

Electron and nuclear spin sensing
using nitrogen-vacancy centers in diamond

February 2020

Kento Sasaki

報告番号	甲 乙 第	号	氏 名	佐々木 健人
主 論 文 題 名 : Electron and nuclear spin sensing using nitrogen-vacancy centers in diamond (ダイヤモンド中の窒素-空孔中心を用いた電子スピンと核スピンの検知)				
(内容の要旨) ダイヤモンド中の窒素-空孔(NV)中心は室温にて高感度磁気検知を可能とする特異なスピン光学特性を有する。そこでダイヤモンド表面近傍に NV 中心を単一スピン量子センサーとして配置し、その直上(ダイヤモンド表面)に置かれた単一分子の原子レベル核磁気共鳴イメージング(MRI)を目指す研究が始まった。信号の共鳴周波数から核種の同定、強度や周波数シフトなどから NV センサーを原点とした測定対象とする単一核スピンの位置を原子レベルの位置分解能で決定できることが期待されている。しかし、これまでは 3 つの位置パラメータの内の 2 つ(距離 r と極角 θ)を決める方法は実践されたが、方位角 ϕ を決定する手法は存在しなかった。 そこで本研究では、ダイヤモンド中の単一 NV および NV 集合体のパルス光検知磁気共鳴(ODMR)を可能とする実験系を構築し、初めの検知対象として、核スピンより容易な電子スピンをすえた。そして、デコヒーレンス分光といった NV 磁気共鳴パルス系列の工夫による NV 集合体の感度向上を経て、不純物欠陥の電子スピンの定量検知に成功した。次に単一 NV をセンサーとして用いるための予備実験を重ね、他研究機関により発表された最新の交流磁気検知方法の追試に成功したうえで、単一 NV センサーを原点とした核スピンの方位角 ϕ を測定する新手法を考案し、その実験に成功した。歳差信号を連続的に計測し、センサーの量子コヒーレンスを超えた高周波数分解能が達成可能であることなどが利点として得られた。 本論文は 5 章から構成される。第 1 章は研究背景で、NV 中心の磁気検知応用に関する先行研究を概観し、本研究の位置づけが示される。第 2 章では、NV 中心の物性と実験装置系が説明される。また、効率的な NV 評価を目的として開発された特殊マイクロ波アンテナの設計も示される。第 3 章では、NV 中心集合体の窒素核磁気分極やパルス操作に基づく磁場感度向上や、デコヒーレンス分光を用いた定量的な電子スピン検知が示される。第 4 章では、単一 NV を用いた磁気検知が議論される。初めに周期的なスピン操作を用いた交流磁気計測法と古典クロックによる同期を用いた 304 μHz という高い周波数分解能の達成が示される。次に検出対象とする核スピンの三次元空間における位置特定手法が示され、ダイヤモンド中の ^{13}C 核スピンの格子位置を正確に決定した実験結果が示される。本手法は一般的な核スピンに応用可能であるため、ダイヤモンド表面近傍の単一 NV 中心や、単一分子の配置法と組み合わせ、単一分子中の水素や炭素の位置を検知することで、単一分子レベルの MRI の達成が期待される。第 5 章は、本論文のまとめと今後の展望が示される。				

Thesis Abstract

No. _____

Registration Number	☒ "KOU" ☐ "OTSU" No. _____ *Office use only	Name	Kento Sasaki
Thesis Title Electron and nuclear spin sensing using nitrogen-vacancy centers in diamond			
Thesis Summary Remarkable properties of a nitrogen-vacancy (NV) center in diamond allows for optical initialization/readout and microwave control of a single spin at room temperature. The precession of the spin is very sensitive to the change in the surrounding environment such as temperature, electric field, and magnetic field. Therefore, research towards application of NV as a quantum sensor has become very active. Among many, one of the most sought after applications is a magnetic field sensor for a single molecule nuclear magnetic resonance (NMR) and magnetic resonance imaging (MRI) relying on NV sensor's sensitivity capable of detecting a single nuclear spin, spectrum resolution comparable with the conventional NMR, and spatial resolution reaching sub-nm. The present thesis research has been conducted to understand physical properties of the NV center interacting with magnetic fields arising from surrounding electron and nuclear spins, and to develop methods to improve the sensitivity, spectrum resolution, and spatial resolution of the NV as a quantum sensor. Specifically, for the determination of a position of a target nuclear spin, research performed elsewhere prior to this thesis had advanced to obtain two of three position parameters, a distance r and a polar angle θ. In this thesis, a method to measure the remaining position parameter, the azimuthal angle φ, has been developed successfully for the complete determination of the target nuclear spin position with the atomic-scale resolution. The present thesis is composed of five chapters. Ch.1 is introduction overviewing important developments on NV-based magnetometries that have led to this thesis. Ch.2 introduces physical properties of NV centers followed by description of our experiment setups including a development of specially designed and built microwave antennas for efficient NV characterizations. Ch.3 describes optically detected magnetic resonance with a narrow band microwave pulse control to enhance the DC field sensitivity of a high-density NV ensemble. The DC sensitivity was improved together with dynamic nuclear polarization of nitrogen nuclei within NVs. A quantitative determination of electron spin densities arising from paramagnetic defect centers was demonstrated by the analysis of decoherence of the NV ensemble. Ch.4 describes the magnetic detection using a single NV center. Our novel φ determination method was developed and successfully tested with free nuclear spin precession signals of a single ^{13}C nuclear spin situates nearby by dynamic nuclear polarization and radio frequency manipulation of the target ^{13}C by a specially developed pulse sequence. As a result, we have succeeded in the unique assignment of each ^{13}C position with a single lattice site resolution. Our position determination method is general and therefore capable with a future MRI of a single molecule placed on the diamond surface. Ch. 5 provides conclusions and future prospective.			