



Anastasyja Talatay, lecturer, I. Kant Baltic Federal University, Kaliningrad.
E-mail: ALebedkina@kantiana.ru

Alexander Khalikov, student, I. Kant Baltic Federal University, Kaliningrad.
E-mail: A.Khalikov@kantiana.ru

УДК 530.145

А. А. Иванов, А. И. Иванов

**ПРИРОДА БОКОВЫХ РЕЗОНАНСОВ В АЛМАЗЕ:
РОЛЬ СВЕРХТОНКОГО И ЯДЕРНОГО КВАДРУПОЛЬНОГО
ВЗАИМОДЕЙСТВИЙ**

55

Исследована структура спектров оптически детектируемого магнитного резонанса в алмазе. Анализ спектров выполнен на основе нового подхода. Показано, что в отсутствие внешнего магнитного поля в тонкую структуру боковых резонансов дает вклад сверхтонкое взаимодействие, а ядерное квадрупольное взаимодействие в ней не проявляется.

The structure of optically detected magnetic resonance spectra of diamond crystal is examined. It is shown that in the absence of external magnetic field the hyperfine structure of side resonances caused by the hyperfine interactions and is not influenced by the nuclear quadrupole interaction.

Ключевые слова: алмаз, сверхтонкая структура, боковые резонансы.

Key words: diamond, hyperfine structure, side resonance.

Отрицательно заряженные центры в кристалле алмаза (NV^- -центры), содержащие атом азота, замещающий атом углерода в узле кристаллической решетки, и расположенную в соседнем узле вакансию, активно исследуются более 20 лет. Эти центры являются хорошей основой для создания приборов в области магнитометрии, электрометрии, пьезометрии, квантовой обработки информации [1].

Оптические переходы в NV^- -центре позволяют достичь высокой степени спиновой электронной поляризации при комнатной температуре. При оптическом возбуждении центра лазером, излучающим свет в зеленой области спектра, электроны преимущественно населяют триплетное состояние $m_s = 0$ основного состояния. Населенность этого и некоторых других состояний можно оценить по сигналам оптически детектируемого магнитного резонанса (ODMR).

В отсутствие магнитного поля основной пик ODMR NV^- -центра на частоте 2876 МГц соответствует переходу между подуровнями $m_s = 0$ и $m_s = \pm 1$ основного триплетного состояния [2]. При увеличении разрешения регистрируются также боковые резонансные пики вблизи основного пика. В работе [2] отмечены боковые резонансы B , C , D и E . Рас-

стояние между симметрично расположенными относительно центрального резонанса двумя боковыми резонансами группы B незначительно и составляет $\Delta_B \approx 36$ МГц. Причиной образования резонансов этой группы авторы работы [2] считают взаимодействие между NV^- -центром и атомом азота, замещающим атом углерода в соседнем узле решетки (P1-центр). В слабых магнитных полях (< 60 Гс) проявляется тонкая структура боковых резонансов (рис. 1).

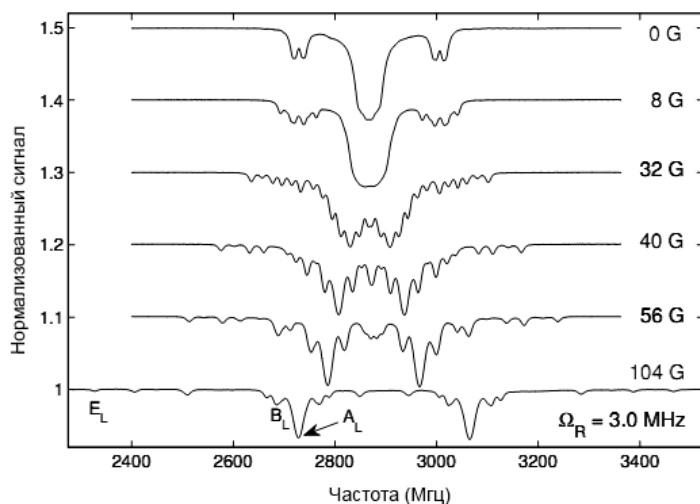


Рис. 1. Тонкая структура боковых резонансов в алмазе [2]

В данной работе мы, во-первых, предлагаем новый подход к анализу спектров эффективных спин-гамильтонианов теории кристаллического поля и, во-вторых, показываем, что в тонкую структуру боковых резонансов в алмазе в отсутствие внешнего магнитного поля дает вклад только сверхтонкое взаимодействие в NV^- -центре, а ядерное квадрупольное взаимодействие в ней не проявляется.

NV^- -центр в алмазе имеет симметрию C_{3v} . Его основное состояние является спиновым триплетом ($S = 1$) с осью квантования спина, совпадающей с осью симметрии центра. Мы рассмотрим одиночный центр, содержащий изотоп ^{14}N с ядерным спином $I = 1$. Эффективный спин-гамильтониан основного состояния такого центра в единицах частоты с учетом сверхтонкого взаимодействия в рамках теории кристаллического поля можно записать в следующем виде:

$$\hat{H} = D(\hat{S}_z^2 - \hat{S}^2 / 3) + A^{\parallel} \hat{S}_z \hat{I}_z + A^{\perp} (\hat{S}_x \hat{I}_x + \hat{S}_y \hat{I}_y) + P(\hat{I}_z^2 - \hat{I}^2 / 3), \quad (1)$$

где $D \approx 2876$ МГц — параметр тонкой структуры; $A^{\parallel} \approx -2,14$ МГц и $A^{\perp} \approx -2,70$ МГц — аксиальный и неаксиальный параметры сверхтонкого расщепления; $P \approx -5,01$ МГц — параметр ядерного квадрупольного расщепления. Значения этих параметров известны из экспериментов и затабулированы в работе [1].



Для расчета спектра гамильтониана (1) воспользуемся методом, который мы предложили в исследовании [3]. С этой целью определим сначала оператор полного спина

$$\hat{J} = \hat{S} + \hat{I}$$

и на основе принципов квантовой теории углового момента построим векторы $|J, M_z, \tilde{n}\rangle$, являющиеся собственными векторами полного набора коммутирующих операторов $\hat{J}^2, \hat{J}_z, \hat{S}^2, \hat{I}^2$:

$$\begin{aligned} |2, 2\rangle &= |1, 1\rangle|1, 1\rangle, \\ |2, 1\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|1, 1\rangle|1, 0\rangle + |1, 0\rangle|1, 1\rangle), \\ |2, 0\rangle &= \frac{1}{\sqrt{6}}(|1, 1\rangle|1, -1\rangle + |1, -1\rangle|1, 1\rangle + 2|1, 0\rangle|1, 0\rangle), \\ |2, -1\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|1, -1\rangle|1, 0\rangle + |1, 0\rangle|1, -1\rangle), \\ |2, -2\rangle &= |1, -1\rangle|1, -1\rangle, \end{aligned} \quad (2)$$

$$\begin{aligned} |1, 1\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|1, 1\rangle|1, 0\rangle - |1, 0\rangle|1, 1\rangle), \\ |1, 0\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|1, 1\rangle|1, -1\rangle - |1, -1\rangle|1, 1\rangle), \\ |1, -1\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|1, -1\rangle|1, 0\rangle - |1, 0\rangle|1, -1\rangle), \end{aligned} \quad (3)$$

$$|0, 0\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}}(|1, 1\rangle|1, -1\rangle + |1, -1\rangle|1, 1\rangle - |1, 0\rangle|1, 0\rangle). \quad (4)$$

Несмотря на то, что в соотношениях (2)–(4) векторы допустимых состояний классифицированы по мультиплетам, отметим, что полный спин J не сохраняется, так как гамильтониан \hat{H} вида (1) не коммутирует с оператором \hat{J}^2 . Вместе с тем гамильтониан коммутирует с операторами проекции полного спина, квадрата электронного спина и квадрата спина ядра:

$$[\hat{H}, \hat{J}_z] = 0, [\hat{H}, \hat{S}^2] = 0, [\hat{H}, \hat{I}^2] = 0. \quad (5)$$

Следовательно, векторы основного состояния NV^- -центра характеризуются значением энергии E , проекцией полного спина M_z , электронным спином S и ядерным спином I . Поскольку для всех рассматриваемых состояний $S = I = 1$, то уравнение на собственные значения и собственные векторы гамильтониана (1) можно записать в виде

$$\hat{H} |E_{M_z}^{(i)}\rangle = E_{M_z}^{(i)} |E_{M_z}^{(i)}\rangle, \quad (6)$$

где индекс i вводится для того, чтобы различать состояния с одинаковым значением M_z и разными значениями энергии E .



Прежде всего, заметим, что векторы $|E_{\pm 2}\tilde{n}^0|2, \pm 2\tilde{n}$ удовлетворяют уравнению (6) с собственным значением

$$E_{\pm 2} = \frac{1}{3}D + A^{\parallel} + \frac{1}{3}P.$$

Состояние $|E^{(1)}_0 \tilde{n}^0|1, 0\tilde{n}$ также является стационарным состоянием с энергией

$$E_0^{(1)} = \frac{1}{3}D - A^{\parallel} + \frac{1}{3}P.$$

Допустимым стационарным состоянием с $M_z = 0$ выступает также суперпозиция вида

$$|E_0^{(i)}\rangle = c_1^{(i)}|0, 0\rangle + c_2^{(i)}|2, 0\rangle. \quad (7)$$

Подставляя (7) в (6) и решая полученное уравнение, находим уровни энергии

$$E_0^{(2)-} = \frac{1}{3}D - A^{\parallel} - A^{\perp} + \frac{1}{3}P,$$

$$E_0^{(3)-} = \frac{2}{3}D - 2A^{\perp} - \frac{2}{3}P$$

и соответствующие им состояния:

$$|E_0^{(2)}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|1, 1\rangle|1, -1\rangle + |1, -1\rangle|1, 1\rangle),$$

$$|E_0^{(3)}\rangle = |1, 0\rangle|1, 0\rangle.$$

Далее, линейные комбинации вида

$$|E_{\pm 1}^{(i)}\rangle = a_1^{(i)}|1, \pm 1\rangle + a_2^{(i)}|2, \pm 1\rangle \quad (8)$$

в силу принципа суперпозиции также представляют собой допустимые состояния с $M_z = \pm 1$. Подставляя (8) в (6) и решая полученное уравнение, находим уровни энергии

$$E_{\pm 1}^{(1)} = \frac{1}{3}D - A^{\perp} - \frac{2}{3}P,$$

$$E_{\pm 1}^{(2)} = -\frac{2}{3}D - A^{\perp} + \frac{1}{3}P$$

и соответствующие им состояния:

$$|E_{\pm 1}^{(1)}\rangle = |1, \pm 1\rangle|1, 0\rangle,$$

$$|E_{\pm 1}^{(2)}\rangle = |1, 0\rangle|1, \pm 1\rangle.$$

Таким образом, для гамильтониана (1) с учетом законов сохранения (5) найдены две группы стационарных состояний. Действительно, принимая во внимание $D \gg |A^{\parallel}|, |A^{\perp}|, |P|$, к первой группе (с энергиями около $1/3D$) можно отнести состояния $|E_{\pm 2}\tilde{n}$, $|E^{(1)}_{\pm 1}\tilde{n}$, $|E^{(1)}_0\tilde{n}$, $|E^{(2)}_0\tilde{n}$, ко



второй группе (с энергиями около $-2/3D$) — $|E^{(2)}_{\pm 1\tilde{n}}, |E^{(3)}_{0\tilde{n}}$. Излучательные переходы между этими состояниями подчиняются правилу отбора $\Delta M_z = \pm 1$ [3]. Основной пик резонанса на частоте $\nu_1 = 2876$ МГц соответствует переходу $|E^{(2)}_{\pm 1\tilde{n}} \ll |E^{(1)}_{0\tilde{n}}$.

Боковые резонансы соответствуют переходам $|E^{(2)}_{\pm 1\tilde{n}} \ll |E^{(2)}_{0\tilde{n}}$, $|E^{(2)}_{\pm 1\tilde{n}} \ll |E_{\pm 2\tilde{n}}$, $|E^{(3)}_{0\tilde{n}} \ll |E^{(1)}_{\pm 1\tilde{n}}$ с частотами $\nu_2 = 2878$ МГц, $\nu_3 = 2871$ МГц и $\nu_4 = 2873$ МГц соответственно. Таким образом, в тонкой структуре боковых резонансов в алмазе проявляется анизотропия сверхтонкого взаимодействия в NV^- -центре.

Список литературы

1. Doherty M. W., Dolde F., Fedder H. et al. Theory of the ground state spin of the NV^- center in diamond // Phys. Rev. 2012. Vol. B 85.
2. Simanovskaya M., Jensen K., Jarmolova A. et al. Sidebands in optically detected magnetic resonance signals of nitrogen vacancy centers in diamond // Phys. Rev. 2012. Vol. B 87.
3. Иванов А. И., Иванов А. А. К расчету спектров ядерного магнитного резонанса // Вестник Балтийского федерального университета им. И. Канта. 2015. Вып. 4. С. 7–11.

Об авторах

Алексей Иванович Иванов — д-р физ.-мат. наук, проф., Балтийский федеральный университет им. И. Канта, Калининград.
E-mail: AIvanov@kantiana.ru

Александр Алексеевич Иванов — асп., Балтийский федеральный университет им. И. Канта, Калининград.
E-mail: aivanov023@gmail.com

About the authors

Prof. Alexey Ivanov, I. Kant Baltic Federal University, Kaliningrad.
E-mail: AIvanov@kantiana.ru

Alexander Ivanov, PhD student, I. Kant Baltic Federal University, Kaliningrad.
E-mail: aivanov023@gmail.com