

ダイヤモンド中の窒素空孔中心を用いた磁気共鳴実験

文責：Physics Lab.2023 量子班 山本溪登 小島悠杜

2023年5月12日

目次

1	はじめに	2
2	NV 中心	2
3	ラビ振動	4
4	CW ODMR	8
5	NV 中心中のラビ振動	9
6	パルス ODMR	10
7	ラムゼー干渉	11
8	実験装置	12
9	謝辞	12

1 はじめに

ダイヤモンド中の窒素空孔中心 (NV 中心) に対して連続波光検出磁気共鳴 (CW ODMR)、ラビ振動、パルス ODMR、ラムゼー干渉の測定を行った。本記事は量子力学の基礎を学んだことのある方を対象に、これらについて、ポスター「NV 中心の量子実験」より詳しく解説したものである。多くは [1] を元にならされており、詳細の内容はこちらを参照していただきたい。

2 NV 中心

2.1 NV 中心とは

NV 中心は、ダイヤモンドの結晶中で炭素が窒素 (N) で置換され、隣接する位置に空孔 (V) がある複合欠陥である。多くの種類の量子ビットは冷却が必要であるのに対して、ダイヤモンドの構造は安定しており、広いバンドギャップをもつため、NV 中心は室温でも量子状態を保つことができる。NV 中心は、複数の電子の相互作用の結果、基底状態では $S = 1$ をもつ単一スピンとして機能する。

2.2 NV 中心のエネルギー準位

ダイヤモンドの NV 中心は、外場を印加することで 4 つの異なる結晶方位が存在する。これらの 4 つの方位は等価であるが、外部から加えられる静磁場または振動磁場に対して NV 中心の軸が異なる配置をとる。天然に存在する ^{14}N は 99.6% で、その核はスピン数は $I = 1$ であり、ほぼ全ての NV 中心における電子スピンの核スピンと相互作用している。そこで、 ^{14}N 核スピンを考慮するために、NV 中心の基底状態ハミルトニアンを拡張する必要がある。ハミルトニアン \mathcal{H}_0 は次である。

$$\mathcal{H}_0 = \mathcal{H}_S + \mathcal{H}_I + \mathcal{H}_{SI} \quad (1)$$

ここで、 \mathcal{H}_S は電子スピンのハミルトニアン、 \mathcal{H}_I は核スピンのハミルトニアン、 \mathcal{H}_{SI} は電子スピンと核スピンの相互作用のハミルトニアンである。

電子スピンのハミルトニアンは

$$\mathcal{H}_S = D_{\text{gs}} S_z^2 + \gamma_e \mathbf{B}_0 \cdot \mathbf{S}$$

である。ここで $D_{\text{gs}} = 2.87 \text{ GHz}$ は基底状態のゼロ磁場分裂、 \mathbf{S} は $S = 1$ 系の電子スピン行列 (S_x, S_y, S_z) のベクトルである。ゼーマン分裂の大きさは磁気回転比 γ_e と呼ばれる欠陥固有の定数で決まり、NV 中心の磁気回転比は自由電子のもの $\gamma_e = 28 \text{ GHz/T}$ に近い。 \mathbf{B}_0 は外部磁場ベクトルである。

核スピンのハミルトニアン

$$\mathcal{H}_I = P I_z^2 - \gamma_n \mathbf{B}_0 \cdot \mathbf{I} \quad (2)$$

は ^{14}N の核スピンに対応する項である。 $P \approx 5.01 \text{ MHz}$ は ^{14}N の核四重極モーメント、 \mathbf{I} は $I = 1$ の核スピン行列 (I_x, I_y, I_z) のベクトル、 $\gamma_n = 3.077 \text{ MHz/T}$ は ^{14}N の核の磁気磁気比。 γ_n は γ_e より約 1 万倍小さいため、核スピンと外部磁場 \mathbf{B}_0 の間の相互作用を解消するには数 100 mT の磁場が必要となり本実験では確認されない。

\mathcal{H}_0 の最後の項は、NV 電子スピンと ^{14}N 核スピンの相互作用を記述する。

$$\mathcal{H}_{SI} = A_{\parallel} S_z I_z + A_{\perp} (S_x I_x + S_y I_y) \quad (3)$$

ここで、 $A_{\parallel} = 2.14 \text{ MHz}$, $A_{\perp} = 2.7 \text{ MHz}$ はそれぞれ NV 軸に対する hyperfine tensor の平行成分と垂直成分である。図 1 に、(1) のハミルトニアン \mathcal{H}_0 による系のエネルギー準位の模式図を示す。まず、左側に NV 中心の基底状態エネルギー準位 $|g\rangle$ を示す。ゼロ磁場分裂 D_{gs} をいれると、異なる $S = 1$ 準位間の縮退が解除され、

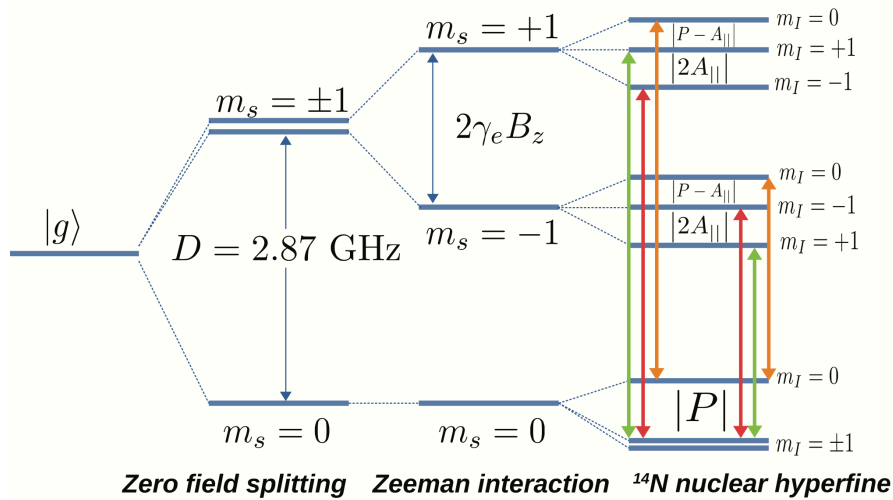


図 1: ゼロ磁場分裂、ゼーマン分裂、 ^{14}N 核超微細相互作用を示す、(1) のハミルトニアンに基づく基底状態エネルギー準位。異なる色の矢印は、異なる核スピン配向 $m_I = 1$ (赤)、 $m_I = 0$ (オレンジ)、 $m_I = -1$ (緑) に対する許容電子スピン遷移を表す [2]。

$m_S = \pm 1$ の準位が $m_S = 0$ の準位より $D_{\text{gs}} = 2.87 \text{ GHz}$ 上昇する。次に、 $\gamma_e \mathbf{B}_0 \cdot \mathbf{S}$ で与えられる電子のゼーマン相互作用を入れる。 \mathbf{B}_0 が z 軸に平行に印加されると仮定すると、ゼーマン相互作用によって $m_S = +1$ 準位は $m_S = -1$ 準位より $2\gamma_e B_z$ だけ高くなる。最後に、 ^{14}N の核スピンをいれる。四重極成分 P より、異なる $I = 1$ の核スピン準位間の縮退を解き (式 (2) 参照) $m_I = 0$ の準位を $m_I = \pm 1$ の準位より 5.01 MHz 高くする。電子スピンと核スピン間の超微細相互作用は、電子スピン $m_S = \pm 1$ に対して $m_I = +1$ と $m_I = -1$ をさらに $|2A_{\parallel}|$ 分裂する (式 (3) 参照)。式 (3) の $\gamma_n \mathbf{B}_0 \cdot \mathbf{I}$ で定義される核スピンゼーマン相互作用は、実験では小さすぎて観測できないため、この模式図には含まれていない。

2.3 光学遷移とスピンの初期化・読み出し

NV 中心の光学遷移の特徴を説明した後、それを用いてスピンの初期化と読み出しの方法を解説する。図 2 に励起状態も含めたエネルギー準位を示す。 $S = 1$ をもつ NV 中心のスピン状態は光学励起前後で保存する。

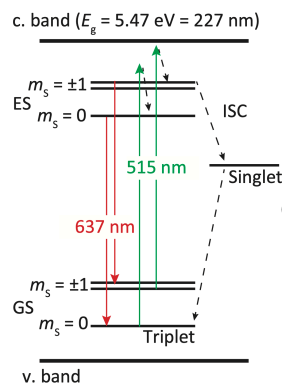


図 2: NV 中心のエネルギー準位と遷移経路。実線は光学遷移を示し、破線は非輻射の遷移を示す。c. band: 伝導体、v. band: 価電子帯、ES: 励起状態、GS: 基底状態、ISC: 項間交差。縦軸はスピン状態と光学遷移を併記するために正確でないことに注意。[1]

基底状態において、緑色（およそ 520 nm）の光子を吸収すると励起する。この直接遷移確率はスピン状態に依存しない。励起状態から基底状態へ緩和する経路は 2 つある。1 つ目の経路は、赤色の発光を伴う直接遷移である。この直接遷移もスピン状態を保存し、スピン状態に依存しない遷移確率で起こる。この直接遷移による赤色発光を検出すれば NV 中心の位置を特定できる。2 つ目の経路は、スピン依存で起こる非輻射の間接遷移である。この遷移では、励起状態三重項から一重項へ緩和し、その後、一重項から基底状態三重項へ緩和する。三重項と一重項の間の遷移は、スピン軌道相互作用によって起こる非輻射遷移であり、項間交差（Intersystem crossing: ISC）と呼ばれる。NV 中心の場合は、励起状態三重項の $m_S = \pm 1$ 状態が一重項に遷移しやすく、一重項からは基底状態三重項の $m_S = 0$ 状態にのみ遷移する。この間接遷移のレートは直接遷移のレートよりも少ない（すなわち遅い）。なお、励起状態におけるスピン相互作用によって $m_S = 0$ 状態も項間交差によって間接遷移するが、 $m_S = \pm 1$ に比べて低確率である。

以上に解説した遷移経路に基づいてスピンの初期化と読み出しを説明する。まず初めに、 $m_S = 0$ 状態について述べる。励起状態の $m_S = 0$ 状態では、直接遷移と ISC のいずれでも基底状態の $m_S = 0$ 状態に遷移する。したがって、一度 $m_S = 0$ 状態となったら、緑色レーザーを照射し続けても $m_S = 0$ であり続ける。次に、 $m_S = \pm 1$ 状態について述べる。基底状態の $m_S = \pm 1$ 状態は緑色レーザーの照射で、励起状態の $m_S = \pm 1$ に遷移する。その後は、直接遷移により基底状態の $m_S = \pm 1$ 状態に移るか、ISC により基底状態の $m_S = 0$ 状態へ移る。以上より、緑色レーザーを当て続ければ、 $m_S = \pm 1$ の状態となる確率は減り、 $m_S = 0$ の状態となる確率は増えていく。このようにして NV 中心の初期化が行われる。また、非輻射経路の遷移レートの違いより、 $m_S = 0$ 間遷移よりも $m_S = \pm 1$ 間遷移の方が発光強度が小さい。これを用いて、発光強度の違いによりエネルギー準位を判定し、状態を測定する。

3 ラビ振動

磁場 \mathbf{B} 中のスピン $\frac{1}{2}$ の系を考える。系のハミルトニアン \mathcal{H} は

$$\mathcal{H} = \gamma \mathbf{B} \cdot \mathbf{S}$$

である。ここで、 γ は磁気回転比、 $\mathbf{S} = (S_x \ S_y \ S_z)$ 。

まず、 z 軸に平行な磁場 $\mathbf{B} = (0 \ 0 \ B_z)$ がかかっている場合を考える。ハミルトニアンは

$$\mathcal{H} = \gamma B_z S_z$$

となる。系の状態を $|\psi\rangle$ とすれば、シュレディンガー方程式は

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d}{dt} |\psi\rangle &= \mathcal{H} |\psi\rangle \\ &= \gamma B_z S_z |\psi\rangle. \end{aligned}$$

したがって、

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d}{dt} \langle +|\psi\rangle &= \gamma B_z \langle +|S_z|\psi\rangle = \frac{\hbar}{2} \gamma B_z \langle +|\psi\rangle \\ i\hbar \frac{d}{dt} \langle -|\psi\rangle &= \gamma B_z \langle -|S_z|\psi\rangle = -\frac{\hbar}{2} \gamma B_z \langle -|\psi\rangle. \end{aligned}$$

であり、 $\omega_z = \gamma B_z$ と置いて解けば、

$$\langle +|\psi\rangle = e^{-i\frac{\omega_z}{2}t} \cos \frac{a}{2}, \quad \langle -|\psi\rangle = e^{i\frac{\omega_z}{2}t} \sin \frac{a}{2} e^{ib}.$$

ただし、初期条件は $\langle +|\psi\rangle = \cos \frac{a}{2}$, $\langle -|\psi\rangle = \sin \frac{a}{2} e^{ib}$ とした。よって、シュレディンガー方程式の解は

$$|\psi\rangle = \langle +|\psi\rangle |+\rangle + \langle -|\psi\rangle |-\rangle$$

$$= e^{-i\frac{\omega_z}{2}t} \cos \frac{a}{2} |+\rangle + e^{i\frac{\omega_z}{2}t+ib} \sin \frac{a}{2} |-\rangle$$

である。z 方向のスピン期待値は

$$\begin{aligned} & \langle \psi | S_z | \psi \rangle \\ &= \left(e^{i\frac{\omega_z}{2}t} \cos \frac{a}{2} \langle + | + e^{-i\frac{\omega_z}{2}t-ib} \sin \frac{a}{2} \langle - | \right) \frac{\hbar}{2} (|+\rangle \langle + | - |-\rangle \langle - |) \left(e^{-i\frac{\omega_z}{2}t} \cos \frac{a}{2} |+\rangle + e^{i\frac{\omega_z}{2}t+ib} \sin \frac{a}{2} |-\rangle \right) \\ &= \frac{\hbar}{2} \left(\cos^2 \frac{a}{2} - \sin^2 \frac{a}{2} \right) = \frac{\hbar}{2} \cos a \end{aligned}$$

である。同様に、x 方向は

$$\begin{aligned} & \langle \psi | S_x | \psi \rangle \\ &= \left(e^{i\frac{\omega_z}{2}t} \cos \frac{a}{2} \langle + | + e^{-i\frac{\omega_z}{2}t-ib} \sin \frac{a}{2} \langle - | \right) \frac{\hbar}{2} (|+\rangle \langle - | + |-\rangle \langle + |) \left(e^{-i\frac{\omega_z}{2}t} \cos \frac{a}{2} |+\rangle + e^{i\frac{\omega_z}{2}t+ib} \sin \frac{a}{2} |-\rangle \right) \\ &= \frac{\hbar}{2} \left(e^{i\omega_z t+ib} \cos \frac{a}{2} \sin \frac{a}{2} + e^{-i\omega_z t-ib} \cos \frac{a}{2} \sin \frac{a}{2} \right) \\ &= \frac{\hbar}{2} \cos(\omega_z t + b) \sin a \end{aligned}$$

y 方向は

$$\begin{aligned} & \langle \psi | S_y | \psi \rangle \\ &= \frac{\hbar}{2} \sin(\omega_z t + b) \sin a. \end{aligned}$$

また、波動関数を

$$|\psi\rangle = e^{-i\frac{\omega_z}{2}t} \left(\cos \frac{a}{2} |+\rangle + e^{i\omega_z t+ib} \sin \frac{a}{2} |-\rangle \right)$$

と変形し

$$|\psi\rangle = \cos \frac{\theta}{2} |+\rangle + e^{i\phi} \sin \frac{\theta}{2} |-\rangle$$

には、 θ, ϕ を通常の 3 次元極座標と同じにとれば、 $|+\rangle$ をブロッホ球の上頂点、 $|-\rangle$ をブロッホ球の下頂点として対応させることができる。その様子を図 3 に示す。この時、ブロッホ球に対応させた状態ベクトルの各軸への射影ベクトルのノルムに $\frac{\hbar}{2}$ をかけたものはその方向のスピン期待値となる。

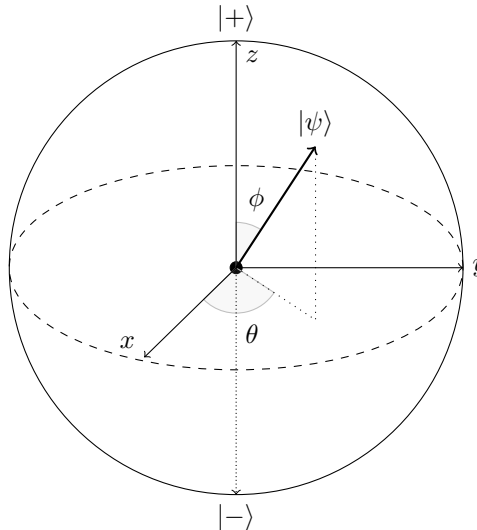


図 3: 状態ベクトルとブロッホ球の対応

今度は z 方向の静磁場に加えて xy 方向に反時計回りの円偏光磁場がかかっている系を考える。ハミルトニアンは

$$\mathcal{H} = \gamma (B_r \cos(\omega t) S_x + B_r \sin(\omega t) S_y + B_z S_z)。$$

系の状態を $|\psi\rangle$ とすれば、シュレディンガー方程式は

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d}{dt} |\psi\rangle &= \mathcal{H} |\psi\rangle \\ &= \gamma (B_r \cos(\omega t) S_x + B_r \sin(\omega t) S_y + B_z S_z) |\psi\rangle \\ &= \{\omega_r (\cos(\omega t) S_x + \sin(\omega t) S_y) + \omega_z S_z\} |\psi\rangle \end{aligned}$$

回転磁場に固定した回転系での波動関数 $|\psi'\rangle$ はユニタリ演算子 $U = \exp(-i\omega \frac{S_z}{\hbar} t)$ を用いて

$$|\psi\rangle = U |\psi'\rangle = \exp\left(-i\omega \frac{S_z}{\hbar} t\right) |\psi'\rangle$$

と表される。この回転系の軸は x', y', z' とする。これを導入すると、シュレディンガー方程式は

$$i \left(\frac{\partial U}{\partial t} |\psi'\rangle + U \frac{\partial}{\partial t} |\psi'\rangle \right) = \frac{\mathcal{H}}{\hbar} U |\psi'\rangle$$

すなわち

$$i \frac{\partial}{\partial t} |\psi'\rangle = \left(U^{-1} \frac{\mathcal{H}}{\hbar} U - i U^{-1} \frac{\partial U}{\partial t} \right) |\psi'\rangle \quad (4)$$

と得られる。 $\Theta = \omega t$ とすると、(4) の第1項は

$$U^{-1} \frac{\mathcal{H}}{\hbar} U = \frac{\omega_z}{\hbar} S_z + \frac{\omega_r}{\hbar} \left(\exp\left(i\Theta \frac{S_z}{\hbar}\right) S_x \exp\left(-i\Theta \frac{S_z}{\hbar}\right) \cos \Theta + \exp\left(i\Theta \frac{S_z}{\hbar}\right) S_y \exp\left(-i\Theta \frac{S_z}{\hbar}\right) \sin \Theta \right)$$

である。スピン演算子の交換関係

$$[S_x, S_y] = i\hbar S_z, [S_y, S_z] = i\hbar S_x, [S_z, S_x] = i\hbar S_y$$

より、

$$\left[\frac{S_z}{\hbar}, S_x \right] = i S_y, \left[\frac{S_z}{\hbar}, \left[\frac{S_z}{\hbar}, S_x \right] \right] = i \left[\frac{S_z}{\hbar}, S_y \right] = S_x$$

であることと、ベーカー・キャンベル・ハウスドルフの公式より、演算子 \hat{A}, \hat{B} に対して

$$e^{\hat{A}} \hat{B} e^{-\hat{A}} = \hat{B} + [\hat{A}, \hat{B}] + \frac{1}{2!} [\hat{A}, [\hat{A}, \hat{B}]] + \dots + \frac{1}{n!} [\hat{A}, [\hat{A}, \dots [\hat{A}, \hat{B}]]] + \dots$$

が成り立つことから、

$$\begin{aligned} \exp\left(i\Theta \frac{S_z}{\hbar}\right) S_x \exp\left(-i\Theta \frac{S_z}{\hbar}\right) &= S_x + i\Theta (i S_y) + \frac{(i\Theta)^2}{2!} S_x + \frac{(i\Theta)^3}{3!} i S_y + \dots \\ &= \left(1 - \frac{\Theta^2}{2!} + \dots\right) S_x - \left(\Theta - \frac{\Theta^3}{3!} + \dots\right) S_y \\ &= S_x \cos \Theta - S_y \sin \Theta. \end{aligned}$$

同様に

$$\exp\left(i\Theta \frac{S_z}{\hbar}\right) S_y \exp\left(-i\Theta \frac{S_z}{\hbar}\right) = S_y \cos \Theta + S_x \sin \Theta.$$

したがって

$$\begin{aligned} U^{-1} \frac{\mathcal{H}}{\hbar} U &= \frac{\omega_z}{\hbar} S_z + \frac{\omega_r}{\hbar} \left(\exp\left(i\Theta \frac{S_z}{\hbar}\right) S_x \exp\left(-i\Theta \frac{S_z}{\hbar}\right) \cos \Theta + \exp\left(i\Theta \frac{S_z}{\hbar}\right) S_y \exp\left(-i\Theta \frac{S_z}{\hbar}\right) \sin \Theta \right) \\ &= \frac{\omega_z}{\hbar} S_z + \frac{\omega_r}{\hbar} ((S_x \cos \Theta - S_y \sin \Theta) \cos \Theta + (S_y \cos \Theta + S_x \sin \Theta) \sin \Theta) \\ &= \omega_z \frac{S_z}{\hbar} + \omega_r \frac{S_x}{\hbar} \end{aligned}$$

となる。また

$$\begin{aligned} -iU^{-1}\frac{\partial U}{\partial t} &= -i\exp\left(-i\omega\frac{S_z}{\hbar}t\right)\left(-i\omega\frac{S_z}{\hbar}\right)\exp\left(i\omega\frac{S_z}{\hbar}t\right) \\ &= -\omega\frac{S_z}{\hbar}. \end{aligned}$$

したがって、(4)は

$$i\frac{\partial}{\partial t}|\psi'\rangle = \left\{\frac{\omega_z - \omega}{\hbar}S_z + \frac{\omega_r}{\hbar}S_x\right\}|\psi'\rangle \quad (5)$$

となる。 $\omega_z = \omega$ の時是最初の場合の方向を変えただけのものとなる。ここで、 z' 軸方向大きさ $\frac{\omega_z - \omega}{\gamma}$ の残留磁場と、回転座標系の x' 軸方向の回転磁場 $\frac{\omega_r}{\gamma}$ のなす角 $\alpha = \arctan\left(\frac{\omega_z - \omega}{\omega_r}\right)$ (ただし $0 \leq \alpha < \pi$)なる α をとる。回転磁場に固定した座標系をさらに、 y' 軸周りに反時計回りに α だけ回転させた系での波動関数 $|\psi''\rangle$ を考える。この座標系の軸を x'', y'', z'' とする。 $|\psi''\rangle$ はユニタリ演算子 $U' = \exp\left(i\alpha\frac{S_y}{\hbar}\right)$ を用いて

$$|\psi'\rangle = U'|\psi''\rangle = \exp\left(i\alpha\frac{S_y}{\hbar}\right)|\psi''\rangle$$

と書ける。すると、(5)は

$$\begin{aligned} i\frac{\partial}{\partial t}U'|\psi''\rangle &= \left\{(\omega_z - \omega)\frac{S_z}{\hbar} + \omega_r\frac{S_x}{\hbar}\right\}U'|\psi''\rangle \\ \therefore i\frac{\partial}{\partial t}|\psi''\rangle &= \left\{\frac{\omega_z - \omega}{\hbar}U'^{-1}S_zU' + \frac{\omega_r}{\hbar}U'^{-1}S_xU'\right\}|\psi''\rangle \end{aligned} \quad (6)$$

となる。前と同様にスピン演算子の交換関係とベーカー・キャンベル・ハウストドルフの公式より

$$\begin{aligned} \exp\left(-i\alpha\frac{S_y}{\hbar}\right)S_z\exp\left(i\alpha\frac{S_y}{\hbar}\right) &= S_z\cos\alpha + S_x\sin\alpha \\ \exp\left(-i\alpha\frac{S_y}{\hbar}\right)S_x\exp\left(i\alpha\frac{S_y}{\hbar}\right) &= S_x\cos\alpha - S_z\sin\alpha \end{aligned}$$

が得られる。これより(6)は

$$\begin{aligned} i\frac{\partial}{\partial t}|\psi''\rangle &= \left\{\frac{\omega_z - \omega}{\hbar}(S_z\cos\alpha + S_x\sin\alpha) + \frac{\omega_r}{\hbar}(S_x\cos\alpha - S_z\sin\alpha)\right\}|\psi''\rangle \\ &= \left[\frac{1}{\hbar}\{(\omega_z - \omega)\sin\alpha + \omega_r\cos\alpha\}S_x + \frac{1}{\hbar}\{(\omega_z - \omega)\cos\alpha - \omega_r\sin\alpha\}S_z\right]|\psi''\rangle \end{aligned}$$

ここで、 $\cos\alpha = \frac{\omega_r}{\sqrt{(\omega_z - \omega)^2 + \omega_r^2}}$, $\sin\alpha = \frac{\omega_z - \omega}{\sqrt{(\omega_z - \omega)^2 + \omega_r^2}}$ を代入し

$$= \frac{1}{\hbar}\sqrt{(\omega_z - \omega)^2 + \omega_r^2}S_x|\psi''\rangle$$

を得る。これは z 軸方向に静磁場がかかっているだけの系について、 $z \rightarrow x$ として定数倍しただけであるから、この方程式の解は x'' 軸の周りを歳差運動するものである。これは z 軸周りの回転座標系をさらに y' 軸周りに α だけ回転した座標系から見た解であるから、実験系では、 xy 平面に対して仰角 α 方向を軸に、その周りを歳差運動するものが、 z 軸の周りに回転しているのがこの系での解であると言える。

$\omega_z = \omega$ の場合は x' 軸の周りを歳差運動する解が得られる。この歳差運動はスピン準位間の周期的な遷移となり、ラビ振動と呼ばれる。この時の回転磁場に固定した座標系での解を求めると、次である。

$$|\psi'\rangle = \left(-C_1'e^{i\frac{\omega_r}{2}t} + C_2'e^{-i\frac{\omega_r}{2}t}\right)|+\rangle + \left(C_1'e^{i\frac{\omega_r}{2}t} + C_2'e^{-i\frac{\omega_r}{2}t}\right)|-\rangle$$

初期条件として $|\psi\rangle|_{t=0} = |+\rangle$ すなわち $|\psi'\rangle|_{t=0} = |+\rangle$ を課すと

$$|\psi'\rangle = \frac{1}{2}\left(e^{i\frac{\omega_r}{2}t} + e^{-i\frac{\omega_r}{2}t}\right)|+\rangle + \frac{1}{2}\left(-e^{i\frac{\omega_r}{2}t} + e^{-i\frac{\omega_r}{2}t}\right)|-\rangle$$

	CW ODMR	Pulsed ODMR	Ramsey	Hahn Echo	Dynamical Decoupling	Rabi	T1 Relaxometry
Laser							
Microwave							
Readout							
Bias Field							
Sample Field							
Swept Parameter	Microwave Frequency	Microwave Frequency	Free Precession Time, τ	Spin Evolution Time, τ	Spin Evolution Time, τ	Microwave Pulse Duration, Bias Field	Laser Pulse Delay, Bias Field

図 4: NV 中心に対する測定プロトコル。レーザーパルス、マイクロ波パルス、読み出しのタイミングと時間、検出されるフィールドとの関連性を示す模式図。測定で変化させるパラメーターは矢印で示されている。[4]。本記事では Hahn Echo、Dynamical Decoupling、T1 Relaxometry は扱っていない。

を得る。期待値を計算すると次である。

$$\begin{aligned}\langle S_x \rangle &= 0 \\ \langle S_y \rangle &= -\frac{\hbar}{2} \sin(\omega_r t) \\ \langle S_z \rangle &= \frac{\hbar}{2} \cos(\omega_r t)\end{aligned}$$

これより、 $\omega_z = \omega$ のとき、回転系からみたスピンの期待値は x 軸の周りを時計回りにまわる。

4 CW ODMR

NV 中心の発光強度は電子のスピン状態に依存するので、マイクロ波 (MW) を照射して電子スピン共鳴が起こると、その状態が発光強度として現れる。これを測定するのが光検出磁気共鳴 (ODMR) である。レーザーとマイクロ波を連続的に照射し、マイクロ波の周波数を変化させて ODMR 測定を行う時、これを連続波光検出磁気共鳴 (CW ODMR) と呼ぶ。

CW ODMR やその他の測定プロトコルを図 4 に示す。NV 中心にはレーザーパルスを照射し続けると、NV 中心は常に $m_S = 0$ 状態に初期化され続け、発光を読み出され続ける。そこに加えて、マイクロ波パルスを振動数を変えながら照射する。マイクロ波パルスとスピンの間に磁気共鳴が起こると $m_S = 0$ 状態から他のスピン状態に遷移するため発光強度が下がる。それはスペクトル上のディップ*1として観測される。ディップが磁気共鳴の信号であり、このディップ位置が共鳴周波数に対応する。ゼロ磁場では $m_S = \pm 1$ 状態のエネルギーが縮退しており、NV 中心の共鳴周波数 f_+, f_- がともにゼロ磁場分裂 D_{gs} に等しいため、単一のディップしか観測されない。一方、NV 軸に平行な磁場を印加するとディップが 2 つに分裂する。高周波数側を f_+ 、低周波数側を f_- とする。2 つのディップ間の距離は磁場に対応した大きさに分裂する。ここで、NV 軸と磁場が平行かどうか分かる。

*1 波形の最も沈み込んだ谷のこと

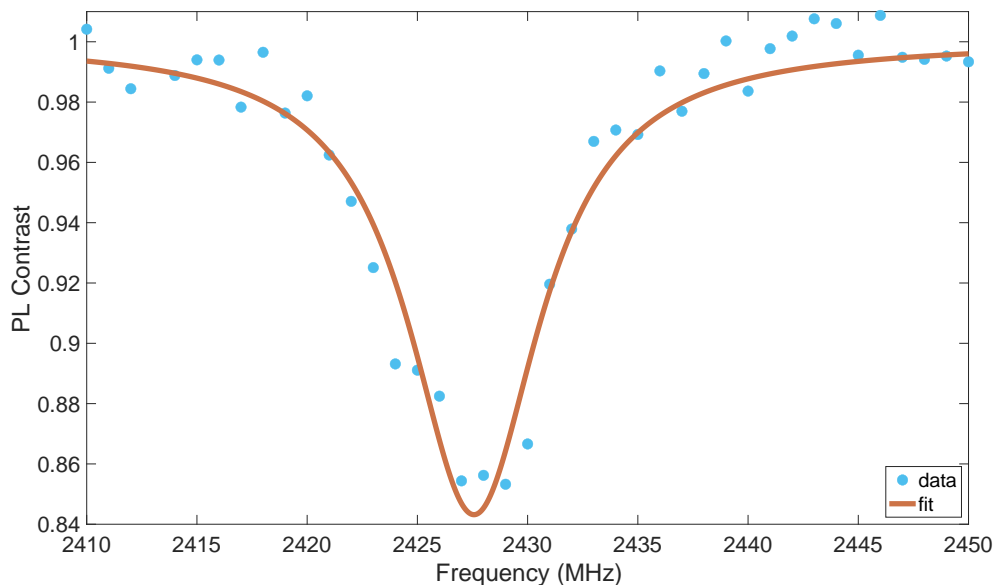


図 5: CW ODMR スペクトル。2 つに分裂したディップの周波数の低い方 (f_-)。縦軸 PL Contrast は発光強度。フォトルミネッセンス (PL) とは物質が光 (フォトン) を吸収した後、光を再放出する過程。

赤線はモデルを $f(x) = 1 - C_1 \frac{(\frac{D_{\nu 1}}{2})^2}{(x - f_1)^2 + (\frac{D_{\nu 1}}{2})^2}$ として MATLAB の curve fitting toolbox を用いてフィッティングしたグラフで、 $f_1 = 2428$ MHz であった。以下フィッティングには全て MATLAB の curve fitting toolbox を用いている。これより共鳴周波数は 2428 MHz。

5 NV 中心中のラビ振動

静磁場が NV 軸方向、時計回り円偏光マイクロ波が NV 軸に対して垂直な方向に印加された場合を考える。NV 中心は 3 準位系であるが、近似的に $m_S = 0, -1$ の 2 準位系と見なすことができる。そこで、NV 軸を z 軸にとり、低磁場ではゼロ磁場分裂より $m_S = 0$ より $m_S = -1$ の方がエネルギー準位が高いことに鑑みて、 $m_S = 0$ にラビ振動の節の $|-\rangle$ 、 $m_S = -1$ に $|+\rangle$ を割り当てることを考える。ひとまず、静磁場のみがかかっている場合を考える。 $|-\rangle$ をブロッホ球の上頂点に持ってくることにすれば、ラビ振動の節に対して上下が反転するので、歳差運動も反転して時計回りとなる。すなわち、NV 中心中の有効磁場は下向きである。次に、さらに時計回りの円偏光マイクロ波をかける状況を考える。ラビ振動周波数と CW ODMR で得た共鳴周波数が十分近ければ、回転座標系から見た状態ベクトルはブロッホ球上 x' 軸の周りを歳差運動する。今回はこれの z 軸に対する射影成分を測定する。

次に、具体的な測定方法について説明する。

まず、レーザーパルスを NV 中心に照射した後、1 μ s 程度 $m_S = 0$ 状態へ緩和するのを待つ。次に、CW ODMR で得た共鳴周波数のマイクロ波パルスを一定時間照射し、前述のようにスピンを操作する。その後再びレーザーパルスを照射して発光強度を測定する。これら一連の操作を繰り返し、マイクロ波パルスの照射時間に対する発光強度を測定する。

モデルを $f(x) = 1 - \frac{C}{2} + \frac{C}{2} \cos(2\pi f_R x)$ としてフィッティングを行った結果を図 6 に赤線で示した。フィッティングより $f_R = 1.541 \times 10^1$ MHz と求まった。

ラビ振動周波数を知れば重ね合わせ状態の生成や反転などの量子操作が可能となる。ここでは静磁場による歳差運動の周波数とマイクロ波パルス (3 では回転磁場) の周波数が一致する、すなわち $\omega_z = \omega$ となる場合を考える。このとき、マイクロ波に固定した回転座標系では、状態ベクトルは x 軸の周りを歳差運動するが、途中でマイクロ波パルスの印加をやめればその状態ベクトルは回転座標系に対して静止する。このことからわかる通り、マイクロ波パルスの印加時間を変化させることによって、状態ベクトルを操作することが可能なのであ

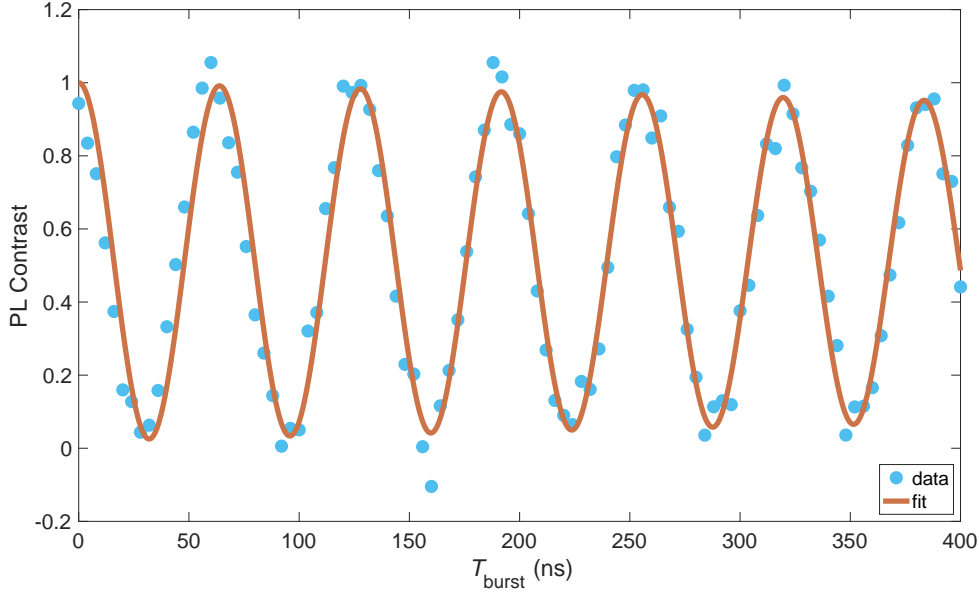


図 6: ラビ振動の測定結果。縦軸が $m_S = 0$ 状態の確率となるように規格化したもの。

る。例えば、ブロッホ球上で状態ベクトルが xy 平面上にくるように操作すれば、 $|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}|+\rangle + \frac{1}{\sqrt{2}}e^{i\phi}|-\rangle$ という重ね合わせ状態をつくることができる。スピンを 90° 回転させるパルスは $\pi/2$ パルス、 180° 回転させるパルスは π パルスと呼ばれている。

6 パルス ODMR

CW ODMR では、NV 中心にレーザーパルスを照射し続け、NV 中心は常に初期化と読み出しが行われていた。一方パルス ODMR (pODMR) では、レーザーパルスを照射して初期化を行った後レーザーパルスの照射をやめ、その後 π パルスをうち、さらにその後に読み出しを行う。pODMR は、ラビ振動で変化させたマイクロ波パルスの照射時間を π パルスで固定し、マイクロ波パルスの周波数を変化させる操作である。ただし、pODMR ではマイクロ波パルスの振幅を小さくするので、ラビ振動の測定で得た π パルスとは異なる π パルスをかける。

pODMR は CW ODMR よりも共鳴線幅の小さい、すなわち精度の良い共鳴周波数測定を行うことができる。その理由をラビ振動の節 (3) の回転座標系から見た時の残留磁場とマイクロ波のなす角 α を用いて説明する。マイクロ波パルスの振幅を小さくすると、マイクロ波パルスの周波数 ω と共鳴周波数 ω_z の差に対してマイクロ波パルスによって生じる歳差 ω_r が小さくなるので、 α は大きくなる。 α が大きくなり、回転座標系から見た歳差の軸が z 軸と近くなると、マイクロ波パルスを照射しても z 方向のスピンはあまり倒れなくなる。したがって、マイクロ波パルスの強度 $\frac{\omega_r}{\gamma}$ が小さいほど、マイクロ波周波数 ω とスピンの共鳴周波数 ω_z の差を小さくしなければ磁気共鳴が起こらなくなり、共鳴線幅は小さくなる。対して、マイクロ波パルスの振幅が大きい場合は、マイクロ波パルスの周波数 ω と共鳴周波数 ω_z の差が大きくなっても、 α は小さく、したがって、マイクロ波周波数 ω とスピンの共鳴周波数 ω_z の差が大きくなっても磁気共鳴がおこり、共鳴線幅は大きくなる。

実際に測定した結果を図 7 に示す。このように、CW ODMR では見ることができなかった、電子スピンと核スピンの超微細相互作用によって準位が分裂する様子が見える。モデルを $f(x) = 1 - C_1 \frac{(\frac{D_{V1}}{2})^2}{(x-f_1)^2 + (\frac{D_{V1}}{2})^2} - C_2 \frac{(\frac{D_{V2}}{2})^2}{(x-f_2)^2 + (\frac{D_{V2}}{2})^2} - C_3 \frac{(\frac{D_{V3}}{2})^2}{(x-f_3)^2 + (\frac{D_{V3}}{2})^2}$ とするフィッティングの結果より、ディップの差は 2MHz である。

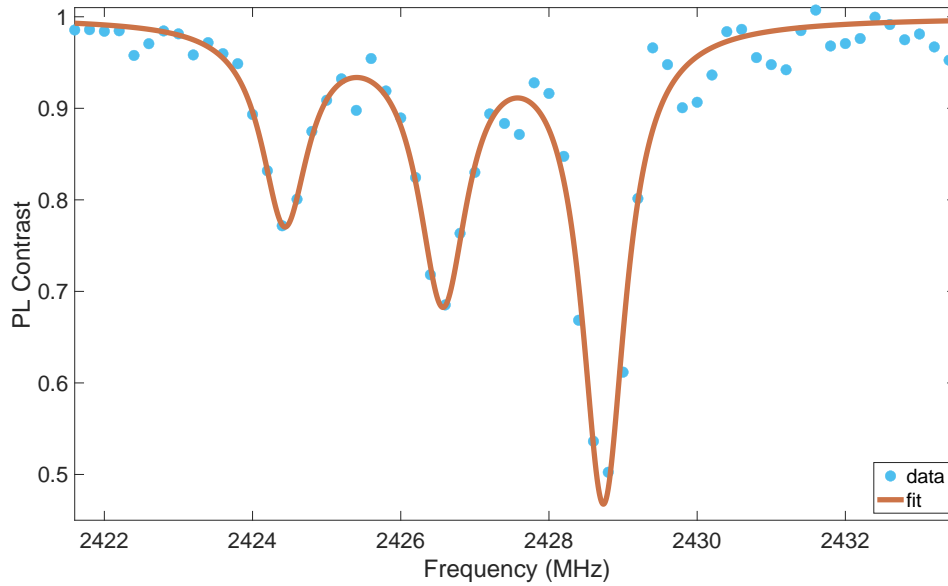


図 7: f_- まわりの pODMR スペクトル

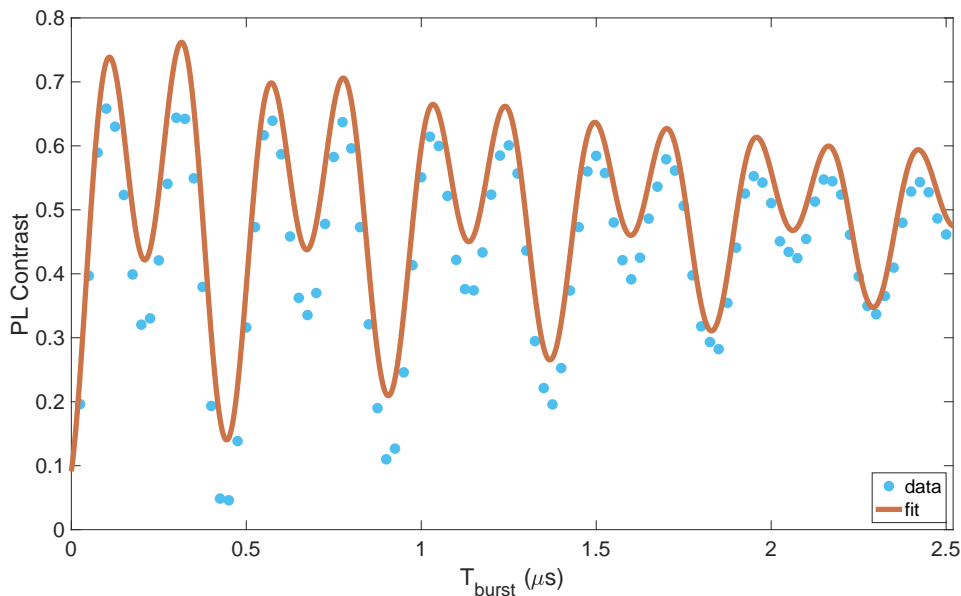


図 8: ラムゼー干渉。 $\pi/2$ パルス周波数を pODMR の左側のディップに合わせたもの

7 ラムゼー干渉

ラムゼー干渉では初期化して基底状態 $m_S = 0$ に対し、 $\pi/2$ パルスをかけ、その一定時間 τ 経過した後に再び $\pi/2$ パルスをかけてその状態の測定を行う。ここでは真のラビ振動周波数と実験で求めたラビ振動周波数の差に対して、マイクロ波パルスの振幅は十分大きいとする。 $|-\rangle$ に $\pi/2$ パルスをかけた後は状態ベクトル $|\psi\rangle$ は xy 平面上 z 軸周りを歳差運動する。マイクロ波の周波数は真のラビ振動周波数とはずれがあるが、真のラビ振動周波数との差分の歳差運動がマイクロ波に固定した座標系から見ると残る。この歳差運動により回転座標系の波動関数 $|\psi'\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+\rangle + e^{i\phi}|-\rangle)$ の位相 ϕ が増加するので、これは位相蓄積と呼ばれる。位相がいくらか蓄積したら、再び $\pi/2$ パルスをかける。 $\pi/2$ パルスをかけると、 $x'y'$ 方向に溜まっていた位相を z 軸方向の射影成分として得ることができる。

pODMR で得たディップの一番小さい周波数に合わせてラムゼー干渉を測定した結果が図 8 である。ここ

で、赤線は測定データを $f(x) = \frac{1}{2} - \frac{1}{2} \exp\left(-\frac{x}{T_2}\right) \{C_1 \cos(2\pi f_1 x + \phi_1) + C_2 \cos(2\pi f_2 x + \phi_2)\}$ でフィッティングしたものである。フィッティングでは、 $f_1 = 2.178 \text{ MHz}$, $f_2 = 4.325 \text{ MHz}$ を得た。理論的には、左側のディップと真ん中のディップの差分の歳差と、左側のディップと右側のディップの差分の歳差の重ね合わせが残るはずである。pODMR では共鳴周波数は順に 2424 MHz , 2427 MHz , 2429 MHz となっている。また、NV 中心の共鳴周波数は ^{14}N 核スピンと超微細相互作用強度 2.18 MHz で分裂することが知られている。これに対して結果は 2.178 MHz と 4.325 MHz の重ね合わせであったので、結果と整合する。

一方、真ん中のディップに周波数を合わせてラムゼー干渉測定を行った結果を図 9 に示す。赤線はモデル

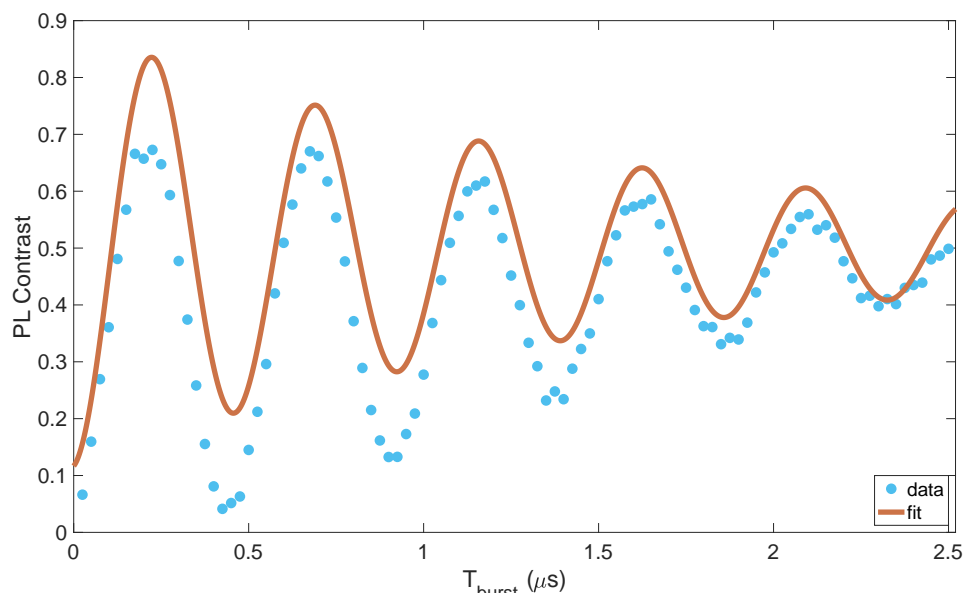


図 9: ラムゼー干渉。 $\pi/2$ パルス周波数を pODMR の真ん中のディップに合わせたもの

を $f(x) = \frac{1}{2} - \frac{1}{2} \exp\left(-\frac{x}{T_2}\right) C_1 \cos(2\pi f_1 x + \phi)$ としてフィッティングしたものである。フィッティングより $f_1 = 2.14(4) \text{ MHz}$ と求まる。これは、理論値 2.18 MHz と整合する。

8 実験装置

最後に実験に用いた試料や装置について概要を簡単に説明する。実験に用いたダイヤモンドの試料を図 10 に示す。ダイヤモンド中の単一 NV 中心を共焦点光学顕微鏡を用い、室温で光学的に観察した。レーザーパルスは対物レンズで試料に集光する。NV 中心の PL は同じ対物レンズで集められ、ピンホールに集光されて、アバランシェフォトダイオード (APD) で光子数を測定する。

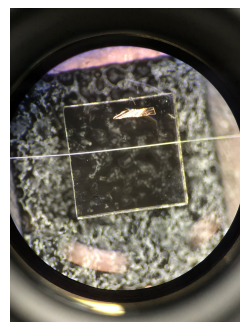


図 10: 実験で用いたダイヤモンドの試料を顕微鏡越しに撮影したもの

9 謝辞

本実験は小林研究室の皆様のご協力のもとに行われました。特に顧豪さんには実験準備からデータ処理に至るまでの実験全体にわたるご指導を賜りました。ご協力くださった全ての皆様に深く感謝を申し上げます。

参考文献

- [1] 佐々木健人. ダイヤモンド中空素-空孔中心のセンサー応用と物性計測 物性研究・電子版 10.1 (2022)

- [2] Yang Yang, Hyma H. Vallabhapurapu, Vikas K. Sewani, et al. (2022). Observing hyperfine interactions of NV^- centers in diamond in an advanced quantum teaching lab. *American Journal of Physics* 90(7), 550; doi:10.1119/5.0075519
- [3] 北岡良雄. 共鳴型磁気測定の基本と応用. 内田老鶴圃.
- [4] Edlyn V. Levine, Matthew J. Turner, Pauli Kehayias, Connor A. Hart, Nicholas Langellier, Raisa Trubko, ..., Ronald L. Walsworth. (2019). Principles and Techniques of the Quantum Diamond Microscope. *Nanophotonics*, 8(11), 1945-1973. doi:10.1515/nanoph-2019-0209