

09;15

## Оптический квантовый термометр с субмикронным разрешением, основанный на явлении кросс-релаксации спиновых уровней

© А.Н. Анисимов, Р.А. Бабунц, М.В. Музафарова, А.П. Бундакова, В.А. Солтамов, П.Г. Баранов<sup>¶</sup>

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия

<sup>¶</sup> E-mail: pavel.baranov@mail.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 21 мая 2018 г.

Предложен оптический квантовый термометр с субмикронным пространственным разрешением, основанный на физическом явлении оптического отклика в системе спиновых центров в карбиде кремния в условиях кросс-релаксации между оптически активными центрами в квадруплетном спиновом состоянии и триплетными центрами, у которых наблюдается аномально сильная зависимость расщепления тонкой структуры от температуры.

DOI: 10.21883/PJTF.2018.17.46568.17399

Измерение слабых температурных полей с высоким пространственным разрешением на уровне микро- и нанометров является важнейшей проблемой в различных областях (от фундаментальной физики и материаловедения до хранения данных и биомедицинской науки).

Были разработаны оптические квантовые термометры для измерения температур с субмикронным разрешением на основе азотно-вакансионных (NV) центров в алмазе, имеющих основное триплетное спиновое состояние, спиновые уровни которого селективно заселяются под действием оптического возбуждения [1]. Недавно нами были обнаружены вакансионные спиновые центры в карбиде кремния (SiC), в которых спиновые уровни с  $S = 3/2$  селективно заселяются под действием оптического излучения в ближнем ИК-диапазоне, совместимом с полосой прозрачности волоконной оптики и биологических систем, и предложен способ использования оптически детектируемого магнит-

ного резонанса (ОДМР) для измерения магнитных и температурных полей [2–9]. Был предложен оптический квантовый термометр [8], который использовал физическое явление сильного изменения интенсивности фотолюминесценции (ФЛ) (photoluminescence, PL) в магнитных полях, близких к точке антипересечения спиновых подуровней центров с  $S = 3/2$  (level anticrossing — LAC) в возбужденном состоянии, которые характеризовались сильной зависимостью расщепления тонкой структуры (zero-field splitting) от температуры [7]. Была достигнута точность измерения температуры до  $50 \text{ mK/Hz}^{1/2}$  с пространственным разрешением  $\sim 300 \text{ nm}$ , соответствующим размеру пятна сфокусированного лазера конфокального микроскопа. Недостатком способа измерения температуры была сравнительно большая ширина линии ОДМР, достигающая  $2 \text{ mT}$ , которая определяется обратным временем жизни возбужденного состояния  $\sim 6 \text{ ns}$  и, следовательно, не могла быть уменьшена.

Задачей настоящей работы является разработка такого оптического квантового термометра, который бы позволил увеличить чувствительность. В SiC имеются дефекты со спином  $S = 1$ , характеризующиеся чрезвычайно сильной зависимостью расщепления тонкой структуры [10], однако эти центры являются оптически неактивными (назовем их „темными“ („dark“)), т. е. не могут прямо использоваться для измерения температуры. Однако из-за диполь-дипольного взаимодействия с соседними оптически активными спиновыми центрами со спином  $S = 3/2$ , (назовем их „яркими“ („bright“)) в магнитных полях, соответствующих совпадению разностей энергий спиновых уровней „темных“ и „ярких“ центров, наблюдается сильное изменение интенсивности ФЛ „ярких“ центров — так называемое явление кросс-релаксации (КР) (cross-relaxation, CR). Нами обнаружено, что ширина линии КР примерно на порядок меньше ширины линии антипересечения в возбужденном состоянии при одинаково сильной температурной зависимости положений обеих линий.

Спиновый гамильтониан для нахождения энергий спиновых уровней в магнитном поле имеет вид

$$H = \gamma \mathbf{B} \cdot \mathbf{S} + D [S_z^2 - (1/3)S(S + 1)].$$

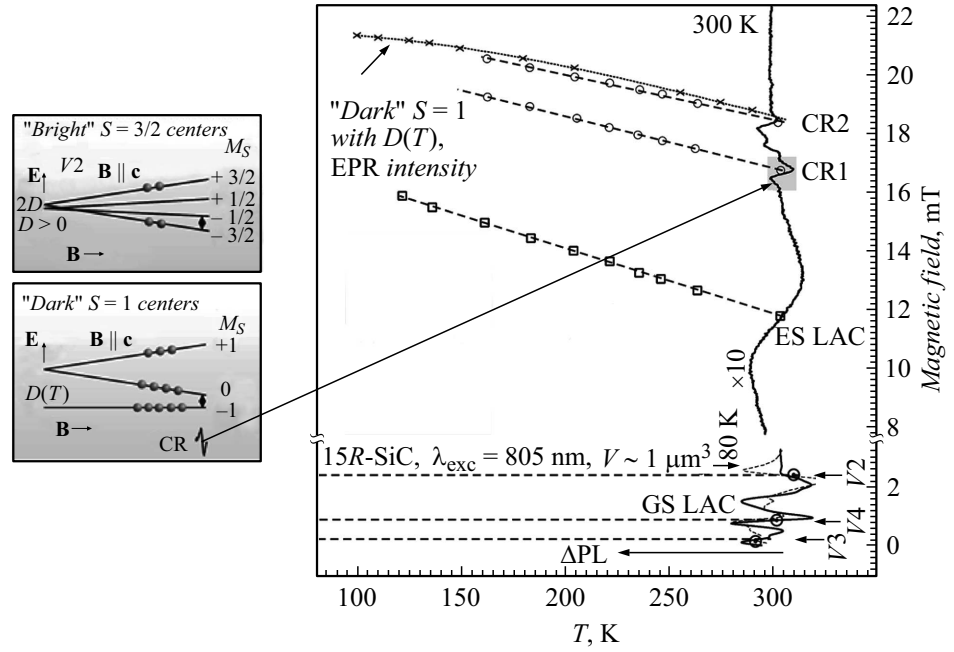
Здесь  $\mathbf{B}$  — внешнее магнитное поле,  $\mathbf{S}$  — оператор электронного спина, гиромагнитное отношение  $\gamma = g\mu_B$  (где  $g$  — электронный  $g$ -фактор,

$\mu_B$  — магнетон Бора),  $D$  — параметр, характеризующий расщепление тонкой структуры в аксиальном кристаллическом поле. Этот спиновый гамильтониан применим для обоих типов центров с  $S = 3/2$  и  $S = 1$ , между которыми происходит кросс-релаксация, при этом  $\gamma$  имеет одинаковую величину для этих центров.

Для „яркого“ центра с  $S = 3/2$  уровни энергии  $E$  в случае ориентации магнитного поля параллельно кристаллической оси  $c$  (принятой нами за ось  $z$ ) для проекций спина  $M_S = +3/2, -3/2, +1/2$  и  $-1/2$  имеют вид  $E(+3/2) = (3/2)\gamma B + D$ ,  $E(-3/2) = (-3/2)\gamma B + D$ ,  $E(+1/2) = (1/2)\gamma B - D$  и  $E(-1/2) = (-1/2)\gamma B - D$ . Нас будут интересовать только переходы, которые приводят к изменению интенсивности ФЛ:  $E(-3/2) - E(-1/2) = 2D - \gamma B$ ,  $E(3/2) - E(1/2) = 2D + \gamma B$ . Для „темного“ центра с  $S = 1$  уровни энергии для проекций  $M_S = +1, -1$  и  $0$  имеют вид  $E(+1) = \gamma B + (1/3)D(T)$ ,  $E(-1) = -\gamma B + (1/3)D(T)$ ,  $E(0) = (-2/3)D(T)$ . Разности энергий  $E(+1) - E(0) = \gamma B + D(T)$ ,  $E(0) - E(-1) = \gamma B - D(T)$ . Выражение  $D(T)$  подчеркивает зависимость параметра тонкой структуры от температуры.

Чтобы найти магнитные поля, соответствующие КР, необходимо приравнять разности энергий для центров с  $S = 3/2$  и с  $S = 1$ , в результате получим выражение в виде абсолютной величины:  $B = |D(T) - 2D|/(2\gamma)$ .

На рис. 1 показаны изменения интенсивности ФЛ ( $\Delta PL$ ) спиновых центров  $V2, V3$  и  $V4$  в кристалле  $15R\text{-SiC}$  (параметры  $D$  спинового гамильтониана для „ярких“ спиновых центров с  $S = 3/2$ , обозначенных в литературе по их бесфононным линиям фотолюминесценции:  $V2$  (886.5 nm),  $V3$  (904 nm) и  $V4$  (917 nm) [5], соответственно равны 2.48,  $-0.2$  и  $0.9$  мТ) в зависимости от приложенного магнитного поля в области антипересечения спиновых уровней в основном состоянии (ground state LAC (GS LAC)), возбужденном состоянии (excited state LAC (ES LAC)) и в области кросс-релаксации (CR) между „яркими“ центрами  $V2, V3$  и  $V4$  в квадруплетном спиновом состоянии и „темными“ центрами в триплетном спиновом состоянии. Штриховыми линиями представлены зависимости положения сигналов LAC и CR от температуры, которые могут быть использованы как градуировочные кривые, экспериментальные точки показаны в виде квадратов (ES LAC) и кружков (CR). Видно, что положение GS LAC не зависит от температуры. Для наглядности пунктиром показаны сигналы для GS LAC



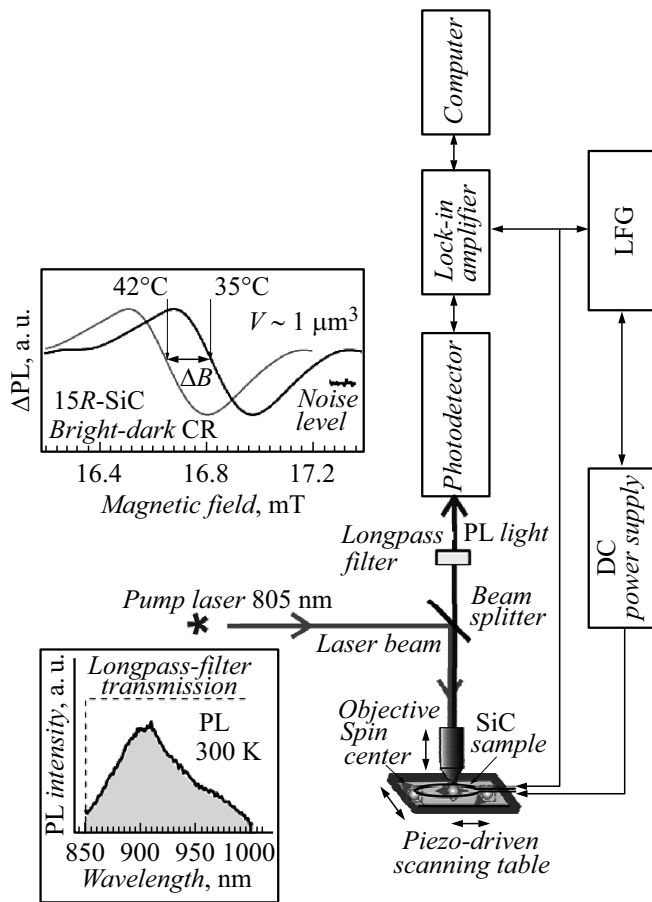
**Рис. 1.** Изменение интенсивности фотолуминесценции ( $\Delta PL$ ) спиновых центров в кристалле 15R-SiC в зависимости от приложенного магнитного поля (пояснения в тексте).

при 80 К. Для центра с  $S = 1$  параметр  $D(T)$  сильно зависит от температуры (кривая с экспериментальными точками в виде крестиков на рис. 1). На вставках приведены спиновые подуровни для „яркого“ центра  $V_2$  и для „темного“ центра с  $S = 1$ . Стрелкой условно показано магнитное поле, при котором происходит кросс-релаксационный перенос спиновой поляризации, приводящий к изменению интенсивности ФЛ „яркого“ центра  $V_2$ .

Согласно нашим измерениям в диапазоне 150–300 К, зависимость положения КР ( $B_{CR}$ ) от температуры в кристалле 15R-SiC (рис. 1) можно аппроксимировать линейной функцией  $B_{CR} = B_0 - kT$ , где  $k$  — коэффициент линейной зависимости положения пика КР от температуры,  $T$  — температура (в К). Для пиков CR1 и CR2, самых интенсивных и узких на рис. 1, получаем  $B_{CR1} = 21.8 \text{ мТ} - (0.017 \text{ мТ/К}) \cdot T$ ,  $B_{CR2} = 23.8 \text{ мТ} - (0.018 \text{ мТ/К}) \cdot T$ .

Для измерения температуры регистрируются зависимости изменения интенсивности ФЛ кристалла SiC от величины постоянного магнитного поля в области КР при разных температурах и строится градуировочная кривая для положения КР в магнитном поле в зависимости от температуры. Затем на поверхность кристалла SiC помещается исследуемый образец и измеряется магнитное поле в точке КР. С помощью известной градуировочной кривой определяется температура в области возбуждения ФЛ. Проводя сканирование поверхности образца, можно построить карту распределения температур по образцу.

Схема оптического квантового термометра представлена на рис. 2. Для создания и развертки магнитного поля используется источник постоянного тока (DC power supply), для формирования частотной модуляции — генератор низких частот (low frequency generator, LFG). Далее постоянный и переменный токи подаются на катушку электромагнита. Таким образом, созданное магнитное поле проникает в пластину кристалла SiC, содержащую „яркие“ и „темные“ спиновые центры, и находится в тепловом контакте с исследуемым материалом. Спиновые центры реагируют на тепловой контакт с образцом, и мы можем регистрировать изменение ФЛ „ярких“ спиновых центров с помощью объектива. Возбуждение осуществляется лазером с длиной волны 805 nm. Сбор сигнала ФЛ происходит через полупрозрачное зеркало и светофильтр. Детектирование ФЛ осуществляется с помощью фотоприемника (photodetector) со спектральным диапазоном чувствительности 800–1100 nm. Далее сигнал с фотоприемника поступает на



**Рис. 2.** Схема оптического квантового термометра (описание в тексте). На верхней вставке — расстояние  $\Delta B$  между двумя положениями КР (сигнал CR1 выделен серым цветом на рис. 1) в магнитном поле для двух температур, характерных для биологических объектов. Показан шумовой уровень для одного скана в течение 0.1 s. На нижней вставке — спектральная зависимость ФЛ при 300 K, условно показано пропускание фильтра.

синхронный детектор (lock-in amplifier) и затем на блок управления и регистрации спектров (computer). Для получения пространственного разрешения используется сканирующий столик с пьезоэлементом, на который помещен активный материал в виде пластины кристалла SiC с взаимодействующими „яркими“ и „темными“ спиновыми центрами, показанными схематически. ФЛ фокусируется объективом микроскопа, который может сканировать в вертикальном направлении. На верхней вставке показан сдвиг сигнала CR1, который выделен серым цветом на рис. 1, в магнитном поле при изменении температуры на  $7^\circ\text{C}$ , характерном для биологических объектов (например, градуировка термометра для измерения температуры человека);  $\Delta B$  — расстояние между двумя измерениями. Показан шумовой уровень для одного скана в течение 0.1 s. Нижняя вставка представляет спектральную зависимость ФЛ при 300 K, условно показано пропускание фильтра.

Величину  $\Delta B_{\text{CR}}$  можно затем преобразовать в температуру с помощью соотношения  $\Delta T = -\Delta B_{\text{CR}}/k$ . Шумовой предел для одного сканирования с временем измерения  $\sim 0.1$  s составляет  $3 \mu\text{T}$  (исходя из наклона производной сигнала). Таким образом, можно оценить чувствительность, которая составляет приблизительно  $100 \text{ mK/Hz}^{1/2}$ . При более низких температурах чувствительность примерно в 5 раз выше, так как интенсивность сигнала увеличилась примерно в 5 раз. При выборе более чувствительных детекторов и оптимизации оптической схемы можно достичь величины менее  $10 \text{ mK/Hz}^{1/2}$  в объеме менее  $1 \mu\text{m}^3$ .

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки (соглашение № 14.604.21.0200, идентификатор RFMEFI60417X0200).

## Список литературы

- [1] Neumann P., Jakobi I., Dolde F., Burk C., Reuter R., Waldherr G., Honert J., Wolf T., Brunner A., Shim J.M., Suter D., Sumiya H., Isoya J., Wrachtrup J. // Nano Lett. 2013. V. 13. P. 2738–2742.
- [2] Kraus H., Soltamov V.A., Riedel D., Vāth S., Fuchs F., Sperlich A., Baranov P.G., Dyakonov V., Astakhov G.V. // Nature Phys. 2014. V. 10. P. 157–162.
- [3] Баранов П.Г., Бундакова А.П., Боровых И.В., Орлинский С.Б., Зондervan P., Шмидт Я. // Письма в ЖЭТФ. 2007. Т. 86. В. 3. С. 231–235.
- [4] Baranov P.G., Bundakova A.P., Soltamova A.A., Orinskii S.B., Borovykh I.V., Zondervan R., Verberk R., Schmidt J. // Phys. Rev. B. 2011. V. 83. P. 125203.

- [5] *Soltamov A.V., Yavkin B.V., Tolmachev D.O., Babunts R.A., Badalyan A.G., Davydov V.Yu., Mokhov E.N., Proskuryakov I.I., Orlinskii S.B., Baranov P.G.* // *Phys. Rev. Lett.* 2015. V. 115. P. 247602.
- [6] *Simin D., Soltamov V.A., Poshakinskiy A.V., Anisimov A.N., Babunts R.A., Tolmachev D.O., Mokhov E.N., Trupke M., Tarasenko S.A., Sperlich A., Baranov P.G., Dyakonov V., Astakhov G.V.* // *Phys. Rev. X.* 2016. V. 6. P. 031014.
- [7] *Anisimov A.N., Simin D., Soltamov V.A., Lebedev S.P., Baranov P.G., Astakhov G.V., Dyakonov V.* // *Nature Sci. Rep.* 2016. V. 6. P. 33301.
- [8] *Анисимов А.Н., Бабунц Р.А., Музафарова М.В., Бундакова А.П., Ильин И.В., Солтамов В.А., Романов Н.Г., Баранов П.Г.* // *Письма в ЖТФ.* 2017. Т. 43. В. 7. С. 70–77.
- [9] *Baranov P.G., von Bardleben H.-J., Jelezko F., Wrachtrup J.* *Magnetic resonance of semiconductors and their nanostructures: basic and advanced applications.* Springer Ser. in Materials Science. V. 253. Springer-Verlag, 2017. 535 p.
- [10] *Павлов Н.М., Иглицын М.И., Косаганова М.Г., Соломатин В.Н.* // *ФТП.* Т. 9. В. 7. С. 1279–1285.