高频率分辨的金刚石氮-空位色心宽频谱成像技术*

申圆圆[1)2)3)] 王博[1)3)] 柯冬倩[1)2)3)] 郑斗斗[1)4)] 李中豪[1)3)] 温焕飞[1)3)]
郭浩[1)3)] 李鑫[1)3)] 唐军[1)2)3)] 马宗敏[1)2)3)†] 李艳君[1)5)]
伊戈尔·费拉基米罗维奇·雅明斯基[1)6)] 刘俊[1)3)‡]

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) (中北大学半导体与物理学院, 太原 030051)
3) (中北大学, 量子传感与精密测量山西省重点实验室, 太原 030051)
4) (太原工业学院电子工程系, 太原 030008)
5) (日本大阪大学, 工学研究科精密科学应用物理学, 大阪 5650871)
6) (俄罗斯国立莫斯科大学先进技术中心, 莫斯科 119311)

(2023 年 11 月 21 日收到; 2023 年 12 月 20 日收到修改稿)

高分辨率宽频谱测量技术在天文学、无线通信、医学成像等领域具有重要应用价值. 金刚石氮-空位 (nitrogen-vacancy, NV) 色心因其高稳定性、高灵敏度、实时监测、单点探测以及适用于长时间测量等特性已成为频谱分析仪备受关注的选择. 目前, 基于 NV 色心作为探测器的宽频谱分析仪能够在几十 GHz 频带内进行实时频谱分析, 然而其频率分辨率仅达到 MHz 水平. 本文通过搭建结合连续外差技术的量子金刚石微波频谱成像系统, 利用磁场梯度对 NV 色心谐振频率进行空间编码, 成功获取了 900 MHz—6.0 GHz 范围内完整的频谱数据. 在可测频谱范围内, 系统进一步采用连续外差的方法, 同时施加谐振微波和轻微失谐的辅助微波对 NV 色心进行有效激发, 增强了 NV 磁强计对微弱微波信号的响应. 该方法使系统在可测频谱范围内实现了 1 Hz 的频率分辨率, 并能够对间隔为 1 MHz 扫频步进的多个频点的频率分辨率进行单独测量. 以上研究结果表明基于 NV 色心的宽频谱测量可实现 Hz 级频率分辨, 为未来的频谱分析和应用提供了有力的技术支持.

关键词: 氮-空位色心, 宽频谱测量, 高频率分辨率
PACS: 76.70.Hb, 52.70.Gw, 42.30.–d, 85.75.Ss **DOI:** 10.7498/aps.73.20231833

1 引 言

目前, 在微波 (microwave, MW) 探测领域, 对频谱分辨率的研究已经取得了重要成果, 并且这些成果在天文学[1]、无线通信[2]以及医学成像[3]等多个现代应用领域具有广泛前景. 过去几十年中, 多种量子传感器技术已经取得显著进展, 包括频谱分析仪[4]、超导量子比特、量子纠缠传感器[5]以及金刚石氮-空位 (nitrogen-vacancy, NV) 色心传感器[6]. 其中, NV 色心传感器因其在常温和室温条件下可操作[7]、对微波探测表现出高度灵敏性[8]、能够在微小体积内实现单点探测[9]、具备实时监测微波场变化的能力以及可持续监测微波信号等特性, 从而

* 国防基础科学研究计划、国家自然科学基金国际合作与交流项目 (批准号: 62220106012)、山西省杰出青年基金 (批准号: 202103021221007) 和山西省“1331”项目重点学科建设基金 (批准号: 1331KSC) 资助的课题.
† 通信作者. E-mail: mzmncit@163.com
‡ 通信作者. E-mail: liuj@nuc.edu.cn

© 2024 中国物理学会 Chinese Physical Society

成为构建高分辨率微波频谱测量的极具吸引力的技术[10].

近年来, Chipaux 等[11] 详细地研究了利用 NV 色心自旋相关光学特性进行微波信号频谱分析的原理. 然而, 由于磁场梯度振幅和可用 NV 色心数量等因素的限制, 该方法仅能够实时分析 600 MHz 频带内的信号, 并且其频率分辨率仅为 7 MHz. 随后, Ludovic 和 Thierry[12] 以及 Magaletti 等[13] 通过对实验平台架构进行精细优化, 成功实现了对数百 mT 强磁场的精准控制, 并将其与 NV 色心的晶格轴对准. 他们进一步实现了对频率高达几十 GHz 微波信号的实时分析, 然而, 其系统频率分辨率仅达到 1 MHz 水平. 为了提高频率分辨率, Meinel 等[14] 提出了一种外差检测微波的方法, 该方法利用调制场、脉冲 Mollow 吸收和 Floquet 动力学, 以精确控制微波场与双能级系统的相互作用, 最终实现了低于 1 Hz 的频率分辨率. 然而, 这一方案依赖于复杂的脉冲控制技术, 对实验条件和系统稳定性提出了高要求. 为了克服这些挑战, Wang 等[15] 提出了一种连续外差检测方案, 无需复杂脉冲控制, 可实现 0.1 mHz 的频率分辨率, 然而, 这种方法仅对频率为 2.90 GHz 的微波信号进行了频率分辨率测量. 因此, 目前对于采用连续外差技术对 NV 色心进行微波宽频谱分辨率测量的有效性进行系统性研究的文献报道相对较少, 亟需对其展开深入的系统性研究.

基于以上研究背景, 本文提出了一种采用连续外差对宽频谱分析的方法. 该方法利用金刚石 NV 色心的自旋相关性质, 并通过外部静态磁场梯度对 NV 色心的共振频率进行空间编码. 通过使用 CMOS 相机采集图像并经过算法处理, 成功地在频率范围为 900 MHz—6.0 GHz 之间获取了完整的频谱数据. 随后, 通过采用连续外差技术, 同时施加谐振微波和轻微失谐的辅助微波对 NV 色心进行激发, 在可测频谱范围内实现了 1 Hz 的频率分辨, 并且能够在该频谱范围内对间隔为 1 MHz 扫频步进的多个频率点的频率分辨率进行单独测量. 基于该技术显著提高了宽频谱的频率分辨率, 这一研究成果为更准确的频域信息获取提供重要的支持, 进一步推动相关领域的研究和应用发展.

2 实验原理和装置

2.1 实验原理

NV 色心是金刚石中的一种晶格缺陷, 由一个替代碳原子的氮原子和一个邻近的空位组成[16]. 如图 1(a) 所示, NV 色心的基态是一个自旋三重态, 在单重态 $m_s = |0\rangle$ 与双重态 $m_s = |\pm 1\rangle$ 之间具有 $D = 2.87$ GHz 的零场分裂[17,18]. 激发态 ^{3}E 的零场劈裂为 1.41 GHz[19], 同样为自旋三重态. 其中 m_s 表示沿着 NV 的本征量子化轴的自旋投影. NV 色心可以被 532 nm 的激光连续从 $^3A_2$ 激发到激发态 ^{3}E, 然后退激发回到 $^3A_2$ 态并发出荧光. 处于激发态 ^{3}E 的 NV 色心有两条主要的退激发途径, 其中之一是发射荧光回到基态, 另一条途径是通过 ISC(intersystem crossing) 机制, 经由单态 $^1A_1$ 和 ^{1}E 回到基态, 这一个过程不辐射荧光. 在光照条件下, 由于自旋选择性的系统间交叉, NV 缺陷被有效地极化到 $m_s = |\pm 1\rangle$ 和 $m_s = |0\rangle$ 态. 通常处于 $m_s = |0\rangle$ 态的 NV 色心被激发后, 其退激发所产生荧光光子的概率更大. 此外, 由于系统间交叉跃迁是非辐射的, 当 $m_s = |0\rangle$ 态被填充时, NV 缺陷的光致发光明显增强, 从而能够通过光学检测实现对光探测磁共振 (optically detected magnetic resonance, ODMR) 的探测[20,21].

基于 NV 色心的频谱分析仪的原理依赖于利用磁场梯度对 NV 色心谐振频率进行空间编码. 如图 1(b) 所示, 通过使用光学泵浦方法, 将 532 nm 绿色激光照射在金刚石 NV 色心上, 并利用球形磁铁 (supermagnet K-13-C) 沿金刚石晶体一个方向施加已知的磁场梯度. 通过调节磁场梯度的大小和方向, 可以实现对 NV 色心共振频率的空间编码. 如图 1(c) 所示, 在金刚石表面的不同位置, 磁场梯度引起塞曼效应导致相应的 ODMR 信号产生. 待测的微波信号通过天线传输至经激光激发的金刚石区域, 同时使用相机捕捉 NV 色心发出的荧光信号. 如图 1(d) 所示, 相机所捕获的图像中, 特定区域有荧光强度明显降低的现象, 这表明该区域存在与 NV 色心共振特性相匹配的微波信号的光谱分量. 在图像采集过程中, 需要确保避免图像过曝光的情况发生. 通过精确的编程控制, 该系统实现了微波源和相机的同步操作. 采集得到的图像数据以三维矩阵 $\{X, Y, F\}$ 的形式存储, 其中 X 和 Y 分别代表单个图像的行和列像素数量, F 表示每张图

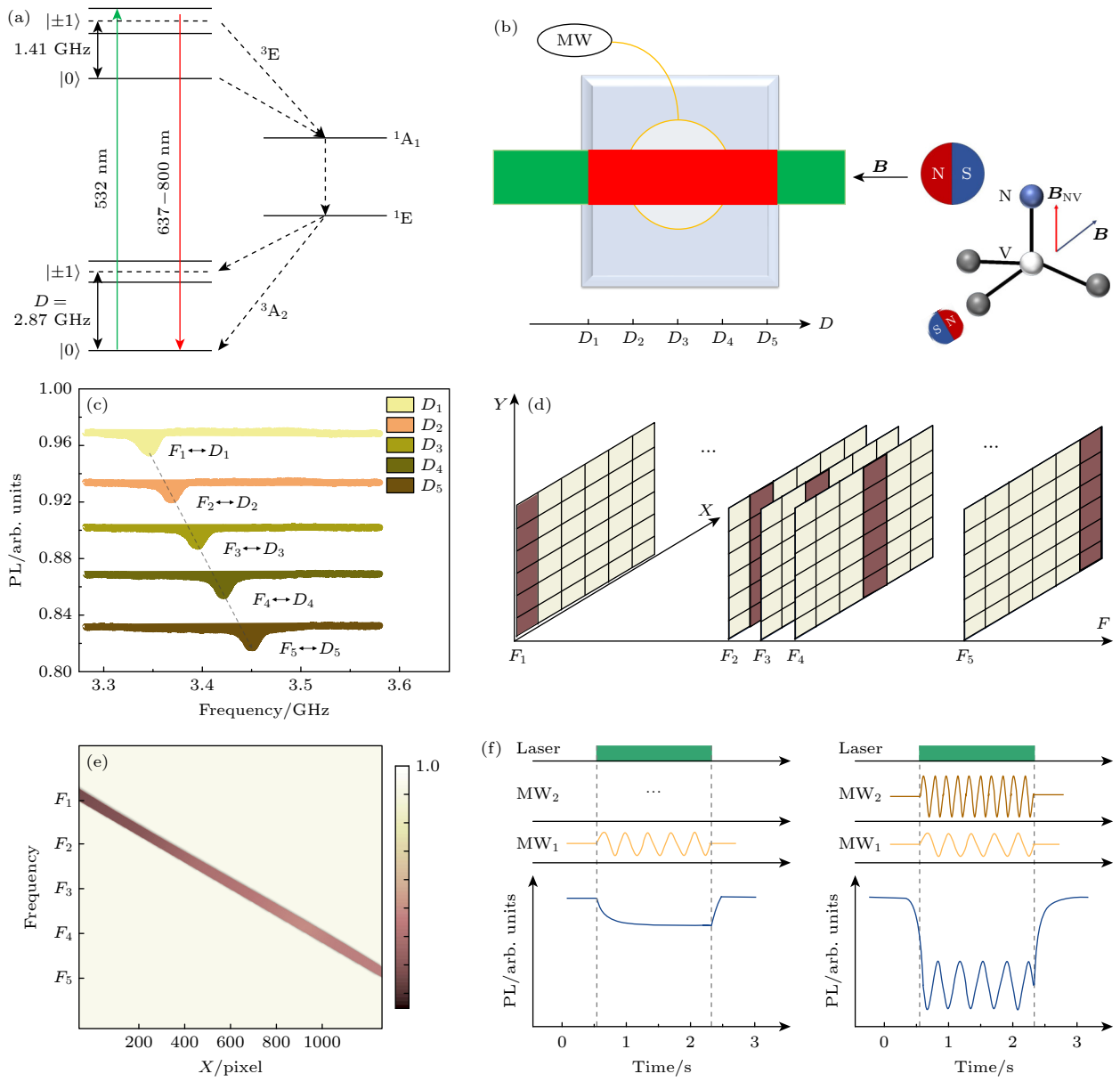

图 1 NV 色心频谱分析 (a) NV 色心能级图; (b) 沿 D 轴向金刚石晶体施加磁场梯度; (c) 在金刚石晶体表面不同位置, 磁场梯度引起塞曼效应导致相应的 ODMR 信号产生; (d) 使用相机对图像进行采集并将其保存为三维数据; (e) 利用算法拟合将图像存储格式从三维数据转变为二维数据, 在整个磁梯度范围内, 通过拼接图像来生成对应的频谱图像; (f) 测量可测频谱范围内的任意频点的频率分辨率

Fig. 1. NV center spectral analysis: (a) Energy level diagram of the NV center; (b) application of a magnetic field gradient along the D-axis of the diamond crystal; (c) magnetic field gradient induces the Zeeman effect at different positions on the surface of the diamond crystal, resulting in corresponding ODMR signals; (d) acquisition of images using a camera and conversion into three-dimensional data; (e) utilization of an algorithm for fitting, transforming the image storage format from three-dimensional data to two-dimensional data, and generating the corresponding spectral images across the entire magnetic gradient range; (f) measurement of frequency resolution at arbitrary frequency points within the measurable spectral range.

像对应的不同频率点. 随后, 对图像中每个像素关于 F 维度的信息进行了 Lorentzian 函数的拟合. 所使用的拟合函数如 (1) 式所示:

$$L(f) = A\left\{1 - \frac{C}{1 + [(f - f_0)/w]^2}\right\}, \qquad (1)$$

其中 A 是峰值的振幅 (通常为 1), C 是对比度, f_0 是共振频率, w 是线宽. 通过拟合过程记录每个像素对应的谐振频率 f_0. 随后, 将每个图像 (1008 像素×64 像素) 的数据合并为一行 (1008 像素×1 像素), 以提高信噪比并改善拟合精度, 从而提高数据采集的精确度, 实验中使用的相机像素尺寸为 3.45 μm×3.45 μm. 因此, 如图 1(e) 所示,

图像数据的存储格式从三维矩阵转变为二维矩阵. 在整个磁梯度范围内, 可以通过对图像进行简单地拼接, 从而生成对应的频谱图像.

在高频率微波信号测量过程中, 通常要求使用高功率的微波辐射源. 然而, 这一操作通常会导致 ODMR 线宽的展宽, 进而降低了宽频谱微波测量的频率分辨率. 本文探讨了一种通过微调辅助微波信号的频率, 以引入频率差 (δ) 的方法来克服这一问题. 在一般情况下, 将 NV 色心视为二能级系统, 其中微波信号 $\mathrm{MW}_1(a_1\cos\omega t)$ 与状态 $|0\rangle\rightarrow|1\rangle$ 的谐振转换频率相对应. 当 MW_1 足够强时则会发生拉比振荡. 然而, 当拉比频率小于非均匀跃迁线宽时, 共振吸收效率变得低效, 甚至失去对微波场 a_1 的一阶响应. 在这种情况下, NV 磁强计从场检测 ($\propto a_1$) 降级为能量检测 ($\propto a_1^2$). 随着 MW_1 的减小, 振荡减慢最终指数衰减. 这一现象表明激光诱导的极化过程与微波诱导的自发弛豫之间存在竞争, 导致了自旋态的平衡. 进一步研究表明, 通过同时施加两路微波信号, 即谐振微波 MW_1 ($a_1\cos\omega t$) 与轻微失谐的辅助微波 MW_2 ($A_1\cos[(\omega+\delta)t+\varphi]$) 对 NV 色心进行激发, 将引发微波干扰效应. 这种微波干扰破坏了激光诱导的极化与微波诱导的自发弛豫之间的竞争平衡态. 因此, 微波干扰导致荧光强度出现衰减和振荡[15]. 具体而言, 微波干扰引发了荧光信号相位和幅度的变化, 进而导致交流荧光信号的生成. 如图 1(f) 所示, 在连续激光照射金刚石 NV 色心的情况下, 施加单路微波 NV色心荧光值降到最低, 当关闭微波之后, NV 色心荧光值缓慢恢复到初始值. 同时施加两路微波, 产生了交流荧光信号, 交流荧光信号频率为两个频率的差值, 振幅$\propto A_1a_1$, 证明了对微波信号 MW_1 的响应振幅被放大了约 A_1/a_1倍, 这种荧光信号的振荡现象源于谐振微波信号与轻微失谐的辅助微波信号之间的相互干扰. 然而, 荧光响应微波场的变化速度受到一定的限制, 而时域内有限的响应速度对应于频域内的有限带宽.

2.2 实验装置

实验系统示意图如图 2 所示, 由光路系统、微波系统、磁场系统、同步控制系统以及数据处理系统构成. 实验系统的核心组件是尺寸为 3.5 mm× 3.5 mm × 0.2 mm (110) 的单晶 CVD (chemical vapor deposition) 金刚石样品, 经过高温高压工艺制备而得. 该样品的初始氮浓度小于 1×10^{-4}, 在 (10 ± 0.5) MeV 电子辐照下处理 4 h 后, 经过 600 ℃ 高温真空退火 1 h, 随后进行 30 min 保温, 最后升温至 800 ℃ 进行 4 h 真空退火以完成制备. 在实验中, 光路系统将激光器产生的 532 nm 连续激光对金刚石 NV 色心进行光学激发. 为了确保激光准确照射到金刚石晶体内部, 采用了一组透镜来形成平行光, 对激光光束有效聚焦. 随后, 使用 10 倍显微物镜来采集金刚石 NV 色心发出的红色荧光信号, 并利用滤波片进行光谱滤波, 最后, 在 CMOS 相机前端安装镜头, 借助其将收集到的荧光信号聚焦在 CMOS 相机上进行采集. 在此过程中, 该系统使用的激光器光功率约为 200 mW, 用于形成平行光的一组透镜焦距分别为 100 mm 与 50 mm, 镜头焦距为 75 mm.

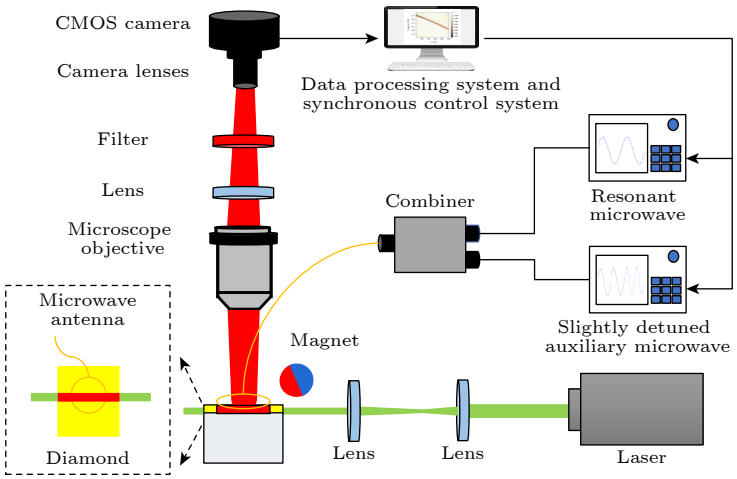

图 2 实验装置系统

Fig. 2. Experimental Setup System.

微波扫频频率以及轻微失谐的辅助微波由微波源连接至直径为 2 mm 的环形天线, 以产生均匀的微波场. 可施加频率范围为 9 kHz—6 GHz, 扫频微波步进为 1 MHz. 磁场由直径为 13 mm 的球形磁铁提供, 该磁铁具备在 1 T 范围内提供磁场的能力. 在实验中, 为了实现几 GHz 级的塞曼位移, 需确保金刚石 NV 轴与磁场方向严格对齐. 因此, 将 CVD 金刚石样品安装在三轴位移台上, 以使其顶面与 (110) 晶面平行. 同时, 球形磁铁被安装在另一个独立的三轴位移平台上, 以便于对金刚石 NV 轴与磁场的对齐进行精确调整.

同步控制系统通过控制微波源扫频步进与相机曝光和图像储存时间根据序列进行循环同步, 为了确保图像的准确采集, 单组数据进行了 200 次测量平均. 在采用连续外差方法对微波频谱的频率分辨率进行测量时, 同步控制系统通过同时调控两台微波源施加谐振微波和轻微失谐的辅助微波对 NV 色心进行有效激发. 数据处理系统将相机保存的图片数据根据采集时间逐张提取并保存为一个三维矩阵, 通过 MATLAB 算法, 利用 Lorentzian 函数的拟合将图像数据的存储格式从三维矩阵转变为二维矩阵, 从而生成微波频谱图像.

3 实验结果与讨论

3.1 NV 晶轴与磁场矢量方向的关系

在进行微波频谱测量时, 需通过已知磁场信息计算得到待测微波的频率范围. 当磁场沿着 NV 轴施加时, NV 色心的谐振频率可由 (2) 式计算得到:

$$F_{\pm} = D \pm \gamma B_{\mathrm{NV}}, \tag{2}$$

其中 $D \approx 2.87$ GHz 是 NV 色心电子自旋的零场劈裂值, $\gamma = 28$ GHz/T 是电子自旋旋磁比, B_{NV} 是平行于 NV 轴的磁场分量.

在实验过程中, 通过将磁铁与金刚石晶体保持约 1 cm 的距离. 如图 3(a) 所示, 当磁场方向与金刚石中 4 个 NV 轴未完全对准时, 可以观察到 4 对 ODMR 谱线, 每对谱线对应于金刚石晶体内不同可能轴向的 NV 色心. 近似平行于磁场方向的

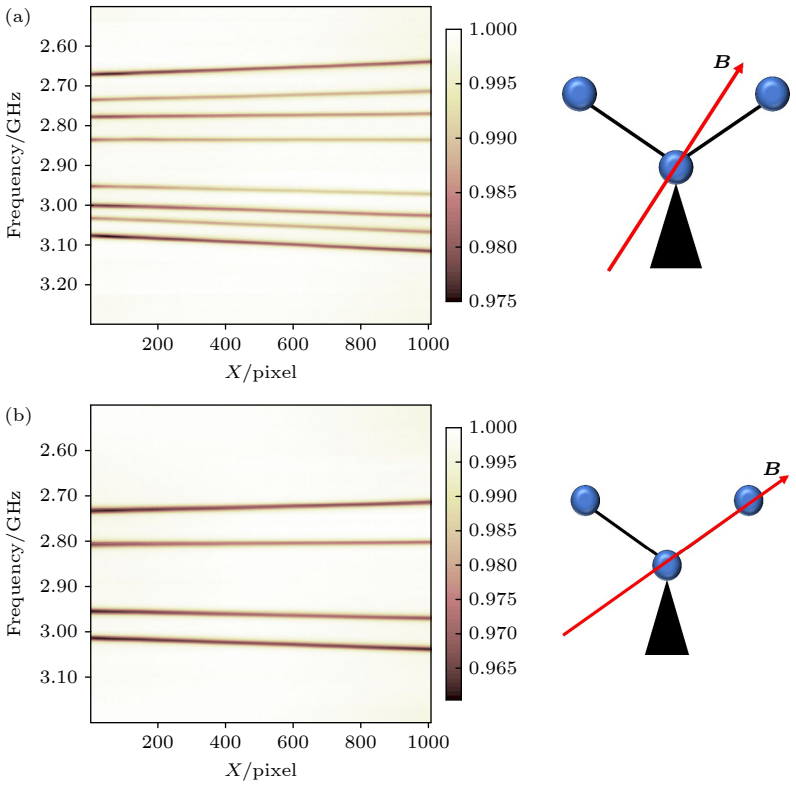

图 3 调整磁场与 NV 轴对准的过程 (a) ODMR 成像呈现了四组谱线, 对应于磁场方向与 NV 色心的 4 个轴向均未对齐; (b) ODMR 成像显示了两组谱线, 其中三组谱线重叠, 对应于磁场与某一 NV 轴对齐

Fig. 3. Process to align magnetic field and NV centers: (a) ODMR imaging presents four sets of spectra, corresponding to a misalignment of the magnetic field with all four axial directions of the NV centers; (b) ODMR imaging displays two sets of spectra, with three of them overlapping, indicating alignment of the magnetic field with a specific NV axis.

NV 轴上具有最强的塞曼位移, 然而, 由于这一 NV 轴未完全与磁场方向对准, 其他 3 个 NV 轴在这一特定轴向上具有略微不同的磁场投影和塞曼位移. 为了实现磁场方向与 NV 轴对齐, 需要对磁铁和金刚石晶体之间的相对取向进行调整. 如图 3(b) 所示, 可以观察到有 2 对 ODMR 谱线. 鉴于存在多种可能让 ODMR 呈现为 2 组峰, 因此需要通过对 ODMR 谱峰位置反解来确定磁场方向是否与 NV 轴对齐. 完成磁场与 NV 轴的精确对准后, 可以提高测得的 ODMR 谱的信号强度.

3.2 宽频谱微波测量

在本实验中, 首要步骤是确保磁场方向与 NV 轴的精确对准, 随后, 通过调整磁铁与金刚石之间的距离, 实现对金刚石表面磁场梯度的精细调控. 为了实施这一操作, 采用了携带磁铁的三轴位移台对其进行微调. 在逐渐调整磁场的过程中, 进行了一系列 ODMR 成像实验, 用于对磁铁距离金刚石的不同位置进行观测, 从而逐步建立了磁场梯度的分布情况. 如图 4 所示, 通过位移台对磁铁进行移动, 将其精确地定位于距离金刚石不同的四个位置, 然后进行微波频谱测量. 通过将这 4 个不同位置测得的实时微波频谱简单拼接, 成功获取了 3.50—6.00 GHz 的宽频谱数据. 在这种情况下, 磁场梯度最大值接近 10.5 T/m, 且频带宽度达到 1 GHz. 该系统允许在 900 MHz—6.0 GHz 的频率范围内进行扫描, 以实时监测电子自旋共振过渡从基态到激发态的变化.

3.3 宽频谱下频率分辨率的测量结果

该系统的频率分辨率与 NV 色心的共振线宽密切相关, 其主要受到以下因素的影响: 金刚石 NV 色心的零场 ODMR 谱线宽、微波功率引起的功率展宽效应以及磁场梯度导致的不均匀展宽. 如图 5(a) 所示, 在实验中使用的 CVD 金刚石样品的 NV 色心的零场 ODMR 谱线宽约为 7.8 MHz. 这表明金刚石样品本身较大的零场 ODMR 谱线宽对系统的频率分辨率测量产生了显著的影响. 在图 5(a) 中, 测得的 NV 色心的零场 ODMR 谱线中心频率为 2.83 GHz, 与理论值 2.87 GHz 存在一定差异. 这主要是由于实验环境中的温度变化、局域电磁场波动, 以及金刚石 NV 色心的电子能级结构受到晶

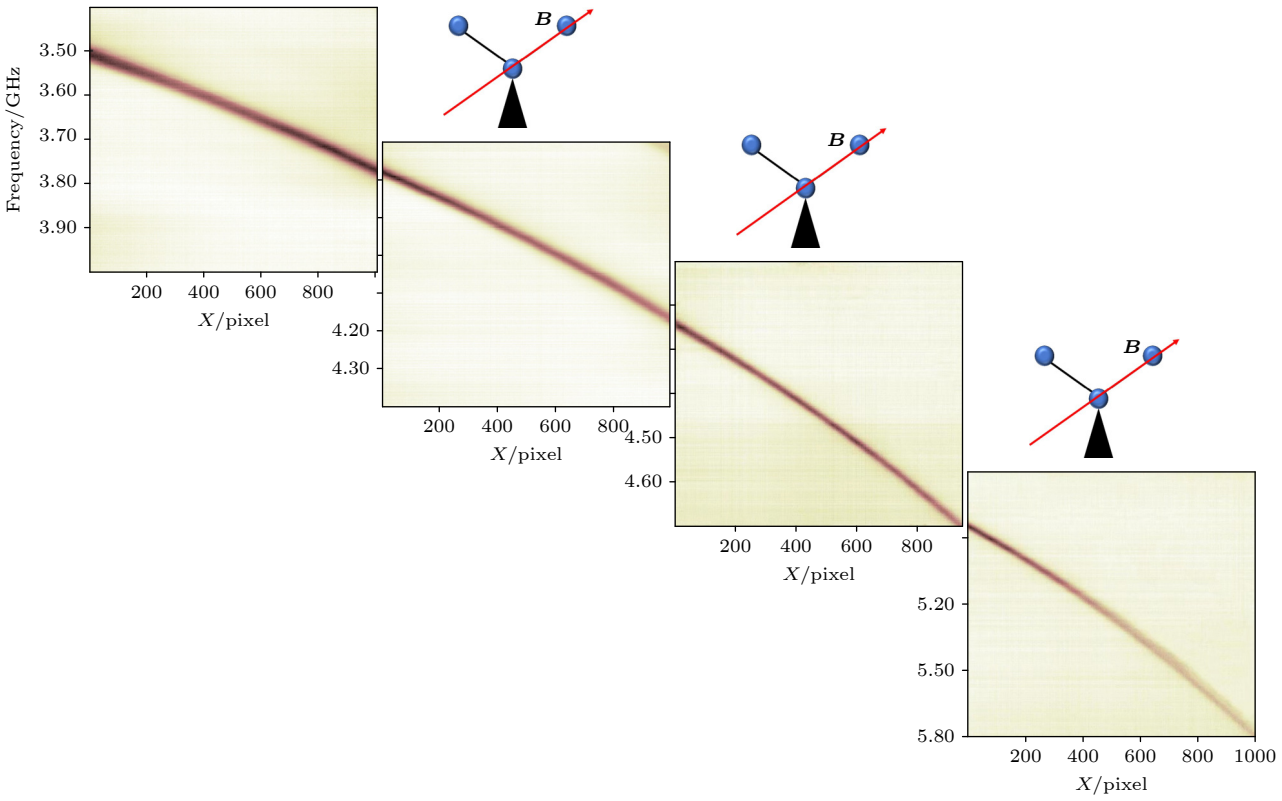

图 4 叠加磁铁在不同位置相对应的微波频谱图像

Fig. 4. Overlay microwave spectroscopy images corresponding to magnets positioned at different locations.

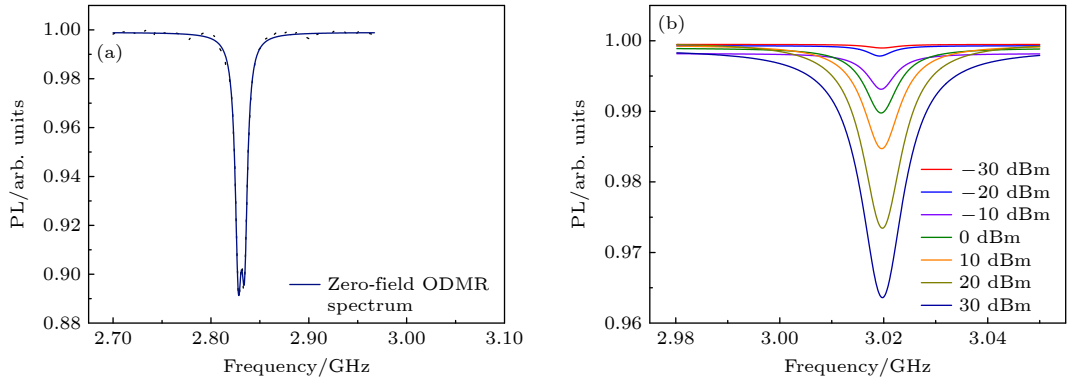

图 5 NV 色心共振线宽不均匀展宽原因 (a) NV 色心零场 ODMR 谱; (b) 在 3.02 GHz 处不同微波功率下的 ODMR 的单峰曲线

Fig. 5. Causes of non-uniform broadening of NV center resonance linewidth: (a) Zero-field ODMR spectrum of NV centers; (b) single-peak curves of ODMR at 3.02 GHz under different microwave powers.

格缺陷和杂质的影响, 共同导致了实验测量误差. 另一个导致共振线宽展宽的因素如图 5(b) 所示, 通过位移台移动磁铁, 在确保磁场方向与 NV 轴精准对齐的情况下, 施加约 60 G (1 G = 10^{-4} T) 的磁场, 从而在 3.02 GHz 处测得最大谐振频率点. 在保持激光功率恒定为 200 mW 的条件下, 逐渐增加在 3.02 GHz 处施加的微波功率, 从–30 dBm 逐渐增大到 30 dBm. 实验过程中可观察到 ODMR 的线宽也相应增加. 这限制了系统能够实现的最佳频率分辨率. 由于本系统在进行高频率微波测量时采用球形磁铁施加磁场梯度, 并施加了 30 dBm 的微波功率, 高微波功率和磁场梯度的使用限制了系统对微波的实时检测能力, 进而导致了频率分辨率的降低.

为提高系统的频率分辨率, 本文采用了连续外差的实验方法. 在可测量频谱范围内, 通过两台微波源同时施加谐振微波和轻微失谐的辅助微波对 NV 色心进行有效激发, 从而实现对微弱微波信号的检测. 该方法通过在可测频谱范围内选取任一谐振频点 f_1, 其中一台微波源固定在频率 f_1, 而另一台微波源被固定在频率 $f_1+\Delta f$, 用于产生微波干扰. 这种干扰破坏了激光诱导的极化与微波诱导的自发弛豫之间的竞争平衡态, 导致荧光信号出现振荡. 如图 6(a) 所示, 在可测频谱范围 3.50—3.80 GHz 内, 通过设置一台微波源的频率为 3.50 GHz, 用于施加谐振微波. 同时, 另一台微波源在谐振频率点 3.50 GHz 的基础上分别增加 1000, 100, 10, 5, 1, 0.1 Hz, 用于施加轻微失谐的辅助微波. 在实验过程中, 通过编程控制两台微波源同时作用, 可以观察到该系统通过将总测量时间 t 延长到 1 s, 从而将频率分辨率提高到了 1 Hz. 通过对实验数据进行傅里叶变换, 如图 6(b) 所示, 从频域角度可以直观地观察到系统在 3.50 GHz 谐振频点频率分辨率达到 1 Hz.

随后, 如图 6(c) 所示, 在 3.50—3.80 GHz 频谱范围内选取间隔为 1 MHz 扫频步进的 6 个不同的谐振频点, 分别为 3.50, 3.501, 3.502, 3.503, 3.505, 3.506 GHz, 并对其频率分辨率进行测量. 首先, 利用一台微波源将其频率设置为 3.50 GHz, 对应于谐振频率点. 同时, 另一台微波源用于施加轻微失谐的辅助微波信号, 其频率设定在 3.500000001 GHz, 这种微小的频率变化是为了引入微弱的频率差. 通过精确的编程控制, 在 1 s 的时间内, 同时启用这两台微波源作用于金刚石样品, 在第 1 个 2 s 的作用周期内, 仅在 3.50 GHz 的频点处引入微波干扰, 导致荧光信号的振荡, 而其他频点荧光信号保持不变. 第 1 个 2 s 作用周期结束后, 通过编程控制, 两台微波源频率分别跃升至 3.501 GHz 与 3.501000001 GHz, 在第 2 个 2 s 作用周期内, 仅在 3.501 GHz 频点处观察到荧光信号产生振荡, 而其他频点处的荧光信号没变. 然后, 在第 2 个 2 s 作用周期结束后, 它们的频率再次跃迁至下一个预设的谐振频点, 继续进行各个频点的频率分辨率测量, 按照特定顺序测量各个频点的频率分辨率. 因此, 可见该系统成功地实现了对可测频谱范围内多个频点的频率分辨率的独立测量.

通过采用上述实验方案引入轻微失谐的辅助微波, 使得该系统能够实现最小频率分辨率 1 Hz, 同时具备对可测频谱范围内间隔为 1 MHz 扫频步进的谐振频点的频率分辨率进行单独检测和区分

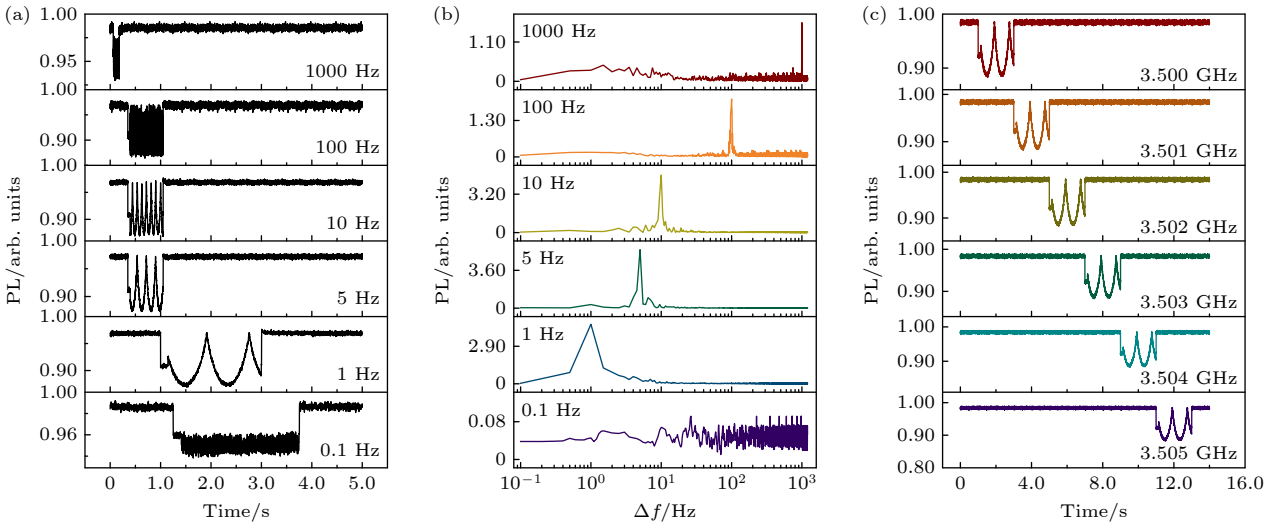

图 6 频率分辨率测量结果 (a) 在可测频谱范围内选取与 3.50 GHz 频率差为 1000, 100, 100, 5, 1, 0.1 Hz 的频率点的外差实验时域测量结果; (b) 在可测频谱范围内选取与 3.50 GHz 频率差为 1000, 100, 100, 5, 1, 0.1 Hz 的频率点的外差实验频域测量结果; (c) 在可测频谱范围内多个谐振频率点的频率分辨率测量结果

Fig. 6. Frequency resolution measurement results: (a) Time-domain measurement results of heterodyne experiments at frequency differences of 1000, 100, 100, 5, 1, 0.1 Hz relative to 3.50 GHz within the measurable spectral range; (b) frequency-domain measurement results of heterodyne experiments at frequency differences of 1000, 100, 100, 5, 1, 0.1 Hz relative to 3.50 GHz within the measurable spectral range; (c) frequency resolution measurement results of multiple resonant frequency points within the measurable spectral range.

的能力. 这一方案成功地解决了由于高功率微波和磁场梯度使用所导致的频率分辨率下降的问题, 同时提高了对微波信号的实时检测能力.

4 结 论

本文通过搭建结合连续外差技术的量子金刚石微波频谱成像系统, 利用连续光探测磁共振的 NV 色心传感技术验证外差技术对微波宽频谱频率分辨率的有效性. 首先, 利用已知磁场梯度对 NV 色心谐振频率进行空间编码, 从而实现对宽频谱微波信号的测量和频谱分辨率分析. 通过精确控制磁场方向与金刚石 NV 轴对准, 并利用位移台调整磁铁与金刚石的距离控制磁场梯度. 在逐渐调整磁场的过程中, 对磁铁距离金刚石的不同位置进行观测, 并进行一系列 ODMR 成像实验, 从而逐步建立了磁场梯度的分布情况, 最终成功获取了 900 MHz—6.0 GHz 范围内完整的频谱数据. 随后, 采用连续外差的实验方案, 通过调控两台微波源同时施加谐振微波和轻微失谐的辅助微波对微弱微波信号进行检测. 该方案实现了在可测频谱范围内 1 Hz 的频率分辨率, 并具备对可测频谱范围内间隔为 1 MHz 扫频步进的多个谐振频点的频率分辨率进行单独检测和区分的能力. 为了进一步提升系统性能, 可以采取一系列改进措施, 以优化微波频谱分析的性能. 这些改进措施包括增加探测器内存深度、提高光学收集效率、设计可调节的磁场结构, 以及优化金刚石样品等方法, 例如增加 NV 色心的浓度和使用取向性 NV 色心晶体等. 以上研究结果表明连续外差技术对微波宽频谱频率分辨率提升的有效性, 并为微波频谱分析领域进一步研究提供了技术支持.

参考文献

[1] Pastor-Marazuela I, Connor L, van Leeuwen J, Maan, Y, ter Veen S, Bilous A, Oostrum L, Petroff E, Straal S, Vohl D, Attema J, Boersma O M, Kooistra E, van der Schuur D, Sclocco A, Smits R, Adams E A K, Adebahr B, de Blok W J G, Coolen A H W M, Damstra S, Dénes H, Hess K M, van der Hulst T, Hut B, Ivashina V M, Kutkin A, Loose G M, Lucero D M, Mika A, Moss V A, Mulder H, Norden M J, Oosterloo T, Orrú E, Ruiter M, Wijnholds S J 2021 *Nature* **596** 505

[2] Holl P M, Reinhard F 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 183901

[3] Chandra R, Zhou H Y, Balasingham I, Narayanan R M 2015 *IEEE. Trans. Biomed. Eng.* **62** 1667

[4] Boss J M, Cujia K S, Zopes J, Degen C L 2017 *Science* **356** 837

[5] Assouly R, Dassonneville R, Peronnin T, Bienfait A, Huard B 2023 *Nat. Phys.* **19** 1418

[6] Kim D, Ibrahim M I, Foy C, Trusheim M E, Han R, Englund

D R 2019 *Nat. Electron.* **2** 284
[7] Joas T, Waeber A M, Braunbeck G, Reinhard F 2017 *Nat. Commun.* **8** 964
[8] Haikka P, Kubo Y, Bienfait A, Bertet P, Molmer K 2017 *Phys. Rev. A* **95** 022306
[9] Wang Y W, Liu Y S, Guo H, Han X C, Cai A J, Li S K, Zhao P F, Liu J 2020 *Appl. Phys. Express* **13** 112002
[10] Shao L B, Liu R S, Zhang M, Shneidman A V, Audier X, Markham M, Dhillon H, Twitchen D J, Xiao Y F, Loncar M 2016 *Adv. Opt. Mater.* **4** 1075
[11] Chipaux M, Toraille L, Larat C, Morvan L, Pezzagna S, Meijer J, Debuisschert T 2015 *Appl. Phys. Lett.* **107** 233502
[12] Ludovic M, Thierry D 2018 *International Topical Meeting on Microwave Photonics* Toulouse, France, October 22-25, 2018 p1
[13] Magaletti S, Mayer L, Roc J F, Debuisschert T 2022 *Comm. Eng.* **1** 19
[14] Meinel J, Vorobyov V, Yavkin B, Dasari D, Sumiya H, Onoda S, Isoya J, Wrachtrup J 2021 *Nat. Commun.* **12** 2737
[15] Wang Z C, Kong F, Zhao P J, Huang Z H, Yu P, Wang Y, Shi F Z, Du J F 2022 *Sci. Adv.* **8** eabq8158
[16] Fescenko I, Jarmola A, Savukov I, Kehayias P, Smits J, Damron J, Ristoff N, Mosavian N, Acosta V M 2020 *Phys. Rev. Res.* **2** 023394
[17] Likhachev K V, Breev I D, Kidalov S V, Baranov P G, Nagalyuk S S, Ankudinov A V, Anisimov A N 2022 *JETP Lett.* **116** 840
[18] Ho K O, Leung M Y, Wang W Y, Xie J Y, Yip K Y, Wu J H, Goh S K, Denisenko A, Wrachtrup J, Yang S 2023 *Phys. Rev. Appl.* **19** 044091
[19] Fuchs G D, Dobrovitski V V, Hanson R, Batra A, Weis C D, Schenkel T, Awschalom D D 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 117601
[20] Zargaleh S A, von Bardeleben H J, Cantin J L, Gerstmann U, Hameau S, Eblé B, Gao W 2018 *Phys. Rev. B* **98** 214113
[21] Sangtawesin S, Dwyer B L, Srinivasan S, Allred J J, Rodgers L V H, De Greve K, Stacey A, Dontschuk N, O'Donnell K M, Hu D, Evans D A, Jaye C, Fischer D A, Markham M L, Twitchen D J, Park H, Lukin M D, de Leon N P 2019 *Phys. Rev. X* **9** 031052

High-frequency resolution diamond nitrogen-vacancy center wide-spectrum imaging technology*

Shen Yuan-Yuan [1)2)3)] Wang Bo [1)3)] Ke Dong-Qian [1)2)3)] Zheng Dou-Dou [1)4)]
Li Zhong-Hao [1)3)] Wen Huan-Fei [1)3)] Guo Hao [1)3)]
Li Xin [1)3)] Tang Jun [1)2)3)] Ma Zong-Min [1)2)3)†] Li Yan-Jun [1)5)]
Igor Vladimirovich Yaminsky [1)6)] Liu Jun [1)3)‡]

1) (*State Key Laboratory of Dynamic Testing Technology*, *North University of China*, *Taiyuan* 030051, *China*)
2) (*School of Semiconductor and Physics*, *North University of China*, *Taiyuan* 030051, *China*)
3) (*Shanxi Key Laboratory of Quantum Sensing and Precision Measurement*, *North University of China*, *Taiyuan* 030051, *China*)
4) (*Department of Electronic Engineering*, *Taiyuan Institute of Technology*, *Taiyuan* 030008, *China*)
5) (*Department of Applied Physics*, *Graduate School of Engineering*, *Osaka University*, *Osaka* 5650871, *Japan*)
6) (*Advanced Technology Center*, *Moscow State University*, *Moscow* 119311, *Russia*)

(Received 21 November 2023; revised manuscript received 20 December 2023)

Abstract

High-resolution wide-spectrum measurement techniques have important applications in fields such as astronomy, wireless communication, and medical imaging. Nitrogen-vacancy (NV) center in diamond is well known for its high stability, high sensitivity, real-time monitoring, single-point detection, and suitability for long-term measurement, and has an outstanding choice for spectrum analyzers. Currently, spectrum analyzers based on NV centers as detectors can perform real-time spectrum analysis in the range of several tens of gigahertz, but their frequency resolution is limited to a MHz level. In this study, we construct a quantum

* Project supported by the National Defense Basic Scientific Research Program of China, the International Cooperation and Exchange Project of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 62220106012), the Shanxi Provincial Fund for Outstanding Young Scholars, China (Grant No. 202103021221007), and the Fund for Shanxi Provincial "1331" Project Key Subjects Construction, China (Grant No. 1331KSC).

† Corresponding author. E-mail: mzmncit@163.com
‡ Corresponding author. E-mail: liuj@nuc.edu.cn

diamond microwave spectrum imaging system by combining continuous wave-mixing techniques. According to the spin-related properties of the NV center in diamond, we implement optical pumping by 532 nm green laser light illuminating the diamond NV center. A spherical magnet is used to produce a magnetic field gradient along the direction of the diamond crystal. By adjusting the size and direction of the magnetic field gradient, spatial encoding of the resonance frequency of the NV center is achieved. The magnetic field gradient induces the Zeeman effect on the diamond surface at different positions, generating corresponding ODMR signals. Through accurate programming, we coordinate the frequency scanning step size of the microwave source with the camera exposure and image storage time, and synchronize them circularly according to the order of image acquisition. Ultimately, after algorithmic processing, we successfully obtain comprehensive spectrum data in a range from 900 MHz to 6.0 GHz. Within the measurable spectrum range, the system employs continuous wave-mixing, simultaneously applying resonant microwaves and slightly detuning auxiliary microwaves to effectively excite the NV center. This method triggers off microwave interference effects, disrupting the balance between laser-induced polarization and microwave-induced spontaneous relaxation. Specifically, microwave interference causes the phase and amplitude of the fluorescence signal to change, leading to the generation of alternating current fluorescence signals. This further enhances the response of the NV magnetometer to weak microwave signals. The method enables the system to achieve a frequency resolution of 1 Hz in the measurable spectrum range, and it can separately measure the frequency resolution of multiple frequency points with a frequency step size of 1 MHz. The research results indicate that the wide-spectrum measurement based on NV centers can achieve sub-hertz frequency resolution, providing robust technical support for future spectrum analysis and applications.

Keywords: nitrogen-vacancy center, wideband spectrum measurement, high frequency resolution

PACS: 76.70.Hb, 52.70.Gw, 42.30.–d, 85.75.Ss **DOI:** 10.7498/aps.73.20231833

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

高频率分辨的金刚石氮-空位色心宽频谱成像技术

申圆圆 王博 柯冬倩 郑斗斗 李中豪 温焕飞 郭浩 李鑫 唐军 马宗敏 李艳君 伊戈尔·费拉基米罗维奇·雅明斯基 刘俊

High-frequency resolution diamond nitrogen-vacancy center wide-spectrum imaging technology

Shen Yuan-Yuan Wang Bo Ke Dong-Qian Zheng Dou-Dou Li Zhong-Hao Wen Huan-Fei Guo Hao Li Xin Tang Jun Ma Zong-Min Li Yan-Jun Igor Vladimirovich Yaminsky Liu Jun

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 73, 067601 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20231833
在线阅读 View online: https://doi.org/10.7498/aps.73.20231833
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于金刚石氮-空位色心的精密磁测量
High-resolution magnetometry based on nitrogen-vacancy centers in diamond
物理学报. 2018, 67(16): 167601 https://doi.org/10.7498/aps.67.20181084

金刚石氮-空位色心的原子自旋声子耦合机理
Atomic spin and phonon coupling mechanism of nitrogen-vacancy center
物理学报. 2021, 70(6): 068501 https://doi.org/10.7498/aps.70.20201848

基于金刚石体系中氮-空位色心的固态量子传感
Solid quantum sensor based on nitrogen-vacancy center in diamond
物理学报. 2018, 67(16): 160301 https://doi.org/10.7498/aps.67.20180788

基于金刚石氮-空位色心的温度传感
Temperature sensing with nitrogen vacancy center in diamond
物理学报. 2022, 71(6): 060302 https://doi.org/10.7498/aps.71.20211822

金刚石氮-空位色心单电子自旋的电场驱动相干控制
Coherent electrical control of single electron spin in diamond nitrogen-vacancy center
物理学报. 2022, 71(11): 117601 https://doi.org/10.7498/aps.70.20220410

金刚石氮空位中心自旋量子调控
Quantum control of nitrogen-vacancy center in diamond
物理学报. 2018, 67(12): 120302 https://doi.org/10.7498/aps.67.20180755