

09;15

Комбинированное возбуждение оптически детектируемого магнитного резонанса в азотно-вакансионных центрах в кристалле алмаза для прецизионного измерения компонент вектора магнитного поля

© А.К. Вершовский, А.К. Дмитриев

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург
E-mail: antver@mail.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 22 мая 2015 г.

В векторном датчике магнитного поля на основе оптически детектируемого магнитного резонанса в азотно-вакансионных центрах в кристалле алмаза применено одновременное радиочастотное возбуждение трех сверхтонких компонент резонансной линии. В результате в кристалле объемом $\sim 0.01 \text{ mm}^3$, укрепленном на торце оптоволокна, в частотном диапазоне 0–100 Hz впервые реализована чувствительность к компонентам вектора поля на уровне $1.5 \text{ nT} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$.

Применение методик оптически детектируемого магнитного резонанса (ОДМР) к азотно-вакансионным (NV) центрам окраски в алмазе [1] позволило повысить пространственное разрешение квантовых магнитометров с оптической накачкой (КМОН) [2,3] до микро- и нанометров, открыв новые возможности, в частности, в исследовании биологических сред.

Преимущества NV-центров в применении к магнитометрии связаны с их крайне высокой концентрацией при относительно большом времени однородной релаксации $T_2 \approx 1\text{--}10 \text{ ms}$. К сожалению, линия ОДМР в алмазе также характеризуется неоднородным уширением $T_2^* \approx 0.1 \mu\text{s}$ [4,5], радикально снижающим достижимую чувствительность. Это ограничение может быть преодолено методами импульсной эхо-спектроскопии [6,7]; в результате, однако, полностью утрачивается чувствительность за пределами узкого частотного диапазона, в том

числе к постоянным полям. Поэтому возможность применимости NV-магнитометра в магнитометрии биологических объектов [7] оказывается напрямую обусловлена его способностью обеспечить чувствительность к постоянному полю и его медленным (0–100 Hz) вариациям.

В [8] нами была предложена схема трехкомпонентного NV-магнитометра постоянного поля и разработана методика, обеспечивающая уверенную идентификацию линий спектра при минимальном количестве „слепых“ зон; была продемонстрирована чувствительность к компонентам вектора поля на уровне $\delta B = 75 \text{ nT} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$.

В данной работе ставилась задача дальнейшего повышения чувствительности векторного микромагнитометра постоянного поля до значений, позволяющих ему успешно конкурировать как с NV-датчиками переменных полей, так и с микроустройствами, использующими другие принципы. Как и в [8], использовался кристалл синтетического алмаза марки SDB1085 60/70 объемом $\sim 0.01 \text{ mm}^3$ [9], укрепленный оптически прозрачным клеем на торце кварцевого оптоволокна, служащего как для накачки, так и для сбора фотолюминесценции (ФЛ). В качестве источника накачки использовался лазер-указка 532 nm. Влияние амплитудных флуктуаций лазерного излучения было в значительной мере подавлено за счет использования балансной схемы регистрации сигнала. Все измерения производились при комнатной температуре.

Нами были внесены следующие изменения в схему установки [8]: 1) увеличение мощности накачки с 5 до 15 mW; 2) замена полупрозрачного зеркала, служащего для разделения накачки и ФЛ, дихроичным; 3) нанесение на внешнюю сторону алмаза и на выходной торец оптоволокна диэлектрического светоотражающего покрытия. Также была проведена дополнительная симметризация балансной схемы фоторегистрации: ее балансировка теперь осуществляется оптическими, а не электронными средствами. В результате спектральная плотность шума в полосе 1 Hz составила $\rho_N = 0.9 \text{ mV}$, а величина максимума производной сигнала ОДМР по частоте при использовании частотной модуляции $ds/df = 3.48 \text{ V/MHz}$; таким образом, отношение сигнал/шум было повышено на порядок.

Структура уровней в основном состоянии 3A_2 с учетом сверхтонкого взаимодействия с ядром азота ^{14}N определяется гамильтони-

ном [3,10,11]

$$H = D \left(S_z^2 - \frac{1}{3} S^2 \right) + E (S_x^2 - S_y^2) + g_s \mu_B \mathbf{B} \cdot \mathbf{S} \\ + A_{\parallel} S_z I_z + A_{\perp} (S_x I_x + S_y I_y) + P I_z^2 - g_I \mu_N \mathbf{B} \cdot \mathbf{I}, \quad (1)$$

где $\mu_B = h \cdot 13.996 \cdot 10^9$ Hz/T — магнетон Бора; \mathbf{I} — спин ядра ^{14}N ($I = 1$); \mathbf{S} — электронный спин NV-центра ($S = 1$); $\mu_N = h \cdot 7.622 \cdot 10^6$ Hz/T — ядерный магнетон; $D = 2.87$ GHz и E (порядка нескольких MHz) — параметры продольного и поперечного расщепления в нулевом поле [12]; $g_s = 2.003$ и $g_I = 0.403$ — электронный и ядерный g -факторы [10]; $A_{\parallel} = -2.16$ MHz и $A_{\perp} = -2.7$ MHz — константы продольного и сверхтонкого поперечного расщепления [13,14]; $P = 4.95$ MHz — параметр квадрупольного расщепления [13,14]. Для магнитодипольных переходов справедливы следующие правила отбора: $\Delta m_s = \pm 1$ и $\Delta m_I = 0$. Соответственно разрешенные частоты СВЧ-переходов с уровня $|m_s = 0\rangle v_{s,i,j}$ ($m_s = \pm 1$, $m_I = 0, \pm 1$, $j = 1 \dots 4$) определяются выражением

$$v_{s,i,j} = D + m_s \sqrt{E^2 + (m_I A_{\parallel} - m_I g_I \mu_N B_j + g_s \mu_B B_j)^2}, \quad (2)$$

где B_j — величина проекции поля \mathbf{B} на j -ю из четырех возможных ориентаций осей NV-центров в кристаллической решетке. Сверхтонкие и ядерные расщепления и сдвиги малы по сравнению с электронными; поэтому в сильных магнитных полях (таких, что $B_j \gg E/(\mu_B g_s)$ для всех j) полный радиочастотный спектр ОДМР основного состояния ансамбля NV-центров сгруппирован в восемь сверхтонких триплетов с компонентами, отстоящими друг от друга на величину $\Delta v_{HFS} = A_{\parallel} - \gamma_I B_j$, где $\gamma_I = 3.072$ MHz/T. В полях, в которых условие $B_j \gg E/(\mu_B g_s)$ не выполняется, зависимость $\Delta v_{HFS}(B_j)$ становится нелинейной. Заметим, что в (2) не входит величина квадрупольного сдвига P (рис. 1).

При определенных ориентациях \mathbf{B} по отношению к кристаллической решетке сверхтонкие триплеты могут перекрываться. Чтобы избежать этого, перед началом эксперимента следовало определить ориентацию кристалла в пространстве. Мы это делали, измеряя положение спектральных линий ОДМР в эталонных постоянных магнитных полях, модулированных, как описано в [8].

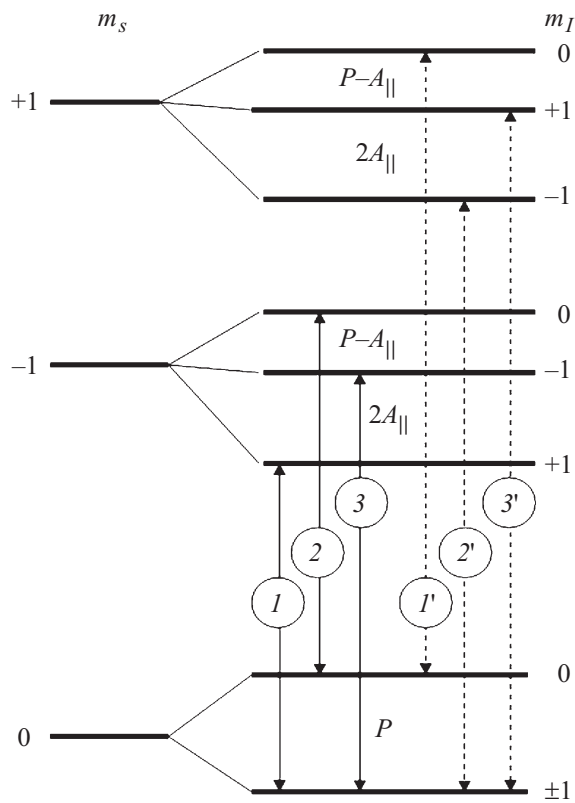


Рис. 1. Сверхтонкая структура СВЧ-переходов в основном состоянии NV-центра. Компоненты резонансных триплетов $1, 2, 3$ и $1', 2', 3'$ пронумерованы в порядке возрастания частоты.

На рис. 2, *a* (пунктир) приведена экспериментальная запись триплета, соответствующего переходу $|m_s = 0\rangle \leftrightarrow |m_s = -1\rangle$ в магнитном поле $B = 4 \text{ мТл}$, ориентированном так, чтобы максимально избежать переналожения линий спектра. Зеемановский сдвиг ядерных уровней в этом поле не превышает 12 кГц . Штрихпунктиром на рис. 2, *a* показан результат аппроксимации спектра тремя лоренцевыми контурами; компоненты триплета, характеризующиеся полушириной

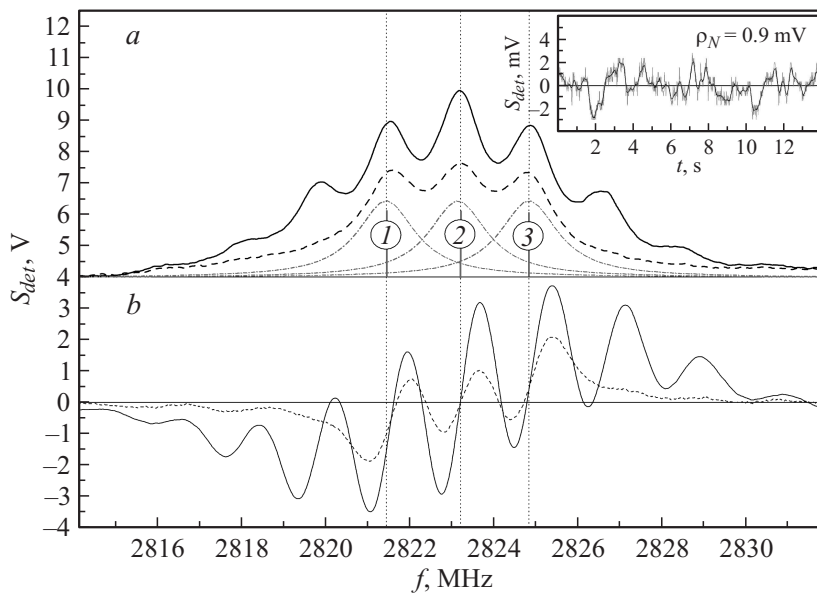


Рис. 2. *a* — сигнал ОДМР, соответствующий переходу $|m_s = 0\rangle \leftrightarrow |m_s = -1\rangle$ при амплитудной модуляции резонансного СВЧ-поля; *b* — тот же сигнал при частотной модуляции резонансного СВЧ-поля. Пунктир — отклик от одного резонансного сверхтонкого триплета (эксперимент), штрихпунктир — аппроксимация сверхтонкого триплета тремя лоренцевыми контурами с одинаковыми параметрами, сплошная линия — отклик от одного резонансного сверхтонкого триплета при комбинированном радиочастотном возбуждении всех трех компонент сверхтонкого триплета (эксперимент). На врезке — запись шума при отстроенной от резонанса частоте СВЧ-поля, полоса интегрирования 1 Hz.

(1.7 ± 0.1) MHz, пронумерованы в соответствии с рис. 1. Запись шума при отстройке СВЧ-генератора от линии ОДМР приведена на вставке рис. 2. Для измерения магнитного поля используется центральная компонента $|m_l = 0\rangle \leftrightarrow |m_l' = 0\rangle$, так как положение ее вершины не смещается крыльями соседних линий. Приведенные выше значения крутизны резонанса и спектральной плотности шума для этой компоненты соответствуют [2] чувствительности в компонентах

вектора поля $\delta B = 4.6 \text{ nT} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$. Здесь учтено, что измерение разности частот переходов $|m_s = 0\rangle \leftrightarrow |m_s = -1\rangle$ и $|m_s = 0\rangle \leftrightarrow |m_s = +1\rangle$ позволяет устранить температурную зависимость частоты резонанса, и вдвое (до $2\gamma_S = 56 \text{ GHz/T}$) увеличить отношение измеряемой частоты к проекции магнитного поля.

Очевидный недостаток данного метода регистрации — использование только тех NV-центров, которые находятся на уровнях $m_I = 0$; в отсутствие резонансного СВЧ-поля это одна треть от общего количества NV-центров. Далее, естественно ожидать, что поле, настроенное в резонанс переходам $|m_s = 0, m_I = 0\rangle \leftrightarrow |m_s = \pm 1, m_I = 0\rangle$, в сочетании с оптической накачкой будет приводить к перекачке NV-центров на уровни $|m_s = 0, m_F = \pm 1\rangle$, выводя их тем самым из процесса регистрации и уменьшая сигнал.

Дополнительное повышение чувствительности было достигнуто за счет одновременного радиочастотного возбуждения всех трех компонент сверхтонкого триплета. Для этого резонансное СВЧ-поле было дополнительно модулировано на частоте $\Delta\nu_{HFS}$, и его спектр тем самым расщеплен на три компоненты. Как и ожидалось, это привело к изменению формы наблюдаемых резонансов (сплошная линия на рис. 2, *a*), так как каждая из трех компонент радиочастотного спектра при сканировании последовательно возбуждает все три компоненты триплета. Суммирование резонансных откликов приводит к росту центрального пика и к росту общего сигнала за счет вовлечения сверхтонких уровней $|m_I = \pm 1\rangle$ и устранения нежелательного процесса перекачки на эти уровни. Как следствие, в 2.95 раза (до 10.27 V/MHz) была увеличена крутизна сигнала при оптимальных параметрах СВЧ поля (пунктир и сплошная линия на рис. 2, *b*). В результате чувствительность в отдельной компоненте вектора поля достигла $\delta B = 1.5 \text{ nT} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$.

Предельная чувствительность схемы, ограниченная дробовым шумом фототока ($\rho_{ShotN} = 0.12 \text{ mV}$ при фототоке $I_{ph} = 35 \mu\text{A}$), составляет $\delta B = 0.2 \text{ nT} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$. Полоса частот $\Delta f = 100 \text{ Hz}$ устройства определяется временем T_1 ($\sim 2 \cdot 10^{-4} \text{ s}$): $\Delta f \ll 1/2\pi T_1$.

Следует отметить, что, согласно (2), для синтеза в реальном времени частоты $\Delta\nu_{HFS}(E, B_j)$ необходимо знание параметра E . В отсутствие априорной информации о E при комбинированном возбуждении резонанса частота $\Delta\nu_{HFS}$ может быть найдена по критерию максимума сигнала.

Для квантовых дискриминаторов при прочих постоянных факторах δB пропорциональна корню из объема V , что позволяет [1] для сравнения параметров использовать приведенную чувствительность $\delta B_V = \delta B V^{1/2}$. Для нашего NV-магнитометра $\delta B_V = 4.9 \cdot 10^{-12} \text{ Т} \cdot \text{см}^{3/2} \cdot \text{Гц}^{-1/2}$; по этому критерию он почти на два порядка превосходит векторный КМОН [15] и приближается к параметрам скалярных КМОН [16,17], существенно превосходя как первые, так и вторые по критерию пространственного разрешения. Сочетание достигнутой чувствительности с линейным разрешением 0.1 nm и полосой частот 0–100 Hz позволяет говорить о целесообразности использования NV-магнитометра, в частности, в задачах медицины и микробиологии.

Авторы благодарят О.С. Васютинского (ФТИ им. Иоффе) за полезные дискуссии. Работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант РФФИ 13-02-00589).

Список литературы

- [1] *Taylor J. M. et al. // Nature Phys. 2008. V. 4. P. 810–816.*
- [2] *Budker D., Romalis M. // Nature Phys. 2007. V. 3. P. 227–234.*
- [3] *Acosta V.M. et al. // Optical Magnetometry / Ed. by D. Budker & D.F. Kimball. Cambridge: Cambridge University Press, 2013. P. 142–167.*
- [4] *Acosta V.M. et al. // Phys. Rev. B. 2009. V. 80. P. 115 202.*
- [5] *Kehayias P. et al. // Phys. Rev. B. 2014. V. 89. P. 245 202.*
- [6] *Hahn E.L. // Phys. Rev. 1950. V. 80. P. 580–594.*
- [7] *Balasubramanian G. et al. // Nature. 2008. V. 455. P. 648–651.*
- [8] *Вершовский А.К., Дмитриев А.К. // Письма в ЖТФ. 2015. Т. 41. В. 8. С. 78–85.*
- [9] *Вершовский А.К., Дмитриев А.К. // Опт. и спектр. 2014. Т. 116. В. 3. С. 67–69.*
- [10] *Felton S. et al. // Phys. Rev. B. 2009. V. 79. P. 075 203.*
- [11] *Fisher R. et al. // Phys. Rev. B. 2013. V. 87. P. 125 207.*
- [12] *Acosta V.M. et al. // Phys. Rev. Lett. 2010. V. 104. P. 070 801.*
- [13] *Smeltzer B., McIntyre J., Childress L. // Phys. Rev. A. 2009. V. 80. P. 050 302.*
- [14] *Steiner M. et al. // Phys. Rev. B. 2010. V. 81. P. 035 205.*
- [15] *Alexandrov E.B. et al. // Meas. Sci. Technol. 2004. V. 15. P. 918–922.*
- [16] *Alexandrov E.B. et al. // Laser Phys. 1996. V. 6. N 2. P. 244–251.*
- [17] *Allred J.C. et al. // Phys. Rev. Lett. 2002. V. 89. N 13. P. 130 801.*