

基于金刚石 NV 色心系综可调谐毫米波受激辐射 *

王陈 和穗荣 李玉芬 冯夏宁[†] 韦联福[†]

(西南交通大学信息科学与技术学院, 信息量子技术实验室, 成都 610031)

摘要: 高品质毫米波光源的匮乏是制约毫米波相干技术发展的重要瓶颈之一, 而在室温条件下实现高效、稳定的毫米波受激辐射, 已成为该技术领域亟待攻克的关键挑战。针对这一难题, 本文提出一种基于强磁场调控氮空位 (NV) 色心基态零场分裂的室温毫米波受激辐射实现方案。具体而言, 我们选取轴向强人造磁场 (约 2 T) 作用下基态三重态能级发生塞曼分裂的 NV 色心作为毫米波激射的自旋介质——其优异的长自旋相干时间特性与可实现的光学初始化能力, 使得通过 532 nm 激光泵浦即可达成塞曼能级的布居数反转。借助高品质因子 ($Q \approx 5 \times 10^4$) 谐振腔构建的自旋 - 光子集体耦合模型, 本研究证实该方案的泵浦阈值可低至约 270 s^{-1} ; 在理想条件下, 可输出功率达微瓦级的毫米波相干辐射, 从而有望在室温条件下, 为 6G 无线通信、深空探测等领域提供高品质毫米波相干光源。

关键词: 毫米波, NV 色心, 受激辐射

PACS: 42.50.Pq, 76.30.Mi, 42.79.-e, 77.84.Nh

1 引言

早期的微波激射器 (maser) 概念^[1], 为当今蓬勃发展的激光 (Laser) 及其应用技术发挥了奠基性的作用^[2]。这是因为, 利用室温条件下的原子、分子和半导体系统中的粒子数反转, 可在室温条件下实现光学频段的受激辐射放大, 从而获得相干性很好的激光光源。近年来, 基于超导约瑟夫森结的高品质低温微波激光器研究^[3], 重新受到学术界的广泛关注^[4]。确实, 利用约瑟夫森效应可在电压偏置的约瑟夫森结阵

同等贡献作者.

[†] 通信作者. E-mail: lfwei@swjtu.edu.cn fengxn5@switch.edu.cn (通信作者)

第一作者. E-mail: jcd11238@163.com (第一作者)

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2021YFA0718803)、国家自然科学基金 (批准号: 12575030).

列器件，是可以获得类似激光的微波相干辐射，其频率甚至可以接近 THz 频段^[5-9]。但是，这些微波相干辐射仍然需要工作在低温条件。因此，在 6G 通信、深空探测和量子传感等领域^[10]中极具应用前景、频率在 30 – 300 GHz 的毫米波信号源，仍主要由耿氏二极管^[11]、边带 THz 量子级联激光器^[12]和采用频率合成技术^[13]等方式获得，这些方式不仅有效输出功率低而且相干性也还难以保障。

近年来，室温人造微波系统的成功构建，为室温工作的微波受激辐射放大研究带来了颠覆性的技术突破。2012 年 Oxborrow 等人利用掺杂于三联苯晶体中的并五苯分子的光激发，首次在室温下实现了中心频率为 1.45 GHz、带宽为 10 MHz 的厘米波受激辐射放大输出^[14,15]。特别是，近年来金刚石氮空位色心系统量子调控技术的发展，为实现全固态室温微波激光提供新的途径。这是因为，NV 色心在室温下展现出自旋三重态的长自旋相干时间 ($T_2^* \approx 0.5 \mu\text{s}$) 和可调控的塞曼能级结构，例如其基态 $|0\rangle$ 与 $|\pm 1\rangle$ 能级间距可通过磁场精确调控至厘米波波段。因而，文献^[16]首次提出了利用金刚石氮空位色心系统的集体自旋共振激发，实现中心频率为 3 GHz 微波激射的可行方案；随后，文献^[17]首次在 429 mT 磁场中，实现了中心频率在 9.2 GHz 附近、功率为 -90 dBm 左右的连续微波激光辐射。随后，文献^[18]实验上实现了基于金刚石氮空位色心系统量子调控的脉冲微波受激辐射。这意味着，通过进一步加大磁场强度，实现毫米波频段的室温受激辐射，是有可能的。受此启发，本文论证了如下方案：通过将磁场强度提升至数个特斯拉量级（该磁场强度在现有实验技术中已可普遍实现），利用 532 nm 激光泵浦金刚石氮空位色心系统，基于强磁场下的大塞曼分裂能级，在室温下实现粒子数反转与毫米波频段的受激辐射放大，为毫米波频段高品质相干光源的制备提供一种可实验验证的全新方案。

本文结构安排如下：在第二节中，具体分析了特斯拉级（例如 2 T）强磁场中，金刚石氮空位色心自旋三重态的零场分裂能级的塞曼分裂调控机制，讨论了利用 532 nm 激光选择性泵浦，在 $|0\rangle$ 态上获得布居数反转的可行性。第三节将具体论证在高品质因子（例如， $Q \approx 5 \times 10^4$ ）蓝宝石谐振腔中，利用 532 nm 激光泵浦、实现自旋系统和光子的集体耦合，从而给出在 $|0\rangle$ 态上实现粒子数反转的泵浦阈值条件 $w_{th} \approx 270 \text{ s}^{-1}$ ，及毫米波激光输出功率 ($> 10^{-6} \text{ W}$) 和线宽第四节为本文的结论，并对所提出的室温毫米波激光器的实验可行性进行了讨论。

2 本征频率可调的毫米波工作物质：NV 色心的自旋态可控塞曼分裂

金刚石中的氮-空位 (Nitrogen-Vacancy, NV) 色心由一个替位氮杂质与相邻晶格空位构成。其中，带负电的 NV^- 色心，可从周围环境捕获一个额外电子。氮原子最外层有一个未配对电子与其邻近的空位捕

获的一个电子，这两个电子通过耦合形成总自旋量子数 $S=1$ 的双电子体系^[19]；即使在零外场下，也可以通过自旋交换耦合，形成能量简并的自旋三重态 $|m_s = 0, \pm 1\rangle$ ，这就是 NV^- 色心的零场“三重态”。图1给出了零场情况下， NV^- 色心系统的能级结构及已经得到实验证实的各种跃迁构型^[20]。它表示，在 532 nm 激光的泵浦下， NV^- 色心的零场分裂基态 3A_2 : $|m_s = 0\rangle$ 和 $|m_s = \pm 1\rangle$ ，可被分别泵浦到第一激发态 3E 的 $|0\rangle$ 和 $|\pm 1\rangle$ 态上。

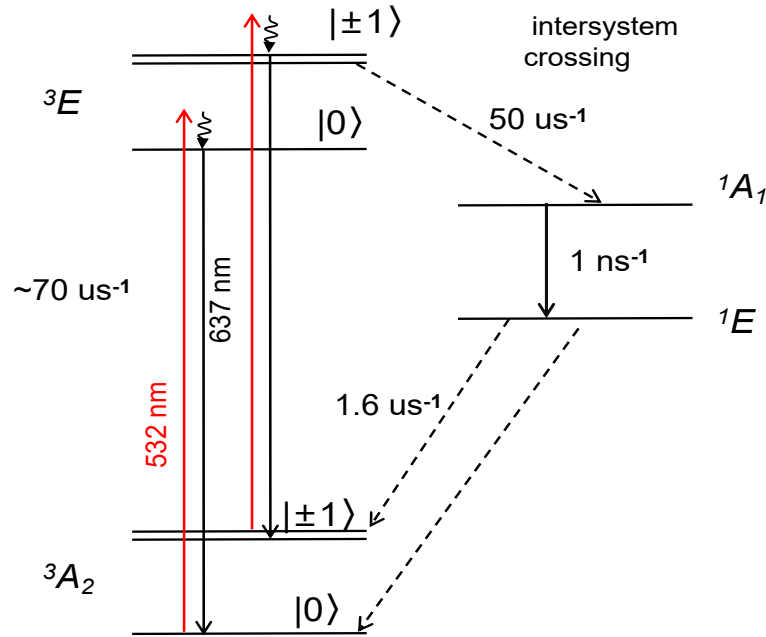


图 1 NV^- 色心能级泵浦过程示意图；红色箭头线条表示 532 nm 激光激发基态，黑色实线箭头线条表示激发态辐射跃迁返回基态（光子发射速率为 $70\mu s^{-1}$ ），黑色虚线表示非辐射跃迁。

Fig. 1. Schematic diagram of the NV^- center level pumping process; the red solid arrow indicates excitation of the ground state by a 532 nm laser, the solid black arrow represents radiative transition from the excited state back to the ground state (with a photon emission rate of $70\mu s^{-1}$), and the dashed black arrow denotes nonradiative transitions.

零场分裂的能级结构难以利用于实现受激辐射放大的主要原因是，其零场分裂基态能级之间难以实现布居数反转。如图1所示，尽管可以利用 532 nm 激光可以将三重态基态中的两个本征频率为 2.8GHz 左右的基态 (3A_2) 同时分别泵浦到第一激发中的三重态中对应的激发态 3E ；处于 3E 激发态的电子，多数都通过自发辐射跃迁返回到它们对应的基态；通过直接发射波长约 637 nm 的零声子线光返回到基态 3A_2 的同一自旋子能级上，是一种保持自旋守恒的自发辐射^[21]；但是，仍然有约 40% 的电子可通过非辐射弛豫过程（如 NV^- 色心系统间交叉转移途径）弛豫回基态 3A_2 ^[22,23]。在这一非辐射过程中，激发态电子先

由激发态 3E 转移至单重态 1A_1 ，再由单重态迅速衰变到亚稳态 1E ，最终再弛豫回基态 3A_2 [24]。室温下亚稳态单态 1E 会以大致相同的速率分别返回三重态基态的不同子能级，亚稳态单态 1E 分别回到三重态基态子能级 $m_s = 0$ 和 $m_s = \pm 1$ 速率之比为 1.2 倍。在低温情况 (10 k) 由亚稳态单态 1E 回到三重态基态子能级 $m_s = 0$ 和 $m_s = \pm 1$ 速率之比则可增强大约四到六倍 [25,26]。所以，利用这样连续泵浦的过程，使得 NV^- 缺陷的三重态基态中 $|0\rangle$ 的布居数明显高于 $|\pm 1\rangle$ 态，所以无法实现零场分裂三重态基态之间的粒子数反转。

要在金刚石色心系统中获得受激辐射，就需要实现粒子数反转，即高能级布居数要高于低能级的布居数。由于外磁场基本不改变零场下各能级间的跃迁概率，因此可通过施加外磁场，使对应能级通过塞曼效应发生分裂，进而在选定能级间实现粒子数反转。确实，在磁场偏置下， NV 色心基态的自旋哈密顿量可一般性地表示为 [27] ($\hbar = 1$): $\hat{H} = \hat{H}_{ZF} + \hat{H}_B + \hat{H}_{HF}$ ，其中，

$$\begin{cases} H_{ZF} = DS_z^2 + E(S_x^2 - S_y^2), \\ H_B = \gamma_e B_{NV} \cdot S, \\ H_{HF} = S \cdot \bar{A} \cdot I, \end{cases} \quad (1)$$

分别描述零场哈密顿量，施加外磁场 B_{NV} 时的塞曼项，以及与核自旋耦合所导致的超精细结构分裂项， $S = (S_x, S_y, S_z)$ 是 NV 色心的自旋矢量。式中， $D = 3D_Z/2$ 是决定 $m_s = 0$ 与 $m_s = \pm 1$ 能级基础分裂的零场常数， $E = (D_X - D_Y)/2$ 为应变诱导分裂常数。理想状态下，即当 $E = 0$ 时， NV 色心体系因具有完美的三角对称性，零场分裂张量的 X、Y 方向分量相等，即： $D_X = D_Y$ 。但实际上，由于金刚石样品在制备过程中的工艺偏差、外部应力作用，或是局部电场的干扰等，都会导致晶格产生畸变， NV 色心的正三角对称结构会被打破，从而 D_X 与 D_Y 不再相等使得 E 不再为零。当然，对不同样品的 D 参数，这个非零的 E 导致非对称的零场能级分裂会有所不同。一般情况下，我们取其平均值： $D/2\pi = 2.878$ GHz，来描述 NV 色心的零场分裂能级差。此外，在塞曼分裂项中， $\gamma_e = g_e \mu_B / \hbar = 2\pi \times 2.8$ MHz/Gs 是 NV 中心电子自旋的旋磁比； $g_e = 2$ ，是 NV 中心的朗德因子 (Landé factor)； μ_B 为玻尔磁子 (Bohr magneton)。超精细相互作用项来自于电子自旋与核自旋之间的相互作用， \hat{I} 是氮核自旋的无量纲算符，而 $\bar{A} = \text{diag}(A_{\perp}, A_{\perp}, A_{\parallel})$ \bar{A} 则是超精细相互作用张量。其中， $A_{\perp}/2\pi = 2.7$ MHz， $A_{\parallel}/2\pi = 2.14$ MHz 分别是垂直和平行于 NV 轴方向的耦合强度。可见，外加磁场对氮空位 (NV) 色心零场三重态 (3A_2) 的能级分裂，具有明显的调控作用，并与所加磁场的方向有关 [28]。

特别是，如图2 (b) 所示，如果磁场是沿 NV 轴的轴向 ($\{111\}$ 晶向) 施加的，那么在忽略垂直于该轴

线磁场影响的情况下，就会导致零场简并能级 $m_s = \pm 1$ 发生分裂，而其子能级 $m_s = 0$ 保持不变。例如，

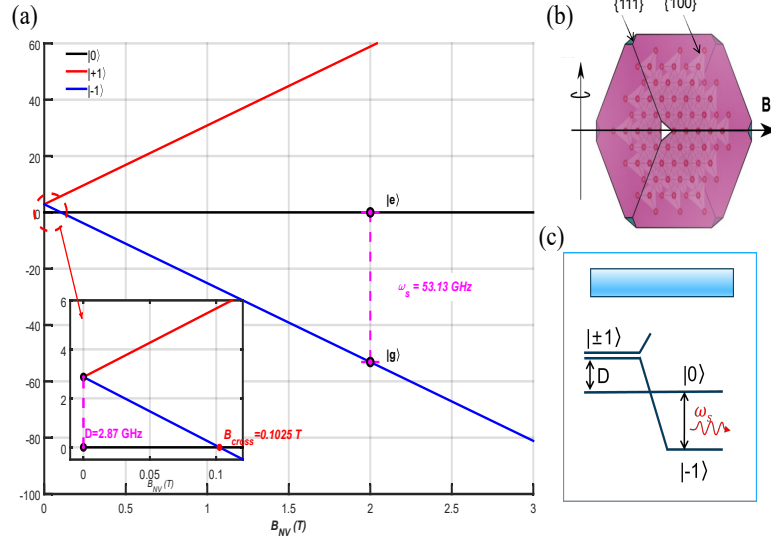


图 2 磁场对 NV 色心基态能级分裂的影响；(a) 基态能级分裂程度随磁场线性变化，强磁场产生塞曼分裂使得 $|-1\rangle$ 能级低于 $|0\rangle$ 能级，它们分别被编码为两能级原子的激发态 $|e\rangle$ 和基态 $|g\rangle$ 。图中小图展示较低磁场 (0-0.2 T) 情况下的基态能级分裂情况。(b) 金刚石色心晶向示意图，静磁场 B 施加方向为 111 晶向^[17]。(c) 塞曼分裂下的金刚石色心结构图，基态之外的能级简化为蓝色矩形。

Fig. 2. Effect of magnetic field on the ground-state level splitting of the NV center; (a) The ground-state level splitting varies linearly with the magnetic field. A strong magnetic field induces Zeeman splitting, lowering the $|-1\rangle$ level below the $|0\rangle$ level, which are encoded as the excited state $|e\rangle$ and ground state $|g\rangle$ of a two-level atom, respectively. The inset shows the ground-state level splitting at low magnetic fields (0–0.2 T). (b) Schematic of the diamond color center crystallographic orientation, where the static magnetic field B is applied along the $\{111\}$ crystallographic direction^[17]. (c) Simplified structure of the diamond color center under Zeeman splitting, with energy levels beyond the ground state represented as blue rectangles.

在施加 (>102.5 mT) 的轴向强磁场时， $m_s = \pm 1$ 能级间的塞曼分裂可超过 2.8 GHz，远大于应变诱导的精细结构分裂 ($1\sim 5$ MHz^[29]) 和核自旋耦合的能级精细结构分裂 ($2\sim 3$ MHz^[30])，因此零场分裂哈密顿量 H_{ZF} 中的应变项及超精细哈密顿量 H_{HF} 均可忽略。当磁场严格沿 NV 轴施加时，体系哈密顿量可简化为：

$$H = DS_z^2 + \gamma_e B_{NV} S_z. \quad (2)$$

从其三个本征值 $\lambda_0 = 0$ 和 $\lambda_{\pm} = D \pm \gamma_e B_{NV}$, 可以看到对应于无外场时的 $|m_s = 0\rangle$ 态, $|m_s = \pm 1\rangle$ 的能级不再是简并的, 由于塞曼效应所导致的能级分裂间隔大小与所加磁场强度呈线性关系, 从而易于通过改变所加磁场的强度来实现精准调控; $m_s = +1$ 态的能级随磁场增大而升高, 而 $m_s = -1$ 态的能级则随磁场增大而降低。

不过, 当 $B_{NV} = 102.5$ mT 时, 便会发生 $|m_s = 0\rangle$ 和 $|m_s = -1\rangle$ 态的能级简并。所以, 只要所施加的磁场 $B_{NV} > D/\gamma_e = 0.1025$ T, 那么就可以利用图1所示的 1E 能级无辐射跃迁到 $|m_s = 0\rangle$ 态比它无辐射跃迁到 $|m_s = -1\rangle$ 更快这一特性, 来实现 $|m_s = 0\rangle$ 和 $|m_s = -1\rangle$ 态的布居数反转, 实现它们之间跃迁的受激辐射放大。更重要的是, 这个受激辐射放大信号的频率 $\nu = B_{NV}\gamma_e - D$, 可以通过增强所施加轴向磁场 B_{NV} 的强度来提高。比如, 当 $B_{NV} > 1.18$ T 时, 能级 $|m_s = 0\rangle$ 和 $|m_s = -1\rangle$ 之间受激辐射频率就可以被提升到毫米波频段, 从而可应用于实现毫米波受激辐射放大, 获得毫米波频段的相干激光。

根据本实验室所具备的强超导磁体实验条件, 本文拟不失一般性地讨论, 如何利用强超导磁体所提供的 2 T 人造强磁场所导致的金刚石色心零场基态塞曼分裂来实现频率为 $\omega_s = 53.13$ GHz 的毫米波受激辐射放大。

3 基于强磁场中 NV 色心系综实现毫米波受激辐射放大的原理和方法

我们设计了如图3所示的毫米波受激辐射放大实验系统。图中, 毫米波增益介质为透明立方体所表示的金刚石 NV 色心系综, 它被放置于高品质因数 (高 Q 值) 圆柱形谐振腔内, 与其某个特定谐振模式的毫米波频段驻波模式共振耦合; 532 nm 泵浦激光 (绿色箭头表示) 经光路校准后, 通过圆柱形谐振腔透明窗口, 照射在含 NV 色心的金刚石样品上, 用于将 NV 色心从基态 3A_2 激发第一激发态 3E ; 整个圆柱形谐振腔置于超导磁体提供的 2 T 均匀强磁场中。所获得的受激辐射放大毫米波磁场信号通过耦合环与低损耗环行器相连, 环行器的一个端口接矢量网络分析仪的输出端, 另一端口经低噪声微波放大器接至矢量网络分析仪或频谱分析仪的输入端。可通过矢量网络分析仪 (VNA) 以反射法对系统进行探测, 或通过频谱分析仪 (SA) 完成噪声测量。这类非光学信号的读出技术, 已在室温厘米波波段的微波激射 (maser)^[17]、狄拉克超辐射 (Dicke superradiance)^[31,32]、及各种金刚石 NV 色心量子传感等前沿研究领域得到了广泛的应用^[33], 并为利用毫米波频段矢量网络分析仪 (VNA) 或频谱分析仪 (SA) 实现腔体共振频率、毫米波辐射功率及频谱特性的表征, 提供了现实可能。

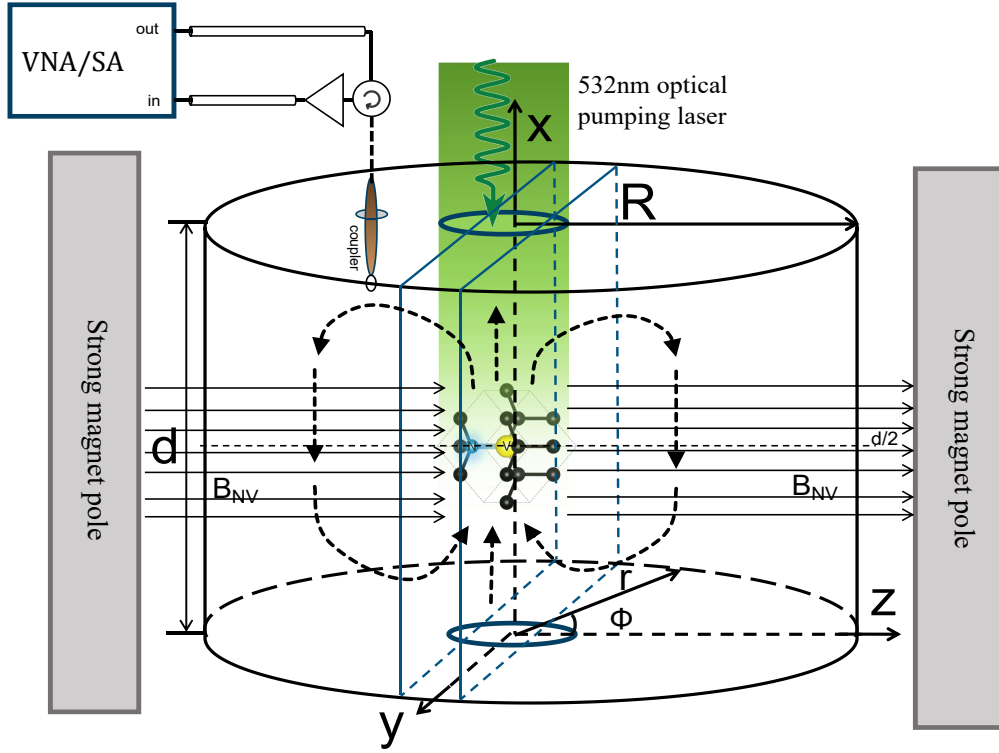


图 3 毫米波受激辐射系统原理图；一块金刚石 NV 色心样品（立方体）被放置在高品质圆柱形（半径 R ，高为 d ）谐振腔中 $d/2$ 处，由 532 纳米的光（绿色曲线箭头所示）进行激发；毫米波信号由环形耦合天线导出（褐色圆柱所示）。腔体两边磁极（灰色长方体所示）提供沿 NV 轴向（即 111 晶向）的均匀外磁场 B_{NV} ，该磁场与腔体轴向垂直记为 Z 方向。

Fig. 3. Schematic diagram of the millimeter-wave stimulated radiation system; a diamond NV center sample (cube) is placed at $d/2$ inside a high-quality cylindrical resonant cavity (radius R , height d), and is excited by 532 nm light (indicated by green curved arrows); the millimeter-wave signal is extracted by a toroidal coupling antenna (indicated by brown cylinder). Magnetic poles on both sides of the cavity (gray cuboids) provide a uniform external magnetic field B_{NV} along the NV axis (i.e., the $\{111\}$ crystallographic direction), which is perpendicular to the cavity axis and denoted as the Z direction.

针对该系统自持激射模式的参数表征，我们基于微波级联 Friis 噪声理论，建立了测量信噪比（SNR）计算模型，其核心为前置毫米波放大器输入端的有效信号功率与系统总本底噪声功率的比值，表达式为：

$$SNR_{meas} = \frac{P_{sig} \cdot \beta}{k_B [T_0(1 - \beta) + T_A] B} \quad (3)$$

式中： P_{sig} 为 NV 色心系综原始激射输出功率， β 为无源链路功率传输系数， k_B 为玻尔兹曼常数， T_0 为

室温， T_A 为放大器等效输入噪声温度（V 波段室温商用器件典型值 350 K）， B 为测量分辨率带宽。

NV 色心系综受激辐射产生的原始激射输出功率 P_{sig} ，经过毫米波无源传输链路（环行器、传输线、连接器）功率传输系数 β 衰减后，到达放大器输入端的有效信号功率为 $P_{sig} \times \beta$ ；系统总本底噪声功率由无源链路损耗引入的室温热噪声 ($k_B T_0 (1 - \beta) B$) 和前置放大器自身的本征等效输入噪声 ($k_B T_A B$) 两部分叠加而成，基于本研究典型参数，1 dB 链路损耗对应 $\beta \approx 0.794$ 、1 μ W 激射功率下 ($P_{sig} = -30$ dBm)，1kHz 窄带测量信噪比可达 109.8 dB，1 MHz 宽带测量信噪比为 79.8 dB。通过压缩测量带宽至亚赫兹量级，可大幅降低总噪声功率，将测量信噪比提升至 140 dB 以上，实现极窄线宽的精密表征。

我们这里使用与文献 [17] 一致的单晶体金刚石样品；体积 $V_{NV} = 2.1 \times 2.1 \times 2.6$ mm³，NV 色心浓度约为 0.36 ppm。零场情况下样品弛豫时间 $T_1 \sim 4.8$ ms，自旋退相时间 $T_2^* \sim 0.5$ μ s [34,35]。作为对比，强磁场条件下相关样品中 P1 中心（单取代氮中心）浓度约为 100 ppm，对应的 NV 中心浓度约为 12 ppm。文献 [18] 和文献 [35] 分别测量室温下，15 T 磁场和 2.5 mT 磁场下的色心样品弛豫时间 T_1 。结果表明，即使磁场相差 6000 倍，测得的 T_1 仍稳定在 10^{-3} s 这一量级，与文献 [36,37] 的测量结果一致。这说明，色心的自旋弛豫时间几乎不受磁场强弱的影响。由于这种固态量子系统的退相时间由杂质或未分辨的超精细作用主导 [38]，因而基本上与外磁场无关，仍处于微秒量级，即 $T_2^* = 0.5$ μ s [18]。利用 NV 色心系综获得毫米波受激辐射放大，主要包括三个具体的物理过程；首先，通过施加外加磁场 B_{NV} 来使零场分裂能级产生塞曼分裂，使得 $| -1 \rangle$ 态的能量低于 $| 0 \rangle$ 态；其次，利用 532 nm 激光实现泵浦驱动下的粒子数反转 [39,40]；第三，对于包含 10^{13} 个色心的系综而言，利用粒子数反转的两能级系统与腔场相互作用，在满足腔损耗速率低于原子跃迁速率的情况下，可实现毫米波波段的受激辐射放大信号的存储和相干输出。

3.1 受激辐射频率选择

单个 NV 色心自旋与谐振腔内量子化电磁模式（这里选择的是腔内的 $TE_{01\delta}$ 模）的相互作用可由 Jaynes-Cummings 模型： $\hat{H}_{JC} = \hat{H}_r + \hat{H}_a + \hat{H}_{int}$ 描述。其中， $H_a = \hbar \omega_s \sigma_z / 2$ 为沿图4所示 z -方向施加稳态强磁场 B_{NV} 后导致的 NV 色心基态塞曼分裂能级中的两个最低能级 $| m_s = -1 \rangle = | g \rangle$ 和 $| m_s = 0 \rangle = | e \rangle$ 所构成的两能级原子自由哈密顿量，即哈密顿量 \hat{H}_a 的两个最低能量定态用于所编码该两能级原子： $\sigma_z = | e \rangle \langle e | - | g \rangle \langle g |$ ； $\hat{H}_r = \hbar \omega_c (\hat{a}^\dagger \hat{a} + \frac{1}{2})$ 为圆柱形微波腔中 $TE_{01\delta}$ 模的量子化磁场哈密顿量，它与原子的耦合为 [27]；

$$\begin{aligned}\hat{H}_{\text{int}} &= \gamma_e \hat{S} \cdot \hat{B} = \gamma_e \hat{S}_x \hat{B}_x = \gamma_e \frac{\hat{\sigma}_x}{\sqrt{2}} \sqrt{\frac{\hbar \omega_c \mu_0}{V_{\text{eff}}}} (\hat{a}^\dagger + \hat{a}) = \frac{\gamma_e}{\sqrt{2}} \sqrt{\frac{\hbar \omega_c \mu_0}{V_{\text{eff}}}} (\hat{a} \hat{\sigma}_+ + \hat{a}^\dagger \hat{\sigma}_-) \\ &= g(\hat{a} \hat{\sigma}_+ + \hat{a}^\dagger \hat{\sigma}_-)\end{aligned}\quad (4)$$

其中 ω_c 为该模式的谐振频率， μ_0 是真空磁导率， \hat{a} 和 \hat{a}^\dagger 为该量子化模式的光子湮灭和产生算符， $\hat{\sigma}_+ = |e\rangle\langle g|$ 和 $\hat{\sigma}_- = |g\rangle\langle e|$ 为两能级原子的升、降算符，最后一步做了旋转波近似。这里，体积约为 11.5 mm^3 的金刚石（包含 $\sim 10^{13}$ NV 色心）被固定在腔中心 ($d/2$) 处，仅与沿圆柱形谐振腔中 x -方向的量子化 $TE_{01\delta}$ 模式 ($\delta = 0, 1, 2, 3, \dots$ 为腔的轴线方向的磁场模分布的半波长数) 的磁场发生强度为 [29,41]:

$$g = \gamma_e \sqrt{\frac{\hbar \omega_c \mu_0}{2V_{\text{eff}}}}, \quad V_{\text{eff}} = \int_0^R r J_0^2(k_c r) dr \int_0^d \sin^2(k_z x) dx \int_0^{2\pi} d\theta \quad (5)$$

的耦合，式中： V_{eff} 为该磁模的模式体积， $k_z = \delta\pi/d$ ，以及 $k_c = u'_{01}/r$ ，其中 u'_{01} 表示零阶贝塞尔函数一阶导数 $J'_0(x)$ 的第一个正根，查表可得圆柱形腔体 TE_{01} 模 $u'_{01} = 3.8317$ 。在半径为 R 的圆柱形腔中， $TE_{01\delta}$ 模的谐振角频率为： $\omega_c = 2\pi f = c\sqrt{(u'_{01}/R)^2 + (\pi\delta/d)^2}/\sqrt{\mu_r \epsilon_r}$ 。由于金刚石色心样品在腔中的占比很小，所以腔内填充介质可简单假设为空气，从而上式中的相对磁导率和相对介电常数可分别取为： $\mu_r = 1$ 和 $\epsilon_r = 1$ 。根据外场中的 ω_s 取值，比如在 $B_{NV} = 2 \text{ T}$ 的情况中，要实现角频率为 $\omega_c = \omega_s = 53.13 \text{ GHz}$ 的腔内 TE_{013} 模受激辐射放大，可将圆柱形腔的几何尺寸设置为： $R = 5.46 \text{ mm}$ ， $d = 10.92 \text{ mm}$ ，这样该腔模的模式体积就可以计算为： $V_{eff} = 82.84 \text{ mm}^3 = 0.08284 \text{ cm}^3$ ，从而可实现强度为 $g/2\pi = 0.445 \text{ Hz}$ 的单个两能级原子与该腔模的耦合强度。与其它利用弱场中的 NV 色心实现厘米波频段 $TE_{01\delta}$ 受激辐射的实验参数，如文献 [16] 中选择 $V_{\text{eff}} = 3 \text{ cm}^3$ ，使得对 $\omega_c = 3 \text{ GHz}$ 可实现 $g/2\pi = 0.02 \text{ Hz}$ ；文献 [31] 中，当设置 $V_{\text{eff}} = 0.15 \text{ cm}^3$ ，使得： $\omega_c = 9.2 \text{ GHz}$ ， $g/2\pi = 0.7 \text{ Hz}$ ；以及文献 [42] 中： $V_{\text{eff}} = 0.0458 \text{ cm}^3$ ，使得： $\omega_c = 9.8 \text{ GHz}$ ， $g/2\pi = 0.18 \text{ Hz}$ 等相比较，本文为实现 $\omega_c = 53.13 \text{ GHz}$ 毫米波受激辐射，所选取的相关参数在物理和实验可实现性上都是合理的。

3.2 受激辐射的阈值条件

金刚石样品中实际上包含了大量的 NV 色心，其数量与浓度密切相关 [43]，由于它在腔中占空比很小，所以可以将 N 个色心和腔内选定模式场的光子耦合处理为是强度相同的均匀耦合，从而可将由 Tavis-Cummings model 模型：

$$\hat{H}_{TC} = \hbar \omega_c \hat{a}^\dagger \hat{a} + \frac{1}{2} \hbar \omega_s \sum_{j=1}^N \hat{\sigma}_z^{(j)} + \hbar g \sum_{j=1}^N \left(\hat{a} \hat{\sigma}_+^{(j)} + \hat{a}^\dagger \hat{\sigma}_-^{(j)} \right), \quad (6)$$

描述由 N 个两能级原子所组成的系综与选定腔内模式的相互作用。其中, $\hat{\sigma}_z^{(j)}$ 、 $\hat{\sigma}_+^{(j)}$ 、 $\hat{\sigma}_-^{(j)}$ 分别为第 j 个两能级原子的泡利自旋算符。引入集体算符 $S_z \equiv \sum_{j=1}^N (|e_j\rangle\langle e_j| - |g_j\rangle\langle g_j|)$, \hat{S}_+ 、 \hat{S}_- 和 $\hat{S}_\pm = \sum_{j=1}^N \hat{\sigma}_\pm^{(j)}$, $\hat{\sigma}_+^{(j)} = (\hat{\sigma}_-^{(j)})^\dagger = |e_j\rangle\langle g_j|$ 后, 这一模型的哈密顿量可简单重写为:

$$\hat{H}_{TC} = \hbar\omega_c \hat{a}^\dagger \hat{a} + \frac{1}{2} \hbar\omega_s \hat{S}_z + \hbar g (\hat{a} \hat{S}_+ + \hat{a}^\dagger \hat{S}_-). \quad (7)$$

在有效速率为 w 的外部泵浦下, 这一耗散 T-C 系统的动力学演化行为可由如下的郎之万方程^[44]:

$$\begin{cases} \frac{d\hat{N}_e}{dt} = +w\hat{N}_g - \gamma_{eg}\hat{N}_e + ig(\hat{a}^\dagger \hat{S}_- - \hat{S}_+ \hat{a}) + \hat{F}_e, \\ \frac{d\hat{N}_g}{dt} = -w\hat{N}_g + \gamma_{eg}\hat{N}_e - ig(\hat{a}^\dagger \hat{S}_- - \hat{S}_+ \hat{a}) + \hat{F}_g, \\ \frac{d\hat{S}_-}{dt} = -i\omega_s \hat{S}_- - \frac{\kappa_s}{2} \hat{S}_- + ig\hat{S}_z \hat{a} + \hat{F}_s, \\ \frac{d\hat{a}}{dt} = -i\omega_c \hat{a} - \frac{\kappa_c}{2} \hat{a} - ig\hat{S}_- + \hat{F}_c, \end{cases} \quad (8)$$

和

$$\begin{cases} \frac{d(\hat{a}^\dagger \hat{S}_-)}{dt} = i(\omega_c - \omega_s) \hat{a}^\dagger \hat{S}_- - \frac{\kappa_c + \kappa_s}{2} \hat{a}^\dagger \hat{S}_- + ig\hat{S}_+ \hat{S}_- + ig\hat{a}^\dagger \hat{S}_z \hat{a} + \hat{F}_c^\dagger \hat{S}_- + \hat{a}^\dagger \hat{F}_s \\ \frac{d(\hat{S}_- \hat{S}_+)}{dt} = -\kappa_s \hat{S}_- \hat{S}_+ + ig(\hat{S}_z \hat{a} \hat{S}_+ - \hat{S}_- \hat{S}_z \hat{a}^\dagger) + \hat{F}_{S_-} \hat{S}_+ + \hat{S}_- \hat{F}_{S_+} \\ \frac{d(\hat{a}^\dagger \hat{a})}{dt} = -\kappa_c \hat{a}^\dagger \hat{a} + ig(\hat{S}_+ \hat{a} - \hat{a}^\dagger \hat{S}_-) + \hat{F}_a^\dagger \hat{a} + \hat{a}^\dagger \hat{F}_a \end{cases} \quad (9)$$

描述。其中, $\hat{N}_{e/g} \equiv \sum_{j=1}^N |e/g\rangle_{jj}\langle e/g|$, $\hat{S}_z = \hat{N}_e - \hat{N}_g$, $\hat{N}_e + \hat{N}_g = \hat{N}$; $\hat{F}_{e/g}$ 为态 $|e/g\rangle$ 的布居涨落, $\hat{F}_{s/c}$ 为光子噪声; κ_c 和 $\kappa_s = qw + \gamma_{eg} + 2/T_2^*$ 分别是腔损耗速率和集体模式衰减速率, 系数 q 描述泵浦光引入的系统退相干, 其大小约等于 16^[16]。由于 N 足够大, 所以 \hat{N} 的稳态平均值可简单取为 N 。

物理上, 受激辐射发生时, 算符取值的量子涨落幅度应远小于其期望值, 因而可以忽略; 而且, 多体量子关联效应也可忽略, 从而上述郎之万方程可以近似为如下的期望值微分方程组:

$$\begin{cases} \frac{d\langle \hat{N}_e \rangle}{dt} = w\langle \hat{N}_g \rangle - \gamma_{eg}\langle \hat{N}_e \rangle + ig(\langle \hat{a}^\dagger \hat{S}_- \rangle - \langle \hat{S}_+ \hat{a} \rangle), \\ \frac{d\langle \hat{N}_g \rangle}{dt} = -w\langle \hat{N}_g \rangle + \gamma_{eg}\langle \hat{N}_e \rangle - ig(\langle \hat{a}^\dagger \hat{S}_- \rangle - \langle \hat{S}_+ \hat{a} \rangle), \\ \frac{d\langle \hat{a}^\dagger \hat{S}_- \rangle}{dt} = -\frac{\kappa_s + \kappa_c}{2} \langle \hat{a}^\dagger \hat{S}_- \rangle + ig\left[\left(1 - \frac{1}{N}\right) \langle \hat{S}_+ \hat{S}_- \rangle + \langle \hat{N}_e \rangle + \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle \langle \hat{S}_z \rangle \right], \\ \frac{d\langle \hat{S}_+ \hat{S}_- \rangle}{dt} = -\kappa_s \langle \hat{S}_+ \hat{S}_- \rangle - ig\langle \hat{S}_z \rangle (\langle \hat{a}^\dagger \hat{S}_- \rangle - \langle \hat{S}_+ \hat{a} \rangle), \\ \frac{d\langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle}{dt} = -\kappa_c \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle - ig(\langle \hat{a}^\dagger \hat{S}_- \rangle - \langle \hat{S}_+ \hat{a} \rangle) + \kappa_c n_{th}, \end{cases} \quad (10)$$

上式推导中, 已令噪声算符的期望值为零 ($\langle \hat{F} \rangle = 0$), 噪声关联 $\langle \hat{F}_c^\dagger \hat{F}_c \rangle = \kappa_c n_{th}$ 为噪声关联项, 代表环境热光子的影响, 并采用了如下的截断近似; $\langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \hat{S}_z \rangle \approx \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle \langle \hat{S}_z \rangle$, $\langle \hat{a}^\dagger \hat{S}_z \hat{S}_- \rangle \approx \langle \hat{S}_z \rangle \langle \hat{a}^\dagger \hat{S}_- \rangle$

和 $\langle \hat{S}_+ \hat{S}_z \hat{a} \rangle \approx \langle \hat{S}_z \rangle \langle \hat{S}_+ \hat{a} \rangle$, 以忽略高阶关联^[39]。在谐振 ($\omega_c = \omega_s$) 情况下, 上述方程组的稳态解给出: ($\langle \hat{S}_z \rangle = S_z = \kappa_s \kappa_c / (4g^2)$), 从而腔内稳定产生的光子数为:

$$\langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle_{ss} = \frac{w - \gamma_{eg} N}{2\kappa_c} - \frac{w + \gamma_{eg} S_z}{2\kappa_c} \quad (11)$$

所以, 要获得稳定的受激辐射输出, 即 $\langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle > 0$, 泵浦速率应满足如下条件:

$$w > \gamma_{eg} \frac{1 + \frac{\kappa_s \kappa_c}{4g^2 N}}{1 - \frac{\kappa_s \kappa_c}{4g^2 N}} = w_{th}, \quad (12)$$

它说明, 只有当泵浦速率大于 w_{th} 时, 才会有获得净的受激辐射输出: $P_{out} \sim \hbar \omega_c \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle_{ss} > 0$ 。

在低速率泵浦情况下; $w \sim \gamma_{eg}$, 两能级原子集体模式的总衰减率可表示为: $\kappa_s = qw + \gamma_{eg} + 2/T_2^* \approx 2/T_2^*$ (忽略 qw 和 γ_{eg} 小量), 代入 (12) 式即可得到低速率泵浦情况下获得受激辐射放大的泵浦阈值为:

$$w_{th} = \gamma_{eg} \frac{1 + \frac{\kappa_s \kappa_c}{4g^2 N}}{1 - \frac{\kappa_s \kappa_c}{4g^2 N}} \approx \gamma_{eg} \frac{1 + \kappa_c / (2T_2^* g^2 N)}{1 - \kappa_c / (2T_2^* g^2 N)} \quad (13)$$

它表明泵浦阈值与腔的衰减率 $\kappa_c = \omega_c / Q$ 密切相关。例如, 利用总粒子数 $N = 4 \times 10^{13}$ 在 Q 品质因子为 $Q = 5 \times 10^4$ 的腔中获得受激辐射, 谐振条件下泵浦速率的阈值应为 $w_{th} \approx 270 \text{s}^{-1}$ 。当然, 过高的泵浦速率会破坏原子的相干性, 从而降低受激辐射发生的可能性。实际上, 如果泵浦速率过大, 比如 $w \gg \gamma_{eg}$, 那么由泵浦引起的原子集体退相干速率 qw 就不可忽略, 从而: $\kappa_s = qw + \gamma_{eg} + 2/T_2^* \approx qw + 2/T_2^*$ 。因此, 根据方程 (11) 及受激辐射产生的条件 $\langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle > 0$, 可得到发生受激辐射的腔衰减率条件为:

$$\kappa_c < \frac{4g^2 w - \gamma_{eg} N}{\kappa_s w + \gamma_{eg}} \approx \frac{4g^2}{qw + 2/T_2^*} N. \quad (14)$$

所以, 泵浦速率最大值应为:

$$w_{max} = \frac{1}{q} \left(\frac{4g^2 N}{\kappa_c} - \frac{2}{T_2^*} \right) \quad (15)$$

相应地, 根据腔品质因子的定义; $Q = \omega_c / \kappa_c$, 及方程 (14) 的要求, 腔 Q 值需满足如下的阈值条件:

$$Q > \frac{w + \gamma_{eg}}{w - \gamma_{eg}} \frac{\kappa_s \omega_c}{4Ng^2} = Q_c, \quad (16)$$

以保证有足够多的光子数来维持腔内辐射场的相干振荡。这对原子-光子耦合强度 g 、原子集体模式的衰减率 κ_s , 或者原子数目 N 等都施加了限制。实际上, 对腔品质因子的阈值要求, 相当于要求原子集体模式的衰减率 κ_s 应小于光子的发射率 $4Ng^2 / \kappa_c$ 。否则, 过泵浦就会使得原子-原子相干性消失 (即 S_z 趋近于 N 以及 $\langle \hat{S}_+ \hat{S}_- \rangle$ 趋近于 0), 从而系统将不会发生受激辐射。

图4给出了这一个毫米波受激辐射系统中泵浦速率对布居数反转的依赖关系。其中，蓝色曲线描述的是非稳定（非受激辐射）状态下的反转数 S_z 与总粒子数 N 的比值 ($S_{z1} = (w - \gamma_{eg})/(w + \gamma_{eg})$)。红色曲线描述的是受激辐射情况下反转数 S_z 与总粒子数 N 的比值 ($S_{z2} = \kappa_s \kappa_c / (4g^2)$)，随着泵浦速率的增加反转数与总粒子数比值趋近于 1。可见，

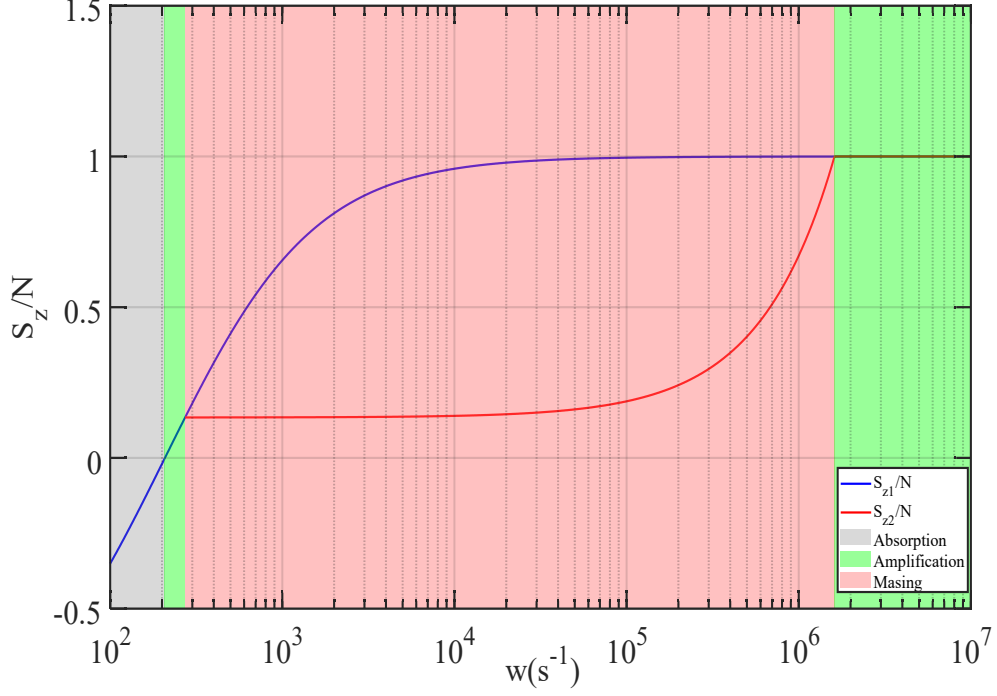


图 4 泵浦速度变化对粒子数反转的影响。可见，在低速泵浦时 ($w \sim w_{th}$) 参与受激辐射的反转数为 $S_z/N = \kappa_s \kappa_c / 4g^2 \approx 0.13$ 。图中，由红线和蓝线所围成的区域为可获得受激辐射放大的参数范围。这里，其它参数取为： $Q=5 \times 10^4$, $\omega_c/2\pi = \omega_s/2\pi = 53.13\text{GHz}$, $g/2\pi = 0.445$, $T_2^* \approx 0.5 \mu\text{s}$, $N=4 \times 10^{13}$ 。

Fig. 4. Effect of pump rate variation on population inversion. It can be seen that under low-speed pumping ($w \sim w_{th}$), the inversion number involved in stimulated radiation is $S_z/N = \kappa_s \kappa_c / 4g^2 \approx 0.13$.

In the figure, the region enclosed by the red and blue lines represents the parameter range where stimulated radiation amplification can be achieved. Here, the other parameters are taken as: $Q=5 \times 10^4$,

$$\omega_c/2\pi = \omega_s/2\pi = 53.13 \text{ GHz}, g/2\pi = 0.445 \text{ Hz}, T_2^* \approx 0.5 \mu\text{s}, N=4 \times 10^{13}.$$

1) 当泵浦速率小于弛豫速率时，不产生毫米波激射，此时系统处于吸收状态（如图灰色区域）。而且，当泵浦速率大于弛豫速率且不到产生激射泵浦阈值时，此时系统也不产生受激辐射，由于泵浦的原因，使得高能级电子数目增多但不够建立原子间的相干性，原子自发辐射导致最后输出有一定的放大能力，但产生的放大不具有相干性，仍不属于是受激辐射（如图绿色区域）。

2) 当泵浦速率大于受激辐射泵浦速率阈值且在最大泵浦速率范围内, 有足够多的反转粒子数建立原子间的相干性, 受激辐射速率大于总损耗速率, 系统产生受激辐射腔内的光子数持续累积产生稳定的 maser 振荡 (如图红色区域实线, 反转数随泵浦速率上升反转数呈指数上升)。

3) 随着泵浦速率继续增加, 越来越多的粒子被泵浦到激发态, 反转粒子数 S_z 会随着泵浦速率的增加逐渐逼近总粒子数 N ($N_g \rightarrow 0$ $N_e \rightarrow N$), 由于泵浦会使原子完全极化, 使原子间相关性消失。此时, 微波激射将会被关断, 其原因在于过高的泵浦速率会使得粒子数完全反转, 低能级粒子完全泵浦至高能级, 泵浦引入破坏原子相干性速率远大于自旋间建立相干性速率, 系统的相干性消失, 所以不再产生受激辐射。

3.3 毫米波受激辐射参数估计

假设以上的毫米波受激辐射放大的条件可以满足, 下面我们对其可达性能指标进行评估。首先讨论其相干性。辐射的相干性本质上来来自于系统内大量单元 (如 NV 色心) 量子态之间相位关联程度的体现。在量子力学中, 这种宏观相干性可以通过原子系综的二阶关联函数 $\langle \hat{S}_+ \hat{S}_- \rangle$ 来表征。通过求解期望值方程组 (10), 可得:

$$\langle \hat{S}_+ \hat{S}_- \rangle = \frac{w}{2\kappa_s} S_z \left[\left(1 - \frac{\gamma_{eg}}{w}\right) N - \left(1 + \frac{\gamma_{eg}}{w}\right) S_z \right] \quad (17)$$

利用方程 (11) 可以得到它与光场稳态光子数的直接等价关系, 即:

$$\langle \hat{S}_+ \hat{S}_- \rangle = \frac{w - \gamma_{eg}}{2\kappa_c} N - \frac{w + \gamma_{eg}}{2\kappa_c} S_z = \frac{\kappa_c^2}{4g^2} \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle \quad (18)$$

图5 (a) 给出了表征受激辐射相干性参量 $\langle \hat{S}_+ \hat{S}_- \rangle$ 随腔品质因子和泵浦速率变化的关系。可见,

1) 如果泵浦速率过低: $\omega \sim \gamma_{eg}$, 即使腔品质因子处于其阈值 (图5 (a) 黑色线条) 以上, 如 $Q = 5 \times 10^4$, 泵浦也无法抵消原子的纵向弛豫速率和腔的损耗速率, 从而系综布居快速恢复到热平衡状态, 导致布居反转 S_z 很小 (接近 0) 因而没有足够多的激发态粒子用于形成有效的相位关联 (关联量 $\langle \hat{S}_+ \hat{S}_- \rangle \approx 0$)。

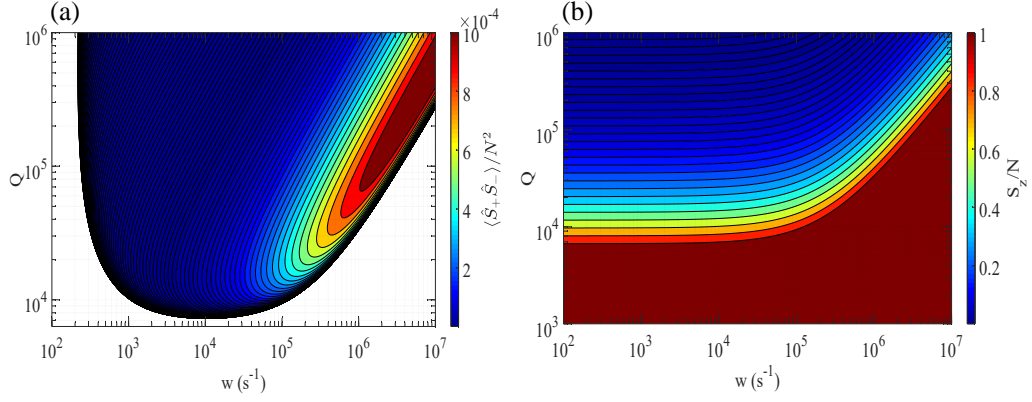


图 5 (a) 当 $N = 4 \times 10^{13}$ 时, 不同泵浦速度下的原子相干性; 黑色线条是腔的阈值。可见, 产生毫米波受激辐射需要腔的品质因数应大于其阈值; (b) 原子反转布居数 S_z/N 随泵浦速率和腔品质因数变化的行为, 可见在泵浦速率为 $\omega_{max}/2$ 时反转布居数达到最大: $S_z = N/2$ 。这里, 腔的品质因数取为 $Q = 5 \times 10^4$ 。

Fig. 5. (a) Atomic coherence at different pump rates when $N = 4 \times 10^{13}$; the black line denotes the cavity threshold. It can be seen that the quality factor of the cavity must be larger than its threshold to generate stimulated millimeter-wave radiation. (b) Behavior of the atomic inversion population S_z/N as a function of pump rate and cavity quality factor. It can be seen that the inversion population reaches its maximum $S_z = N/2$ when the pump rate is $\omega_{max}/2$. Here, the cavity quality factor is taken as

$$Q = 5 \times 10^4.$$

2) 如果泵浦速率高于纵向弛豫速率和腔损耗的速率、同时由泵浦引入的破坏原子相干性的速率低于腔中建立原子相干性所需的速率, 那么系统可满足产生受激辐射的条件。由此, 显著增强了原子 (即 S_z 显著增大), 见图5(b)), 这为相位同步提供了“统一”的集体激发。在此区域内, 关联函数或原子相干性 $\langle \hat{S}_+ \hat{S}_- \rangle$ 得到显著增强。当泵浦速率取为 $w \approx 1.2 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ 时, 关联函数达到最大值, 此时系统处于半反转数状态 ($S_z \approx 0.5N$, 图5(b)), 原子集体相干性达到最优。

3) 当泵浦速率进一步增强到超过最大泵浦速率时, 泵浦引入的退相干效应会破坏已建立的相位同步。这种情况下退相干速率超过了相干性建立的速率, 从而导致关联函数 $\langle \hat{S}_+ \hat{S}_- \rangle$ 值快速下降, 表明系统的相干性会很快被破坏。

所以, 维持高相干性不但需要高的腔品质因子 (腔的品质因数越高, 光子寿命越长, 光场与自旋系综的相互作用时间也越长, 越有利于通过相干耦合建立和维持自旋之间的集体关联), 还需要合适的泵浦速

率，以使原子系综具有高的宏观相干性。此外，无量纲的协同性因子 [39]：

$$C = \frac{4g^2N}{\kappa_s\kappa_c} \quad (19)$$

也可以用于描述实现受激发射和自持振荡（即激光/激射）的阈值行为； $C < 1$ 表明腔与激光物质之间的耦合较弱，因而自发辐射占主导、难以形成的雪崩式的受激辐射放大。反之， $C > 1$ 则这表明腔与激光物质的耦合强，从而辐射的能可被腔有效地存储增强，因而有足够高的概率去诱导其他处于激发态的粒子发出同相位、同频率的辐射。由于系统产生受激辐射的泵浦阈值 w_{th} 实际上是正比于协同因子的倒数，即： $w_{th} \propto \frac{1}{C}$ ，所以阈值以上的泵浦系统稳定产生受激辐射同时对应于 $C \gg 1$ 。简单的参数估算可以得到，在低速泵浦情况下 ($w \sim w_{th}$)，在泵浦速率与泵浦阈值的量级相当时、如果集体模式的总衰变速率为 $\kappa_s/2\pi \approx 2/T_2^* \approx 4$ MHz，53.13GHz 腔频率的衰减率为 $\kappa_c/2\pi \approx 1.0626$ MHz 时，谐振系统的协同因子可计算为 $C \approx 7.5 > 1$ 。对比于类似实验所实现的、协同性为 $C = 10.6$ 时，已成功测到微波频段的受激辐射 [17])，本设计系统可以实现毫米波频段的受激辐射放大。

下面对系统受激辐射功率 $P_{out} \sim \hbar\omega_c \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle$ 和线宽进行估算。

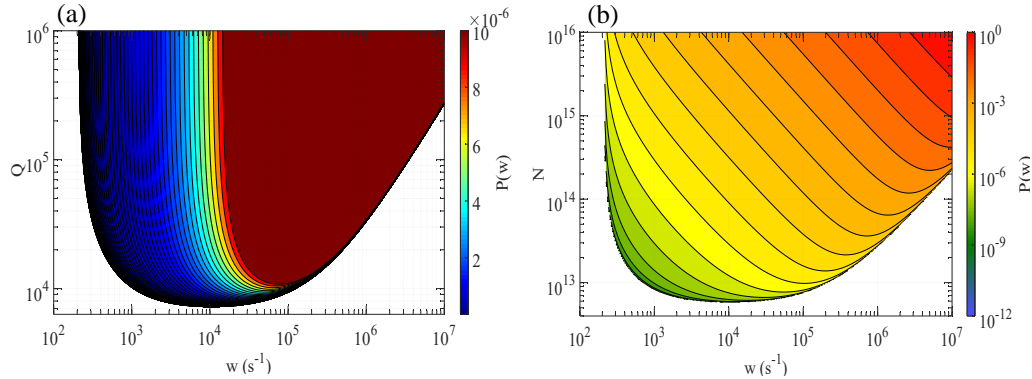


图 6 (a) 给定原子数目 $N = 4 \times 10^{13}$ 时，受激辐射输出功率随腔品质因素和泵浦速率参数的变化情况

Fig. 6. ;

(b) 腔品质因数 $Q = 5 \times 10^4$ 的情况下，受激辐射输出功率随原子个数 N 和泵浦速率的变化。这里其它参数取为： $\omega_c/2\pi = \omega_s/2\pi = 53.13$ GHz, $g/2\pi = 0.445$ Hz, $T_2^* \approx 0.5$ μ s。

(a) Output power of stimulated radiation as a function of cavity quality factor and pump rate for a given atom number $N = 4 \times 10^{13}$; (b) Output power of stimulated radiation as a function of atom number N and pump rate at a cavity quality factor $Q = 5 \times 10^4$. Other parameters are taken as:

$$\omega_c/2\pi = \omega_s/2\pi = 53.13\text{GHz}, g/2\pi = 0.445 \text{ Hz}, T_2^* \approx 0.5 \mu\text{s}.$$

由图6(a) 可见，当腔品质因数超过其阈值时，如果泵浦速率未达其最大泵浦速率，那么受激辐射输出

功率随泵浦速率的增大呈单调递增。根据所给出的稳定受激辐射参数： $Q = 5 \times 10^4$, $\omega \sim 10^5 \text{ s}^{-1}$ ，可计算出受激辐射稳定输出的功率处于微瓦量级（ 10^{-6} W ）以上。对于 $Q = 5 \times 10^4$, $\omega \sim 10^5 \text{ s}^{-1}$ 时，耦合强度 g 值 $\pm 10\%$ 的偏差会带来输出功率 $\pm 5\%$ 左右的波动，系统对耦合强度 g 的小幅参数偏差具备良好的容错性。如图6 (b) 所示，如果腔的品质因数固定为 $Q=5 \times 10^4$ 时，受激辐射输出功率还与参与受激辐射的 NV 色心原子数目线性相关。

图7给出了根据 Schawlow-Townes 公式^[17]，所计算的受激辐射的线宽：

$$\gamma_{ST} = \frac{\pi \hbar \omega_c \kappa_c^2}{2P_{out}} \quad (20)$$

随泵浦速率增加时的变化关系。

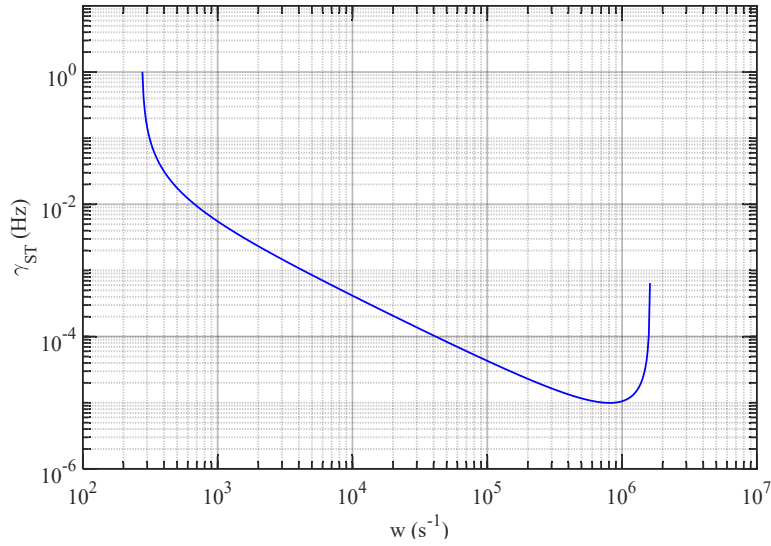


图 7 不同泵浦速率下的受激辐射放大线宽，这里相关参数取为 $Q = 5 \times 10^4$, $\omega_c/2\pi = \omega_s/2\pi = 53.13 \text{ GHz}$, $g/2\pi = 0.445 \text{ Hz}$, $T_2^* \approx 0.5 \mu\text{s}$, $N = 4 \times 10^{13}$ 。

Fig. 7. Stimulated radiation amplification linewidth at different pump rates, where the relevant parameters are taken as

$$Q = 5 \times 10^4, \omega_c/2\pi = \omega_s/2\pi = 53.13\text{GHz}, g/2\pi = 0.445\text{Hz}, T_2^* \approx 0.5 \mu\text{s}, N = 4 \times 10^{13}.$$

它表明，在泵浦速率较低时，粒子数反转不足，从而自发辐射起主要作用，所以由于随机相位起伏的影响，辐射线宽较大；随着泵浦速率的增加，粒子数反转与腔内光子数随之增长，受激辐射过程逐渐成为主导。这时，随着受激辐射占比的增大，输出功率 P_{out} 增加的同时线宽也持续变窄。但是，如果泵浦速率超过系统最优值时，过强的泵浦就会向系统注入的额外噪声，导致其退相干速率 κ_s 增大，线宽就会随着泵浦速率的增大重新展宽。在最优泵浦点附近，受激辐射的线宽可低于毫赫兹（ 10^{-4} Hz ）的极限线宽。

这一估计结果与文献^[45]在室温 9.22 GHz 频率下所实现的毫赫兹量级 (10^{-3} Hz) 线宽吻合。值得注意的是,上述分析仅考虑了理想稳态下的量子噪声线宽,未包含非线性动力学效应,并非为实际输出线宽;考虑在实际实验中高泵浦条件下,泵浦速率远大于泵浦阈值会诱发极限环 (limit cycle) 自持振荡,通过振幅-相位耦合引入显著的额外线宽展宽^[46,47],其定量表达式为^[48,49]:

$$\Delta\nu_{\phi,LC} = \frac{\kappa_c}{2\pi} \cdot \frac{\langle(\delta A)^2\rangle}{A_{ss}^2} \quad (21)$$

式中: κ_c 为微波腔场的衰减率; $A_{ss} = \langle A \rangle$ 为腔场振幅的统计平均值 (稳态振幅); $\langle(\delta A)^2\rangle$ 为极限环振荡引发的振幅涨落方差; $R = \frac{\langle(\delta A)^2\rangle}{A_{ss}^2}$ 为相对振幅涨落,直接表征极限环对线宽的调制强度。我们在泵浦速率为 $1 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$ 的条件下开展半经典动力学数值模拟,计算得到相对振幅涨落 $R = \frac{\langle(A(t) - \langle A \rangle)^2\rangle}{\langle A \rangle^2} = 0.2609$,据此预估,极限环效应将为受激辐射系统输出线宽带来 0.277 MHz 的额外增量,成为高泵浦下 maser 线宽劣化的重要非线性机制。可提高 NV 中心浓度以增大自旋衰减率 κ_s ,以及降低自旋-光子耦合强度 g ,可有效抑制极限环的形成并使其消失^[17]。

4 结论与讨论

受文献^[16,17]工作的启发,本文详细论证了利用腔磁场偏置下的强塞曼效应、实现基于金刚石 NV 色心系统的毫米波受激辐射的可行性。具体论证了在腔的品质因素选取为 5×10^4 时,利用 2 T 强磁场可产生频率为 53.13 GHz 的受激辐射可行性,其稳定输出功率可达微瓦量级。理论分析和相关参数的估算都表明,利用现阶段技术可实现的高品质因素 ($Q = 5 \times 10^4$) 毫米波谐振腔中,可以实现 TE₀₁ 模毫米波频段的受激辐射,从而使得室温条件下制备毫米波频段的相干光源,成为可能。由于现阶段大于 1 特斯拉强磁场的制造成本已经大幅下降,因此通过调节磁场大小,所获得的毫米波受激辐射频率是可调节的。只要 NV 色心轴向磁场为大于 1.18 T,那么就可以实现频率大于 30 GHz 的毫米波受激辐射。实际上,通过调节磁场大小,也可以获得 30 ~ 300 GHz 频段内频率任意可调的受激辐射激光输出。而对于高品质毫米波谐振腔和金刚石色心样品的加工^[50]以及探测线路搭建目前也已有非常成熟的技术,已有大量的高品质毫米波谐振腔、色心样品和微波探测方法已投入相关研究使用^[16,17,30,33,42]。然而尽管方案整体可行,本方案在实验落地中仍面临多项关键难点:轴向磁场需沿 [111] 晶向精准对准并保持高均匀度,否则会降低激射效率、抬升阈值;53 GHz 毫米波腔体难以长期稳定维持高 Q 值,模式耦合对样品位置精度要求极高;泵浦光需均匀辐照且速率精确可控,否则易引发退相干导致激射猝灭;微瓦级毫米波信号传输损耗大、易受干扰,对低噪声探测与电磁屏蔽要求严苛;磁场漂移、腔体热形变及多参数协同控制不足也会影响系统长

期稳定性。对此可通过高精度磁场校准、高稳定腔体与亚微米定位、均匀泵浦与闭环控制、多级屏蔽降噪及主动温控与频率锁定等方案予以优化。

本文的论证是基于金刚石 NV 色心系统平台来实现毫米波受激辐射，其基本理论框架来自于传统的泵浦驱动、弛豫增益粒子数反转、和谐振腔振荡增强这些物理过程中的平均场近似量子朗之万方程，因而具有普适性。所以，仅需对具体物理参数进行修正，便可直接推广应用于其他室温微波增益介质系统，如低传输损耗的氮化硅色心系统^[51]，冷原子系综（如碱土金属原子）^[52]，和有机物色心^[53]，乃至胶体量子点^[54]等，以实现微波频段的受激辐射，因为这些系统中的人造原子，弛豫时间 (T_1) 和退相时间 (T_2^*) 几乎都不受静磁场强度的影响。最后，本文所提出的毫米波频段受激辐射放大实现方法，有望在未来相关实验中得到检验。

参考文献

- [1] Schawlow A L, Townes C H 1958 *Phys. Rev.* **112** 1940
- [2] Maiman T H 1960 *Nature* **187** 493
- [3] Cassidy M C, Bruno A, Rubbert S, Irfan M, Kamhuber J, Schouten R N, Akhmerov A R, Kouwenhoven L P 2017 *Science* **355** 939
- [4] Simon S H, Cooper N R 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 027004
- [5] Vasilic B, Shitov S, Lobb C, Barbara P 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 1137
- [6] Ozyuzer L, Koshelev A E, Kurter C, Gopalsami N, Li Q, Tachiki M, Kadowaki K, Yamamoto T, Minami H, Yamaguchi H, et al. 2007 *Science* **318** 1291
- [7] Welp U, Kadowaki K, Kleiner R 2013 *Nat. Photon.* **7** 702
- [8] Mlynek J A, Abdumalikov A A, Eichler C, Wallraff A 2014 *Nat. Commun.* **5** 5186
- [9] Zhang M, Ding S, Li X, Pu K, Lei S, Xiao M, Jiang X 2024 *Nat. Commun.* **15** 1661
- [10] Song H J, Nagatsuma T 2011 *IEEE Trans. Terahertz Sci. Technol.* **1** 256
- [11] Haydl W H 1983 *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* **31** 879

- [29] Kubo Y, Ong F R, Bertet P, Vion D, Jacques V, Zheng D, Dreau A, Roch J F, Auffeves A, Jelezko F 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 140502
- [30] Wu Q, Zhang Y, Yang X, Su S L, Shan C, Mølmer K 2021 *Sci. China Phys. Mech. Astron.* **65** 217311
- [31] Breeze J D, Salvadori E, Sathian J, Alford N M, Kay C W M 2017 *npj Quantum Inf.*
- [32] Dicke R H 1954 *Phys. Rev.* **93** 99
- [33] Eisenach E R, Barry J F, O’Keeffe M F, Schloss J M, Braje D A 2021 *Nat. Commun.* **12**
- [34] Takahashi S, Hanson R, Van Tol J, Sherwin M S, Awschalom D D 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 047601
- [35] Jarmola A, Acosta V M, Jensen K, Chemerisov S, Budker D 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 197601
- [36] Kollarics S, Simon F, Bojtor A, Koltai K, Klujber G, Szieberth M, Márkus B, Beke D, Kamarás K, Gali A, Amirari D, Berry R, Boucher S, Gavryushkin D, Jeschke G, Cleveland J, Takahashi S, Szirmai P, Forró L, Emmanouilidou E, Singh R, Holczer K 2022 *Carbon* **188** 393
- [37] Fortman B, Mugica-Sanchez L, Tischler N, Selco C, Hang Y, Holczer K, Takahashi S 2021 *J. Appl. Phys.* **130** 083901
- [38] Portis A M 1956 *Phys. Rev.* **104** 584
- [39] Meiser D, Ye J, Carlson D R, Holland M J 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 163601
- [40] Debnath K, Zhang Y, Mølmer K 2018 *Phys. Rev. A* **98** 063837
- [41] 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 140501
- [42] Day T, Isarov M, Pappas W J, Johnson B C, Abe H, Ohshima T, McCamey D R, Laucht A, Pla J J 2024 *Phys. Rev. X* **14** 041066
- [43] Li Y, Chen X, Ran M, She Y, Xiao Z, Hu M, Wang Y, An J 2022 *Chin. Phys. B* **31** 046107
- [44] Benkert C, Scully M O, Bergou J, Davidovich L, Hillery M, Orszag M 1990 *Phys. Rev. A* **41** 2756
- [45] Wu Q, Zhang Y, Yang X, Su S L, Shan C, Mølmer K 2022 *Sci. China Phys. Mech. Astron.* **65** 217311

- [46] Dimer F, Estienne B, Parkins A, Carmichael H 2007 *Phys. Rev. A* **75** 013804
- [47] Haken H 1964 *Z. Phys.* **181** 96
- [48] Haken H 1984 In *Light and Matter Ic/Licht und Materie Ic* (Springer), pp 1–304
- [49] Siegman A E 1986 *Lasers* (University Science Books)
- [50] Zhang X, Zhuang X, Liu X 2025 *Chin. Phys. Lett.* **42** 047601
- [51] Roeloffzen C G H, Hoekman M, Klein E J, Wevers L S, Timens R B, Marchenko D, Geskus D, Dekker R, Alippi A, Grootjans R, et al. 2018 *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **24** 1
- [52] Braun D, Hoffman J, Tiesinga E 2011 *Phys. Rev. A* **83** 062305
- [53] Tang J, Zhang J, Lv Y, Wang H, Xu F F, Zhang C, Sun L, Yao J, Zhao Y S 2021 *Nat. Commun.* **12** 3265
- [54] Ahn N, Livache C, Pinchetti V, Jung H, Jin H, Hahm D, Park Y S, Klimov V I 2023 *Nature* **617** 79

Controllable millimeter-wave stimulated radiations from NV-centres in diamond*

Wang Chen, He Suirong, Li Yufen , Feng Xianing [†], Wei Lianfu [†]

(*Laboratory of Quantum Information Technology, School of Information Science and
Technology, Southwest Jiaotong University, Chengdu 610031, China*)

Abstract

The scarcity of high-quality millimeter-wave coherent light sources constitutes a critical bottleneck for the development of 6G communications, deep-space exploration, and related fields. Conventional approaches, such as low-frequency synthesis and high-frequency beating, suffer from low output power and poor coherence, while cryogenic microwave coherent sources cannot operate at room temperature. Hence, there is an urgent demand for efficient, stable, millimeter-wave stimulated-emission coherent sources that function under ambient conditions. Leveraging the unique advantages of the nitrogen-vacancy (NV) center system—including long spin coherence times at room temperature, optical initializability, and precise tunability of Zeeman levels—combined with a high-quality-factor millimeter-wave resonator, we can construct a coupled system of light and artificial atoms operable at room temperature. This paper proposes a scheme for room-temperature millimeter-wave stimulated emission based on tuning the ground-state zero-field splitting of diamond NV centers via a strong axial magnetic field, aiming to achieve a high-quality coherent millimeter-wave radiation source.

* Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant No.2021YFA0718803), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. P110325G02011).

These authors contributed equally.

[†] Corresponding author. E-mail: lfwei@swjtu.edu.cn fengxn5@switch.edu.cn (通信作者)

The First Author. E-mail: jcdl1238@163.com.ccc (第一作者)

Through Zeeman-level engineering of NV centers under tesla-level magnetic fields, we propose that by applying a strong axial magnetic field $B_{\text{NV}} > 1.18$ T along the [111] crystallographic direction of the NV^- center, the radiative transition frequency of the NV-center artificial atom can be shifted into the millimeter-wave band. Subsequently, a millimeter-wave stimulated-emission system is constructed, comprising a 2 T superconducting magnet, an ensemble of NV centers in diamond, a high-quality-factor cylindrical resonant cavity, and a 532 nm pump laser. A diamond single crystal containing $\sim 10^{13}$ NV centers is placed at the center of the cavity and resonantly coupled to the cavity's $TE_{01\delta}$ mode. Optical pumping with 532-nm laser light enables population inversion of the NV centers. The stimulated-emission millimeter-wave photons can establish coherent oscillation inside the cavity, thereby yielding a coherent millimeter-wave output. Based on numerical simulations with typical parameters, the threshold conditions for achieving millimeter-wave stimulated emission are derived, and the linewidth of the obtained coherent radiation is evaluated. The results indicate that, using a cavity with a quality factor of $Q = 5 \times 10^4$ and a diamond sample with $N = 4 \times 10^{13}$ NV centers, the optimal pumping rate can be attained with a remarkably low laser-pump threshold of $w_{\text{th}} \approx 270 \text{ s}^{-1}$. Under these conditions, the collective coherence of the atomic ensemble is maximized, enabling the generation of coherent millimeter-wave radiation with a power exceeding 10^{-6} W (microwatt level) and a linewidth as narrow as 10^{-4} Hz. Higher output power can be achieved by increasing the number of NV centers, improving the cavity quality factor, or raising the pump rate.

Specifically, this work demonstrates that, by applying a 2 T axial magnetic field and employing a high-quality resonator with $Q = 5 \times 10^4$, stimulated emission of millimeter waves at a frequency of 53.13 GHz can be realized at room temperature. Moreover, by adjusting the strength of the applied magnetic field, it is theoretically feasible to achieve a fully tunable coherent millimeter-wave source covering the entire 30 – 300 GHz band. This provides a viable pathway toward a high-performance room-temperature millimeter-wave light source. The methodology adopted here—combining quantum Langevin equations with the mean-field approximation to describe stimulated-emission amplification—can be extended to other microwave gain-media systems for realizing various coherent radiation sources based on stimulated emission. In particular, the fact that the coherence properties of NV centers are only weakly affected by

strong magnetic fields makes the proposed magnetic-field-tuning scheme for millimeter-wave stimulated emission from diamond color centers experimentally verifiable, paving the way for the generation of highly coherent wave sources across the entire microwave frequency range.

Keywords: millimeter wave, NV center, stimulated radiation