

08

Наносенсор слабых магнитных полей на основе крамерсово-вырожденной спиновой системы $^{14}\text{NV}-^{13}\text{C}$

© А.Т. Салказанов¹, А.С. Гусев¹, М.М. Калошин¹, Т.А. Косогорова¹, Н.С. Кукин¹, А.П. Низовцев^{1,2},
С.Я. Килин^{1,2}, Н.И. Каргин¹

¹ Национальный исследовательский ядерный университет „МИФИ“, Москва, Россия

² Институт физики им. Б.И. Степанова НАН Беларуси, Минск, Беларусь

E-mail: ATSalkazanov@mephi.ru

Поступило в Редакцию 16 января 2025 г.

В окончательной редакции 8 марта 2025 г.

Принято к публикации 30 марта 2025 г.

Реализован наносенсор слабых магнитных полей на основе индивидуального комплекса $^{14}\text{NV}-^{13}\text{C}$ в алмазе, в котором атом углерода ^{13}C расположен в третьей координационной сфере ^{14}NV -центра. С помощью сенсора выполнено измерение фонового магнитного поля в лаборатории: проекция на ось квантования комплекса B_z составила примерно $40\text{ }\mu\text{T}$, что близко к величине магнитного поля Земли. На основе использования спиновых гамильтонианов систем ^{14}NV и $^{14}\text{NV}-^{13}\text{C}$ выполнено сравнительное моделирование их спектров оптически детектируемого магнитного резонанса при различных магнитных и электрических полях. Показано, что использование комплекса $^{14}\text{NV}-^{13}\text{C}$ нивелирует влияние на наноманометр внутрикристаллических полей.

Ключевые слова: центр азот–вакансия, ядерный спин ^{13}C , магнитометрия, вырождение Крамерса.

В последнее десятилетие магнитометрия, основанная на использовании одиночных центров окраски азот–вакансия (^{14}NV -центров) в алмазе, обеспечивающая высокую чувствительность к магнитным полям при наноразмерном пространственном разрешении, стала одним из наиболее активно разрабатываемых направлений квантовой сенсорики [1–3]. Физической основой использования ^{14}NV -центра в качестве сенсора магнитного поля является зависимость от магнитного поля энергий и собственных состояний основного триплетного состояния $^3\text{A}_2$ ^{14}NV -центра, проявляющаяся в модификации спектров оптически детектируемого магнитного резонанса (ОДМР), анализ которых и является одним из основных методов определения характеристик действующего на сенсор магнитного поля. Одной из проблем в магнитометрии, основанной на использовании ^{14}NV -центров, является необходимость учитывать воздействие внутрикристаллических деформационных и связанных с ними электрических полей E , которые могут быть значительными в реальных кристаллах алмаза [4]. В связи с этим становится актуальной проблема разделения вкладов магнитных и электрических полей при интерпретации спектров ОДМР ^{14}NV -центра, применяемого в роли сенсора. Для решения данной задачи ранее было предложено использовать крамерсово-вырожденные спиновые системы с полужелтым спином, у которых в условиях воздействия на них внешнего электрического или внутрикристаллического поля имеет место двойное вырождение энергетических состояний, которое снимается только магнитным полем [5].

В частности, в качестве сенсорных спиновых систем можно использовать одиночный комплекс $^{14}\text{NV}-^{13}\text{C}$, который представляет собой ^{14}NV -центр (электронный

спин $S = 1$), сверхтонко связанный с одним ядерным спином изотопа ^{13}C ($I = 1/2$). В настоящей работе такой одиночный комплекс был экспериментально найден в образце, который состоял из эпитаксиального слоя алмаза, выращенного методом CVD на HPHT-подложке размером $0.4 \times 0.4\text{ mm}$. Содержание азота в CVD-слое составляло порядка 1 ppb. ^{14}NV -центры в нем были созданы посредством облучения электронами и последующего отжига. Плотность ^{14}NV -центров оценивалась по картам флуоресценции. Основная часть ^{14}NV -центров расположена на глубине около $5\text{ }\mu\text{m}$. В среднем на области размером $15 \times 15\text{ }\mu\text{m}$ обнаруживается четыре ^{14}NV -центра. Одиночность обнаруженного объекта подтверждалась путем построения автокорреляционной функции второго порядка, измеренное значение $g^{(2)}(0) < 0.5$ указывает на наличие однофотонного излучателя.

Установка для измерения ОДМР включала в себя конфокальный микроскоп, систему счета фотонов и подачи СВЧ-излучения на образец. Возбуждение осуществлялось с помощью непрерывного лазера с длиной волны 532 nm . В качестве антенны использовалась медная проволока, которая располагалась на поверхности алмазной пластины. Микроволновое излучение подавалось на проволоку через усилитель и имело мощность около 100 mW .

Исследуемый в настоящей работе комплекс имел конфигурацию, в которой изотопический атом ^{13}C был расположен в третьей координационной сфере ^{14}NV -центра, как это следовало из результатов измерения спектра ОДМР данного комплекса в нулевом внешнем поле. Расщепление резонансных линий ОДМР оказалось равно примерно 13 MHz и соответствовало именно такому расположению ^{13}C относительно ^{14}NV -центра [6]. Со-

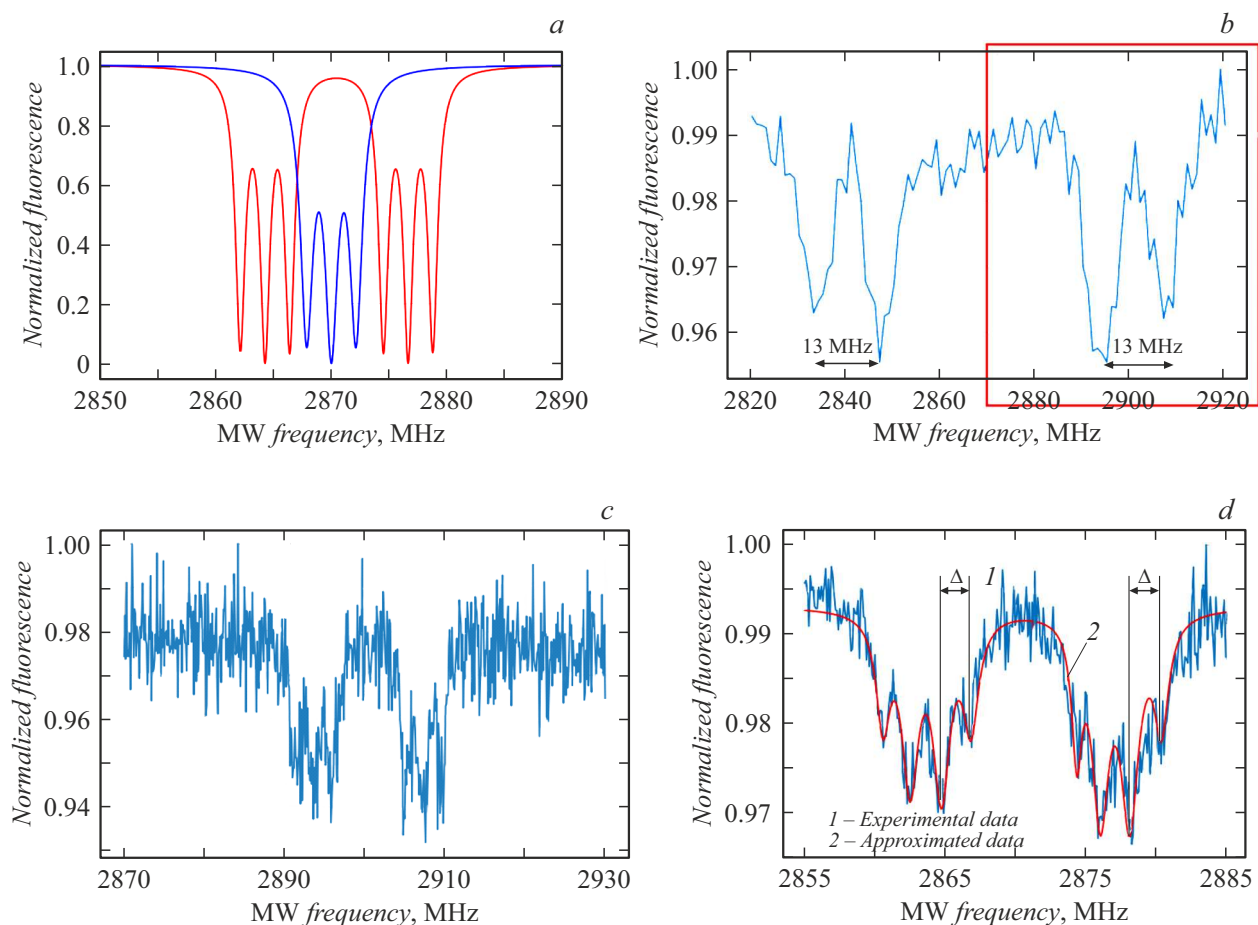


Рис. 1. *a* — модельный спектр ОДМР $^{14}\text{NV}-^{13}\text{C}$ (красная кривая) и спектр ^{14}NV (синяя кривая); *b* — полный экспериментальный спектр ОДМР в магнитном поле 2 мТ; *c* — высокочастотная часть спектра ОДМР в высоком разрешении (выделена красной рамкой на части *b*); *d* — спектр ОДМР комплекса $^{14}\text{NV}-^{13}\text{C}$ в условиях фонового магнитного поля лаборатории. Цветной вариант рисунка представлен в электронной версии статьи.

гласно данным работы [6], таких комплексов в алмазе с естественным содержанием ^{13}C (1.1 %) гораздо больше, чем в конфигурации, где изотоп ^{13}C расположен в первой координационной сфере. По данным работы [6] вероятность нахождения ^{13}C в первой координационной сфере ^{14}NV -центра составляет 3.3 %, а в третьей координационной сфере — 16.4 %. Необходимо отметить, что не все третьи соседи имеют одинаковую сверхтонкую связь, но тем не менее экспериментально мы легко находили комплексы, где расщепление нулевого поля составляет около 13 МГц.

На рис. 1, *a* приведены модельные спектры ОДМР $^{14}\text{NV}-^{13}\text{C}$ и ^{14}NV , построенные с помощью метода спинового гамильтониана. Как показано в нашей предыдущей работе [7], построенные таким образом спектры хорошо согласуются с экспериментом. При приложении магнитного поля происходит снятие двойного крамерсова вырождения состояний системы, и 6 линий на спектре ОДМР дополнительно расщепляются. Таким образом, в спектре ОДМР в магнитном поле должно присутствовать уже 12 линий. На рис. 1, *b* приведен спектр ОДМР

в магнитном поле, где вследствие эффекта Зеемана происходит сдвиг резонансных линий, и на спектре видно две пары линий, расщепленных на 13 МГц. На рис. 1, *c* можно видеть наличие субструктуры, являющейся результатом сверхтонкого взаимодействия ^{14}NV -центра с ядерным спином азота ^{14}N ($I = 1$). Кроме того, механические деформации алмаза индуцируют локальное электрическое поле в области ^{14}NV -центра, что приводит к расщеплению и сдвигу его энергетических уровней за счет эффекта Штарка на Δ . Величину индуцированного электрического поля можно оценить по спектру ОДМР, используя поперечный дипольный момент ^{14}NV -центра ($d_{\perp} = 17.3 \text{ Hz}\cdot\text{cm/V}$). Для исследуемого образца оценка внутрикристаллического электрического поля, выполненная по соотношению $E = \Delta/d_{\perp}$, составила 6 кВ/см. Величина расщепления в нулевом внешнем поле для объемного алмаза, согласно данным [8], равна 100 кГц.

На рис. 1, *d* приведен измеренный спектр ОДМР в условиях фонового магнитного поля лаборатории, т.е. магнитное поле специально не прикладывалось. На спектре можно видеть 8 линий из 12, поскольку

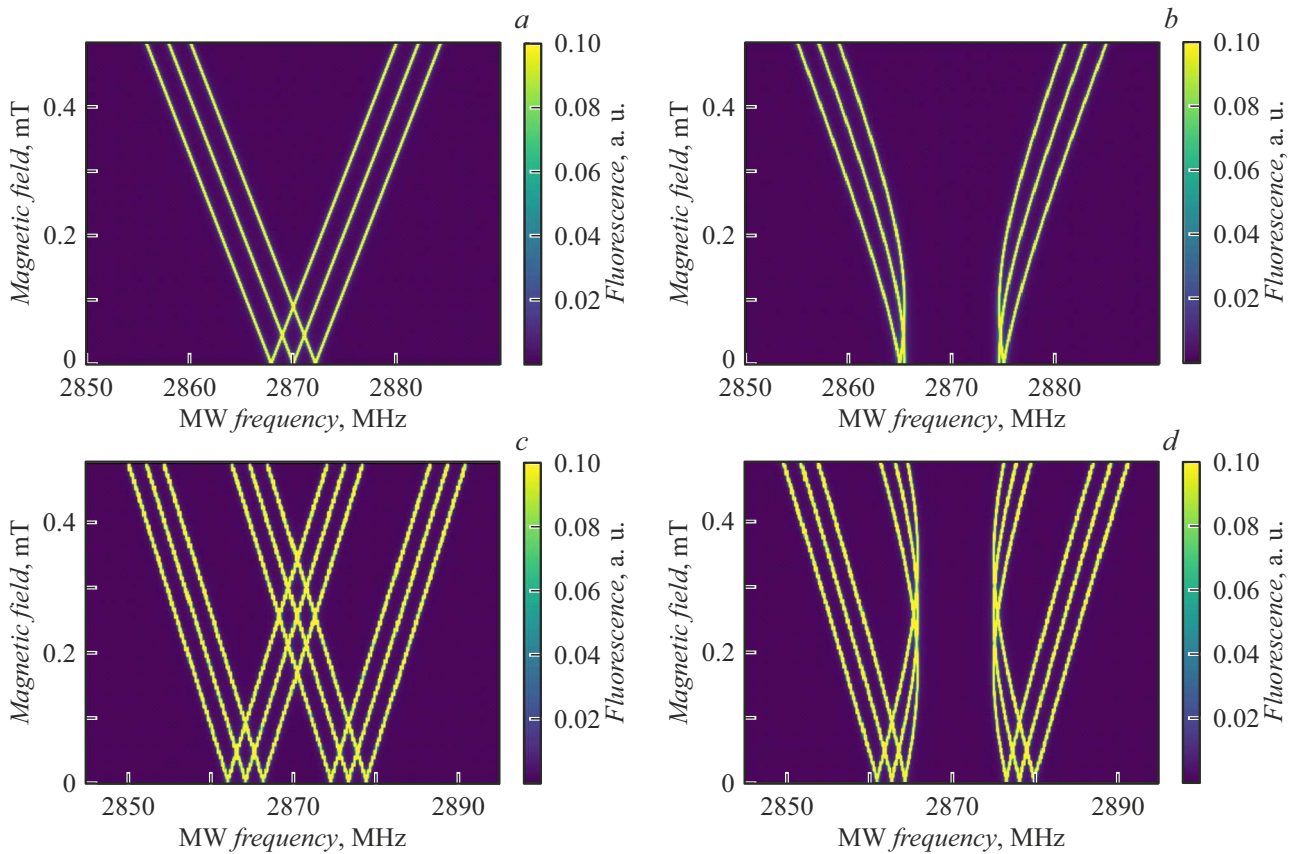


Рис. 2. *a* — спектры ОДМР NV-центра при $E_{\perp} = 0$; *b* — спектр ОДМР ^{14}NV -центра при $E_{\perp} = 300 \text{ kV/cm}$; *c* — спектры ОДМР $^{14}\text{NV}-^{13}\text{C}$ при $E_{\perp} = 0$; *d* — спектр ОДМР $^{14}\text{NV}-^{13}\text{C}$ при различных магнитных полях при $E_{\perp} = 300 \text{ kV/cm}$.

четыре пары линий перекрываются. Это приводит к тому, что две пары линий выглядят более интенсивными. Резонансные пики аппроксимированы кривыми Лоренца. На рис. 1, *d* можно видеть снятие крамерово вырождения. Расщепление Δ в данном эксперименте составило примерно 2.25 MHz, а величину проекции магнитного поля на ось квантования комплекса можно оценить исходя из формулы $\Delta = 2g_e\beta_e B_z$ [5], где $g_e = 2.008$ — почти изотропный электронный g -фактор ^{14}NV -центра, $\beta_e = 1.4 \cdot 10^4 \text{ MHz/T}$ — магнетон Бора. Расчет показал, что $B_z \approx 40 \mu\text{T}$. Это близко к величине магнитного поля Земли $53 \mu\text{T}$ в Москве (величина получена с помощью калькулятора магнитного поля на сайте Национального геофизического центра NOAA), следовательно, такой сенсор можно использовать для его оценки.

Для сравнения с магнитометрией на основе обычного ^{14}NV -центра был проведен расчет влияния деформаций на спектры ОДМР при различных магнитных полях как для ^{14}NV -центра без ^{13}C , так и для комплекса $^{14}\text{NV}-^{13}\text{C}$. Расчет проводился с помощью модели, основанной на спиновом гамильтониане. Согласно данным работы [9], расщепление резонансных линий ОДМР в нулевом внешнем поле может достигать 5 MHz, что соответствует локальному электрическому полю порядка 300 kV/cm. Эту величину поля можно использовать в модели для

сравнения влияния деформаций на ^{14}NV и $^{14}\text{NV}-^{13}\text{C}$. Результаты расчета приведены на рис. 2 в виде тепловых карт. На рис. 2, *a* представлены спектры ОДМР ^{14}NV -центра (без ^{13}C) при различных магнитных полях и без приложенного эффективного электрического поля, а на рис. 2, *b* — при приложении в модели поперечного электрического поля 300 kV/cm. Можно видеть, что резонансные линии расщеплены при нулевом магнитном поле, и это снижает чувствительность магнитометрии.

В свою очередь на рис. 2, *c* и *d* приведены аналогичные распределения для комплекса $^{14}\text{NV}-^{13}\text{C}$, откуда можно видеть, что вырождение состояний снимается только магнитным полем и не зависит от внутрикристаллических электрических полей, что является характерной особенностью крамерово-вырожденных систем. Таким образом, комплекс $^{14}\text{NV}-^{13}\text{C}$ позволяет разделить эффекты от внутрикристаллических и внешних (измеряемых) магнитных полей. В частности, используя сенсор $^{14}\text{NV}-^{13}\text{C}$, можно провести измерение известного магнитного поля и далее, проинтерпретировав результаты теоретически, можно найти компоненты действующих на этот центр внутрикристаллических полей (калибровка), которые далее будут использоваться при теоретической интерпретации спектров ОДМР комплекса при воздействии на него неизвестного измеряемого

магнитного поля. В случае одиночного ^{14}NV -центра не получится провести такую процедуру, поскольку воздействия электрического и магнитного полей перемешаны.

Отметим, что в настоящей работе использовался стационарный метод измерения спектров ОДМР, в котором на центр одновременно действуют и лазер, и микроволновое излучение, что приводит к уширению резонансных линий ($\text{FWHM} \approx 1 \text{ MHz}$ на рис. 1, *d*), снижая чувствительность магнитометрии. Для повышения спектрального разрешения можно использовать импульсную схему измерения спектров ОДМР [10]. Такая схема позволит повысить чувствительность предложенного здесь метода магнитометрии с использованием крамеровской системы $^{14}\text{NV}-^{13}\text{C}$, однако она технически более сложна. Теоретически чувствительность комплекса $^{14}\text{NV}-^{13}\text{C}$ к постоянному магнитному полю соответствует чувствительности ^{14}NV -центра при отсутствии деформаций или полной компенсации их влияния, т.е. менее $50 \text{ nT}/\sqrt{\text{Hz}}$ [9].

Полученные результаты подчеркивают перспективность квантовой системы $^{14}\text{NV}-^{13}\text{C}$ для задач наноманометрии и открывают новые горизонты в разработке квантовых сенсоров.

Финансирование работы

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (соглашение о предоставлении из федерального бюджета гранта на проведение крупных научных проектов по приоритетным направлениям научно-технологического развития № 075-15-2024-556 от 25 апреля 2024 г.)

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] G. Balasubramanian, I.Y. Chan, R. Kolesov, M. Al-Hmoud, J. Tisler, Ch. Shin, Ch. Kim, A. Wojcik, Ph.R. Hemmer, A. Krueger, T. Hanke, A. Leitenstorfer, R. Bratschitsch, F. Jelezko, J. Wrachtrup, *Nature*, **455**, 648 (2008). DOI: 10.1038/nature07278
- [2] J.M. Taylor, P. Cappellaro, L. Childress, L. Jiang, D. Budker, P.R. Hemmer, A. Yacoby, R. Walsworth, M.D. Lukin, *Nat. Phys.*, **4**, 810 (2008). DOI: 10.1038/nphys1075
- [3] P. Maletinsky, S. Hong, M.S. Grinolds, B. Hausmann, M.D. Lukin, R.L. Walsworth, M. Loncar, A. Yacoby, *Nat. Nanotechnol.*, **7**, 320 (2012). DOI: 10.1038/nnano.2012.50
- [4] P. Udvarhelyi, V.O. Shkolnikov, A. Gali, G. Burkard, A. Palyi, *Phys. Rev. B*, **98**, 075201 (2018). DOI: 10.1103/PhysRevB.98.075201
- [5] A.P. Nizovtsev, S.Ya. Kilin, A.L. Pushkarchuk, V.L. Pushkarchuk, S.A. Kuten, *Kramers-degenerated NV+ ^{13}C Spin Systems in Diamond: Analytical Description* // Proc. of SPIE. 2012. Vol. 8699. P. 86990T-1. DOI: 10.1117/12.2017860.

- [6] A.P. Nizovtsev, S.Ya. Kilin, A.L. Pushkarchuk, V.A. Pushkarchuk, S.A. Kuten, O.A. Zhikol, S. Schmitt, T. Uden, F. Jelezko, *New J. Phys.*, **20** (2), 023022 (2018). DOI: 10.1088/1367-2630/aaa910
- [7] A.P. Nizovtsev, N.S. Kukin, A.R. Muradova, P.A. Semenov, A.T. Salkazanov, M.O. Smirnova, A.L. Pushkarchuk, A.N. Vasilev, N.I. Kargin, S.Ya. Kilin, *J. Appl. Spectrosc.*, **89** (6), 1064 (2023). DOI: 10.1007/s10812-023-01467-0
- [8] P. Jamonneau, M. Lesik, J.P. Tetienne, I. Alvizu, L. Mayer, A. Dreau, S. Kosen, J.-F. Roch, S. Pezzagna, J. Meijer, T. Teraji, Y. Kubo, P. Bertet, J.R. Maze, V. Jacques, *Phys. Rev. B*, **93**, 024305 (2016). DOI: 10.1103/PhysRevB.93.024305
- [9] L. Rondin, J.-P. Tetienne, T. Hingant, J.-F. Roch, P. Maletinsky, V. Jacques, *Rep. Prog. Phys.*, **77** (5), 056503 (2014). DOI: 10.1088/0034-4885/77/5/056503
- [10] A. Dreau, M. Lesik, L. Rondin, P. Spinicelli, O. Arcizet, J.-F. Roch, V. Jacques, *Phys. Rev. B*, **84**, 195204 (2011). DOI: 10.1103/PhysRevB.84.195204