

УДК 541.6+544.1

## СОЗДАНИЕ ПЛОТНЫХ МАССИВОВ АЗОТ-ВАКАНСИОННЫХ ЦЕНТРОВ В СИНТЕТИЧЕСКИХ МОНОКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ АЛМАЗАХ ДЛЯ КВАНТОВЫХ СЕНСОРОВ

© 2022 г. С. А. Тарелкин<sup>1,\*</sup>, С. В. Большедворский<sup>2</sup>, С. Г. Буга<sup>1</sup>, Т. Е. Дроздова<sup>1</sup>, А. С. Галкин<sup>1</sup>, В. Г. Винс<sup>3</sup>, С. А. Носухин<sup>1</sup>, М. С. Кузнецов<sup>1</sup>, Д. Д. Приходько<sup>1</sup>, В. С. Щербакова<sup>1</sup>, Ж. Лиу<sup>4</sup>, Х. Куо<sup>4</sup>, М. Яо<sup>4</sup>

<sup>1</sup> Технологический институт сверхтвердых и новых углеродных материалов, Москва, Россия

<sup>2</sup> Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Москва, Россия

<sup>3</sup> ООО "ВЕЛМАН", Новосибирск, Россия

<sup>4</sup> Государственная ведущая лаборатория сверхтвердых материалов, Цзилинь университет, Чанчунь, Китай

\*E-mail: sergey.tarelkin@gmail.com

Поступила в редакцию 05.12.2021 г.

После доработки 20.12.2021 г.

Принята к публикации 07.01.2022 г.

Исследована динамика образования ансамблей центров окраски азот-вакансии (NV-центр) в монокристаллических алмазных пластинах после облучения высокоэнергетическими электронами (2 МэВ) и последующего отжига. Концентрация примеси азота определена по спектру поглощения в ИК-диапазоне и составила 90 и 4 м.д. для секторов роста алмаза {111} и {001} соответственно. Проведено исследование времен поперечной релаксации  $T_2^*$  для электронного спина NV-центров, которые составили около 200 нс для сектора {111} и 900 нс для сектора {001} и ограничены концентрацией примесных парамагнитных дефектов в алмазе. Проведена оценка чувствительности квантовых сенсоров на базе полученных ансамблей NV-центров, которая показала целесообразность использования более плотных ансамблей в задачах магнитометрии слабых полей.

DOI: 10.56304/S1992722322040264

### ВВЕДЕНИЕ

Отрицательно заряженный азот-вакансионный комплекс в алмазе (NV-центр) нашел широкое применение в сенсорных приложениях, таких как термометрия [1], детектирование магнитных и электрических полей [2]. Значительные результаты достигнуты и в специфических направлениях: магнитометрии высокого пространственного разрешения [2], магнито-резонансной томографии [3], обнаружении слабых магнитных полей [4].

В настоящее время актуальна задача формирования множества NV-центров в одной монокристаллической алмазной подложке для разработки квантовых устройств на их основе: упорядоченных матриц одиночных центров или плотных массивов с высокой чувствительностью к магнитному полю. Большинство исследований посвящены NV-центрам в алмазных пленках, выращенных методом осаждения из газовой фазы (CVD, Chemical Vapor Deposition), так как эта технология хорошо отработана, недорога и позволя-

ет выращивать химически и изотопно чистые кристаллы. В то же время из-за неравновесного процесса роста CVD-пленки характеризуются внутренними механическими напряжениями, что негативно влияет на когерентные свойства образующихся NV-центров, в частности вызывает неоднородное группирование центров в кристалле [5], кроме того, концентрация азота в монокристаллических алмазных пленках обычно не превышает  $10^{18} \text{ см}^{-3}$ , поскольку при большей концентрации структура CVD-алмазов становится сильно дефектной.

В данной работе продолжены исследования по формированию массивов NV-центров в монокристаллических пластинах азотсодержащих алмазов в виде одиночных атомов замещения (тип Ib), выращенных методом температурного градиента при высоком давлении и высокой температуре (TG-HPHT, Temperature gradient at high pressure high temperature), описанные ранее [5, 6].

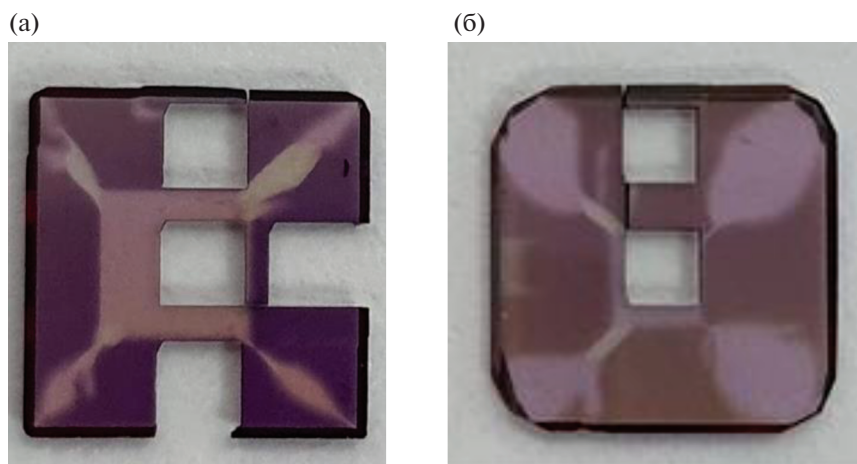


Рис. 1. Фотографии образцов N4 (а) и N5 (б).

## МЕТОДЫ

В работе использовали пластины из ростовых секторов  $\{001\}$  и  $\{111\}$  монокристалла алмаза с повышенной концентрацией азота  $0.5 \times 10^{18}$ – $2.0 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$  (3–100 ppm) в зависимости от сектора. Концентрации азота были определены по спектрам поглощения в ИК-диапазоне [7].

В отличие от CVD-кристаллов HPHT-монокристаллы алмаза высокого качества практически не содержат вакансий, поэтому для формирования NV-центров необходимо создать вакансии в объеме кристалла. Для этого в настоящей работе использовали линейный ускоритель электронов до энергии 2 МэВ (ООО "Велман", Новосибирск, Россия). Были выполнены облучение образцов электронами с энергией 2 МэВ и дозами  $1$ – $2 \times 10^{18} \text{ см}^{-2}$  и последующий отжиг в вакууме при температуре  $800^\circ\text{C}$ . Фотографии отожженных образцов представлены на рис. 1.

Концентрации образовавшихся в результате облучения и отжига NV-центров были определены на основании спектров поглощения в видимом диапазоне при температуре 77 К в соответствии с методикой и коэффициентами пересчета, описанными в [8, 9].

Повышение концентрации азота сделано для определения и достижения максимальной чувствительности массивов NV-центров к магнитному полю, которая определяется параметром качества чувствительности  $1/\eta$  [10] ( $\eta$  – чувствительность):

$$1/\eta \sim \frac{1}{\sqrt{N_{\text{NV}}T_2^*}}, \quad (1)$$

где  $N_{\text{NV}}$  – концентрация NV-центров,  $T_2^*$  – время поперечной релаксации электронного спина NV-центров.

Для измерения времени поперечной релаксации  $T_2^*$  электронного спина ансамбля NV-центров исследовали биения Рамси [11]. Для одной из выделенных ориентаций NV-центров прикладывалась последовательность  $\pi/2 - \tau - \pi/2$  между подуровнями с  $m_S = 0$  и 1.

Для анализа экспериментальных данных использовали следующую модельную функцию:

$$F(\tau) = e^{-\left(\frac{\tau}{T_2^*}\right)^2} \sum_{i=1}^3 C_i \cos(2\pi\Delta_i\tau + \varphi_i), \quad (2)$$

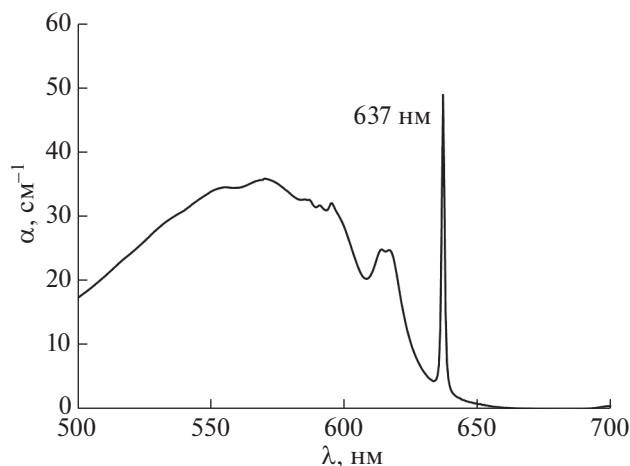
где  $T_2^*$  – время поперечной релаксации,  $C_i$  – амплитуды колебания,  $\Delta_i$  – частоты, на которых происходят колебания,  $\varphi_i$  – фаза колебаний сигнала свободной прецессии спина NV-центров, суммирование колебаний происходит по трем состояниям, обусловленным сверхтонким взаимодействием электронного спина NV-центра с ядерным спином азота.

## РЕЗУЛЬТАТЫ

Характерный спектр сектора  $\{111\}$  после облучения электронами  $2 \times 10^{18} \text{ см}^{-2}$  и отжига при температуре  $800^\circ\text{C}$  с узкой линией поглощения NV-центров на длине волны 637 нм приведен на рис. 2.

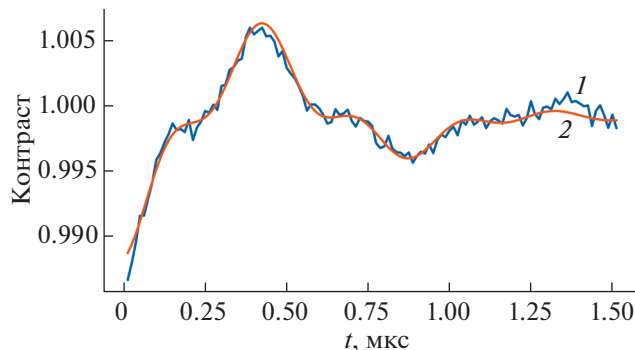
Пример измерений биений Рамси на образце N5, ростовой сектор  $\{001\}$  приведены на рис. 3.

Дозы облучения электронами, экспериментально установленные концентрации примесных атомов азота  $N_c$ , полученные концентрации NV-центров, процент конверсии азота в NV-центры, а также значения времени поперечной релаксации спина NV-центров и величины параметра качества чувствительности представлены в табл. 1.



**Рис. 2.** Спектр оптического поглощения сектора {111} после облучения электронами  $2 \times 10^{18} \text{ см}^{-2}$  и отжига при  $800^\circ\text{C}$ , полученный при  $77 \text{ K}$  ( $\alpha$  – коэффициент оптического поглощения,  $\lambda$  – длина волны излучения,  $E$  – соответствующая энергия оптического кванта).

Для сравнения в табл. 1 приведены аналогичные данные для образца N0 с меньшей дозой облучения из работы [6]. Ключевым параметром качества квантовых сенсоров является чувствительность  $\eta$ , т.е. чем больше параметр  $1/\eta$ , тем лучше можно сделать квантовый сенсор, в частности магнитометр на базе данного ансамбля NV-центров. Отметим, что наибольшее значение  $1/\eta$ , равное  $6.6 \times 10^5 \text{ с}^{1/2} \text{ см}^{3/2}$ , достигнуто в образце N4 в секторе {111} с наибольшей концентрацией NV-центров. При этом степень конверсии 15% почти в 3 раза меньше значения для сектора {100} в этом же образце. Следует ожидать, что путем повышения процента конверсии посредством увеличения дозы облучения возможно еще увеличить



**Рис. 3.** Биения Рамси электронного спина ансамбля NV-центров на образце N5, ростовой сектор {001}: 1 – экспериментальные данные, 2 – модельная функция.

значение  $1/\eta$ , если дальнейшее снижение величины  $T_2^*$  не окажется доминирующим.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Полученные результаты показывают, что повышение концентрации и дозы облучения ведет к увеличению чувствительности квантовых сенсоров на базе NV-центров окраски в алмазе. Измеренные времена когерентности для сектора {001} на уровне 800–900 нс ограничиваются наличием в решетке алмаза атомов углерода  $^{13}\text{C}$  с ядерным спином  $1/2$ . Для сектора {111}, в котором концентрация азота достигает 90 ppm, времена поперечной релаксации составляют  $\sim 190$ – $230$  нс и ограничены сравнительно высокой концентрацией парамагнитных центров (атомов азота в положениях замещения – C-центров). Для таких высоких концентраций азота в секторах роста {111} предел по проценту конверсии азота в NV-центры еще не достигнут, и целесообразно дальнейшее

**Таблица 1.** Результаты измерений

Образец	$e^-, \text{ см}^{-2}$	$N_C, \text{ см}^{-3}$		$N_{\text{NV}}, \text{ см}^{-3}$ $N_{\text{NV}}/N_C, \%$		$T_2^*, \text{ нс}$		$1/\eta, \text{ с}^{-0.5} \text{ см}^{1.5}$	
		{001}	{111}	{001}	{111}	{001}	{111}	{001}	{111}
N4	$2 \times 10^{18}$	$7 \times 10^{17}$	$1.5 \times 10^{19}$	$3 \times 10^{17}$ (42%)	$2.3 \times 10^{18}$ (15%)	830	192	$4.9 \times 10^5$	$6.6 \times 10^5$
N5	$1 \times 10^{18}$	$7 \times 10^{17}$	$1.5 \times 10^{19}$	$2 \times 10^{17}$ (28%)	$1.2 \times 10^{18}$ (12%)	900	230	$4.2 \times 10^5$	$5.3 \times 10^5$
N0 [6]	$0.1 \times 10^{18}$	$7 \times 10^{17}$	$1.5 \times 10^{19}$		$0.5 \times 10^{16}$ (0.03%)		880		$6.6 \times 10^4$

Примечание.  $e^-$  – доза облучения электронами,  $N_C$  – концентрация примесных атомов азота,  $N_{\text{NV}}$ ,  $N_{\text{NV}}/N_C$  – концентрация NV-центров и соответствующий процент конверсии атомов азота в NV-центры,  $T_2^*$  – время поперечной релаксации спина NV-центров,  $1/\eta$  – параметр качества чувствительности для ростовых секторов {001} и {111} в исследуемых образцах.

увеличение дозы облучения для улучшения чувствительности к магнитному полю.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 20-52-53051) с использованием оборудования ЦКП ФГУП “Всероссийский научно-исследовательский институт оптико-физических измерений” ([www.ckr.vniiofi.ru](http://www.ckr.vniiofi.ru)) и ЦКП “Технологический институт сверхтвёрдых и новых углеродных материалов” (<http://tisnum.ru/suec>).

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Kucsko G., Maurer P.C., Yao N.Y. et al.* // Nature. 2013. V. 500. P. 54.  
<https://doi.org/10.1038/nature12373>
2. *Steinert S., Ziem F., Hall L. et al.* // Nat. Commun. 2013. V. 4. P. 1607.  
<https://doi.org/10.1038/ncomms2588>
3. *Acosta V.M., Budker D., Hemmer P.R. et al.* // Optical Magnetometry / Eds. Budker D., Kimball D.F.J. Cambridge: Cambridge University Press, 2013. P. 142.
4. *Fang K., Acosta V.M., Santori C. et al.* // Phys. Rev. Lett. 2013. V. 110. P. 130802.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.110.130802>
5. *Trofimov S.D., Tarelkin S.A., Bolshedvorskii S.V. et al.* // Opt. Mater. Express. 2020. V. 10. P. 198.  
<https://doi.org/10.1364/OME.10.000198>
6. *Troschiev S.Y., Trofimov S.D., Luparev N.V. et al.* // ChemChemTech [Izv. Vyssh. Uchebn. Zaved. Khim. Khim. Tekhnol.] 2020. V. 63. № 12. P. 16.  
<https://doi.org/10.6060/ivkkt.20206312.12y>
7. *Sumiya H., Satoh S.* // Diam. Relat. Mater. 1996. V. 5. P. 1359.  
[https://doi.org/10.1016/S0022-0248\(96\)00797-X](https://doi.org/10.1016/S0022-0248(96)00797-X)
8. *Davies G., Lawson S.C., Collins A.T. et al.* // Phys. Rev. B. 1992. V. 46. P. 13157.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.46.13157>
9. *Lawson S.C., Fisher D., Hunt D.C., Newton M.E.* // J. Condens. Matter. Phys. 1998. V. 10. P. 6171.  
<https://doi.org/10.1088/0953-8984/10/27/016>
10. *Acosta V.M., Bauch E., Ledbetter M.P. et al.* // Phys. Rev. B. 2009. V. 80. P. 115202.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.80.115202>
11. *Rubinas O.R., Vorobyov V.V., Soshenko V.V. et al.* // J. Phys. Commun. 2018. V. 2 P. 115003.  
<https://doi.org/10.1088/2399-6528/aae992>