

固态金刚石氮空位色心光学调控优化*

冯园耀¹⁾²⁾ 李中豪¹⁾²⁾ 张扬¹⁾²⁾ 崔凌霄¹⁾²⁾ 郭琦¹⁾²⁾ 郭浩¹⁾²⁾
 温焕飞¹⁾²⁾ 刘文耀¹⁾²⁾ 唐军^{1)2)†} 刘俊^{1)2)‡}

1) (中北大学, 仪器科学与动态测试教育部重点实验室, 太原 030051)

2) (中北大学仪器与电子学院, 太原 030051)

(2020年1月12日收到; 2020年4月23日收到修改稿)

在金刚石氮空位色心的高灵敏传感探测研究中, 光学调控是氮空位色心实现高效光学初态制备及信息提取的关键. 本文基于高浓度的金刚石氮空位色心系综检测展开, 采用脉冲光学探测磁共振技术, 系统地研究了激光初态极化时间、信息读取时间与激光功率的关联特性, 并进一步研究了激光入射偏振角与传感信息精度的关系. 探究了各个激光参数对高浓度金刚石氮空位色心系综 [111] 轴上光学探测磁共振谱中第一个共振峰的影响, 并通过实验结果进行分析, 最终选取在光功率密度为 45.8 W/cm^2 下的最优实验参数 (300 μs 的极化时间, 700 ns 的读取时间, 激光入射角为 220°) 进行了光学磁探测共振测试, 与优化前的实验参数 (极化时间为 50 μs , 读取时间为 3000 ns, 入射角度为 250°) 相比, 典型的磁检测灵敏度由 $21.6 \text{ nT/Hz}^{1/2}$ 提升到 $5.6 \text{ nT/Hz}^{1/2}$. 以上研究结果表明我们已经实现光学精密调控的优化测量, 这些研究结果也为高浓度氮空位色心系综精密调控实现温度和生物成像、量子计算及量子信息等领域调控传感检测提供了有效参考.

关键词: 氮空位色心, 脉冲光学磁探测共振, 激光参数

PACS: 76.70.Hb, 42.55.-f, 06.30.Bp

DOI: 10.7498/aps.69.20200072

1 引言

氮空位 (nitrogen-vacancy, NV) 色心作为金刚石晶体中的一种点缺陷, 凭借着在室温下具有稳定的 C_{3v} 结构和荧光强度、超长的电子自旋相干时间和简易的光学读出手段^[1], 在磁场探测、核磁共振、量子计算、生物标记和温度测量^[2-6] 等方面得到了广泛的应用. 例如, Yang 等^[7] 利用 NV 色心进行了纳米尺度冰晶中质子的核磁共振谱测量. Rendler 等^[8] 研制出一种基于 NV 色心的纳米级传感器, 可以用于生物细胞内的成像.

在 NV 色心高精度磁传感研究中, 需要能够很容易读出 NV 色心的自旋状态, 实现量子信息的提取. 常见的方法有脉冲光学探测磁探测共振 (optical detection magnetic resonance, ODMR)、拉比振荡、动力学解耦^[9-15] 等, 而这些方法都依赖于光学调控技术. 量子信息的读出以及极化态的制备依靠通过从激发态回到基态所发出的荧光信息来表征^[16], 想要获得荧光信息就需要激光使 NV 色心基态的电子获得光子的能量变成激发态, 因此对激光参数的有效控制是在光学调控技术中必须要考虑的一部分. Giri 等^[17] 研究了不同激光脉冲的关闭时间的影响, 发现荧光强度随着激光脉

* 国家科技重大专项 (批准号: 2017YFB0503100)、国家重大科研仪器设备研制专项 (批准号: 61727804)、国家自然科学基金 (批准号: 51635011, 51727808, 51922009, 61704158)、山西省应用基础研究计划 (批准号: 201901D101011(ZD), 201901D211254, 201801D221202, 201801D221213)、山西省重点研发项目 (批准号: 201803D121067)、山西省高等学校科技创新项目 (批准号: 2019L0558)、中北大学自然科学基金 (批准号: XJJ201808) 和山西省“1331 工程”重点学科建设计划经费资助的课题.

† 通信作者. E-mail: tangjun@nuc.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: liuj@nuc.edu.cn

冲关闭时间的增加先是急剧增加然后缓慢衰减; Robledo 等 [18] 研究了单个 NV 色心在不同光功率下的极化率, 发现光功率越高, NV 色心的极化率也越高; Chakraborty 等 [19] 研究了不同激光脉冲持续时间下对单个 NV 色心的自旋极化系统的影响, 得到了最高自旋极化率下的激光脉冲持续时间. 然而, 与单个 NV 色心相比, NV 系综具有荧光收集方法简单, 荧光收集效率和强度高, 以及具有较高的磁灵敏度等特点, 更适合于高精度磁传感研究. 但是这些研究仅是关于光场对单个 NV 色心极化的研究, 对 NV 系综的光场调控研究报道较少, 因此本文针对高浓度 NV 系综样品开展光学调控作用的系统研究.

本文以较高浓度 NV 色心系综 [111] 轴向的 ODMR 中第一个共振峰 (NV1) 的磁灵敏度优化为例, 从极化时间、信息读取时间以及入射的偏振角度三个参数方面, 系统地研究不同光功率密度条件下的极化时间、信息提取时间和不同光场偏振角度的影响. 表明在 NV 色心高精度传感研究中光场的参数进行系统的设置的重要性, 为后续实现更多有关 NV 色心系综精密传感检测提供有效参考.

2 实验

2.1 实验原理

NV 色心是由于金刚石晶体中的一个碳原子 (C) 被一个氮原子 (N) 取代, 同时相邻位置会产生一个空位 (V) 形成的. NV 色心具有两种状态, 分别是 NV^0 和 NV^- [20], 其中 NV^- 具有光学极化以及自旋读出能力 [21], 所以本文的研究针对 NV^- 展开. 在后文的描述中, 如果没有特指, NV 均表示 NV^- , 其能级结构如图 1(a) 所示 [22], 其中基态和激发态均为自旋三重态, 同时 NV 色心含有一个单亚稳态 1A_1 . 在零磁场下, 基态 $m_s = \pm 1$ 能级处于简并状态, 且与 $m_s = 0$ 能级间有 2.87 GHz 的零场劈裂 [23]. NV 色心的能级跃迁方式有两种, 分别是发生在激发态和基态之间的自旋守恒的辐射跃迁和通过亚稳态进行的自旋不守恒的非辐射跃迁 [24]. 处于 $m_s = 0$ 态的电子主要进行辐射跃迁并释放出波长范围在 638—800 nm 的荧光; 处于 $m_s = \pm 1$ 态的电子则主要发生非辐射跃迁, 先衰减到亚稳态 1A_1 , 再经过弛豫过程回到 $m_s = 0$, 这个过程不发出波长为 638—800 nm 的荧光.

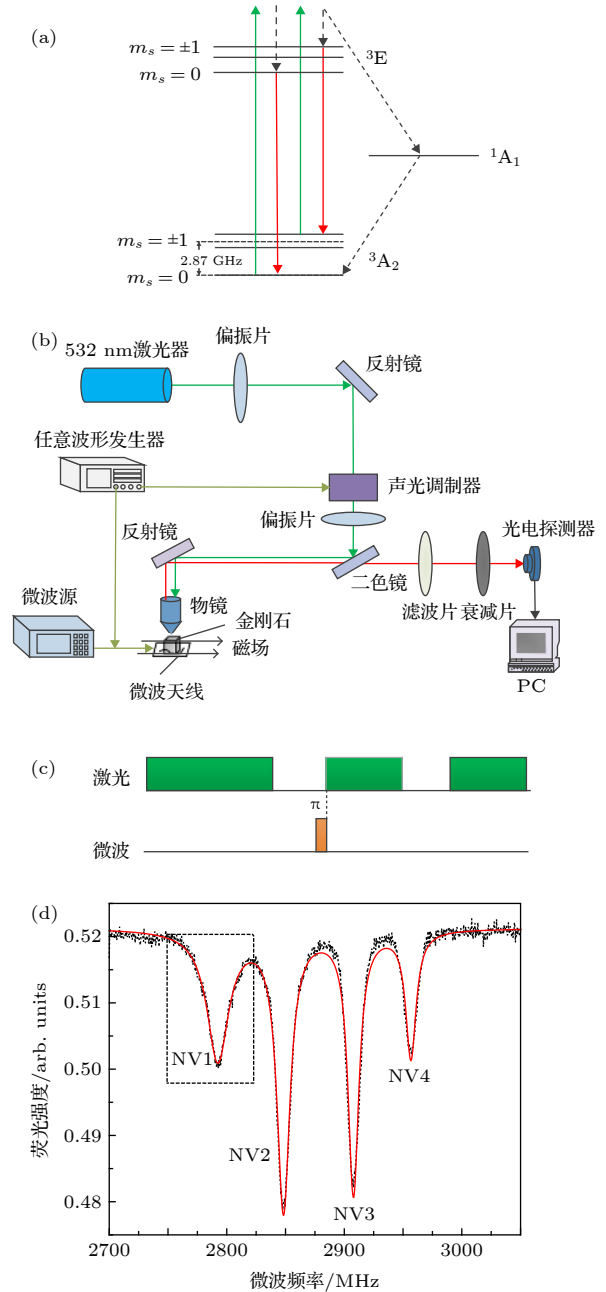


图 1 (a) 金刚石 NV 色心的能级结构; (b) 金刚石 NV 色心实验装置; (c) 实验时序示意图; (d) 沿着 [111] 轴向施加磁场的 ODMR

Fig. 1. (a) Energy level structure of NV center; (b) sketch of experimental setup; (c) sketch of timing sequence; (d) ODMR with a magnetic field along the [111] axis.

2.2 实验装置

图 1(b) 所示的是实验中所用的共聚焦显微系统. 波长为 532 nm, 功率为 200 mW 的激光器 (CrystalLaser, CL532-200-S0) 发出连续的绿色激光, 经过偏振片, 反射镜进入到声光调制器 (Gooch & Housego, 3350-199) 中, 之后进入到放大倍数为 40 \times , 数值孔径为 0.60 的物镜中, 再照射到金刚石

上. 微波由 ROHDE&SCHWARZ 公司的型号为 SMA 100 A 的微波源产生, 通过一个微波天线辐射到金刚石样品上. 金刚石的 NV 色心受激产生的荧光信号通过物镜、二色镜、滤光片和衰减片 (透过率约为 1.5%, 由透过率为 50%, 30%, 10% 三个衰减片组合形成) 后由硅光电探测器 (Throlabs, APD130A/M) 采集. 其中, 声光调制器和微波源的同步输出以及数据采集的同步是通过编写时序控制序列并利用任意波形发生器 (Tektronix, AWG 5204) 完成, 其最高控制精度可达 10 ps. 实验中金刚石样品的 NV 色心浓度为 5 ppm (1 ppm = 1 mg/L), Ib 型块状金刚石, 样品浓度通过荧光强度标定获得 [25].

实验所采用的脉冲如图 1(c) 所示, 先用一个足够长的光脉冲将自然状态下的 NV 色心充分极化, 然后用一个微波 π 脉冲 [26] 将 NV 色心从 $m_s = 0$ 翻转到 $m_s = 1$, 再施加光脉冲进行读取. 当磁场的方向是沿着金刚石 NV 色心 [111] 方向的轴时, 观察到的 ODMR 如图 1(d) 所示, 在 ODMR 中会观察到四个峰 (NV1, NV2, NV3, NV4), 由于磁场方向仅对齐 NV1, 并且 NV1 和 NV4 具有对称性, 文章中仅是针对 NV1 峰进行相关参数优化.

3 实验测量与分析

3.1 极化时间的测量

在对 NV 色心高精度磁传感测量中, 首先要完成 NV 色心自旋态的初始化, 因此先对 NV 色心的极化时间展开测量. 通过调整第一块半波片控制照射到样品的 532 nm 激光的光功率密度, 观察光功

率密度与极化时间的关系. 利用图 1(c) 所示的脉冲序列, 分别在 1.0, 2.0, 3.6, 7.6, 15.3, 30.5 和 45.8 W/cm² 的光功率密度下进行测量, 将 1 态的数值设为参考值 1, 各个光功率密度下从 0 态恢复到 1 态所需的时间如图 2(a) 所示, 在光功率密度一定时, 随着激光作用时间增加, 极化率越来越高, 最后趋于稳定, 其函数关系符合 e 指数增加 [27]. 图 2(b) 给出了在不同光功率密度下达到稳定的极化率时极化时间的变化, 呈现的是 e 指数衰减趋势, 随着光功率密度越来越小, 从 1 态极化到 0 态的速率越慢, 所需要的极化时间越长.

3.2 信息读取时间的测量

图 3(a) 显示了 1.0, 2.0, 3.6, 7.6, 15.3, 30.5 和 45.8 W/cm² 的光功率密度下信息读取时间和对比度的关系. 从图 3(a) 中可以看出, 当光功率密度一定时, 对比度随着信息读取时间先以 S 型函数增加, 然后再以 e 指数函数衰减 [28]. 在不同光功率密度时, 达到最大对比度时的信息读取时间也不同. 图 3(b) 给出了不同光功率密度下最佳信息读取时间的变化曲线, 两者关系呈现的是 e 指数衰减.

3.3 激光入射偏振角的测量

在对 NV 色心高精度磁传感研究中, 本文还研究了激光入射的偏振角对 ODMR 的对比度的影响. 图 4 显示了 NV1 对比度与激光入射角度的变化关系. 两者关系呈现的是一种正弦函数的变化 [29], NV1 对比度随着激光入射角的变化产生周期性的改变, 周期为 90°, 达到最大对比度时的偏振角度为 $(30 + 90n)^\circ$.

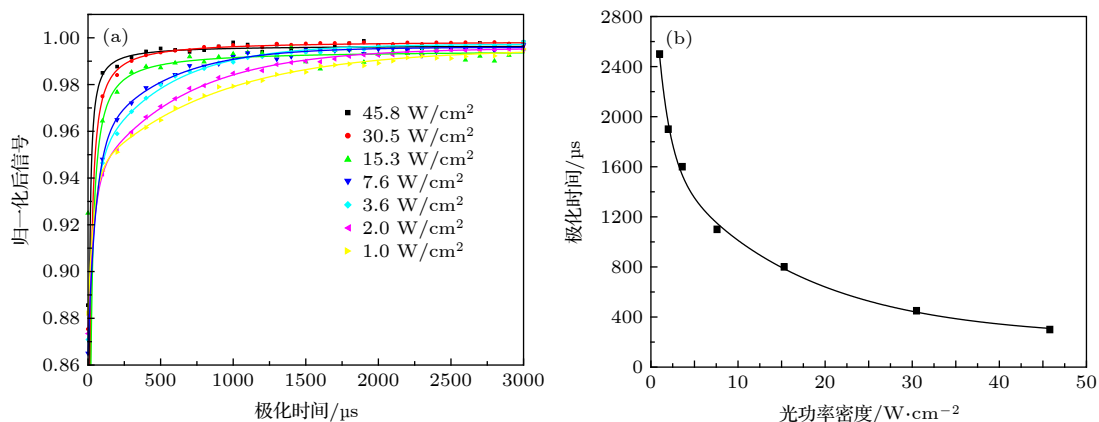


图 2 (a) 不同光功率密度下信号随极化时间的变化; (b) 不同光功率密度下极化时间曲线

Fig. 2. (a) Variation of signal intensity with polarization time at different laser intensity; (b) polarization time with different laser intensity.

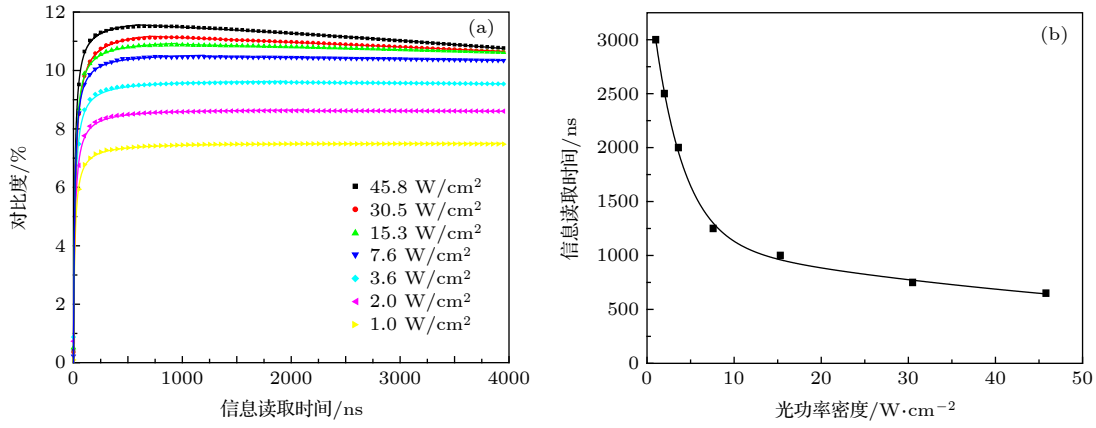


图 3 (a) 不同光功率密度下信息读取时间和对比度的关系; (b) 不同光功率密度下最佳信息读取时间曲线
Fig. 3. (a) Reading time with contrast ratio at different laser intensity; (b) best reading time with different laser intensity.

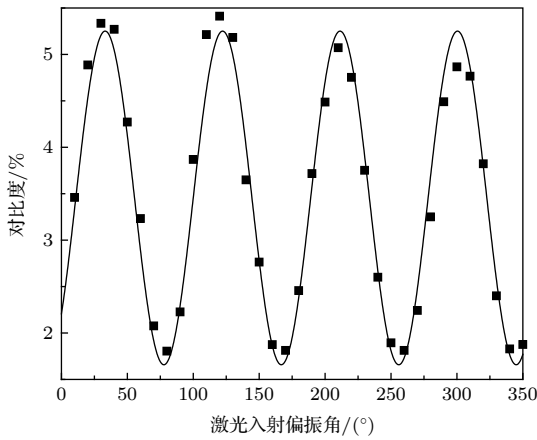


图 4 对比度随激光入射偏振角的变化曲线
Fig. 4. Contrast ratio changing with different polarization angle of the laser.

3.4 优化前后的 ODMR 对比

图 5 显示了在光功率密度为 45.8 W/cm² 下, 选取不同的激光参数所获得的 ODMR. 图 5(a) 是在极化时间为 50 μs, 读取时间为 3000 ns, 入射偏振角度为 250° 的情况下所测得的 ODMR, 图 5(b) 是在极化时间为 300 μs, 读取时间为 700 ns, 入射偏振角度为 220° 的情况下测得的 ODMR. NV 色心磁灵敏度的计算公式为^[30]

$$S_B \approx \frac{2\pi}{\gamma_e} \frac{v}{C\sqrt{P_{\text{fl}}\lambda/(hc)}}, \quad (1)$$

其中, γ_e 为 NV 色心电子自旋的旋磁比, 其值为 2.8 MHz/Gs; π 值取 3.14; v 为 ODMR 信号的半高全宽 (full width at half maximum, FWHM); C 为 ODMR 信号波谷的荧光对比度; P_{fl} 为红光功率, 在 45.8 W/cm² 光功率密度下测得衰减片前荧光功率为 75 μW, h 为普朗克常数, $h = 6.63 \times 10^{-34}$ J·S;

c 为光速, $c = 3.00 \times 10^8$ m/s; λ 为荧光波长, 近似为 670 nm. 经过计算, 图 5(a) 中 NV1 峰对比度为 2.1%, FWHM 为 32.2 MHz, 典型的磁检测灵敏度为 21.6 nT/Hz^{1/2}. 图 5(b) 中 NV1 峰对比度为 4.6%, FWHM 为 18.1 MHz, 典型的磁检测灵敏度为 5.6 nT/Hz^{1/2}.

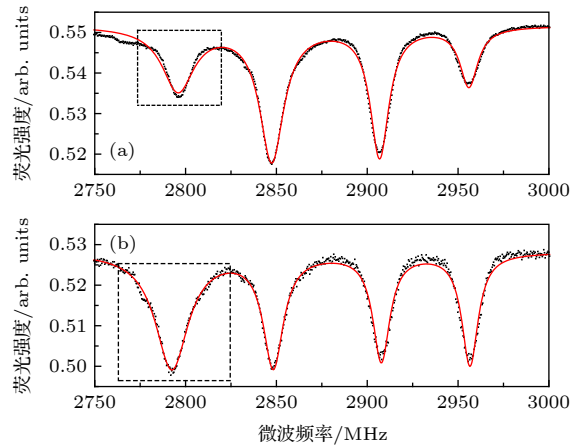


图 5 (a) 优化前的 ODMR; (b) 优化后的 ODMR
Fig. 5. (a) ODMR before optimization; (b) ODMR after optimization.

4 结 论

本文针对高浓度 NV 色心系综 [111] 轴向上的 NV1 峰进行了激光参数的系统测试, 包括激光的光功率密度与极化时间、信息读取时间的关系, 以及对激光入射偏振角的影响. 结果表明, 在不同的光功率密度条件下具有不同的极化时间, 而且极化时间随着光功率密度增大而逐渐减小; NV1 峰的对比度随着信息读取时间的增加先快速增加后缓慢减小, 同时最佳信息读取时间随着光功率密度

减小而逐渐增大;而在激光入射偏振角的测量中, NV1 峰对比度和偏振角是正弦函数关系,周期为 90° . 最后,给出了在光功率密度为 45.8 W/cm^2 下激光参数优化前后的 ODMR 对比,磁检测灵敏度从 $21.6 \text{ nT/Hz}^{1/2}$ 提升到了 $5.6 \text{ nT/Hz}^{1/2}$,说明了在 NV 色心高精度传感中光学调控的重要性. 虽然本文针对的是磁灵敏度的提升,但该技术可以为基于高浓度 NV 色心系综的温度传感、生物成像和量子计算等其他应用提供一定的参考.

参考文献

- [1] Schirhagl R, Chang K, Loretz M, Degen C L 2014 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **65** 83
- [2] Suter D, Jelezko F 2017 *Prog. Nucl. Magn. Reson. Spectrosc.* **98-99** 50
- [3] Zhang C, Yuan H, Zhang N, Xu L, Zhang J, Li B, Fang J 2018 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **51** 155102
- [4] Luo M X, Li H R, Lai H, Wang X 2016 *Sci. Rep.* **6** 25977
- [5] Balasubramanian G, Lazariiev A, Arumugam S R, Duan D 2014 *Curr. Opin. Chem. Biol.* **20** 69
- [6] Doherty M W, Acosta V M, Jarmola A, Barson M S J, Hollenberg L C L 2013 *Phys. Rev. B* **90** 12
- [7] Yang Z, Shi F, Wang P, Raatz N, Li R, Qin X, Meijer J, Duan C, Ju C, Kong X, Du J 2018 *Phys. Rev. B* **97** 205438
- [8] Rendler T, Neburkova J, Zemek O, Kotek J, Zappe A, Chu Z, Cigler P, Wrachtrup J 2017 *Nat. Commun.* **8** 14701
- [9] Yang Z, Kong X, Li Z, Yang K, Yu P, Wang P, Wang Y, Qin X, Rong X, Duan C K, Shi F, Du J 2020 *Adv. Quantum. Technol.* **3** 1900136
- [10] Dréau A, Lesik M, Rondin L, Spinicelli P, Arcizet O, Roch J F, Jacques V 2011 *Phys. Rev. B* **84** 195204
- [11] Yavkin B V, Soltamov V A, Babunts R A, Anisimov A N, Baranov P G, Shakhov F M, Kidalov S V, Vul' A Y, Mamin G V, Orlinskii S B 2014 *Appl. Magn. Reson.* **45** 1035
- [12] Robledo L, Bernien H, van Weperen I, Hanson R 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 177403
- [13] Wang F, Zu C, He L, Wang W B, Zhang W G, Duan L M 2016 *Phys. Rev. B* **94** 064304
- [14] Xu L, Yuan H, Zhang N, Zhang J, Bian G, Fan P, Li M, Zhang C, Zhai Y, Fang J 2019 *Opt. Express* **27** 10787
- [15] Shi F, Kong X, Wang P, Kong F, Zhao N, Liu R B, Du J 2013 *Nat. Phys.* **10** 21
- [16] Poggiali F, Cappellaro P, Fabbri N 2017 *Phys. Rev. B* **95** 195308
- [17] Giri R, Gorrini F, Dorigoni C, Avalos C E, Cazzanelli M, Tambalo S, Bifone A 2018 *Phys. Rev. B* **98** 045401
- [18] Robledo L, Bernien H, Sar T v d, Hanson R 2011 *New J. Phys.* **13** 025013
- [19] Chakraborty T, Zhang J, Suter D 2017 *New J. Phys.* **19** 073030
- [20] Fu K M C, Santori C, Barclay P E, Beausoleil R G 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 121907
- [21] Bluvstein D, Zhang Z, Jayich A C B 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 076101
- [22] Wang C J, Shi F Z, Wang P F, Duan C K, Du J F 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 130701 (in Chinese) [王成杰, 石发展, 王鹏飞, 段昌奎, 杜江峰 2018 *物理学报* **67** 130701]
- [23] Zhang N, Zhang C, Xu L, Ding M, Quan W, Tang Z, Yuan H 2016 *Appl. Magn. Reson.* **47** 589
- [24] Ma Y, Rohlfing M, Gali A 2010 *Phys. Rev. B* **81** 041204
- [25] Zhu Q, Guo H, Chen Y, Wu D, Zhao B, Wang L, Zhang Y, Zhao R, Du F, Tang J, Liu J 2018 *Jpn. J. Appl. Phys.* **57** 110309
- [26] Ning W G, Zhang Y, Li Z H, Tang J 2019 *Journal of Quantum Optics* **25** 215 (in Chinese) [宁伟光, 张扬, 李中豪, 唐军 2019 *量子光学学报* **25** 215]
- [27] Chen X D, Zheng Y, Du B, Li D F, Li S, Dong Y, Guo G C, Sun F W 2019 *Phys. Rev. Appl.* **11** 064024
- [28] Fuchs G D, Dobrovitski V V, Toyli D M, Heremans F J, Weis C D, Schenkel T, Awschalom D D 2010 *Nat. Phys.* **6** 668
- [29] Alegre T P M, Santori C, Medeiros-Ribeiro G, Beausoleil R G 2007 *Phys. Rev. B* **76** 165205
- [30] Zhao R, Zhao B B, Wang L, Guo H, Tang J, Liu J 2018 *Micronanoelectronic Technology* **55** 683 (in Chinese) [赵锐, 赵彬彬, 王磊, 郭浩, 唐军, 刘俊 2018 *微纳电子技术* **55** 683]

Optimization of optical control of nitrogen vacancy centers in solid diamond*

Feng Yuan-Yao¹⁾²⁾ Li Zhong-Hao¹⁾²⁾ Zhang Yang¹⁾²⁾ Cui Ling-Xiao¹⁾²⁾
 Guo Qi¹⁾²⁾ Guo Hao¹⁾²⁾ Wen Huan-Fei¹⁾²⁾ Liu Wen-Yao¹⁾²⁾
 Tang Jun^{1)2)†} Liu Jun^{1)2)‡}

1) (*Key Laboratory of Instrumentation Science and Dynamic Measurement, Ministry of Education, North University of China, Taiyuan 030051, China*)

2) (*School of Instrument and Electronics, North University of China, Taiyuan 030051, China*)

(Received 12 January 2020; revised manuscript received 23 April 2020)

Abstract

The nitrogen-vacancy (NV) centers in diamond have the advantages of stable triaxial structure, ultra-long electron spin coherence time and simple optical readout at room temperature. A nitrogen atom in the diamond crystal replaces a carbon atom and a vacancy is generated at the adjacent position, forming a point defect in the C_{3v} space group structure. Its ground state and excited state are both spin triplet states. It is the key to achieving efficient preparation of optical initial state and extracting NV color center's information in the researches of highly sensitive sensing magnetic detection, temperature detection, biological imaging, quantum computing, etc. However, there was no systematic study on relevant parameters of laser for high-concentration NV color center's samples in previous experimental studies. Based on a high concentration diamond NV ensemble, we use pulsed optical detection magnetic resonance (ODMR) technology to systematically study the relationship among laser initial polarization time, information reading time and laser power, and the influence of laser incident polarization angle on the accuracy of sensing information. The effects of various laser parameters on the NV1 peak of ODMR on the [111] axis of the NVs of diamond are also investigated. The contrast of ODMR increases firstly with a sigmoid function and then decreases with an e-exponential function as the information reading time increases. The incident polarization angle of the laser is sinusoidal, with a period of 90° . According to the above experimental results, we finally choose the appropriate experimental parameters at 45.8 W/cm^2 (300 μs of polarization, 700 ns, reading time, laser incident angle is 220°) for ODMR test. Compared with previous experimental parameters (polarization time was 50 μs , read the time of 3000 ns, laser incident angle was 250°), the experimental results show that the contrast of ODMR increases from 2.1% to 4.6%, and the typical magnetic sensitivity is improved from 21.6 nT/Hz^{1/2} to 5.6 nT/Hz^{1/2}. The optimization of the optical control of NVs in solid diamond is realized. The above results provide an effective support for the detection of high-sensitivity manipulation sensing based on high-concentration NV ensemble.

Keywords: nitrogen-vacancy center, pulse optical magnetic resonance, laser parameters

PACS: 76.70.Hb, 42.55.-f, 06.30.Bp

DOI: 10.7498/aps.69.20200072

* Project supported by the National Science and Technology Major Project of the Ministry of Science and Technology of China (Grant No. 2017YFB0503100), the Special Fund for Research on National Major Research Instruments and Facilities of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61727804), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51635011, 51727808, 51922009, 61704158), the Shanxi Provincial Research Foundation for Basic Research, China (Grant Nos. 201901D101011(ZD), 201901D211254, 201801D221202, 201801D221213), the Key Research and Development Foundation of Shanxi Province, China (Grant No. 201803D121067), the Science and Technology Innovation Project of the Higher Education of Shanxi Province, China (Grant No. 2019L0558), the Natural Science Foundation of the North University of China (Grant No. XJJ201808), and the Fund for Shanxi "1331Project" Key Subjects Construction, China.

† Corresponding author. E-mail: tangjun@nuc.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: liuj@nuc.edu.cn