнитную катушку приведена на рис.2,б. Продольная составляющая дополнительного магнитного поля приводит к смещению кросс-релаксационного резонанса, поперечная – к снижению контраста и уширению. «Неровная» форма резонанса связана с небольшим количеством кристаллов в склейке, и по расчетам она может быть существенно улучшена при числе кристаллов в рабочем объеме более 1000, что легко достижимо при использовании поликристаллических образцов алмаза. На рис.2,в показана проекция дополнительного магнитного поля на направление сканируемого поля, измеренная по положению кросс-релаксационного резонанса, в зависимости от тока через катушку. Результаты измерений с хорошей точностью соответствуют линейной зависимости. При измерениях поперечная составляющая дополнительного магнитного поля заведомо превышала продольную (угол между сканируемым и дополнительным полями более 45°). Проведенные эксперименты подтверждают работоспособность предложенной методики для измерения магнитных полей до нескольких гауссов.

Таким образом, в настоящей работе показана и экспериментально продемонстрирована возможность использования поликристаллических алмазов для измерения магнитных полей на основе кросс-релаксационного взаимодействия неэквивалентно ориентированных групп NV-центров. Предложенная методика позволяет работать с магнитными полями до нескольких гауссов. Использование поликристаллических образцов вместо монокристаллов алмаза позволяет упростить процедуру измерений. В частности, при работе с поликристаллическим образцом не требуется точная ориентация осей, при этом наблюдается единственный кросс-релаксационный резонанс, положение которого дает возможность непосредственно определить проекцию магнитного поля на заданное направление. Отметим также, что использование поликристаллических алмазов, а также алмазных порошков вместо монокристаллов может существенно удешевить конструкцию магнитометра.

Авторы благодарны В.Л.Величанскому и А.О.Левченко за предоставленные кристаллы алмаза. Теоретическая часть работы выполнена при финансовой поддержке РФФИ и Правительства Нижегородской области в рамках научного проекта № 18-42-520017, экспериментальная – в рамках государственного задания на проведение научных исследований по теме № 0035-2014-0005.

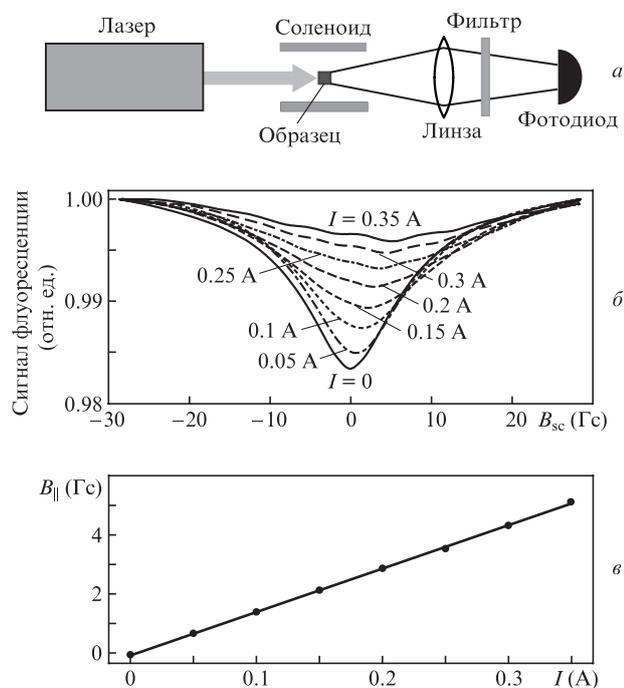


Рис.2. Схема эксперимента (а), кросс-релаксационный резонанс при различных значениях тока I через магнитную катушку (б), а также зависимость продольной составляющей магнитного поля, измеренная по положению кросс-релаксационного резонанса, от тока через магнитную катушку и ее линейная аппроксимация (в).

1. Rondin L., Tetienne J-P., Hingant T., Roch J-F., Maletinsky P., Jacques V. *Rep. Progr. Phys.*, **77**, 056503 (2014).
2. Taylor J.M., Cappellaro P., Childress L., Jiang L., Budker D., Hemmer P.R., Yacoby A., Walsworth R., Lukin M.D. *Nature Phys.*, **4**, 810 (2008).
3. Maze J.R., Stanwix P.L., Hodges J.S., Hong S., Taylor J.M., Cappellaro P., Jiang L., Gurudev Dutt M.V., Togan E., Zibrov A.S., Yacoby A., Walsworth R.L., Lukin M.D. *Nature*, **455**, 644 (2008).
4. Pham L.M., Le Sage D., Stanwix P.L., Yeung T.K., Glenn D., Trifonov A., Cappellaro P., Hemmer P.R., Lukin M.D., Park H., Yacoby A., Walsworth R.L. *New J. Phys.*, **13**, 045021 (2011).

5. Thiel L., Rohner D., Ganzhorn M., Appel P., Neu E., Muller B., Kleiner R., Koelle D., Maletinsky P. *Nature Nanotechnol.*, **11**, 677 (2016).
6. Pelliccione M., Jenkins A., Ovarthaiyapong P., Reetz C., Emmanouilidou E., Ni N., Bleszynski Jayich A.C. *Nature Nanotechnol.*, **11**, 700 (2016).
7. Toyli D.M., Christle D.J., Alkauskas A., Buckley B.B., Van de Walle C.G., Awschalom D.D. *Phys. Rev. X*, **2**, 031001 (2012).
8. Rondin L., Tetienne J.-P., Spinicelli P., Dal Savio C., Karrai K., Dantelle G., Thiaville A., Rohart S., Roch J.-F., Jacques V. *Appl. Phys. Lett.*, **100**, 153118 (2012).
9. Simpson D.A., Tetienne J.-P., McCoe J.M., Ganesan K., Hall L.T., Petrou S., Scholten R.E., Hollenberg L.C.L. *Sci. Rep.*, **6**, 22797 (2016).
10. Wickenbrock A., Zheng H., Bougas L., Leefer N., Afach S., Jarmola A., Acosta V.M., Budker D. *Appl. Phys. Lett.*, **109**, 053505 (2016).
11. Acosta V.M., Jensen K., Santori C., Budker D., Beausoleil R.G. *Phys. Rev. Lett.*, **110**, 213605 (2013).
12. Akhmedzhanov R., Gushchin L., Nizov N., Nizov V., Sobgayda D., Zelensky I., Hemmer P. *Phys. Rev. A*, **96**, 013806 (2017).
13. Anisimov A.N., Babunts R.A., Kidalov S.V., Mokhov E.N., Soltamov V.A., Baranov P.G. *JETP Lett.*, **104**, 82 (2016).
14. Fedotov I.V., Doronina-Amitonova L.V., Sidorov-Biryukov D.A., Safronov N.A., Levchenko A.O., Zibrov S.A., Blakley S., Perez H., Akimov A.V., Fedotov A.B., Hemmer, P., Sakoda K., Velichansky V.L., Scully M.O., Zheltikov A.M. *Opt. Lett.*, **39**, 6755 (2014).
15. Holliday K., Manson N.B., Glasbeek M., van Oort E. *J. Phys.: Condens. Matter*, **1**, 7093 (1989).