



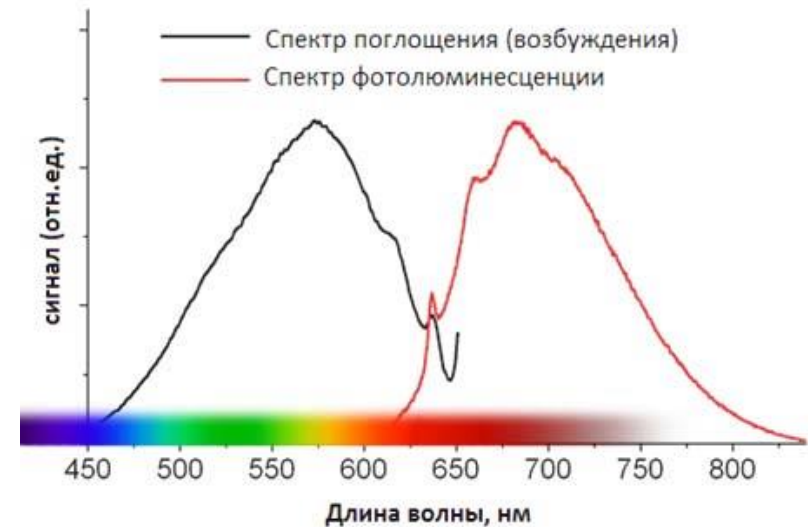
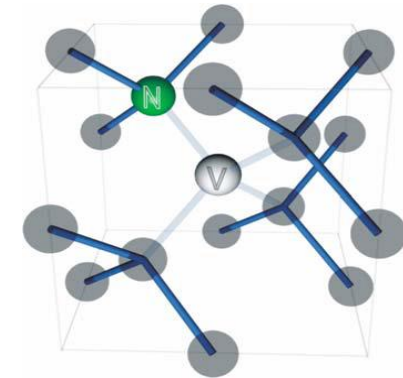
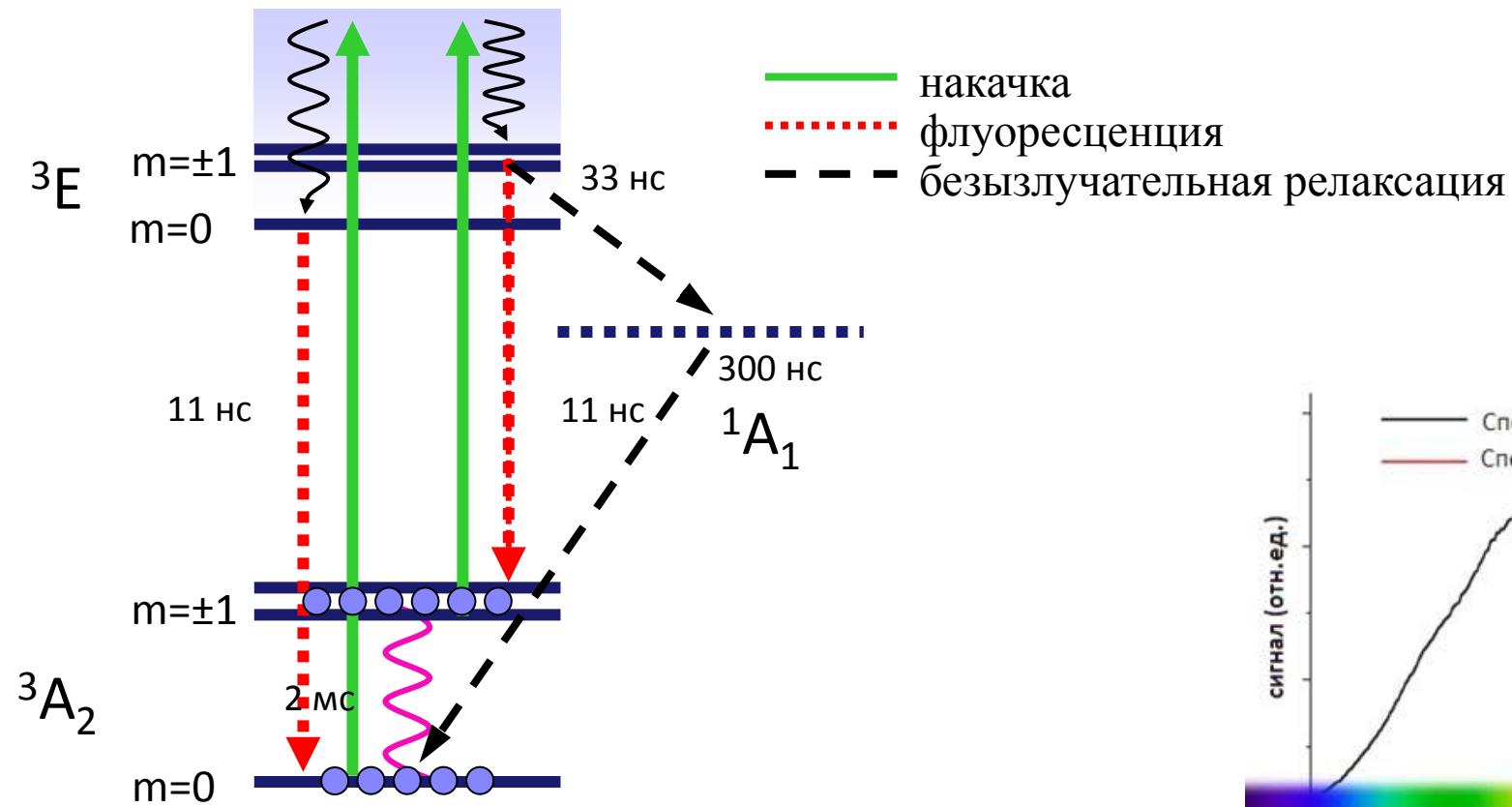
**P. N. Lebedev** Physical  
Institute of the Russian  
Academy of Science

# **АТОМИСТИЧЕСКИЕ ПРОЦЕССЫ ЛАЗЕРНОЙ ГЕНЕРАЦИИ ОПТИЧЕСКИХ ЦЕНТРОВ В ОБЪЕМЕ АЛМАЗОВ**

**П.А. Данилов, С.И. Кудряшов, А.О. Левченко, Н.А. Смирнов**

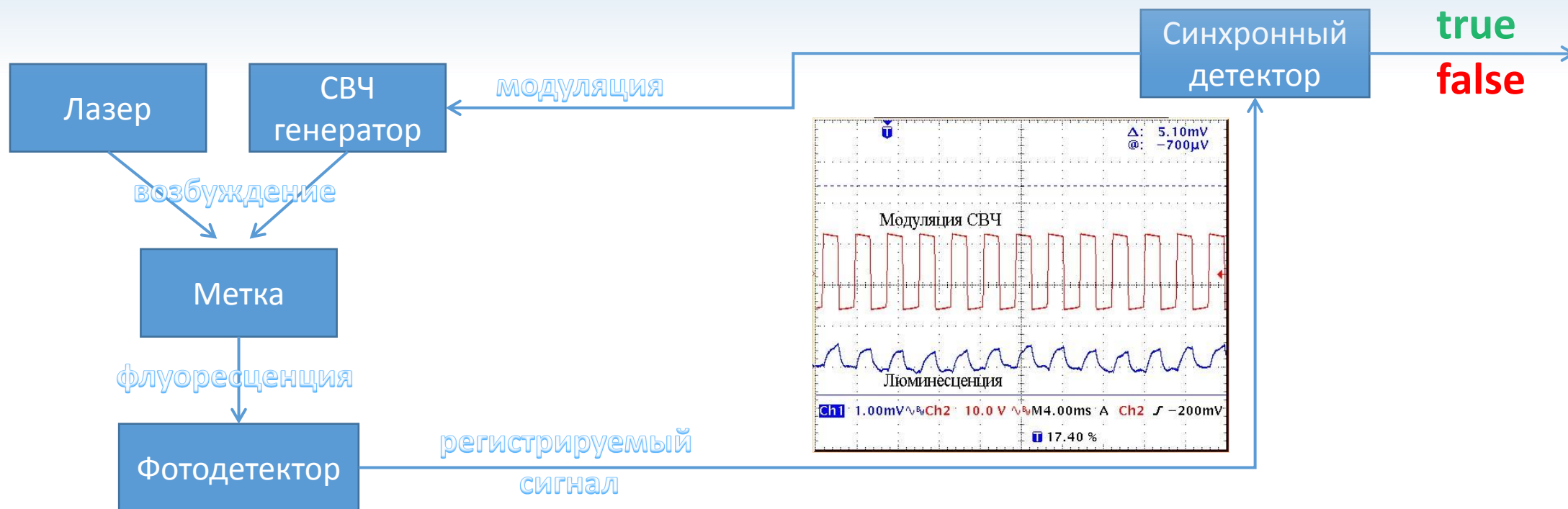
Исследования фотофизики алмазов членами научного коллектива начались более 10 лет назад с исследований эффекта двойного радиооптического резонанса (ДРОР) на NV центрах в алмазе

## NV<sup>-</sup> центры в алмазе



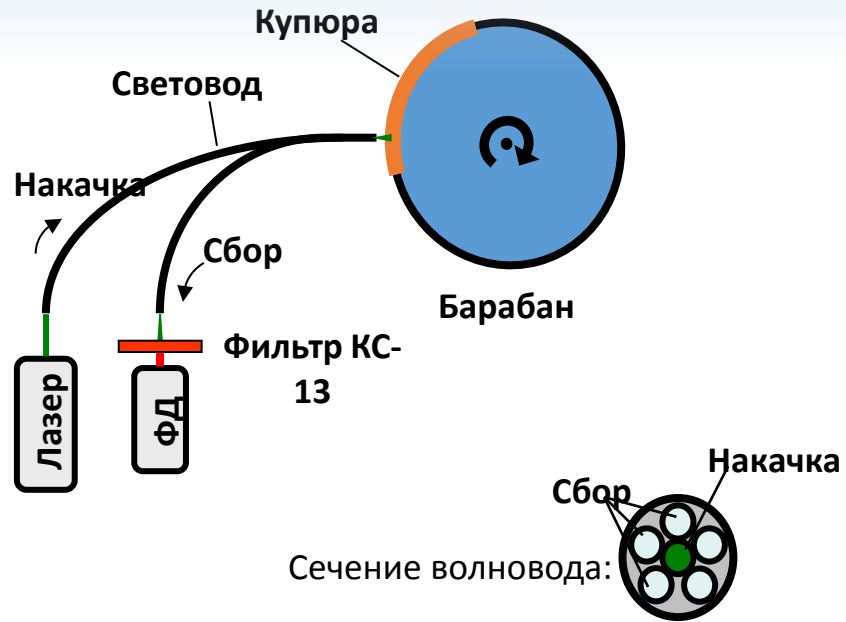
Анимация в  
полноэкранном режиме

На основе квантового эффекта ДРОР на NV центрах в нанодлмазах был разработан высокоскоростной бесконтактный детектор и секретная защитная метка для ценных бумаг для АО «Гознак»

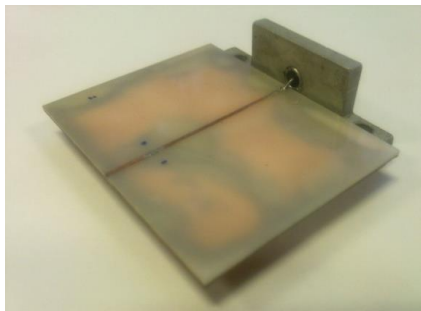


- Бесконтактное детектирование на расстоянии 1-3 мм
- Машинное детектирование на скорости движения метки до 10 м/с
- Способы «обмана» детектора не просматриваются
- Возможны портативный, настольный, или встраиваемый в ССМ машину варианты детектора
- Устройство детектора не раскрывает суть защитного признака

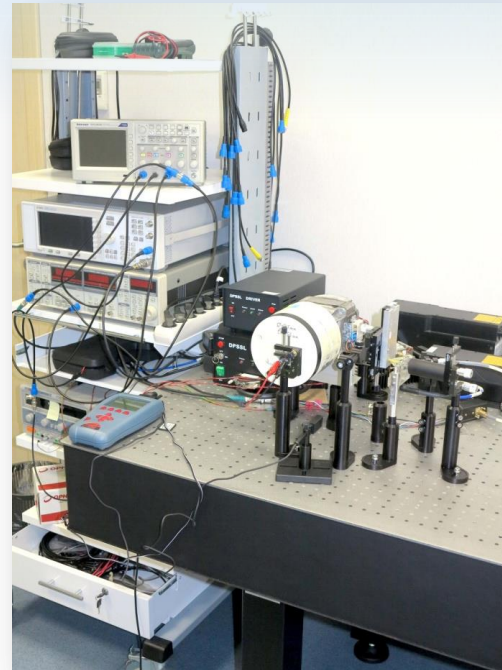
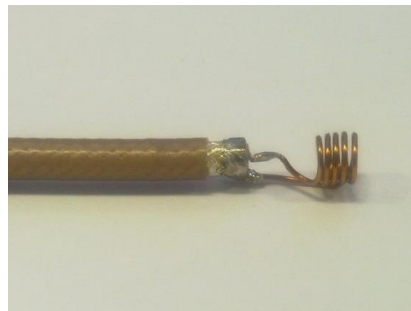
# Лабораторный макет высокоскоростного детектора и портативный настольный детектор



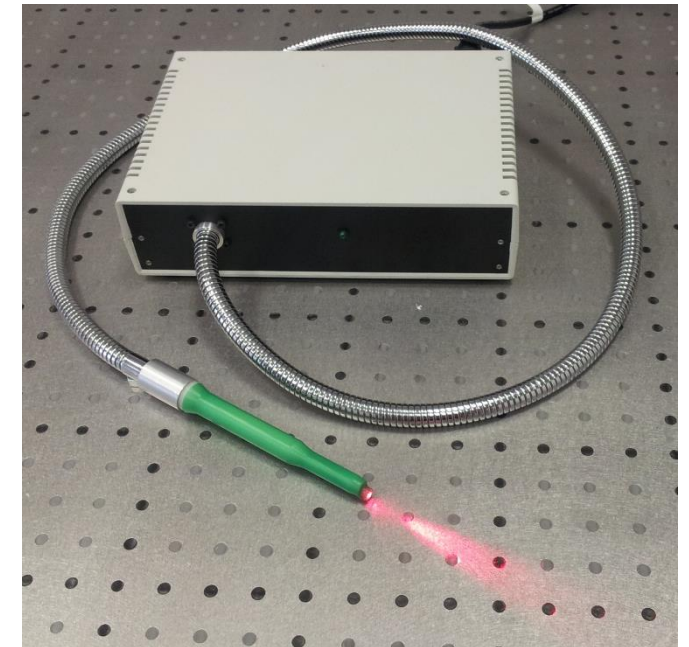
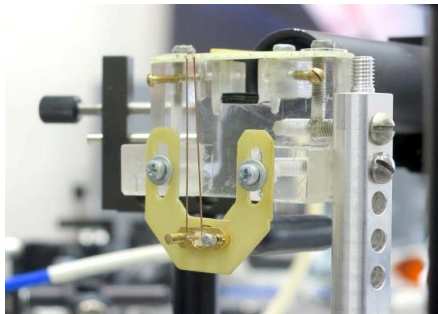
Полосок



Соленоид



Полуволновая короткозамкнутая антенна



## По результатам работ были опубликованы 4 научных работы и оформлены 5 патентов

A. O. Levchenko, V. V. Vasil'ev, S. A. Zibrov, A. S. Zibrov, A. V. Sivak, and I. V. Fedotov

INHOMOGENEOUS BROADENING OF OPTICALLY DETECTED MAGNETIC RESONANCE OF THE ENSEMBLES OF NITROGEN-VACANCY CENTERS IN DIAMOND BY INTERSTITIAL CARBON ATOMS // Applied Physics Letters 106, 102402 (2015); doi: 10.1063/1.4913428,

A. Zheltikov, I. Fedotov, A. Fedotov, D. Sidorov-Biryukov, L. Amitonova, M. Scully, V. Velichansky, S. Zibrov, A. Levchenko, S. Blakley, N. Safronov, and S. Kilin, FIBER-OPTIC MAGNETIC-FIELD IMAGING // Optics Letters. 2014, Vol. 39. Issue. 24. pp. 6954-6957.

I. V. Fedotov, L. V. Doronina-Amitonova, D. A. Sidorov-Biryukov, N. A. Safronov, A. O. Levchenko, S. A. Zibrov, S. Blakley, H. Perez, A. V. Akimov, A. B. Fedotov, P. Hemmer, K. Sakoda, V. L. Velichansky, M. O. Scully, and A. M. Zheltikov, Fiber-optic magnetometry with randomly oriented spins // Opt. Lett. 2014. V. 39. P. 6755-6758.

I. Fedotov, L. Doronina-Amitonova, A. Voronin, A. Levchenko, S. Zibrov, A. Fedotov, D. Sidorov-Biryukov, V. Velichansky, Electron spin manipulation and readout through an optical fiber // Scientific Reports. 2014. V. 4. P. 5362. doi:10.1038/srep05362.

№ 2357866 Способ защиты документов, ценных бумаг или изделий с помощью наноалмазов с активными NV-центрами.

№ 2 566 600 Устройство для автоматического детектирования быстро движущихся защитных меток, содержащих микрокристаллы алмаза с активными NV-центрами.

№ 2411133 Вещество метки подлинности банкнот, ценных бумаг и документов и способ его приготовления.

№ 2577224 Вещество защитной метки, содержащее микрокристаллы алмаза с активными NV-центрами легированные изотопами, способ его получения, способ защиты от подделок и проверки подлинности изделий с помощью указанной метки.

№ 2569791 Способ получения вещества защитной метки, содержащего микрокристаллы алмаза с активными NV-центрами, обладающими свойствами, модифицированными радиационным воздействием, способ защиты от подделок и проверки подлинности изделий с помощью указанной метки.



В статье объяснена эволюция сверхтонкого расщепления спектра ДРОР одиночных NV центров и их ансамблей из-за радиационного распухания алмаза при электронном облучении

Appl. Phys. Lett. **106**, 102402 (2015)

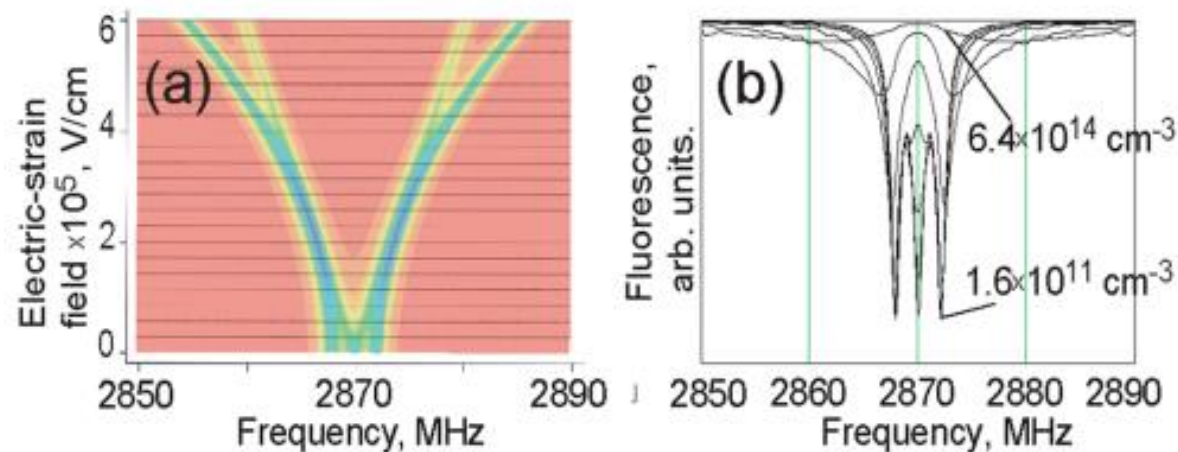
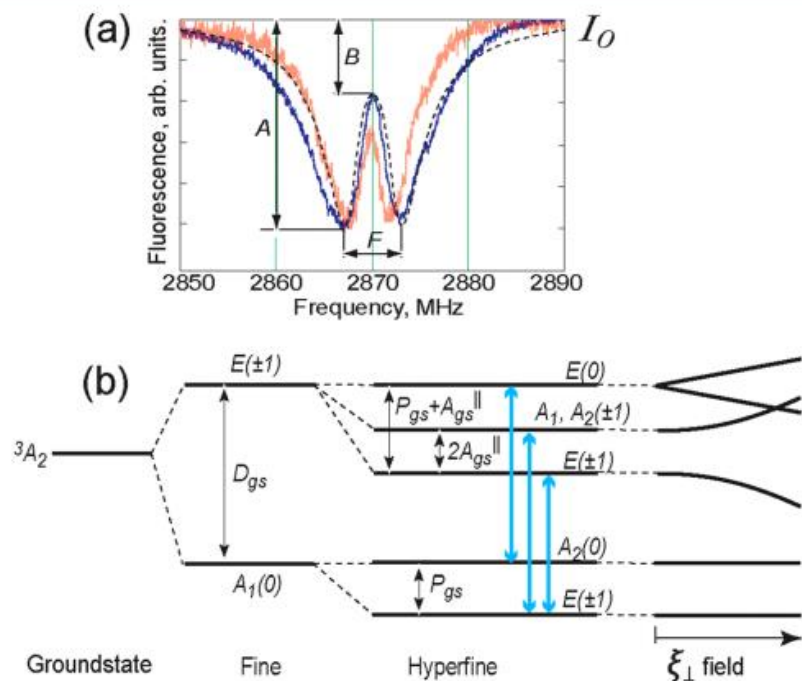


FIG. 5. (a) Calculated hyperfine ODMR spectrum of a *single* NV center under the strain field (result of Eq. (7)). (b) Calculated hyperfine ODMR spectrum for NV *ensemble* at the defect densities within  $1.6 \times 10^{11} \div 6.4 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$  range (result of Eq. (8)).

## Inhomogeneous broadening of optically detected magnetic resonance of the ensembles of nitrogen-vacancy centers in diamond by interstitial carbon atoms

Applied Physics Letters 106, 102402 (2015); doi: 10.1063/1.4913428

View online: <http://dx.doi.org/10.1063/1.4913428>

# Описан оригинальный способ оптического и СВЧ возбуждения микро-размерных кристаллов алмаза, обогащенных NV центрами, для магнитного датчика с высоким пространственным разрешением

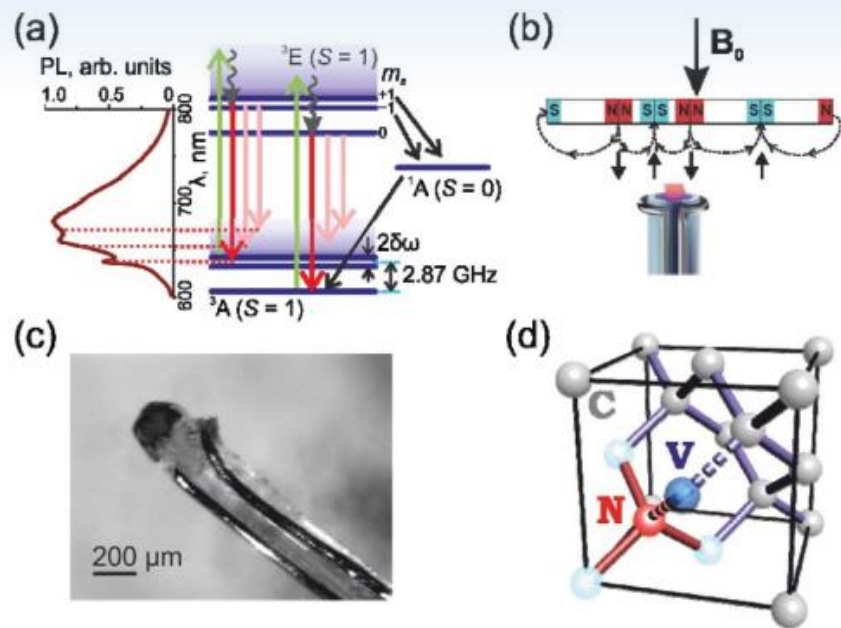


Fig. 1. (a) Diagram of energy levels involved in electron-spin spectroscopy. (b) Scanning magnetic-field imaging using a fiber probe integrated with an NV-diamond quantum sensor and a microwave transmission line. (c) A microscope image of the fiber magnetometer used in experiments. (d) A nitrogen atom (N) and a vacancy (V) forming an NV center in a diamond lattice, consisting of carbon (C) atoms, four possible arrangements of the NV axes with respect to the crystal lattice of diamond, are shown.

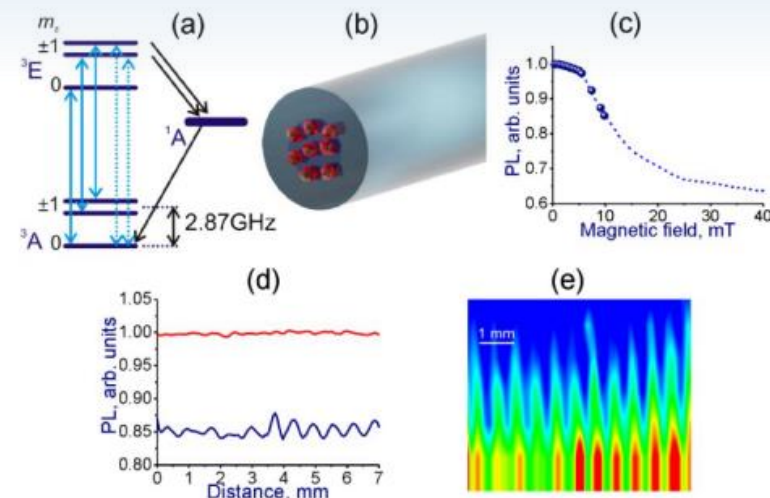


Fig. 3. (a) Diagram of optical transitions between the ground ( $^3A$ ) and excited ( $^3E$ ) electronic states of an NV center. (b) A drawing and a microscope image of the tip of a fiber probe covered with diamond nanoparticles. (c) Intensity of photoluminescence induced and collected through the fiber-optic probe as a function of the external magnetic field. (d) Photoluminescence signal measured by scanning the fiber probe over the surface of a magnetic stripe with (blue) and without (red) a bias magnetic field of 10 mT. (e) A typical two-dimensional image of magnetic field distribution measured by scanning the fiber probe integrated with an NV-diamond sensor over the surface of a magnetic stripe without application of a microwave field.

## Fiber-optic magnetic-field imaging

# Продемонстрирован датчик магнитного поля на основе случайно-ориентированных алмазных наночастиц, обогащенных NV центрами, с возбуждением и считыванием через оптическое волокно

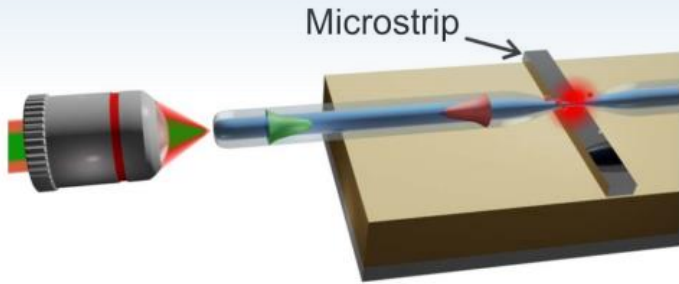


Fig. 2. Waveguide delivery of optical fields for the initialization and readout of the electron spin in NV centers using a nanodiamond-covered tapered fiber. The microwave field is delivered through a microstrip transmission line.

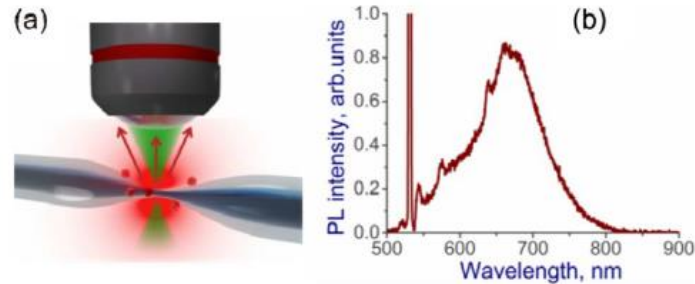


Fig. 3. Characterization of the PL response from NV centers in nanodiamond deposited on the fiber taper: (a) sketch of the experiment and (b) the spectrum of the PL response from NV centers in nanodiamond deposited on the fiber taper measured using a free-space 532-nm laser beam, as shown in panel (a).

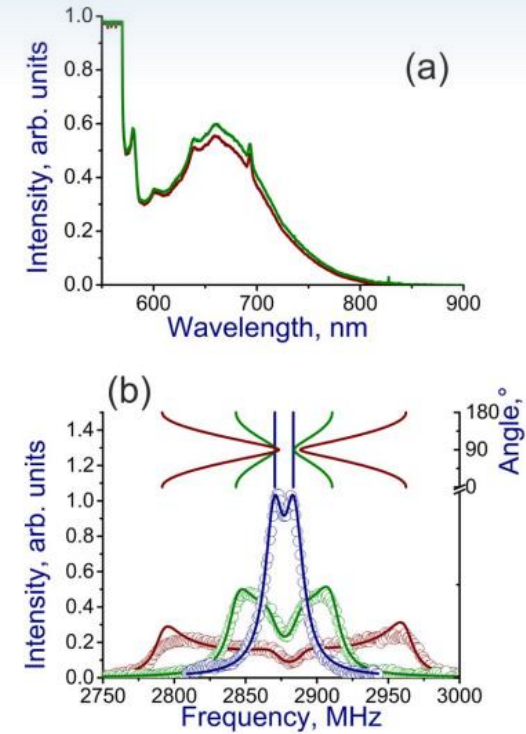
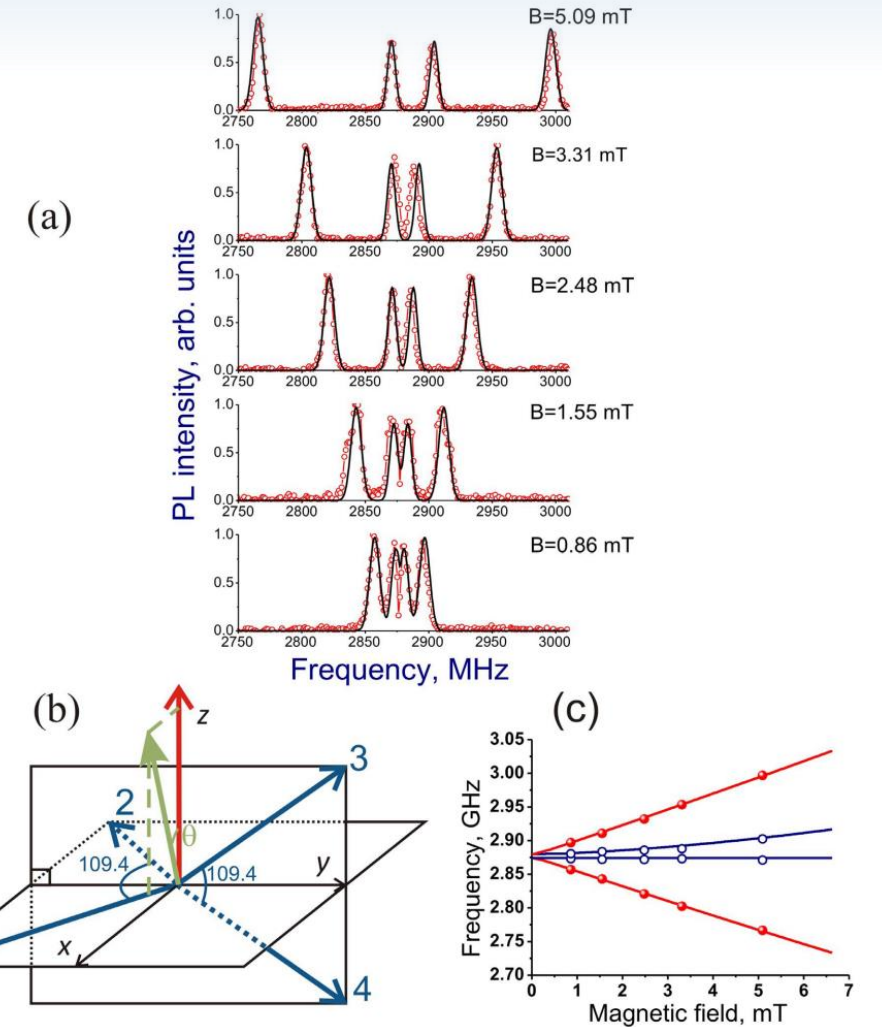
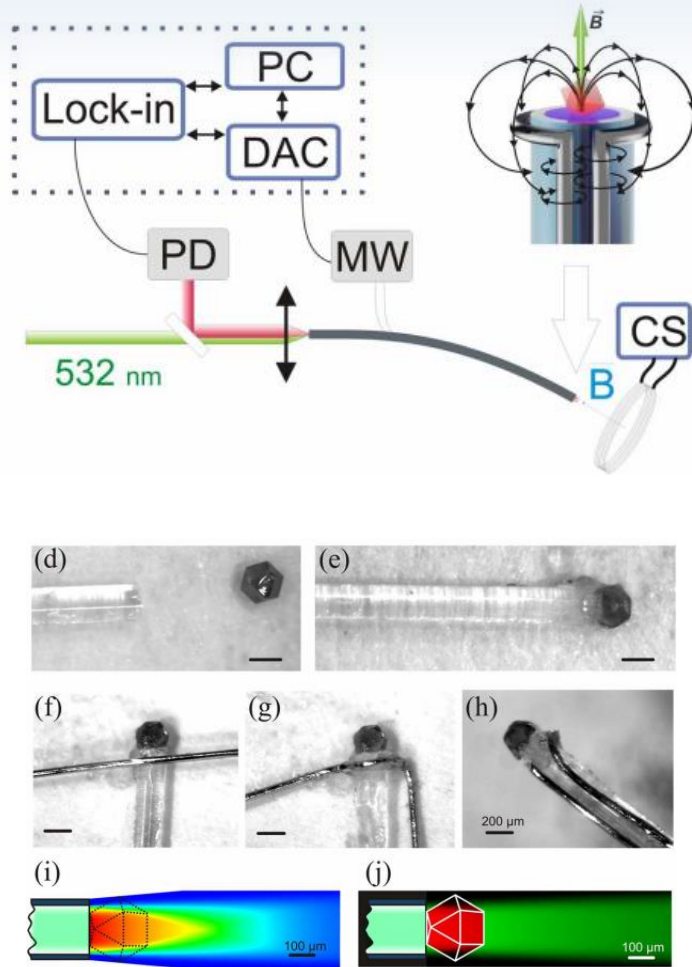


Fig. 4. (a) The spectrum of the PL response from NV centers in nanodiamond deposited on the fiber taper measured with a fiber delivery of both the 532-nm laser beam and the PL spin readout signal, as shown in Fig. 2, with an external magnetic field  $B \approx 5$  mT (red line) and  $B = 0$  (green line). (b) The spin readout return measured (circles) and calculated (solid lines) as a function of the frequency of the microwave field with both the 532-nm laser beam and the PL spin readout signal delivered through the tapered fiber for  $B = 0$  (blue), 1.2 mT (green), and 3.0 mT (red). The upper panel shows the frequencies  $\Omega_1$  and  $\Omega_2$  calculated using the characteristic equation for  $H_s$  as functions of the angle  $\theta$  between the magnetic field  $B$  and the axis of the NV center.

## Fiber-optic magnetometry with randomly oriented spins



В статье описывается манипулирование спиновыми состояниями NV центров и их считывание через оптоволоконно и двухпроводной СВЧ волновод

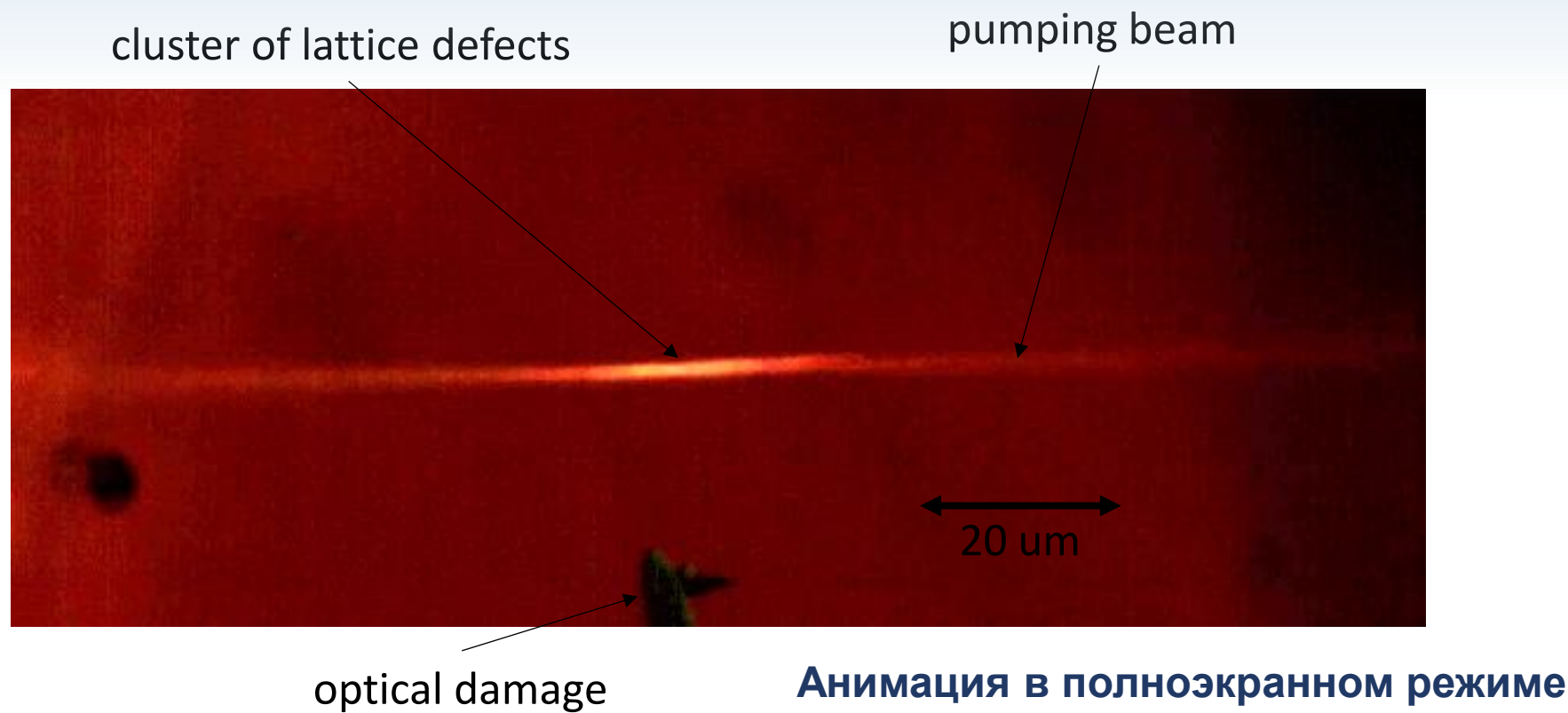


## Electron spin manipulation and readout through an optical fiber

Scientific Reports. 2014. V. 4. P. 5362. doi:10.1038/srep05362

Figure 3 | (a) Intensity of photoluminescence from NV centers as a function of the frequency of the microwave field inducing the electron spin resonance in the presence of a variable magnetic field  $B$  oriented as shown in panel (b). (c) The frequencies of the two pairs of the Zeeman-shifted peaks as a function of the magnitude of the magnetic field: (dots) experimental data and (solid lines) calculations using the model described in the text with  $B$  treated as a fitting parameter.

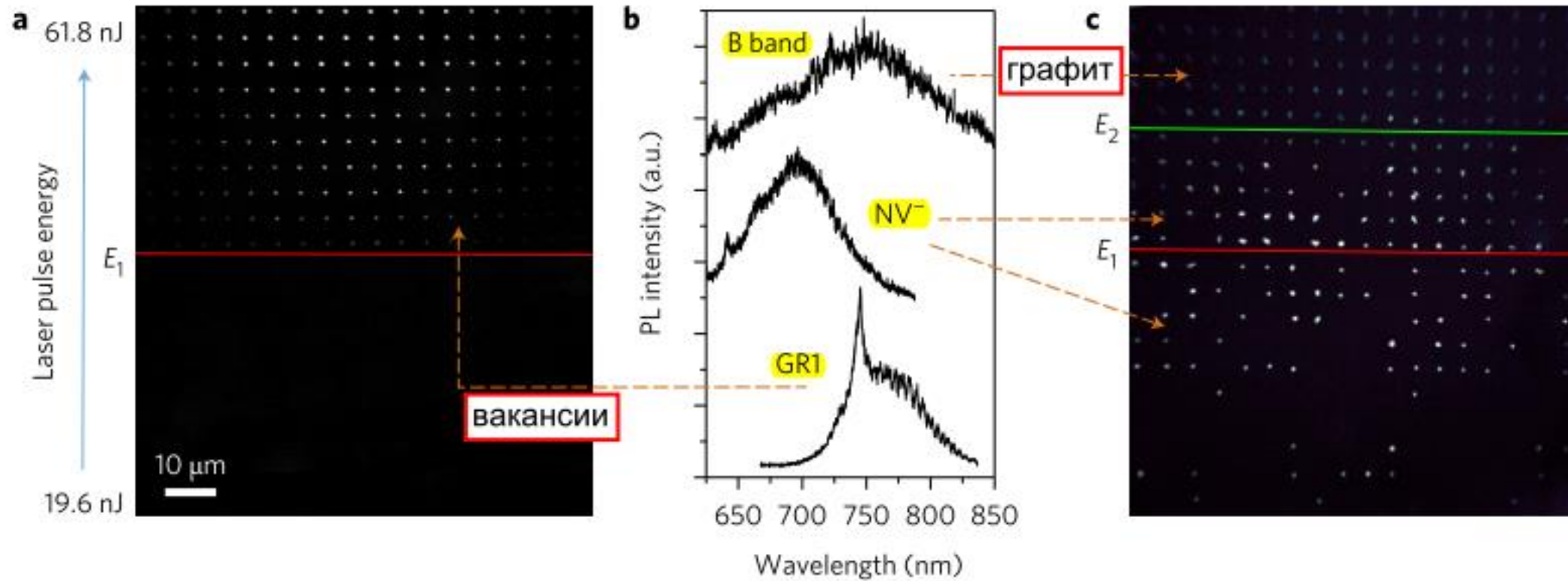
В 2011 г. научным коллективом ФИАН впервые был предложен и реализован способ фабрикации и детектирования кластеров атомарных дефектов кристаллической решетки алмаза с помощью ультракоротких лазерных импульсов



2 465 377 СПОСОБ СОЗДАНИЯ ОПТИЧЕСКИ ПРОНИЦАЕМОГО ИЗОБРАЖЕНИЯ ВНУТРИ АЛМАЗА, УСТРОЙСТВО ДЛЯ ЕГО ОСУЩЕСТВЛЕНИЯ (ВАРИАНТЫ) И УСТРОЙСТВО ДЛЯ ДЕТЕКТИРОВАНИЯ УКАЗАННОГО ИЗОБРАЖЕНИЯ, 30.06.2011 г.

109 877 УСТРОЙСТВО СОЗДАНИЯ ОПТИЧЕСКИ ПРОНИЦАЕМОГО ИЗОБРАЖЕНИЯ ВНУТРИ АЛМАЗА (ВАРИАНТЫ) И УСТРОЙСТВО ДЛЯ ДЕТЕКТИРОВАНИЯ УКАЗАННОГО ИЗОБРАЖЕНИЯ, 04.07.2011 г.

В 2017 г. научной группой из нескольких британских университетов была продемонстрирована лазерная фабрикация одиночных атомарных дефектов кристаллической решетки алмаза



Yu-Chen Chen et al., **Laser writing of coherent colour centres in diamond**,  
NATURE PHOTONICS | VOL 11 | FEBRUARY 2017  
| [www.nature.com/naturephotonics](http://www.nature.com/naturephotonics)

В настоящее время авторским коллективом продолжают исследования фотофизики алмазов. Уже опубликован и готовится к печати ряд исследований механизмов лазерной фабрикации атомарных дефектов кристаллической решетки алмаза:

1. S.I. Kudryashov, A.O. Levchenko, P.A. Danilov, N.A. Smirnov, A.A. Rudenko, ... Direct femtosecond-laser writing of optical-range nanoscale metagratings/metacouplers on diamond surfaces, *Applied Physics Letters* 115 (7), 073102 (2019).
2. S.I. Kudryashov, A.O. Levchenko, P.A. Danilov, N.A. Smirnov, A.A. Ionin, IR femtosecond laser micro-filaments in diamond visualized by inter-band UV-photoluminescence, *Opt. Lett.* 45 (7), 2026-2029 (2020).
3. С.И. Кудряшов, А.О. Левченко, П.А. Данилов, Н.А. Смирнов, А.Е. Рупасов, Р.А. Хмельницкий, О.Е. Ковальчук, А.А. Ионин, Тонкая структура спектра фотолюминесценции в алмазе при многократной эмиссии оптического фонона в ходе автолокализации фотовозбужденных электронов, *Письма в ЖЭТФ* 112(9), 579-583 (2020).
4. S. Kudryashov, A. Levchenko, N. Smirnov, P. Danilov, R. Khmel'nitskii, M. Galkin, A. Rupasov, M. Kovalev, M. Uspenskaya, O. Kovalchuk, A. Ionin, «Quantum coherence versus thermal noise: ultrafast Bose-like electron self-trapping in pre-heated diamond», *ACS Photonics* (2020, under review) .
5. S.I. Kudryashov, P.A. Danilov, N.A. Smirnov, A.O. Levchenko, O.E. Kovalchuk, R.A. Khmel'nitskii, M.V. Uspenskaya, M.S. Kovalev, «Broadband and ultrafine luminescence in diamond facilitated by femtosecond laser driven electron impact and injection of “vacancy-interstitial” pairs», *Optics Letters* (2020, under review).



# Микромасштабная визуализация и спектроскопия фотолюминесценции алмаза под действием ультракоротких лазерных импульсов

Схема микровизуализации

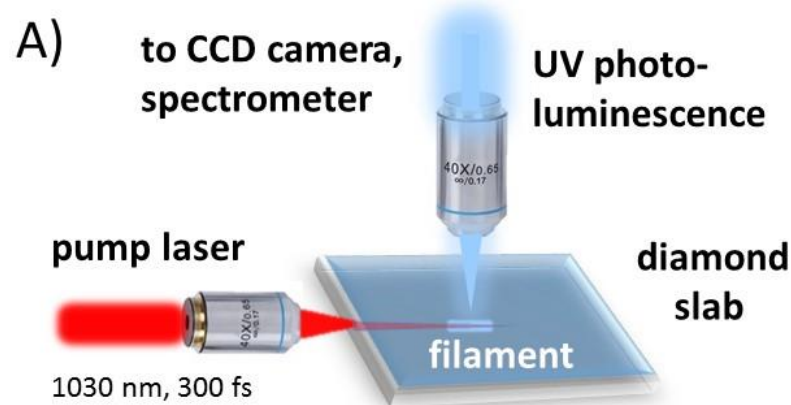
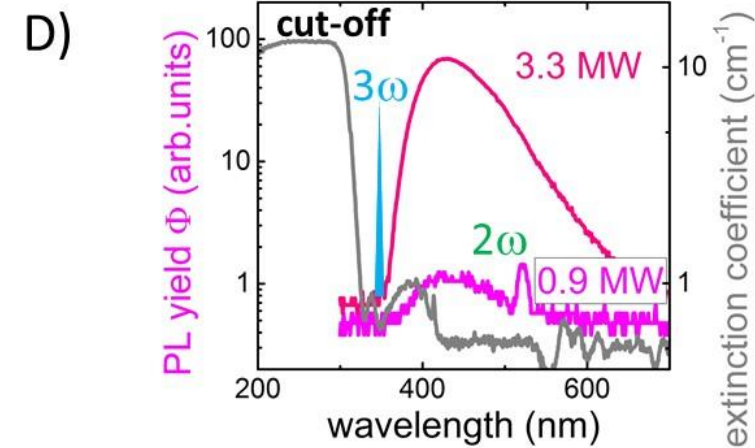
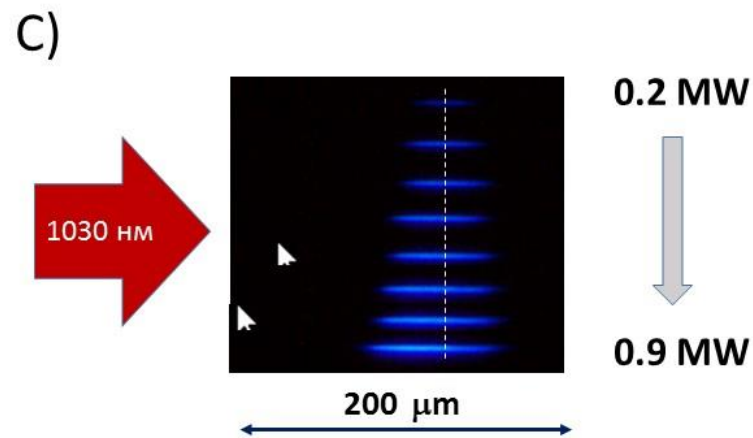
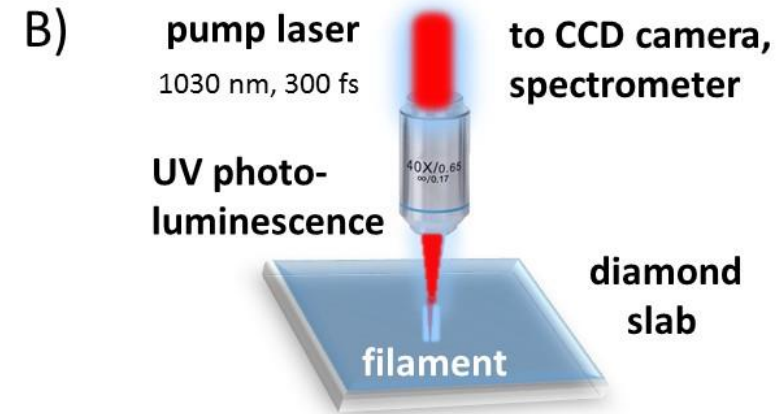
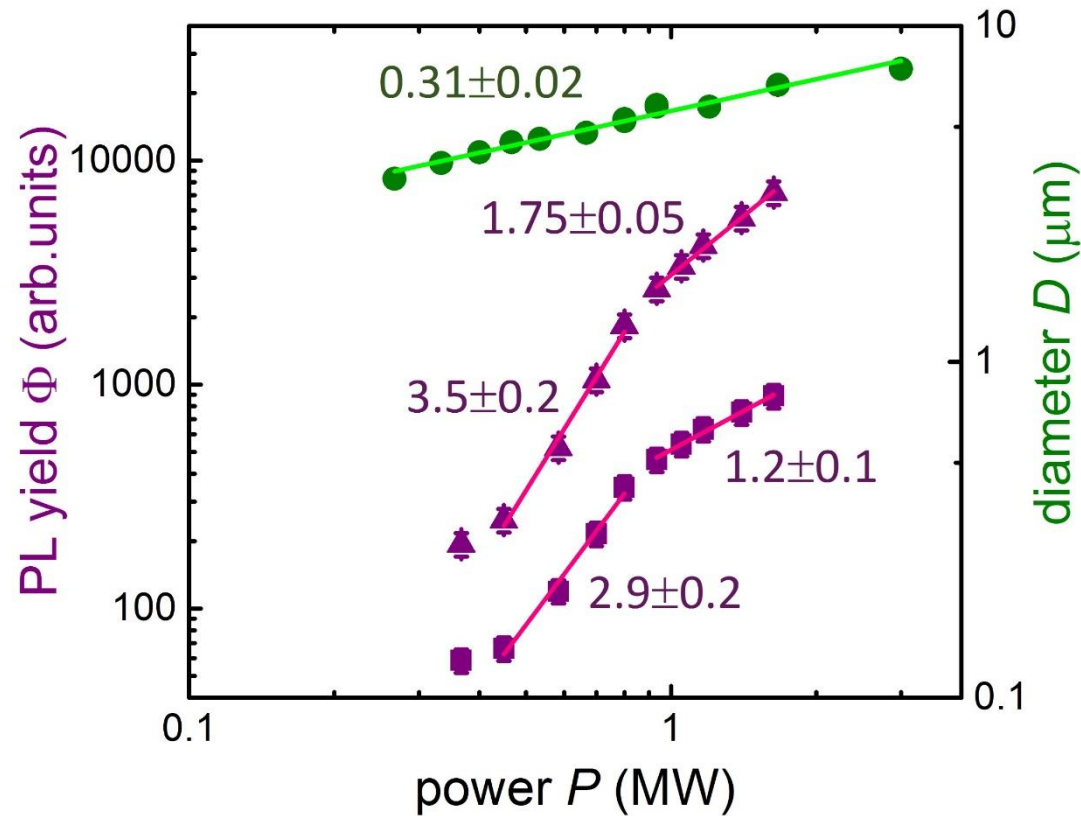


Схема микроспектроскопии



# Динамика электрон-дырочной плазмы по выходу фотолюминесценции алмаза под действием ультракоротких лазерных импульсов

Выход «синей» фотолюминесценции



Кинетическое уравнение для плотности плазмы и его анализ

$$\frac{d\eta_{e,h}}{dt} = \sigma_3 I^3 + \alpha I \eta_{e,h} - \gamma \eta_{e,h}^3 - \beta \eta_{e,h}^2 - \frac{\eta_{e,h}}{\tau_{ST}}$$

Низкие интенсивности: баланс скоростей и выход ФЛ

$$\sigma_3 I^3 \approx \beta \eta_{e,h}^2, \quad \eta_{e,h} \propto I^{3/2}, \quad \Phi \propto \beta \eta_{e,h}^2 \propto I^3,$$

Высокие интенсивности: баланс скоростей и выход ФЛ

$$\alpha I \eta_{e,h} \approx \gamma \eta_{e,h}^3, \quad \eta_{e,h} \propto \sqrt{I}, \quad \Phi \propto \beta \eta_{e,h}^2 \propto I.$$

# Оценка критической мощности самофокусировки в алмазе по данным микромасштабной визуализации фотолюминесценции

Длина филаментов в зависимости от пиковой мощности

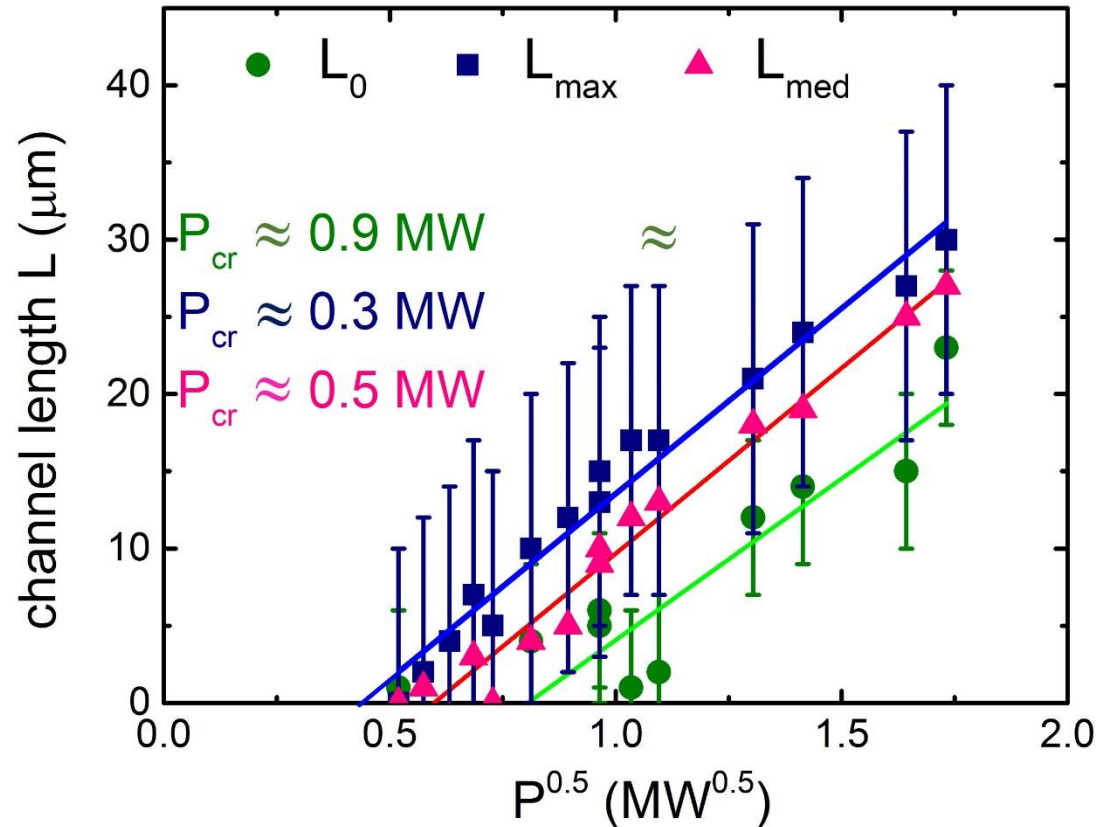


Схема анализа для длины филаментов  $L(P)$

$$\frac{1}{z(P)} = \frac{1}{f} + \frac{1}{f_{NL}(P)},$$

$$f_{NL}(P) = \frac{0.367L_{DF}}{\sqrt{[\sqrt{P/P_{cr}} - 0.852]^2 - 0.0219}},$$

$$f_{NL}(P) = \frac{fz(P)}{f - z(P)} \approx \frac{f^2}{L(P)} \approx \frac{0.367L_{DF}}{\sqrt{P/P_{cr}} - 0.852},$$

$$L(P) \approx \frac{f^2}{0.367L_{DF}\sqrt{P_{cr}}} \left( \sqrt{P} - 0.852\sqrt{P_{cr}} \right).$$

# Тонкая структура спектров фотолюминесценции алмаза, возбуждаемой под действием ультракоротких лазерных импульсов

Схема измерений

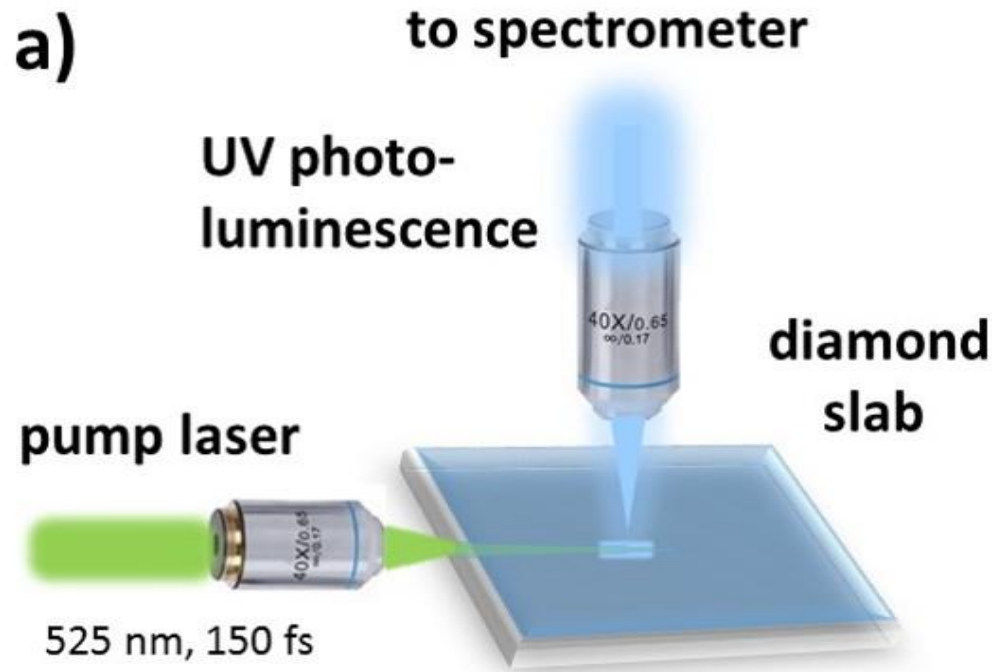
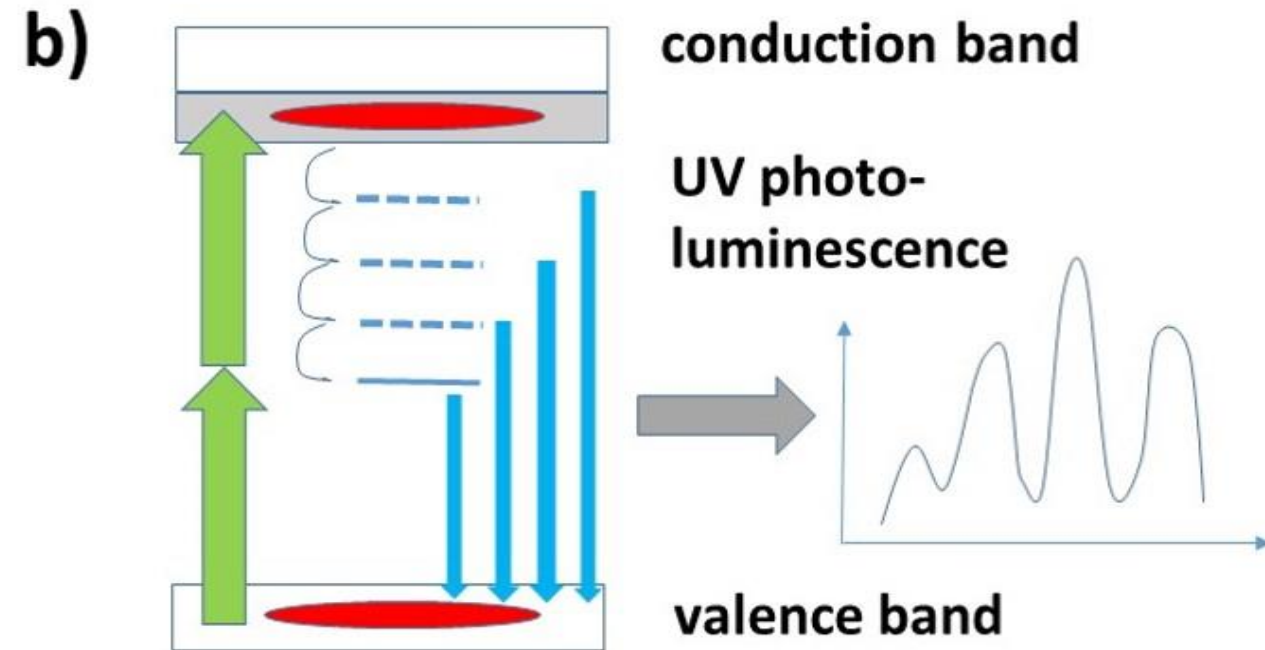


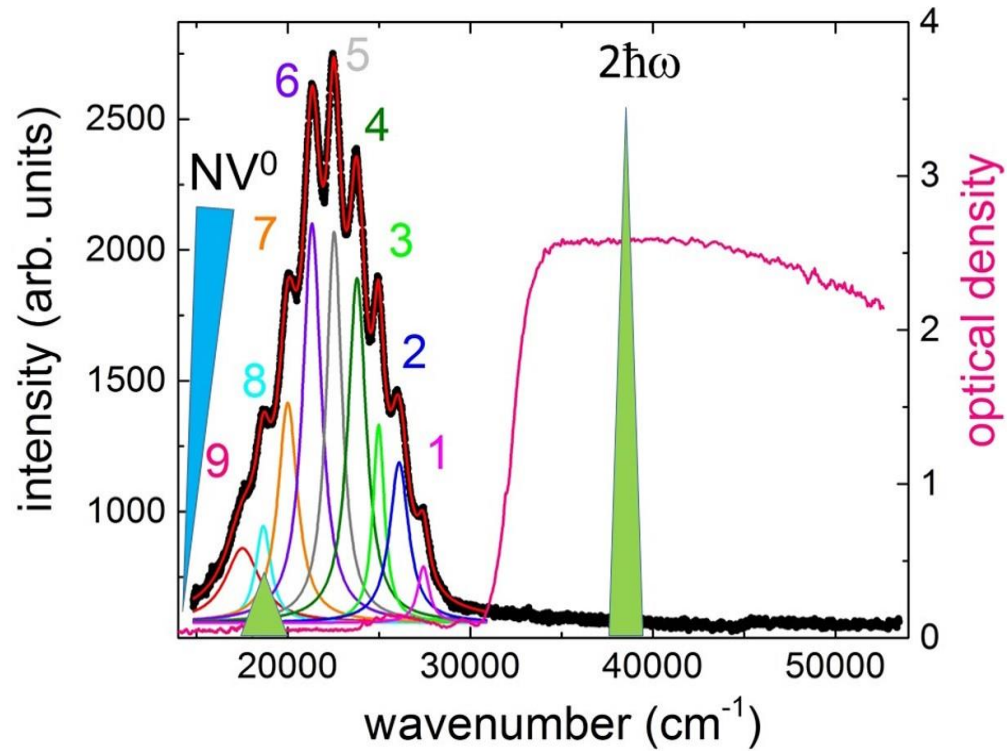
Схема автолокализации электрона путем многократного Бозе-испускания оптического фона и характерный вид спектров фотолюминесценции



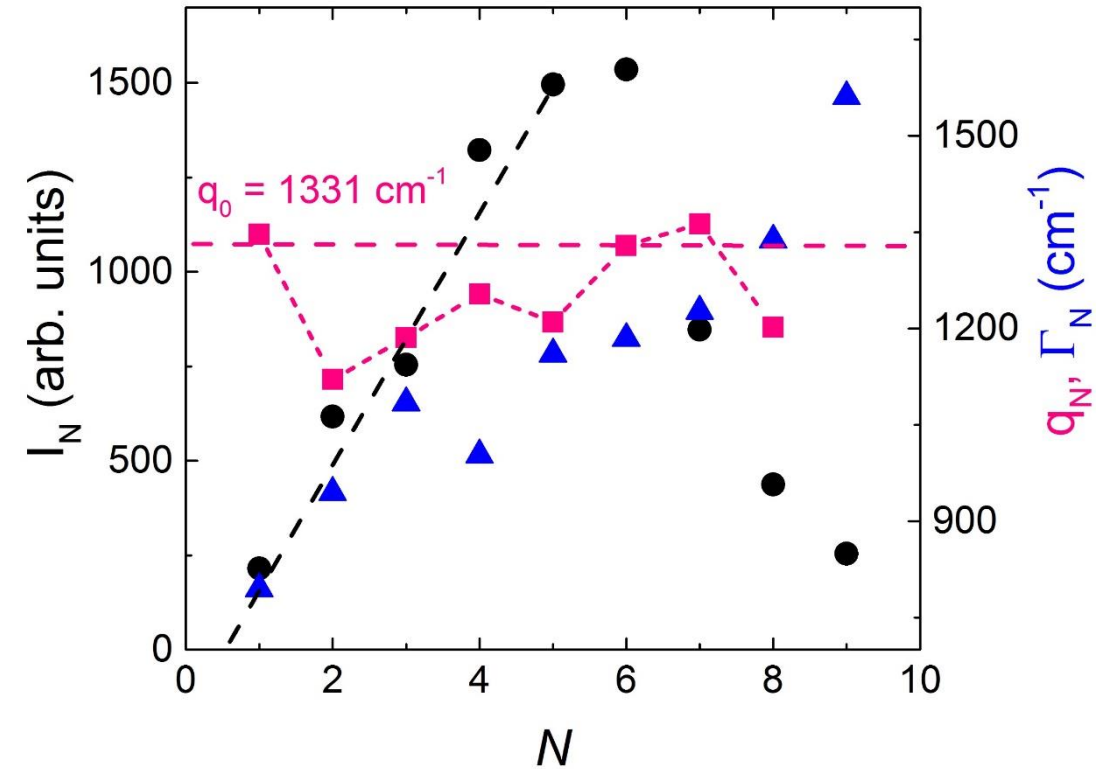


# Внутризонный характер автолокализации и его параметры в фотолюминесценции

Лоренцевское разложение спектров

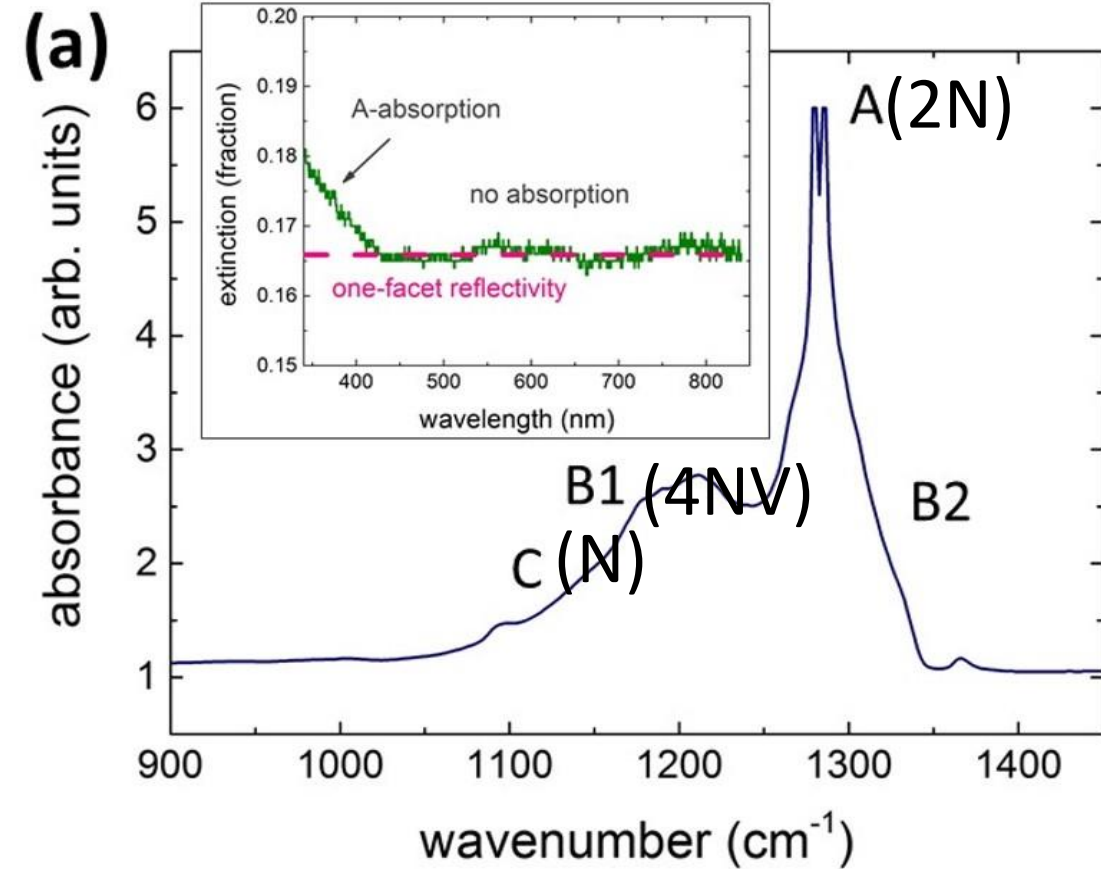


Динамическое размягчение фотонов, рост и спад интенсивности из-за рекомбинации плазмы

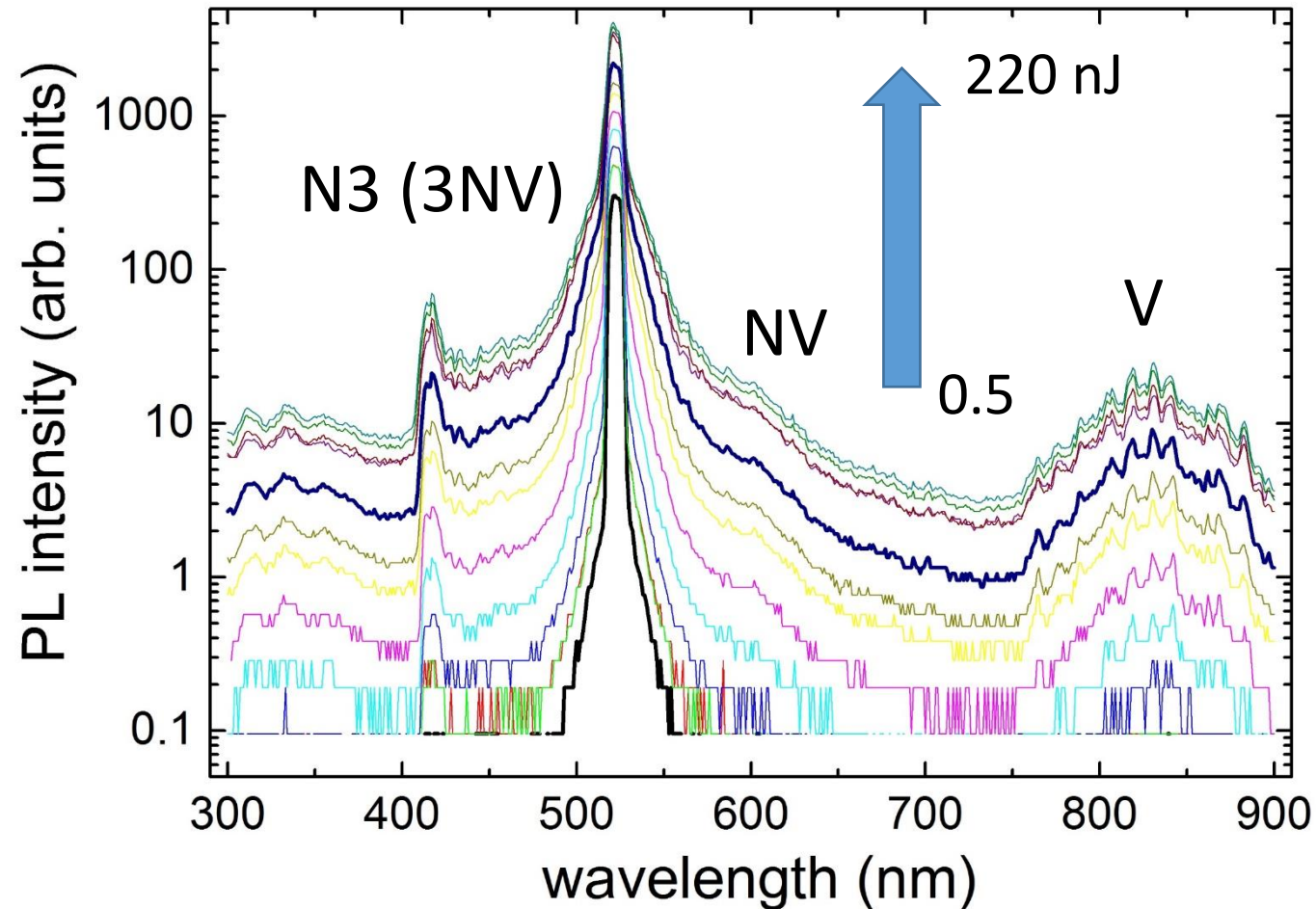


# Микромасштабная модификация оптических центров в алмазе под действием ультракоротких лазерных импульсов: наблюдение в фотолюминесценции

УФ-ИК спектроскопия исходных азотных оптических центров

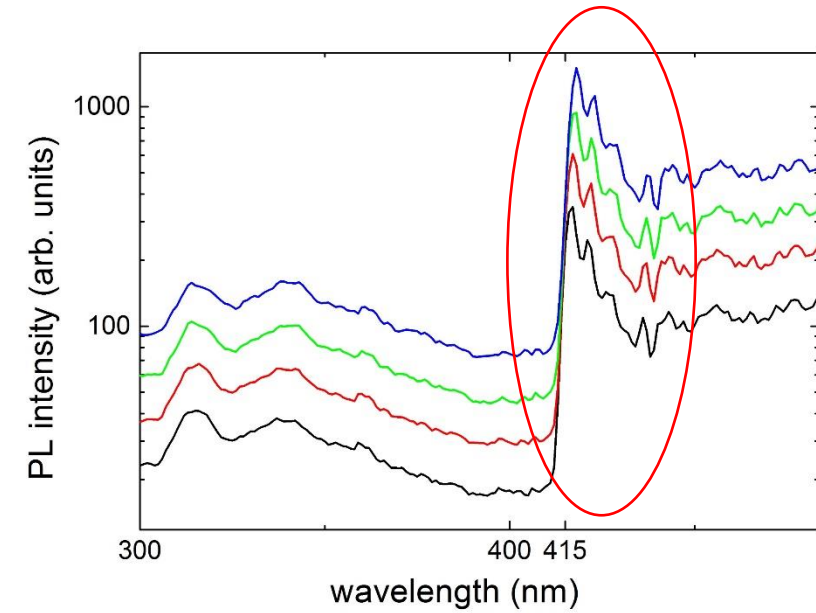


Новые азотно-вакансионные оптические центры в фотолюминесценции – лазерная фотоинжекция вакансии

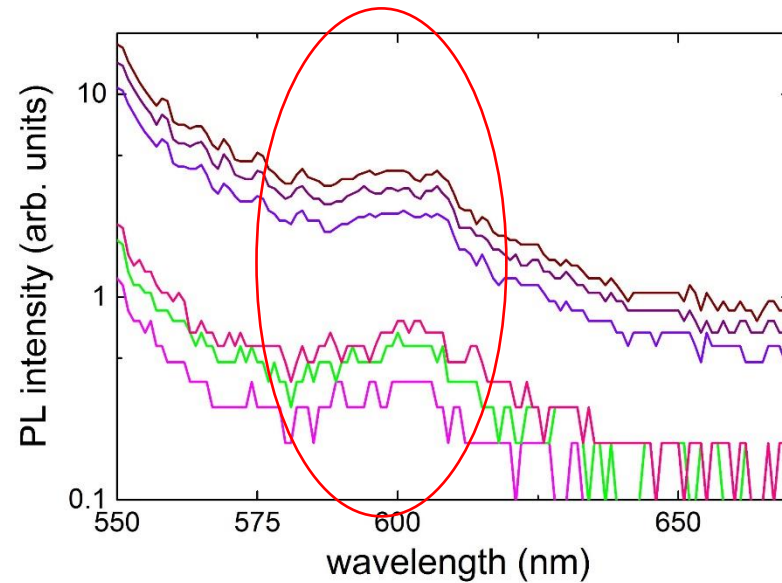


# Проявление тонкой вибронной структуры оптических центров Фотолюминесценции, возбуждаемой ультракороткими лазерными импульсами

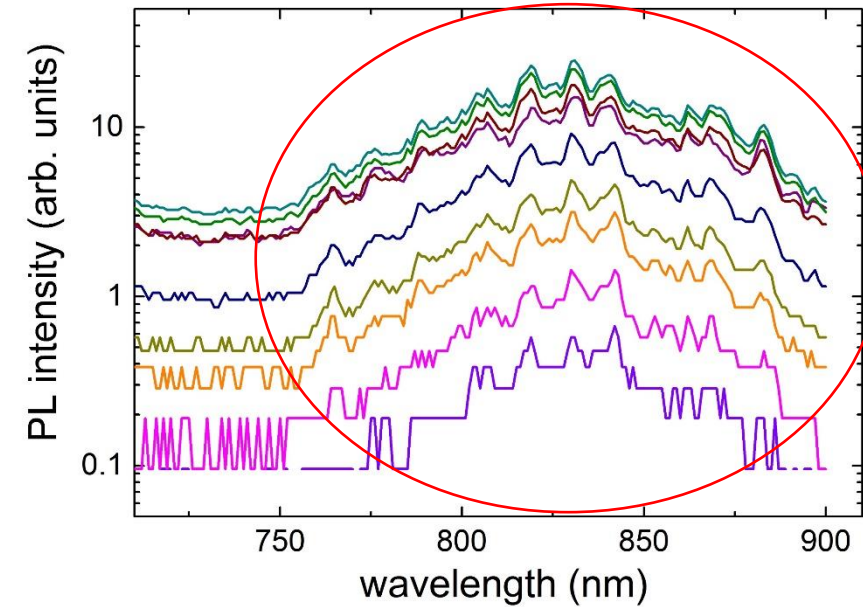
N3 (3NV) центр



NV



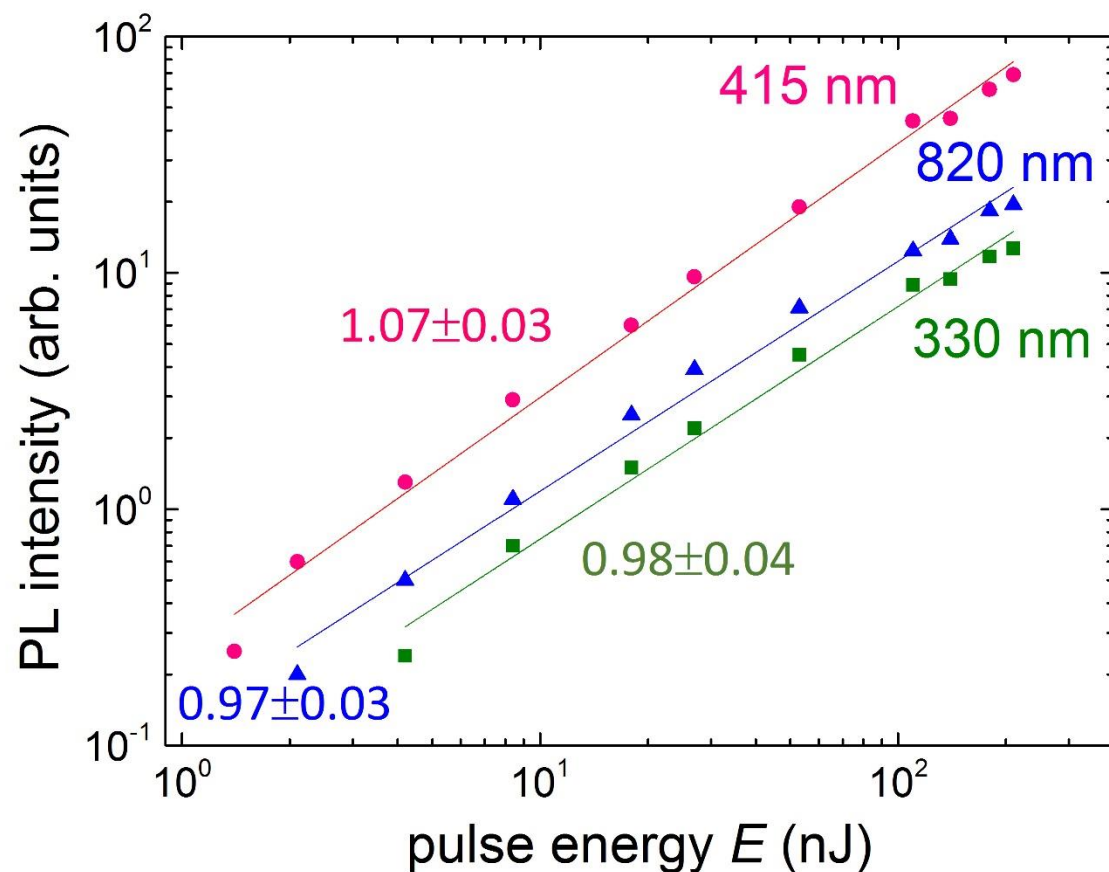
V



Атермическое возбуждение люминесценции через резонансный захват «горячих» электронов плазмы

# Обоснование механизма атермического возбуждения люминесценции оптических центров через резонансный захват «горячих» электронов плазмы

Выход интенсивности ФЛ разных центров



Кинетическое уравнение для плотности плазмы и его анализ для выхода ФЛ

$$\frac{d\eta_{e,h}}{dt} = \alpha I \eta_{e,h} - \gamma \eta_{e,h}^3 - \beta \eta_{e,h}^2 - \frac{\eta_{e,h}}{\tau_{ST}}, \quad \alpha I \eta_{e,h} \approx \gamma \eta_{e,h}^3,$$

$$\eta_{e,h} \propto I_0^{1/2}, \quad \Phi \propto \int \beta \eta_{e,h}^2 dt \propto I_0^1.$$