

Studio dell'effetto Zeeman su complessi azoto-vacanza in diamante

Matteo Barbagiovanni

Relatore: Dott. Jacopo Forneris

Correlatore: Dott. Sviatoslav Ditalia Tchernij

A.A. 2021 - 2022

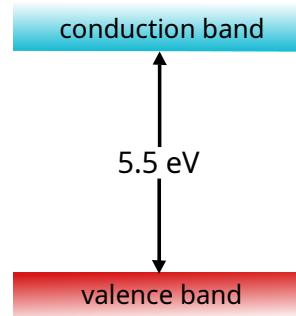


**UNIVERSITÀ
DI TORINO**

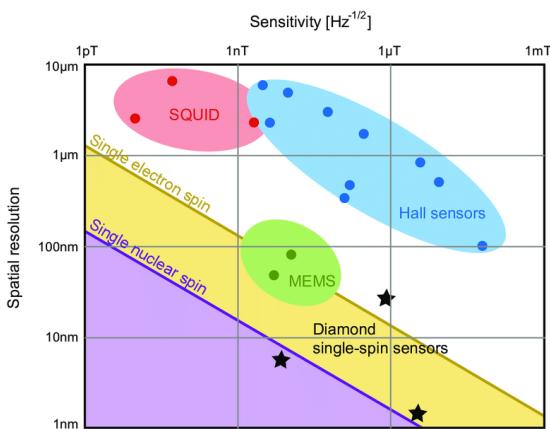
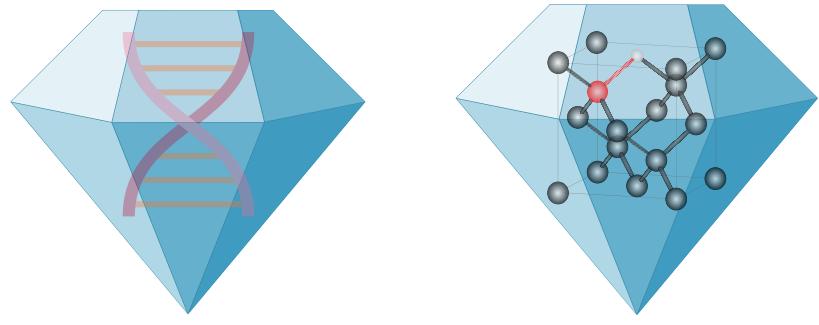
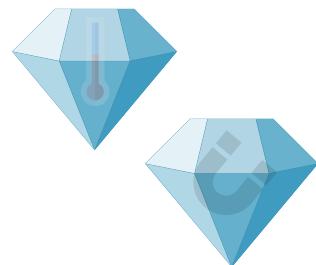
Difetti fotoluminescenti in diamante

- Perchè il diamante?

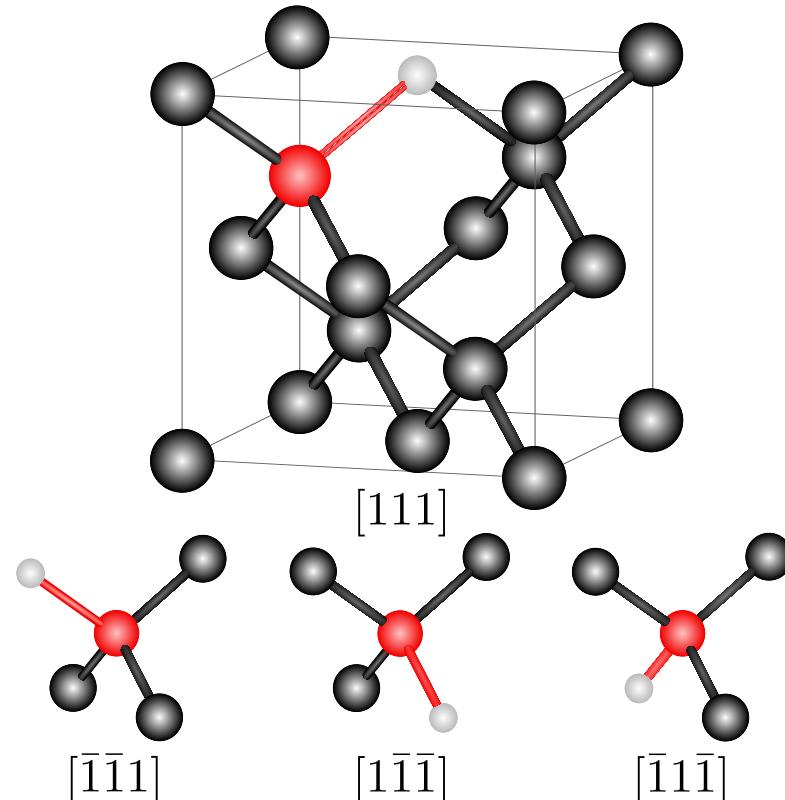
- $\Delta E_{gap} = 5.5 \text{ eV} \rightarrow \text{Isolante}$
- Biocompatibilità
- Alterazione reticolo cristallino



- Metrologia
 - Nano-termometria
 - Magnetometria

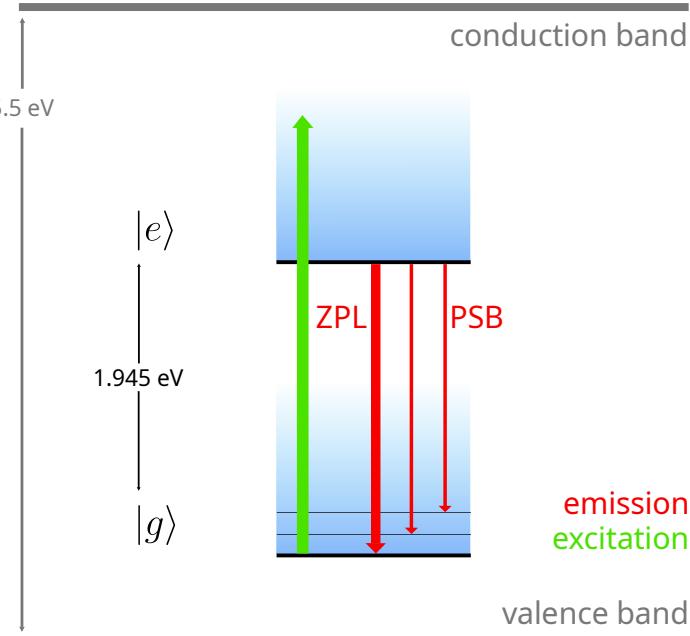
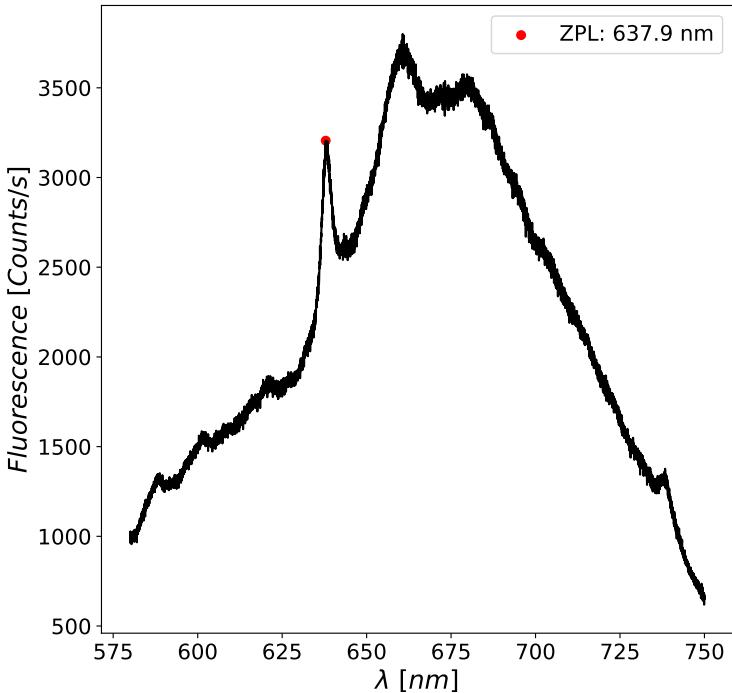


Proprietà cristallografiche



- Reticolo: fcc - base biatomica
- Difetto puntuale in diamante
- C – C sostituito da N = Vacanza
- 4 Orientazioni

Complesso azoto-vacanza

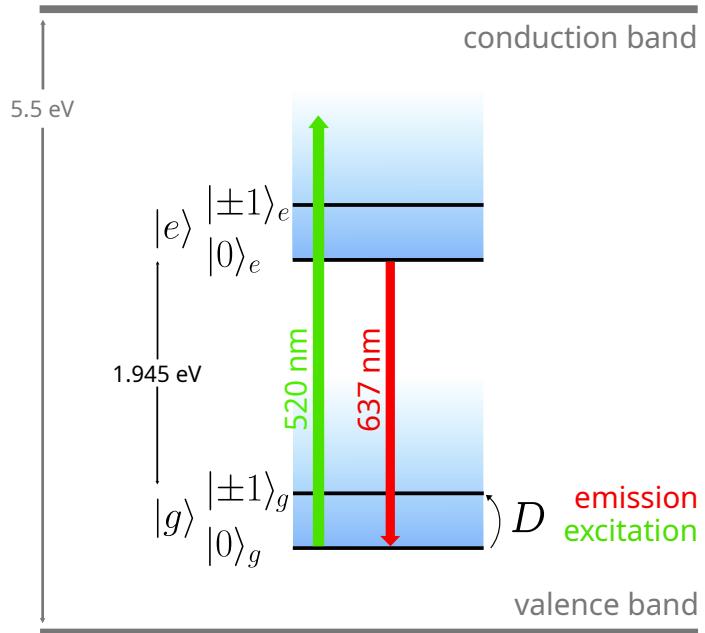


- Stato di carica NV^-
- Zero phonon line
 $ZPL = 637 \text{ nm}$
- Livelli energetici in band gap

Hamiltoniana dello stato fondamentale

$$\hat{H} = \hbar D \hat{S}_z^2$$

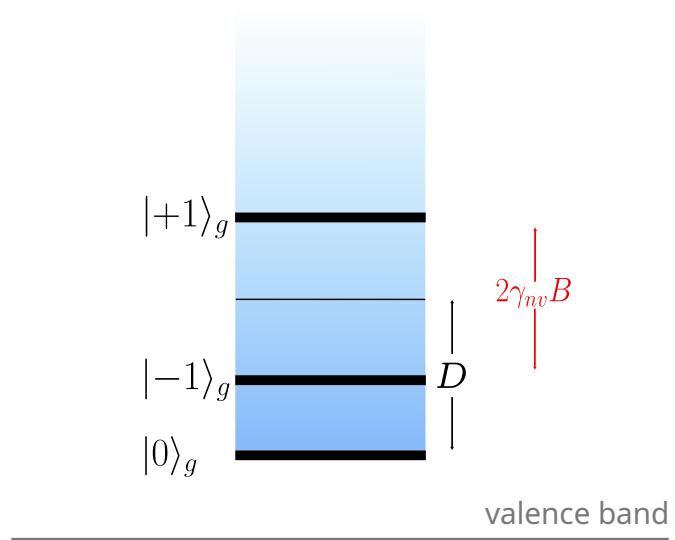
- Zero-field term
- $D = 2.87 \text{ GHz}$ Zero-field splitting
- Hamiltoniana dello stato fondamentale $|g\rangle$
- Tripletto di spin $m_s = 0, \pm 1$



Hamiltoniana dello stato fondamentale

$$\hat{H} = \hbar D \hat{S}_z^2 + \hbar \gamma_{nv} \vec{B} \cdot \hat{\vec{S}}$$

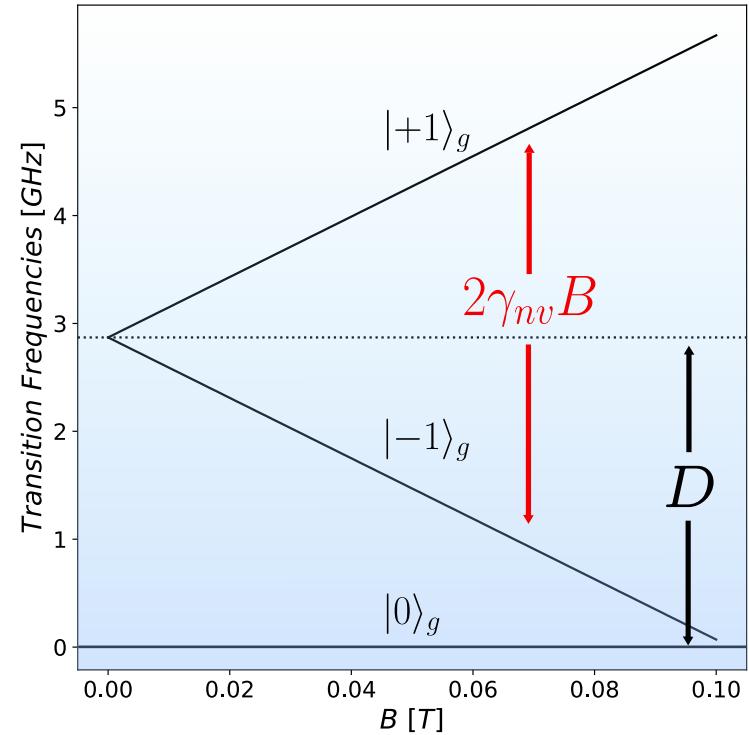
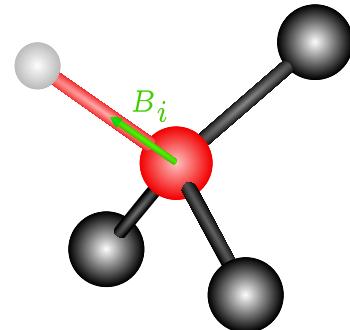
- Magnetic interaction term
- $\gamma_{nv} = g_e \mu_B = 28 \frac{GHz}{T}$ Gyromagnetic Ratio
- Autovalori \hat{H} hanno dipendenza lineare da B_z
- Degenerazione $m_s = \pm 1$ rimossa da B



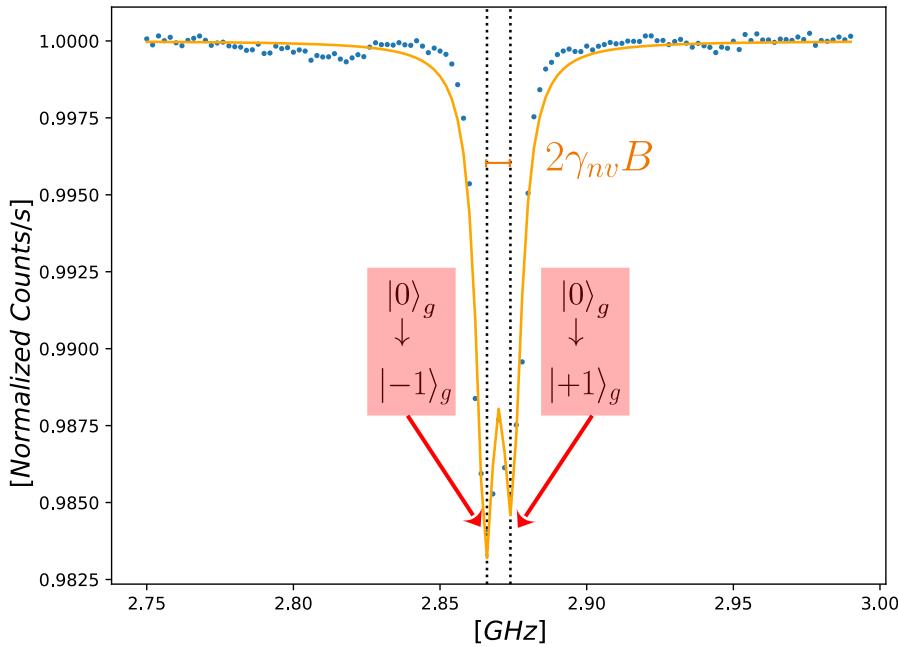
Effetto Zeeman sullo stato fondamentale

$$\hat{H} = \hbar D \hat{S}_z^2 + \hbar \gamma_{nv} B_z \hat{S}_z$$

- Allineamento tra B_z e l'asse del complesso NV
- Splitting Zeeman
 - $\Delta\nu_{[m_s=+1]} = +\gamma_{nv} |\vec{B} \cdot \hat{u}|$
 - $\Delta\nu_{[m_s=-1]} = -\gamma_{nv} |\vec{B} \cdot \hat{u}|$
 - $\Delta\nu_{[m_s=0]} = 0$

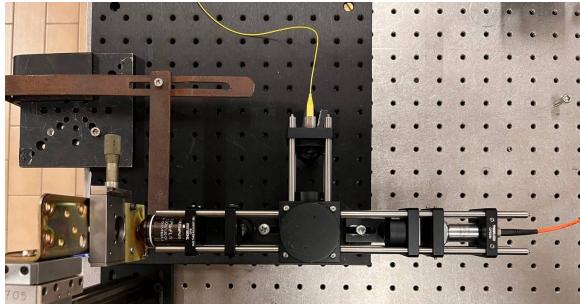


Lettura ottica dello stato di spin

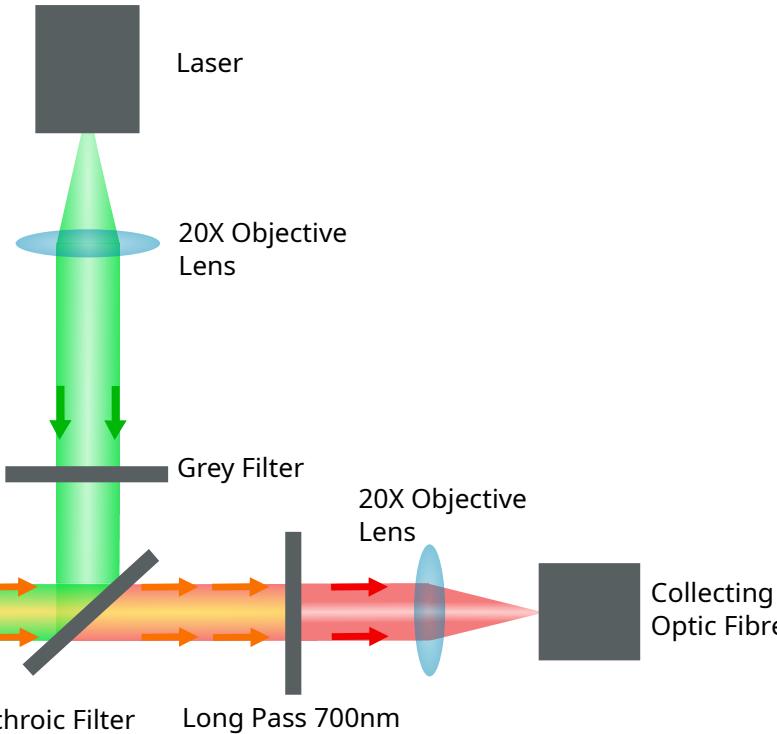
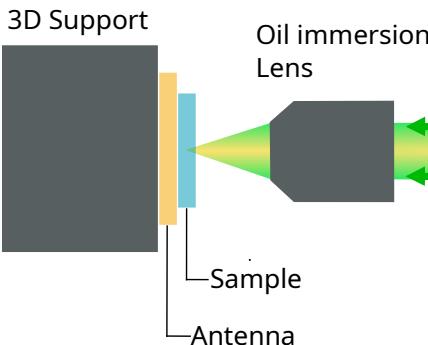


- ODMR (optically detected magnetic resonance)
 - Misura diretta splitting Zeeman per B esterno
 - Laser [520 nm] per eccitazione ottica
 - Antenna MW: Scorrimento in frequenze
 - Transizione $m_s = 0 \leftrightarrow m_s = \pm 1$ quando si ha risonanza
 - Decrescita nella fotoluminescenza del complesso NV
 - I picchi di risonanza rappresentano $m_s = \pm 1$

Microscopio confocale

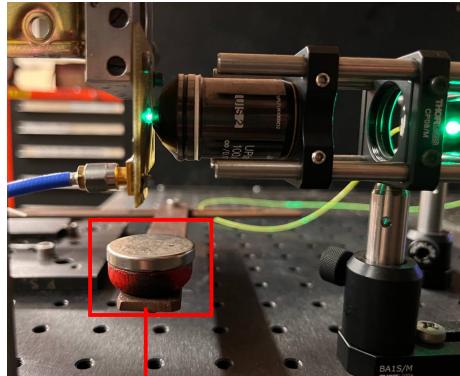


X
y
z

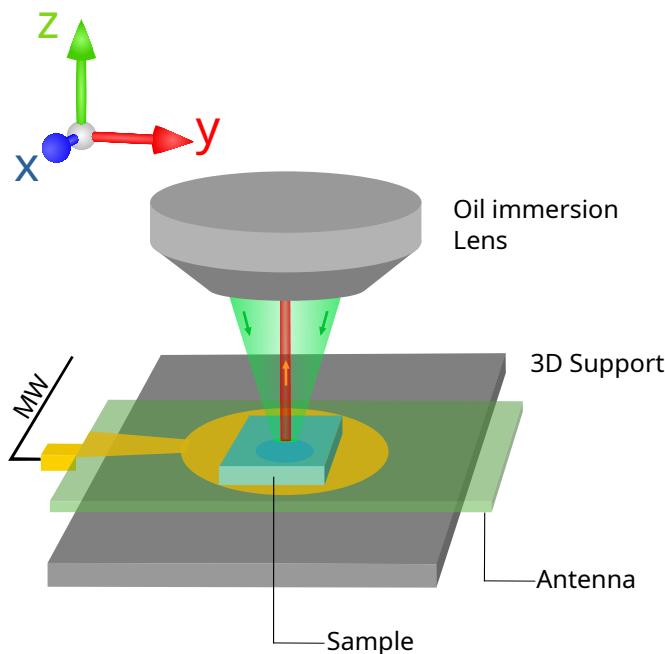


- Laser 520 nm
- Visione singolo punto del campione
 - Sezione ottica
 - Indagine tridimensionale
- Aumento risoluzione e profondità di campo

Erogazione di microonde



External Magnet



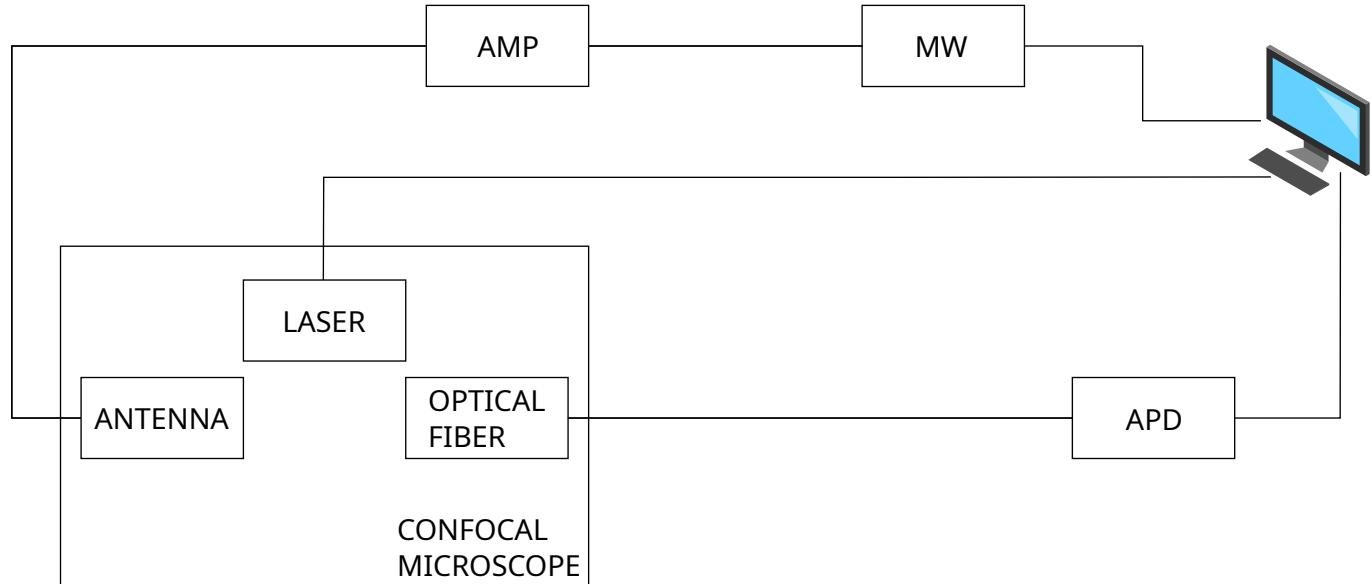
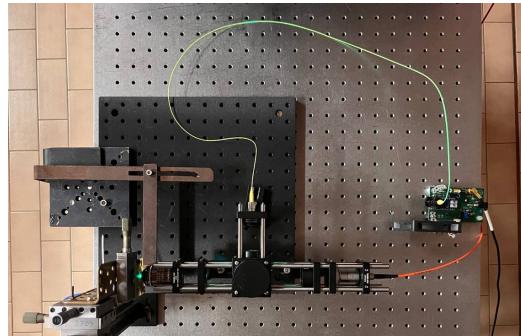
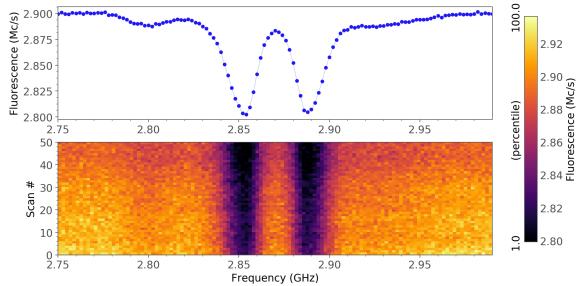
- Antenna MW

- Ottimizzata per l'invio di microonde per il controllo dello spin del complesso NV
- Genera un campo magnetico omogeneo nella zona occupata dal campione

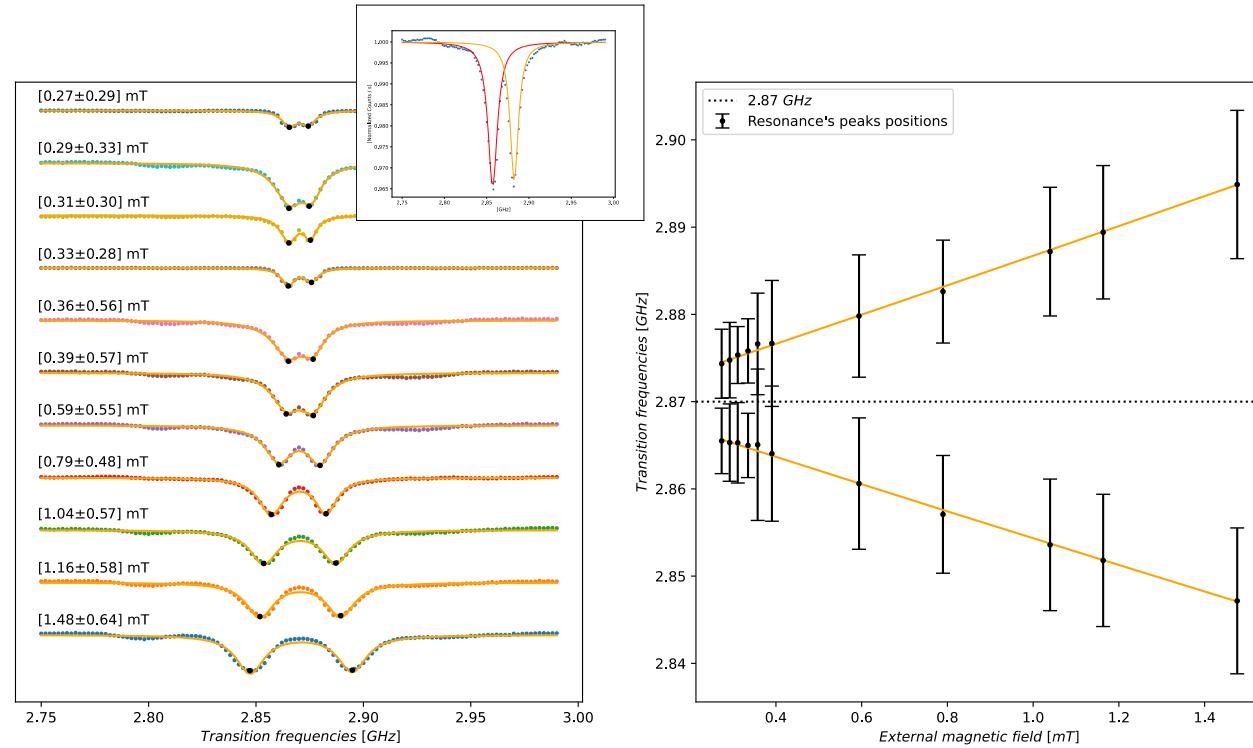
- Campione

- Diamante CVD [Chemical Vapour Deposition]
- $[N] = 10 \text{ ppm}$; $[\text{NV}] = 1 \% [\text{N}]$
- $1000 \text{ centri } \text{NV}/\mu\text{m}^3$

Configurazione di lavoro

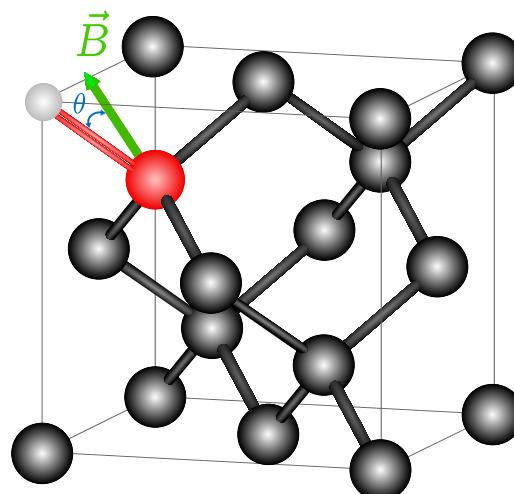
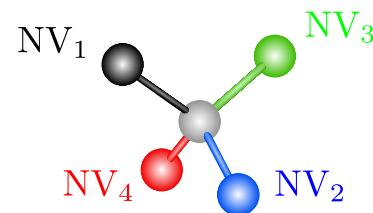
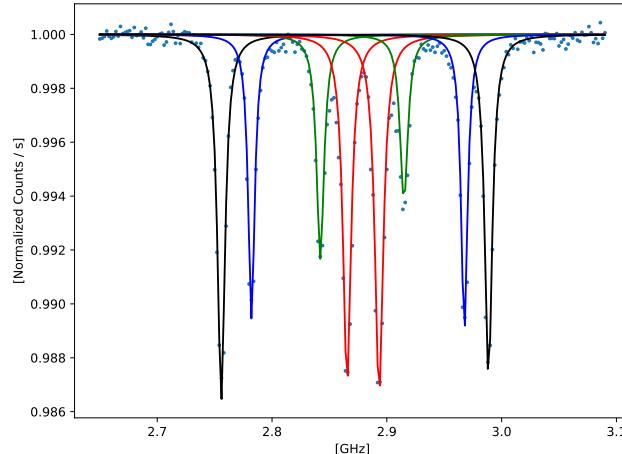


Magnetometria ODMR con campo magnetico omogeneo



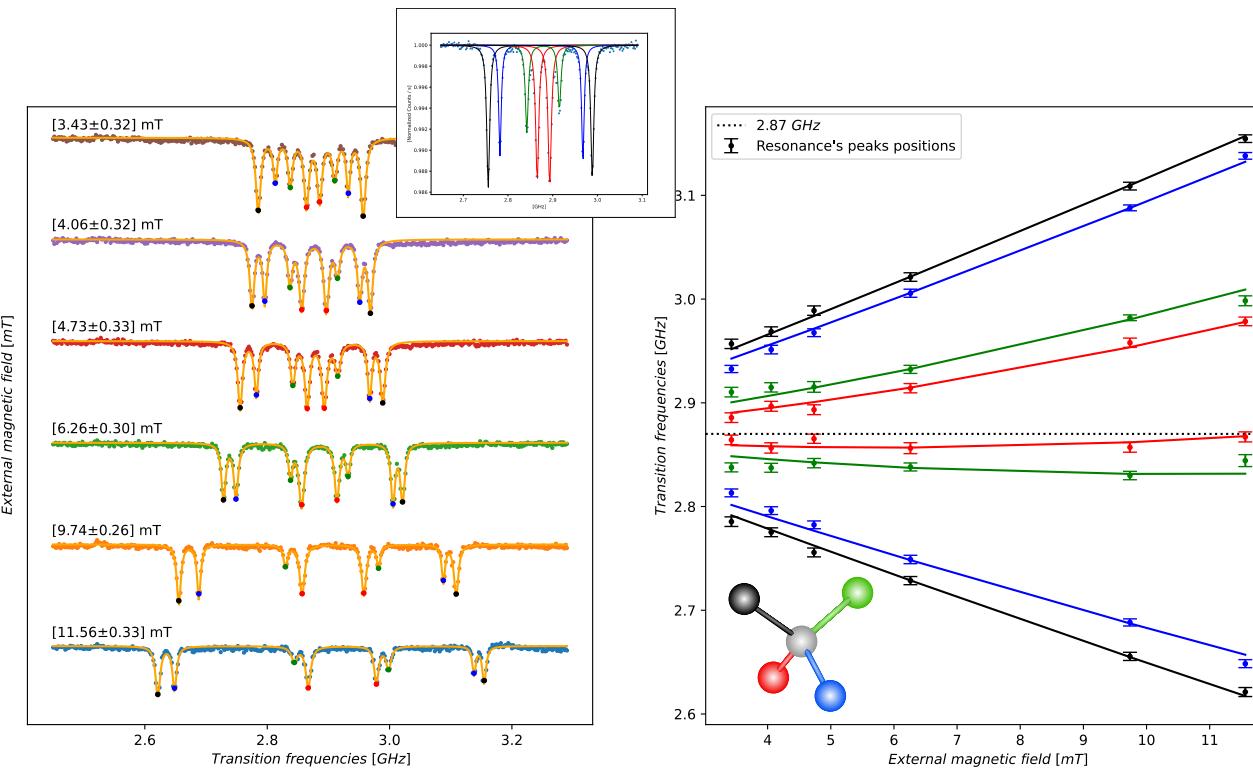
- Campo magnetico omogeneo nelle 4 direzioni del difetto
 - Lo splitting Zeeman è uguale in ogni orientazione
- Gli spettri sono fittati con lorenziane
 - $\Delta\nu_i = \nu_{i[+1]} - \nu_{i[-1]}$
 - $B_i = \Delta\nu_i / 2\gamma_{nv}$
- Andamento teorico verificato
- Validazione con sonda di Hall
- Le incertezze sovradimensionate dipendono dalle frequenze degeneri

Direzionalità del campo magnetico



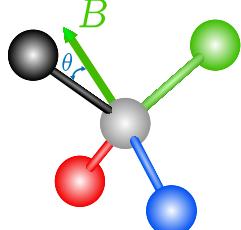
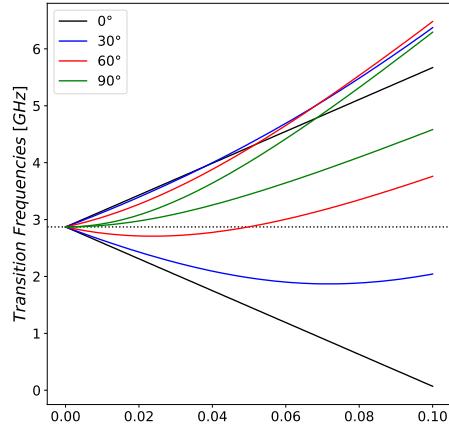
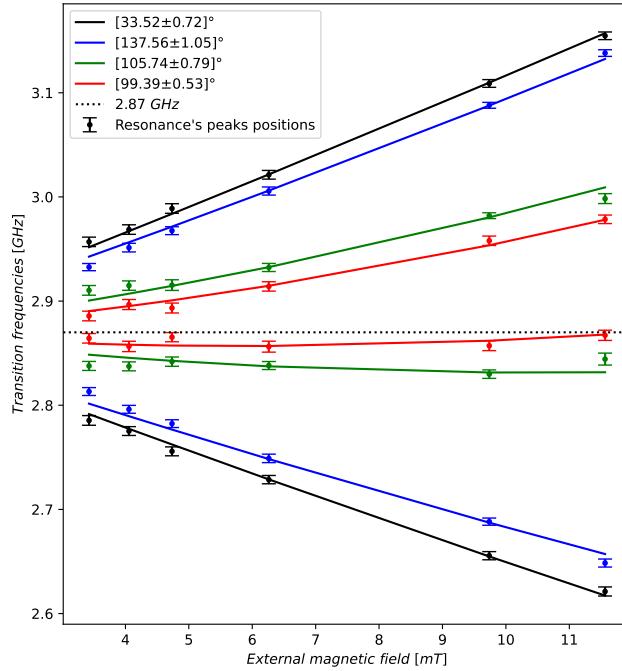
- Proiezioni di \vec{B} differenti in modulo lungo le 4 orientazioni del complesso
- Si osservano 4 coppie di frequenze di risonanza $[NV_i]$
 - $\vec{B} \cdot \hat{u}_i = \Delta\nu_i / 2\gamma_{nv} = B_i$

Magnetometria ODMR con campo magnetico disomogeneo



- Campo magnetico differente nelle 4 direzioni del difetto
 - Lo splitting Zeeman è differente in ogni orientazione
- Magnete avvicinato gradualmente
- Gli spettri sono fittati con lorenziane
 - $\begin{cases} \vec{B} \cdot \hat{u}_1 = B_1 \\ \vec{B} \cdot \hat{u}_2 = B_2 \\ \vec{B} \cdot \hat{u}_3 = B_3 \end{cases} \xrightarrow[\text{check}]{\text{sign}} \vec{B} \cdot \hat{u}_4 = B_4$
- Andamento teorico verificato

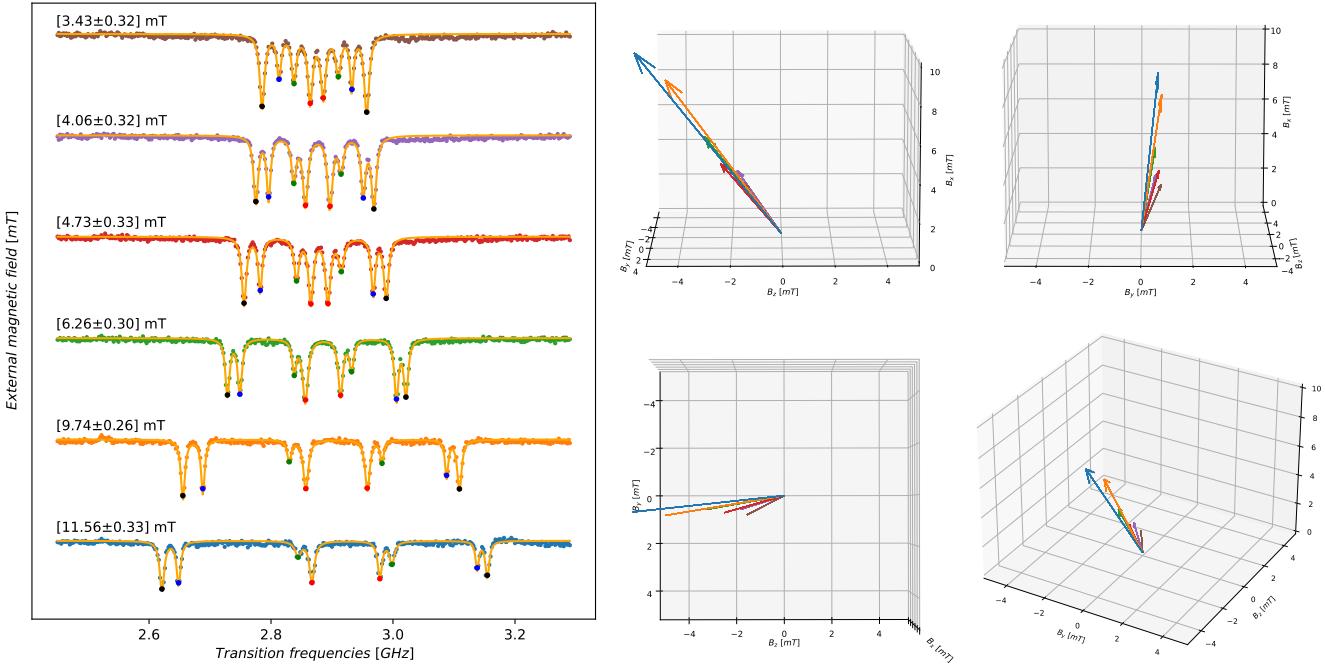
Considerazioni aggiuntive sull'hamiltoniana



$$\hat{H} = \overbrace{D\hat{S}_z^2 + \gamma_{nv}B_z\hat{S}_z}^{H_{||}} + \overbrace{\gamma_{nv}(B_x\hat{S}_x + B_y\hat{S}_y)}^{H_{\perp}}$$

- $H_{\perp} \ll H_{||}$ non più verificata
 - B_{\perp} induce mixing degli spin elettronici
 - Spin proiettato sull'asse del complesso non è più un buon numero quantico
 - Autostati sono sovrapposizioni $m_s = 0, \pm 1$

Magnetometria vettoriale



- Dalle informazioni precedenti si estrapolano $[B_x \ B_y \ B_z]$
 - Rappresentazione vettoriale del campo magnetico
 - Disposizione vettori coerente con la movimentazione del magnete

Conclusioni

Risultati ottenuti:

- Partendo dalla fotoluminescenza di un campione monocristallino in diamante con difetto puntuale si è fatta magnetometria vettoriale a temperatura ambiente [risoluzione di 0.3 mT]
 - Implementazione sperimentale di un apparato di microscopia confocale per la magnetometria
 - Validazione dell'apparato con campagna di misure sistematiche
 - Ricostruzione di intensità e direzione del campo magnetico

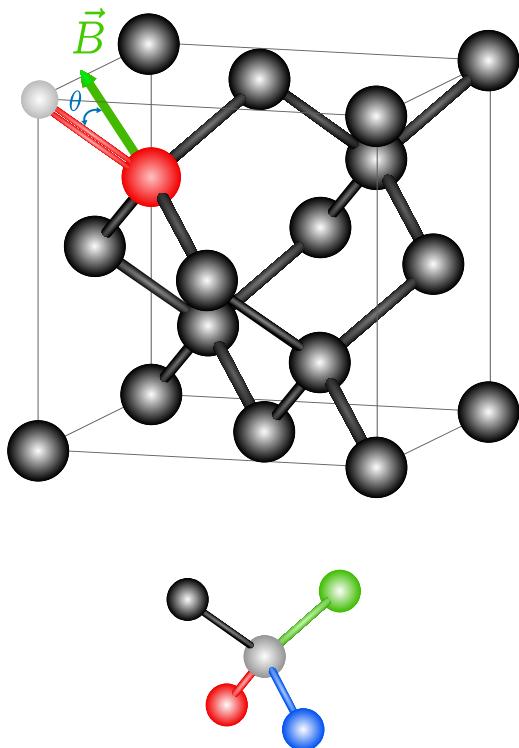
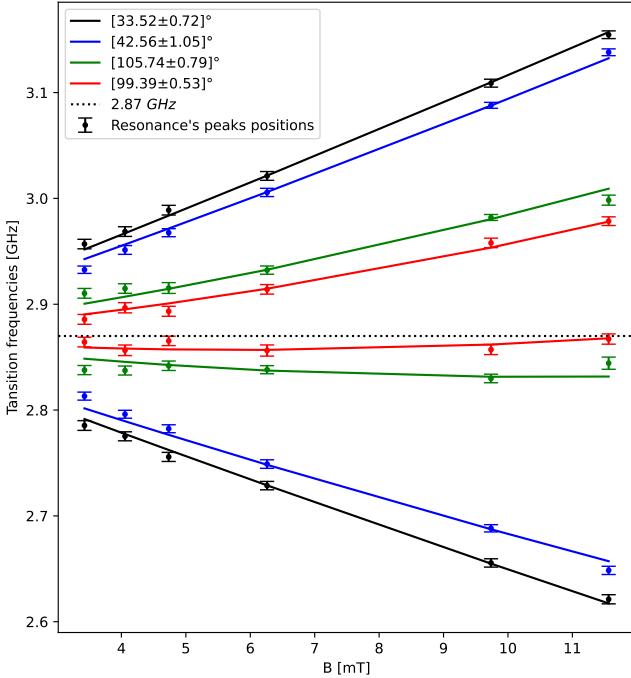
Prospettive future:

- Setup sperimentale con l'aggiunta di elettronica di controllo con risoluzione temporale $O(ns)$
 - Controllo coerente sullo stato di spin dell'ensemble di difetti
 - Incremento della risoluzione magnetica con tecniche di readout di spin
 - Processamento informazione quantistica
 - QBIT

Fonti

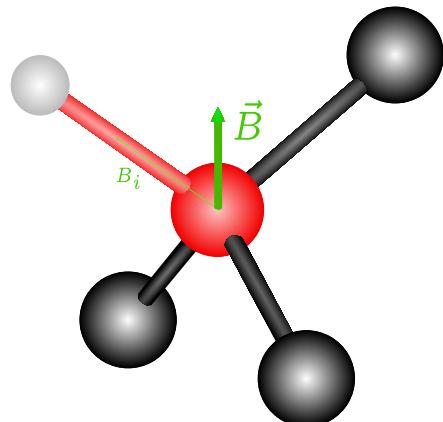
- **Magnetometry with nitrogen-vacancy defects in diamond**
(Rondin, Tetienne, Hingant, Roch, Maletinsky, Jacques)
- **Magnetic resonance with nitrogen-vacancy centers in diamond—microwave engeneering, materials science, and magnetometry**
(Abe, Sasaki)
- **Coherent control of NV centers in diamond in a quantum teaching lab**
(Sewani, Hyma, Vallabhapurapu, Yang)

Angolazione tra campo e centro NV



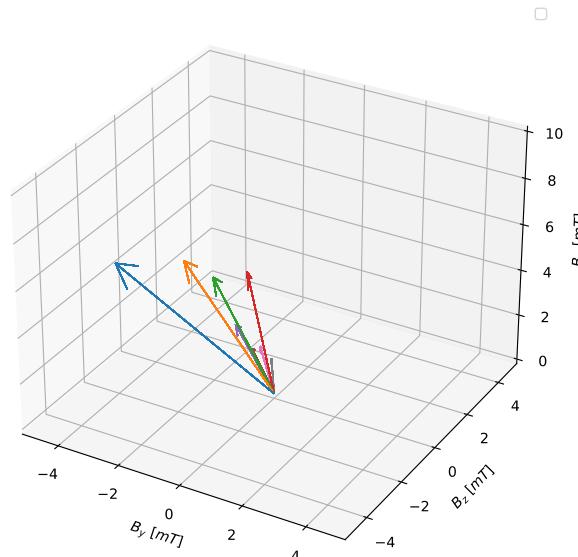
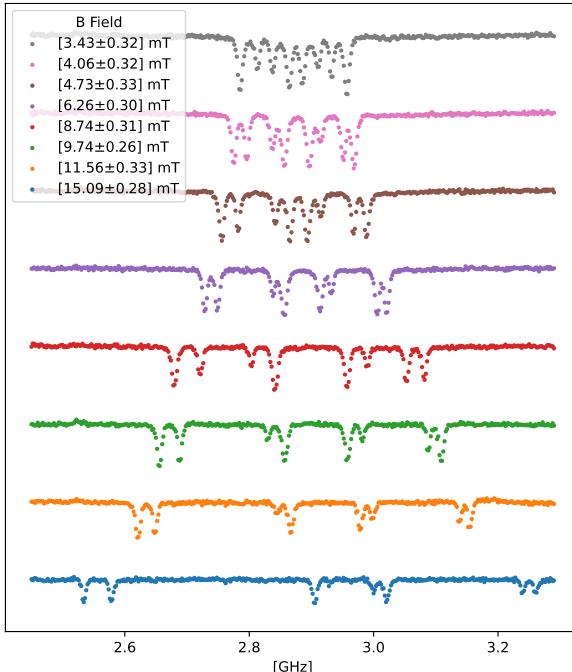
- Dal modello teorico si estraggono gli angoli tra il vettore campo ed il singolo complesso rappresentato dalle relative coppie di frequenze
- Angolazioni perfettamente compatibili con la struttura geometrica del cristallo

Calcolo vettore di B



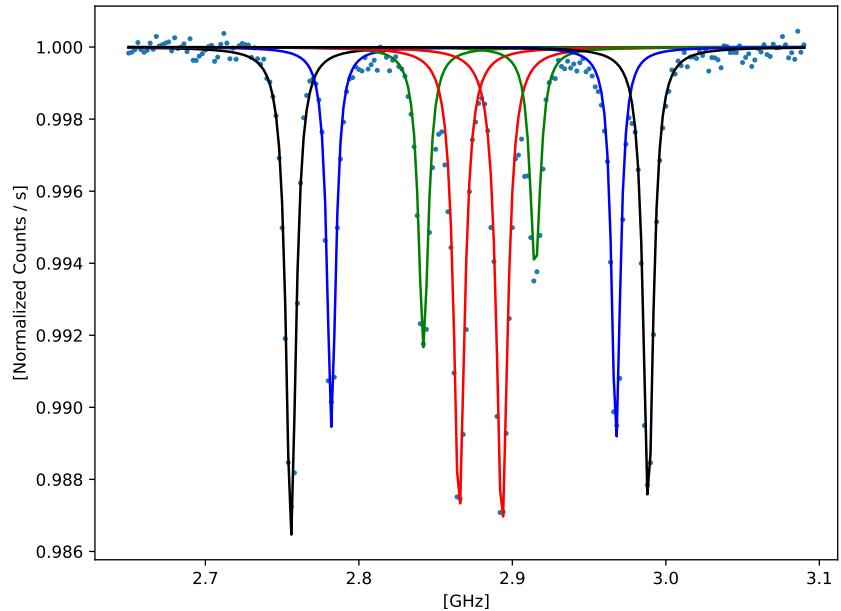
- Calcolo delle permutazioni dei versori (segno compreso)
 - $[\hat{u}_1, \hat{u}_2, \hat{u}_3, \hat{u}_4]; [-1, -1, 1, 1]$
- $\begin{cases} \vec{B} \cdot \hat{u}_{list}[i]_1 = B_1 \\ \vec{B} \cdot \hat{u}_{list}[i]_2 = B_2 \\ \vec{B} \cdot \hat{u}_{list}[i]_3 = B_3 \end{cases}$
- Seleziono la permutazione per cui la differenza percentuale tra $\vec{B} \cdot \hat{u}_{list}[i]_4$ e B_4 è minore

Calcolo vettore B per risonanze non degeneri



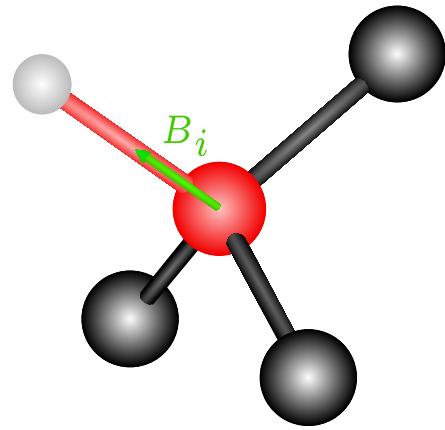
- Calcolo vettore campo dalle singole componenti

Splitting in caso di B disallineato



- Le 4 orientazioni del complesso subiscono effetti di splitting differenti
- Dalle 4 coppie di risonanze si ricavano le componenti di B lungo i centri del campione
- Nel caso di due soli picchi si ha degenerazione delle quattro risonanze nella stessa frequenza

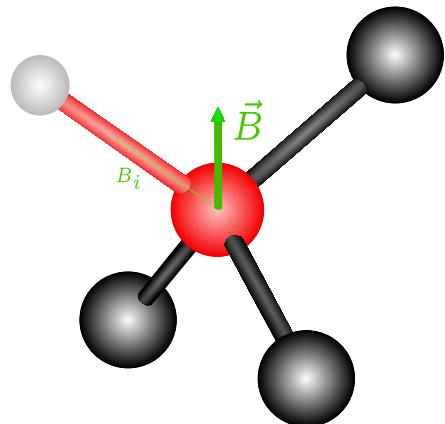
Calcolo componente di B



- Vettore B_i allineato con l'asse del centro NV
- Calcolo della singola componente:

$$\begin{cases} \Delta\nu_i = \nu_i[+1] - \nu_i[-1] \\ B_i = \Delta\nu_i / \gamma_{nv} \end{cases}$$

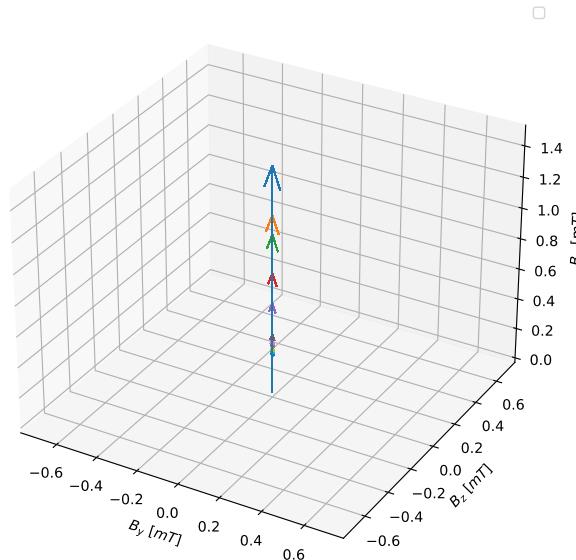
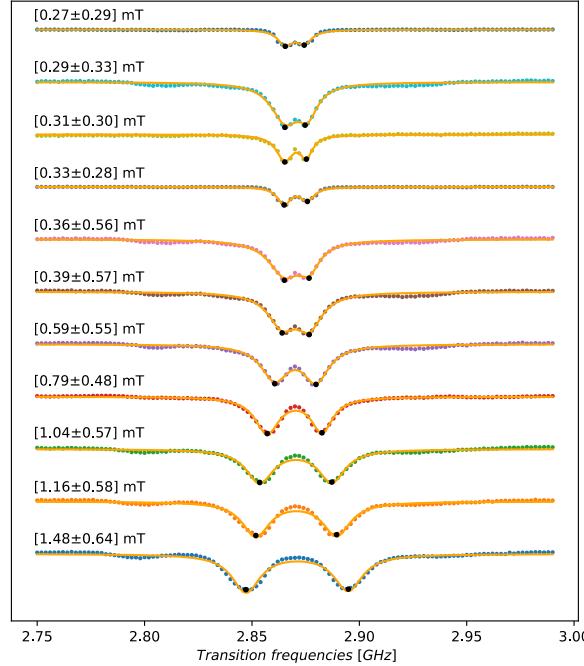
Calcolo vettore di B



- Calcolo delle permutazioni dei versori (segno compreso)
 - $[\hat{u}_1, \hat{u}_2, \hat{u}_3, \hat{u}_4]; [-1, -1, 1, 1]$
- $$\begin{cases} \vec{B} \cdot \hat{u}_{list}[i]_1 = B_1 \\ \vec{B} \cdot \hat{u}_{list}[i]_2 = B_2 \\ \vec{B} \cdot \hat{u}_{list}[i]_3 = B_3 \end{cases}$$
- Seleziono la permutazione per cui la differenza percentuale tra $\vec{B} \cdot \hat{u}_{list}[i]_4$ e B_4 è minore

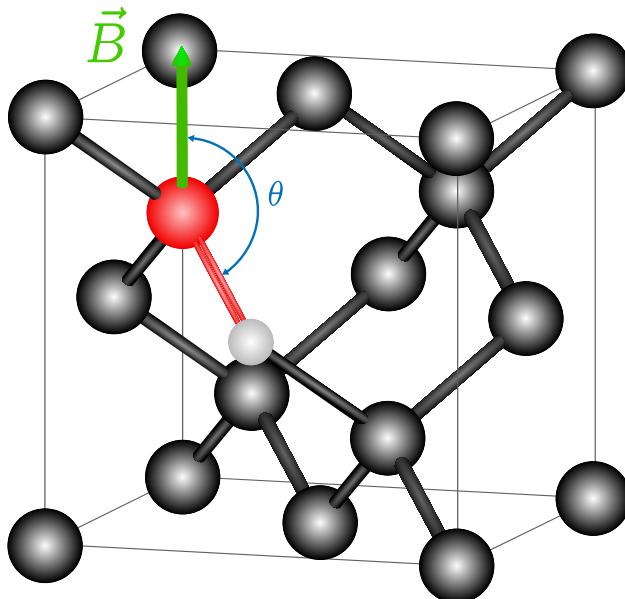
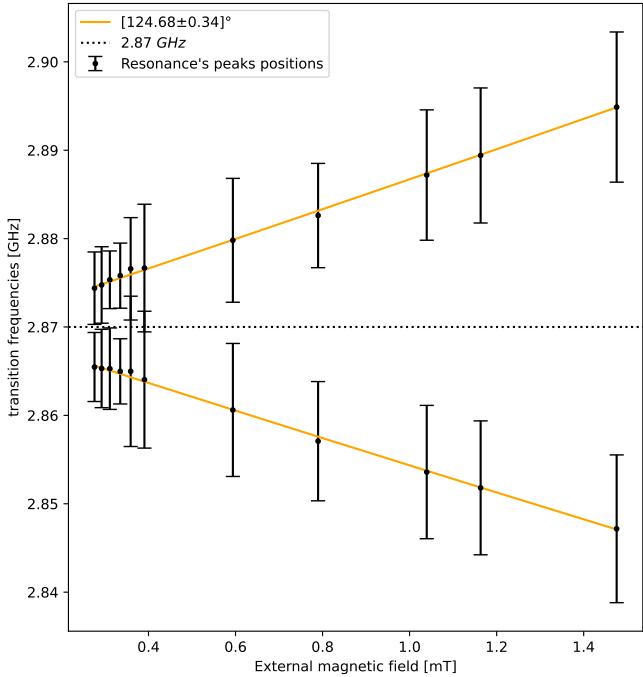
Calcolo vettore B per risonanze degeneri

External magnetic field [mT]



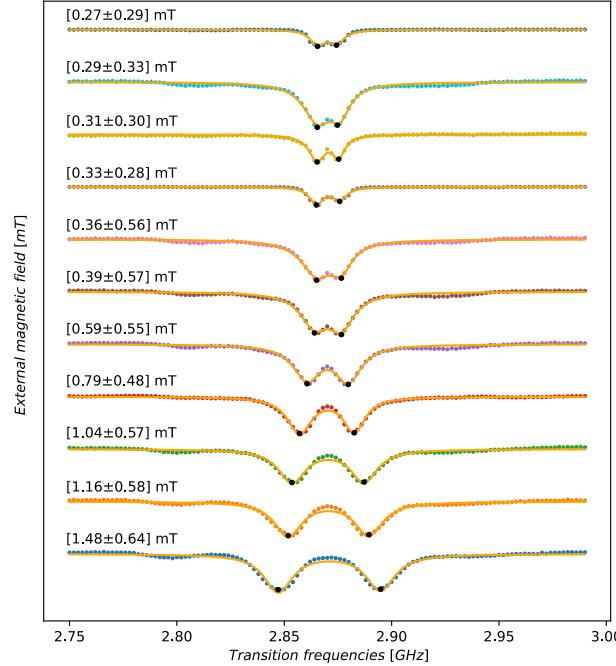
- 4 Risonanze degeneri
- B_i tutti uguali in modulo
- Incertezza sulla direzione da attribuire

Angolazione tra campo e centro NV



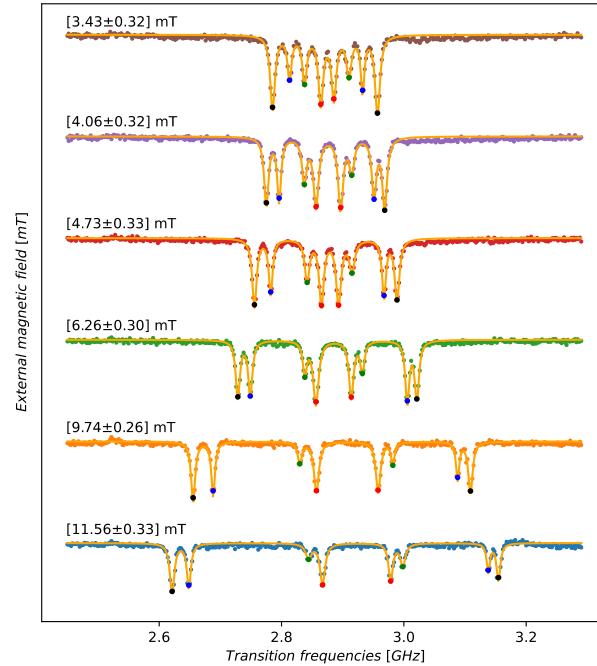
- Gli angoli teoricamente accettabili affinchè i moduli B_i siano identici sono:
 - $\theta_1 = 109.5^\circ / 2 = 54.75^\circ$
 - $\theta_2 = 180^\circ - 54.75^\circ = 125.5^\circ$

Calcolo vettore B per risonanze degeneri



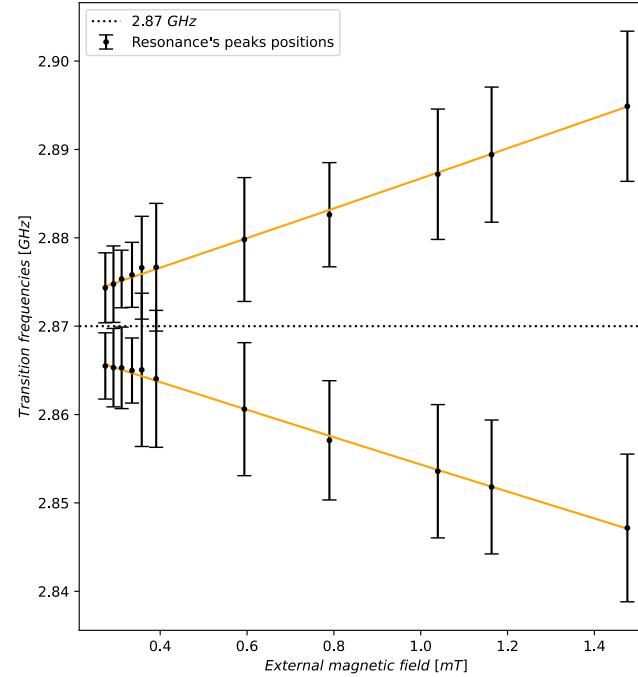
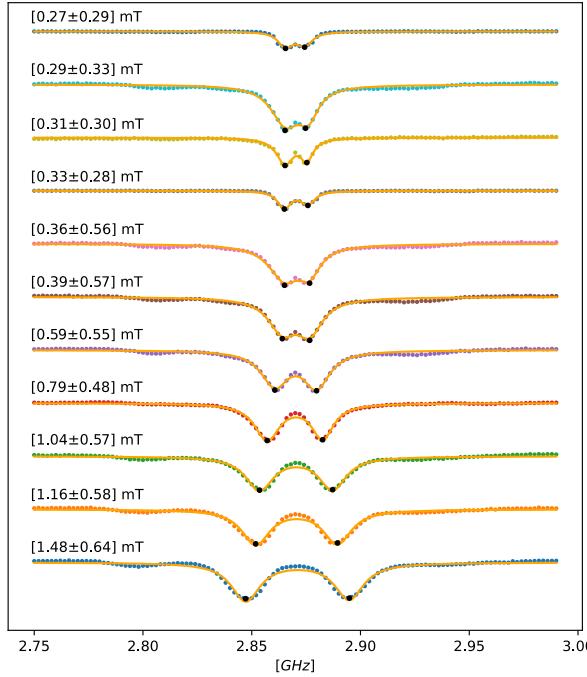
Calculated			Hall	
B_x [mT]	B_y [mT]	B_z [mT]	B_x [mT]	B_z [mT]
0.27 ± 0.17	0.00 ± 0.17	0.00 ± 0.17	0.27 ± 0.01	0.13 ± 0.01
0.29 ± 0.19	0.00 ± 0.19	0.00 ± 0.19	0.28 ± 0.01	0.15 ± 0.01
0.31 ± 0.17	0.00 ± 0.17	0.00 ± 0.17	0.30 ± 0.01	0.17 ± 0.01
0.33 ± 0.16	0.00 ± 0.16	0.00 ± 0.16	0.30 ± 0.01	0.14 ± 0.01
0.36 ± 0.32	0.00 ± 0.32	0.00 ± 0.32	0.32 ± 0.02	0.11 ± 0.01
0.39 ± 0.33	0.00 ± 0.33	0.00 ± 0.33	0.38 ± 0.02	0.21 ± 0.01
0.59 ± 0.32	0.00 ± 0.32	0.00 ± 0.32	0.58 ± 0.03	0.21 ± 0.01
0.79 ± 0.28	0.00 ± 0.28	0.00 ± 0.28	0.80 ± 0.04	0.30 ± 0.01
1.04 ± 0.33	0.00 ± 0.33	0.00 ± 0.33	0.90 ± 0.04	0.30 ± 0.01
1.16 ± 0.33	0.00 ± 0.33	0.00 ± 0.33	1.10 ± 0.06	0.22 ± 0.01

Calcolo vettore B per risonanze degeneri



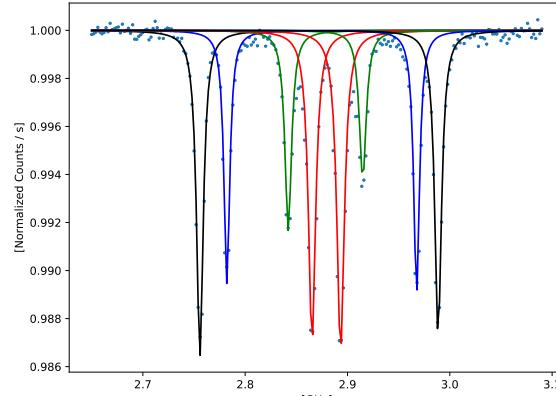
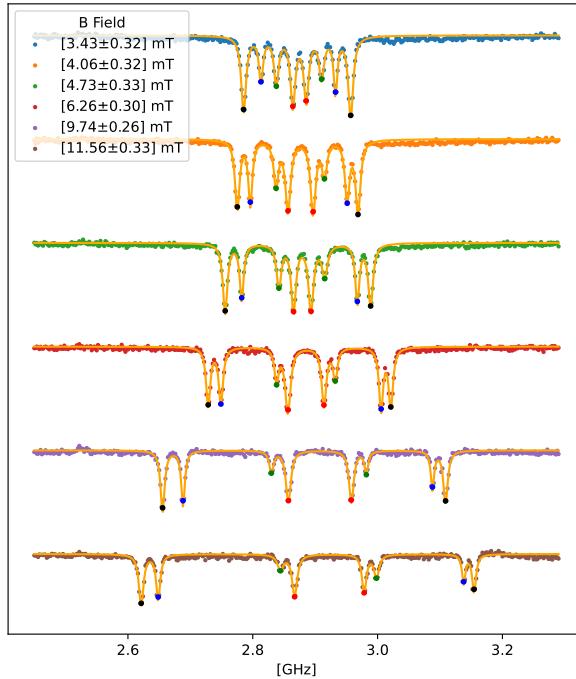
Calculated			Hall	
B_x [mT]	B_y [mT]	B_z [mT]	B_x [mT]	B_z [mT]
3.60 ± 0.18	0.58 ± 0.19	-1.78 ± 0.18	3.50 ± 0.17	-1.70 ± 0.09
4.00 ± 0.18	0.70 ± 0.20	-2.43 ± 0.19	4.10 ± 0.20	-2.40 ± 0.12
5.42 ± 0.18	0.56 ± 0.17	-3.08 ± 0.17	5.30 ± 0.27	-3.00 ± 0.15
8.01 ± 0.19	1.09 ± 0.18	-3.33 ± 0.18	7.80 ± 0.39	-3.40 ± 0.17
8.53 ± 0.15	0.79 ± 0.16	-4.62 ± 0.15	8.00 ± 0.40	-4.70 ± 0.23
9.95 ± 0.17	0.66 ± 0.20	-5.85 ± 0.19	9.90 ± 0.49	-5.70 ± 0.28
12.01 ± 0.15	0.68 ± 0.16	-9.12 ± 0.17	11.70 ± 0.58	-9.00 ± 0.45

Angolazione tra campo e centro NV

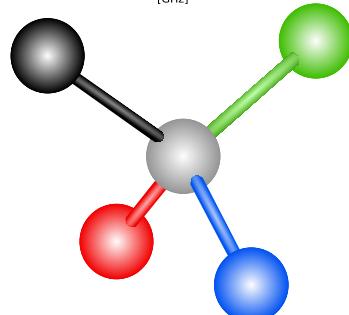


- Le posizioni dei picchi di risonanza rispettano l'andamento teorico
- Le incertezze sovradimensionate dipendono dalla sovrapposizione delle 4 coppie di risonanze

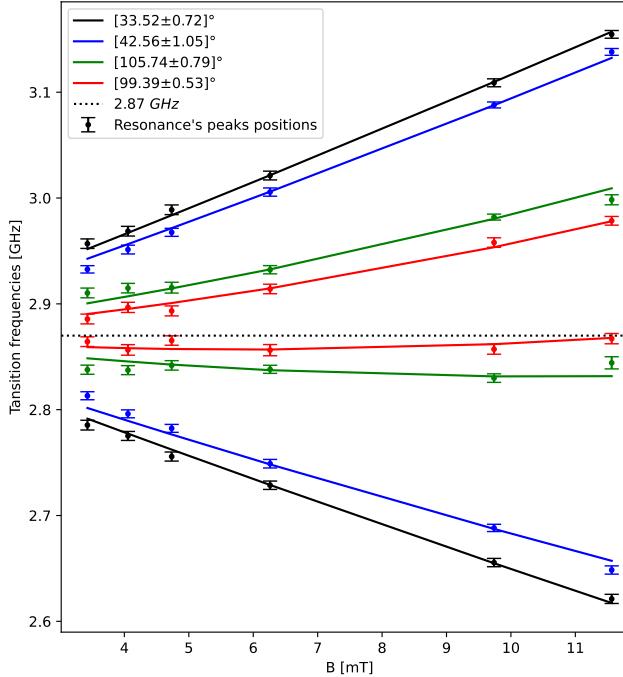
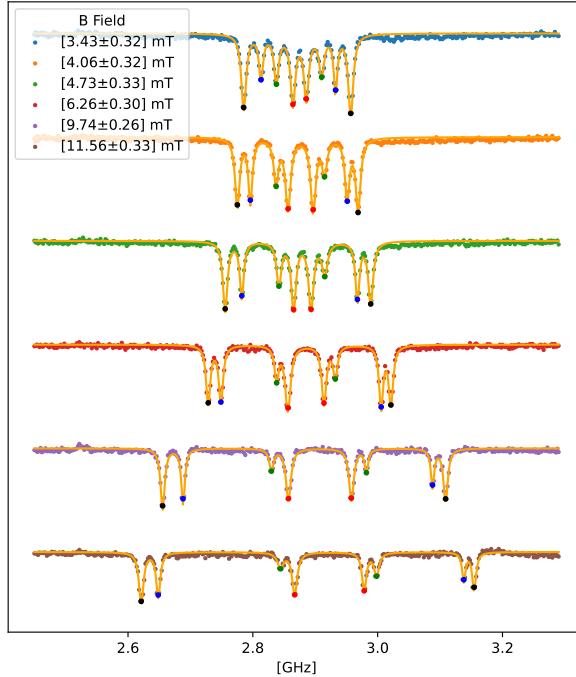
Angolazione tra campo e centro NV



- Campo magnetico non omogeneo nelle 4 orientazioni
- Capacità di risoluzione maggiore dovuta alla rottura della degenerazione

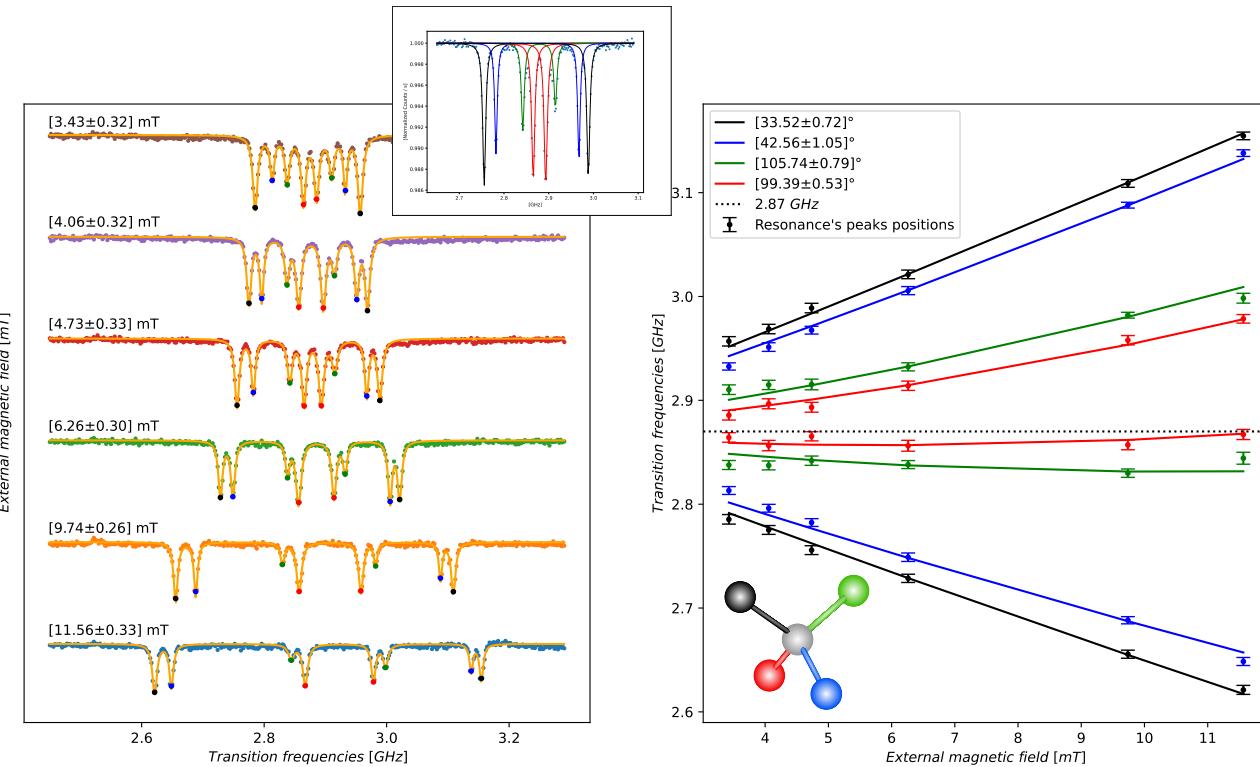


Angolazione tra campo e centro NV



- Le posizioni dei picchi di risonanza rispettano l'andamento teorico
- Capacità di risoluzione maggiore dovuta alla rottura della degenerazione

Spettri ODMR



- Campo magnetico differente nelle 4 direzioni del difetto
 - Lo splitting Zeeman è differente in ogni orientazione
- Gli spettri sono fittati con lorenziane
 - $\begin{cases} \vec{B} \cdot \hat{u}_1 = B_1 \\ \vec{B} \cdot \hat{u}_2 = B_2 \\ \vec{B} \cdot \hat{u}_3 = B_3 \end{cases}$
 - Andamento teorico verificato
 - Le incertezze non sovradimensionate, non c'è degenerazione