

На правах рукописи

Дмитриев Александр Константинович

**Многочастотное возбуждение оптически детектируемого
магнитного резонанса в центрах окраски в алмазе**

01.04.04 – Физическая электроника

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Санкт-Петербург – 2021

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук

Научный руководитель:

Вершовский Антон Константинович, доктор физико-математических наук, ведущий научный сотрудник лаборатории Атомной радиоспектроскопии ФТИ им. А.Ф. Иоффе

Официальные оппоненты:

Запасский Валерий Сергеевич, доктор физико-математических наук, ведущий научный сотрудник лаборатории Оптики спина им. И.Н. Уральцева СПбГУ

Баранов Павел Георгиевич, доктор физико-математических наук, главный научный сотрудник – заведующий лабораторией Микроволновой спектроскопии кристаллов ФТИ им. А.Ф. Иоффе

Ведущая организация:

Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Национальный исследовательский университет ИТМО»

Защита состоится «07» октября 2021 г. в _____ часов на заседании диссертационного совета ФТИ 34.01.03 ФГБУН Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук по адресу: 194021, Санкт-Петербург, Политехническая ул., 26.

E-mail: post@mail.ioffe.ru

С диссертацией можно ознакомиться в научной библиотеке ФГБУН Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук и на сайте: <http://www.ioffe.ru>.

Автореферат разослан «___» _____ 2021 г.

Отзывы и замечания по автореферату в двух экземплярах, заверенные печатью, просьба высылать по вышеуказанному адресу на имя ученого секретаря диссертационного совета.

Ученый секретарь
диссертационного совета,
кандидат физ.-мат. наук

Белашов А.В.

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность

Азотно-вакансионный центр окраски в алмазе, или NV центр, является объектом, уникальные свойства которого позволили успешно распространить применение методик оптически детектируемого магнитного резонанса (ОДМР) на квантовые объекты в твердом теле при комнатной температуре. Среди особенностей NV центра – интенсивные спектральные полосы оптического поглощения и фотолюминесценции (ФЛ), наличие электронных спиновых состояний с большими временами когерентности, возможность эффективной оптической накачки этих состояний широкополосным видимым светом и высокая фотостабильность. Совокупность этих свойств обуславливает выбор NV центра в качестве наиболее перспективного объекта для решения многих задач квантовой оптики и информатики. В частности, в сочетании с такими свойствами алмаза, как оптическая прозрачность, химическая инертность (и, как следствие, низкая цитотоксичность) и механическая прочность, она позволяет распространить сферу применения квантовой магнитометрии на области биологии и биофизики, требующие микро- и нанометрового пространственного разрешения.

Развитие биологии и медицины поставило перед физиками задачу прецизионного измерения магнитных полей малых биологических объектов; решение этой задачи возможно только с применением новых квантовых методов измерения магнитного поля, в том числе и основанных на уникальных свойствах NV центров. Анализ требований, предъявляемых к датчикам магнитного поля в задачах магнитометрии биологических объектов, показывает, что пространственное разрешение таких датчиков должно соответствовать размерам исследуемых объектов (обычно лежащим в пределах 1 – 100 мкм для микробиологических объектов и 0.1 – 10 мм для задач магнитокардиографии и магнитоэнцефалографии), а полоса регистрируемых частот должна включать в себя диапазон 0 – 100 Гц. Этим требованиям соответствуют магнитометрические схемы, использующие непрерывное возбуждение ОДМР и реализованные на кристаллах с высокой концентрацией NV центров.

Теоретические оценки и экспериментальные измерения параметров квантовых магнитометров на основе NV центров демонстрируют принципиальные преимущества этих устройств даже в сравнении с такими устройствами, как сверхпроводящие датчики СКВИД (сверхпроводящий квантовый интерферометр) и квантовые атомные магнитометры; по приведенной чувствительности, которая для атомных магнитометрических датчиков определяется, как отношение

чувствительности к корню из объема, векторные магнитометры на NV центрах уже превосходят векторные квантовые магнитометры на парах щелочных металлов.

Цель работы

Исследование существующих методов непрерывного возбуждения ОДМР в центрах окраски в алмазе и разработка новых, обеспечивающих максимальную чувствительность магнитометрического датчика на основе азотно-вакансионного (NV) центра к постоянным и медленно (до 100 Гц) меняющимся магнитным полям. Рассмотрение возможности создания на базе NV центра в алмазе стабильных эталонов частоты и времени.

Задачи работы

- Создание экспериментальной установки для исследования ОДМР в ансамбле NV центров в кристалле алмаза, отвечающей следующим требованиям: эффективная оптическая накачка NV центров; эффективная регистрация люминесценции; регистрация сигнала люминесценции с подавлением флуктуаций, вносимых шумами лазерного излучения; возможность создания в области локализации образца необходимых сверхвысокочастотных (СВЧ) и высокочастотных (ВЧ) полей, а также однородного постоянного магнитного поля, модуль и направление которого могут варьироваться в широких пределах.
- Поиск новых методов одночастотного и многочастотного возбуждения непрерывного ОДМР в центрах окраски в алмазе, и применение этих методов для экспериментальных исследований центров окраски в алмазе.

Объект, предмет и методы исследования

В качестве объекта исследования в работе используются центры окраски в кристалле алмаза, а именно – отрицательно заряженные азотно-вакансионные (далее – NV^- , или просто NV) центры.

Предметом исследования являются физические свойства NV центров в кристалле алмаза, а именно – особенности их взаимодействия с различными вариантами оптического и радиочастотного (СВЧ и ВЧ) возбуждения.

Основным методом, используемым в данной работе, является оптически детектируемый магнитный резонанс, позволяющий оптическими методами создавать неравновесные распределения населенностей уровней в электронных и ядерных спиновых структурах и регистрировать переходы между этими уровнями. ОДМР является основным инструментом таких областей физики, как прецизионная

квантовая магнитометрия, квантовая информатика и квантовая криптография. В работе применяются различные модификации метода ОДМР, использующие одночастотное и многочастотное СВЧ и ВЧ возбуждение.

Научная новизна

Предложенные в данной работе идеи, полученные результаты, а также предложенные методы исследования характеризуются несомненной новизной. В частности, в данной работе впервые для NV центра был реализован метод комбинированного возбуждения, позволивший в три раза увеличить чувствительность магнитометрического датчика к отдельной компоненте вектора магнитного поля; также с использованием ВЧ возбуждения ОДМР был экспериментально обнаружен резонанс, соответствующий переходам с изменением ядерного момента NV центра; экспериментально были обнаружены высококонтрастные магнитонезависимые двухчастотные резонансы, обусловленные расщеплением Аутлера-Таунса в нулевом магнитном поле; был обнаружен и исследован эффект магнитозависимого поглощения радиочастотного ВЧ излучения.

Теоретическое и прикладное значение

Результаты, полученные методами непрерывного возбуждения ансамблей NV центров в кристалле алмаза при комнатной температуре в слабых и нулевых магнитных полях, позволяют углубить понимание механизмов, лежащих в основе этих методов, и расширить возможности их применения. В частности, в рамках данной работы:

1. Предложена методика повышения чувствительности магнитометрического датчика на основе NV центров в кристалле алмаза. Этот результат имеет важное значение в контексте разработки магнитометрических методов высокого пространственного разрешения для применения в медицине и биологии.
2. Обнаружен ультразвукий ОДМР резонанс, наблюдаемый при одночастотном ВЧ возбуждении. Данный результат демонстрирует возможность создания и детектирования ядерной ориентации посредством оптической накачки без использования СВЧ поля, что имеет важное значение для задач управления ядерным спином с целью использования метода в квантовых вычислениях.
3. Обнаружены высококонтрастные магнитонезависимые ОДМР резонансы, наблюдаемые при двухчастотном СВЧ+ВЧ возбуждении. Уникальные свойства этих резонансов, такие как сочетание малой ширины

с высоким контрастом и отсутствием зависимости частоты от индукции магнитного поля, позволяют использовать их для решения одной из наиболее актуальных задач метрологии, а именно – для построения сверхкомпактного, устойчивого к ускорениям и вибрациям стандарта частоты.

4. Проведены экспериментальные исследования ОДМР спектров, наблюдаемых при двухчастотном СВЧ+ВЧ возбуждении. Численное моделирование, проведенное на основе полученных в данной работе экспериментальных данных теоретической группой университета Корнелла, показало, что наблюдаемые спектры обусловлены взаимодействием таких квантовых эффектов, как расщепление энергетических уровней под воздействием сильного поля (расщепление Ауслера-Гаунса) и туннельные переходы Ландау-Зенера, возникающие в условиях антипересечения уровней в нулевом магнитном поле. Результаты теоретической интерпретации полученных экспериментальных данных позволили улучшить понимание процессов, происходящих в энергетической структуре NV центра в нулевых и слабых полях.

5. Обнаружен и исследован эффект квазирезонансного магнитозависимого поглощения радиочастотного высокочастотного излучения, регистрируемого методом ОДМР. Параметры данного эффекта позволяют реализовать на его основе субмиллиметровый магнитометр слабого магнитного поля, не использующий СВЧ поля, и тем самым решить одну из наиболее актуальных задач в диагностической медицине и биологии.

Основные положения, выносимые на защиту

1. Направленная многочастотная модуляция магнитного поля позволяет выборочно подавить в спектре ОДМР в кристалле алмаза с высокой концентрацией NV центров отклики, соответствующие различным ориентациям NV центров, и таким образом реализовать датчик компонент вектора магнитного поля, характеризующийся отсутствием «мертвых» угловых зон, возникающих вследствие перекрытия любых двух или трех контуров сигналов ОДМР.

2. Одновременное возбуждение всех трех компонент триплета в сверхтонкой структуре основного состояния NV центра в алмазе (комбинированное сверхтонкое возбуждение) приводит к существенному (примерно в три раза) увеличению контраста центрального резонанса в спектральном триплете ОДМР, что позволяет пропорционально увеличить чувствительность магнитометрического датчика на основе NV центров.

3. В образце алмаза с высокой концентрацией NV центров при комнатной температуре оптическая накачка способна, помимо электронной спиновой, создавать ядерную спиновую ориентацию, которая при возбуждении радиочастотного ОДМР на частоте ядерного спинового перехода проявляется в виде ультразвукового (с шириной порядка нескольких килогерц) резонанса. Данный эффект свидетельствует о возможности управлять ядерной ориентацией оптическими методами без возбуждения электронных спиновых переходов.

4. В условиях антипересечения уровней основного состояния NV центров в слабом магнитном поле двухчастотное СВЧ+ВЧ возбуждение при комнатной температуре способно привести к появлению в спектре ОДМР магнитонезависимых резонансов, обусловленных туннельными переходами Ландау-Зенера в структуре уровней, расщепленных вследствие эффекта Аутлера-Таунса. Контраст этих резонансов существенно превышает контраст обычных резонансов ОДМР, что в сочетании с малой шириной и отсутствием зависимости частоты от магнитного поля позволяет использовать их для задач стабилизации частоты на уровне 10^{-9} Гц^{-1/2} в сверхкомпактной, устойчивой к ускорениям и вибрациям схеме.

5. При ВЧ возбуждении NV центров в алмазе при комнатной температуре наблюдается регистрируемый методом ОДМР эффект магнитозависимого поглощения высокочастотного излучения. Обнаруженный эффект позволяет реализовать на основе кристалла алмаза с высокой концентрацией NV центров субмиллиметровый магнитометрический датчик, работоспособный в нулевом и слабых магнитных полях и не использующий СВЧ излучение, что принципиально при исследовании биологических объектов.

Достоверность полученных результатов

Достоверность полученных результатов обусловлена использованием широко применимого метода ОДМР, а также реализацией как новых, так и уже зарекомендовавших себя методик возбуждения и регистрации магнитного резонанса. В работе использовался образец алмаза с исследованными в рамках проведенной ранее бакалаврской дипломной работы люминесцентными характеристиками. Вся обработка экспериментальных данных проводилась с использованием стандартных математических алгоритмов. Также достоверность подтверждается согласием результатов эксперимента и численного моделирования (в том числе – проведенного другими исследователями), сопоставлением с теоретическими и экспериментальными результатами, полученными

другими исследователями. Все представленные в работе результаты опубликованы в реферируемых научных журналах и были представлены на российских и международных конференциях.

Апробация результатов работы

Основные результаты исследования докладывались на конференциях:

1. Международная молодежная конференция «Физика.СПб», Санкт-Петербург, 26-29 октября, 2015, стендовый доклад: «Способы возбуждения и регистрации ОДМР азотно-вакансионных центров в алмазе в схеме микроразмерного квантового магнитометра».
2. 13th International Youth School-Conference “Magnetic resonance and its applications”, Saint Petersburg, Russia, November 20-26, 2016, poster presentation: “Microscale vector magnetic field sensor based on NV centers in diamond for biology and medicine applications”.
3. Международная молодежная конференция «Физика.СПб/2017», Санкт-Петербург, 24-26 октября, 2017, устный доклад: «Комбинированное возбуждение оптически детектируемого магнитного резонанса в азотно-вакансионных центрах в кристалле алмаза в широком диапазоне значений внешнего магнитного поля».
4. 15th International School-Conference Spinus 2018: Magnetic resonance and its applications, Saint Petersburg, Russia, April 1-6, 2018, poster presentation: “Ultra-narrow low-field nuclear spin resonance in NV centers in bulk diamond crystal”.
5. Международная конференция «Физика.СПб/2018», Санкт-Петербург, 23-25 октября, 2018, стендовый доклад: «Многочастотный оптически детектируемый магнитный резонанс нулевого поля в азотно-вакансионных центрах в кристалле алмаза».
6. 16th International School-Conference Spinus 2019: Magnetic resonance and its applications, Saint Petersburg, Russia, March 31 – April 5, 2019, poster presentation: “Two-quantum optically detected resonances in NV centers in diamond in zero magnetic field”.
7. 7th annual workshop on optically-pumped magnetometers, Mainz, Germany, August 14-16, 2019, poster presentation: «Weak magnetic field NV diamond sensor».

Личный вклад автора

Личный вклад автора состоит в анализе литературных данных, разработке, создании и усовершенствовании экспериментальной

установки, написании программ автоматизации, проведении эксперимента и обработке полученных в эксперименте данных. Также автор принимал участие в интерпретации полученных экспериментальных данных.

Структура и объем работы

Диссертация состоит из введения, шести глав, заключения, списка сокращений, списка публикаций автора [A1–A7] и списка литературы. Общий объем диссертации составляет 134 страницы, включая 58 рисунков и 10 таблиц. По результатам диссертации опубликовано 7 работ в российских и зарубежных журналах, индексируемых в базе данных Web of Science.

КРАТКОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении сформулированы цели и задачи диссертационной работы, обоснована её актуальность. Представлены объект, предмет и метод исследования. Отмечены научная новизна, теоретическое и прикладное значение работы, достоверность полученных результатов. Сформированы основные положения, выносимые на защиту, а также приведены сведения о структуре диссертации, её объеме и апробации.

В первой главе представлен обзор литературы, посвященный NV центру в алмазе, сущности метода ОДМР и особенностям использования данного центра в квантовой магнитометрии.

В разделах 1.1 - 1.7 представлена краткая история обнаружения NV центра в алмазе и развития метода ОДМР, как наиболее подходящего инструмента для исследования и использования такого центра окраски. Также в данных разделах подробно представлена теория, связанная с NV центром: физическая и электронная структуры, взаимодействие с окружением в кристаллической решетке, принципы ОДМР, включающие механизм оптической накачки и магнитный резонанс, характерные времена релаксации.

Азотно-вакансионный центр в алмазе является точечным дефектом, состоящим из замещающего атома азота в узле кристаллической решетки и вакансии в соседнем узле. NV центр имеет симметрию C_{3v} , и его ось проходит вдоль тригонали кубической ячейки кристаллической решетки алмаза (ориентации $i = 1, \dots, 4$ соответствуют направлениям $\langle 111 \rangle$, $\langle \bar{1}\bar{1}1 \rangle$, $\langle 1\bar{1}\bar{1} \rangle$, $\langle \bar{1}\bar{1}\bar{1} \rangle$ решетки).

Структура ОДМР спектра одиночного NV центра определяется [1,2] следующими основными параметрами: гиромангнитным отношением $\gamma/2\pi = 28$ ГГц/Тл, параметрами продольного расщепления в нулевом

поле $D/2\pi = 2.87$ ГГц и поперечного расщепления E , варьирующимся от единиц килогерц до мегагерц.

Структура уровней основного состояния NV центра 3A_2 определяется гамильтонианом [3]:

$$H = DS_z^2 + E(S_x^2 - S_y^2) + g_s\mu_B\vec{B} \cdot \vec{S} + A_{||}S_zI_z + A_{\perp}(S_xI_x + S_yI_y) + PI_z^2 - g_I\mu_N\vec{B} \cdot \vec{I}, \quad (1)$$

где $\mu_B = h \cdot 13.996 \times 10^9$ Гц/Тл – магнетон Бора, $\mu_N = h \cdot 7.622 \times 10^6$ Гц/Тл – ядерный магнетон, \vec{I} и \vec{S} – ядерный и электронный спины NV центра ($I=1, S=1$), $g_s = 2.003$ и $g_I = 0.403$ – электронный и ядерный g факторы, $A_{||} = -2.16$ МГц и $A_{\perp} = -2.7$ МГц – продольный и поперечный параметры сверхтонкого расщепления, $P = 4.95$ МГц – параметр квадрупольного расщепления.

При наличии внешнего магнитного поля B с проекцией B_i на i -ю ось NV центра частоты переходов определяются выражением [4]:

$$2\pi \cdot f_{i\pm} = D \pm [E^2 + (\gamma \cdot B_i)^2]^{1/2}. \quad (2)$$

Знак \pm относится к переходам $|m_s = 0\rangle \leftrightarrow |m_s = \pm 1\rangle$. Магнитное поле расщепляет каждую из двух спектральных линий, соответствующих данным переходам, на четыре компоненты, частоты которых определяются ориентациями осей соответствующих центров.

Дополнительная структура возникает из-за взаимодействия спинов неспаренных электронов со спином ядра ${}^{14}\text{N}$ [5], в результате которого каждая спектральная линия расщепляется на три, образуя частично разрешенный триплет. Полный ОДМР спектр ансамбля NV центров во внешнем магнитном поле направленном таким образом, чтобы его проекция на ось NV центра была различна для каждой из четырех ориентаций, состоит из 24-х спектральных линий в двух симметричных крыльях.

В разделах 1.8 – 1.10 дано описание принципов магнитометрии на основе NV центра и сравнение магнитометрических датчиков на основе NV центров с другими магнитометрическими системами, такими как: квантовые магнитометры с оптической накачкой (КМОН) [6], сверхпроводящие магнитометры СКВИД, магнитно-резонансные силовые микроскопы (МРСМ) и др.; представлены различные схемы таких датчиков, рассмотрены их особенности и области их применения. Дан

обзор новейших схем и методов, основанных на ОДМР в азотно-вакансионных центрах.

Во второй главе приведено описание экспериментальной установки, созданной в процессе выполнения работы и включающей в себя источник лазерного излучения накачки, оптическую схему, схему детектирования сигнала, системы генерации магнитного поля и электронные блоки. Также дано описание объекта исследования (кристалла алмаза) и методов его позиционирования.

На Рис.1 представлена полная схема экспериментальной установки. Используемый образец представляет собой кристалл синтетического алмаза объемом $\sim 0.01 \text{ мм}^3$, облученный электронным пучком интенсивностью $5 \times 10^{18} \text{ эл/см}^2$ и отоженный в течение двух часов в атмосфере аргона при температуре 800°C . Особенностью данной схемы является использование световода, который выполняет две функции: во-первых, прошедшее сквозь него излучение осуществляет оптическую накачку образца, расположенного на другом его торце; во-вторых, часть излучения ФЛ образца попадает в тот же световод, и по нему в обратном направлении передается на дихроичное зеркало, после чего с помощью линзы фокусируется на поверхности регистрирующего фотодетектора. В установке реализована балансная схема регистрации сигнала за счет использования дополнительного опорного фотодетектора.

Схема магнитометрического датчика представлена на Рис.2: кристалл синтетического алмаза с высокой концентрацией NV центров объемом $\sim 0.01 \text{ мм}^3$ закреплен оптически прозрачным клеем на торце световода, представляющего собой кварцевое оптоволокно с диаметром центральной жилы 0.9 мм. СВЧ индуктор (излучатель) представляет собой намотанную на световод катушку из трех витков медного провода. В качестве источника накачки используется твердотельный лазер с длиной волны излучения 532 нм. Все измерения проводились при комнатной температуре. Также важно отметить, что излучение накачки, прошедшее через многомодовый световод и подвергшееся переотражению от покрытия, может считаться практически неполяризованным; это позволяет обеспечить равные условия накачки для всех четырех возможных ориентаций NV центров.

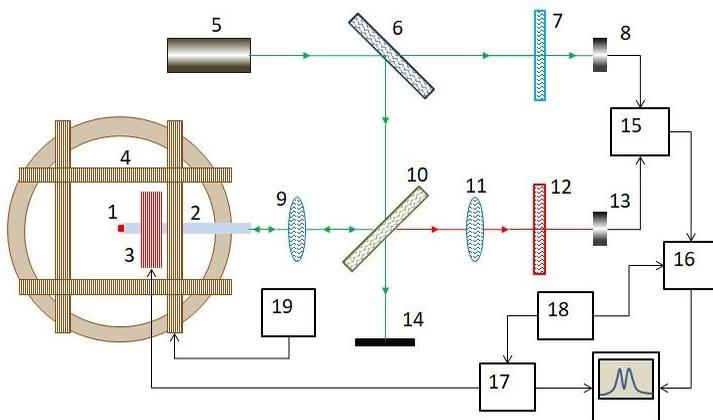


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: 1 – кристалл алмаза, 2 – оптоволокно, 3 – катушки-индукторы ВЧ и/или СВЧ поля, 4 – кольца Гельмгольца, 5 – лазер, 6 – полупрозрачное зеркало, 7,12 – цветные светофильтры, 8, 13 – фотоприемники, 9, 11 – фокусирующие линзы, 10 – дихроичное зеркало, 14 – поглотитель лазерного излучения, 15 – балансный (дифференциальный) усилитель, 16 – синхронный детектор, 17 – управляемый СВЧ или ВЧ генератор, 18 – генератор частоты модуляции, 19 – программируемый трехканальный генератор тока [A6].

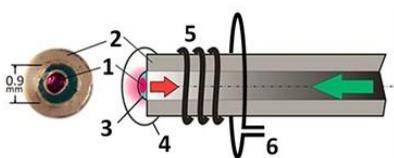


Рис. 2. Схема магнитометрического датчика: 1 – алмаз, 2 – оптоволокно, 3 – прозрачный клеевой слой, 4 – отражающее покрытие, 5 – СВЧ индуктор, 6 – ВЧ индуктор [A2].

ВЧ поле подводилось к образцу посредством катушки из медного провода. Магнитное поле создавалось одной из следующих систем: соленоид, система из трех пар магнитных колец Гельмгольца, мини-система из двух пар колец Гельмгольца.

В третьей главе приведены результаты разработки физических принципов микроразмерного векторного магнитометрического датчика слабого поля на NV центрах в алмазе.

В разделе 3.1 представлена концепция микроразмерного векторного магнитометрического датчика на основе NV центров в алмазе [A2]. Данная работа стала продолжением исследования, представленного в [7].

Предлагаемый магнитометрический датчик относится к классу M_z магнитометров [6], детектирующих сигнал разности населенностей и, как

правило, использующих частотную модуляцию для привязки радиочастотного или СВЧ поля к резонансной линии. Недостаток этого метода в применении к спектру ОДМР в алмазе заключается в том, что он не позволяет идентифицировать резонансы в спектре, а в случае их перекрытия оказывается вообще неприменим; для обеспечения работоспособности датчика требуется разработать методы, обеспечивающие эффективное разделение или подавление сигналов ОДМР от центров выбранных ориентаций.

С этой целью вместо модуляции частоты СВЧ поля была использована модуляция магнитного поля: на измеряемое поле \vec{B} накладывалось слабое переменное поле \vec{B}_{mod} . Согласно (2), частоты линий в спектре центра с определенной ориентацией зависят от величины проекции магнитного поля на ось этого центра (Рис. 3 (а)).

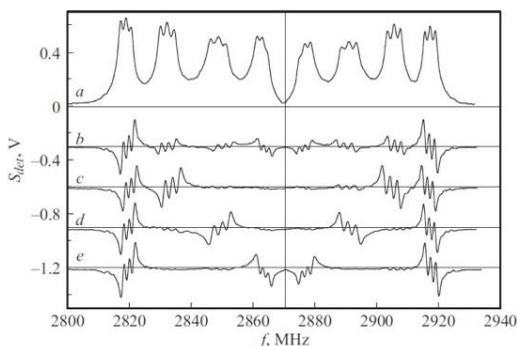


Рис. 3. Панорамы спектра ОДМР NV центров в алмазе при $B=4$ мТл: (а) – амплитудная модуляция СВЧ поля; (б) – модуляция магнитного поля в направлении $\langle 111 \rangle$; (с-е) – модуляция магнитного поля в направлениях $\langle 110 \rangle$, $\langle 101 \rangle$, $\langle 011 \rangle$ [7].

В частности, отклик на переменное поле максимален, если оно параллельно оси центра, и равен нулю, если оно перпендикулярно оси центра (следует отметить, что максимум сигнала одночастотного ОДМР соответствует минимуму сигнала флуоресценции; поэтому на приведенных здесь и далее графиках все спектры флуоресценции были инвертированы, и сигналам ОДМР на них соответствуют положительные пики).

Соответственно, выбором направления переменного поля можно усиливать или ослаблять отклики ОДМР, соответствующие разным ориентациям NV центров. Так, ориентируя \vec{B}_{mod} в направлении $\langle 111 \rangle$, можно подчеркнуть одну линию из четырех, остальные три при этом сохраняют значительную амплитуду (Рис. 3 (б)). Но, ориентируя \vec{B}_{mod} в направлениях $\langle 110 \rangle$, $\langle 101 \rangle$, $\langle 011 \rangle$, можно выборочно подавлять два отклика из четырех (Рис. 3 (с-е)). Соответственно, модулируя разнонаправленные поля на разных частотах, можно организовать несколько независимых петель обратной связи –

подобный метод был использован в схеме векторного гелиевого магнитометра [8].

В разделе 3.2 представлена разработанная в рамках работы методика комбинированного возбуждения ОДМР в азотно-вакансионных центрах в кристалле алмаза для прецизионного измерения компонент вектора магнитного поля и результаты её экспериментальной реализации [A1,A2].

Обычно в магнитометрических схемах на NV центрах используется центральная компонента триплета $|m_s = 0, m_l = 0\rangle \leftrightarrow |m_s = \pm 1, m_l = 0\rangle$, так как положение ее вершины не смещается крыльями соседних линий. Главным недостатком такого метода регистрации является использование всего одной трети от общего количества NV центров.

Одновременное микроволновое возбуждение всех трех компонент сверхтонкого триплета посредством дополнительной модуляции СВЧ поля на частоте сверхтонкого расщепления привело к изменению формы наблюдаемых резонансов (Рис. 4). Суммирование резонансных откликов вызвало примерно трехкратный рост центрального пика и рост общего сигнала за счет опроса трех переходов в сверхтонкой структуре (СТС) (Рис. 4(a)).

Чувствительность δB магнитометрической схемы в полосе пропускания Δf можно оценить [9,10], исходя из значения крутизны резонансной линии ds/df , измеренной в центре при оптимальном индексе модуляции возбуждающего поля, а также спектральной плотности шума ρ_N и гиромагнитного отношения γ :

$$\delta B = \frac{1}{\gamma} \cdot \frac{\rho_N}{(ds/df)} \cdot \sqrt{\Delta f}. \quad (3)$$

В результате применения техники комбинированного возбуждения ОДМР крутизна сигнала в центре резонансной линии была увеличена почти в три раза (до 10.27 В/МГц) (Рис. 4(b)). С учетом спектральной плотности шума $\rho_N = 0.9$ мВ (Рис. 4(c)) итоговая чувствительность к отдельной компоненте вектора поля достигла $\delta B = 1.5$ нТл·Гц^{-1/2}, а чувствительность схемы, ограниченная дробовым шумом фототока составила $\delta B = 0.3$ нТл·Гц^{-1/2} [A2]. При этом полоса частот устройства $\Delta f = 100$ Гц определяется временем T_1 ($\sim 2 \cdot 10^{-4}$ с): $\Delta f \ll 1/2\pi T_1$ (Рис. 4(d)).

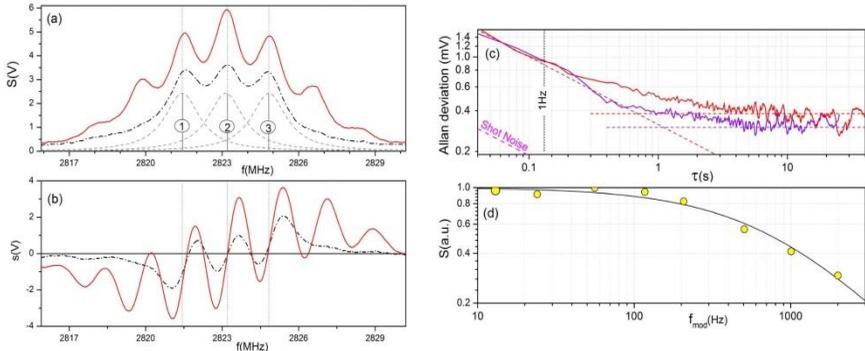


Рис. 4. (а) Сигнал ОДМР соответствующий переходу $|m_s = 0\rangle \leftrightarrow |m_s = -1\rangle$ при 100% амплитудной модуляции СВЧ поля: штрих-пунктирная линия – при одночастотном возбуждении, красная сплошная линия – при комбинированном многочастотном возбуждении, пунктир – аппроксимация триплета тремя лоренцевскими контурами с шириной (1.67 ± 0.1) МГц. (б) Тот же ОДМР спектр при частотной модуляции: штрих-пунктир – одночастотное возбуждение, сплошная красная линия – комбинированное возбуждение. (в) Диаграмма Аллана сигнала фотолюминесценции с частотой СВЧ поля, отстроенной от резонанса: красная линия – шум при включенном лазере; фиолетовая линия – шум при выключенном лазере. (г) Частотная характеристика ОДМР сигнала [A2].

Достигнутая чувствительность не является рекордной, однако по приведенной чувствительности $\delta B_V = \delta B V^{1/2}$, позволяющей сравнивать характеристики для квантовых дискриминаторов при равном объеме чувствительного элемента V [1], наш датчик почти на два порядка превосходит аналогичную чувствительность векторного КМОН на щелочных атомах [11], демонстрируя $\delta B_V = 5 \cdot 10^{-12}$ Тл·см^{3/2}·Гц^{-1/2}.

В разделе 3.3 рассмотрена принципиальная возможность повышения чувствительности магнитометрического датчика на основе NV центров в существующей конфигурации к слабым магнитным полям, в которых, согласно (2), уменьшается зависимость частоты резонансов ОДМР от величины магнитного поля и происходит перекрытие резонансных линий ОДМР (Рис. 5).

Нами была разработана численная модель ОДМР спектра в слабых полях, позволяющая рассчитывать сумму откликов как неоднородно, так и однородно уширенных контуров. Сравнение модели с экспериментом, представленное на Рис. 6, подтверждает её работоспособность.

Из Рис. 5 следует, что частотный интервал между компонентами сверхтонкого триплета, почти постоянный в сильных магнитных полях, в

слабых магнитных полях сильно зависит от величины поля, что в условиях локальной неоднородности приводит к неэффективности описанного ранее метода комбинированного СТС возбуждения.

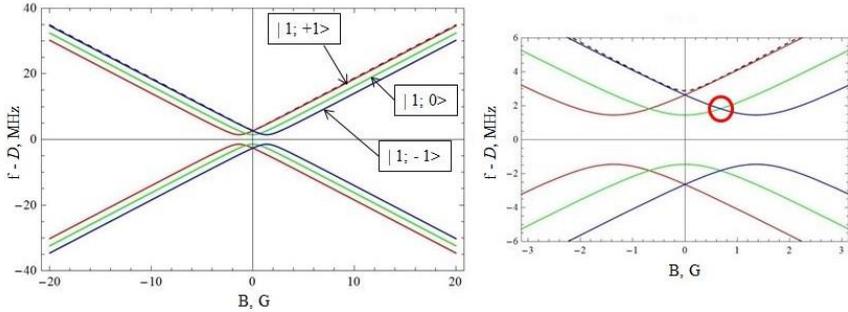


Рис. 5. Зависимость частот переходов, измеренных относительно параметра D, от внешнего магнитного поля: синяя линия – переход $|0, -1\rangle \leftrightarrow |\pm 1, -1\rangle$; зеленая линия – переход $|0, 0\rangle \leftrightarrow |\pm 1, 0\rangle$; красная линия – переход $|0, 1\rangle \leftrightarrow |\pm 1, 1\rangle$; штриховая линия – экспериментально измеренная зависимость.

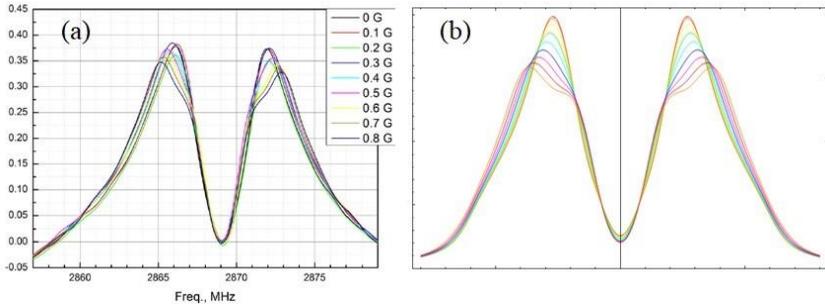


Рис. 6. Спектры ОДМР для разных значений магнитного поля: а) полученные в эксперименте, б) построенные численно с учетом однородного и неоднородного уширений.

С целью исключить перекрытие резонансных линий ОДМР в слабых полях была предпринята попытка использовать сильное дополнительное СВЧ поле; частота СВЧ поля была выбрана резонансной двум из трех СТС переходов (переходы $|0, 0\rangle \leftrightarrow |1, 0\rangle$ и $|0, -1\rangle \leftrightarrow |1, -1\rangle$ – красный кружок на Рис. 5). Предполагалось, что результатом воздействия сильного СВЧ будет выравнивание населенностей и подавление вкладов в сигнал ОДМР от соответствующих переходов. Вторым СВЧ полем предполагалось опрашивать переход $|0, 1\rangle \leftrightarrow |1, 1\rangle$, сохраняющий в нулевом поле линейную зависимость от величины поля. Результат оказался существенно слабее ожидаемого; вскоре сходный метод

«выжигания», дополненный использованием циркулярно поляризованного микроволнового излучения и образца алмаза с низким содержанием ^{13}C , был успешно применен в [12], что вынудило прекратить работы в этом направлении. Положительным результатом данного этапа работы следует считать разработку численной модели ОДМР в слабых полях. Кроме того, был сделан вывод о неэффективности использования СВЧ полей для изменения распределения населенностей внутри сверхтонкой структуры в условиях оптической накачки.

Четвертая глава содержит исследование отклика NV центров на одночастотное ВЧ возбуждение ОДМР в алмазе [А4]. В результате данной работы удалось наблюдать ультразвукий (~ 7 кГц) резонанс, который возбуждается и оптически детектируется в объемном образце алмаза в слабых (0–10 мТл) магнитных полях с использованием единственного ВЧ поля, настроенного на резонансную частоту 4.95 МГц, соответствующую ядерному переходу $|m_s = 0, m_I = 0\rangle \leftrightarrow |m_s = 0, m_I = \pm 1\rangle$ ($|0, 0\rangle \leftrightarrow |0, \pm 1\rangle$).

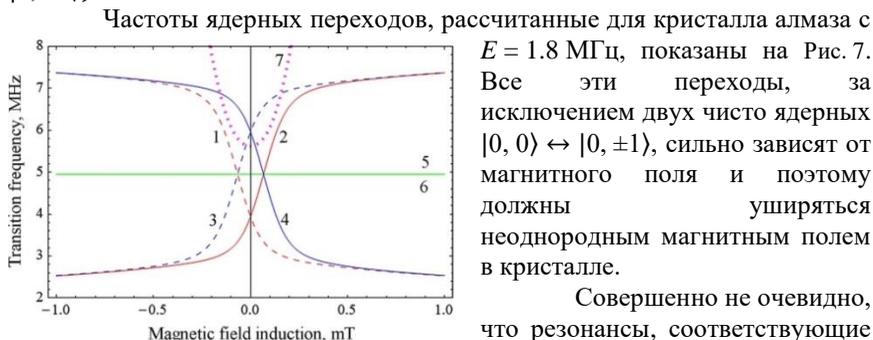


Рис. 7. Расчетные частоты ядерных переходов в кристалле алмаза с $E=1.8$ МГц. Линии **1, 2** соответствуют переходам $|1, 1\rangle \leftrightarrow |1, 0\rangle$ и $|1, 0\rangle \leftrightarrow |1, -1\rangle$; линии **3, 4** – переходам $|-1, 1\rangle \leftrightarrow |-1, 0\rangle$ и $|-1, 0\rangle \leftrightarrow |-1, -1\rangle$; линии **5, 6** – переходам $|0, 0\rangle \leftrightarrow |0, \pm 1\rangle$; линия **7** – электронно-ядерному переходу с изменением проекции спина $|1, -1\rangle \leftrightarrow |-1, 1\rangle$ [А4].

$|0, \pm 1\rangle$, и (предположительно) электронно-ядерный переход $|1, -1\rangle \leftrightarrow |-1, 1\rangle$.

В ОДМР спектре, полученном в нулевом магнитном поле (Рис. 8), можно выделить 1) широкий провал на частоте ~ 5.6 МГц, который, опираясь на Рис. 7, можно соотнести с электронно-ядерным переходом, и 2) узкий пик на частоте 4.95 МГц, относящийся к ядерному переходу. Зависимость ширины резонансной линии $\Gamma/2\pi$ от амплитуды ВЧ поля E_{RF} (вставка на Рис. 8) измерялась в поле 1 мТл, так как в меньших полях амплитуда сигнала падает (Рис. 9(а,с)), а в больших полях наблюдается расщепление резонансной линии вследствие эффекта Зеемана (Рис. 9а). Экстраполированная (после вычитания радиочастотного уширения) к нулю амплитуды ВЧ поля ширина линии резонанса составила 6.8 кГц.

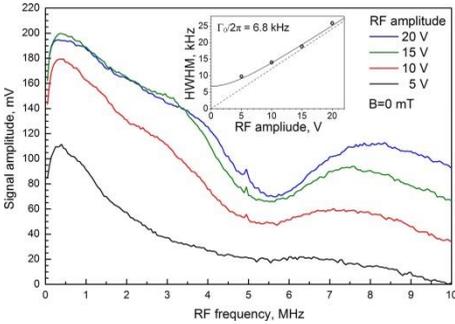


Рис. 8. ВЧ ОДМР спектр, полученный в нулевом магнитном поле при разных значениях амплитуды ВЧ; вставка: зависимость ширины сигнала от амплитуды ВЧ поля при $B=1$ мТл [A4].

(2.6 ± 0.4) кГц/мТл и ядерному g -фактору $g_N = (0.34 \pm 0.05)$, —это значение оказалось на 15% меньше ожидаемого. Расхождение, предположительно связанное с неточностью расчета величины магнитного поля в соленоиде, лежит в пределах экспериментальной ошибки, что позволяет однозначно сопоставить ВЧ резонансы с переходом $|0, 0\rangle \leftrightarrow |0, \pm 1\rangle$. Помимо расщепления резонансных линий магнитное поле также и сдвигает их, в результате чего зависимость квадрупольного расщепления от магнитного поля оказывается параболической: $P = P_0 + P_2 \cdot B^2$, где $P_0 = (4.9447 \pm 0.0002)$ МГц, что хорошо согласуется с [13, 14], и $P_2 = (512 \pm 6)$ Гц/мТл². Квадратичный сдвиг еще требует объяснения, как и асимметрия в амплитуде резонансов (Рис. 9а,с).

Для проверки предположения о том, что наблюдаемые резонансы действительно соответствуют ядерному переходу $|0, 0\rangle \leftrightarrow |0, \pm 1\rangle$, ОДМР спектр был исследован при различных значениях внешнего магнитного поля (до 10 мТл) (Рис. 9).

Как следует из Рис. 9(б), расщепление резонансной линии линейно растет с ростом магнитного поля. Значение расщепления f_{diff}/dB соответствует гиромагнитному отношению $\gamma/2\pi =$

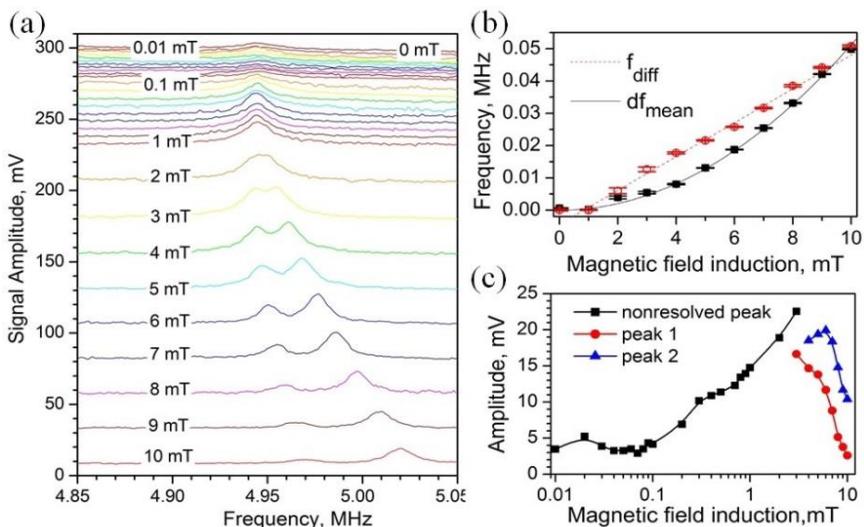


Рис. 9. (a) ВЧ ОДМР спектр, записанный при разных значениях внешнего магнитного поля; (b) зависимость частотной разности между двумя резонансами $f_{diff} = f_2 - f_1$ и сдвига средней частоты резонансов $df_{mean} = (f_2 + f_1)/2 - P_0$ ($P_0 = 4.9447$ МГц) от магнитного поля; (c) зависимость амплитуды резонансов от магнитного поля [A4].

Данный эксперимент демонстрирует возможность создания и детектирования ядерной ориентации чисто оптическими методами без использования СВЧ поля. Ультразвук резонансы могут наблюдаться в ОДМР сигнале при комнатной температуре и в слабых магнитных полях. Это может быть важным шагом к созданию простой и компактной схемы управления ядерным спином с целью квантовых вычислений, а также к разработке новых магнитометрических схем, не использующих СВЧ поля, для применения в биологии и медицине.

Пятая глава посвящена двухчастотному возбуждению (СВЧ+ВЧ) ОДМР. Методы многочастотного возбуждения уже находят применение в метрологии магнитного поля и времени, и особенно эффективны в сильных магнитных полях, где происходит антипересечение уровней $|0\rangle$ и $|-1\rangle$ в возбужденном (в поле 0.05 Тл), или в основном (в поле 0.1 Тл) состоянии [15,16,17,18]. В представленной работе осуществлялось двухчастотное (СВЧ+ВЧ) резонансное возбуждение ОДМР в NV центрах в алмазе в нулевом магнитном поле, где также происходит антипересечение уровней [19].

В разделе 5.1 рассматривается

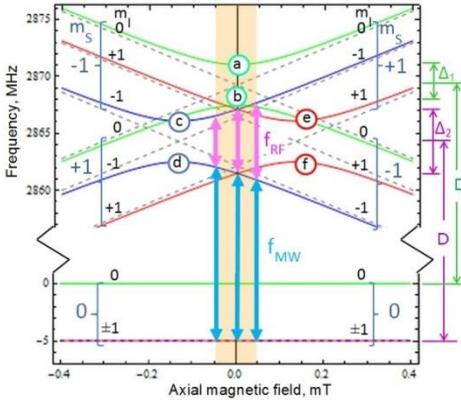


Рис. 10. Зависимость частот уровней основного состояния NV центра от внешнего магнитного поля при параметре $E=1.8$ МГц. Пунктирные линии – чистые состояния, сплошные линии – смешанные состояния. Стрелками обозначены резонансные СВЧ и ВЧ поля. Закрашенная область – диапазон магнитного поля, где наблюдаются резонансы [A3].

состояния $|\pm 1, \pm 1\rangle$ – в суперпозиции $|c\rangle, |d\rangle, |e\rangle, |f\rangle$.

Зависимость уровней энергии и соответствующих частот от магнитного поля в слабых полях нелинейна. Данная структура детально была исследована в [19].

В разделе 5.2 приводится полное описание эксперимента по исследованию спектров двухчастотного возбуждения.

Двухчастотный ОДМР возбуждался СВЧ полем f_{MW} в комбинации с дополнительным ВЧ полем f_{RF} , модуляция вводилась в СВЧ канал [A3]. На полученных спектрах (Рис. 11) наблюдались симметричные резонансы шириной (при минимальной интенсивности ВЧ поля) около 0.5 МГц, имеющие обратную по отношению к обычным резонансам ОДМР полярность, и появляющиеся при выполнении следующих условий:

$$\begin{aligned} f_{RF} &\approx \Delta, \\ f_{MW} \pm \frac{1}{2} f_{RF} &= D, \end{aligned} \quad (4)$$

энергетическая структура NV центра. В нулевом и ультраслабых магнитных полях она гораздо сложнее, чем в сильных (Рис. 10) и содержит как пересечения, так и антипересечения уровней, частично замаскированные неоднородностью внутренних полей в кристалле. Каждый NV центр в объемном образце подвергается влиянию локального магнитного поля B_L , поперечная компонента этого поля вместе с напряжениями в кристалле вызывает эффект антипересечения уровней. Таким образом, чистые энергетические состояния $|\pm 1, 0\rangle$ при $B \approx 0$ смешиваются в суперпозиции $|a\rangle, |b\rangle$, а чистые энергетические

где $\Delta = (5.62 \pm 0.2)$ МГц. Ширины огибающей резонансов (Рис. 11(b)) по отношению к СВЧ и ВЧ полям равны $\Gamma_{MW}/2\pi = (0.7 \pm 0.1)$ МГц и $\Gamma_{RF}/2\pi = (1.4 \pm 0.2)$ МГц соответственно. Частоты резонансов оказались независимы от магнитного поля.

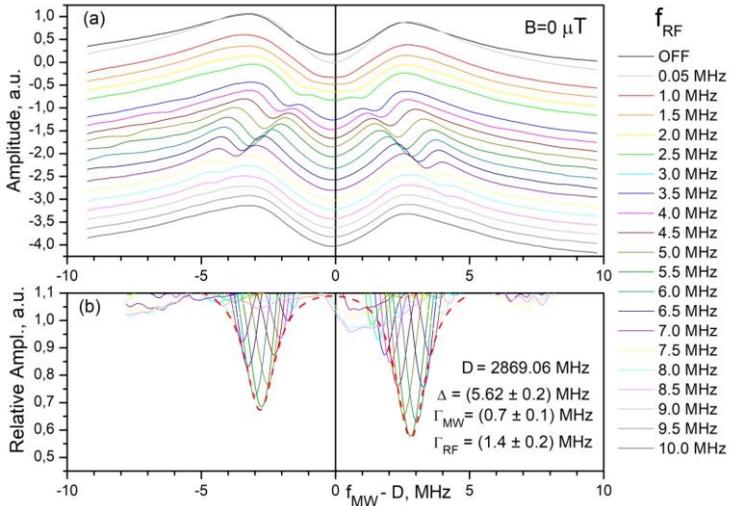


Рис. 11. (a) ОДМР спектры, записанные в нулевом магнитном поле при разных значениях f_{RF} ; верхняя кривая – нормальный сигнал ОДМР, два симметричных провала – наблюдаемые резонансы. (b) Огибающая наблюдаемых резонансов [A3].

Опираясь на расчетную зависимость частот переходов (Рис. 10), было установлено, что Δ соответствует расщеплению между уровнями $|c\rangle, |e\rangle$ и $|d\rangle, |f\rangle$ при $B_L = 0$. Это означает, что наблюдаемые резонансы соответствуют переходам $|0, -1\rangle \leftrightarrow |d\rangle \leftrightarrow |c\rangle$ или $|0, +1\rangle \leftrightarrow |f\rangle \leftrightarrow |e\rangle$.

Многообразие подобных многочастотных резонансов, возникающих при антипересечении уровней в возбужденном состоянии в сильном магнитном поле (51 мТл) уже изучалось в [18]. Тем не менее, обнаруженные в рамках этой работы в нулевом поле резонансы имели некоторые особенности: знак резонансов был отличен от ожидаемого, также отличались соотношения частот.

В следующих экспериментах модуляция из СВЧ канала была переведена в ВЧ канал, что привело к исключению подставки и к резкому повышению контраста резонансов (Рис. 12, Рис. 13, красный пунктир)[20].

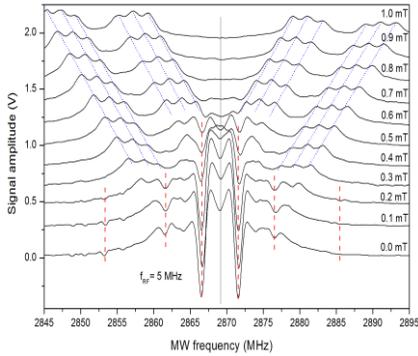


Рис. 12. ОДМР спектры, записанные во внешнем магнитном поле $B = (0 - 1)$ мТл, приложенном вдоль направления $\langle 100 \rangle$ кристалла алмаза, с дополнительным ВЧ возбуждением на частоте 5 МГц [А6].

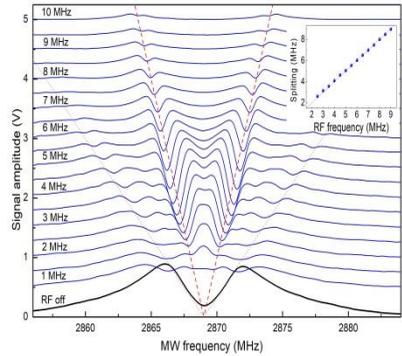


Рис. 13. ОДМР спектры, записанные в нулевом внешнем магнитном поле при разных значениях частоты ВЧ поля; нижняя кривая – сигнал одночастотного ОДМР. Вставка: зависимость интервала между резонансами от частоты ВЧ поля [А6].

Условия возникновения резонансов можно теперь записать следующим образом:

$$f_{MW} \pm \frac{1}{2} n f_{RF} = D, \quad (5)$$

$$\nu_0 - \Delta < 2|f_{MW} - D| < \nu_0 + \Delta, \text{ или}$$

$$\nu_0 - \Delta < f_{RF} < \nu_0 + \Delta,$$

где n – порядок резонансов, $\nu_0 = (4.34 \pm 0.02)$ МГц – центральная частота огибающей резонансов в шкале ВЧ, и $\Delta = (2.14 \pm 0.04)$ МГц – полуширина огибающей.

На Рис. 14 представлено сравнение спектров, полученных при введении модуляции в СВЧ и ВЧ каналы, со спектром одночастотного ОДМР. Из рисунка следует, что использование модуляции в ВЧ канале позволяет исключить из спектра подставку, вызванную сигналом одночастотного ОДМР, то есть вычесть из спектра с СВЧ модуляцией спектр одночастотного ОДМР.

Была исследована зависимость наблюдаемых резонансов от внешнего магнитного поля; выяснилось, что по мере увеличения B резонансы постепенно затухают, в то время как расстояние между ними остается равным частоте приложенного радиочастотного поля и не зависит от B (Рис. 12).

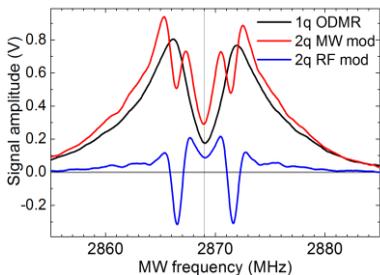


Рис. 14. ОДМР спектры, снятые в нулевом внешнем магнитном поле, при разных параметрах возбуждения. Черная линия – сигнал одночастотного ОДМР; красная линия – сигнал ОДМР при включении ВЧ поля и модуляции в СВЧ канале; синяя линия – сигнал ОДМР при включении ВЧ поля и модуляции в ВЧ канале.

трактовка процессов, происходящих в энергетической структуре NV центра в рамках эксперимента [A5].

При расчете было проведено численное моделирование с использованием гамильтониана размерностью 19×19 , включающего 9 сверхтонких подуровней в основных состояниях, 9 сверхтонких подуровней в возбужденных состояниях и синглетный уровень, связь с которым была доступна через межсистемный переход. Изначально матрица плотности системы была инициализирована в неполяризованном основном спиновом состоянии, дальнейшая эволюция системы происходила в соответствии с производящим уравнением Линдблада. Флуоресценция NV центров рассчитывалась через населенности девяти возбужденных сверхтонких состояний, распадающихся непосредственно в соответствующие основные состояния с сохранением электронного или ядерного спина.

Учитывая неоднородность напряжений (или электрических полей) в образце, были смоделированы двухчастотные ОДМР спектры для NV – центров с различными значениями параметра поперечного расщепления в нулевом поле $E = 0 - (2\pi)15$ МГц, а затем усреднены по нормальному распределению напряжений $p(E)$. Были использованы значения частот Раби СВЧ поля $(2\pi)0.5$ МГц и оптической частоты Раби лазерного излучения $(2\pi)2$ МГц.

Последующие измерения проводились в нулевом магнитном поле: при фиксированной амплитуде ВЧ поля изменялась его частота. Полученные спектры приведены на Рис. 13. Видно, что расщепление происходит во всем диапазоне частот и имеет V-образную форму, величина этого расщепления растет линейно с увеличением частоты ВЧ поля.

В разделе 5.3 представлены результаты сопоставления данных эксперимента, описанного в разделе 5.2, с результатами модели, построенной на основе этих данных теоретической группой (Г. Фукс, Х. Чен) из университета Корнелл (Итака, США); дается теоретическая

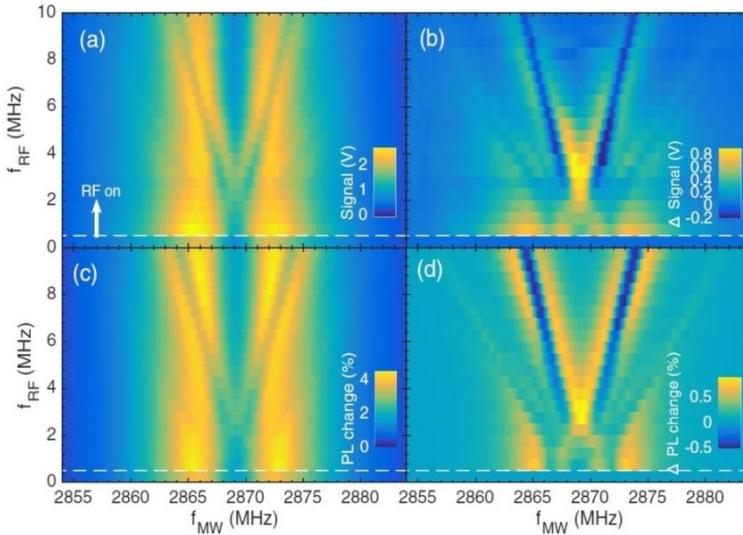


Рис. 15. (a) Полученные в эксперименте ОДМР спектры, записанные в нулевом магнитном поле при различных значениях частоты ВЧ поля f_{RF} и фиксированной амплитуде 6 В (1 В соответствует $(2\pi)0.23(3)$ МГц в терминах частоты Раби); нижняя часть графика при нулевой частоте – сигнал ОДМР без ВЧ поля. (b) Результат вычитания спектров ОДМР на (a) из спектров нормального ОДМР при выключенном ВЧ поле. (c) и (d) результаты численного моделирования экспериментальных данных. Результаты находятся в хорошем соответствии с экспериментальными данными (a) и (b) [A5].

Многочастотные резонансы, параметры которых полностью соответствуют наблюдавшимся в нашем эксперименте, удалось получить методами численного моделирования в предположении, что мы наблюдаем совместный результат следующих эффектов: расщепление энергетических уровней под воздействием сильного поля (расщепление Аутлера-Таунса), и туннельные переходы Ландау-Зенера между состояниями $|-1, m_I\rangle$ и $|+1, m_I\rangle$, которые, в свою очередь, становятся возможными в условиях антипересечения подуровней в нулевом поле. Результаты численного моделирования, полученные в соответствии с этой теорией, находятся в отличном соответствии с нашими экспериментальными данными (Рис. 15(c) и (d)).

В разделе 5.4 рассматривается возможность использования двухчастотного возбуждения ОДМР для создания новых схем стандартов частоты [A6].

Обнаруженные магнитонезависимые резонансы могут быть использованы для создания малогабаритного эталона частоты, способного

при определенных условиях заменить кварцевый резонатор. Достигнутое в эксперименте отношение сигнал/шум в полосе 1 Гц, ограниченное дробовыми шумами фототока в канале регистрации, составляет ~ 110 дБ, а ширина резонансов равна 1.1 МГц. Из этого следует [21], что такая схема характеризуется чувствительностью к вариациям частоты СВЧ возбуждающего поля на уровне 10^{-9} Гц^{1/2}, что близко к возможностям кварцевого резонатора аналогичного размера; однако спиновая природа наблюдаемых резонансов принципиально отлична от пьезо-акустической природы резонансов в кварце, что позволяет рассчитывать на существенно большую устойчивость данных резонансов к механическим воздействиям (ускорениям и вибрациям). Также на основе обнаруженных резонансов возможно создание альтернативного механизма для манипулирования спиновыми состояниями основного уровня NV центра.

В главе 6 представлена концепция датчика слабого магнитного поля, способного работать в малых (как в нулевых, так и в земных) магнитных полях, и не использующего СВЧ полей [A7].

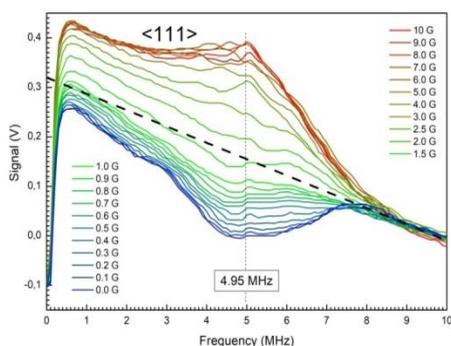


Рис. 16. Спектры радиочастотного ОДМР, полученные в магнитном поле, направленном вдоль кристаллической оси $\langle 111 \rangle$ алмаза, при различных величинах индукции магнитного поля [A7].

На Рис. 16 представлены спектры ВЧ ОДМР для разных значений внешнего магнитного поля, направленного вдоль кристаллической оси $\langle 111 \rangle$; сходные зависимости были получены для других направлений поля. Видно, что сигналы ОДМР характеризуются явно выраженной зависимостью от магнитного поля, причем максимальная чувствительность к изменению магнитного поля достигается в диапазоне частот ВЧ поля $f_{RF} = 4 - 5$ МГц. Особенность на частоте 4.95 МГц связана

В ходе исследования одночастотного ВЧ ОДМР в алмазе (Глава 4 настоящей работы) был отмечен эффект магнитозависимого поглощения радиочастотного ВЧ излучения: наблюдался широкий квазирезонансный сигнал (провал) в области 5 МГц, на фоне которого был выделен упомянутый ранее узкий пик. На данном этапе было выполнено исследование этого квазирезонансного сигнала при комнатной температуре в диапазоне частот ВЧ поля $f_{RF} = 0.1 - 10$ МГц.

с сигналом резонанса прецессии ядерного спина (Глава 4, [A4]). На Рис. 17 представлены полученные при возбуждении ВЧ полем с частотой 4.5 МГц сигналы ВЧ ОДМР в зависимости от внешнего магнитного поля. В дальнейшем для получения зависимости от магнитного поля в явном виде учитывались лишь значения амплитуды в частотном диапазоне от 4 – 5 МГц: для каждого значения магнитного поля либо фиксировалась амплитуда сигнала на определенной частоте из этого диапазона, либо записывался полный спектр и рассчитывалось среднее значение амплитуды в данном диапазоне частот. На Рис. 17 представлены полученные при возбуждении ВЧ полем с частотой 4.5 МГц сигналы ВЧ ОДМР в зависимости от внешнего магнитного поля. Разброс экспериментальных данных является следствием вариаций магнитного поля в лаборатории.

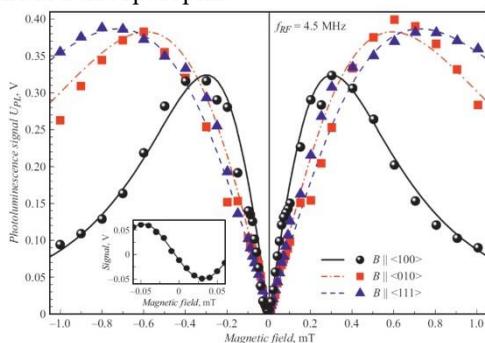


Рис. 17. Сигналы ОДМР при возбуждении амплитудно модулированным ВЧ полем с частотой 4.5 МГц в зависимости от величины внешнего магнитного поля. Внешнее поле приложено вдоль трех осей кристаллической решетки. Линии проведены для облегчения восприятия. Вставка – сигнал при $B \parallel \langle 100 \rangle$ и модуляции магнитного поля [A7].

направлению вектора поля) схемах на NV центрах, работоспособных в области нулевых и слабых магнитных полей. Для повышения линейности отклика в диапазоне $|B| < 0.1$ мТл амплитудная модуляция ВЧ поля может быть заменена низкочастотной модуляцией внешнего поля B . При такой схеме частотная зависимость сигнала ОДМР из симметричной преобразуется в антисимметричную, и сигнал принимает нулевое значение при нулевом значении модуля внешнего поля (вставка на Рис. 17).

Из графика следует, что в области нулевого магнитного поля ($B \approx 0$) наблюдается резкий симметричный провал, причем его форма и ширина слабо зависят от направления внешнего магнитного поля. В проведенном эксперименте полуширина провала на полувысоте (HWHM) составляет ~ 0.087 мТл. Характеристики этого провала, а именно – ширина в сочетании с высоким отношением сигнал/шум позволяют использовать его в магнитометрических скалярных (т.е. нечувствительных к

Оценка предельной чувствительности такой схемы дает значение $\delta B = 3.6 \text{ нТл}/\sqrt{\text{Гц}}$. Однако на данный момент реальный уровень шума лазерного излучения в экспериментальной установке превышает уровень дробового шума в 4 – 5 раз; причина этого – технические шумы лазерного модуля и неидеальность балансной схемы.

Особенностями предлагаемой схемы являются: работоспособность в нулевых полях; отсутствие СВЧ излучений, что принципиально при исследовании биологических объектов, поскольку позволяет исключить их локальный нагрев. Показано, что чувствительность датчика может быть повышена, как минимум, на порядок при соответствующем повышении мощности накачки и эффективности регистрации сигнала люминесценции.

В заключении представлены основные результаты работы:

1. Разработан лабораторный прототип трехкомпонентного квантового магнитометра сверхвысокого разрешения. В процессе выполнения этой работы предложен метод разрешения перекрывающихся резонансных линий, использующий векторную многочастотную модуляцию магнитных полей и позволяющий исключить области «мертвых» угловых зон сенсора, возникающих в случае перекрытия двух и даже трех резонансных линий. Также впервые применена методика комбинированного СТС возбуждения ОДМР, позволяющая втрое увеличить контраст центрального резонанса в сверхтонком триплете. Сочетание достигнутой в рамках проекта магнитометрической чувствительности к компонентам вектора поля на уровне $1.5 \text{ нТл} \cdot \text{Гц}^{-1/2}$ с линейным разрешением порядка 0.1 мм и полосой частот (0 – 100) Гц позволяет говорить о целесообразности использования NV магнитометра, в частности, в задачах медицины и микробиологии.

2. Обнаружен и исследован ультраузкий (~7 кГц) резонанс, который возбуждается и оптически детектируется в объемном образце алмаза в слабых (0 – 10 мТл) магнитных полях с использованием только ВЧ поля. Данный результат демонстрирует возможность ориентации ядерных спинов методом оптической накачки без использования СВЧ поля. Этот механизм может быть использован при создании простой и компактной схемы управления ядерным спином в задачах квантовых вычислений, а также при разработке новых магнитометрических схем, не использующих СВЧ поля, что существенно в задачах биологии и медицины.

3. Обнаружены и исследованы высококонтрастные магнитонезависимые ОДМР резонансы, наблюдаемые при двухчастотном СВЧ+ВЧ возбуждении. Исследование этих резонансов позволило распространить теорию взаимодействия NV центра с резонансными

электромагнитными излучениями на нулевые и слабые магнитные поля: численное моделирование, проведенное в университете Корнелла на основе полученных данных, показало, что наблюдаемые спектры обусловлены взаимодействием таких квантовых эффектов, как расщепление энергетических уровней под воздействием сильного поля (расщепление Аутлера-Таунса) и туннельные переходы Ландау-Зенера, возникающие в условиях антипересечения уровней в нулевом магнитном поле, что позволило улучшить понимание процессов происходящих в энергетической структуре NV центра в нулевых и слабых полях.

4. Предложено использование наблюдаемых высококонтрастных магнитонезависимых двухчастотных резонансов в спектрах ОДМР в схемах стабилизации частоты, требующих компактности и устойчивости к механическим воздействиям. Такие схемы будут иметь преимущество работоспособности в нулевом магнитном поле, и относительную кратковременную стабильность на уровне 10^{-9} в полосе 1 Гц при использовании образца объемом 0.01 мм^3 .

5. Обнаружен и исследован эффект магнитозависимого поглощения высокочастотного излучения, регистрируемого методом ОДМР. Из данных эксперимента следует, что на основе эффекта ВЧ ОДМР может быть создан скалярный магнитометрический датчик слабого ($< 0.1 \text{ мТл}$) поля, характеризующийся чувствительностью $3.6 \text{ нТл}/\sqrt{\text{Гц}}$ при мощности накачки $\sim 15 \text{ мВт}$ и объеме чувствительного элемента 0.01 мм^3 , и потенциально способный обеспечить примерно на порядок лучшую чувствительность. Способность такого датчика функционировать без применения СВЧ полей обуславливает перспективность его применения в биологии и медицине.

Список публикаций автора по теме диссертации в журналах, индексируемых в базе данных Web of Science

- [A1] Vershovskii A. K., Dmitriev A. K. Combined excitation of an optically detected magnetic resonance in nitrogen-vacancy centers in diamond for precision measurement of the components of a magnetic field vector / A. K. Vershovskii, A. K. Dmitriev // Technical Physics Letters. – 2015. – Vol. 41. – P. 1026-1029. – DOI: 10.1134/S1063785015110115.
- [A2] Dmitriev A. K., Vershovskii A. K. Concept of a microscale vector magnetic field sensor based on nitrogen-vacancy centers in diamond // Journal of the Optical Society of America B. – 2016. – Vol. 33. – P. B1-B4. – DOI: 10.1364/JOSAB.33.0000B1.

- [A3] Dmitriev A. K., Vershovskii A. K. Multi-frequency ODMR of Nitrogen-Vacancy Color Centers in Diamond Crystals in zero magnetic fields // Journal of Physics: Conference Series. – 2018. – Vol. 1135. – P. 012051. – DOI: 10.1088/1742-6596/1135/1/012051.
- [A4] Dmitriev A. K., Vershovskii A. K. Ultra-Narrow Low-Field Nuclear Spin Resonance in NV Centers in Bulk Diamond Crystal // Applied Magnetic Resonance. – 2019. – Vol. 50. – No. 4. – P. 599-604. – DOI: 10.1007/s00723-018-1075-1.
- [A5] Dmitriev A. K., Chen H. Y., Fuchs G. D., Vershovskii A. K. Dual-frequency spin-resonance spectroscopy of diamond nitrogen-vacancy centers in zero magnetic field // Physical Review A. – 2019. – Vol. 100. – P. 011801. – DOI: 10.1103/PhysRevA.100.011801.
- [A6] Dmitriev A. K., Vershovskii A. K. High-Contrast Two-Frequency Optically Detected Resonances in Diamond Nitrogen-Vacancy Centers for Timekeeping Schemes // IEEE Sensors Letters. – 2020. – Vol. 4. – No. 1. – P. 1-4. – DOI: 10.1109/LSENS.2019.2957328.
- [A7] Dmitriev A. K., Vershovskii A. K. Weak magnetic field sensor based on nitrogen-vacancy color centers in a diamond crystal // Technical Physics. – 2020. – Vol. 65. – No. 8. – P. 1301-1306. – DOI: 10.1134/S1063784220080216.

Литература

- [1] Taylor J. M., Cappellaro P., Childress L., Jiang L., Budker D., Hemmer P. R., Yacoby A., Walsworth R., Lukin M. D. High-sensitivity diamond magnetometer with nanoscale resolution // Nature Physics. – 2008. – Vol. 4. – P. 810. – DOI: 10.1038/nphys1075.
- [2] Acosta V. M., Bauch E., Jarmola A., Zipp L. J., Ledbetter M. P., Budker D. Broadband magnetometry by infrared-absorption detection of nitrogen vacancy ensembles in diamond // Applied Physics Letters. – 2010. – Vol. 97. – P. 174104. – DOI: 10.1063/1.3507884.
- [3] Felton S., Edmonds A. M., Newton M. E., Martineau P. M., Fisher D., Twitchen D. J., Baker J. M. Hyperfine interaction in the ground state of the negatively charged nitrogen vacancy center in diamond // Physical Review B. – 2009. – Vol. 79. – P. 075203. – DOI: 10.1103/PhysRevB.79.075203.
- [4] Budker D., Jackson Kimball D. F. Optical Magnetometry / Cambridge: Cambridge University Press, 2013. – DOI: 10.1017/CBO9780511846380.

- [5] Acosta V. M., Bauch E., Ledbetter M. P., Santori C., Fu K.-M. C., Barclay P. E., Beausoleil R. G., Linget H., Roch J. F., Treussart F., Chemerisov S., Gawlik W., Budker D. Diamonds with a high density of nitrogen-vacancy centers for magnetometry applications // *Physical Review B*. – 2009. – Vol. 80. – P. 115202. – DOI: 10.1103/PhysRevB.80.115202.
- [6] Budker D., Romalis M. Optical magnetometry // *Nature Physics*. – 2007. – Vol. 3. – P. 227-234. – DOI: 10.1038/nphys566.
- [7] Vershovskii A. K., Dmitriev A. K. Micro-scale three-component quantum magnetometer based on nitrogen-vacancy color centers in diamond crystal // *Technical Physics Letters*. – 2015. – Vol. 41. – No. 4. – P. 393-396. – DOI: 10.1134/S1063785015040306.
- [8] Gravrand O., Khokhlov A., Le Mouël J. L., Léger J. M. On the calibration of a vectorial ^4He pumped magnetometer // *Earth, Planets and Space*. – 2001. – Vol. 53. – P. 949-958. – DOI: 10.1186/BF03351692.
- [9] Bloom A. L. Principles of operation of the rubidium vapour magnetometer // *Applied Optics*. – 1962. – Vol. 1. – P. 61-68. – DOI: 10.1364/AO.1.000061.
- [10] Alexandrov E. B., Balabas M. V., Pasgalev A. S., Vershovskii A. K., Yakobson N. N. Double-Resonance Atomic Magnetometers: from Gas Discharge to Laser Pumping // *Laser Physics*. – 1996. – Vol. 6. – No. 2. – P. 244-251.
- [11] Alexandrov E. B., Balabas M. V., Kulyasov V. N., Ivanov A. E., Pasgalev A. S., Rasson J. L., Vershovskii A. K., Yakobson N. N. Three-component variometer based on a scalar potassium sensor // *Measurement Science and Technology*. – 2004. – Vol. 15. – P. 918-922. – DOI: 10.1088/0957-0233/15/5/020.
- [12] Zheng H., Xu J., Iwata G. Z., Lenz T., Michl J., Yavkin B., Nakamura K., Sumiya H., Ohshima T., Isoya J., Wrachtrup J., Wickenbrock A., Budker D. Zero-Field Magnetometry Based on Nitrogen-Vacancy Ensembles in Diamond // *Physical Review Applied*. – 2019. – Vol. 11. – P. 064068. – DOI: 10.1103/PhysRevApplied.11.064068.
- [13] Gurudev Dutt M. V., Childress L., Jiang L., Togan E., Maze J., Jelezko F., Zibrov A. S., Hemmer P. R., Lukin M. D. Quantum register based on individual electronic and nuclear spin qubits in diamond // *Science*. – 2007. – Vol. 316. – P. 1312. – DOI: 10.1126/science.1139831.

- [14] Smeltzer B., McIntyre J., Childress L. Robust control of individual nuclear spins in diamond // *Physical Review A*. – 2009. – Vol. 80. – P. 050302(R). – DOI: 10.1103/PhysRevA.80.050302.
- [15] Jelezko F., Gaebel T., Popa I., Domhan M., Gruber A., Wrachtrup J. Observation of Coherent Oscillation of a Single Nuclear Spin and Realization of a Two-Qubit Conditional Quantum Gate // *Physical Review Letters*. – 2004. – Vol. 93. – P. 130501. – DOI: 10.1103/PhysRevLett.93.130501.
- [16] Jacques V., Neumann P., Beck J., Markham M., Twitchen D., Meijer J., Kaiser F., Balasubramanian G., Jelezko F., Wrachtrup J. Dynamic Polarization of Single Nuclear Spins by Optical Pumping of Nitrogen-Vacancy Color Centers in Diamond at Room Temperature // *Physical Review Letters*. – 2009. – Vol. 102. – P. 057403. – DOI: 10.1103/PhysRevLett.102.057403.
- [17] Kehayias P., Mrózek M., Acosta V. M., Jarmola A., Rudnicki D. S., Folman R., Gawlik W., Budker D. Microwave saturation spectroscopy of nitrogen-vacancy ensembles in diamond // *Physical Review B*. – 2014. – Vol. 89. – P. 245202. – DOI: 10.1103/PhysRevB.89.245202.
- [18] Childress L., McIntyre J. Multifrequency spin resonance in diamond // *Physical Review A*. – 2010. – Vol. 82. – P. 033839. – DOI: 10.1103/PhysRevA.82.033839.
- [19] Clevenston H., Chen E. H., Dolde F., Teale C., Englund D., Braje D. Diamond-nitrogen-vacancy electronic and nuclear spin-state anticrossings under weak transverse magnetic fields // *Physical Review A*. – 2016. – Vol. 94. – P. 021401. – DOI: 10.1103/PhysRevA.94.021401.
- [20] Dmitriev A. K., Vershovskii A. K. High-contrast two-quantum optically detected resonances in NV centers in diamond in zero magnetic field // arXiv:1902.10481 (2019).
- [21] Hodges J. S., Yao N. Y., Maclaurin D., Rastogi C., Lukin M. D., Englund D. Timekeeping with electron spin states in diamond // *Physical Review A*. – 2013. – Vol. 87. – No. 3. – P. 032118. – DOI: 10.1103/PhysRevA.87.032118.