

02

## Наблюдение когерентного пленения населенности в ансамблях NV-центров в алмазе в условиях антипересечения уровней основного состояния

© Р.А. Ахмеджанов<sup>1,2</sup>, И.В. Зеленский<sup>1,2</sup>, Л.А. Гущин<sup>1,2</sup>, В.А. Низов<sup>1,2</sup>, Н.А. Низов<sup>1,2</sup>, Д.А. Собгайда<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> Институт прикладной физики РАН,  
603950 Нижний Новгород, Россия

<sup>2</sup> Казанский физико-технический институт им. Завойского,  
420029 Казань, Россия

e-mail: rinat@appl.sci-nnov.ru

Поступила в редакцию 15.02.2019 г.

В окончательной редакции 15.02.2019 г.

Принята к публикации 15.03.2019 г.

Реализован эффект когерентного пленения населенности в ансамблях NV-центров в алмазе в условиях антипересечения уровней основного состояния при наложении сильного внешнего магнитного поля, направленного вдоль оси [111] кристалла.

**Ключевые слова:** двухфотонная отстройка, кросс-релаксация, резонанс.

DOI: 10.21883/OS.2019.08.48038.67-19

### Введение

Центры окраски в алмазе вызывают широкий интерес благодаря уникальным особенностям алмаза, таким как оптическая прозрачность, слабое электрон-фононное взаимодействие, высокая стабильность оптически активных центров, в том числе при комнатной температуре. Одним из перспективных считается NV-центр из-за возможного его применения для наноразмерного зондирования магнитных и электрических полей [1], измерения локальной температуры [2], реализации квантовых вычислений [3], а также стабильных флуоресцентных биомаркеров [4]. Для многих приложений, связанных с использованием датчиков и кубитов на основе центров окраски, применение квантовых интерференционных эффектов: когерентного пленения населенности (КПН) или электромагнитно индуцированной прозрачности (ЭИП) является преимущественным, поскольку эти эффекты не требуют СВЧ возбуждения для создания или манипулирования спиновой когерентностью. Еще одним преимуществом КПН/ЭИП является то, что центры окраски, которые демонстрируют отсутствие или плохой контраст при использовании оптически детектируемого магнитного резонанса для считывания спиновых состояний, потенциально могут иметь высокий контраст при использовании КПН/ЭИП.

Эффект электромагнитно индуцированной прозрачности в ансамблях NV-центров в алмазе реализован на сегодняшний день в условиях антипересечения уровней основного состояния при наложении сильного внешнего магнитного поля [5] и при квазиуловых магнитных полях при внутренних или внешних напряжениях, соответствующих антипересечению уровней возбужденного состояния [6]. Эксперименты в геометрии когерентного

пленения населенности проводились в основном при малых магнитных полях [7,8] и преимущественно с одиночными центрами. В настоящей работе представлены результаты экспериментального наблюдения эффекта когерентного пленения населенности в ансамбле азот-вакансионных центров в условиях антипересечения уровней основного состояния.

### Эксперимент

В наших исследованиях использовался образец синтетического алмаза (Element Six), облученный электронным пучком (доза облучения  $10^{18}$  электронов/см<sup>2</sup>) и затем отожженный при температуре 800°C.

Для реализации интерференционных эффектов при малых магнитных полях требуется  $\Lambda$ -схема уровней, образующаяся при антипересечении уровней возбужденного состояния в результате действия внутренних напряжений в кристалле алмаза [9,10]. Требуемые для таких схем напряжения достаточно малы и соответствуют неоднородному уширению бесфононной линии около 10–15 GHz. В используемом нами образце ширина бесфононной линии порядка 750 GHz, следовательно, число „полезных“ центров, в которых реализуется  $\Lambda$ -схема, очень мало. Поэтому в наших экспериментах по реализации эффекта когерентного пленения населенности эффективная  $\Lambda$ -схема создавалась за счет достаточно сильного (порядка 0.1 Т) магнитного поля, наложенного вдоль направления [111] кристалла. Известно, что при наложении сильного магнитного поля (в условиях антипересечения уровней основного состояния) эффективность когерентных эффектов существенным образом зависит от того, насколько хорошо ось кристалла ориентирована относительно внешнего поля [5].

Известны методы контроля качества ориентировки: по ширине провала в люминесценции в окрестности точки антипересечения основного состояния [11], по времени декогеренции [12], по профилю оптически детектируемого магнитного резонанса в присутствии магнитного поля [13], по форме провала в люминесценции NV-центров при поле 590 G [14]. Однако все эти методы либо не дают необходимой точности, либо слишком трудоемки. Поэтому мы разработали простую оригинальную методику определения угла между осью кристалла и направлением магнитного поля. Суть ее состоит в следующем. Мы использовали измерение положений кросс-релаксационных резонансов при сканировании магнитного поля катушкой в присутствии дополнительного постоянного магнитного поля (см. подробнее [15]). Сканируемое магнитное поле за счет эффекта Зеемана изменяет частоты микроволновых переходов NV-центров. Кросс-релаксация наблюдается при совпадении частот микроволновых переходов различных по направлению групп NV-центров в алмазе, в результате чего в сигнале флуоресценции наблюдается провал.

В общем случае положения резонансов описываются формулой

$$B_i = -\frac{(\mathbf{B}^{DC}, \mathbf{v}_i)}{(\mathbf{b}^{scan}, \mathbf{v}_i)},$$

где  $\mathbf{B}^{DC}$  — постоянное магнитное поле,  $\mathbf{b}^{scan}$  — единичный вектор, задающий направление сканирования магнитного поля, векторы  $\mathbf{v}_i = \mathbf{e}_k \pm \mathbf{e}_j$  являются комбинациями векторов  $\mathbf{e}_i = [1, \pm 1, \pm 1]$ , описывающих возможные ориентации NV-центров в кристаллической решетке. Приложение постоянного магнитного поля  $\mathbf{B}^{DC}$ , имеющего компоненту поперек направления  $\mathbf{b}^{scan}$ , необходимо для расщепления кросс-релаксационных резонансов (если  $\mathbf{B}^{DC} \parallel \mathbf{b}^{scan}$ , то каждый из резонансов смещается одинаково).

Для описания результатов удобно воспользоваться системой координат, связанной с кристаллографическими осями алмаза  $x = [100]$ ,  $y = [010]$ ,  $z = [001]$ . В случае, когда угол  $\theta$  между сканируемым полем и направлением  $[111]$  мал (т.е.  $\mathbf{b}^{scan} \simeq \left(\frac{1}{\sqrt{3}}, \frac{1}{\sqrt{3}}, \frac{1}{\sqrt{3}}\right)$ ), в магнитных полях меньше 100 G могут наблюдаться до 6 резонансов:

$$\begin{aligned} B_{[100]} &= -\frac{B_x^{DC}}{b_x^{scan}}, \\ B_{[010]} &= -\frac{B_y^{DC}}{b_y^{scan}}, \\ B_{[001]} &= -\frac{B_z^{DC}}{b_z^{scan}}, \\ B_{[110]} &= -\frac{B_x^{DC} + B_y^{DC}}{b_x^{scan} + b_y^{scan}}, \\ B_{[101]} &= -\frac{B_x^{DC} + B_z^{DC}}{b_x^{scan} + b_z^{scan}}, \end{aligned}$$

$$B_{[011]} = -\frac{B_y^{DC} + B_z^{DC}}{b_y^{scan} + b_z^{scan}}. \quad (1)$$

В ходе эксперимента подбиралось постоянное магнитное поле  $\mathbf{B}^{DC}$ , при котором наблюдались шесть отщепленных резонансов (см., например, рис. 1), положения которых входят в левые части уравнений системы (1). Для увеличения точности измерений использовались все положения резонансов и решалась переопределенная система. При этом использовался метод наименьших квадратов. Мы искали минимум функции  $F$  пяти переменных — трех проекций  $\mathbf{B}^{DC}$  и двух переменных, задающих направление сканирования магнитного поля (например,  $b_x^{scan}$  и  $b_y^{scan}$ ). Функция  $F$  описывала отличие измеренных положений резонансов от рассчитанных для данного набора переменных. Для значений проекций  $\mathbf{B}^{DC}$  и направления сканирования магнитного поля, при котором достигался минимум  $F$ , мы вычисляли угол  $\theta$ . Для совмещения направления магнитного поля и оси  $[111]$  мы изменяли положение образца в катушке и проводили измерение угла  $\theta$ , добиваясь уменьшения его значения.

Схема экспериментальной установки для наблюдения КПН представлена на рис. 2. Излучение одночастотного лазера на красителе (выходная мощность 150 mW, ширина линии 1 MHz, длина волны 637 nm) расщеплялось на два пучка при помощи поляризационного делителя. Соотношение интенсивностей в пучках контролировалось полуволновой пластиной, расположенной перед делителем. Для создания необходимой частотной отстройки между управляющим и пробным излучением пучки направлялись на два акустооптических модулятора, включенных один в двухпроходовой, а другой в однопроходовой схеме. Акустооптические модуляторы обеспечивали двухчастотную отстройку в пределах от 0 до 200 MHz. После прохождения акустооптических модуляторов пучки совмещались на поляризационном делителе и фокусировались на кристалле, помещенном в сверхпроводящий соленоид, создающий магнитное

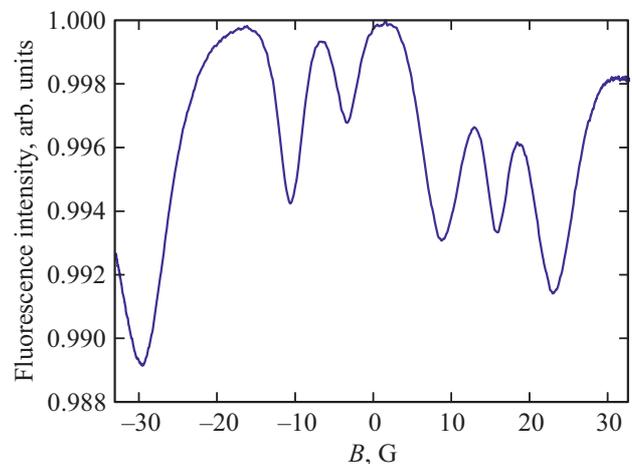
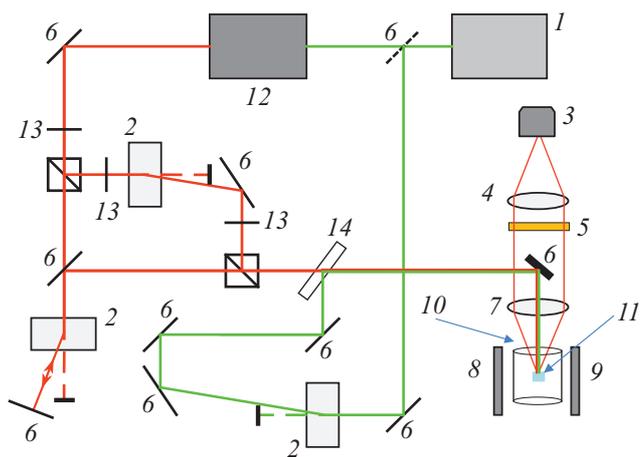


Рис. 1. Зависимость интенсивности флуоресценции от величины сканируемого поля при наличии постоянного поля.



**Рис. 2.** Схема установки: 1 — лазер накачки, 2 — АОМ, 3 — фотодиод, 4, 7 — линзы, 5 — светофильтр, 6 — зеркало, 8, 9 — магнитные катушки, 10 — соленоид, 11 — образец, 12 — лазер на красителе, 13 — пластинка  $\lambda/2$ , 14 — дихроическое зеркало.

поле (кристалл предварительно был ориентирован при комнатной температуре по методике, описанной выше). Кристалл вместе с соленоидом погружались в гелиевый криостат (рабочая температура 2 К). Длина волны лазерного излучения настраивалась на центр бесфоновой линии в спектре возбуждения, что обеспечивало максимальное значение сигнала флуоресценции. Заметим, что центры бесфоновой линии в спектре возбуждения и люминесценции отличались. Этот факт был отмечен в работе [16], однако для нашего кристалла при температуре 2 К сдвиг существенно больше (300 GHz), чем для образца, исследованного в работе [17] (порядка 20 GHz). Флуоресценция детектировалась на длинах волн более 650 nm. Дополнительно к этому часть излучения лазера накачки (532 nm) также направлялась на образец, иначе большая часть NV-центров не будет взаимодействовать с резонансным излучением из-за выжигания спектрального провала и ионизации спустя очень короткое время [5]. Для изменения угла между осью [111] и магнитным полем в ходе эксперимента использовалась пара катушек, размещенных вне криостата.

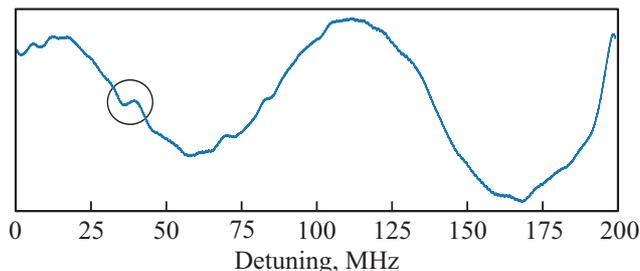
Для измерения зависимости флуоресценции от двухфотонной отстройки использовалась схема детектирования на основе синхронного усилителя. Помимо медленного сканирования, частота пробного луча, а следовательно, и двухфотонная отстройка дополнительно модулировались при помощи низкочастотного генератора сигналов. Сигнал с синхровыхода генератора затем подавался на вход синхронного усилителя, который выделял и усиливал сигнал флуоресценции с фотодиода только на частоте модуляции. Частота модуляции (50 kHz) выбиралась отличной от ожидаемых частот экспериментальных шумов, но достаточно малой по сравнению с ожидаемой скоростью установления эффекта КПН. Полный размах модуляции двухфотонной отстройки выбирался сравнимым с ожидаемой полушириной провала

КПН (5 MHz). Как показали модельные эксперименты, использование такой схемы позволяет эффективно детектировать провалы, контраст которых составляет доли процента.

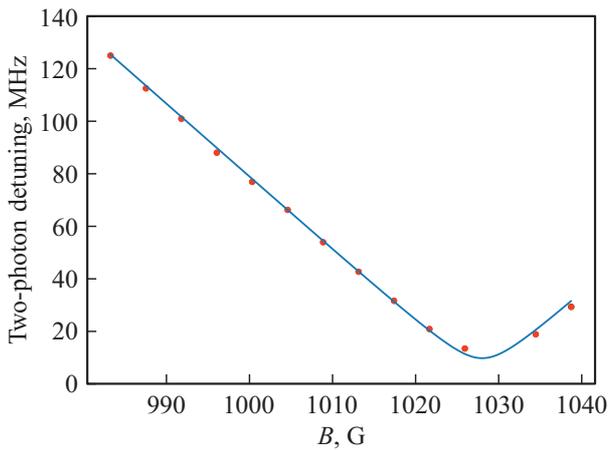
## Результаты и обсуждение

На рис. 3 представлена характерная зависимость выходного сигнала синхронного усилителя в зависимости от частотной отстройки. Отчетливо виден резонанс когерентного пленения населенности. Ширина резонансов порядка 8–10 MHz. Контраст резонансов очень мал (по нашим оценкам не превышает долей процента). Одной из причин низкого контраста может быть следующее. Наши эксперименты по выжиганию долгоживущих спектральных провалов показали, что в используемом кристалле ширина спектрального провала порядка 200 MHz (возможно, за счет спектральной диффузии, особенно важной при низких температурах). Таким образом, имеется сильное спектральное перекрытие каналов возбуждения на смежных переходах  $\Lambda$ -схемы (двухфотонная отстройка порядка нескольких десятков MHz), что сильно нивелирует интерференцию каналов возбуждения, приводя к существенному уменьшению контраста когерентного пленения населенности. Увеличение двухфотонной отстройки за счет изменения магнитного поля (ухода от точки антипересечения) или угла между магнитным полем и осью кристалла нежелательно, так как при этом существенно ухудшаются параметры  $\Lambda$ -схемы. Действительно, контраст наблюдаемых нами резонансов падает при смещении из точки антипересечения уровней основного состояния и при увеличении угла между осью кристалла и направлением магнитного поля (изменялось при помощи катушек, расположенных вне криостата). В этом смысле мы находимся в гораздо худших условиях, чем в экспериментах [5], где двухфотонная отстройка значительно превышала ширину линии и был достигнут контраст 17% при наблюдении электромагнитно индуцированной прозрачности.

На рис. 4 показано местоположение резонансов (двухфотонной отстройки) в зависимости от внешнего магнитного поля. Пользуясь этими данными, можно определить угол  $\theta$  между магнитным полем и направлением [111]. Известно, что для группы NV-центров, ориен-



**Рис. 3.** Зависимость выходного сигнала синхронного усилителя в зависимости от частотной отстройки при значении приложенного магнитного поля 1039 G.



**Рис. 4.** Местоположение резонансов (двухфотонной отстройки) в зависимости от внешнего магнитного поля (точки). Сплошная линия — результат расчета.  $\theta = 0.14^\circ$ .

тированной вдоль [111], частота перехода  $|0\rangle \leftrightarrow |-1\rangle$   $f$  (а следовательно, и двухфотонная отстройка) зависит от величины и направления магнитного поля следующим образом [13]:

$$f = \frac{2\sqrt{3}D}{3}(3b^2 + 1)^{\frac{1}{2}} \sin(\alpha/3 + 2\pi/3),$$

где  $b = g\mu_B B/D$  — безразмерное магнитное поле,  $D \approx 2.88$  GHz, параметр  $\alpha$  определяется выражением  $\cos \alpha = \frac{9b^2 - 27b^2 \cos^2 \theta + 2}{2(3b^2 + 1)^{\frac{3}{2}}}$ .

Варьируя  $\theta$ , мы обнаружили, что максимальное совпадение этой расчетной зависимости с экспериментом наблюдается при угле  $\theta = 0.14^\circ$  (сплошная линия на рис. 4). Это показывает, что наш метод определения угла на основе кросс-релаксационных резонансов действительно позволил добиться направления магнитного поля, близкого к оси [111], что говорит о его эффективности.

## Заключение

В данной работе приведены результаты экспериментов по наблюдению эффекта когерентного пленения населенности в ансамблях NV-центров в алмазе в условиях антипересечения уровней основного состояния. Разработан и успешно апробирован метод контроля угла между осью кристалла и направлением магнитного поля на основе кросс-релаксационных резонансов. Полученные результаты являются еще одним экспериментальным подтверждением возможности формирования суперпозиционных состояний в ансамблях NV-центров в алмазе и полностью оптического контроля спиновых состояний без использования микроволнового излучения.

## Благодарности

Авторы благодарны Ф.Р. Хеммеру (Техасский университет A&M) за полезные обсуждения.

## Финансирование работы

Работа выполнена в рамках гранта Правительства РФ по постановлению 220, договор с ведущей организацией КФТИ ФИЦ КазНЦ РАН № 14.W03.31.0028, а также госконтракта с ФИЦ ИПФ РАН, проект № 0035-2019-0004 (в части, касающейся методики ориентации кристалла относительно внешнего магнитного поля).

## Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

## Список литературы

- [1] Taylor J.M., Cappellaro P., Childress L., Jiang L., Budker D., Hemmer P.R., Yacoby A., Walsworth R., Lukin M.D. // Nature Physics. 2008. V. 4. P. 810.
- [2] Kucsko G., Maurer P.C., Yao N.Y., Kubo M., Noh H.J., Lo P.K., Park H., Lukin M.D. // Nature. 2013. V. 500. P. 54.
- [3] Gurudev Dutt M.V., Childress L., Jiang L., Togan E., Maze J., Jelezko F., Zibrov A.S., Hemmer P.R., Lukin M.D. // Science. 2007. V. 316. P. 1312.
- [4] Alkahtani M.H., Alghannam F., Jiang L., Almethen A., Rampersaud A.A., Brick R., Gomes C.L., Scully M.O., Hemmer P.R. // Nanophotonics. 2018. V. 7. P. 1423–1453.
- [5] Hemmer P.R., Turukhin A.V., Shahriar M.S., Musser J.A. // Opt. Lett. 2001. V. 26. P. 361.
- [6] Acosta V.M., Jensen V.M., Santori C., Budker D., Beausoleil R.G. // Phys. Rev. Lett. 2013. V. 110. P. 213605.
- [7] Santori C., Tamarat P., Neumann P., Wrachtrup J., Fattal D., Beausoleil R.G., Rabeau J., Olivero P., Greentree A.D., Praver S., Jelezko F., Hemmer P. // Phys. Rev. Lett. 2006. V. 97. P. 247401.
- [8] Golter D.A., Dinyari K.N., Wang H. // Phys. Rev. A. 2013. V. 87. P. 035801.
- [9] Tamarat Ph., Manson N.B., Harrison J.P., McMurtrie R.L., Nizovtsev A., Santori C., Beausoleil R.G., Neumann P., Gaebe T., Jelezko F., Hemmer P., Wrachtrup J. // New J. Phys. 2008. V. 10. P. 045004.
- [10] Doherty M.W., Manson N.B., Delaney P., Hollenberg L.C.L. // New J. Phys. 2011. V. 13. P. 025019.
- [11] Epstein R.J., Mendoza F.M., Kato Y.K., Awschalom D.D. // Nature Physics. 2005. V. 1. P. 94–98.
- [12] Stanwix P.L., Pham L.M., Maze J.R., Le Sage D., Yeung T.K., Cappellaro P., Hemmer P.R., Yacoby A., Lukin M.D., Walsworth R.L. // Phys. Rev. B. 2010. V. 82. P. 201201.
- [13] Doherty M.W., Michl J., Dolde F., Jakobi I., Neumann P., Manson N.B., Wrachtrup J. // New J. Phys. 2014. V. 16. P. 063067.
- [14] Anishchik S.V., Vins V.G., Yelisseyev A.P., Lukzen N.N., Lavrik N.L., Bagryansky V.A. // New J. Phys. 2015. V. 17. P. 023040.
- [15] Akhmedzhanov R., Gushchin L., Nizov N., Nizov V., Sobgayda D., Zelensky I., Hemmer P. // Phys. Rev. A. 2017. V. 96. P. 013806.
- [16] Kiisk V., Palm V., Suisalu A., Sildos I. // J. Luminesc. 2000. V. 86. P. 349–353.
- [17] Holliday K., Manson N.B., Glasbeek M., van Oort E. // J. Phys.: Condens. Matter. 1989. V. 1. P. 7093.