

DOI:10.19651/j.cnki.emt.2208829

全轴激发提升系综金刚石 NV 色心磁灵敏度*

王孝成^{1,2} 赵俊枝^{1,2} 王雪敏^{1,2} 秦丽¹ 马宗敏^{1,2}(1.中北大学省部共建动态测试技术国家重点实验室 太原 030051; 2.中北大学量子传感与精密测量仪器
山西省重点实验室 太原 030051)

摘要: 金刚石中系综氮空位(NV)中心作为高灵敏度磁强计得到了广泛的研究,并且在许多领域得到了应用。为解决传统的测量方式中仅利用了单个轴向的 NV 色心进行激发与检测使得荧光信号对比度较低以及磁检测灵敏度受限制的问题,本文使用了一种双频微波进行全轴激发的方法,通过特定[111]晶向的偏置磁场使得光探测磁共振谱线呈现两对共振峰,并将对应的双频微波进行叠加完成同步调控。经过一系列实验验证,得到拉比振荡信号与自旋回波信号的荧光对比度分别比传统方法提高 2.83 倍和 3.81 倍,系统的极限磁噪声灵敏度提升了约 14.3 倍达到了 $0.76 \text{ nT}/\sqrt{\text{Hz}}$,最终证明全轴激发对提升系统磁灵敏度的可行性。

关键词: 氮空位(NV)色心;光探测磁共振(ODMR);量子调控;磁场检测;量子光学

中图分类号: O469;TM936 **文献标识码:** A **国家标准学科分类代码:** 140.50

Full-axis excitation increases the magnetic sensitivity of the ensemble NV centers

Wang Xiaocheng^{1,2} Zhao Junzhi^{1,2} Wang Xuemin^{1,2} Qin Li¹ Ma Zongmin^{1,2}

(1.State Key Laboratory of Dynamic Measurement Technology, North University of China, Taiyuan 030051, China;

2.Shanxi Province Key Laboratory of Quantum Sensing and Precision Measurement, North University of China, Taiyuan 030051, China)

Abstract: The diamond nitrogen vacancy (NV) center has been widely studied as a high-sensitivity magnetometer and has been used in many fields. In order to solve the problems of low fluorescence signal contrast and limited magnetic detection sensitivity, the traditional measurement method only uses a single axial NV centers for excitation and detection, a full-axis excitation method of dual-frequency microwave is used in this paper. Two pairs of resonant peaks are presented in the optical detection magnetic resonance spectrum by the bias magnetic field of a specific [111] crystal direction, and the corresponding dual-frequency microwave is superimposed to achieve synchronous regulation. After experimental verification, the fluorescence contrast of the derived rabbi oscillation signal and spin echo signal is increased by 2.83 times and 3.81 times compared with the uniaxial signal, respectively, and the ultimate magnetic noise sensitivity of the final system is increased by about 14.3 times to $0.76 \text{ nT}/\sqrt{\text{Hz}}$. Finally, it is proved that full axis excitation is feasible to improve the magnetic sensitivity of the system.

Keywords: nitrogen vacancy (NV) center; optical detection magnetic resonance (ODMR); quantum regulation; magnetic field detection; quantum optics

0 引言

近年来文献[1-3]提出由于金刚石氮空位(nitrogen vacancy, NV)色心具有的室温下极化时间短、相干时间长、量子态容易操控等特点,作为一种利用晶体中原子级缺陷的量子传感平台,特别在磁场检测方向引起了越来越多的关注。

基于不同原理磁传感的各种技术如今已经相对成熟^[4-6],而金刚石 NV 色心作为磁场传感器的起步相对较晚,最早是 2008 年由 Taylor 等^[7]提出。文献[8]提出自旋态的相干时间和参与传感的自旋数是推动灵敏度极限的两个最重要的因素,因此在过去的几年中基于系综 NV 色心的磁场测量人们对延长相干时间进行了广泛的研究,灵敏

收稿日期:2022-01-11

* 基金项目:国家重点研发项目(2017YFE0130200)、国家自然科学基金(51727808,61874100,61503346,51635011)、山西省重点研发项目(201803D121067)、装备发展部快速支持项目资助

度有了明显的提高^[9-10]。同样,在参与传感的 NV 色心数量方向,人们也进行了不同的实验与研究,包括研究具有高密度 NV-中心系综的样品^[11-14]、文献[15]、[16]使用大范围微波(MW)操纵场调控技术和提高荧光收集效率^[17-20]。在 2017 年,文献[21]提出为了提高参与传感的自旋数采用了微波调制解调技术结合光学共振腔增强技术,在收集效率小于 2%, NV 色心浓度大约 0.2 ppb 的条件下得到的 3 nT/ $\sqrt{\text{Hz}}$ 磁场测量灵敏度。尽管如此,系综的 NV 色心磁强计与单色心的 NV 磁强计相比,荧光信号的对比如较低,这可能是由于系综的 NV 色心不同轴向产生的异步演化导致的。为了克服这一问题,已经以不同的方式做出了若干努力。如文献[22]利用化学气相沉积(chemical vapor deposition, CVD)金刚石的择优取向使得系综 NV 色心的轴向尽可能一致生长,最终得到与单色心接近的荧光对比度。

上述研究中对于提高传感自旋数仍存在着一些问题,光学腔和 CVD 金刚石虽然增加了自旋传感数,但仍没有将其余轴向 NV 色心的荧光背景噪声进行有效利用。为了提高参与传感的自旋数,将其他轴向 NV 色心的荧光背景噪声转变为有用的荧光信号,实现全轴 NV 色心的激发与探测,本研究利用特定偏置磁场使得光探测磁共振谱线(optically detected magnetic resonance, ODMR)产生两对共振峰,再将对应频率的微波叠加共同作用实现全轴 NV 色心的同步操控,接着通过拉比振荡、自旋回波等实验验证该方法不仅增加了自旋的数量,提高了信号的对比如,而且提高了系统灵敏度,最终达到了 0.76 nT/ $\sqrt{\text{Hz}}$,证明全轴激发对提升系统磁灵敏度的可行性。

1 实 验

1.1 原理简介

金刚石氮-空位色心(nitrogen-vacancy, NV)是金刚石中的一个碳原子被一个氮原子取代,并且结合附近的一个空穴,这样就会组成一个稳定的缺陷结构^[23], NV 色心的结构如图 1 所示。由于金刚石本身所具有的正四面体结构,使得金刚石 NV 色心具有 C_{3v} 对称性,每个 NV 中心的对称轴被限制在 4 个 [111] 晶体方向中的其中一个方向上。在这里需要说明的是,在 NV 色心内部体系中根据其所带电子的不同,将 NV 色心分为 NV^0 和 NV^- 两种电荷状态,其中带负电荷的 NV 色心具有的性质在量子传感与量子信息的应用中更受青睐^[24],因此除非另有说明在本文中的 NV 都指的是 NV^- 。

金刚石 NV 色心被用于磁场检测的重要因素在于其光致发光现象过程中吸收与发射的波长都位于可见光的范围,易于被激发(532 nm)和测量(637~800 nm),图 2 为 NV 色心的能级结构与跃迁机理。室温下可以将 NV 色心的基态看成是 3A_2 稳定的自旋三重态,分别对应 $m_s=0$ 态、 $m_s=+1$ 态、 $m_s=-1$ 态,在 $m_s=\pm 1$ 和 $m_s=0$ 的自旋投影

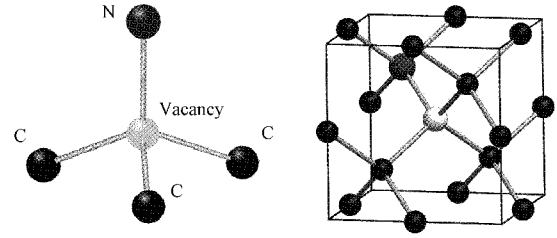


图 1 金刚石 NV 色心结构示意图

之间存在有 $D=2.87$ GHz 的零场劈裂。在没有外界磁场的条件下时 $m_s=+1$ 态和 $m_s=-1$ 态是简并的。当受到 532 nm 泵浦激光的激发时,初始自旋为 $m_s=0$ 态的 NV 色心会跃迁到激发态,再由激发态自发辐射跃迁回到基态,这个过程中释放出一个光子;而初始自旋为 $m_s=\pm 1$ 态的 NV 色心则是先弛豫到亚稳态再经过无辐射跃迁回到 $m_s=0$ 的基态,这个过程则不产生光子,通过这一特性,若给 NV 色心一个长时间的激发过程后,可以将大多数自旋态极化至 $m_s=0$ 态,极化率可以达到 8%~90%,从而得到了一个可以读出的初始态,因此利用基态自旋三重态之间的能级跃迁导致分布数不同,从而进行量子自旋态的调控,实现荧光读出完成磁场等物理量的检测。

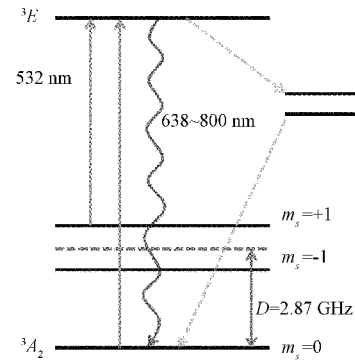


图 2 NV 色心的能级结构与跃迁机理

1.2 实验设置细节

本文搭建了一套基于金刚石系综 NV 色心的共聚焦光学实验平台,如图 3 所示为实验平台示意图。实验平台使用的光源为连续的 532 nm 线偏振激光器(CrystaLaser CL532-100-SO),利用半波片和偏振分光棱镜得到一束垂直偏振光。通过声光调制器(AOM, Gooch&Housego 3350-199)利用脉冲电平产生激光脉冲用于极化金刚石 NV 色心,利用透镜组将光束直径聚焦至 100 μm 从而达到 AOM 最优调制区间(衍射效率达到 90%)以减小脉冲上升时间,接着通过二向色镜将激光反射至物镜内。通过物镜(UPLFLN NA 60 \times 0.9 NA)聚焦激光,在激发金刚石 NV 色心的同时收集荧光信号。通过物镜收集的荧光信号再通过长通滤光片与截止滤光片,最终将 600~800 nm 波段的荧光信号收集至光电探测器(Thorlabs, APD430A/M)中,光电探测器连接上位机采集卡(Gage)进行荧光信号的采集和数据处理^[25-26]。

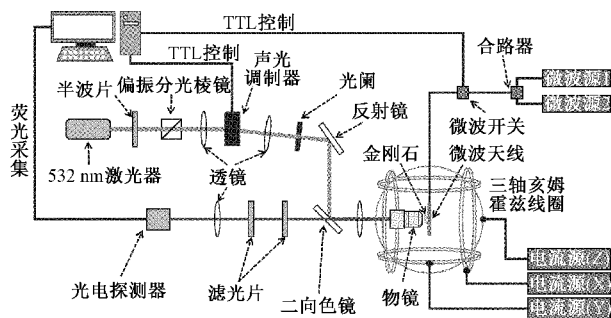


图 3 实验光学平台系统示意图

实验中使用的金刚石购自住友电气公司 (Sumitomo Electric Company) 的 Type Ib 型高温高压金刚石, 尺寸为 $1.4 \text{ mm} \times 1.4 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$, 抛光面为 $\langle 100 \rangle$ 。在 1 MeV 下进行电子辐照 3 h 后, 于 $850 \text{ }^\circ\text{C}$ 的真空 ($1 \times 10^{-7} \text{ Pa}$) 下退火 2 h 制备完成, 其所制备得到的 NV 色心的密度约为 $0.7 \text{ ppm}^{[27-28]}$ 。将金刚石用光固化胶固定在 Ω 型微波辐射天线上。两个微波源 (KEYSIGHT, MXG Analog Signal Generator N5181B) 输出的微波脉冲通过合路器 (Technologies HJPD-2S-1S) 结合后经过微波开关 (Mini-Circuits, ZASWA-2-50DRA+DC-5GHz) 连接至微波天线上, 为金刚石提供高频微波辐射场。最后将金刚石置于三轴亥姆霍兹线圈中心位置处, 通过 X、Y、Z 三台电流源共同调节下可以提供任意方向均匀磁场 (磁场范围: $0 \sim 60 \text{ Gauss}$)。

微波脉冲、激光脉冲以及采集卡是由上位机中的脉冲序列发生器 (SpinCore PulseBlaster 500) 进行同步控制的。具体是通过序列发生器的脉冲信号对微波开关、声光调制器以及采集卡进行精确操控, 最终实现如图 4 所示的脉冲序列进行试验。所有实验均在室温下进行。

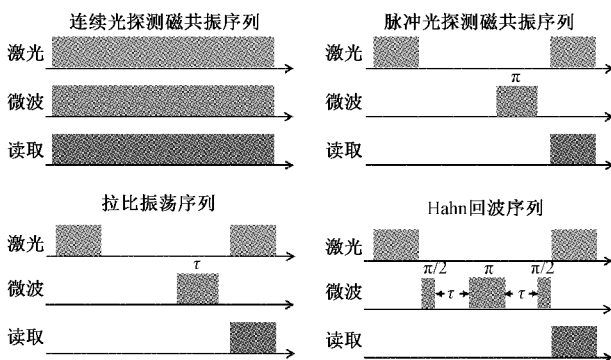


图 4 不同实验所需要的控制脉冲

2 结果与讨论

2.1 非特定磁场方向下的光探测磁共振实验

首先利用三轴磁场线圈施加一个非特定方向的磁场, 由于磁场与 4 个轴向的夹角各不相同, 使得每个轴所受到的磁场分量也不同, 所以每个轴向的 NV 色心所产生的塞曼劈裂程度也会各不相同。实验结果如图 5 所示, 非特定

磁场方向的 ODMR 谱一共会产生 4 对共振峰, 它们关于 2.87 GHz 对称, 分别是由 4 种轴向 NV 色心的 $m_s = -1$ 和 $m_s = +1$ 两个能级劈裂产生的。

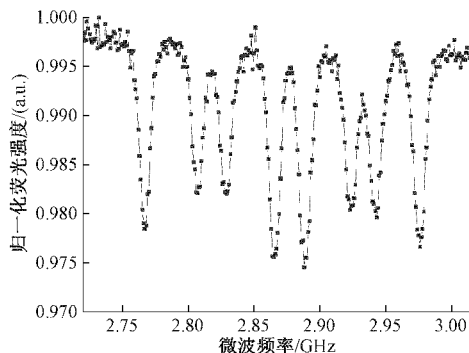


图 5 非特定磁场方向的 ODMR 谱线

2.2 特定 [111] 磁场方向下光探测磁共振实验

为了可以利用双频微波脉冲同步调控, 根据金刚石 NV 色心 C_{3v} 对称性的特点, 通过调整 X、Y、Z 三轴磁场线圈的大小, 最终使得施加的磁场方向与其中一个 NV 轴向平行, 即施加 [111] 方向的偏置磁场。这里为了方便表示, 将轴向与磁场方向平行的 NV 色心表示为 NV1, 同时将作用在 NV1 轴向上的磁场强度表示为 B_1 , 根据金刚石的键角为 109.47° 以及 NV 色心具有的 C_{3v} 对称性, 可以得到其他 3 个轴向上 (NV2、NV3、NV4) 的磁场强度为 $B_2 = B_3 = B_4 = B_1 \cdot \cos(70.53^\circ) \approx 0.333 \cdot B_1$ 。

实验结果如图 6 所示, 由于 NV1 轴向上的磁场分量最大, 使得 NV1 产生的塞曼劈裂程度也最大, 所以最外侧的那对共振峰为 NV1 所产生; 由于 NV2、NV3、NV4 轴向上的磁场分量较小, 所以它们的共振峰应在内侧, 同时又因为这 3 个轴向上的磁场分量相同, 所以产生的塞曼劈裂程度也相同, 这使得 NV2、NV3、NV4 所产生的荧光信号在同一共振频率下进行叠加, 因此内侧共振峰的对比度比外侧高。此外, 外侧共振峰的劈裂宽度为 124 MHz , 可以根据上述理论推测估算出内侧共振峰劈裂宽度约为 41.29 MHz , 实验结果测量得到内侧共振峰的劈裂宽度为 42 MHz , 与理论计算结果基本相符。

2.3 脉冲调控下拉比振荡和自旋回波实验

为了验证多频微波脉冲调控下可以提高参与传感的自旋数和荧光信号对比度, 在上述实验的基础下, 根据图 5 ODMR 检测得到的两对共振峰频率, 取 $m_s = +1$ 能级的两个共振频率分别为 2.892 GHz 和 2.932 GHz , 利用图 4 中拉比振荡序列对单轴 (NV1)、三轴 (NV2、NV3、NV4) 以及全轴进行拉比振荡测量。实验结果如图 7 所示, 方块标识符的衰减振荡曲线代表单轴 (NV1) 产生的拉比振荡, 圆形标识符的曲线则表示其余三轴产生的拉比振荡, 三角标识符的曲线代表全部轴向 NV 色心产生的拉比振荡, 通过将两路微波信号合路叠加后, 共同作用在金刚石上进行测量

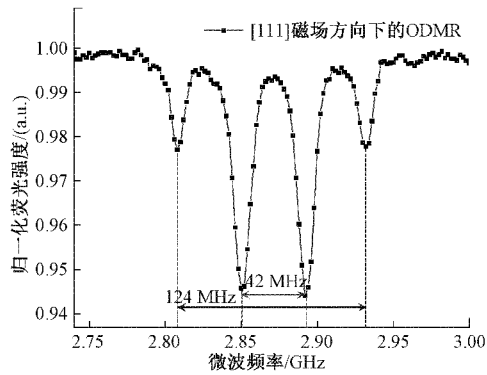


图 6 [111] 磁场方向下的 ODMR 谱

的结果。由于两路微波具有不同的功率衰减使得最终叠加的功率可能不同最终导致拉比振荡周期不同,因此实验通过分别调整这两路微波脉冲的功率使得最终得到的拉比振荡周期统一调控为 200 ns,从而得到更好的叠加信号。根据图 7 中实验结果可以得到,双频微波全轴激发下的信号对比度是单轴的 2.83 倍;是其他三轴的 1.45 倍,具有明显提升。

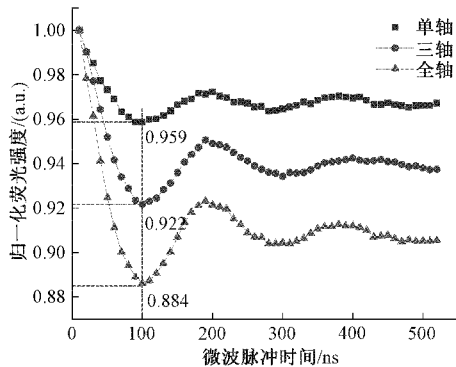


图 7 拉比振荡对比实验

同样地,利用图 4 中自旋回波序列对系综 NV 色心的横向弛豫时间(T_2)进行测量,根据图 7 拉比振荡测量结果可以得到当前实验条件下 NV 色心的 π 脉冲时长为 100 ns, $\pi/2$ 脉冲时长为 45 ns。如图 8 所示,其中方块标识符的衰减曲线为 NV1 单轴测量下的实验结果,圆形标识符的衰减曲线为其余三轴的实验结果,三角标识符的衰减曲线为全部轴向的 NV 色心在双频微波合路共同作用下的结果。很明显可以得到,在双频微波脉冲下自旋回波信号的荧光对比度是单轴的 3.81 倍,是其他三轴的 1.5 倍。

2.4 系统磁噪声谱分析

在原有实验条件下,利用信号发生器和磁场线圈向金刚石 NV 色心施加一个频率为 10 Hz 大小固定的交流磁场微扰,对微波信号进行方波调制,调制频率为 500 Hz,调制深度为 2 MHz,后通过锁相放大器(lock-in amplifier, LIA)对荧光信号进行解调,在对解调后的荧光信号进行功率谱密度转换,完成对系统的噪声谱的测量。如图 9 所示,通过噪

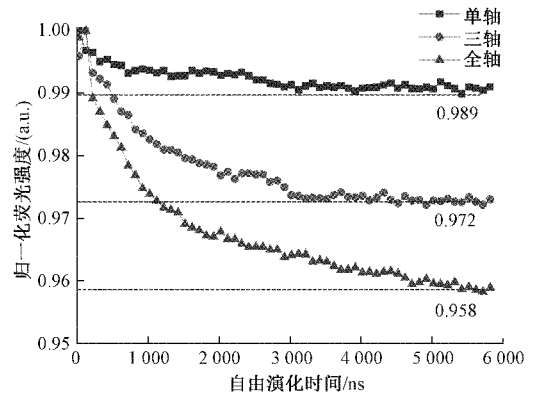


图 8 自旋回波对比实验

声谱可以明显得到,单轴与全轴测量方法下均可以在 10 Hz 处看到一个尖峰,该尖峰则为施加的交流磁场微扰。同时,在相同大小的磁噪声下,全轴激发的方法相较于单轴的测量的方法系统整体的噪声水平明显更低,下降了约 14.3 倍,从而使得信噪比更高,系统可以分辨的最小磁噪声信号也越小,系统的极限磁灵敏度噪声达到了 $0.76 \text{ nT}/\sqrt{\text{Hz}}$ 。

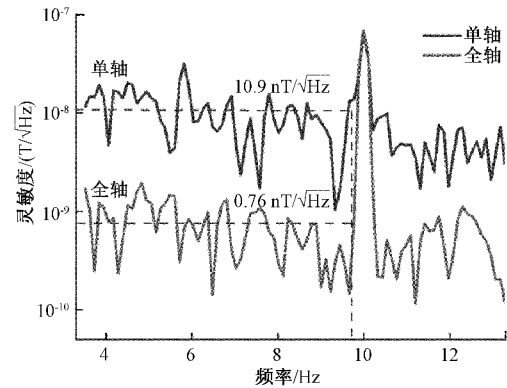


图 9 系统噪声谱测量

综上,根据多组不同的实验结果,最终可以证明,相较于传统的利用单个 NV 轴向进行磁检测与传感的方法,双频微波全轴激发的方法可以将系统的荧光信号对比度提高 3 倍左右,可以将系统的噪声水平压低 14.3 倍左右,有效地提高了系统的信噪比以及磁噪声检测灵敏度。

3 结 论

通过双频微波脉冲同步调控的方法,利用不同实验验证,最终证明了该方法可以提升量子态的操控水平,可以提升荧光信号的对比度,最终提高系统磁探测极限灵敏度,具有潜在的应用前景。同时实验中仍存在可以进一步优化和提升的地方:

由于现阶段金刚石制备技术的限制,实验中所使用的样品含有 1.1% 的天然 ^{13}C 杂质,这也是影响灵敏度的关键因素之一。在未来可以使用纯化的金刚石样品进一步提高

系统灵敏度。

系综金刚石的横向弛豫时间也是限制灵敏度的关键因素。未来通过全轴激发结合动态解耦序列等方法延长系统弛豫时间,达到更精确的量子态操控水平,实现更高精度的磁场检测。

参考文献

- [1] 潘仲明,周晗,张大厦,等. 国外巨磁阻抗传感器检测电路技术的发展动态[J]. 仪器仪表学报, 2017, 38(4):781-7931.
- [2] BARRY J F, SCHLOSS J M, BAUCH E, et al. Sensitivity optimization for NV-diamond magnetometry[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2020, 92(1): 015004.
- [3] BALASUBRAMANIAN G, NEUMANN P, TWITCHEN D, et al. Ultralong spin coherence time in isotopically engineered diamond [J]. *Nature Materials*, 2009, 8(5): 383-387.
- [4] 余亚东,宋凯,李光海,等. 多通道低频电磁传感器的仿真及优化[J]. 仪器仪表学报, 2019, 40(10):19-27.
- [5] 吴德会,刘志天,王晓红,等. 基于微分磁导率的铁磁性材料无损检测新方法[J]. 仪器仪表学报, 2017, 38(6):1490-1497.
- [6] 姜博文,管雪元,李文胜. 基于磁阻传感器的高转速测量方法[J]. 电子测量技术, 2017, 40(5): 47-50.
- [7] TAYLOR J M, CAPPELLARO P, CHILDRESS L, et al. High-sensitivity diamond magnetometer with nanoscale resolution [J]. *Nature Physics*, 2008, 4(10): 810-816.
- [8] ZHANG C, YUAN H, ZHANG N, et al. Vector magnetometer based on synchronous manipulation of nitrogen-vacancy centers in all crystal directions[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2018, 51(15): 155102.
- [9] BAR-GILL N, PHAM L M, BELTHANGADY C, et al. Suppression of spin-bath dynamics for improved coherence of multi-spin-qubit systems [J]. *Nature Communications*, 2012, 3:858.
- [10] FARFURNIK D, JARMOLA A, PHAM L M, et al. Optimizing a dynamical decoupling protocol for solid-state electronic spin ensembles in diamond [J]. *Physical Review B*, 2015, 92(6):60301-60301.
- [11] 王言章,梁檬. 基于 Herriott 型多通池的 SERF 原子磁力仪研究[J]. 仪器仪表学报, 2020, 41(6):43-49.
- [12] JIANG D, KONG D, ZHANG Z, et al. Vibration measurement of pedestrian bridge using double magnetic suspension vibrator based on wavelet analysis [J]. *Instrumentation*, 2017, 4(3):16-25.
- [13] KLEINSASSER E E, STANFIELD M M, BANKS J K Q, et al. High density nitrogen-vacancy sensing surface created via He+ ion implantation of 12C diamond[J]. *Applied Physics Letters*, 2016, 108(20): 202401.
- [14] FARFURNIK D, ALFASI N, MASIS S, et al. Enhanced concentrations of nitrogen-vacancy centers in diamond through TEM irradiation[J]. *Applied Physics Letters*, 2017, 111(12):123101.
- [15] BAYAT K, CHOY J, BAROUGH M F, et al. Efficient, uniform, and large area microwave magnetic coupling to NV centers in diamond using double splitting resonators [J]. *Nano Letters*, 2014, 14(3): 1208-1213.
- [16] ZHANG N, ZHANG C, XU L, et al. Microwave magnetic field coupling with nitrogen-vacancy center ensembles in diamond with high homogeneity [J]. *Applied Magnetic Resonance*, 2016, 47(6):589-599.
- [17] WOLF T, NEUMANN P, NAKAMURA K, et al. Subpicotesla diamond magnetometry [J]. *Physical Review X*, 2015, 5(4): 041001.
- [18] SAGE D L, PHAM L M, BAR-GILL N, et al. Efficient photon detection from color centers in a diamond optical waveguide [J]. *Physical Review B Condensed Matter*, 2012, 85(12):449-449.
- [19] YEUNG T K, SAGE D L, PHAM L M, et al. Anti-reflection coating for nitrogen-vacancy optical measurements in diamond [J]. *Applied Physics Letters*, 2012, 100(25):290.
- [20] MA Z, ZHANG S, FU Y, et al. Magnetometry for precision measurement using frequency-modulation microwave combined efficient photon-collection technique on an ensemble of nitrogen-vacancy centers in diamond [J]. *Optics Express*, 2018, 26(1): 382-390.
- [21] GEORGIOS C, ARNE W, LYKOURGOS B, et al. Miniature cavity-enhanced diamond magnetometer[J]. *Physical Review Applied*, 2017, 8(4): 044019.
- [22] MICHL J, TERAJI T, ZAISER S, et al. Perfect alignment and preferential orientation of nitrogen-vacancy centers during CVD growth of diamond on (111) surfaces [J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 104(10):102407.
- [23] 王俊峰. 金刚石 NV 色心的制备、相干性与温度探测研究[D]. 合肥:中国科学技术大学, 2016.
- [24] DOHERTY M W, MANSON N B, DELANEY P, et al. The nitrogen-vacancy colour centre in diamond[J]. *Physics Reports*, 2013, 528(1): 1-45.
- [25] 曹展宏,李军峰,刘俊杰,等. 基于 LabVIEW 的航空瞬变电磁数据采集系统[J]. 电子测量技术, 2019,

42(8):93-97.

- [26] 张聪聪, 管雪元, 姜博文. 基于磁传感器的温度误差补偿方法[J]. 电子测量技术, 2019, 42(1):35-39.
- [27] ZHANG X M, WANG S Y, SHI Y B, et al. Quantitative analysis of spectral characteristics and concentration of ensembles of NV-centers in diamond[J]. Diamond and Related Materials, 2017, 76: 21-26.
- [28] MA Z, NIU L, WEI J, et al. Variable-density imaging of high concentration of NV centers with three-dimensional optical scanning techniques at sub-micrometer scale in millimeter area [J]. Japanese Journal of Applied Physics, 2020, 59(11):112003.

作者简介

王孝成, 硕士研究生, 主要研究方向为量子传感。

E-mail: 214442445@qq.com

赵俊枝, 硕士研究生, 主要研究方向为量子传感。

E-mail: 1850614491@qq.com

王雪敏, 硕士研究生, 主要研究方向为量子传感。

E-mail: 1148167805@qq.com

秦丽, 教授, 主要研究方向为动态测试与校准技术。

E-mail: qinli@nuc.edu.cn

马宗敏(通信作者), 教授, 主要研究方向为量子传感与精密测量。

E-mail: mzmncit@163.com