

02

Наблюдение когерентных осцилляций населенности NV-центров в алмазе в микроволновом диапазоне

© Р.А. Ахмеджанов¹, Л.А. Гуцин¹, И.В. Зеленский¹, В.А. Низов^{1,2}, Н.А. Низов^{1,2}, Д.А. Собгайда¹

¹ Институт прикладной физики РАН,
603950 Нижний Новгород, Россия

² ФИЦ Казанский научный центр РАН,
420111 Казань, Россия

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

Поступила в редакцию 21.10.2020 г.

В окончательной редакции 04.12.2020 г.

Принята к публикации 04.12.2020 г.

Приведены результаты экспериментов по наблюдению особенностей в спектре оптически детектируемого магнитного резонанса в ансамблях NV-центров в алмазе при комнатной температуре при возбуждении низкочастотных переходов двухчастотным и амплитудно модулированным одночастотным микроволновым излучением. Исследована зависимость параметров этих особенностей от интенсивности оптического излучения и мощности микроволнового излучения.

Ключевые слова: NV-центры в алмазе, оптически детектируемый магнитный резонанс, релаксация населенности, когерентные осцилляции населенности, выжигание спектральных провалов.

DOI: 10.21883/OS.2021.03.50656.265-20

Введение

NV-центры в алмазе часто используются в качестве рабочей среды для устройств зондирования магнитных и электрических полей [1,2], температуры [3], реализации квантовых вычислений [4], а также стабильных флуоресцентных биомаркеров [5]. Это связано с сочетанием удобства оптического детектирования квантового состояния и длинных времен жизни когерентности даже при комнатной температуре. Основное состояние NV-центров имеет спиновые подуровни, переходы между которыми лежат в микроволновом диапазоне. Благодаря оптической поляризации спина и спин-зависимой флуоресценции NV-центров широко распространено применение метода оптически детектируемого магнитного резонанса (ОДМР). Одним из направлений исследований в последнее время является использование комбинированного возбуждения NV-центров несколькими электромагнитными волнами. Например, наблюдение ОДМР при дополнительном приложении радиочастотного излучения [6–8]. С точки зрения приложений перспективным выглядит метод двухквантовой магнитометрии [9] (использующий когерентную манипуляцию состоянием NV-центра, имеющим подуровни с проекцией спина ± 1 , при помощи двухчастотного поля), позволяющий исключить влияние температуры/электрического поля и повысить чувствительность. В микроволновом диапазоне при комнатной температуре наблюдались эффекты когерентного пленения населенности [10,11], Ауслера-Таунса [12,13]. С точки зрения изучения динамики NV-центров предлагается наблюдение выжигания спектраль-

ных провалов [14,15] и когерентных осцилляций населенности [16,17].

Когерентные осцилляции населенности (КОН или СРО, Coherent Population Oscillations) — это явление, известное в области квантовой оптики. Они проявляются как узкий провал (резонанс КОН) в линии поглощения при сканировании частоты пробного излучения вблизи частоты одновременно приложенного к среде возбуждающего излучения с постоянной частотой. В отличие от обычного спектрального провала, ширина которого ограничена однородным уширением $1/T_2$, ширина резонанса КОН может быть намного меньше и соответствует скорости релаксации населенности $1/T_1$. В некоторых работах такую узкую особенность связывают с сильной дисперсией и возможностью наблюдения „медленного“ света (см., например, [18]) и реализации оптической памяти [19]. Существует другая точка зрения: наблюдаемые незначительные замедления световых импульсов можно объяснить искажением их формы при распространении через насыщающийся поглотитель, а узкий провал некорректно относить чисто к поглощению пробного излучения [20].

Название эффекта когерентных осцилляций населенности отражает объяснение наблюдения такого узкого спектрального провала. При одновременном приложении пробного излучения и накачки в суммарном возбуждающем излучении присутствуют биения. Если частота этих биений мала по сравнению со скоростью релаксации населенности, то населенность среды успевает отслеживать изменения в уровне эффективной накачки (считается, что интенсивность накачки и пробного излучения достаточно большая чтобы влиять

на населенность). Таким образом, населенность среды осциллирует с частотой отстройки пробного излучения от накачки. Такой нестационарный отклик среды приводит к возникновению узкого провала при сканировании частоты пробного излучения вблизи частоты накачки с характерным частотным масштабом $1/T_1$.

Настоящая работа посвящена экспериментальному наблюдению когерентных осцилляций населенности в ансамбле NV-центров в алмазе при использовании двухчастотной микроволновой накачки и амплитудной модуляции одночастотного СВЧ излучения.

Эксперимент

Эксперименты проводились при комнатной температуре. Оптическая часть установки собрана по конфокальной схеме. Образец — НРНТ (high-pressure-high-temperature)-алмаз производства Element Six, предоставленный ФИАН им. Лебедева, где он был облучен электронным пучком дозой 10^{18} electron/cm² и отожжен для повышения концентрации NV-центров. Для возбуждения NV-центров использовалось излучение накачки на длине волны 532 nm (мощностью несколько десятков mW), сфокусированное в пятно диаметром 100 μ m. Флуоресценция детектировалась в диапазоне длин волн, большем 600 nm, при помощи лавинного фотодиода. Образец помещался в магнитное поле, направленное вдоль направления [111], для выделения одной из 4 групп NV-центров по направлению оси симметрии в кристаллической решетке алмаза. По спектру ОДМР определялась частота микроволнового перехода $0 \rightarrow +1$ для этой группы.

В первой серии экспериментов использовалась стандартная схема с двумя генераторами. Генераторы были синхронизованы по общему опорному сигналу для обеспечения когерентности используемых полей. Во избежание влияния генераторов друг на друга использовались вентили; после сложения суммарный сигнал усиливался и поступал на антенну, выполненную по схеме магнитной петли диаметром 8 mm (образец помещался в центр петли). На рис. 1, *a* показан типичный спектр ОДМР. Частота одного из генераторов фиксировалась в центре пика ОДМР (управляющее поле), в то время как частота второго (пробное поле) сканировалась. Видно, что при возбуждении двумя генераторами происходят кардинальные изменения в форме ОДМР: во-первых, выжигается спектральный провал, во-вторых, на его фоне появляется узкий пик, который, как и в работе [16], можно аппроксимировать двумя контурами (в нашем случае их ширины ~ 30 и ~ 1.5 kHz, рис. 1, *b*). При медленном сканировании частоты пробного излучения и усреднении по малому числу реализаций когерентные осцилляции населенности наблюдались напрямую, проявляясь в виде осцилляций сигнала флуоресценции во времени (рис. 1, *c*). Переход к проявлению КОН в виде

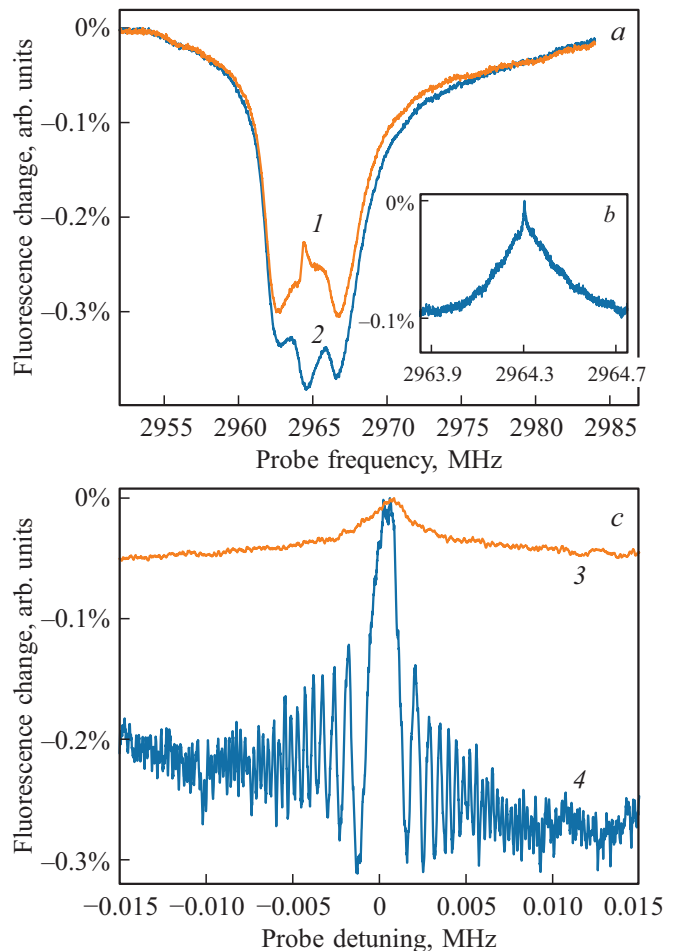


Рис. 1. Измеренное изменение интенсивности флуоресценции образца при сканировании частоты пробного поля (*a*): 1 — спектр ОДМР при приложении управляющего поля на частоте 2964.3 MHz, 2 — в отсутствии управляющего поля. На вставке *b* показана зависимость флуоресценции от частоты пробного излучения в более узких пределах вблизи частоты управляющего поля. (*c*) Зависимость интенсивности флуоресценции от частотной отстройки пробного излучения в диапазоне ± 15 kHz. Длительность сканирования ~ 16 ms. Результат после усреднения по 700 реализациям (3) и 5 реализациям (4).

узкого спектрального провала (резонанса КОН) происходит при усреднении по большому числу реализаций (так как относительная фаза двух возбуждающих полей не сохранялась от реализации к реализации).

Заметим, что в основе когерентных осцилляций населенности лежат биения накачки и пробного излучения, и требуется взаимная когерентность генерируемых полей. Это накладывает ограничения на стабильность частоты генераторов и требует их синхронизации. Также для наблюдения КОН с наилучшим контрастом амплитуды двух полей должны совпадать.

Заметим, что требование когерентности полей и оптимальный контраст КОН автоматически реализуются при переходе от использования двух генераторов к глубокой

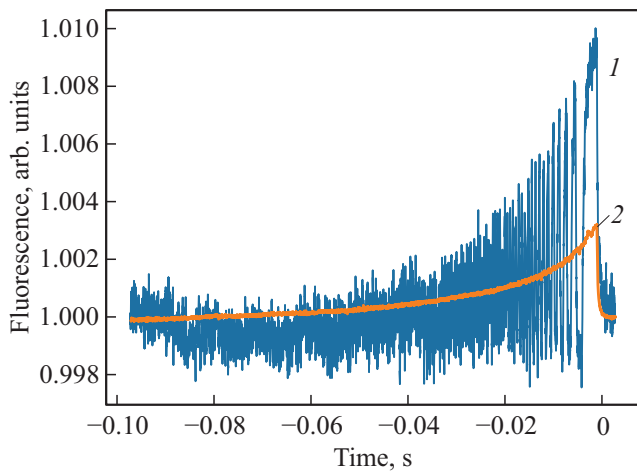


Рис. 2. Изменение интенсивности флуоресценции при линейном сканировании частоты модуляции за 0.1 s от 10 kHz до 1 mHz (при времени, большем 0, начинается следующее сканирование от 10 kHz). Показаны одиночная реализация (1) и результат усреднения по большому числу реализаций (2).

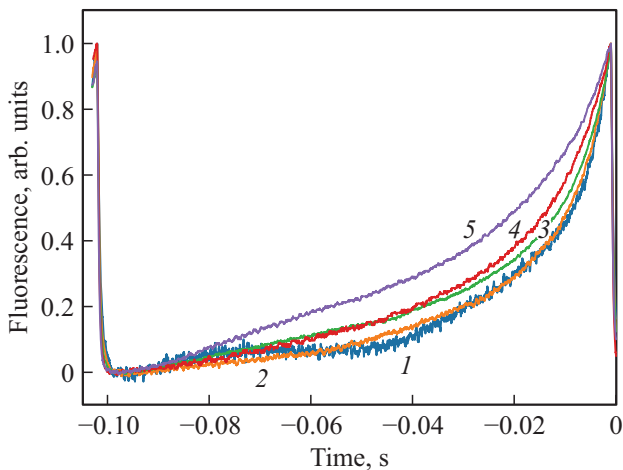


Рис. 3. Спад КОН при различной мощности оптической накачки: 1.2 (1), 3 (2), 5.9 (3), 12 (4) и 23 mW (5). Параметры сканирования частоты амплитудной модуляции те же, что на рис. 2 (скорость сканирования 100 kHz/s). Сигнал флуоресценции нормирован на контраст.

(полной) амплитудной модуляции излучения одного генератора. В этой связи во второй серии экспериментов мы использовали амплитудно модулированное (меандром) микроволновое излучение одного генератора. Для этих целей в микроволновой части между генератором СВЧ излучения и усилителем присутствовал переключатель, при помощи которого создавалась амплитудная модуляция (включение/выключение). Модулированная накачка действует аналогично биениям между излучениями двух генераторов. Следует отметить, что в работе [16] рассмотрено отличие между амплитудной модуляцией (синусоидальной) и приложением двух полей. Отмечается, что для низкочастотной амплитудной

модуляции также следует ожидать наблюдение когерентных осцилляций населенности. На рис. 2 показан характерный вид наблюдаемого сигнала флуоресценции образца при изменении во времени частоты амплитудной модуляции приложенного СВЧ излучения. В низкочастотной области заметны осцилляции в уровне сигнала, пропадающие при частотах модуляции больше ~ 2 kHz. Осцилляции флуоресценции соответствует тому, что в процессе измерения включается/выключается микроволновая накачка. Если частота модуляции много меньше $1/T_1$, то в сигнале флуоресценции фактически должны наблюдаться переключения между двумя уровнями, разница между которыми соответствует контрасту при наблюдении ОДМР. Если частота модуляции много больше $1/T_1$, то на NV-центры эффективно воздействует СВЧ излучение с вдвое меньшей (усредненной) мощностью по сравнению с непрерывно включенной накачкой без модуляции, и наблюдается соответствующий такой мощности уровень флуоресценции.

При усреднении по большому числу отдельных реализаций (фаза амплитудной модуляции в каждой реализации не сохраняется) колебания в уровне флуоресценции исчезают и формируется пик с характерным частотным масштабом спада ~ 1 kHz (рис. 2). Этот спад — проявление когерентных осцилляций населенности, аналогичный узкому провалу, наблюдаемому в схеме с использованием пробного излучения. Как величина, так и частотный масштаб этого спада характеризуют ансамбль NV-центров в образце как нелинейную среду с характерным временем (например, насыщающийся поглотитель). Величина спада соответствует разнице между уровнем флуоресценции при средней мощности СВЧ излучения (половина от полностью включенной) и средним значением между сигналом при включенной и выключенной накачке. Эта разница может наблюдаться в случае нелинейной зависимости уровня флу-

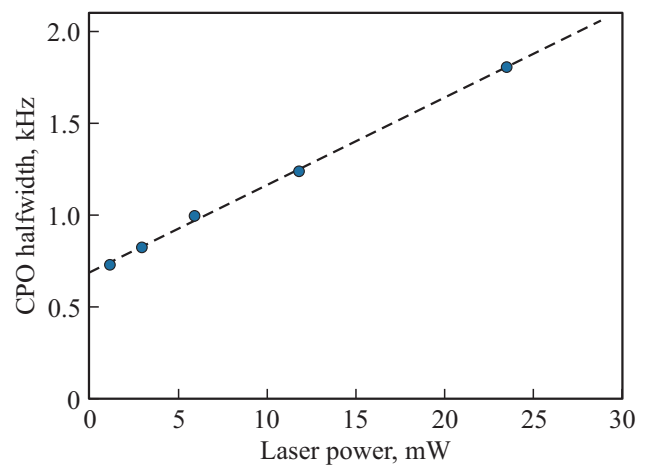


Рис. 4. Зависимость полуширины спада КОН от мощности возбуждающего оптического излучения. Кругами отмечены значения, полученные из рис. 3 по уровню 0.5. Штриховая линия — линейная аппроксимация.

оресценции от мощности приложенного СВЧ излучения. В нашем случае нелинейность присутствует из-за насыщения ОДМР (глубина провала во флуоресценции при его наблюдении ограничена). Поэтому при сравнении половинной и полной мощности накачки контраст ОДМР (уменьшение флуоресценции) возрастает меньше чем в два раза. Этим объясняется относительное уменьшение средней флуоресценции при высокочастотной модуляции. Характерный частотный масштаб спада соответствует обратному времени жизни населенности $1/T_1$.

Возможности использования изменений в спектре ОДМР при одновременном возбуждении двух микроволновых полей

Измерение параметров описанных выше изменений в спектре ОДМР кажется весьма перспективным методом для исследования релаксационных процессов в образцах алмаза, активированных NV-центрами. Действительно, измерение ширин спектральных провалов и резонансов КОН может дать информацию о характерных значениях времен поперечной и продольной релаксаций. Однако, как справедливо отмечено в работе [16], следует помнить, что измеренные константы релаксации характеризуют систему, возмущенную светом и СВЧ излучением, так что сравнение с другими измерениями требует экстраполяции измеренных результатов на нулевую интенсивность света и мощность микроволнового излучения. Мы провели несколько экспериментов для проверки влияния характеристик микроволнового и оптического полей на величины измеряемых констант.

Влияние интенсивности оптической накачки

Были проведены наблюдения спада КОН при различных уровнях оптического возбуждения. С увеличением интенсивности оптической накачки заметно увеличение характерного частотного масштаба резонанса КОН (рис. 3 и 4). Это объясняется тем, что с увеличением интенсивности растет скорость оптической поляризации электронного спина NV-центров, что играет роль дополнительного канала релаксации, увеличивая как равновесную населенность подуровня 0, так и скорость релаксации к новому равновесию при возмущении (например, при выключении СВЧ излучения). Экстраполяция к нулевому значению интенсивности (рис. 4) приводит к характерным скоростям продольной релаксации порядка 500 Hz при использовании амплитудной модуляции микроволнового излучения одного генератора, что соответствует измерениям так называемым методом *relaxation in the dark* (релаксация в „темноте“) [21,22]. При этом для возбуждения NV-центров использовалась оптическая импульсно-периодическая последовательность с варьруемой частотой следования импульсов. По переднему фронту импульса флуоресценции определялась степень поляризации NV-центра, ее

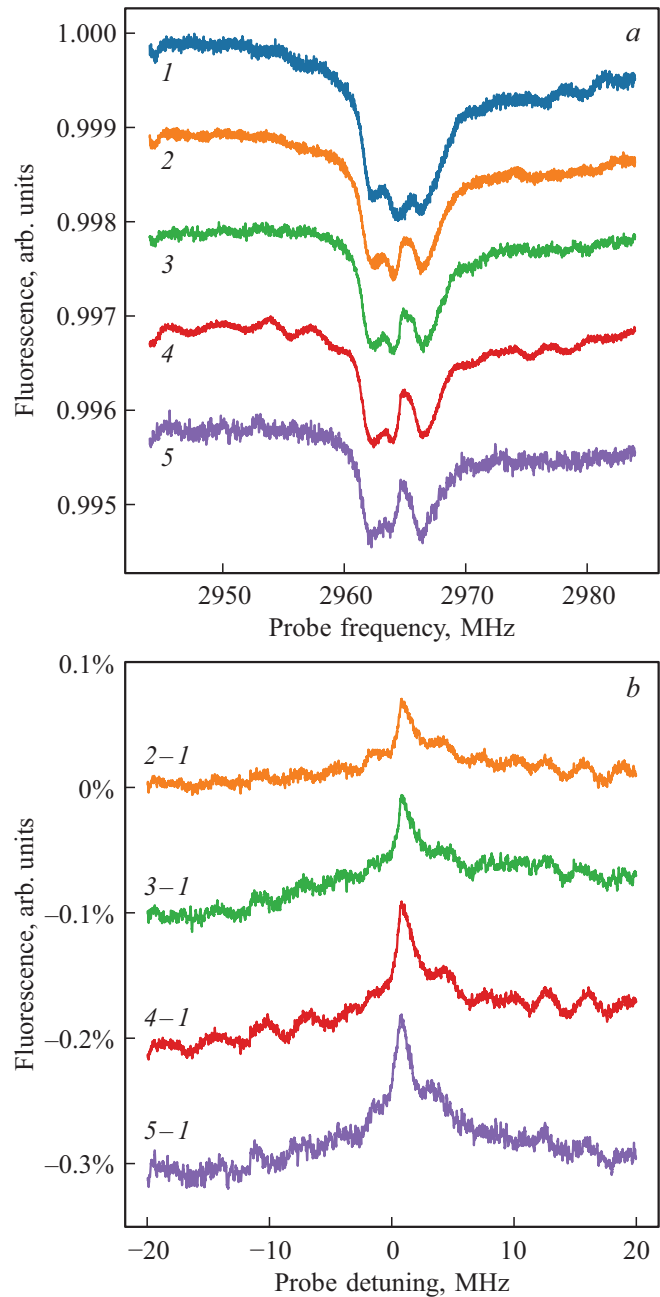


Рис. 5. Выжигание спектрального провала в линии ОДМР при приложении управляющего поля на частоте 2964.64 МГц с различной мощностью: без управляющего поля (1), относительная мощность -9 (2), -6 (3/), -3 (4) и 0 dB (5). Приведены нормированный сигнал флуоресценции (a) и изменение относительно сигнала без управляющего поля (b, из каждой кривой вычитается кривая 1). Кривые смещены по вертикали для наглядности.

зависимость от периода следования позволяла определить время деполаризации, т. е. релаксации населенности нижних уровней.

Влияние мощности микроволновой накачки

В экспериментах также исследовалось влияние мощности используемого микроволнового излучения на ха-

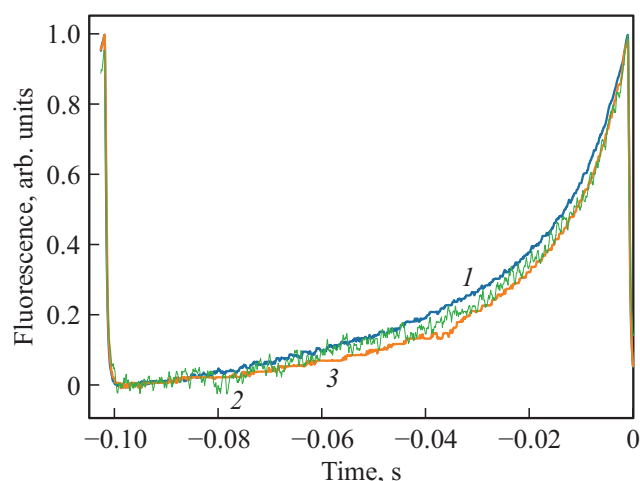


Рис. 6. Спад КОН при различной мощности СВЧ излучения: относительные мощности 0 (1), -5 (2) и -10 dB (3). Параметры сканирования частоты амплитудной модуляции те же, что на рис. 2 (скорость сканирования 100 kHz/s). Сигнал флуоресценции нормирован на контраст.

ракетные значения ширины выжигаемых спектральных провалов и резонансов КОН. Как видно из рис. 5, увеличение мощности управляющего поля приводит лишь к увеличению глубины спектрального провала, практически не изменяя его ширину (в диапазоне используемых нами мощностей до нескольких ватт). Это значит, что в этом диапазоне мощность СВЧ излучения достаточно мала и не приводит к полевому уширению. При этом характерное значение ширины провала составляет порядка 2 МГц. Характерные ширины спадов КОН в наших условиях также практически не чувствительны к мощности микроволнового излучения (рис. 6).

Заключение

В настоящей работе представлены результаты экспериментов по наблюдению когерентных осцилляций населенности NV-центров в алмазе в микроволновом диапазоне при комнатной температуре. Использовались различные варианты накачки: двухчастотное микроволновое излучение и амплитудно модулированное одночастотное СВЧ излучение. Исследована зависимость параметров резонансов КОН и выжигаемых спектральных провалов от интенсивности оптического излучения и мощности микроволнового излучения. Показано, что диагностика динамики релаксации в ансамблях NV-центров с использованием резонансов КОН и выжигаемых спектральных провалов возможна лишь с учетом влияния оптического и микроволнового излучения на релаксационные процессы.

Финансирование работы

Работа выполнена в рамках государственного задания Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (тема № АААА-А19-119011790156-3).

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. doi 10.1038/nphys1075
- [2] Akhmedzhanov R., Gushchin L., Nizov N., Nizov V., Sobgayda D., Zelensky I., Hemmer P. // *Phys. Rev. A*. 2017. V. 96. N 1. P. 013806. doi 10.1103/PhysRevA.96.013806
- [3] 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. doi 10.1038/nature12373
- [4] 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. doi 10.1126/science.1139831
- [5] Alkahtani M.H., Alghannam F., Jiang L., Almethen A., Rempersaud A.A., Brick R., Gomes C.L., Scully M.O., Hemmer P.R. // *Nanophotonics*. 2018. V. 7. P. 1423–1453. doi 10.1515/nanoph-2018-0025
- [6] Dmitriev A.K., Chen H.Y., Fuchs G.D., Vershovskii A.K. // *Phys. Rev. A*. 2019. V. 100. N 1. P. 011801. doi 10.1103/PhysRevA.100.011801
- [7] Tashima T., Morishita H., Mizuochi N. // *Phys. Rev. A*. 2019. V. 100. N 2. P. 023801. doi 10.1103/PhysRevA.100.023801
- [8] Rohr S., Dupont-Ferrier E., Pigeau B., Verlot P., Jacques V., Arcizet O. // *Phys. Rev. Lett.* 2014. V. 112. N 1. P. 010502. doi 10.1103/PhysRevLett.112.010502
- [9] Mamin H.J., Sherwood M.H., Kim M., Rettner C.T., Ohno K., Awschalom D.D., Rugar D. // *Phys. Rev. Lett.* 2014. V. 113. N 3. P. 030803. doi 10.1103/PhysRevLett.113.030803
- [10] Jamonneau P., Hézet G., Dréau A., Roch J.F., Jacques V. // *Phys. Rev. Lett.* 2016. V. 116. N 4. P. 043603. doi 10.1103/PhysRevLett.116.043603
- [11] Huillery P., Leibold J., Delord T., Nicolas L., Achard J., Tallaire A., Hézet G. // arXiv preprint. 2020. arXiv 2005.13082
- [12] Morishita H., Tashima T., Mima D., Kato H., Makino T., Yamasaki S., Fujiwara M., Mizuochi N. // *Scientific Reports*. 2019. V. 9. N 1. P. 1. doi 10.1038/s41598-019-49683-z
- [13] Dong Y., Zheng Y., Chen X.D., Guo G.C., Sun F.W. // arXiv preprint. 2017. arXiv 1712.04582
- [14] Kehayias P., Mrózek M., Acosta V.M., Jarmola A., Rudnicki D.S., Folman R., Gawlik W., Budker D. // *Phys. Rev. B*. 2014. V. 89. N 24. P. 245202. doi 10.1103/PhysRevB.89.245202
- [15] Rosenzweig Y., Schlüssel Y., Folman R. // *Phys. Rev. B*. 2018. V. 98. N 1. P. 014112. doi 10.1103/PhysRevB.98.014112
- [16] Mrózek M., Wojciechowski A.M., Rudnicki D.S., Zachorowski J., Kehayias P., Budker D., Gawlik W. // *Phys. Rev. B*. 2016. V. 94. N 3. P. 035204. doi 10.1103/PhysRevB.94.035204
- [17] El-Ella H.A.R., Huck A., Andersen U.L. // *Phys. Rev. B*. 2019. V. 100. N 21. P. 214407. doi 10.1103/PhysRevB.100.214407

- [18] *Bigelow M.S., Lepeshkin N.N., Boyd R.W.* // Phys. Rev. Lett. 2003. V. 90. N 11. P. 113903.
doi 10.1103/PhysRevLett.90.113903
- [19] *Maynard M.A., Bretenaker F., Goldfarb F.* // Phys. Rev. A. 2014. V. 90. N 6. P. 061801. doi 10.1103/PhysRevA.90.061801
- [20] *Zapasskii V.S., Kozlov G.G.* // Opt. Spectrosc. 2006. V. 100. N 3. P. 419-424. doi 10.1134/S0030400X06030192
- [21] *Jarmola A., Acosta V.M., Jensen K., Chemerisov S., Budker D.* // Phys. Rev. Lett. 2012. V. 108. N 19. P. 197601. doi 10.1103/PhysRevLett.108.197601
- [22] *Mrózek M., Rudnicki D., Kehayias P., Jarmola A., Budker D., Gawlik W.* // EPJ Quantum Technology. 2015. V. 2. N 1. P. 1. doi 10.1140/epjqt/s40507-015-0035-z