

Измерение времени продольной релаксации ядерного спина азота в центре окраски азот-вакансия в алмазе

В.В.Сошенко, И.С.Кожокару, С.В.Большедворский, О.Р.Рубинас, А.Н.Смолянинов, В.В.Воробьев, В.Н.Сорокин, А.В.Акимов

Методом модифицированного двойного оптического резонанса измерено время продольной релаксации ядерного спина атома азота-14 центра окраски азот-вакансия в алмазе. Образец алмаза был выращен методом высокой температуры и давления и содержал 1 ppm центров окраски азот-вакансия. Время продольной релаксации составило 43(6) с, что было сопоставлено с временем, которое было рассчитано в модели релаксации, обусловленной взаимодействием электронного спина центра окраски с фононами и спиновым резервуаром. Измеренное время находится в хорошем согласии с предсказаниями модели.

Ключевые слова: центр окраски азот-вакансия, ядерный спин азота.

1. Введение

Центр окраски азот-вакансия (NV-центр) перспективен для использования в качестве чувствительного элемента сенсоров электрических и магнитных полей, давления и напряжения [1, 2]. Далее пойдет речь о характерном для центра окраски спине системы электронов в отрицательно заряженном состоянии (NV^-), который используется в большинстве приложений. Входящий в состав центра атом азота обладает также и ядерным спином. Этот спин может быть использован в сенсорных приложениях, например для измерения угловой скорости вращения [3–5] или в качестве квантовой памяти, улучшающей чувствительность сенсора магнитного поля [6]. Структура уровней энергии NV-центра представлена на рис.1. NV-центр обладает электронным спином единица и ядерным спином единица, последний ассоциирован с атомом азота N^{14} (природная концентрация изотопа 99.6%). Основной уровень G расщеплен на три электронных магнитных по-

дуровня, определенных проекцией электронного спина на ось симметрии NV-центра: $|0\rangle_S$, $|\pm 1\rangle_S$ (рис.1). Наличие ядерного спина приводит к расщеплению каждого электронного магнитного подуровня на три ядерных магнитных подуровня $|0\rangle_I$, $|\pm 1\rangle_I$ (справа на рис.1). Время продольной релаксации ядерного спина T_1 ограничивает время хранения информации с использованием состояния ядерного спина. При этом в зависимости от типа сенсора может быть использовано как время T_1 отдельного, изолированного от других центров окраски NV-центра, так и

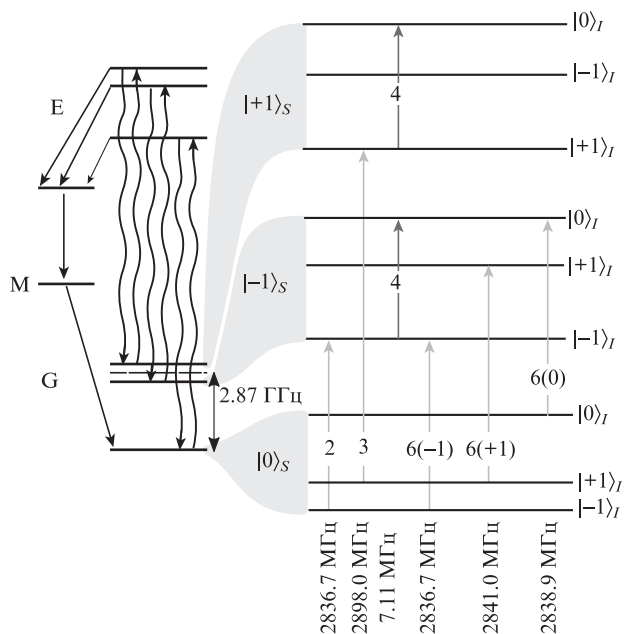


Рис.1. Уровни энергии NV-центра (фононные подуровни не приведены). Волнистыми стрелками показаны оптические переходы между основным состоянием G и возбужденным состоянием E с излучением или поглощением фотона, прямыми черными стрелками – безызлучательные переходы через метастабильный уровень M. Расщепления приведены не в масштабе. В правой части рисунка показана структура основного состояния G. При включении оптического излучения (возбуждение перехода $G \rightarrow E$) уровень G, $|0\rangle_S$ заселяется благодаря безызлучательным переходам с уровней E, $|\pm 1\rangle_S$ через метастабильный уровень M.

В.В.Сошенко, С.В.Большедворский, В.Н.Сорокин. ООО «Сенсор Спин Техноложис», Россия, 121205 Москва, ул. Нобеля, 7; Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; e-mail: soshenko.v@gmail.com

И.С.Кожокару. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; Российский квантовый центр, Россия, 143025 Москва, Сколково, ул. Новая, 100А, БЦ «Урал»

О.Р.Рубинас. ООО «Сенсор Спин Техноложис», Россия, 121205 Москва, ул. Нобеля, 7; Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; Российский квантовый центр, Россия, 143025 Москва, Сколково, ул. Новая, 100А, БЦ «Урал»; Московский физико-технический институт, Россия, Московская обл., 141701 Долгопрудный, Институтский пер., 9

А.Н.Смолянинов. ООО «Сенсор Спин Техноложис», Россия, 121205 Москва, ул. Нобеля, 7

В.В.Воробьев. Universität Stuttgart, Keplerstraße 7, 70049 Stuttgart, Baden-Württemberg, Deutschland

А.В.Акимов. Texas A&M University, College Station, TX 77843, USA; ООО «Сенсор Спин Техноложис», Россия, 121205 Москва, ул. Нобеля, 7; Российский квантовый центр, Россия, 143025 Москва, Сколково, ул. Новая, 100А, БЦ «Урал»

Поступила в редакцию 22 июля 2021 г., после доработки – 28 сентября 2021 г.

среднее по ансамблю NV-центров время. В работах [7, 8] измеренное время продольной релаксации ядерного спина в одиночном NV-центре при поле 1.5 Тл составило 240 с.

В настоящей работе представлены результаты измерения времени продольной релаксации ядерного спина ансамбля NV-центров при магнитном поле 1.1 мТл, достаточном для разрешения магнитных переходов и выделения одной из ориентаций NV-центра, т.к. NV-центры ориентированы вдоль четырех возможных направлений ковалентных связей в решетке алмаза и в отсутствие магнитного поля электронные магнитные переходы вырождены. Полученные результаты представляют интерес для исследования и разработки сенсоров магнитного поля и вращения, использующих относительно плотные ансамбли NV-центров.

2. Экспериментальная установка

Схема экспериментальной установки представлена на рис.2,а. Использовался лазерный диод 1 (WaveSpectrum WSLD-520-001-K) с длиной волны излучения 520 нм. Мощность лазерного излучения модулировалась током в режиме включено-выключено, выходная мощность составляла 100 мВт. Для увеличения коэффициента ослабления лазерного излучения лазерный диод был шунтирован n -канальным полевым транзистором BSS123. Во время длительного отключения лазерного диода транзистор открывался подачей дополнительного TTL-сигнала с программируемой логической интегральной схемы (ПЛИС). Данная мера позволила ослабить мощность пучка излучения более чем на 6 порядков (сигнал с детектора излучения с порогом обнаружения 100 нВт отсутствовал). Для стабилизации мощности лазера часть излу-

чения (10%) отделялась делителем 2 и регистрировалась с помощью фотодиода 3 (Advanced Photonix PDB-C609-2). Лазерное излучение фокусировалось линзой 4 с фокусным расстоянием 50 мм на алмазной пластине 5 в область сечением 6×11 мкм по уровню интенсивности $1/e$.

Использовалась алмазная пластина размером $1 \times 1 \times 0.6$ мм, выращенная методом высокой температуры и высокого давления [9] (Velman LLC) и вырезанная ортогонально направлению [111]. Концентрация донорного азота после выращивания составляла 10 ppm. Для формирования NV-центров образец подвергался облучению и отжигу. Облучение осуществлялось электронным пучком с энергией электронов 3 МэВ, доза облучения составляла 2×10^{18} см $^{-2}$. Отжиг происходил при температуре 1400 °С. Конечная концентрация NV-центров в алмазе была порядка 1 ppm (1.76×10^{17} см $^{-3}$), концентрация углерода-13 – природная.

Флуоресценция алмаза собиралась параболическим концентратором 6 (Edmund optics CPC), проходила через оптический фильтр 7 (Thorlabs LP590), отсекающий излучение накачки, и попадала на фотодиод 8 (Advanced Photonix PDB-C609-2). Сигнал с фотодиода, усиленный трансимпедансным усилителем, оцифровывался с помощью 16-битного АЦП (Analog devices AD7625), подключенного к ПЛИС (Xilinx Spartan 6). Магнитное поле 1.1 мТл создавалось при помощи квадратных катушек Гельмгольца со стороной квадрата 8 см. Вектор индукции магнитного поля был ориентирован вдоль кристаллографической оси [111]. Микроволновое поле для управления электронным спином формировалось при помощи резонатора 9, описанного в работе [10]. Магнитное поле резонатора было направлено перпендикулярно оси [111]. Микроволновые импульсы (СВЧ) на частотах 2830–2900 МГц формировались генератором 15 (SRS SG384), промодулированным в режиме квадратурной модуляции двухканальным ЦАП, который, в свою очередь, формировал синфазный I и квадратурный Q сигналы. Сигнал от генератора подавался через усилитель 12 (Minicircuits ZHL-16W-43X+) на резонатор 9. Радиочастотный (РЧ) сигнал для управления ядерным спином формировался с помощью ЦАП, усиливался усилителем 11 (VectaWave VBA100-30) с выходной мощностью 30 Вт и подавался на антенну 10, представляющую собой 20 витков медной проволоки диаметром 0.2 мм (диаметр витка 1.5 мм). СВЧ и РЧ сигналы перед подачей на усилители мощности управлялись ключами 13, 14 (Minicircuits ZASWA-2-50DR+). Управление экспериментом было реализовано в программном обеспечении ПЛИС, осуществляющей сбор данных с АЦП, управление цифровыми синтезаторами частоты и формирование экспериментальной последовательности импульсов (рис.2,б).

Измерение начиналось с заселения ядерного магнитного подуровня $|0\rangle_L$. В результате воздействия лазерного импульса 1 (см. рис.2,б) заселяется электронный магнитный подуровень $|0\rangle_S$. Импульсы 2, 3, 4 возбуждают магнитные переходы, указанные на рис.1, и преимущественно заселяют ядерный магнитный подуровень $|0\rangle_L$.

Далее в течение времени τ происходит релаксация населенностей ядерных подуровней. Населенности ядерных подуровней измеряются путем регистрации спектра оптически-детектируемого магнитного резонанса (ОДМР) [11], состоящего из подготавливающего импульса лазерного излучения 5, микроволнового π -импульса 6 и лазерного импульса 7 для регистрации флуоресценции. Сигнал в

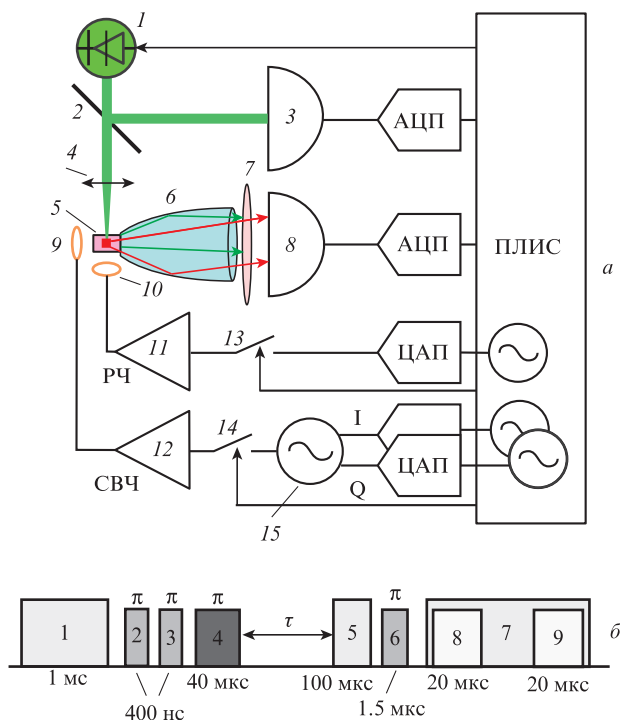


Рис.2. Блок-схема экспериментальной установки (обозначения см. в тексте) (а), а также экспериментальная последовательность импульсов (б): 1, 5, 7 – импульсы лазерного излучения; 2, 3, 4 – микроволновые и радиочастотные импульсы на частотах магнитных переходов (см. рис.1); 8, 9 – импульсы интегрирования сигнала флуоресценции.

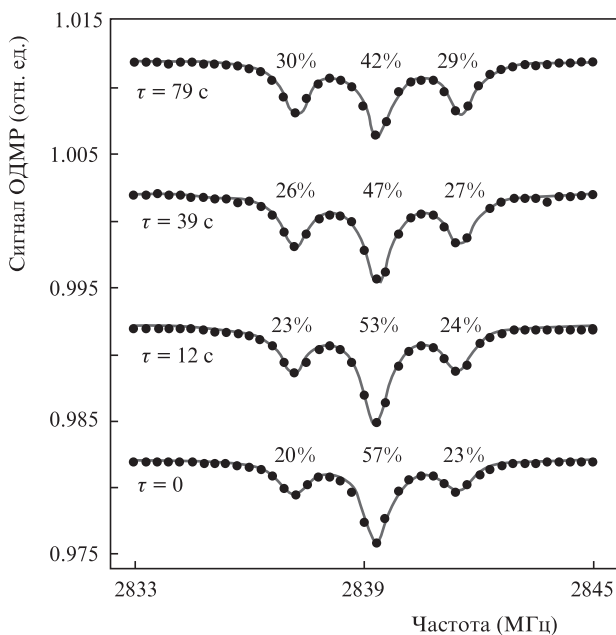
одной точке спектра ОДМР – это отношение сигнала флуоресценции (накопленного в течение импульса 8) и опорного сигнала (накопленного в течение импульса 9). Повторением экспериментальной последовательности импульсов и изменением частоты микроволнового поля в импульсе 6 получены спектры ОДМР. На рис.3,а приведены спектры ОДМР для некоторых значений τ . Из этих спектров определяются населенности ядерных магнитных подуровней $|-1\rangle_I$, $|0\rangle_I$, $|+1\rangle_I$. Спектр ОДМР состоит из трех резонансных контуров одинаковой ширины, амплитуда каждого из них пропорциональна населенности соответствующего ядерного магнитного подуровня. Резонансные контуры, приведенные на рис.3,а, соответствуют слева направо переходам $6(-1)$, $6(0)$, $6(+1)$ (см. рис.1). Определение населенностей ядерных подуровней осуществляется аппроксимацией спектра ОДМР суммой $S(f, S_0, C, P_{-1}, P_0, f_0, \gamma)$ трех лоренцевских контуров:

$$S(f, S_0, C, P_{-1}, P_0, f_0, \gamma) = S_0 - C[P_{-1}L(f, f_0 + A_H, \gamma) + P_0L(f, f_0, \gamma) + (1 - P_{-1} - P_0)L(f, f_0 - A_H, \gamma)], \quad (1)$$

$$L(f, f_0, \gamma) = \frac{\gamma^2}{(f - f_0)^2 + \gamma^2},$$

где f – частота импульса микроволнового излучения 6; свободные параметры S_0 и C – начальное смещение сигнала ОДМР и сумма амплитуд резонансов; f_0 – частота перехода $6(0)$; γ – полуширина контура на полувысоте; P_{-1} , P_0 – населенности подуровней $|-1\rangle_I$, $|0\rangle_I$; функция $L(f, f_0, \gamma)$ – контур Лоренца с амплитудой 1, центральной частотой f_0 и полушириной на полувысоте γ ; $A_H = -2.14$ МГц – величина сверхтонкого расщепления электронных магнитных подуровней. Населенность P_{+1} находится по следующей формуле:

$$P_{+1} = 1 - P_{-1} - P_0. \quad (2)$$



Из набора спектров ОДМР при разных временах задержки τ получена зависимость населенности $P_0(\tau)$ подуровня $|0\rangle_I$, представленная на рис.3,б. Зависимость аппроксимирована экспоненциальной функцией нелинейным методом наименьших квадратов:

$$P(\tau) = P_\infty + P_\delta \exp(-\tau T^{-1}). \quad (3)$$

Полученное в результате аппроксимации время T было принято за время релаксации населенности подуровня $|0\rangle_I$ и составило 44(8) с. Случайная ошибка времени T была определена из ковариационной матрицы ошибок параметров P_∞ , T , P_δ для нелинейного метода наименьших квадратов [12] с учетом ошибок определения населенностей, которые были получены из ковариационной матрицы ошибок параметров S_0 , C , P_{-1} , P_0 , P_{+1} , f_0 , γ при аппроксимации спектра ОДМР. Следует отметить, что на малых временах ($\tau < 0.1$ с) имеет место отклонение зависимости населенности от экспоненциальной, не превышающее 1%. Предположительно, это связано с перераспределением зарядового состояния NV-центров между нейтральным (NV^0) и исследуемым (NV^-) центрами. Подобное поведение присутствует в результатах работы [7].

С использованием представленной выше методики для подуровней $|-1\rangle_I$, $|+1\rangle_I$ были определены соответствующие времена релаксации 40(11) и 48(18) с. В результате усреднения полученных времен релаксации с учетом ошибок их определения время продольной релаксации ядерного спина NV-центра T_1 составило 43(6) с.

3. Механизм релаксации

Одним из возможных процессов, который определяет продольную релаксацию ядерного спина, может быть его обменное взаимодействие с электронным спином. Рассмотрим гамильтониан основного состояния NV-центра [13]:

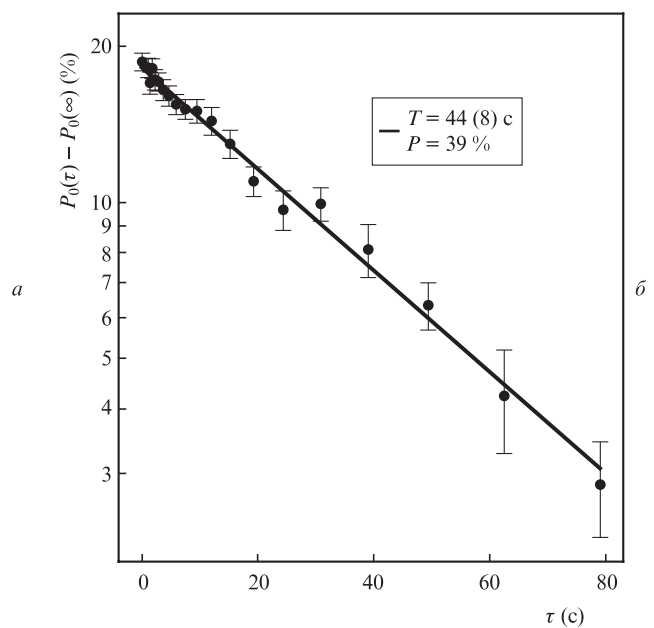


Рис.3. Спектры ОДМР для различных времен τ , смещенные для наглядности друг от друга вдоль оси ординат на 0.01 (слева направо указаны относительные населенности P_{-1} , P_0 , P_{+1} подуровней $|-1\rangle_I$, $|0\rangle_I$, $|+1\rangle_I$) (а), а также зависимость $P_0(\tau)$ населенности подуровня $|0\rangle_I$, смещенная на величину населенности $P_0(\tau)$ при $\tau \rightarrow \infty$ (б).

$$H = h[D\hat{S}_z^2 + \gamma_e \mathbf{B}\hat{S} - \gamma_n \mathbf{B}\hat{I} + Q\hat{I}_z + A_{||}\hat{S}_z\hat{I}_z + A_{\perp}(\hat{S}_x\hat{I}_x + \hat{S}_y\hat{I}_y)], \quad (4)$$

где \hat{S}_i, \hat{I}_j – операторы проекций электронного и ядерного спинов основного уровня G на оси i, j соответственно; $D = 2.87$ ГГц – расщепление основного уровня G , вызванное спин-спиновым взаимодействием неспаренных электронов в области вакансии; \mathbf{B} – магнитное поле; $\gamma_e = 28.08$ ГГц/Тл – гиромангнитное отношение электрона в NV-центре; $\gamma_n = 3.07$ МГц/Тл – гиромангнитное отношение ядра в NV-центре; $Q = 4.95$ МГц – квадрупольный сдвиг ядерных подуровней; $A_{||} = -2.2$ МГц, $A_{\perp} = -2.7$ МГц – продольная и поперечная компоненты тензора сверхтонкого взаимодействия соответственно. Поперечная компонента тензора сверхтонкого взаимодействия A_{\perp} мала по сравнению с расщеплением в нулевом поле D . Базис из собственных функций \hat{S}_z, \hat{I}_z незначительно возмущен, что приводит к обмену населенностями между ядерными и электронными подуровнями с амплитудой $\sim (A_{\perp}/D)^2$ и частотой осцилляций $\sim D$. Наличие даже незначительного обмена между ядерным и электронным спинами при продольной релаксации последнего посредством фононов [14] и поперечной при взаимодействии со спиновым резервуаром приводит к релаксации ядерного спина.

Для оценки времени релаксации ядерного спина T_{1n} была рассмотрена модель, в которой электронный спин связан с колебанием решетки с характерным временем релаксации $T_{1e} = 5$ мс и временем расфазировки $T_{2e} = 100$ мкс, вызванной взаимодействием электронного спина с окружающими парамагнитными примесями. Время релаксации электронного спина было измерено по протоколу, описанному в работе [14], время расфазировки – с помощью спинового эха. Для нахождения зависимости населенностей ядерных магнитных подуровней от времени было численно решено уравнение Лиувилля

$$\frac{d\rho}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[H, \rho] - \left\{ \frac{\partial \rho}{\partial t} \right\}_{\text{relax}}.$$

В качестве начального состояния использовалось поляризованное состояние ядерного спина $\rho(0) = |0\rangle_S \otimes |0\rangle_I \langle 0|_I \otimes \langle 0|_S$. Диссипативное слагаемое $\{\partial \rho / \partial t\}_{\text{relax}}$ построено таким образом, чтобы скорость продольной релаксации электронного спина была $1/T_{1e}$ и недиагональные элементы, отвечающие за когерентность ядерных подуровней одного электронного подуровня, затухали со скоростью $1/T_{2n}$, прочие недиагональные элементы затухали со скоростью $1/T_{2e}$.

При указанных значениях времен T_{1e} , T_{2e} , T_{2n} время релаксации ядерного спина составило 29 с. Увеличение

времени расфазировки T_{2e} до 160 мкс позволяет полностью согласовать экспериментальное и теоретическое значения. Таким образом, наиболее вероятным механизмом релаксации ядерного спина в рассматриваемых ансамблях является релаксация электронного спина и сверхтонкое взаимодействие ядерного спина азота и электронного спина NV-центра.

В работе измерено время продольной релаксации ядерного спина центра окраски азот-вакансия в алмазе в малом магнитном поле 1.1 мТл, составившее 43(6) с. Экспериментальное значение хорошо согласуется с временем, полученным из модели релаксации, связанной с взаимодействием электронных спинов центров окраски с фононами кристаллической решетки и спиновым резервуаром.

Работа поддержана Фондом содействия инноваций (грант № 13156ГУ/2018) в части подготовки алмазной пластины. В части проведения измерений продольной релаксации ядерного спина работа поддержана Российским Фондом Фундаментальных Исследований (грант № 21-42-04407).

- Schloss J.M., Barry J.F., Turner M.J., Walsworth R.L. *Phys. Rev. Appl.*, **10** (3), 034044 (2018).
- Chen E.H., Clevenson H.A., Johnson K.A., Pham L.M., Englund D.R., Hemmer P.R., Braje D.A. *Phys. Rev. A*, **95**, 053417 (2017).
- Ledbetter M.P., Jensen K., Fischer R., Jarmola A., Budker D. *Phys. Rev. A*, **86**, 052116 (2012).
- Ajoy A., Bissbort U., Lukin M.D., Walsworth R.L., Cappellaro P. *Phys. Rev. X*, **5**, 011001 (2015).
- Soshenko V.V., Bolshedvorskii S.V., Rubinas O., Sorokin V.N., Smolyaninov A.N., Vorobyov V.V., Akimov A.V. *Phys. Rev. Lett.*, **126**, 197702 (2021).
- Jiang L., Hodges J.S., Maze J.R., Maurer P., Taylor J.M., Cory D.G., Hemmer P.R., Walsworth R.L., Yacoby A., Zibrov A.S., Lukin M.D. *Science*, **326**, 267 (2009).
- Pfender M., Aslam N., Sumiya H., Onoda S., Neumann P., Isoya J., Meriles C.A., Wrachtrup J. *Nat. Commun.*, **8** (1) (2017). DOI: 10.1038/s41467-017-00964-z.
- elib.uni-stuttgart.de/bitstream/11682/10198/3/diss_pfender.pdf.
- Rubinas O.R., Vorobyov V.V., Soshenko V.V., Bolshedvorskii S.V., Sorokin V.N., Smolyaninov A.N., Vins V.G., Yelissev A.P., Akimov A.V. *J. Phys. Commun.*, **2**, 115003 (2018).
- Сошенко В.В., Рубинас О.Р., Воробьев В.В., Большедворский С.В., Капитанова П.В., Сорокин В.Н., Акимов А.В. *Кр. сообщ. физ. ФИАН*, **45** (8), 20 (2018) [*Bull. Lebedev Phys. Inst.*, **45**, 237 (2018)].
- Dréau A., Lesik M., Rondin L., Spinicelli P., Arcizet O., Roch J.F., Jacques V. *Phys. Rev. B*, **84**, 195204 (2011).
- Bevington P.R., Robinson D.K., Blair J.M., Mallinckrodt A.J., McKay S. *Comput. Phys.*, **7**, 415 (1993).
- Loubser J.H.N., van Wyk J.A. *Reports Prog. Phys.*, **41**, 1201 (1978).
- Mrózek M., Rudnicki D., Kehayias P., Jarmola A., Budker D., Gawlik W. *EPJ Quantum Technol.*, **2**, 22 (2015).

ПОПРАВКА

А.В.Семенко, Г.С.Белотелов, Д.В.Сутырин, С.Н.Слосарев, В.И.Юдин, А.В.Тайченачев, В.Д.Овсянников, В.Г.Пальчиков. Анализ неопределенностей стандарта частоты на холодных атомах иттербия с использованием операционных параметров оптической решетки («Квантовая электроника», 2021, т. 51, № 6, с. 484–489).

Статья должна быть дополнена следующей информацией:

“Статья подготовлена в рамках выполнения Государственного контракта от 15 сентября 2020 г. № 120-85/2020 на выполнение НИР «Баланс».”