

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

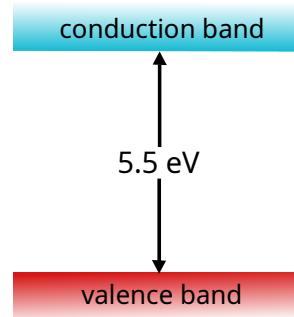


**UNIVERSITÀ
DI TORINO**

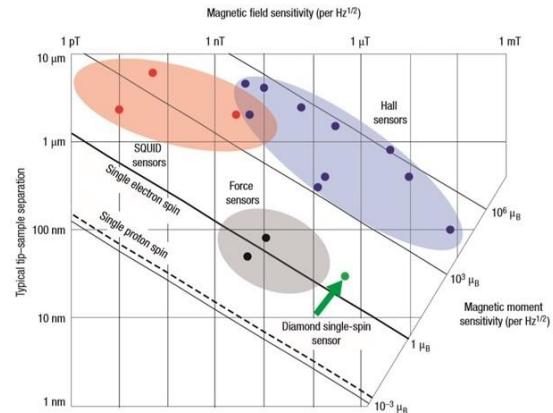
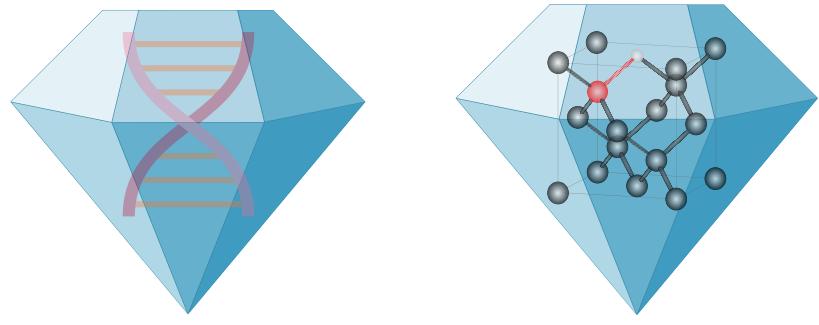
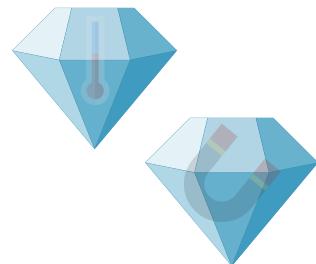
Difetti fotoluminescenti in diamante

- Perchè il diamante?

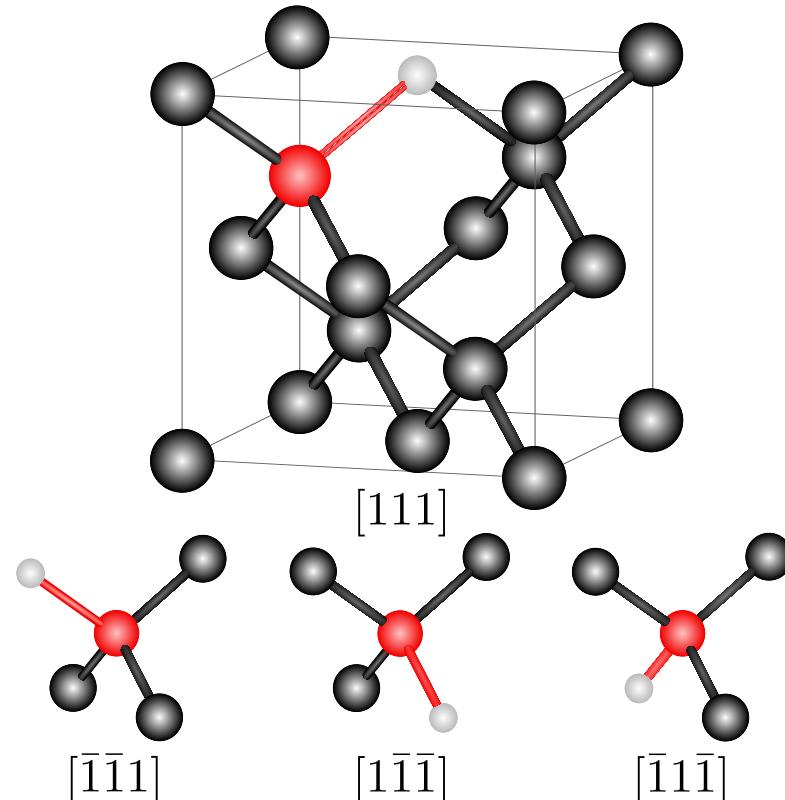
- $\Delta E_{gap} = 5.5 \text{ eV} \rightarrow \text{Isolante}$
- Biocompatibilità
- Alterazione reticolo cristallino



- Metrologia
 - Nano-termometria
 - Magnetometria

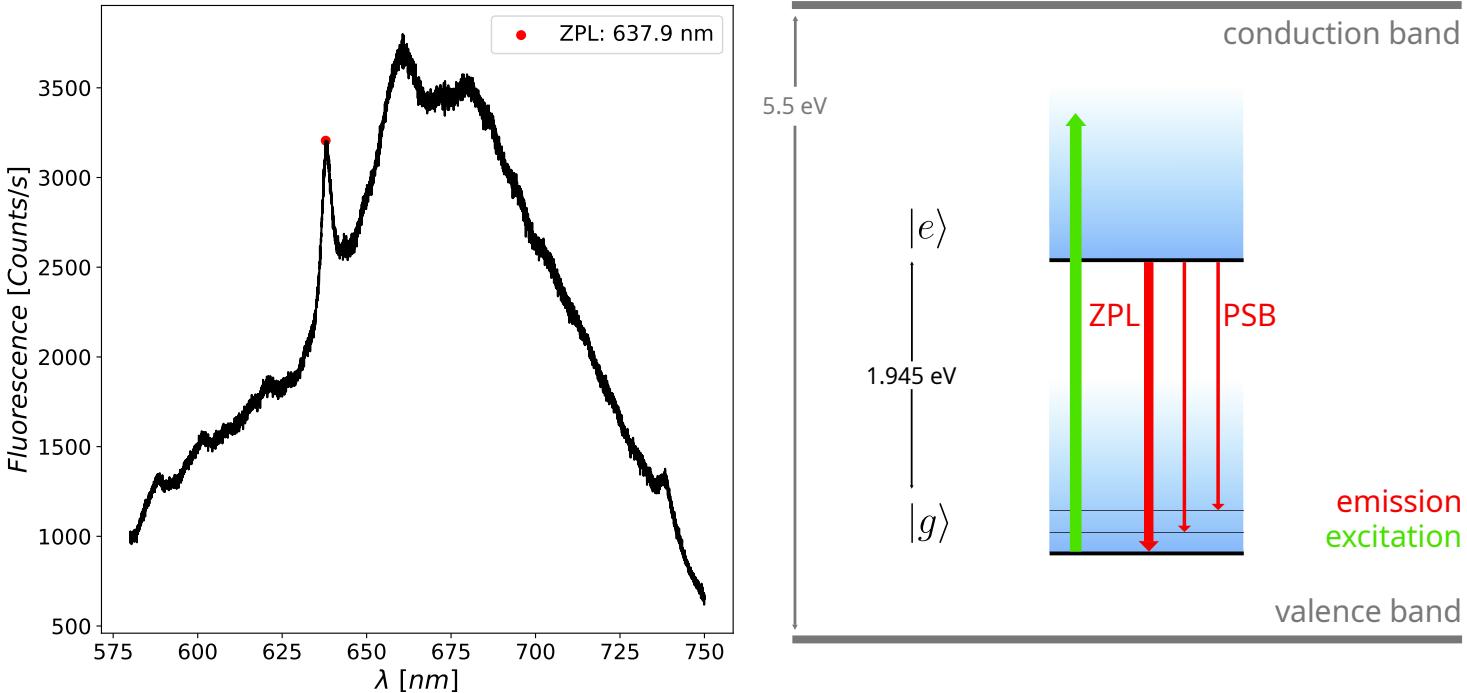


Proprietà cristallografiche



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

Complesso azoto-vacanza

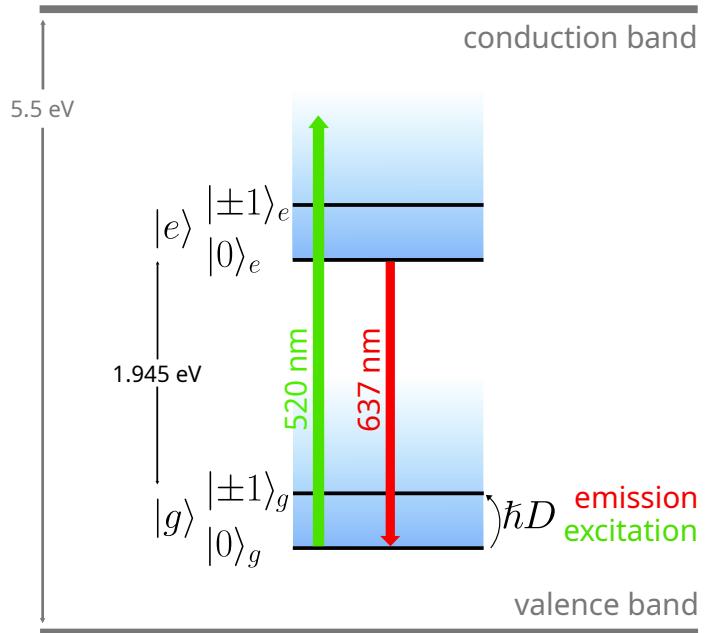


- Stato di carica NV^-
- Zero phonon line
 $ZPL = 637 \text{ nm}$
- Livelli energetici in band gap

Hamiltoniana dello stato fondamentale

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

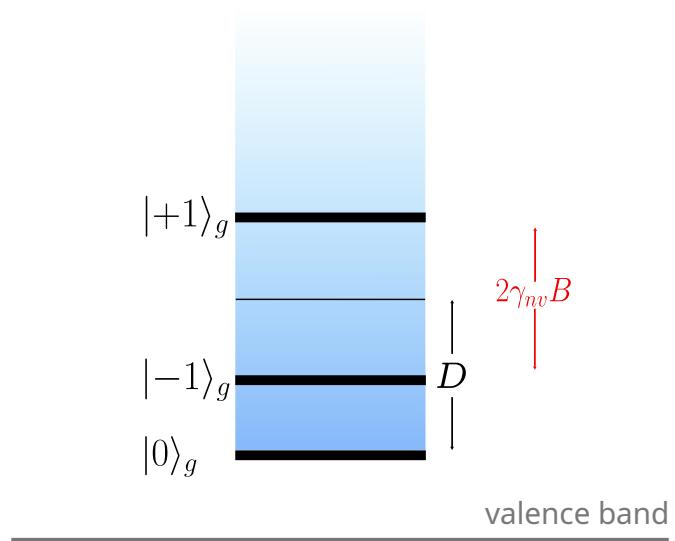
- Zero-field term
- $D = 2.87 \text{ GHz}$ Zero-field splitting
- Hamiltoniana dello stato fondamentale $|g\rangle$
- Tripletto di spin $m_s = 0, \pm 1$



Hamiltoniana dello stato fondamentale

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

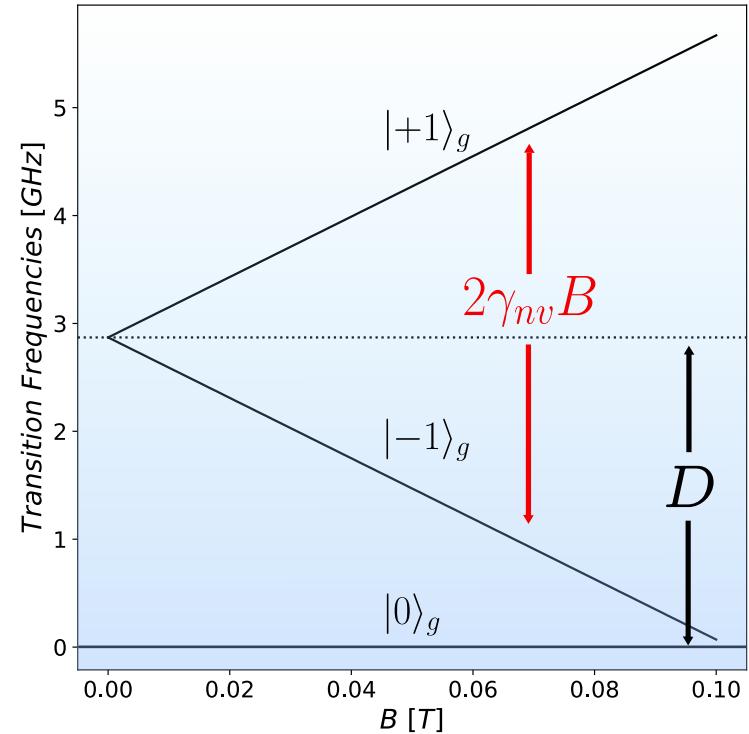
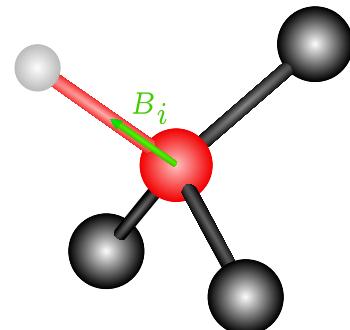
- Magnetic interaction term
- $\gamma_{nv} = g_e \mu_B = 28 \frac{GHz}{T}$ Gyromagnetic Ratio
- Autovalori \hat{H} hanno dipendenza lineare da B_z
- Degenerazione $m_s = \pm 1$ rimossa da B



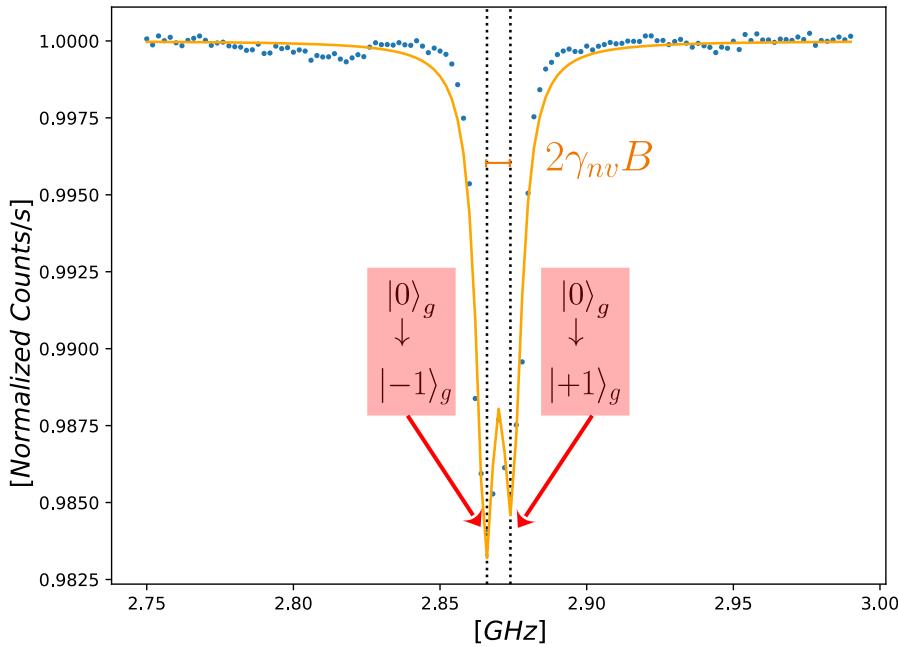
Effetto Zeeman sullo stato fondamentale

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

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

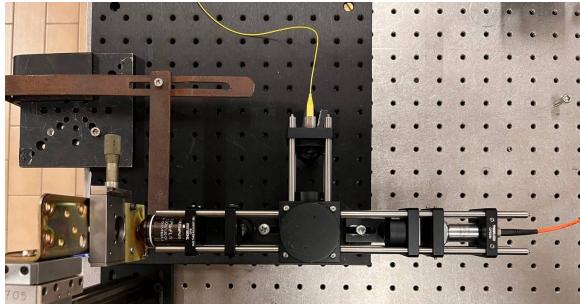


Lettura ottica dello stato di spin

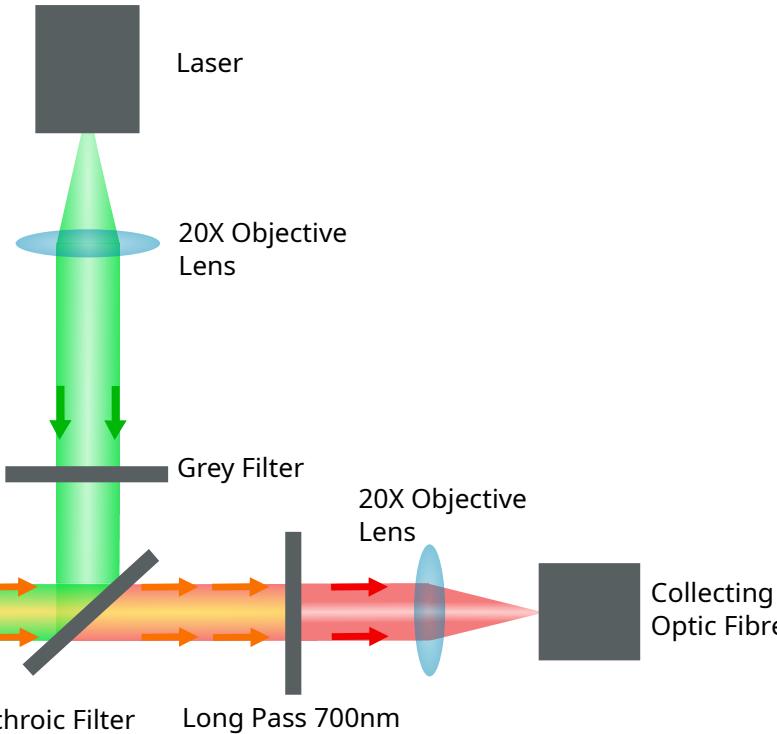
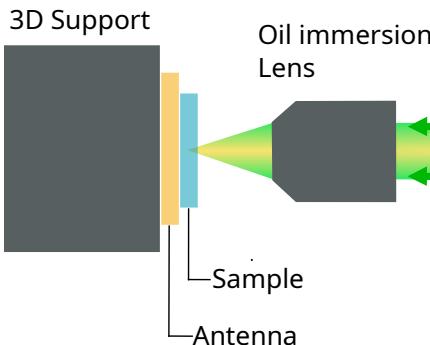


- ODMR (optically detected magnetic resonance)
 - Misura diretta splitting Zeeman per B esterno
 - Laser [520 nm] per eccitazione ottica
 - Antenna MW: Scorrimento in frequenze
 - Transizione $m_s = 0 \leftrightarrow m_s = \pm 1$ quando si ha risonanza
 - Decrescita nella fotoluminescenza del complesso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

Microscopio confocale

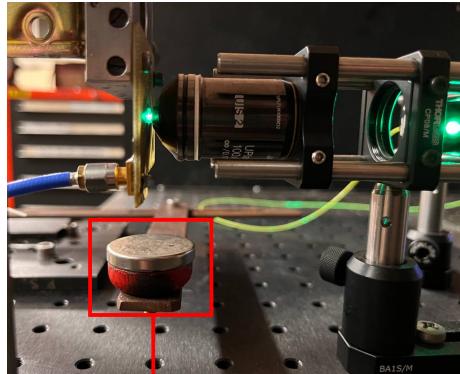


X
y
z

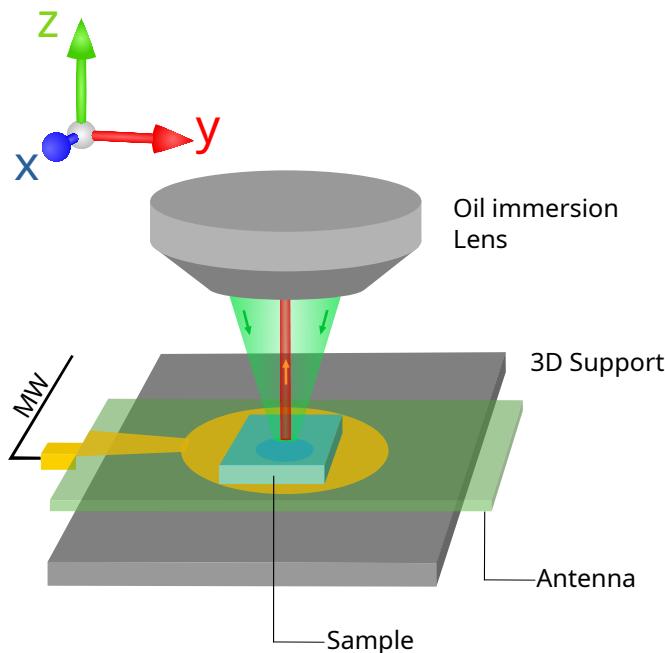


- Laser 520 nm
- Visione singolo punto del campione
 - Sezione ottica
 - Indagine tridimensionale
- Aumento risoluzione e profondità di campo

Erogazione di microonde



External Magnet



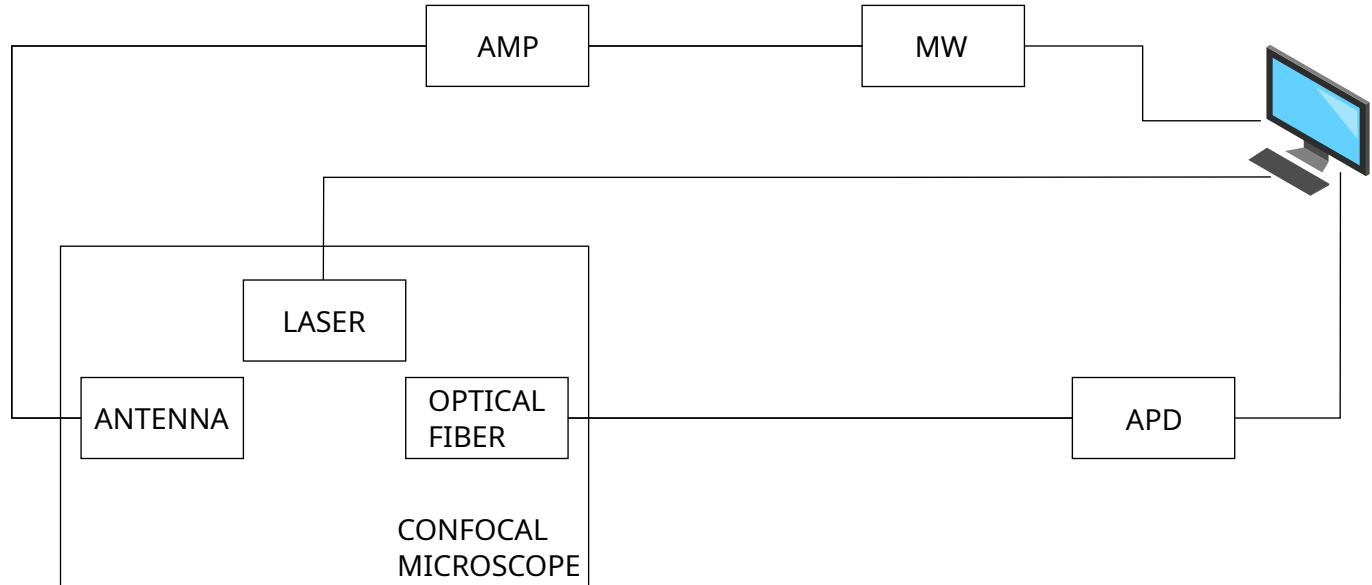
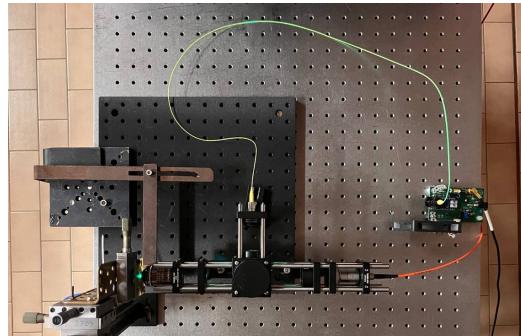
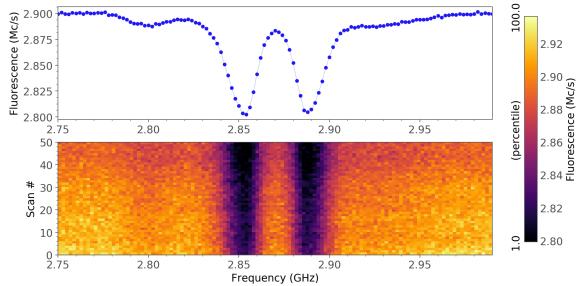
- Antenna MW

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

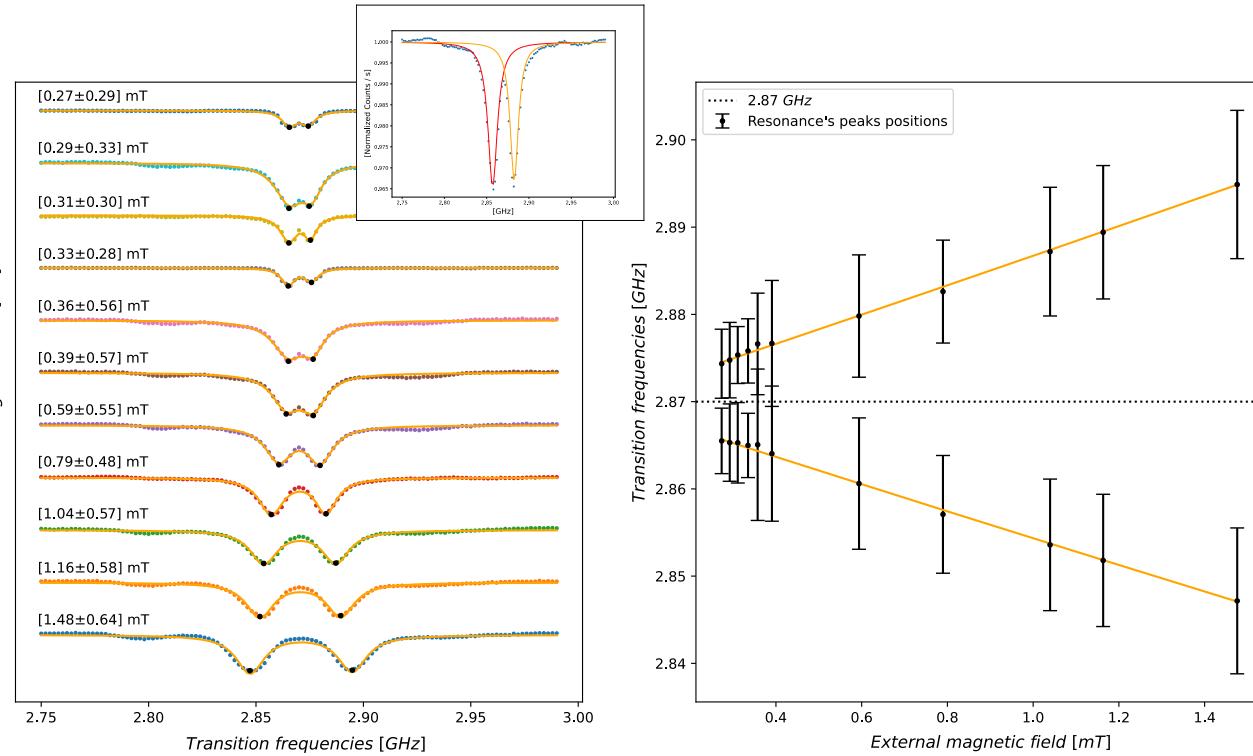
- Campione

- Diamante CVD [Chemical Vapour Deposition]
- $[N] = 10 \text{ ppm}$; $[\text{NV}] = 1 \% [\text{N}]$
- $O(10^4)$ centri $\text{NV}/\mu\text{m}^3$

Configurazione di lavoro

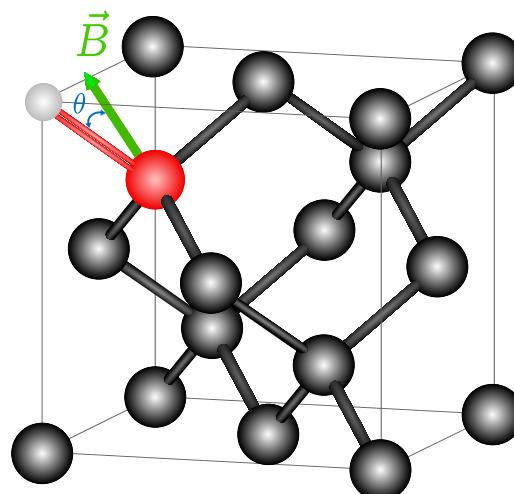
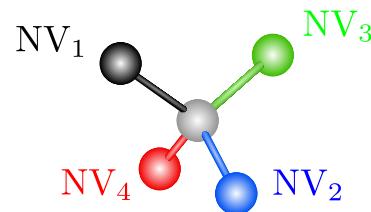
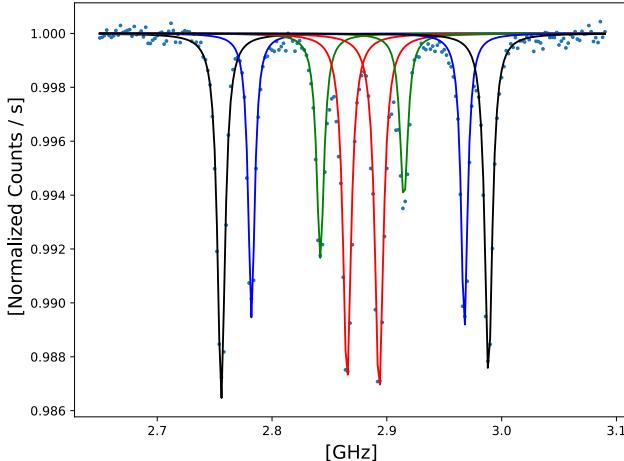


Magnetometria ODMR con campo magnetico omogeneo



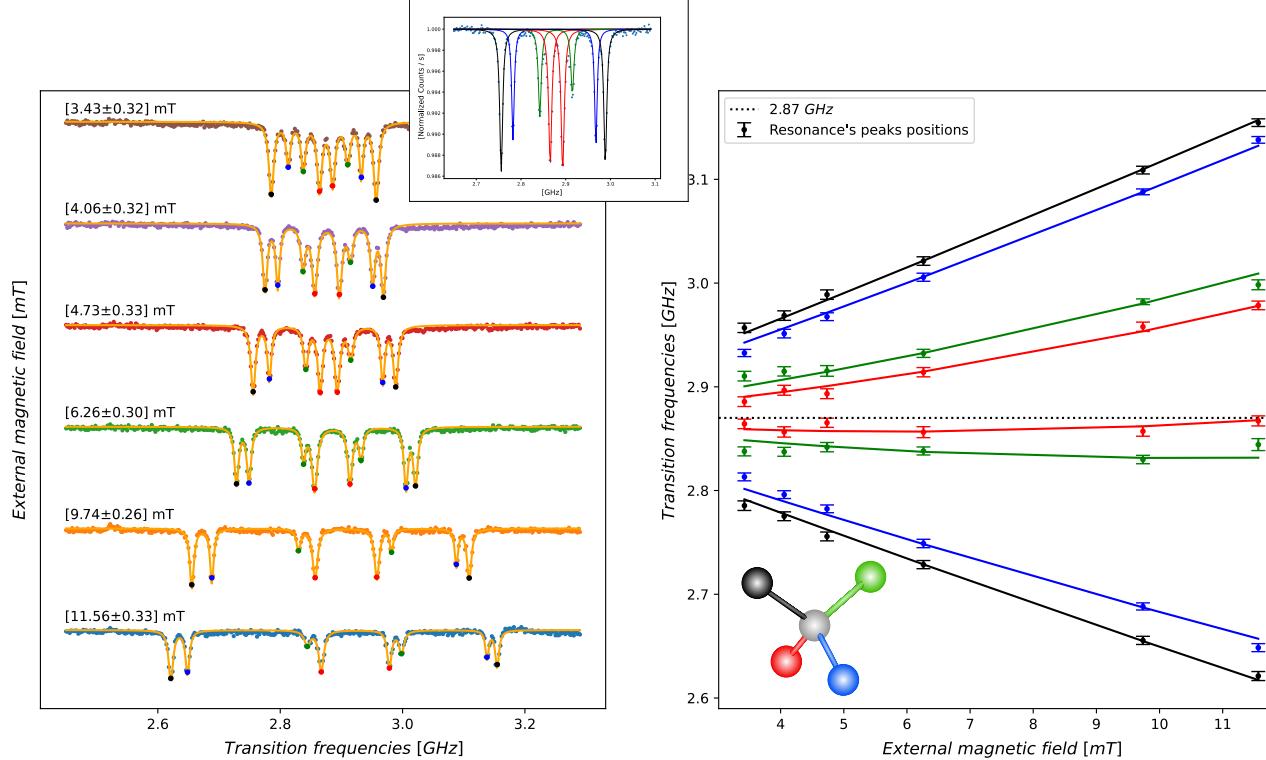
- Campo magnetico omogeneo nelle 4 direzioni del difetto
 - Lo splitting Zeeman è uguale in ogni orientazione
- Gli spettri sono fittati con lorenziane
 - $\Delta\nu_i = \nu_{i[+1]} - \nu_{i[-1]}$
 - $B_i = \Delta\nu_i / 2\gamma_{nv}$
- Magnete avvicinato gradualmente
- Andamento teorico verificato (Validazione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

Direzionalità del campo magnetico



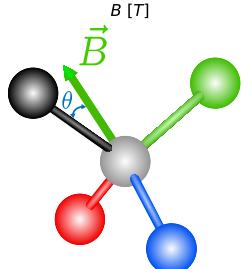
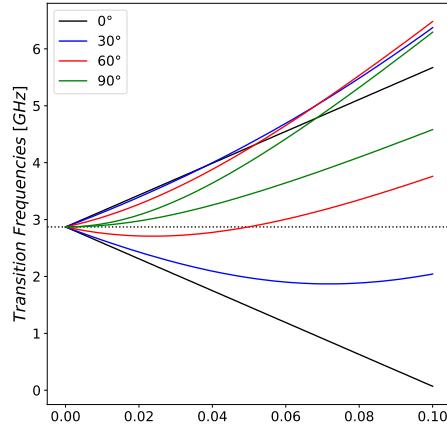
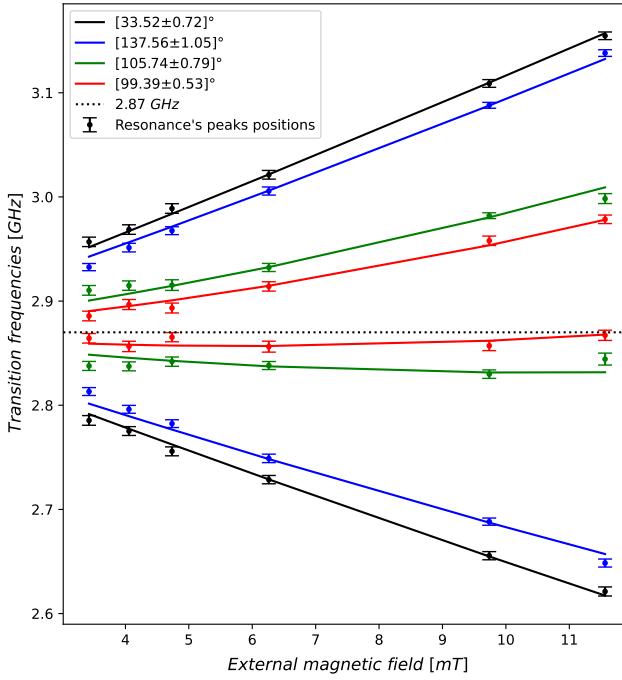
- Proiezioni di \vec{B} differenti in modulo lungo le 4 orientazioni del complesso
- Si osservano 4 coppie di frequenze di risonanza $[NV_i]$
 - $\vec{B} \cdot \hat{u}_i = \Delta\nu_i/2\gamma_{nv} = B_i$

Magnetometria ODMR con campo magnetico disomogeneo



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

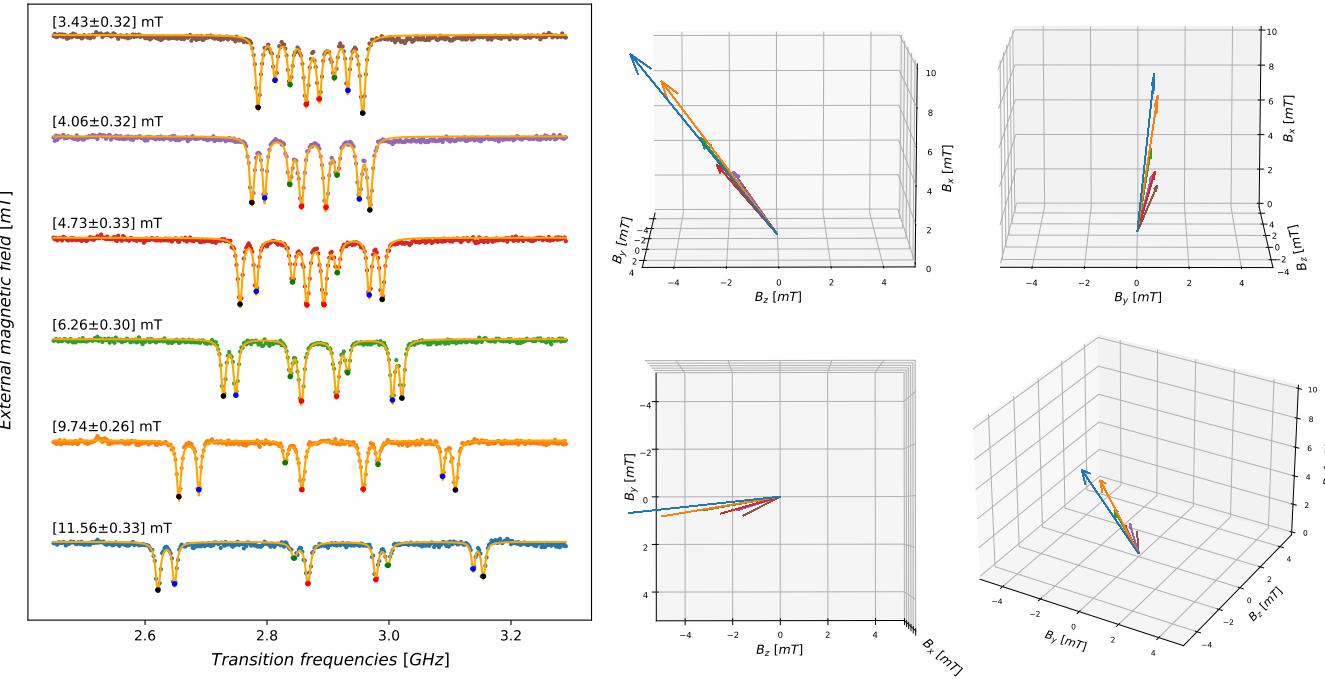
Considerazioni aggiuntive sull'hamiltoniana



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

- $H_{\perp} \ll H_{||}$ 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

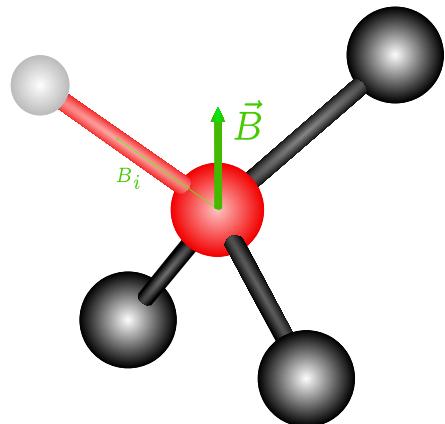
Grazie per l'attenzione

*Ringrazio in particolare **Jacopo Forneris** e **Sviatoslav Ditalia Tchernij** per la disponibilità con cui mi hanno seguito in questi mesi*

Fonti:

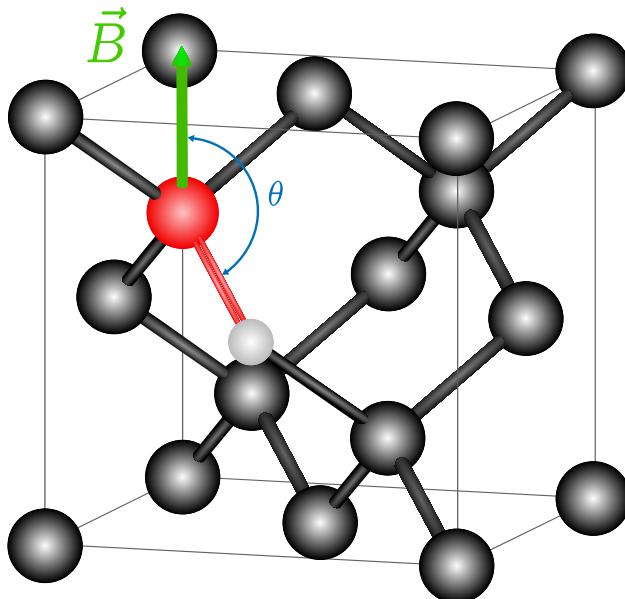
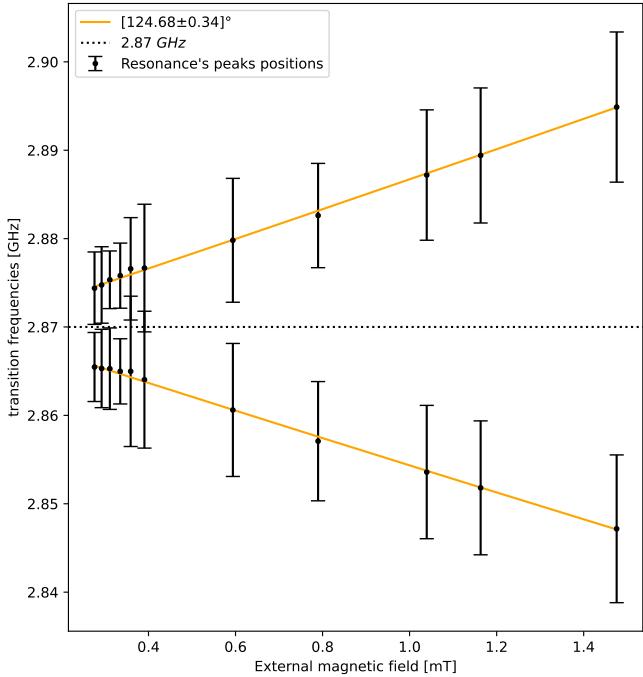
- L. Rondin *et al.*, 'Magnetometry with nitrogen-vacancy defects in diamond', *Rep. Prog. Phys.* **77** (2014) 056503
- E. Abe *et al.*, 'Tutorial: Magnetic resonance with nitrogen-vacancy centers in diamond—microwave engineering, materials science, and magnetometry', *J. Appl. Phys.* **123**, 161101 (2018)
- V. Sewani *et al.*, 'Coherent control of NV centers in diamond in a quantum teaching lab', *American Journal of Physics* **88**, 1156 (2020)

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

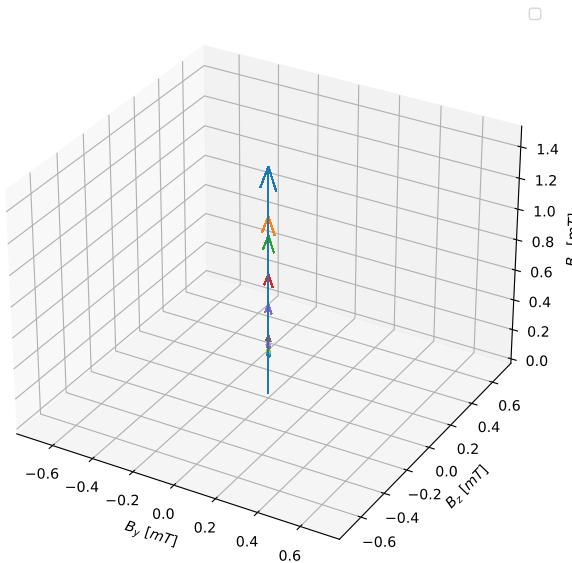
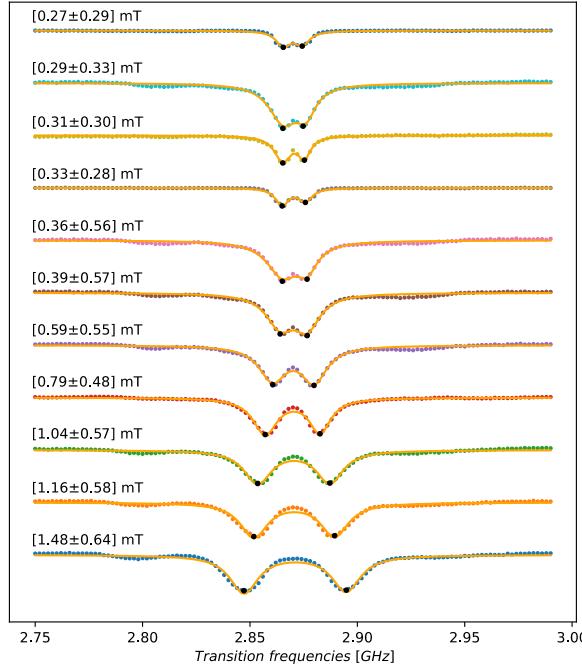
Angolazione tra campo e centro NV



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

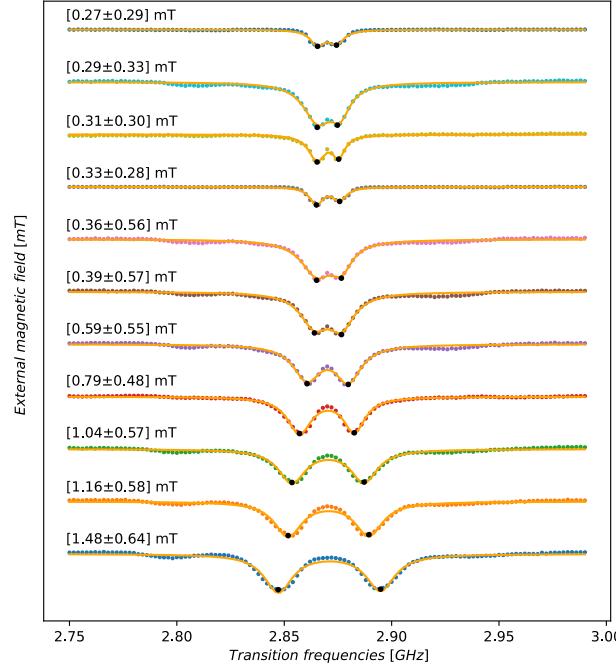
Calcolo vettore B per risonanze degeneri

External magnetic field [mT]



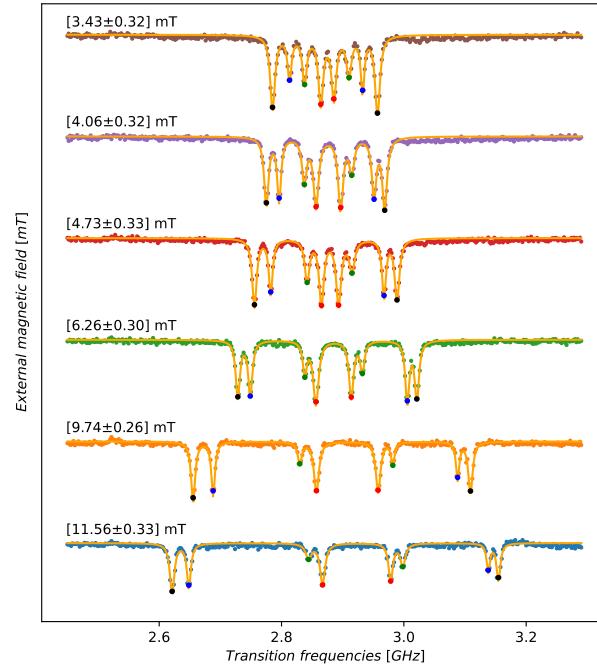
- 4 Risonanze degeneri
- B_i tutti uguali in modulo
- Incertezza sulla direzione da attribuire

Calcolo vettore B per risonanze degeneri



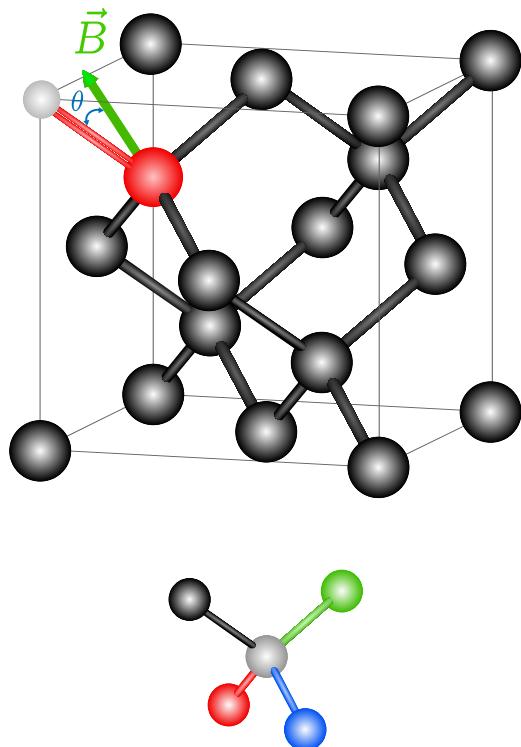
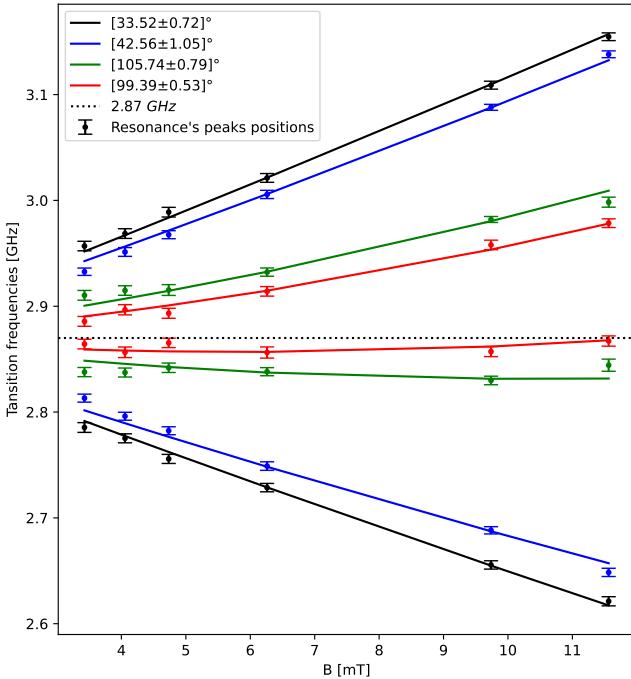
| Calculated | | | Hall | |
|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|
| $B_x \text{ [mT]}$ | $B_y \text{ [mT]}$ | $B_z \text{ [mT]}$ | $B_x \text{ [mT]}$ | $B_z \text{ [mT]}$ |
| 0.27 ± 0.17 | 0.00 ± 0.17 | 0.00 ± 0.17 | 0.27 ± 0.01 | 0.13 ± 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



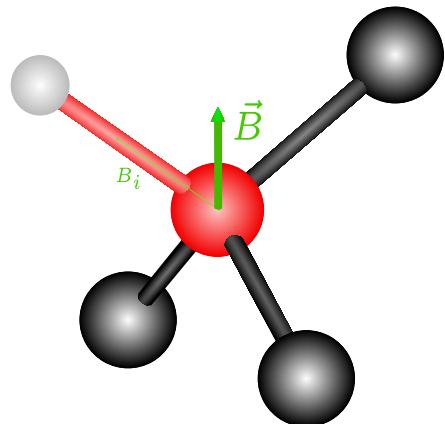
| Calculated | | | Hall | |
|------------------|-----------------|------------------|------------------|------------------|
| B_x [mT] | B_y [mT] | B_z [mT] | B_x [mT] | B_z [mT] |
| 3.60 ± 0.18 | 0.58 ± 0.19 | -1.78 ± 0.18 | 3.50 ± 0.17 | -1.70 ± 0.09 |
| 4.00 ± 0.18 | 0.70 ± 0.20 | -2.43 ± 0.19 | 4.10 ± 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



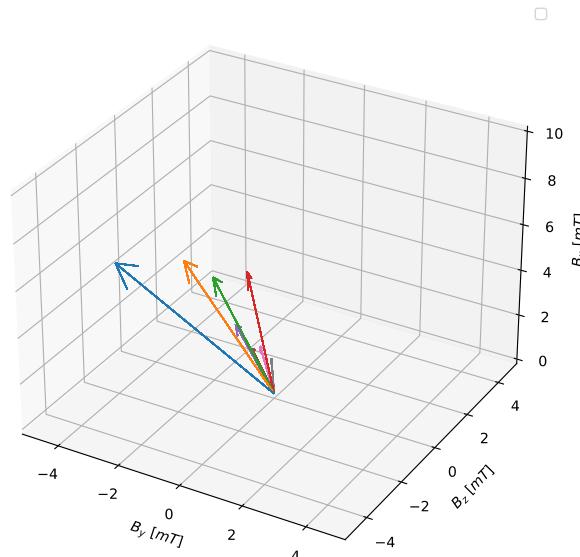
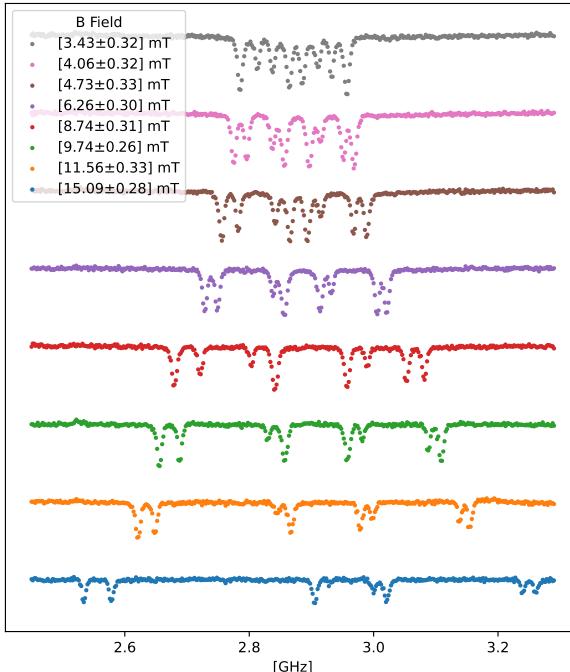
- Dal modello teorico si estraggono gli angoli tra il vettore campo ed il singolo complesso rappresentato dalle relative coppie di frequenze
- Angolazioni perfettamente compatibili con la struttura geometrica del cristallo

Calcolo vettore di B



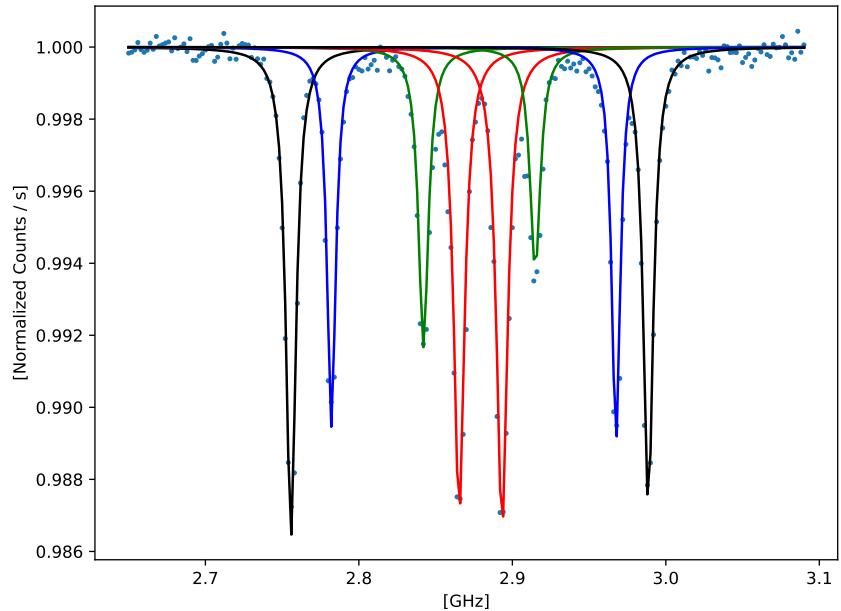
- Calcolo delle permutazioni dei versori (segno compreso)
 - $[\hat{u}_1, \hat{u}_2, \hat{u}_3, \hat{u}_4]; [-1, -1, 1, 1]$
- $$\begin{cases} \vec{B} \cdot \hat{u}_{list}[i]_1 = B_1 \\ \vec{B} \cdot \hat{u}_{list}[i]_2 = B_2 \\ \vec{B} \cdot \hat{u}_{list}[i]_3 = B_3 \end{cases}$$
- Seleziono la permutazione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



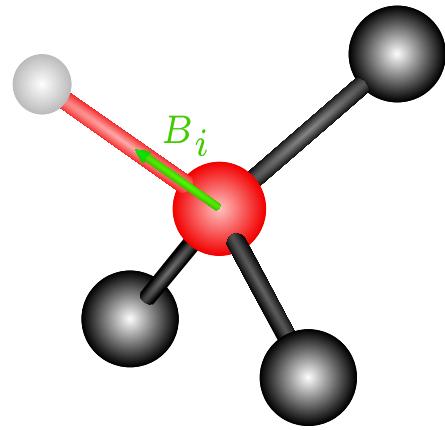
- Calcolo vettore campo dalle singole componenti

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

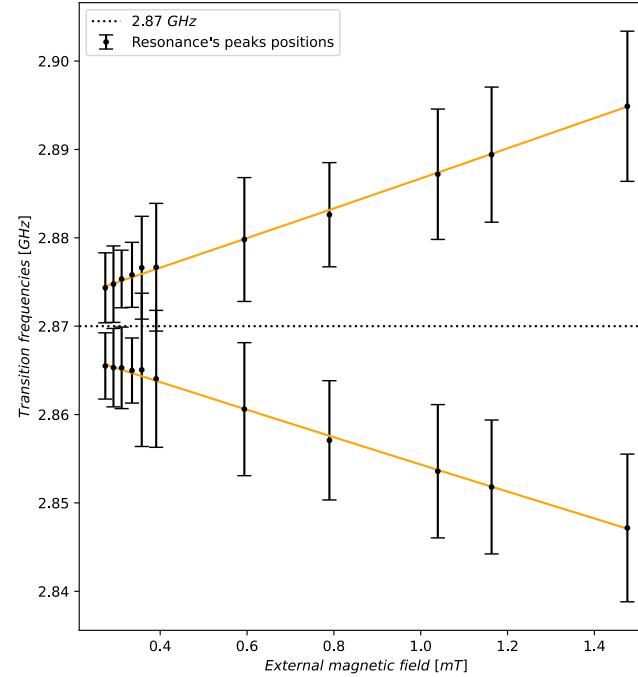
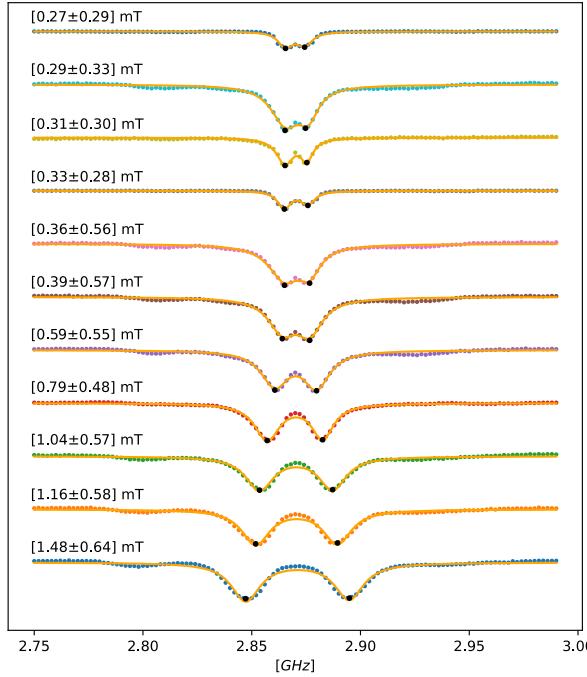
Calcolo componente di B



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

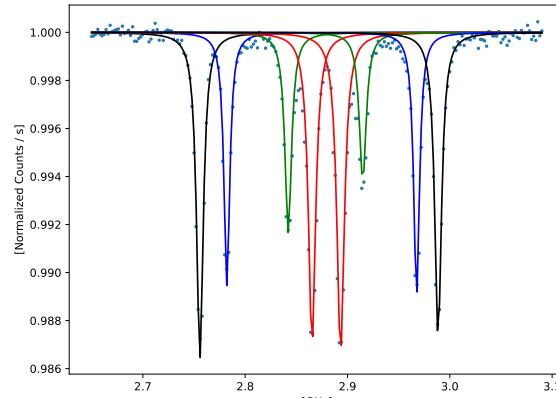
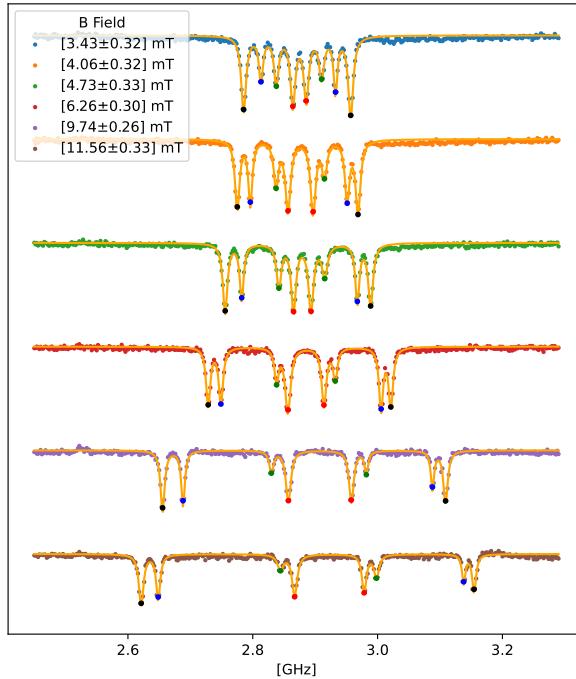
$$\begin{cases} \Delta\nu_i = \nu_i[+1] - \nu_i[-1] \\ B_i = \Delta\nu_i / \gamma_{nv} \end{cases}$$

Angolazione tra campo e centro NV

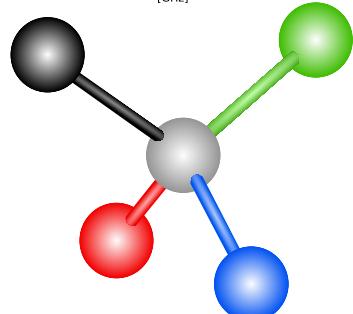


- Le posizioni dei picchi di risonanza rispettano l'andamento teorico
- Le incertezze sovradimensionate dipendono dalla sovrapposizione delle 4 coppie di risonanze

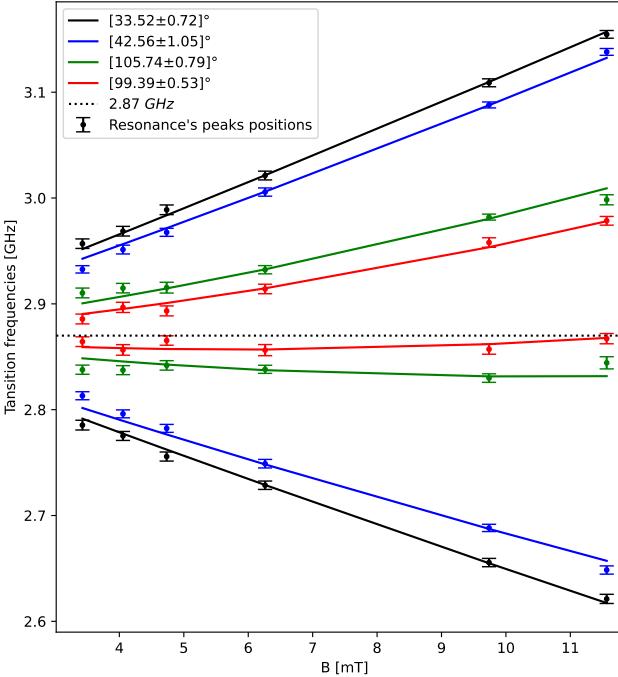
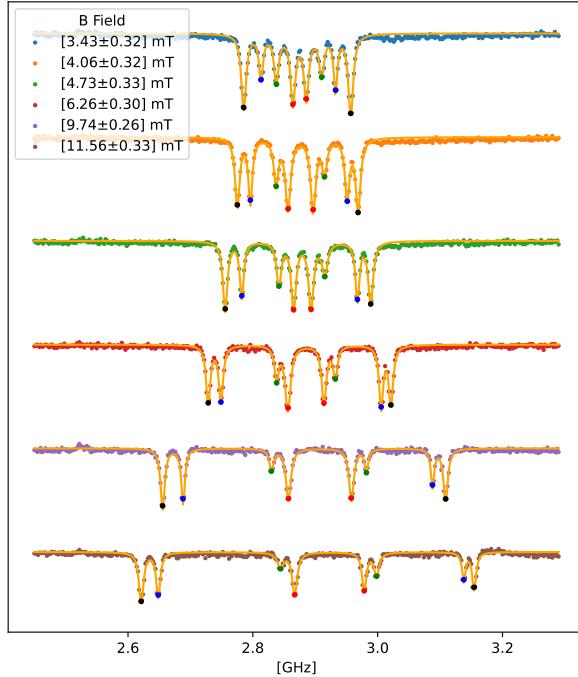
Angolazione tra campo e centro NV



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

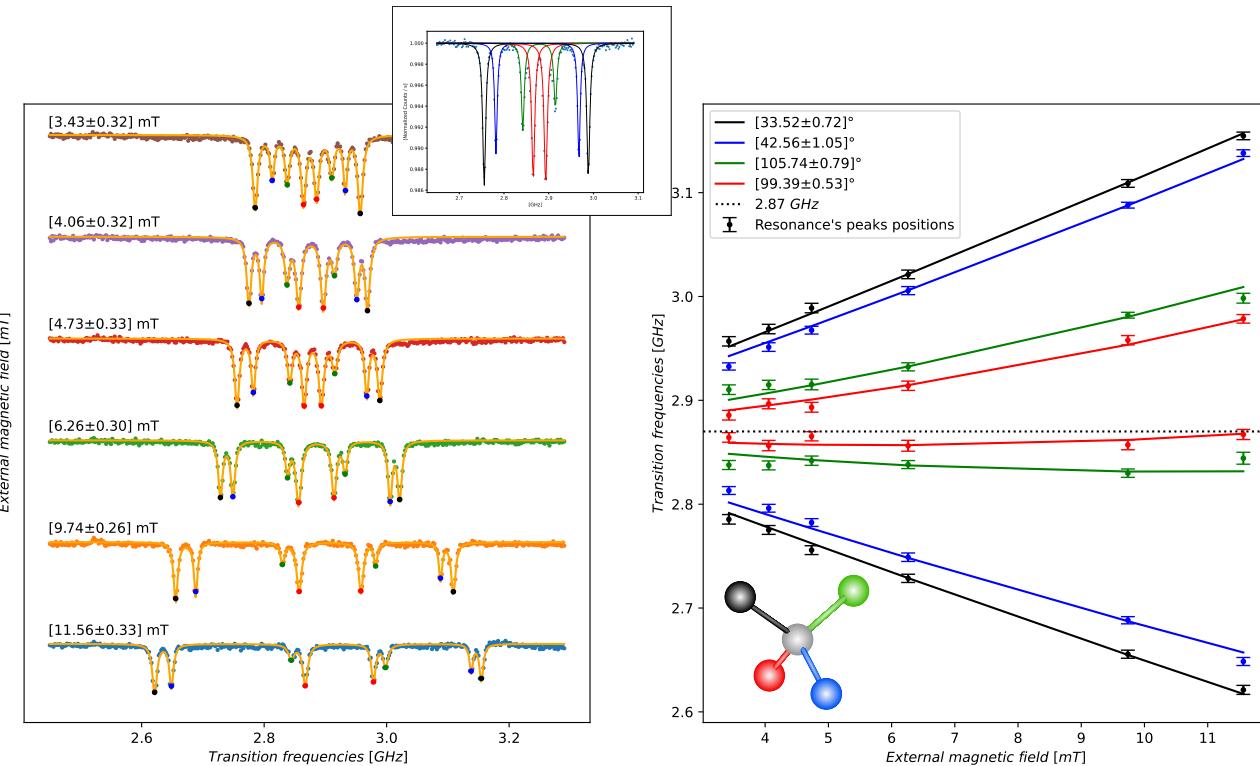


Angolazione tra campo e centro NV



- 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