



中国科学院大学

University of Chinese Academy of Sciences

博士学位论文

金刚石中氮空位中心自旋相干性质与量子操控研究

作者姓名: 常彦春

指导教师: 赵宏武 研究员 中国科学院物理研究所

潘新宇 副研究员 中国科学院物理研究所

学位类别: 理学博士

学科专业: 凝聚态物理

研究所: 中国科学院物理研究所

2015 年 5 月

The coherence properties and quantum manipulation of
nitrogen-vacancy center spin in diamond

By

Yan-Chun Chang

A Dissertation Submitted to
The University of Chinese Academy of Sciences
In partial fulfillment of the requirement
For the degree of
Doctor of Science

Institute of Physics,
Chinese Academy of Sciences

May, 2015

摘要

由于量子并行计算的巨大潜力以及量子通讯原则上的绝对安全性，量子信息处理近年来吸引了全世界的广泛关注。作为固态自旋系统，金刚石中的氮空位中心是量子信息处理最有希望的候选载体之一。氮空位中心电子自旋可以通过光学脉冲初始化，并且可以被高保真度地光学读出。微波脉冲被用于对氮空位中心自旋进行相干操控。借助与近邻核自旋的超精细作用，可以构成多量子比特系统。利用氮空位中心自旋系统，实现了很多在量子信息处理、量子探测、量子度量等应用领域的重要工作。在本文中，我们研究了氮空位中心自旋的相干性质，对量子操控过程进行了改进，并展示了利用氮空位中心进行量子信息处理的一项具体应用。

当不同量子比特间存在不必要的相互作用时，高保真度量子操控会面临挑战。为了应对这一问题，我们引入了一种新的脉冲技术，即 REBURP 形状化脉冲。它可以在预设的频率范围内具有几乎相同的激发效果，并且频带边沿很陡直。范围以外的非共振激发可以被很好地抑制，使得 REBURP 脉冲具有边带选择性。我们通过频率扫描实验验证了这些自旋响应特性。由中心 ^{14}N 核自旋造成的三个超精细跃迁可以被 REBURP 脉冲同时精确操控，而其他跃迁可以保持不受影响。利用 REBURP 脉冲可以将量子操控保真度提高一倍以上，这一技术可以用于量子信息处理、量子度量等各种应用中。

氮空位中心集群样品可以用于复合量子比特系统，量子探测与成像等，我们对其相干性质进行了研究。之前人们普遍认为在 IIa 型金刚石样品中氮空位中心电子自旋的退相干由 ^{13}C 核自旋环境所主导，我们样品的自旋回波信号与此吻合。并且一般情况下 ^{13}C 核自旋与 P1 中心自旋环境的热涨落都可以被自旋回波码型消除，使得该样品的相干时间 T_2 可以达到 400 μs 。但是在某些磁场下 T_2 时间却会因为 P1 中心与氮空位中心共振而衰减到只有 140 μs 。此时 P1 中心会与氮空位中心同时被自旋回波码型中的 π 脉冲反转，导致了 P1 中心自旋环境的涨落不再能被抑制。我们进一步实施了改造过的自旋回波码型，用以验证这一机理并评估 P1 中心自旋环境的贡献。对这一两种不同自旋环境之间可控竞

争的发现将帮助我们进一步认识氮空位中心自旋的退相干机制。

氮空位中心的应用需要依赖于自旋的相干性。本文中提出了一种利用选择性脉冲的相干性集聚增强方案，并在氮空位中心集群样品中通过实验评估了其效果。利用弱选择性脉冲的窄带激发可以抑制氮空位中心周围 ^{13}C 自旋环境的非均匀展宽。但在窄带激发过程中，信号幅度衰减也很严重。我们发挥氮空位中心集群样品的优势来增强实验信号，并且选择性脉冲可以进一步地消除不同氮空位中心之间的非均匀展宽效应。氮空位中心电子自旋的三能级结构以及踢出(Kickout)脉冲被用来使方案更加实用。我们获得了几十倍的退相干时间 T_2^* 延长，这一延长效果与选择性脉冲的长度正相关。这一相干性集聚增强方案提供了获得更长相干时间的新途径，也将有利于自旋集群样品的应用，比如量子信息处理、量子度量等。

量子密钥分配对于量子保密通讯非常重要，其物理基础是不可克隆原理。相位克隆机可以被用于攻击 BB84 量子密钥分配方案。我们在室温下纳米金刚石中实施了一项全相位可控的优化量子相位克隆机。这一优化相位克隆机对于位于布洛赫球赤道上的 BB84 态表现很好。实验中量子态的相位实现了全面控制，并且可以被准确测量，并且实验结果都与理论预期值吻合得很好。量子克隆机的平均相位保真度达到 85.1%，很接近理论值 85.4，超过了通用量子克隆机的保真度上限 83.3%。对量子克隆的高保真度展示将有助于量子密钥分配方案安全性的分析。量子相位的精确控制与测量也将有利于量子信息处理中相位可控器件的进一步应用。

综上所述，我们进行了一系列金刚石中氮空位中心自旋相干性质与量子操控的研究。这些研究结果将有助于氮空位中心的广泛应用，例如在利用复合量子比特实现可扩展量子计算，量子度量学，量子探测与成像等。

关键词：氮空位中心、量子操控、相干性质、光磁共振、量子克隆

Abstract

Because of the enormous potentiality of quantum parallel computing and the unconditionally security of quantum communication, quantum information process (QIP) has drawn much attention from worldwide these years. As solid spin system, nitrogen-vacancy (NV) center in diamond is one of the most promising candidate for QIP. NV electron spin can be initialized by laser pulse and optically readout with high fidelity. Microwave is used to coherently manipulate the NV spin, and multi-qubit system can be constituted by hyperfine interactions with ambient nuclear spins. A lot of important work has been performed with NV system in various applications, such as QIP, quantum detection and quantum metrology. In this dissertation, we have investigated the coherence properties of NV spin. The quantum manipulation processes have also been improved, and one QIP application is demonstrated using NV system.

When there are unwanted interactions between different qubits, high fidelity quantum control may face challenging. To solve this problem, we introduced a new pulse technique, that is the REBURP shaped pulse. It has almost the same excitation effect within a prescribed frequency range with sharp edge. As off-resonant excitations beyond the region are well suppressed, REBURP pulse is band-selective. These spin response properties are verified by frequency-sweeping experiments. The three sub-transitions induced by host ^{14}N nuclear spin can be accurately manipulated by REBURP pulse simultaneously, while other transitions maintain unaffected. The control fidelity can be more than doubled by REBURP pulse. This technique can be used in various applications, such as QIP and quantum metrology.

We have investigated the coherence properties of NV ensemble, which can be used in hybrid qubits system, quantum detection and imaging. It was believed that ^{13}C nuclear spin bath dominate the decoherence of NV electron spin in type IIa diamond, and spin echo of our sample coincides with that. Coherence time T_2 can reach 400 μs , as the thermal fluctuation of both ^{13}C nuclear spin and P1 spin baths

can be generally eliminated by the Hahn echo sequence. However, we find that T_2 time decreases to 140 μs at some magnetic fields, as P1 centers and NV electron spin are resonant with each other. Under such resonant condition, P1 centers will be flipped together with NV electron spin by the same π pulse in Hahn echo, and the fluctuation of P1 spin bath can not be suppressed any more. Engineered Hahn echo sequence is further applied to verify the mechanism and estimate the contribution of P1 spin bath. The demonstration of this controllable competition between two kinds of spin bath will help to further understand the decoherence mechanisms of NV electron spin.

The applications of NV rely on the spin coherence. Here we propose an collective coherence enhancing scheme using selective pulse, and implement experiments to evaluate its effect in NV ensemble. Narrow-band excitation by weak selective pulse can suppress the inhomogeneous broadening of ^{13}C spin bath around NV center. However, signal amplitude decrease greatly during the narrow-band excitation. We take advantage of NV ensemble to improve the experiment signal, and the selective pulse can further eliminate the inhomogeneous effect of individual NV center. The Triplet of NV electron spin and kickout pulse are used to make the scheme more practical. A great enhancement of the decoherence time T_2^* is achieved, which is proportional to the selective pulse length, reaching several tenfold. This collective coherence enhancing scheme provide new approach to obtain long coherence time, and will benefit the applications of spin ensembles, such as QIP and quantum metrology.

Quantum key distribution (QKD), the physical foundation of which is the no-cloning theorem, is crucially important for quantum private communications. Phase quantum cloning can be used to attack the Bennett-Brassard 1984 (BB84) QKD scheme. We implement an optimal quantum phase cloning machine with full controllable phase in a nanodiamond at room temperature. The optimal phase cloning machine works well for BB84 states which are all located at the equator of the Bloch sphere. The phase of the quantum states is fully controlled and can be measured accurately, and all the experimental results coincide with the theoretical

expectations. Close to the theoretical value of 85.4%, the averaged phase fidelity of the cloning machine is 85.1%, which exceeds the universal quantum cloning bound of 83.3%. The demonstration of high fidelity quantum cloning will help to analyze the security of QKDs. The precise control and measurement of quantum phase will benefit the applications of phase-controllable devices in QIP.

In summary, we have carried out a series of experimental investigations on the coherence properties and quantum manipulation of NV center spin in diamond. These results will benefit the various applications of NV system, for example, scalable quantum computing using hybrid qubits, quantum metrology, quantum detection and imaging.

Keywords: nitrogen-vacancy (NV), quantum manipulation, coherence property, optically detected magnetic resonance (ODMR), quantum cloning.

目录

摘要	I
ABSTRACT	III
目录	VII
插图与表格	XI
第一章 引言	1
1.1 量子信息的发展	1
1.2 氮空位中心研究概述	2
1.3 本文结构介绍	4
第二章 量子信息与氮空位中心简介	7
2.1 量子信息简介	7
2.1.1 量子比特介绍	7
2.1.2 量子逻辑门	9
2.1.3 量子算法简介	10
2.1.4 量子通讯简介	11
2.1.5 量子计算的物理实现	12
2.2 氮空位中心简介	13
2.2.1 金刚石简介	13
2.2.2 氮空位中心的基本性质	14
2.2.3 氮空位中心的超精细结构	17
第三章 氮空位中心的自旋操控技术	19
3.1 氮空位中心电子自旋的基础操控	19
3.1.1 连续波光学探测磁共振	19
3.1.2 电子自旋拉比振荡	20
3.1.3 脉冲光学探测磁共振	23

3.2 氮空位中心电子自旋相干性质表征	24
3.2.1 纵向弛豫时间 T_1	24
3.2.2 自由感应衰减与 T_2^*	26
3.2.3 自旋回波与 T_2	28
3.3 氮空位中心核自旋操控简介	32
3.3.1 激发态能级交错效应	33
3.3.2 核自旋光磁共振谱	34
3.3.3 核自旋拉比振荡	36
3.4 室温光磁共振平台	37
3.4.1 共聚焦扫描显微系统	38
3.4.2 微波射频调控及磁场系统	39
3.4.3 设备控制与数据采集系统	40
3.4.4 样品加工技术	41
第四章 用于高保真量子操控的边带选择形状化脉冲	43
4.1 脉冲优化技术应用背景	43
4.2 微波操控脉冲	45
4.2.1 传统方波脉冲	45
4.2.2 REBURP 形状化脉冲	46
4.2.3 自旋响应谱	47
4.3 实验体系及装置介绍	48
4.3.1 氮空位中心能级体系	48
4.3.2 实验系统介绍	49
4.4 实验验证形状化脉冲的自旋响应特性	50
4.5 实验评估形状化脉冲的操控效果	52
4.6 小结	56
第五章 P1 电子自旋与 ^{13}C 核自旋环境的可控竞争	57
5.1 氮空位中心电子自旋退相干机理	57
5.2 IIA 型集群金刚石样品的基础性质	60
5.3 P1 电子自旋与 ^{13}C 核自旋环境的竞争现象	63

5.4 P1 电子自旋与 ^{13}C 核自旋环境竞争的机理	66
5.5 小结	68
第六章 金刚石中氮空位中心电子自旋相干性的集聚增强.....	71
6.1 相干性集聚增强的研究背景和基本原理	72
6.2 实验体系介绍	73
6.2.1 氮空位中心的非均匀展宽效应	73
6.2.2 利用氮空位中心集群样品增大信号	74
6.2.3 氮空位中心集群样品的基本相干性质	76
6.3 相干性集聚增强的实验过程	77
6.3.1 窄带激发效果测试	77
6.3.2 相干性集聚增强的改进方案	78
6.3.3 相干性集聚增强实验流程	79
6.4 相干性集聚增强实验结果分析	80
6.5 小结	82
第七章 室温纳米金刚石中全相位相干控制的量子克隆机.....	83
7.1 相位协变量子克隆机背景介绍	83
7.2 实验样品基本特性	85
7.3 相位协变量子克隆机的实施方案	87
7.3.1 相位协变量子克隆机的编码方案	88
7.3.2 实验装置介绍	89
7.3.3 实验流程	91
7.4 实验相关技术过程	91
7.4.1 相位量子态的制备	92
7.4.2 量子态的相位测量	92
7.4.3 量子态的布居测量	94
7.5 实验结果分析	95
7.5.1 相位控制与测量精度测试	95
7.5.2 相位测量实验结果	96
7.5.3 布居测量实验结果	97

7.6 密度矩阵与保真度	98
7.6.1 克隆输出态的密度矩阵	98
7.6.2 克隆保真度	99
7.7 小结	101
第八章 总结与展望	103
参考文献	107
发表文章目录	125
个人简历	127
致谢	129

插图与表格

图 1	量子比特的布洛赫球表示.....	7
图 2	受控非门线路图.....	9
图 3	金刚石晶体的复合面心立方结构.....	13
图 4	氮空位中心的物理结构.....	14
图 5	氮空位中心能级结构.....	15
图 6	氮空位中心单点荧光的二次相关性测试.....	16
图 7	考虑 ^{14}N 核自旋后 NV 的超精细结构	17
图 8	连续波光学探测磁共振谱.....	19
图 9	拉比振荡脉冲码型图.....	21
图 10	氮空位中心电子自旋拉比振荡信号.....	22
图 11	脉冲光学探测磁共振脉冲码型.....	23
图 12	氮空位中心脉冲光磁共振谱.....	24
图 13	纵向弛豫时间测量脉冲码型.....	25
图 14	氮空位中心集群纵向弛豫衰减曲线.....	25
图 15	自由感应衰减的脉冲码型.....	26
图 16	^{14}N 极化以后的典型自由感应衰减曲线	27
图 17	^{14}N 极化以后具有失谐的自由感应衰减曲线	27
图 18	^{14}N 未极化时的自由感应衰减曲线	28
图 19	自旋回波脉冲码型.....	29
图 20	^{14}N 极化后 $\tau' \neq \tau$ 的自旋回波曲线	29
图 21	^{14}N 未极化时 $\tau' \neq \tau$ 的自旋回波曲线	30
图 22	自旋回波曲线中的周期性消失与重现现象.....	31
图 23	$\tau' = \tau$ 的自旋回波信号与相干时间 T_2	31
图 24	CPMG-n 脉冲码型示意图	32
图 25	氮空位中心激发态能级交错示意图.....	33
图 26	^{14}N 核自旋量子操控示意图	34
图 27	ESLAC 条件下的核自旋光磁共振脉冲码型	35

图 28	集群样品的 ^{14}N 核自旋光磁共振谱	35
图 29	ESLAC 条件下的核自旋拉比振荡码型	36
图 30	集群样品的 ^{14}N 核自旋拉比振荡	37
图 31	共聚焦显微镜原理图	37
图 32	共聚焦扫描显微系统示意图	38
图 33	微波射频线路示意图	39
图 34	固态浸没透镜荧光扫描图	41
图 35	金刚石晶体表面共面波导荧光扫描图	42
图 36	存在邻近 ^{13}C 核自旋的氮空位中心	44
图 37	传统方波脉冲及其自旋响应谱	45
图 38	REBURP 形状化脉冲外轮廓	46
图 39	REBURP 形状化脉冲的自旋响应谱	47
图 40	不同类型的氮空位中心光磁共振谱	48
图 41	频率扫描实验示意图	49
图 42	频率扫描实验模拟与实验结果对比	50
图 43	不同时间尺度形状化脉冲的自旋响应谱	51
图 45	不同时间尺度 REBURP 脉冲频率扫描效果	52
图 44	具有严重拍频的拉比振荡	53
图 46	多次翻转实验脉冲码型	53
图 47	方波脉冲和形状化脉冲的多次翻转效果	54
图 48	方波脉冲和形状化脉冲的二次翻转效率对比	55
图 49	氮空位中心自旋临近不同自旋环境竞争示意图	59
图 50	具有取向倾向性的不同光磁共振谱	60
图 51	IIa 型集群样品的拉比振荡和自由感应衰减实验曲线	61
图 52	IIa 型集群样品的自旋回波实验曲线	62
图 53	不同磁场下 IIa 型集群样品的自旋回波实验曲线	63
图 54	氮空位中心、P1 中心能级结构与磁场的关系	64
图 55	IIa 型集群样品相干时间 T_2 随磁场大小的变化关系	65

图 56	改造过的自旋回波脉冲码型.....	66
图 57	相干时间与外加微波脉冲频率的关系.....	67
图 58	氮空位中心单点的自旋环境竞争现象.....	68
图 50	中心自旋的非均匀展宽示意图.....	71
图 51	相干性集聚增强的原理示意图.....	72
图 52	氮空位中心集群样品的光磁共振谱.....	75
图 53	氮空位中心集群样品的基本相干性质.....	75
图 54	不同振荡周期的拉比振荡.....	76
图 55	拉比衰减时间与拉比振荡周期的关系.....	77
图 56	相干性集聚增强的改进方案.....	78
图 57	相干性集聚增强实验脉冲码型.....	79
图 58	不同选择性脉冲长度的自由感应衰减曲线.....	80
图 59	退相干时间及信号幅度与选择性脉冲的关系.....	81
图 59	纳米金刚石样品的原子力显微镜扫描图.....	84
图 60	纳米金刚石样品荧光扫描图与共面波导天线.....	85
图 61	纳米金刚石样品中典型的自由感应衰减和拉比振荡实验曲线...	86
图 62	氮空位中心的能级结构和光磁共振谱.....	87
图 63	相位协变量子克隆实验装置示意图.....	89
图 64	相位协变量子克隆实验脉冲码型.....	90
图 65	相位量子态的制备.....	92
图 66	量子态的相位测量过程.....	93
图 67	量子态的布居测量过程.....	94
图 68	相位控制与测量精度测试.....	95
图 69	相位测量实验结果.....	96
图 70	布居测量实验结果.....	97
图 71	克隆输出态的密度矩阵.....	99
图 72	相位克隆保真度.....	100

表格 1	按照杂质浓度的金刚石分类	14
表格 2	已有工作不同样品退相干的主导性杂质	58

第一章 引言

1.1 量子信息的发展

20 世纪以来, 自然科学领域取得了突飞猛进的发展。而其中颇具影响力的两个学科, 量子力学和信息技术则日益深远地改变了人类的生活。量子力学使人类对自然界的认识有了划时代的突破, 成为了凝聚态物理、原子分子物理、核物理、量子化学等研究的理论基础, 并且孕育了微电子、激光、材料等改变人类生活面貌的一系列高新技术。而信息技术则在不知不觉中显著地改变了人们的生产和生活方式, 提高了工作效率和生活质量。

1946 年世界上第一台电子计算机 ENIAC 问世, 之后随着晶体管的诞生, 计算机行业开始以惊人的速度发展。1965 年戈登·摩尔 (Gordon Moore) 便对计算机行业发展作出了大胆的预测^[1]。后经 1975 年的修正他预言: 计算机的性能每 18 个月将提升一倍, 其芯片集成度即单位芯片面积的晶体管数目提高一倍, 后被称为摩尔定律^[2]。这也意味着, 随着计算能力的不断增长, 计算机中电子元件的尺寸会不断减小。

过去的几十年计算机行业发展基本与 Moore 定律一致, 伴随着信息产业蓬勃发展人类进入了崭新的信息化时代。随着电子元件尺寸缩小, 目前芯片制造工艺已经即将进入 10 nm 以下。量子隧穿、量子干涉等量子物理效应将会逐渐显现, 从而影响传统芯片正常工作的物理基础。同时芯片的散热也会成为影响芯片性能的因素。长远看来经典计算机的发展, 会遇到许多挑战和困难。

然而, 随着科技发展对大型计算需求的增长以及近年来兴起的大数据等, 都要求计算机的性能不断与时俱进。因此, 经典的信息技术需要更新以应对科技发展的需求。二十世纪六七十年代, Landauer 和 Bennett 开始研究将经典计算机改造为可逆计算^[3,4], 之后 Benioff 提出用量子力学来描述可逆计算机^[5]。1982 年 R.P.Feynman 首次提出了现代意义的量子计算机与量子模拟的概念^[6]。1985 年 D.Deutsch 提出了可并行计算的量子图灵机概念^[7]。1992 年, Berthiaume 和 Brassard 在理论上证明了量子图灵机比经典图灵机更快^[8]。

同一时期, 在量子通讯方面, 1984 年 Bennett 与 Brassard 提出了第一量子

密钥分发方案^[9], 即 BB84 方案 (BB84-QKD)。1992 年, Bennett 又提出更简单但效率减半的 B92 方案^[10]。1993 年 Bennet 等六位科学家联名提出了量子隐形传态 (quantum teleportation) 的设想。^[11]

1994 年 Shor 提出了著名的大数因子分解量子算法^[12]。1996 年 Grover 设计出了量子快速搜索算法^[13]。两种算法的提出充分展示了量子并行计算的巨大威力, 震惊了整个国际学术界。由此吸引了世界范围内研究力量进入这一新兴的交叉领域。

1995 年, Cirac 和 Zoller 提出离子阱中可用于实现量子计算^[14], 同年 Monroe 等人在该体系实现了受控非门^[15], 由此开启了量子计算物理实现的序幕。1998 年, Gershenfeld 和 Chuang 利用核磁共振 (NMR) 实现了 $1+1=2$ 的量子计算演示^[16]。随后, Chuang 等人演示了双量子比特的 Grover 搜索算法^[17]。2001 年, IBM 的 Vandersypen 等人实现了 $3 \times 5=15$ 的 Shor 量子算法演示^[18]。

1.2 氮空位中心研究概述

在实验实现量子计算的过程中, 金刚石中氮空位中心也逐渐引起了人们的注意。虽然人们对其早就有所了解, 但直到 1997 年单个的氮空位中心才被德国 J. Wrachtrup 小组利用激光共聚焦显微镜观测到^[19]。更重要的是该小组同时探测到了氮空位中心单自旋的光学探测磁共振谱。之后人们注意氮空位中心单光子源^[20], 并且十分稳定^[21], 开始将其用于荧光标记和量子密码领域^[22]。与此同时人们提出可以用氮空位中心单自旋实现量子比特^[23], 使用光学和微波手段进行操控^[24], 并在室温下即表现较长的相干时间^[25]。2004 年, F. Jelezko 和 J. Wrachtrup 等人实现了单个氮空位中心电子自旋的相干操控^[26], 紧接着他们又借助近邻核自旋实现了双量子比特的相干操控^[27]。至此, 金刚石中氮空位中心正式成为了进行量子信息处理的物理系统之一。

接下来基于氮空位中心的量子信息处理取得了快速发展。2007 年哈佛大学 M.D. Lukin 小组利用近邻核自旋实现了量子寄存器^[28]。2008 年 F. Jelezko 和 J. Wrachtrup 等人实现了电子自旋和核自旋之间的多比特纠缠^[29]。2009 年 M.D. Lukin、A. Yacoby 等人又利用核自旋辅助多次读取增强了电子自旋的读取效果^[30]。2010 年, F. Jelezko 和 J. Wrachtrup 等人实现了核自旋的单次读取^[31, 32]。中

科大的杜江峰课题组, 演示了 D-J 量子算法^[33]。2011 年荷兰的 R. Hanson 课题组实现了电子自旋的投影测量^[34], 2012 年他们又演示了 Grover 量子搜索算法^[35]。2014 年, J. Wrachtrup 课题组和 R. Hanson 课题组先后进行了量子纠错方案的演示^[36, 37]。

与此同时, 也有很多针对氮空位中心自旋相干性质的研究出现。比如 2008 年 R. Hanson 与 D. D. Awschalom 研究了氮空位中心与氮杂质自旋环境之间相互作用对电子自旋退相干的影响^[38]。M. D. Lukin 课题组则研究了高纯样品中, ^{13}C 核自旋环境对氮空位中心电子自旋退相干的影响^[39]。2011 年杜江峰课题组与香港中文大学刘仁保课题组合作, 观察到在量子自旋环境下的反常退相干现象^[40]。2012 年本论文完成单位的中科院物理所潘新宇课题组刘刚钦等与刘仁保课题组合作在室温下观察到了自由感应衰减中量子涨落与热涨落的可控竞争现象^[41]。刘仁保课题组的赵楠等则在理论上分析了动力学解耦控制对高纯金刚石样品中氮空位中心电子自旋退相干过程的影响^[42]。

由于相干性是进行量子信息处理的关键资源, 各研究组也对延长氮空位中心相干时间进行了尝试。比如, 2010 年 D. G. Cory 课题组通过动力学解耦技术将氮空位中心电子自旋相干时间延长了两个数量级^[43]。2009 年 F. Jelezko 和 J. Wrachtrup 等人使用同位素纯化样品获得了超长的电子自旋相干时间^[44]。2012 年, M. D. Lukin 在同位素纯化样品中利用特殊的解耦技术获得了超过一秒的自旋相干时间^[45]。之后研究人员尝试将相干时间延长技术应用于量子逻辑门中。比如, 2012 年, R. Hanson 课题组将动力学解耦脉冲插入量子逻辑门过程中^[46]。杜江峰课题组提出了连续波动力学解耦技术, 并在同时进行量子逻辑门操作^[47]。2013 年, 潘新宇课题组刘刚钦等与刘仁保课题组合作, 将动力学解耦脉冲本身设计为量子逻辑门^[48]。

量子计算可扩展性也是一个重要的研究方向, 比如 2010 年 D. D. Awschalom 课题组实现了氮空位中心自旋与光子的耦合^[49], M. D. Lukin 课题组则制备了两者的纠缠态^[50]。2012 年, R. Hanson 课题组实现了同一金刚石内不同氮空位中心发出荧光光子的量子干涉^[51]。紧接着 M. D. Lukin 课题组实现了分隔两米远的不同氮空位中心荧光光子的量子干涉^[52]。2013 年 R. Hanson 课题组实现了分隔三米远电子自旋的纠缠态^[53], 不久通过测量实现了不同核自旋量子比特之间的纠缠^[54]。同样有研究尝试了与其他量子比特系统的耦合, 比如超导量子比

特方面, 2010 年 D. I. Schuster 以及 Y. Kubo 等人分别实现了集群氮空位中心与超导共振腔的耦合^[55, 56], 2011 年朱晓波以及 Y. Kubo 等人分别实现了复合量子比特的真空拉比振荡、存储读取演示等^[57], 2013 年 S. Saito 等人制备了复合量子比特的纠缠态^[58]。另外还有像与机械振子等其他量子体系的耦合等^[59-62]。

除了用于量子信息处理, 氮空位中心自旋还被广泛的应用于磁探测、磁成像、电场探测、温度探测等领域。比如 2008 年, M. D. Lukin 课题组进行了外加磁场的纳米尺度探测^[63], F.Jelezko 和 J. Wrachtrup 等人则将纳米金刚石粘附于扫描探针上实现了纳米尺度的磁成像^[64]。在对金刚石内部核自旋探测方面, 2012 年 M. D. Lukin 课题组通过电子自旋探测到了相隔较远的单个核自旋^[65], R. Hanson 和 F.Jelezko 等人实现了对弱耦合核自旋的探测和控制^[66], 赵楠、刘仁保、F.Jelezko、J. Wrachtrup 等人利用动力学结构技术探测到了相隔 3 nm 单个核自旋并测量了其磁场的大小和方向^[67]。2014 年杜江峰课题组与刘仁保课题组等合作探测到了相隔 1 nm 远的 ^{13}C - ^{13}C 核自旋对。也有研究组进行了金刚石外物质探测, 比如 2013 年 J. Wrachtrup 等人探测了金刚石表面的磁性分子、离子^[68], R. L. Walsworth、A. Yacoby、M. D. Lukin 等人实现了对活体细胞的成像^[69]。与此同时氮空位中心也被尝试用于许多物理参数的探测。比如, 2011 年, F.Jelezko、J. Wrachtrup 等人实现了对局域电场的探测^[70]。2013 年 J. Wrachtrup 课题组和 D. D. Awschalom 课题组分别进行了纳米尺度的温度探测^[71, 72], M. D. Lukin 课题组则将温度探测应用于了活体细胞的新陈代谢过程^[73]。甚至 2014 年 M. W. Doherty 等人还利用氮空位中心对压强进行了探测^[74]。

1.3 本文结构介绍

近年来国际上量子计算与量子信息研究蓬勃发展, 金刚石中氮空位中心在量子信息处理、量子探测等领域的研究也取得了许多激动人心的进展。在这样的背景下, 本文选题为金刚石中氮空位中心自旋相干性质与量子操控研究, 并期望能对相关的研究有一定推进作用。首先在技术方面我们引入了一种脉冲技术来提高量子操控保真度。由于氮空位中心集群样品在与其他量子比特系统耦合以及量子探测量子成像领域都具有重要的应用潜力, 接下来本文对集群样品的相干性质进行了研究。同时相干性是进行量子计算的重要资源, 接下来我们

提出了一种通过发挥集群样品优势增强相干性的方案。最后我们使用了另一种样品形式，纳米金刚石，实施了对于量子通讯具有重要意义的量子克隆机的实验演示。

下面具体介绍一下全文的组织结构。前两章主要介绍一些发展背景、基本概念和技术方法，其中第一章主要对量子信息的发展历程和氮空位中心的研究做了概述；第二章主要对量子信息的基本概念以及金刚石氮空位中心的基本性质做一下简要介绍；第三章则主要介绍了氮空位中心电子自旋、核自旋的量子操控手段，相干性质的表征以及光学探测磁共振平台的情况。第四章介绍我们在量子操控的技术手段方面做的一项工作，我们通过引入 REBURP 形状化脉冲技术，大幅度提高了量子操控的保真度。第五章中我们研究了氮空位中心集群样品的一些相干性质，在之前人们认为 ^{13}C 核自旋环境占退相干支配地位的 IIa 型样品中，观察到了 P1 电子自旋环境与 ^{13}C 核自旋环境之间的可控竞争。在第六章中，我们提出通过窄带激发来抑制非均匀展宽，并充分利用集群样品的集聚优势，最终实现自旋相干时间的增强。第七章我们纳米金刚石中的氮空位中心体系，对量子保密通讯中比较重要的量子克隆机进行了实验演示，实现了全相位可控的优化相位克隆机。最后在第八章对全文进行了总结和讨论。

第二章 量子信息与氮空位中心简介

量子信息作为信息技术与量子物理的新兴交叉学科，表现出了极大的优势与发展潜力。作为固态自旋体系，金刚石中氮空位中心是量子信息处理的重要候选载体，也是本文的研究对象。

2.1 量子信息简介

量子信息以量子态为信息载体，以量子力学基本原理为基础，充分利用量子系统的相干特性，进行信息编码存储、信息运算处理和信息传输通讯^[75]。

2.1.1 量子比特介绍

经典信息中以经典的物理状态为信息载体，比如电压高低等，信息的基本单元为非 0 即 1 的经典比特。与之不同的是量子信息则以物理体系的量子状态

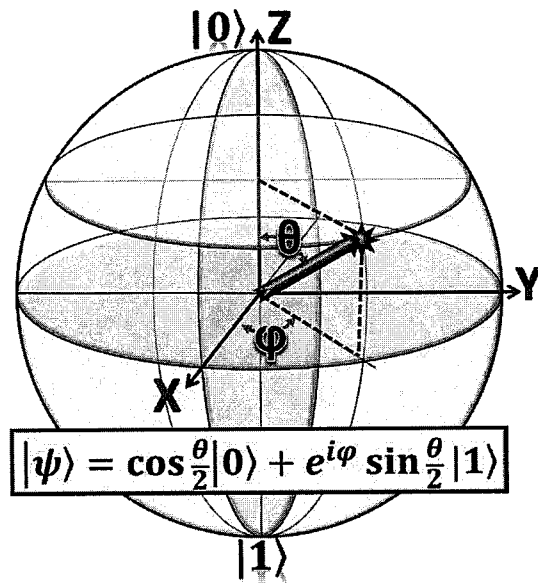


图 1 量子比特的布洛赫球表示

布洛赫球是半径为 1 的单位球，北极对应 $|0\rangle$ ，南极对应 $|1\rangle$ ，纬度对应量子

比特 $|\Psi\rangle = \cos\frac{\theta}{2}|0\rangle + e^{i\varphi}\sin\frac{\theta}{2}|1\rangle$ 中的纬度对应角度 θ ，经度对应角度 φ 。

为信息编码载体，信息的基本单元是量子比特，可以处在两种基本状态 0 和 1 的叠加状态上。

量子比特的两种基本状态可以利用狄拉克 (Dirac) 符合表示为 $|0\rangle$, $|1\rangle$, 可以构成二维复向量空间的一组正交基矢^[75]。量子比特可以处于基矢的任意相干叠加态 $|\Psi\rangle = \alpha|0\rangle + \beta|1\rangle$, 对应的向量形式可以表示为 $\begin{pmatrix} \alpha \\ \beta \end{pmatrix}$ 。 α 和 β 分别为 $|0\rangle$ 和 $|1\rangle$ 的复数概率幅, α^2 和 β^2 为各自所占概率。由于 $|0\rangle$ 和 $|1\rangle$ 的概率和为 1, 所以满足 $\alpha^2 + \beta^2 = 1$, 因此可以将量子比特的形式改写为

$$|\Psi\rangle = e^{i\gamma} \left(\cos \frac{\theta}{2} |0\rangle + e^{i\varphi} \sin \frac{\theta}{2} |1\rangle \right)$$

由于 $e^{i\gamma}$ 项没有可观测的物理意义, 因此可以省略, 量子比特的有效形式为:

$$|\Psi\rangle = \cos \frac{\theta}{2} |0\rangle + e^{i\varphi} \sin \frac{\theta}{2} |1\rangle。$$

之所以使用 $\frac{\theta}{2}$, 是由于这一表示可以很好以几何形式表示 (如图 1 所示)。图中球形为布洛赫 (Bloch) 球^[76], 是半径为 1 的单位球, 北极对应 $|0\rangle$ 南极对应 $|1\rangle$, 纬度对应角度 θ 表示了量子态的布居信息, 经度对应角度 φ 表示了量子态的相位信息。这样定义后, $|0\rangle$ 的概率布居为 $\left(\cos \frac{\theta}{2}\right)^2 = (1 + \cos \theta)/2$, $|1\rangle$ 的概率布居为 $\left(\sin \frac{\theta}{2}\right)^2 = (1 - \cos \theta)/2$, 与几何图像中在 Z 轴投影匹配。

纯态在布洛赫上表示为球面上的点, 混态则为球面内的点。原则上球面上有无穷多个点, 其存储的信息量可与模拟存储相比拟, 但这种准连续性是建立在量子态两个离散基矢相干叠加的基础上。量子比特实际存储的信息量由冯·诺依曼 (von Neumann) 熵来描述, 而经典比特的可存储信息量由香农 (Shannon) 熵来描述^[75, 76]。

对于多量子比特, 以双量子比特为例, 有四个基矢分别为 $|00\rangle$, $|01\rangle$, $|10\rangle$, $|11\rangle$ 。双量子比特可以表示为四个基矢的线性叠加

$$|\Psi\rangle = \alpha|00\rangle + \beta|01\rangle + \gamma|10\rangle + \delta|11\rangle。$$

类似的对于 n 量子比特, 其基矢数目达到 2^n , 对应 n 量子比特可以表达为 2^n 个基矢的线性叠加。这使得对 n 量子比特进行信息处理, 相当于同时对 2^n 个输入同时进行操作, 即实现量子并行计算^[75, 76]。量子比特的相干叠加成为一项重要的信息处理资源。而量子信息中的另一项重要资源为量子纠缠, 即无法分离为

n 量子比特直积形式的量子叠加态，比如双量子比特最大纠缠态贝尔态

$$|\Psi\rangle = (|00\rangle + |11\rangle)/\sqrt{2}.$$

2.1.2 量子逻辑门

在量子信息中，信息处理即对量子态进行所需要的么正变换，量子逻辑门可以表示为量子算符。单量子比特与自旋量子系统类似，因此用于自旋体系的泡利（Pauli Operators）算符被引入量子信息中^[75]。

$$I = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \sigma_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}.$$

单量子比特逻辑门可以通过泡利算符来描述，并对应布洛赫球上的一个转动操作。与经典逻辑门类似，非门（NOT gate）同样是量子逻辑门中的常见操作

$X = \sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}$ ，它可以将 $|0\rangle$ 与 $|1\rangle$ 反转互换 $X \begin{pmatrix} \alpha \\ \beta \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \beta \\ \alpha \end{pmatrix}$ 。另一个单比特量子逻辑门为 Hadamard 门 $H = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ 1 & -1 \end{pmatrix}$ ，作用于 $|0\rangle$ 将得到 $(|0\rangle + |1\rangle)/\sqrt{2}$ 可以用于制备叠加态。

Deutsch 定理表明对于任意多量子比特门，都可以通过单量子比特门和双量子比特门依次操作实现完备表征。而最基本的双比特量子逻辑门为受控非门

$$^{[76]} \text{ (controlled-NOT, CNOT) } U_{CNOT} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \end{pmatrix}. \text{ 如图 2 所示受控非门}$$

有两个输入量子比特， $|A\rangle$ 为控制量子比特， $|B\rangle$ 为目标量子比特。输出时控制量子比特保持不变，而目标量子比特的输出结果取决于控制量子比特。当控制

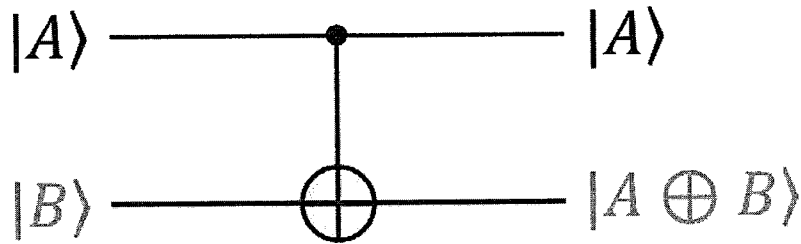


图 2 受控非门线路图

受控非门有两个输入量子比特， $|A\rangle$ 为控制量子比特， $|B\rangle$ 为目标量子比特。输出时控制量子比特保持不变，而目标量子比特为 $|A \oplus B\rangle$

比特为 $|0\rangle$ 时,目标量子比特保持不变;当控制比特为 $|1\rangle$ 时,目标量子比特翻转。即 $U_{CNOT}|00\rangle = |00\rangle$, $U_{CNOT}|01\rangle = |01\rangle$, $U_{CNOT}|10\rangle = |11\rangle$, $U_{CNOT}|11\rangle = |10\rangle$, 可以总结为 $U_{CNOT}|A,B\rangle = |A,A \oplus B\rangle$, $\oplus$ 表示模为 2 的加法。当控制量子比特为叠加态 $(|0\rangle + |1\rangle)/\sqrt{2}$ 时,可以使用受控非门作用于目标量子比特 $|0\rangle$ 制备出贝尔态 $(|00\rangle + |11\rangle)/\sqrt{2}$ 。

2.1.3 量子算法简介

利用量子比特的相干叠加特性,在量子信息处理中可以实现量子并行计算。但同时根据量子力学基本原理,当对测量结果进行测量时,量子叠加态会塌缩为一个测量基矢上。因此要充分发挥量子并行计算的巨大优势,需要设计特殊的量子算法来解决量子计算问题,其一般的原理是利用了量子态相干叠加过程中相位信息的量子干涉效应^[76]。

目前已知主要有三种类型的量子算法,实现了比经典算法明显具有优势的效果^[76]。第一类算法主要基于量子傅里叶(Fourier)变换,Deutsch-Jozsa (DJ)算法、离散对数算法、Shor 因子分解算法^[12]都属于这类算法。第二类算法是量子搜索算法,比如 Grover 算法^[13]。第三类则是用于量子模拟仿真,直接使用量子计算机模拟量子系统。

Shor 因子分解算法和 Grover 搜索算法是量子算法中最为著名的两项。Shor 的快速量子因子分解算法基于量子傅里叶变换,使用该算法分解一个 N 位的大数,所需时间正比于 N^3 即时间随 N 多项式增长^[12]。而经典算法所需的时间正比于 $e^{\sqrt{N^3}}$,即时间随 N 指数增长。这使其对经典安全加密系统构成了极大的威胁,特别是对基于经典大数因子分解算法计算复杂性理论的 RSA 密码系统^[65]。

使用 Grover 量子搜索算法,对拥有 N 个数据的无序数据库进行搜索,所需时间正比于 $\sqrt{N}$,而经典算法所需时间则正比于 N ^[13]。虽然 Grover 量子搜索算法在加速效果上比量子 Fourier 变换算法略显逊色,但由于其广泛的适用性同样受到了人们的广泛关注。除了用于无序数据库搜索技术, Grover 量子搜索算法还可以加快经典公开密钥体系比如 DES 数据加密标准中密码的搜索速度,同样对经典安全通信构成了威胁^[76]。

2.1.4 量子通讯简介

量子计算对经典安全通信构成了威胁，与此同时量子通讯以量子态作为信息载体进行信息的存储与传输，开辟了一种新型的通讯方式。

对于安全通信，其密码体制的安全性主要依赖于其密钥的保密性，量子密钥分发(Quantum Key Distribution—QKD)也是量子通讯领域的核心之一^[76]。同时量子密钥分发也成为目前发展最为成熟的分支之一，不仅在理论上已经提出了数十种密钥分发方案，而且在实验上也取得了突出的进展。比如第七章（室温纳米金刚石中全相位相干控制的量子克隆机）提到的 BB84 协议^[9]即为一种著名的量子密钥分发方案。

对于各种量子密钥分发方案，其量子力学的基础为不可克隆(non-cloning)原理^[77, 78]，即对于一个未知量子态是无法被完全理想克隆的。也就是说在不知道量子状态的情况下精确复制单个量子是不可能的。这是因为复制单个量子态需要事先进行测量，而未知量子态可能与测量基不对易，使用某个确定算符测量量子系统会使得量子状态改变而导致不完备测量。

可以利用量子力学的线性叠加特性对不可克隆定理进行反证^[75, 76]。假设可以将系统 A 的任意未知量子态克隆到系统 B，使用幺正算符 U_c 来表示该操作， $|0_B\rangle$ 表示克隆前系统 B 的空白态。那么对于系统 A 的两个基矢态 $|0_A\rangle$ 和 $|1_A\rangle$ 分别有，

$$U_c(|0_A\rangle|0_B\rangle) = |0_A\rangle|0_B\rangle, U_c(|1_A\rangle|0_B\rangle) = |1_A\rangle|1_B\rangle$$

对系统 A 的任意叠加态 $|0_A\rangle + |1_A\rangle$ 进行克隆操作。一方面，根据克隆机的克隆效果有结果

$$\begin{aligned} U_c[(|0_A\rangle + |1_A\rangle)|0_B\rangle] &= (|0_A\rangle + |1_A\rangle)(|0_B\rangle + |1_B\rangle) \\ &= |0_A\rangle|0_B\rangle + |0_A\rangle|1_B\rangle + |1_A\rangle|0_B\rangle + |1_A\rangle|1_B\rangle. \end{aligned}$$

而另一方面，根据量子力学的线性叠加原理则结果

$$U_c[(|0_A\rangle + |1_A\rangle)|0_B\rangle] = U_c(|0_A\rangle|0_B\rangle) + U_c(|1_A\rangle|0_B\rangle) = |0_A\rangle|0_B\rangle + |1_A\rangle|1_B\rangle.$$

显然两个结果不相等，矛盾表明假设是错误的，即不存在操作 U_c 能克隆一个任意的未知态。

在量子通讯过程中，除了经典信道外，往往还需要建立联系通信各方的量子

信道,此时量子纠缠态成为一种重要的量子信息资源。而其最奇妙应用则为量子隐形传态 (quantum teleportation)^[11],即脱离实物本身实现信息远距离“瞬时”传输。其基本原理是:通过量子纠缠态在发送者和接受者之间建立量子信道。将待传递信息分为两个部分,分别经由经典信道和量子信道进行传送。发送者通过对原物和纠缠态一端进行联合测量提取出经典信息,而量子信息则没有被发送者提取。接收者在获得经典信息后,对自己一端的纠缠源进行相应操作即可以制备出原量子态的完全拷贝。该过程中发送者甚至可以对发送的量子信息一无所知,而接收者则能将其持有的纠缠粒子制备为原物体的量子态^[75, 76]。

2.1.5 量子计算的物理实现

对于量子计算的物理实现,DiVincenzo 曾经总结出几项基本条件^[75, 76, 79, 80]:

- A. 表示量子信息:该量子系统需要能够表征量子比特并具有可扩展性。
原则上讲任何两能级体系均可以实现量子比特表征,但可扩展性的难易程度会有差别。
- B. 实现初始化:可以将量子比特制备到初始态 $|0\rangle$,比如极化到基态。这个因为计算过程需要具备已知的输入态。
- C. 量子逻辑门:可以通过操控量子比特,构造出普适量子逻辑门所需的一系列幺正变换。
- D. 测量输出结果:可以对量子比特进行测量读出计算结果。
- E. 相干时间足够长:相干时间与逻辑门操作时间之比足够达到实现容错计算的阈值。

以上五项基本条件主要针对量子计算本身。要实现量子通讯或分布式计算,还需要两项附加条件^[75, 76, 79, 80]:

- F. 静止比特和飞行比特转换能力:静止比特,在空间上是不动的,可以用于存储和计算;飞行比特则在空间飞行,用于信息传输。
- G. 空间无失真传输飞行比特能力。

目前人们在多种物理体系中,提出了量子信息的物理实现方案,并进行了许多原理性演示^[75],例如核磁共振,光子,离子阱等。固态体系近年来被认为最具有潜力研究领域之一,比如量子点、超导量子比特等。特别是基于现代半导体工艺使其应用和最终产业化的可行性很高。固态量子比特之间的固有耦合也使其具有扩展集成方面的优势。

2.2 氮空位中心简介

金刚石中的氮空位中心这一固态自旋体系，近年来成为进行量子信息处理的有力后续载体。由于金刚石主要为自旋为 0 的 ^{12}C 原子，自旋环境相对纯净使其在室温下即可展现出较长的退相干时间。氮空位中心电子自旋可以很方便的通过光学方法实现初始化，并且可以实现对自旋状态的高保真度读取。同时氮空位中心自身的 N 原子核自旋以及 1.1% 自然丰度的 ^{13}C 原子核，可以通过超精细相互作用与电子自旋构成多量子比特系统。

2.2.1 金刚石简介

金刚石是碳的一种同素异形体，是目前自然界已知的最硬矿物，其化学稳定性好，热导率优良。无色透明晶体，折射率为 2.417，密度约为 3.5 g/cm^3 。金刚石中碳原子通过最外层电子 sp^3 杂化构成的 4 个杂化轨道，与邻近碳原子形成共价键。其晶格结构为复合面心立方结构^[81]，如图 3 所示。

天然金刚石中碳有 ^{12}C 、 ^{13}C 、 ^{14}C 等多种同位素形式，其中 ^{12}C 、 ^{13}C 相对丰度分别为 98.89%、1.11%， ^{14}C 只有极微量且具放射性。除了碳原子，天然金刚石中还会含有其他一些杂质原子，常见的有氮原子、硼原子等。不同杂质会

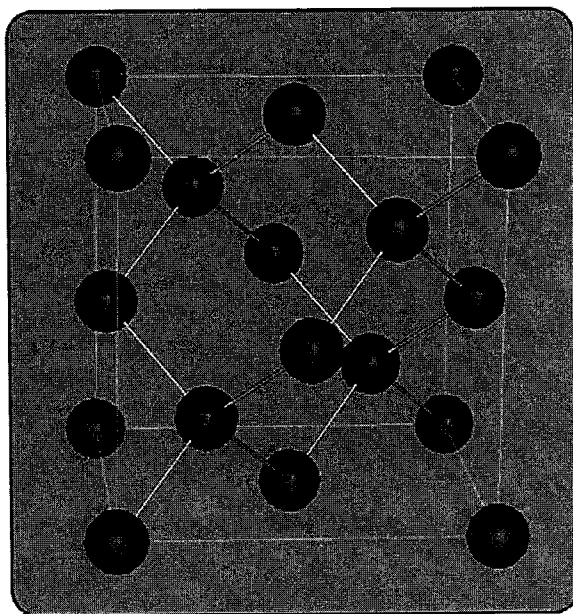


图 3 金刚石晶体的复合面心立方结构

使金刚石具有不同的色泽，比如含氮较多时表现为黄色，含硼较多时为蓝色。根据杂质浓度可以将金刚石分为几类，如下表所示。

表格 1 按照杂质浓度的金刚石分类

金刚石类型	性质	氮浓度/ppm
Ia	氮杂质聚集分布	< 3000
Ib	氮杂质为分立原子	< 500
IIa	氮杂质含量较低	≤ 1
IIb	含有硼杂质	≤ 1

由于天然金刚石产量有限，从 20 世纪 50 年代开始人们实现了生产人造金刚石。常见的人造金刚石方法主要有高温高压 (high pressure / high temperature, HPHT) 合成，化学气相沉积生长 (chemical vapor deposition, CVD) 等。比较知名的人造金刚石厂家有英国的 Element 6 公司，日本的 Sumitomo 公司等。随着技术的发展，人们已经可以生产电子级高纯金刚石样品其氮浓度可以控制在 5 ppb 以内。利用同位素纯化技术，还可以制备 ^{13}C 相对丰度只有 0.01% 的金刚石样品。除了金刚石块材以外，金刚石粉末、纳米颗粒也得到了广泛应用。

2.2.2 氮空位中心的基本性质

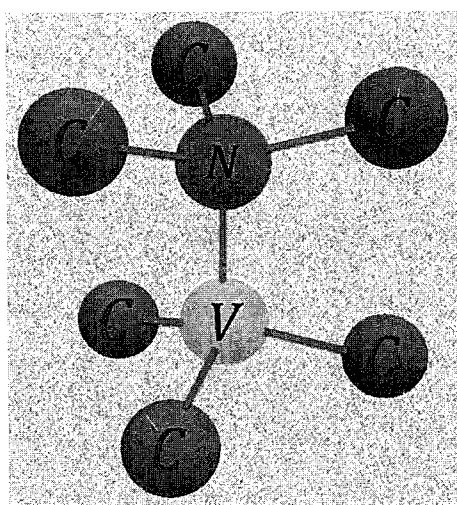


图 4 氮空位中心的物理结构

当金刚石晶格中的一个碳原子被氮杂质原子替代，同时邻近有一个晶格空位时，这一复合结构称为氮空位中心。

如图 4 所示, 当金刚石晶格中的一个碳原子被氮杂质原子替代, 同时邻近有一个晶格空位时, 两者构成的复合结构称为氮空位中心 (nitrogen vacancy center, NV)。由于在激光激发下氮空位中心可以辐射荧光, 因此这一类可以被光学方法探测到晶体缺陷又被称为色心 (color center)。

氮空位中心经常会捕获一个电子成为负电性的 NV^- , 如果没有捕获电子则为电中性的 NV^0 , 两者之间可以相互转换^[82-84]。用于量子信息处理的一般为 NV^- , 这也是本论文的研究对象, 后文直接简称为氮空位中心或 NV。除了捕获的一个电子, NV^- 还有两个电子来自氮原子, 三个电子来自空位的未配对电子, 一共含有六个电子^[85, 86]。

含有六个电子的 NV^- 总自旋 S 为 1 具有 C_{3v} 对称性^[87], 其基态为自旋三重态 3A_2 , 如图 5 所示。基态自旋三重态中子能级 $m_s = 0$ 与 $m_s = \pm 1$ 之间存在约 2.87 GHz 的零场劈裂, 可以利用微波操控。外磁场下由于塞曼效应, 子能级 $m_s = +1$

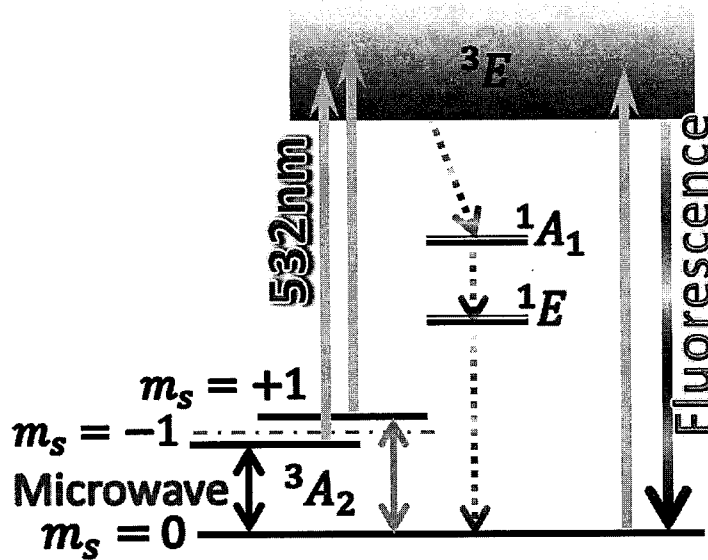


图 5 氮空位中心能级结构

NV^- 的基态为自旋三重态 3A_2 , 基态 $m_s = 0$ 与 $m_s = \pm 1$ 之间存在约 2.87 GHz 的零场劈裂, 可以利用微波操控。外磁场下由于塞曼效应 $m_s = +1$ 与 $m_s = -1$ 劈裂开。对应激发态 3E 也是自旋三重态, 存在很宽的声子边带。使用 532 nm 可以将基态 3A_2 激发到激发态 3E 的声子边带, $m_s = 0$ 会辐射出荧光光子重新回到基态 $m_s = 0$; 而 $m_s = \pm 1$ 则主要通过亚稳态 1A_2 与 1E 通过无辐射跃迁方式也到达基态 $m_s = 0$ 。

与 $m_s = -1$ 劈裂开。在外磁场平行于 NV 轴向时，能级劈裂与磁场关系约为 2.802 MHz/Gs。对应激发态 3E 也是自旋三重态，其零场劈裂是基态的一半^[88]。激发态 3E 存在很宽的声子边带，与基态 3A_2 之间跃迁的零声子线（zero phonon line, ZPL）为 637 nm。^[87]除此之外，自旋单重态 1A_2 与 1E 为亚稳态。

可以使用波长短于零声子线的激光比如 532 nm 激光对 NV 进行激发，基态自旋三重态 3A_2 将被激发到激发态，之后 $m_s = 0$ 与 $m_s = \pm 1$ 的跃迁路径会有所不同。 $m_s = 0$ 会通过辐射出荧光光子重新回到基态 $m_s = 0$ ，由于晶格振动会吸收能量，因此荧光光子的波长会长于零声子线。而 $m_s = \pm 1$ 则主要会经由亚稳态 1A_2 与 1E 通过无辐射跃迁方式也到达基态 $m_s = 0$ 。^[86]可见无论是 $m_s = 0$ 还是 $m_s = \pm 1$ 经过激光激发都会最终到达 $m_s = 0$ ，因此我们可以利用激光脉冲对 NV 进行初始化^[87]。对于单个 NV，实验上一般采用 3 μs 左右的激光即可以极化到 $m_s = 0$ 。不过考虑到迟豫过程，施加完激光脉冲一般会再等待 5 μs 再进行后续量子操控。由于 $m_s = \pm 1$ 回到 $m_s = 0$ 很大一部分是通过无辐射跃迁方式进行，会造成 NV 电子自旋处于不同状态时在激光激发下发出的荧光强度不同。实验发现当 NV 电子自旋处于 $m_s = 0$ 时，其荧光强度平均要比 $m_s = \pm 1$ 时强 30% 左右^[86]。因此实验上，我们可以通过施加较短的（300 ns 左右）不足以造成自旋极化的激光脉冲，记录荧光强度来读出 NV 电子自旋的状态。

由于以上的辐射过程为单光子过程并且十分稳定，氮空位中心成为很好的

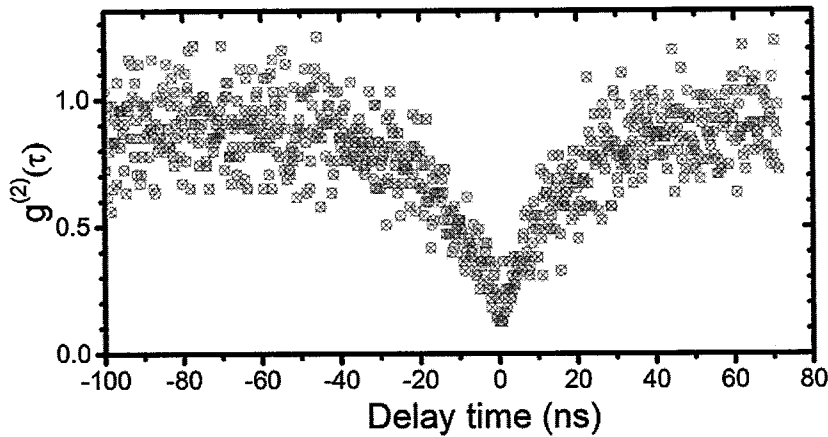


图 6 氮空位中心单点荧光的二次相关性测试

当延迟为 0 时， $g^{(2)}(0)$ 几乎为 0 远小于 0.5，说明氮空位中心单点为单光子源。

单光子源。单光子源可以通过二次相关性 $g^{(2)}(\tau)$ 测试来鉴别，我们收集到的氮空位中心荧光一比一分束送到两个单光子计数器，再利用符合计数卡统计分析。其原理是对两路光电脉冲信号中的一路加时间延迟后，统计两路信号的相关性。图 6 为一氮空位中心单点荧光的二次相关性测试曲线，可以看到当延迟为 0 时， $g^{(2)}(0)$ 几乎为 0 远小于 0.5。这是由于对于单光子源在同一时刻只可能发出一个光子，因此当无延迟时两次两路信号中至少有一路没有光子脉冲。可见，氮空位中心单点为单光子源。

2.2.3 氮空位中心的超精细结构

氮空位中心电子自旋会与自身氮原子核自旋和 ^{13}C 核自旋产生耦合，此时整个系统的哈密顿量可以写作^[42]：

$$H = H_{NV} + H_{bath} + H_{int}$$

在外磁场 $\mathbf{B}$ 下，氮空位中心，核自旋各自的哈密顿量以及两者之间的超精细相互作用项可以写作^[87]：

$$H_{NV} = -\gamma_e \mathbf{B} \cdot \mathbf{S} + \Delta S_z^2,$$

$$H_{bath} = -\mathbf{B} \cdot \sum_i \gamma_n \mathbf{I}_i + H_{dip} + H_Q,$$

$$H_{int} = \mathbf{S} \cdot \sum_i \mathbf{A}_i \cdot \mathbf{I}_i = \mathbf{b} \cdot \mathbf{S},$$

上述表达式中 $\mathbf{S}$ 为 NV 电子自旋， $\{\mathbf{I}_i\}$ 为不同的核自旋。 γ_e 和 γ_n 分别是 NV 电子

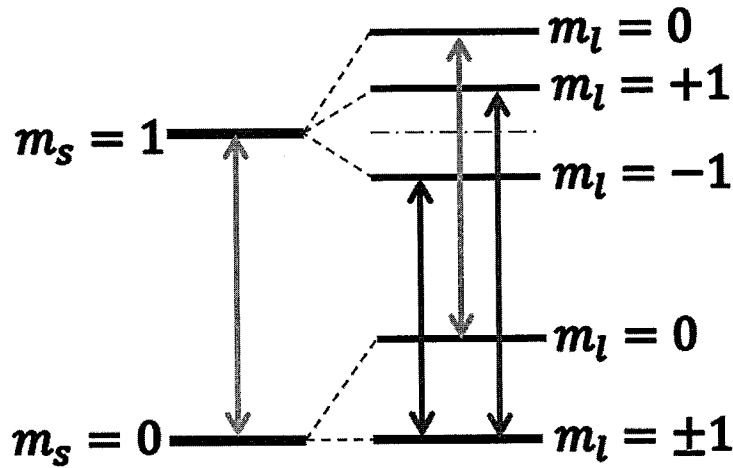


图 7 考虑 ^{14}N 核自旋后 NV 的超精细结构

自旋和核自旋的旋磁比, $\Delta = 2.87$ GHz 是 NV 电子自旋基态的零场劈裂。 H_{dip} 是核自旋之间的偶极相互作用项一般可以忽略, A_i 是第 i 个邻近核自旋的超精细相互作用张量。 H_Q 是氮原子核自旋的四极矩项: $H_Q = P \left[(I_z^N)^2 - \frac{1}{3} (I^N)^2 \right]$, 其中 P 为氮原子的四极矩耦合常数。

当只考虑氮空位中心本身的氮原子核自旋 I^N 时, 系统的哈密顿量可以写作 [87]:

$$H = -\gamma_e \mathbf{B} \cdot \mathbf{S} + \Delta S_z^2 - \gamma_N \mathbf{B} \cdot \mathbf{I}^N + P \left[(I_z^N)^2 - \frac{1}{3} (I^N)^2 \right] + A_{\parallel}^N S_z I_z^N + A_{\perp}^N (S_x I_x^N + S_y I_y^N).$$

^{14}N 的自然丰度为 99.6%, 因此一般考虑 ^{14}N 核自旋 $I^N = 1$ 即可。考虑与 ^{14}N 核自旋的相互作用后, NV 电子自旋能级的超精细结构如图 7 所示。可以看到原先的一条跃迁谱线劈裂为三条, 劈裂大小大致为 $A_{\parallel}^N$ 约为 2.2 MHz。类似的, 当存在邻近 ^{13}C 原子时, NV 电子自旋的能级也会发生进一步的劈裂。

第三章 氮空位中心的自旋操控技术

上一章我们大致介绍了氮空位中心的基本性质、能级结构。不仅可以方便的通过光学方法实现初始化和自旋状态读出，还可以通过微波射频脉冲实现对氮空位中心电子自旋和核自旋的高保真度操控。很多的相干控制和操作过程在该系统中都得到了实现和展示^[27, 28, 30, 33, 44, 50, 63, 89-94]。这一章，我们便介绍一下相关的氮空位中心自旋操控技术。

3.1 氮空位中心电子自旋的基础操控

对氮空位中心自旋进行量子操控的基本原理是利用光学探测磁共振的方法。

3.1.1 连续波光学探测磁共振

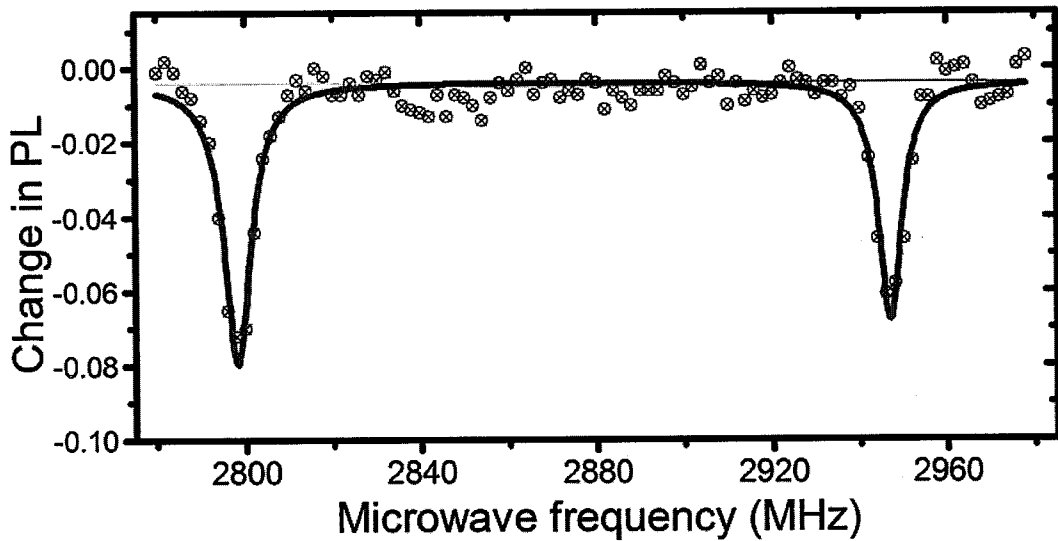


图 8 连续波光学探测磁共振谱

图中两个共振谷分别对应氮空位中心电子自旋 $m_s = -1 \leftrightarrow m_s = 0$ 和 $m_s = +1 \leftrightarrow m_s = 0$ 之间跃迁的共振频率。

使用微波信号对氮空位中心自旋进行操控，需要首先确定其能级跃迁的频率位置。我们使用光学探测磁共振技术（optically detected magnetic resonance，

ODMR)^[19, 95]来确定氮空位中心的共振谱。这一技术借助了氮空位中心辐射出的荧光具有自旋依赖性的特点。当施加的微波脉冲信号频率与氮空位中心自旋的部分能级跃迁共振时，氮空位中心电子自旋布局在 $m_s = 0$ 与 $m_s = \pm 1$ 之间的分布发生变化，会反映到荧光强度上。

连续波光学探测磁共振指的是在这个过程中激光与微波均为连续施加。固定施加微波的功率，我们逐渐扫描改变微波信号的频率，在每个频率位置分别记录固定时间长度的荧光光子数。如图 8 为一条连续波光学探测磁共振谱曲线，曲线的纵坐标为不同微波频率位置，荧光光子数相对于不施加微波信号时的变化率。图中两个共振谷的位置分别对应氮空位中心电子自旋 $m_s = -1 \leftrightarrow m_s = 0$ 和 $m_s = +1 \leftrightarrow m_s = 0$ 之间跃迁的共振频率。因为当微波信号频率与上述跃迁时，将有一部分电子布居从 $m_s = 0$ 被激发到 $m_s = 1$ 。而电子自旋处于 $m_s = 1$ 时其在激光激发下的荧光强度要弱于处于 $m_s = 0$ 时的荧光强度，因此我们将看到荧光光子数的大幅度降低即为微波共振位置。

由于在连续波光学探测磁共振过程中激光与微波均为连续施加，所以当电子自旋被微波激发到 $m_s = 1$ 后又会不断的被激光极化回 $m_s = 0$ 。这造成了光学波光磁共振无法达到 $m_s = 0$ 与 $m_s = 1$ 荧光差别的最大对比度。同时激光脉冲的功率展宽与微波脉冲的功率展宽一样，会同时造成连续波光磁共振谱中的共振谷都有较大宽宽，频率分辨率比较低，分辨不出超精细结构。

3.1.2 电子自旋拉比振荡

拉比振荡是由量子光学中的一项重要量子效应，由微波射频脉冲驱动自旋进行拉比振荡是对自旋系统进行量子操控的一种常用手段。当电磁场作用于二能级原子系统时，利用描述瞬态相干作用的麦克斯韦-布洛赫方程有^[96]：

$$w(t) = w(0) \left\{ 1 + \left(\frac{\Omega'_R}{\Omega_R} \right)^2 [\cos(\Omega_R) - 1] \right\}$$

其中 $\Omega'_R = \left| \frac{\mu E_0}{\hbar} \right|$ ， $\Omega_R = \sqrt{\left(\frac{\mu E_0}{\hbar} \right)^2 + (\bar{\omega} - \omega)^2}$ ；特别的当共振时：

$$\bar{\omega} = \omega, \quad w(t) = w_0 \cos \Omega'_R t$$

由此可见，反转布居数会随时间 t 周期性振荡，即为拉比振荡^[96]。其几何图像，可以用布洛赫矢量 $\vec{B} = (u, v, w)$ ¹绕 $\vec{\beta} = \left(-\frac{\mu E_0}{\hbar}, 0, (\bar{\omega} - \omega) \right)$ 转动时， w 的周期

¹ $u = \rho_{21} + \rho_{12}$ ， $v = i(\rho_{21} - \rho_{12})$ ， $w = \rho_{22} - \rho_{11}$ 。 ρ_{ij} 均为二能级体系的密度矩阵元

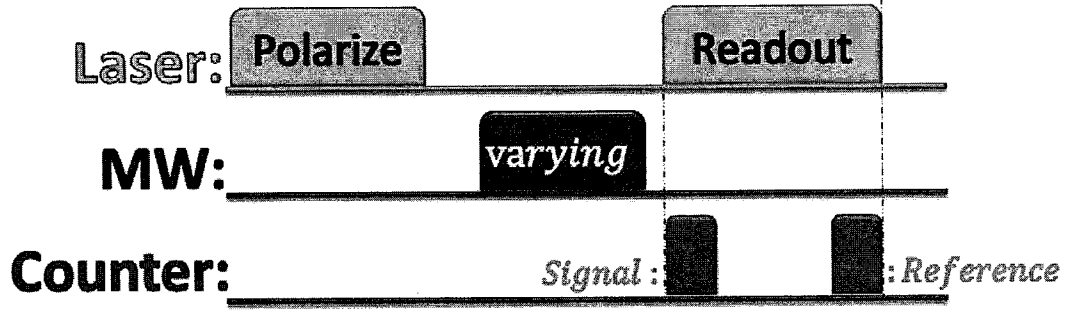


图 9 拉比振荡脉冲码型图

通过 $3\ \mu\text{s}$ 左右激光脉冲将电子自旋初始化到 $m_s = 0$ 后施加微波脉冲。之后在激光激发下记录约 $300\ \text{ns}$ 荧光光子数作为信号。继续施加激光脉冲使电子自旋重新初始化到 $m_s = 0$ ，在激光激发下再记录 $300\ \text{ns}$ 荧光光子数作为参考进行标定。逐渐增加微波脉冲的时间长度，重复以上过程。

性振荡来说明。

在氮空位中心体系中，需要首先施加外磁场将能级 $m_s = +1$ 与 $m_s = -1$ 劈裂开，以便 $m_s = +1$ 或者 $m_s = -1$ 与 $m_s = 0$ 可以构成一个等效的二能级体系。对已经光初始化到 $m_s = 0$ 的氮空位中心电子自旋施加微波脉冲，则可以实现粒子数在 $m_s = 0$ 态与 $m_s = 1$ 间的周期性振荡。可以导出，两能级的布居占有率^[96]：

$$\begin{aligned} \text{非共振时: } & \begin{cases} \rho_0 = 1 - \left(\frac{\Omega'_R}{\Omega_R}\right) \sin^2\left(\frac{\Omega_R t}{2}\right); \\ \rho_1 = \left(\frac{\Omega'_R}{\Omega_R}\right) \sin^2\left(\frac{\Omega_R t}{2}\right) \end{cases} \\ \text{共振时: } & \begin{cases} \rho_0 = \frac{1 + \cos \Omega'_R t}{2} \\ \rho_1 = \frac{1 - \cos \Omega'_R t}{2} \end{cases} \end{aligned}$$

同时由于氮空位中心电子自旋处于 $m_s = 0$ 时荧光强度比处于 $m_s = 1$ 时要高 30% 左右，因此我们可以看到荧光强度相应的发生周期性变化。

在实验上我们可以施加如图 9 所示的脉冲码型，对氮空位中心电子自旋进行拉比振荡测量。首先施加三微秒左右的激光脉冲，将氮空位中心电子自旋初始化到 $m_s = 0$ ，等待几微秒待系统稳定后施加微波脉冲，最后施加激光脉冲并同时开始记录约三百纳秒的荧光光子数作为信号。为了对光子数进行标定，可以继续施加激光脉冲直到电子自旋重新初始化到 $m_s = 0$ ，此时在激光激发下再

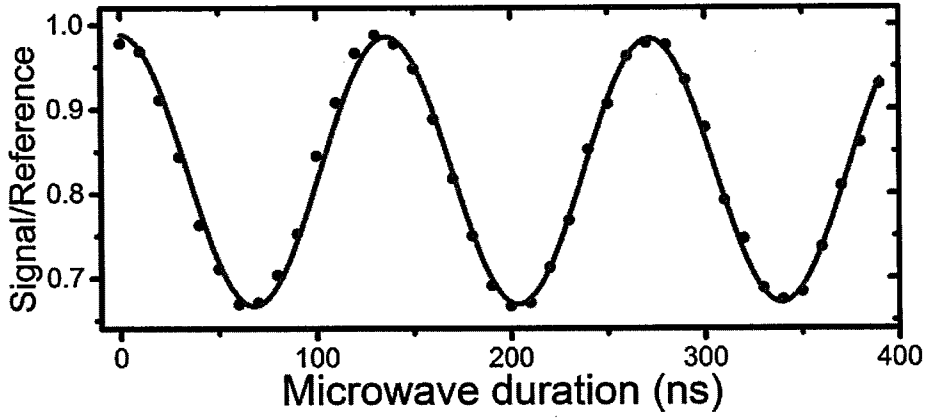


图 10 氮空位中心电子自旋拉比振荡信号

记录三百纳秒的荧光光子数作为参考。逐渐增加微波脉冲的时间长度，重复以上过程。由于氮空位中心的荧光强度较弱，整个实验过程可能需要重复十万次以上再进行统计，以便得到信噪比足够良好的拉比振荡曲线。

如图 10 所示，为我们得到的一条拉比振荡曲线，其中纵坐标为信号与参考的比值。根据实验的脉冲码型过程，我们知道参考值是在将电子自旋重新极化到 $m_s = 0$ 记录到的荧光强度。图中曲线周期性振荡代表了电子自旋在 $m_s = 0$ 与 $m_s = 1$ 之间发生周期性翻转。而图中振荡曲线的最低点对应电子自旋处于 $m_s = 1$ ，其纵坐标值小于 0.7。这证实了氮空位中心电子自旋处于 $m_s = 0$ 时荧光强度比处于 $m_s = 1$ 时要高 30% 左右。

当改变微波作用时间时，氮空位电子自旋则可以处于 $m_s = 0$ 和 $m_s = 1$ 的叠加态。根据前边提到拉比振荡对应布洛赫矢量转动的几何图像，在共振情况下当拉比振荡周期为 T 时，时间长度为 t 的微波脉冲可以将电子自旋对应的布洛赫矢量 $\vec{B} = (u, v, w)$ 绕布洛赫球面赤道面上的 $\vec{\beta} = \left(-\frac{\mu E_0}{\hbar}, 0, 0\right)$ 轴旋转角度 $\theta = 2\pi T/t$ 。我们一般也据此定义微波脉冲的有效长度，如果所使用的微波功率可以驱动周期为 T 的拉比振荡，那么称时间长度为 t 的微波脉冲的微波脉冲为 $\theta = 2\pi T/t$ 脉冲。即 1/2 周期的微波 π 脉冲恰好可以将 $m_s = 0$ 与 $m_s = 1$ 实现反转，而 1/4 周期的 $\pi/2$ 脉冲则可以将电子自旋制备到 $\frac{1}{\sqrt{2}}(|0\rangle + |1\rangle)$ 的叠加态。

随着微波脉冲时间长度的增长，拉比振荡的外轮廓会发生衰减，衰减的典型时间称为 $T_{1\rho}$ 。当驱动拉比振荡的微波脉冲与电子自旋的能级跃迁不共振时，

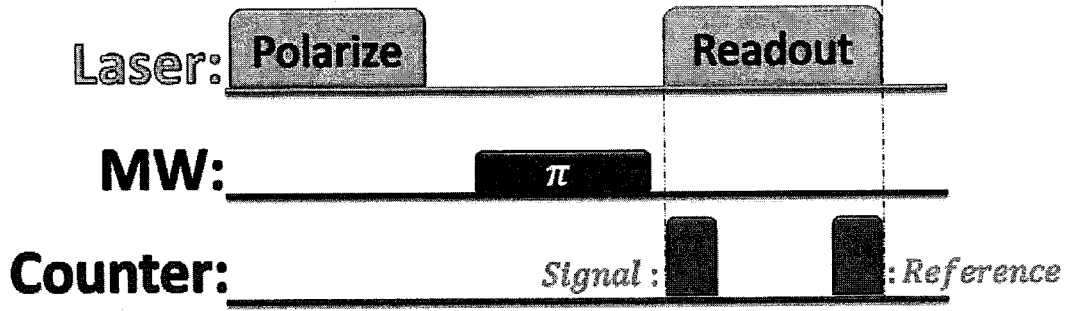


图 11 脉冲光学探测磁共振脉冲码型

通过3 μs 左右激光脉冲将电子自旋初始化到 $m_s = 0$ 后施加强功率微波 π 脉冲。之后在激光激发下记录约 300 ns 荧光光子数作为信号。继续施加激光脉冲使电子自旋重新初始化到 $m_s = 0$ ，在激光激发下再记录 300 ns 荧光光子数作为参考进行标定。重复一定次数，以便统计到足够信噪比信号。逐渐扫描微波频率，分别重复以上过程。

那么根据前面提到的拉比振荡表达式，振荡周期会缩短，同时无法实现 $m_s = 0$ 与 $m_s = 1$ 的完全翻转。因此如果用微波同时驱动多个能级比如 ^{14}N 的超精细结构时，那么对于不同能级跃迁频率失谐不同。当微波功率不够大时，不同振荡周期的余弦振荡叠加会造成拍频现象，具体讨论见第四章。

3.1.3 脉冲光学探测磁共振

为了抑制连续波光学探测磁共振过程中激光功率带来的展宽，提高光磁共振谱频率分辨率可以使用脉冲光学探测磁共振 (pulse ODMR) ^[97, 98] 技术。脉冲光磁共振过程中，激光和微波均为脉冲方式，并且在微波脉冲施加时关断激光，避免将被微波激发到 $m_s = 1$ 的电子自旋布局重新极化为 $m_s = 0$ 。同时微波脉冲选取 π 脉冲将初始化到 $m_s = 0$ 的电子自旋布局全部激发到 $m_s = 1$ ，以便实现最大的信号对比度。为了进一步提高频率分辨率，还可以降低微波脉冲功率以减弱微波功率造成的频谱展宽。

如图 11 所示，实验上脉冲光磁共振的脉冲码型类似于拉比振荡中的 π 脉冲位置。同样施加三微秒左右的激光脉冲，将氮空位中心电子自旋初始化到 $m_s = 0$ ，等待几微秒待系统稳定后施加强功率微波 π 脉冲。之后激光在激光激发下记录约三百纳秒的荧光光子数作为信号。继续施加激光脉冲直到电子自旋重新初始化到 $m_s = 0$ ，在激光激发下再记录三百纳秒的荧光光子数作为参考进

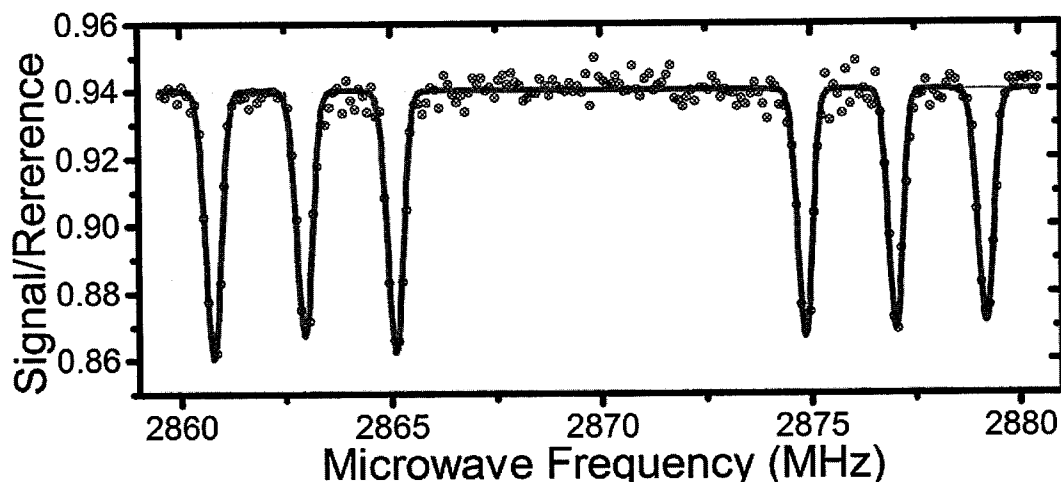


图 12 氮空位中心脉冲光磁共振谱

左右两侧分别对应氮空位中心电子自旋 $m_s = -1 \leftrightarrow m_s = 0$ 和 $m_s = +1 \leftrightarrow m_s = 0$ 之间跃迁。相邻三个共振谷间隔约为 2.2 MHz 是由于 ^{14}N 核自旋超精细结构造成的。

行标定。重复一定次数，以便统计得到足够信噪比的数据点。逐渐扫描改变微波脉冲频率，继续重复以上过程直到得到整条脉冲光磁共振谱。

图 12 为我们得到的一条典型的脉冲光磁共振谱。与图 8 类似两侧的共振谷同样分别对应氮空位中心电子自旋 $m_s = -1 \leftrightarrow m_s = 0$ 和 $m_s = +1 \leftrightarrow m_s = 0$ 之间跃迁。不同之处为每侧都有三个相邻的共振谷，各自的间隔约为 2.2 MHz。这是由图 7 中提到的 ^{14}N 核自旋引起的电子自旋超精细结构造成的。使用连续波光磁共振技术无法分辨的超精细结构，通过脉冲光磁共振技术可以清晰分辨，可见脉冲共振技术大幅度提高了对共振谱的频率分辨率。

3.2 氮空位中心电子自旋相干性质表征

通过脉冲光磁共振技术精确确定氮空位中心的自旋跃迁共振频率以后，我们便可以利用微波驱动电子自旋进行量子操控。同样我们也可以对氮空位中心的相干性质做一些基础测量和表征。

3.2.1 纵向弛豫时间 T_1

纵向弛豫 (longitudinal relaxation) 时间 T_1 是指自旋极化以后弛豫回热平衡

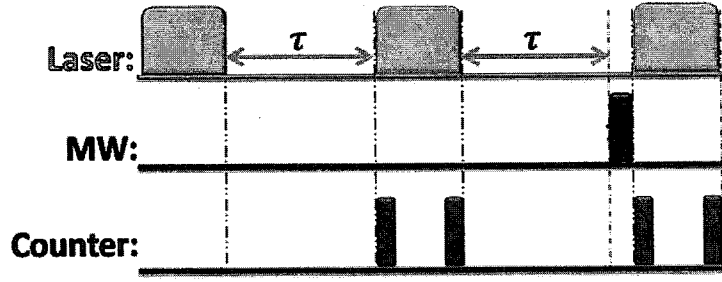


图 13 纵向弛豫时间测量脉冲码型

使用激光脉冲将电子自旋极化到 $m_s = 0$ 以后后等待时间 τ 。之后打开激光读取荧光信号光子数，在重新完成激光极化关断激光前读取参考光子数。再次等待时间 τ 之后施加微波 π 脉冲，最后开启激光分别读取信号光子数和参考光子数。改变等待时间 τ ，重复以上过程。

混态的特征衰减时间^[99, 100]。实验上可以用如图 13 所示的脉冲码型来测量氮空位中心电子自旋的纵向弛豫时间 T_1 。使用激光脉冲将电子自旋极化到 $m_s = 0$ 以后后等待时间 τ ，使电子自旋发生弛豫。之后打开激光读取荧光信号光子数，在重新完成激光极化关断激光前读取参考光子数。再次等待时间 τ 让电子自旋弛豫，之后施加微波 π 脉冲，最后开启激光分别读取信号光子数和参考光子数。改变等待时间 τ ，重复以上过程。如果简化起见，前半段脉冲码型已经可以初步得到电子自旋的纵向弛豫的衰减过程。但为了去除荧光发光强度以及背景荧光变化

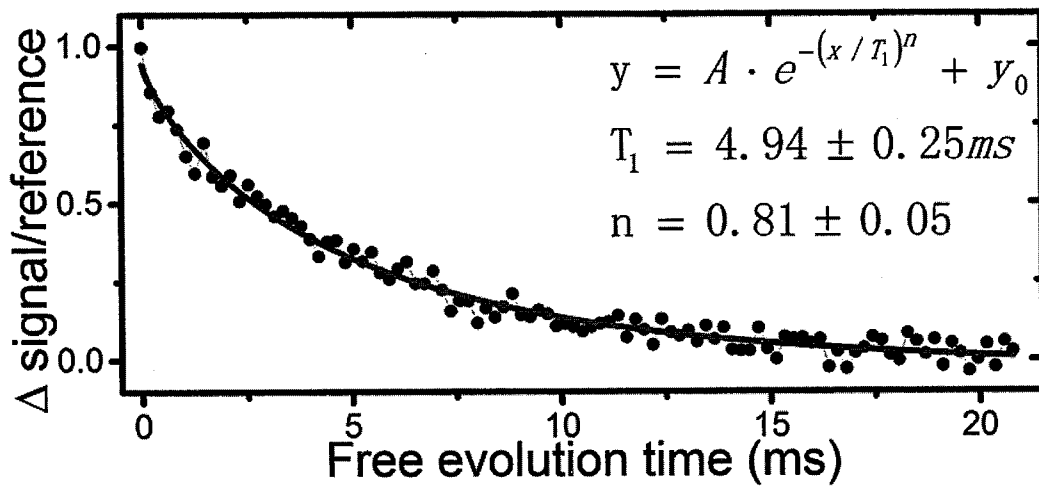


图 14 氮空位中心集群纵向弛豫衰减曲线

利用指数函数 $y = A \cdot e^{-(x/T_1)^n} + y_0$ 拟合得到的纵向弛豫时间 T_1 约为 5 ms。

的影响，我们在后一段码型中施加微波 π 脉冲即测量弛豫一段时间后依然可以被相干调控的信号，同时可以实现对信号的归一化。

图 14 为我们对氮空位中心集群样品测量的纵向弛豫衰减曲线，其中纵坐标为前后两部分码型得到的信号与参考比值的差值。利用指数函数，拟合得到的纵向弛豫时间 T_1 约为 5 ms。电子自旋极化到 $m_s = 1$ 时的纵向弛豫衰减过程会与在 $m_s = 0$ 时略有差别。我们同样可以使用类似图 13 的码型进行测量，只需要在完成激光极化以后先施加微波 π 脉冲，将 $m_s = 0$ 翻转到 $m_s = 1$ 以后再进行后续测量过程，得到的纵向弛豫时间 T_1 略有差别。

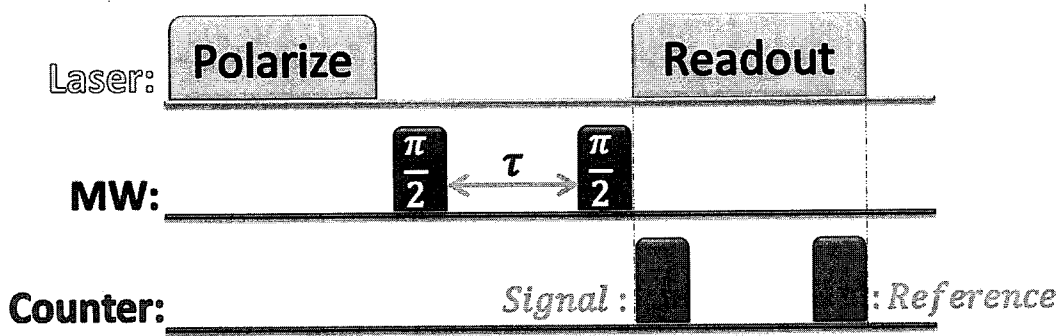


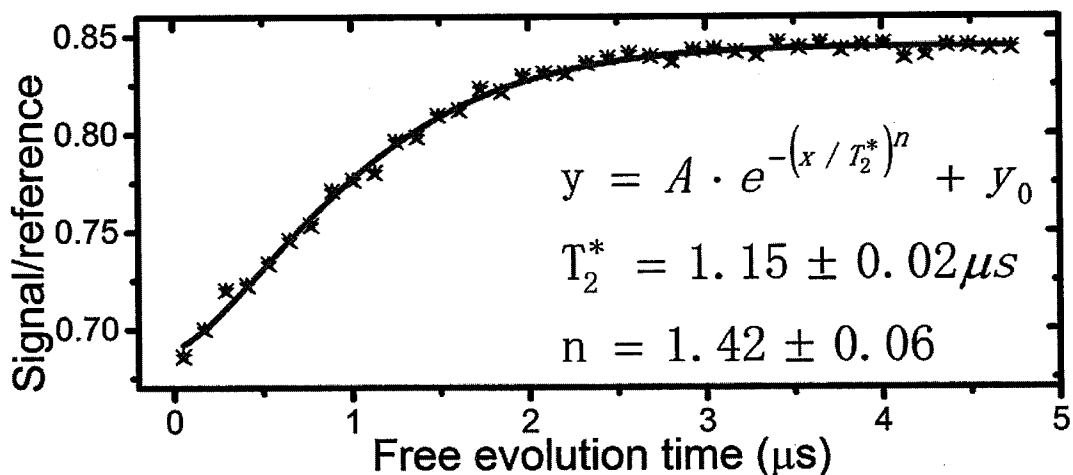
图 15 自由感应衰减的脉冲码型

利用激光脉冲将电子自旋初始化到 $m_s = 0$ 以后，施加 $\pi/2$ 微波脉冲将电子自旋制备到 $(|0\rangle + |1\rangle)/\sqrt{2}$ 的叠加态。之后等待时间 τ 让系统自由演化，再次施加 $\pi/2$ 微波脉冲将相位信息转化为布居信息。最后在激光激发下分别读取信号和参考光子数。逐渐改变时间 τ ，分别重复以上过程。

3.2.2 自由感应衰减与 T_2^*

拉比振荡中的衰减是氮空位中心电子自旋在有外加驱动场时的相干性丢失的过程，纵向弛豫衰减则是自旋在自由演化时布居信息丢失的过程。而自由感应衰减（free induction decay, FID）^[101]则是自由演化时相位信息的丢失的过程，可以从中导出解相时间 T_2^* 。

实验上我们用图 15 的脉冲码型对氮空位中心电子自旋进行自由感应衰减测量。在激光脉冲将氮空位中心电子自旋初始化到 $m_s = 0$ 以后，施加 $\pi/2$ 微波脉冲将自旋制备到 $(|0\rangle + |1\rangle)/\sqrt{2}$ 的叠加态。之后等待时间 τ 让系统自由演化，

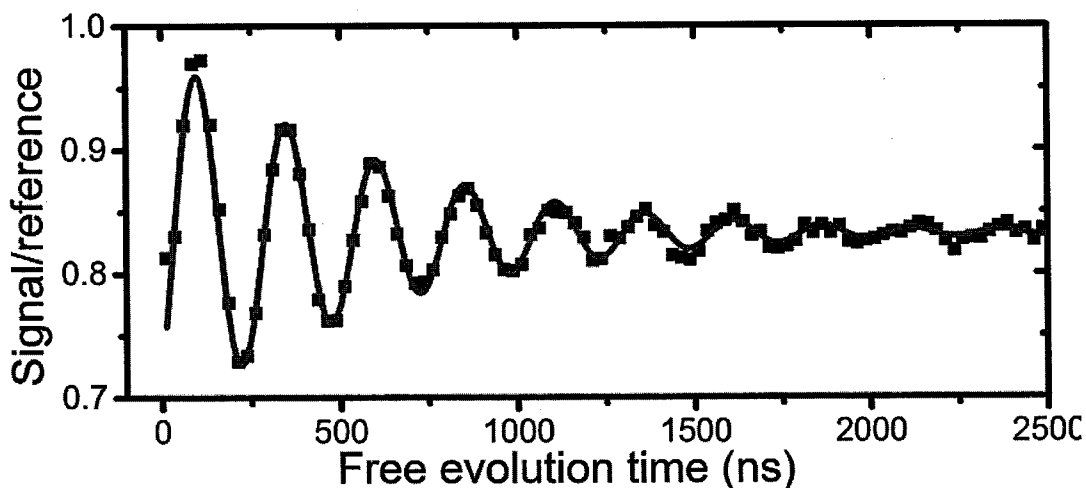
图 16 ^{14}N 极化以后的典型自由感应衰减曲线

利用指数函数 $y = A \cdot e^{-(x/T_2^*)^n} + y_0$ 拟合得到的解相时间 T_2^* 为 $1.15 \mu\text{s}$ 。

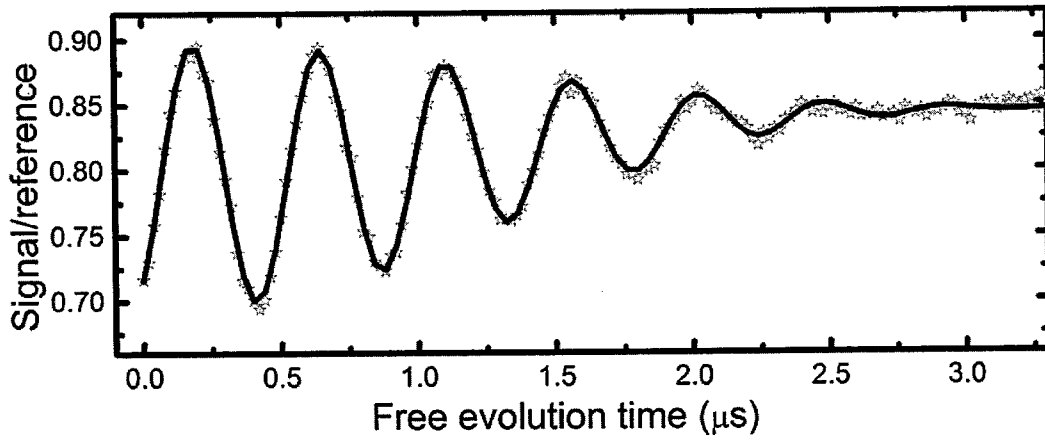
再次施加 $\pi/2$ 微波脉冲，将相位信息重新转化为可以直接读取的布居信息。最后在激光激光下，分别读取信号光子数和参考光子数。逐渐改变时间 τ ，分别重复以上过程以便对光子计数进行统计。以上过程中的 $\pi/2 - \tau - \pi/2$ 码型又被称为拉姆齐 (Ramsey) ^[102] 码型。

图 16 是我们在将 ^{14}N 极化以后，测量得到一条典型的自由感应衰减曲线。

利用指数函数 $y = A \cdot e^{-(x/T_2^*)^n} + y_0$ 对其进行拟合得到的解相时间 T_2^* 为 $1.15 \mu\text{s}$ 。

图 17 ^{14}N 极化以后具有失谐的自由感应衰减曲线

在 ^{14}N 极化以后使用具有 4 MHz 失谐的微波脉冲实施拉姆齐码型，自由感应衰减曲线中可以看到 4 MHz 频率的振荡。


 图 18 ^{14}N 未极化时的自由感应衰减曲线

微波脉冲频率对应 ^{14}N 超精细结构中中间的跃迁，中间的跃迁无失谐，而两侧的跃迁则具有约 2.2 MHz 的失谐，三条不同自由感应衰减曲线叠加造成不对称振荡。

这类单调的指数衰减是使用共振微波脉冲来施加拉姆齐码型时发生的，如果使用具有频率失谐的微波脉冲进行则情况会有所不同。

图 17 同样是在 ^{14}N 极化以后，但是采用具有失谐的微波脉冲实施拉姆齐码型得到的自由感应衰减曲线。该曲线可以使用带有指数衰减的余弦函数进行拟合。采用的微波脉冲频率失谐量为 4 MHz，我们在自由感应衰减曲线中也看到了对应 4 MHz 的振荡调制。这一现象利用拉比振荡布洛赫矢量旋转的几何图像可以理解为，两次 $\pi/2$ 微波操控时布洛赫矢量旋转轴不同造成的。旋转表象下布洛赫矢量旋转轴在自由等待的时间 τ 内以相对自旋体系 4 MHz 的速度转过了一定角度。随着时间 τ 的改变，两次布洛赫矢量旋转轴会周期性的重新重合。而在没有重合的大部分情况下，失谐一般会给电子自旋带来额外相位。

图 18 是在 ^{14}N 未极化时的自由感应衰减曲线，与图 17 相比的不同之处在于其振荡时不对称的，这是由于我们将微波脉冲频率对应 ^{14}N 超精细结构中中间的跃迁。此时对于中间的跃迁微波脉冲无失谐，而两侧的跃迁则具有约 2.2 MHz 的失谐，三条自由感应衰减曲线叠加造成了振荡的不对称效果。当有更多具有不同失谐值的能级跃迁时，自由感应衰减曲线会更为复杂。

3.2.3 自旋回波与 T_2

在 2.2.3 中我们提到氮空位中心电子自旋与周围自旋环境的相互作用哈密

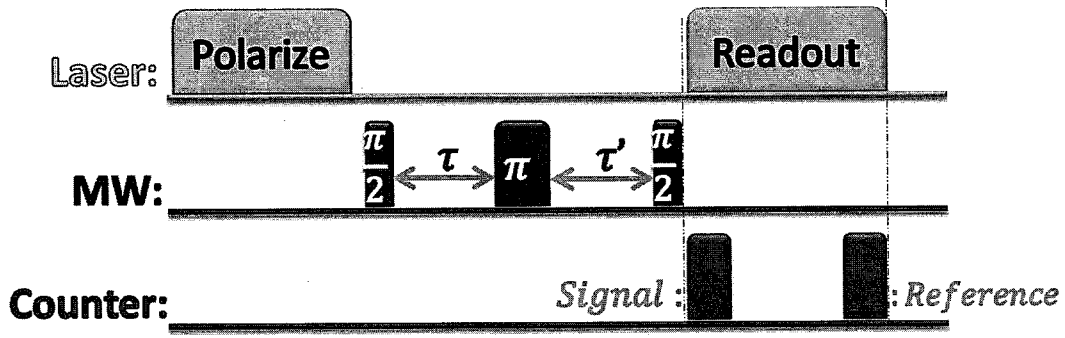
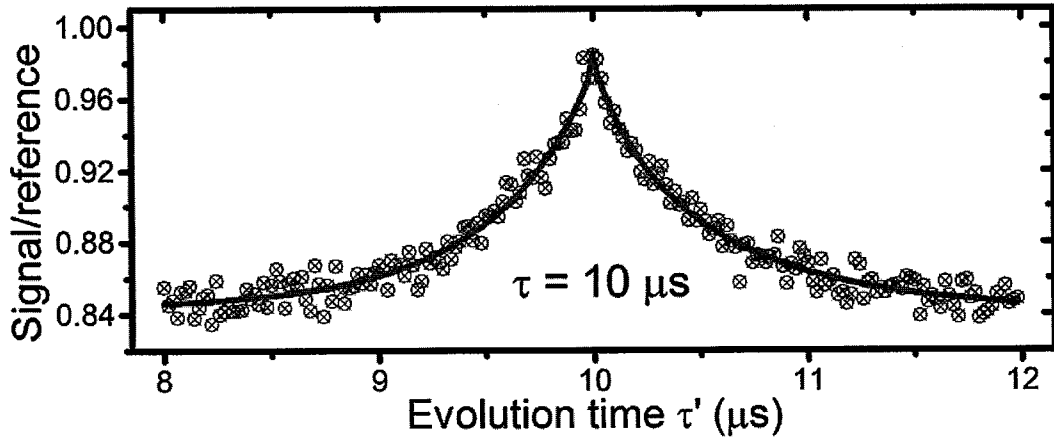


图 19 自旋回波脉冲码型

利用激光脉冲将电子自旋初始化到 $m_s = 0$ 以后，施加 $\pi/2$ 微波脉冲将电子自旋制备到 $(|0\rangle + |1\rangle)/\sqrt{2}$ 的叠加态。等待时间 τ 后施加 π 微波脉冲将自旋反转，再等待时间 τ' 之后施加 $\pi/2$ 将相位信息转化为布居信息。最后在激光激发下分别读取信号和参考光子数。逐渐改变时间 τ' 或者令 $\tau' = \tau$ 同时改变，分别重复以上过程。

量为 $H_{int} = \mathbf{S} \cdot \sum_i \mathbf{A}_i \cdot \mathbf{I}_i = \mathbf{b} \cdot \mathbf{S}$ ，可以看到周围自旋环境可以看作一个有效磁场 $\mathbf{b}$ 作用于氮空位中心电子自旋。自旋环境的涨落会相应的导致有效磁场的波动，从而造成中心自旋能级细微漂移并带来非均匀展宽。根据上一节对自由感应衰减的介绍失谐会造成额外相位的产生，因此环境的涨落会带来随机相位。不同自旋之间或者不同时间随机相位的叠加从而造成了自由感应衰减。后来人们发现了自旋回波现象，并指出 Hahn echo 脉冲码型^[103]可以用于抑制自旋环境涨落中以热涨落为主的准静态成分。


 图 20 ^{14}N 极化后 $\tau' \neq \tau$ 的自旋回波曲线

Hahn echo 码型为 $\pi/2 - \tau - \pi - \tau' - \pi/2$ ，又称为自旋回波码型。对于氮空位中心电子自旋具体的实验脉冲码型如所图 19 示。激光脉冲将氮空位中心电子自旋初始化到 $m_s = 0$ 以后，施加 $\pi/2$ 微波脉冲将自旋制备到 $(|0\rangle + |1\rangle)/\sqrt{2}$ 的叠加态。等待时间 τ 让系统自由演化后，施加 π 微波脉冲将自旋布居反转。再等待时间 τ' 之后，施加 $\pi/2$ 微波脉冲将相位信息重新转化为布居信息。最后在激光激光下，分别读取信号光子数和参考光子数。固定时间 τ 逐渐改变时间 τ' ，分别重复以上过程统计光子计数得到结果。

图 20 为在将 ^{14}N 极化以后，固定 $\tau = 10\ \mu\text{s}$ 扫描时间 τ' 得到的自旋回波曲线。我们可以看到当 $\tau' = \tau$ 时曾经一度消失的信号又重新达到极大值，这即为自旋回波现象。这一现象可以解释为不同自旋在第一段时间 τ 内由于失谐造成的演化速度不同而积累了不同的相位 $\Delta\varphi_i$ 相互叠加造成相干信号衰减。之后 π 将自旋的在 $m_s = 0$ 与 $m_s = 1$ 反转，此时不同自旋积累的不同相位也同时被反向 $-\Delta\varphi_i$ 。之后在时间 τ' 内系统继续演化相位，如果这段时间环境可以认为没有变化，那么经过相同的时间 $\tau' = \tau$ 会演化出与第一段时间相同的相位 $\Delta\varphi_i$ 。因此两段时间演化的相位可以相互抵消，不同自旋之间再次拥有统一的相位，从而最后施加 $\pi/2$ 微波脉冲将相位信息转化为布居信息后可以重新得到极大值的信号。

图 21 为我们在未将 ^{14}N 极化时，固定 $\tau = 20\ \mu\text{s}$ 扫描时间 τ' 得到的自旋回波

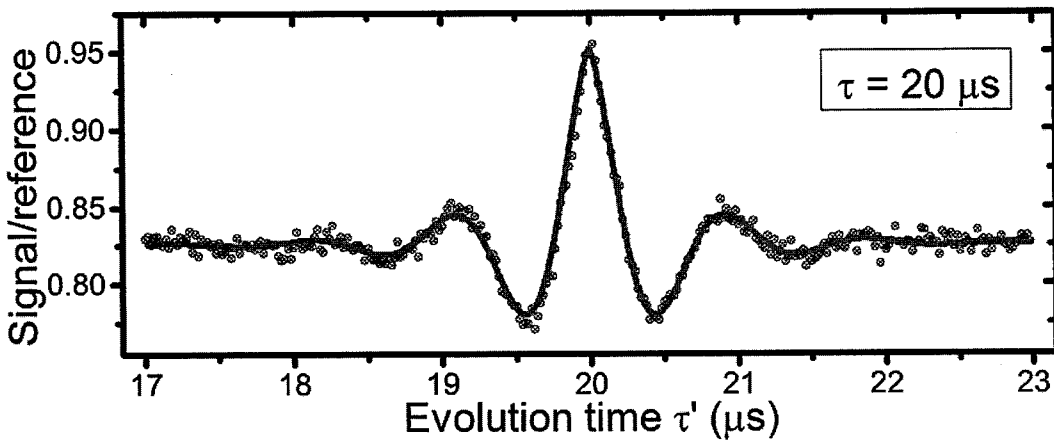


图 21 ^{14}N 未极化时 $\tau' \neq \tau$ 的自旋回波曲线

曲线。可以看到 $\tau' = 20\ \mu\text{s}$ 一侧的信号实际上与图 18 中的自由感应衰减曲线反

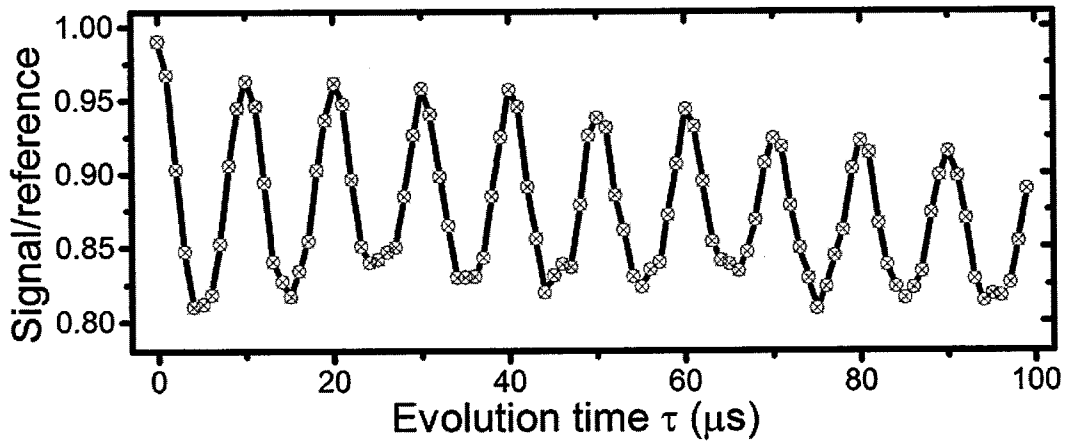
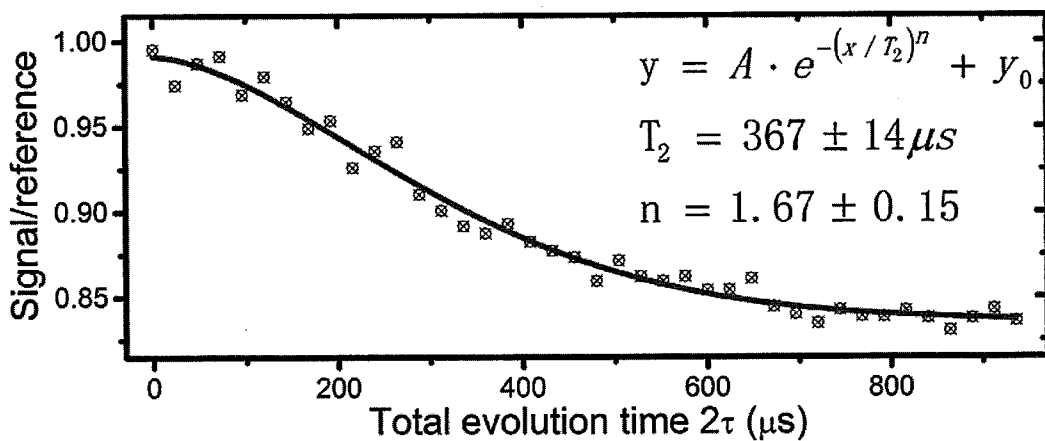


图 22 自旋回波曲线中的周期性消失与重现现象

向是类似的。这是由于根据上述自旋回波现象的原理，当 $\tau' \neq \tau$ 时前后两段时间不同自旋演化出的相位无法相互抵消。如果认为这段时间自旋环境没有发生变化则相位差值相当于在 $|\tau - \tau'|$ 时间内演化出的相位，因此 $\tau' = \tau$ 两侧的自旋回波信号相当于 $|\tau - \tau'|$ 的自由感应衰减信号。

但自旋环境并不能完全看作准静态的，前后两段时间演化的相位并不能完全抵消。图 22 为以令 $\tau' = \tau$ 同步改变进行小范围扫描得到的自旋回波曲线。可以看到周期性的消失与重现现象（collapses and revivals）。这一现象是由于在外磁场 B 下 ^{13}C 核自旋频率为 $\gamma_c B$ 的拉莫尔进动引起的^[91]，这一集体性的进动行


 图 23 $\tau' = \tau$ 的自旋回波信号与相干时间 T_2

$y = A \cdot e^{-(x/T_2)^n} + y_0$ 拟合得到其衰减的特征时间约为370 μs ，这一时间又称为相干时间 T_2 。

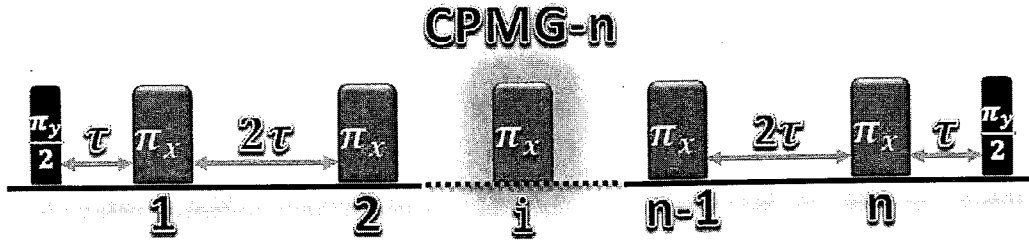


图 24 CPMG-n 脉冲码型示意图

$\pi_y/2$ 脉冲和 π_x 脉冲相位相差 90° ，对于 CPMG-n 脉冲码型含有 n 个 π_x 脉冲。

为构成了自旋环境的周期性变化，使得前后两段时间相位演化无法抵消。

自旋环境中除了周期性拉莫尔进动引起的周期性变化外，还有一些非准静态的环境涨落，比如 ^{13}C 核自旋环境的量子涨落。图 23 为进一步增大 $\tau' = \tau$ 的扫描范围，得到的自旋回波曲线。可以看到自旋回波信号外轮廓同样在衰减，这一衰减主要由于自旋环境中的量子涨落等非准静态噪声引起的。利用指数函数 $y = A \cdot e^{-(x/T_2)^n} + y_0$ 拟合得到其衰减的特征时间约为 $370 \mu\text{s}$ ，这一时间又称为相干时间 T_2 。

由自旋回波曲线得到的衰减特征时间 T_2 大概比自由感应衰减的特征时间 T_2^* 延长了两个数量级，因此自旋回波脉冲技术可以用于保护和延长自旋相干时间。但是我们看到也有很多非准静态的环境涨落无法被自旋回波码型所抑制，于是人们发明了多种动力学解耦技术（dynamical decoupling, DD）^[104, 105]来保护延长量子系统的相干时间。动力学解耦技术，即通过动力学方法来“解除”量子系统与周围环境的耦合。常见的动力学解耦技术有 CPMG^[106, 107]

（Carr-Purcell-Meiboom-Gill），UDD^[108-110]（Universal dynamical decoupling）等多种，可以抑制高阶环境噪声。例如图 24 为 CPMG-n 的脉冲码型，其含有互成 90° 的 X,Y 两种相位脉冲，可以对微波脉冲本身的误差进行补偿。

3.3 氮空位中心核自旋操控简介

依靠氮空位中心电子自旋，只能进行单量子比特或者三能级的操作和应用。

进行实际的量子信息处理则需要多量子比特，对于氮空位中心系统核自旋是重要的多量子比特资源。下面以 ^{14}N 核自旋通过激发态能级交错效应实现极化为例，对氮空位中心系统核自旋操控手段做一下介绍。

3.3.1 激发态能级交错效应

上一节中我们多次提到将 ^{14}N 核自旋极化，这一过程比较常用的方式即为利用激发态能级交错效应 (excited state level anti-crossing, ESLAC) [111-113]。对核自旋进行极化实现量子比特初始化也是多比特量子信息处理的必备基础。另外，对于许多单量子比特或者三能级等方面的应用（比如第七章室温纳米金刚石中全相位相干控制的量子克隆机），如果将 ^{14}N 核自旋极化可以使能级结构更加纯净，可以减少干扰提高操控保真度。

在 2.2.2 节提到氮空位中心电子自旋其激发态零场劈裂约为 1.425GHz 大概

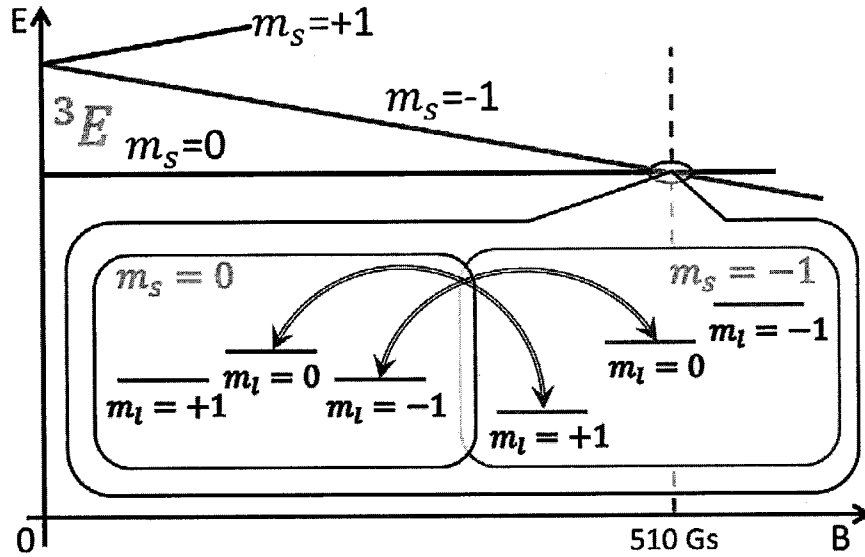


图 25 氮空位中心激发态能级交错示意图

增大磁场时由于塞曼效应，电子自旋激发态 3E 中 $m_s = +1$ 与 $m_s = -1$ 会劈裂开，而 $m_s = -1$ 与 $m_s = 0$ 会逐渐接近。当磁场达到约 510 Gs 左右时， $m_s = 0$ 与 $m_s = -1$ 会发生简并。此时在电子自旋与核自旋之间可能出现自旋交换，即 $|m_s = 0, m_l = -1\rangle \leftrightarrow |m_s = -1, m_l = 0\rangle$ 以及 $|m_s = 0, m_l = 0\rangle \leftrightarrow |m_s = -1, m_l = +1\rangle$ 可以发生交换。又由于激光激发可以将 $m_s = -1$ 极化到 $m_s = 0$ ，因此经过两步即可以实现 ^{14}N 核自旋极化。

是基态的一半。如图 25 所示^[111], 增大磁场时由于塞曼效应 $m_s = +1$ 与 $m_s = -1$ 会劈裂开, 而 $m_s = -1$ 与 $m_s = 0$ 会逐渐接近。当磁场达到约 510 Gs 左右时, $m_s = 0$ 与 $m_s = -1$ 会发生简并。如图 25 所示, 此时在电子自旋与核自旋之间可能出现自旋交换 (electron-nuclear-spin flip-flops)^[111]。通过激光激发可以将电子自旋极化到 $m_s = 0$, 其中核自旋 $m_l = -1$ 又可以与 $m_s = -1$ 中的 $m_l = 0$ 发生交换, 交换后再次经过激光激发会回到 $m_s = 0$ 。之后 $m_s = 0$ 中核自旋 $m_l = 0$ 则可以与 $m_s = -1$ 中的 $m_l = +1$ 发生交换, 交换后再次经过激光激发也会回到 $m_s = 0$ 。经过以上两步, 就实现了将 ^{14}N 核自旋极化到 $m_l = +1$ 。

据文献^[111]介绍激发态能级交错效应对 ^{14}N 核自旋的极化率可以达到 95% 左右。类似的极化过程对于氮空位中心电子自旋近邻的强耦合 ($> 1 \text{ MHz}$) ^{13}C 核自旋同样有效。还有多种其他方式可以实现核自旋的极化, 比如射频驱动、自由演化、动力学极化等, 这里不再详细介绍。

3.3.2 核自旋光磁共振谱

与氮空位中心电子自旋类似, 对核自旋的量子操控一般同样首先确定能级跃迁的共振频率。一般情况下, 核自旋无法通过光学方法直接读出。通常可以

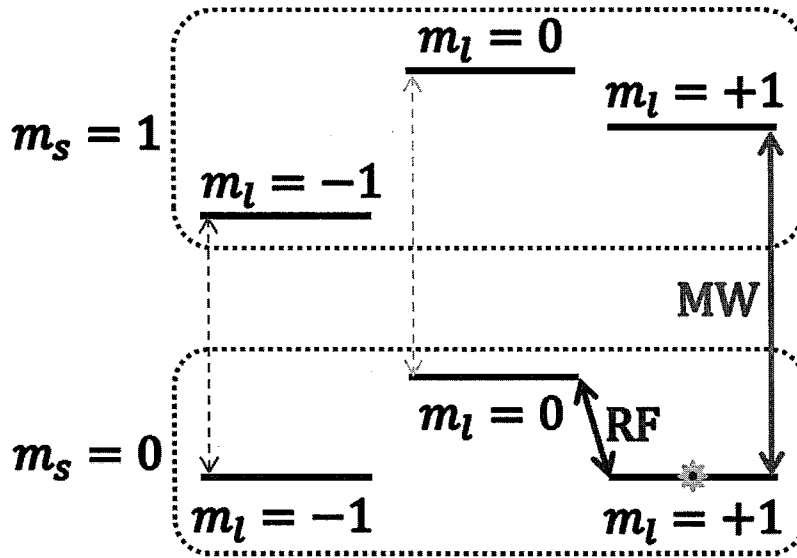


图 26 ^{14}N 核自旋量子操控示意图

经过激发态能级交错过程, ^{14}N 核自旋被极化到 $m_l = +1$ 。之后可以通过射频 RF 脉冲进行核自旋量子操控, 并通过选择性的微波 MW 脉冲实现将核自旋状态投影到电子自旋读出。

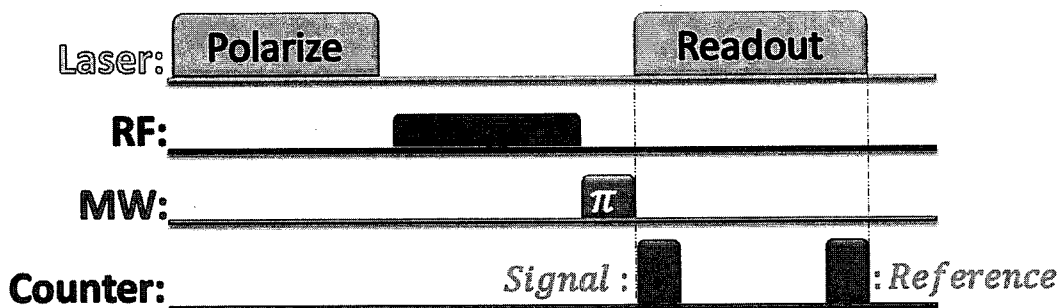
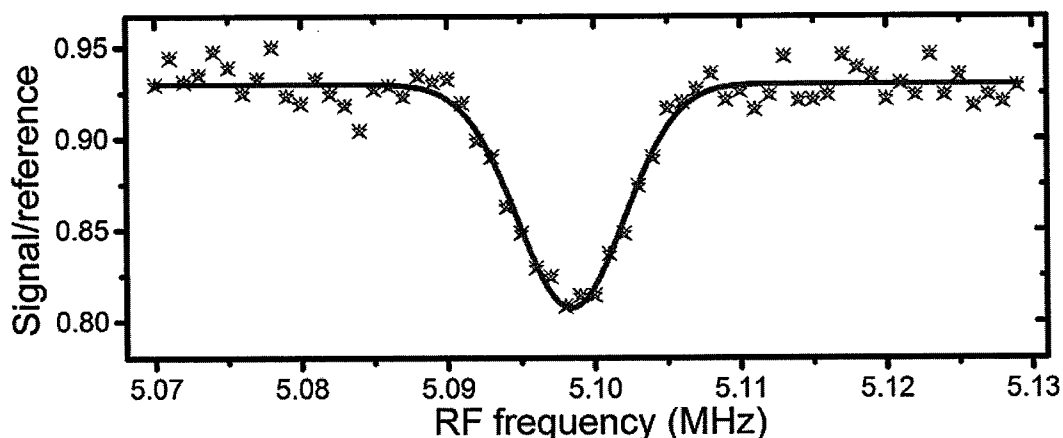


图 27 ESLAC 条件下的核自旋光磁共振脉冲码型

在激发态能级交错条件下，首先利用激光脉冲将电子自旋极化到 $m_s = 0$ ，核自旋极化到 $m_l = +1$ 。之后施加强功率射频 RF π 脉冲，再利用弱功率微波 MW 选择性 π 脉冲将核自旋状态投影到电子自旋。最后在激光激发下分别读取信号和参考光子数，重复一定次数进行统计。逐渐扫描射频频率，分别重复以上过程。

采取首先将电子自旋极化，利用脉冲码型将核自旋状态投影到电子自旋进行测量读出，这类脉冲码型操作也被称作投影逻辑门（mapping gate）。

如图 26 所示，经过激光激发氮空位中心电子自旋被极化到 $m_s = 0$ ，利用激发态能级交错效应核自旋被极化到 $m_l = +1$ ，经过以上过程自旋布居被初始化为 $|m_s = 0, m_l = +1\rangle$ 。由于核自旋之间的能级跃迁频率在射频波段，因此可以利用射频 RF 脉冲进行操控。之后可以利用弱微波 MW 脉冲将一种核自旋比如 $m_l = +1$ 选择性的激发到 $m_s = 1$ ，便可以借助电子自旋在 $m_s = 0$ 与 $m_s = 1$ 之


 图 28 集群样品的 ^{14}N 核自旋光磁共振谱

共振谷对应电子自旋在 $m_s = 0$ 时， ^{14}N 核自旋 $m_l = +1$ 与 $m_l = 0$ 之间的共振跃迁频率。

间的荧光差异将核自旋状态读出。

在激发态能级交错条件下，具体的实验脉冲码型如图 27 所示，首先利用激光脉冲将电子自旋极化到 $m_s = 0$ ，核自旋极化到 $m_l = +1$ 。之后施加强功率射频 RF π 脉冲，与连续波光磁共振类似，如果最初 π 脉冲未知可能需要预估。再利用弱功率微波 MW 选择性 π 脉冲将核自旋状态投影到电子自旋。最后在激光激发下分别读取信号和参考光子数，重复一定次数对光子计数进行统计。逐渐扫描射频 RF 的频率，分别重复以上过程。

图 28 为我们在氮空位中心集群样品中测量到的 ^{14}N 核自旋的光学探测磁共振谱，其中共振谷对应电子自旋在 $m_s = 0$ 时， ^{14}N 核自旋 $m_l = +1$ 与 $m_l = 0$ 之间的共振跃迁频率（图 26）。另外对于部分本身荧光存在差异的核自旋状态可以不借助投影脉冲实现读取。

3.3.3 核自旋拉比振荡

与电子自旋类似，拉比振荡也是进行核自旋操控的一种常用手段。这里以

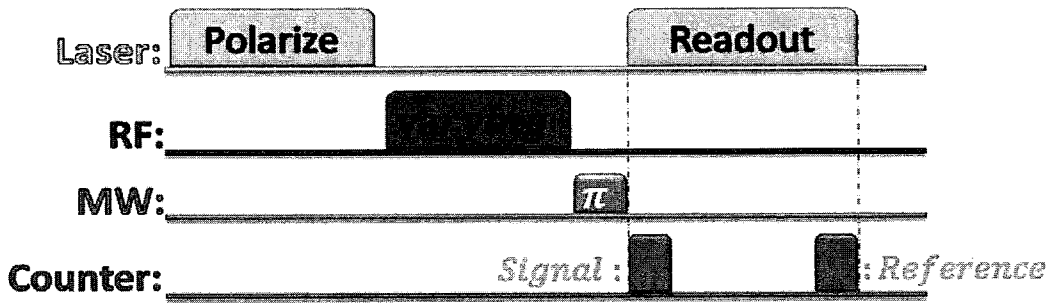
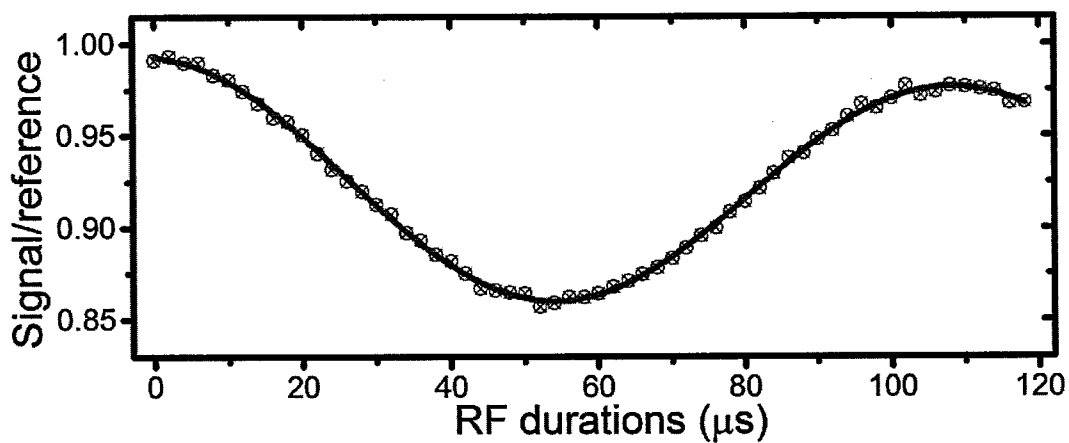


图 29 ESLAC 条件下的核自旋拉比振荡码型

在激发态能级交错条件下，首先利用激光脉冲将自旋极化到 $m_s = 0$ ， $m_l = +1$ ，之后施加强功率射频 RF 脉冲。再利用弱功率微波 MW 选择性 π 脉冲将核自旋状态投影到电子自旋，最后在激光激发下分别读取信号和参考光子数。逐渐增加射频脉冲的时间长度重复以上过程。

^{14}N 核自旋通过激发态能级交错效应实现极化为例，简单进行一下介绍。

激发态能级交错条件下，核自旋拉比振荡的实验脉冲码型如图 29 所示。首先利用激光脉冲将自旋极化到 $m_s = 0$ ， $m_l = +1$ ，之后施加强功率射频 RF 脉冲。再利用弱功率微波 MW 选择性 π 脉冲将核自旋状态投影到电子自旋，最后在激光激发下分别读取信号和参考光子数。逐渐增加射频脉冲的时间长度重复以上过程。整个实验过程再重复几万次左右，统计光子计数得出拉比振荡信号。

图 30 集群样品的 ^{14}N 核自旋拉比振荡

为我们在氮空位中心集群样品中测量得到的 ^{14}N 核自旋拉比振荡信号。操控能级为电子自旋在 $m_s = 0$ 时 ^{14}N 核自旋 $m_l = +1$ 与 $m_l = 0$ 之间。与氮空位中心单点样品相比外轮廓衰减趋势比较明显。

3.4 室温光磁共振平台

前几节我们介绍了氮空位中心自旋的一些量子操控技术，而要实现这些量子操控需要相应的硬件设备，比如激光、微波等。下面介绍一下室温下氮空位

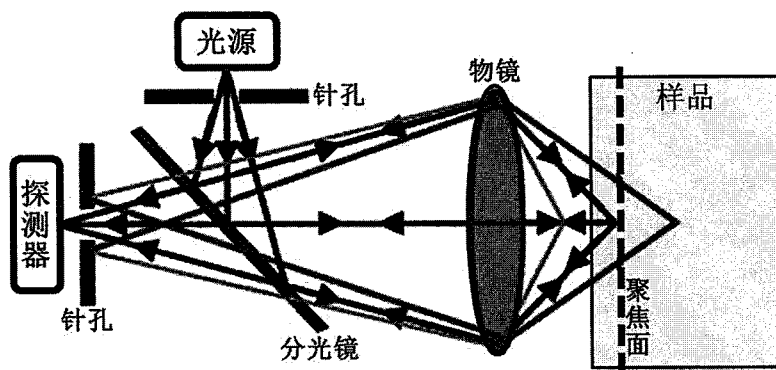


图 31 共聚焦显微镜原理图

光源、样品内的聚焦物点、探测器是共焦的，聚焦面前方（橙色）和后方（红色）超过一定距离的物点，其对应像点无法通过探测器前的针孔，从而可以实现对样品内特定聚焦面的成像。

中心光磁共振调控平台，大致包括激光共聚焦扫描显微系统、微波射频调控及磁场系统以及设备控制与数据采集系统等几部分。

3.4.1 共聚焦扫描显微系统

金刚石为无色透明样品，氮空位中心也是在不同深度都有分布。如果使用普通显微镜，处在不同深度的氮空位中心发光互相叠加，会造成无法清晰成像甚至造成无法分辨单个氮空位中心。因此在实验中需要用到共聚焦显微镜，其基本原理如图 31 所示。光源通过针孔作为点光源，通过物镜聚焦到样品内聚焦面上的某物点，两者共焦。在光路中插入分光镜，将样品内的出射光与光源入射光分开，透过针孔用探测器进行收集。针孔位于由聚焦物点出射光的焦点，即进一步与点光源、聚焦物点实现共焦。聚焦面前方（橙色）和后方（红色）超过一定距离的物点，其对应像点无法通过探测器前的针孔，从而非聚焦面的发光不被探测器接收。只有在聚焦面聚焦范围内的物点可以被探测器收集，聚焦范围由针孔大小决定。

对于用于氮空位中心调控的共聚焦显微镜，光源使用 532 nm 激光器对氮空位中心进行非共振激发。使用二向色分光镜进行分光，532 nm 绿色激光在此处反射，而氮空位中心发出的荧光红外荧光透射。由于氮空位中心荧光较弱，

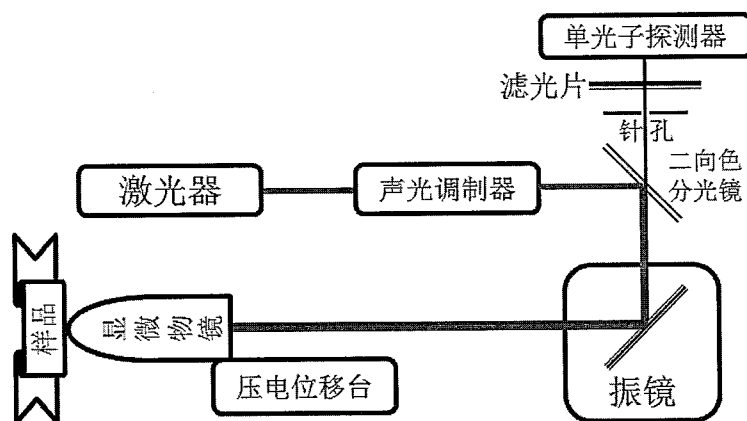


图 32 共聚焦扫描显微系统示意图

共聚焦扫描显微系统以共聚焦显微镜为基础，使用 532 nm 激光器对 NV 进行非共振激发，利用二向色分光镜将激发光与荧光分路。进一步使用滤光片滤除激发光后，通过单光子计数器收集 NV 发出的荧光。利用扫描振镜配合压电位移台实现对样品的三维扫描，利用声光调制器实现激光脉冲调制。

使用滤光片滤除激发光以后，通过单光子计数器对微弱荧光信号进行收集。需要进行单光子验证时，可以利用分光镜将荧光分为两束送入两台单光子探测器探测再进行相关性分析。

通过共焦针孔，共聚焦显微镜提高了空间分辨率，可以实现对样品内部特定深度的探测。但共焦针孔使得同一个时刻只能对样品内的单个物点进行成像探测。为了实现面阵成像，就需要另外进行二维扫描。为了调节聚焦深度，还需要增加深度调节，即要实现三维扫描。这里使用扫描振镜即一对通过电动机控制摆动角度的反射镜来实现二维平面扫描。两只反射镜分别通过改变摆动角度实现改变出射光的 X 方向和 Y 方向位置最终实现二维扫描。对于深度调节使用压电位移台控制显微物镜的聚焦深度位置，从而实现三维扫描。

根据前几节介绍的氮空位中心的操控技术，对电子自旋进行极化、状态读出等过程均需要对激光进行开关通断控制。这里利用声光调制器来实现通断开关，其原理为声光晶体在超声驱动下折射率发生变化，从而产生类似光栅的结构。不施加控制信号时，激光光束经过声光调制器不发生衍射。施加控制信号后，激光光束通过声光调制器后发生多级衍射，使用光阑进行选择阻挡实现激光的开关通断。为了提高通断比还可以考虑使用双通过光路。

图 32 为在共聚焦显微镜基础上增加三维扫描装置和声光调制后的共聚焦扫描显微系统示意图。氮空位中心对激发激光的偏振方向是敏感的，因此还可以增加偏振调节等装置。

3.4.2 微波射频调控及磁场系统

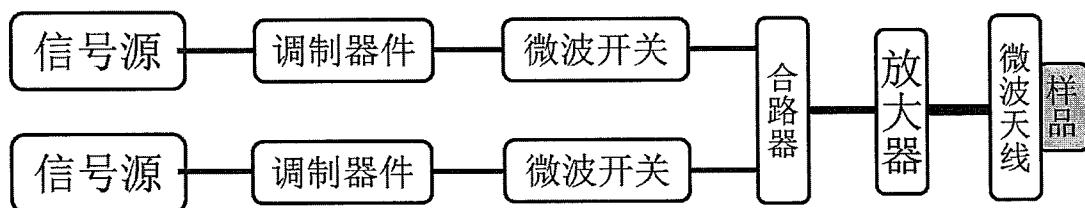


图 33 微波射频线路示意图

根据实验需求可以对多台微波射频信号源产生的信号进行分路以后，分别进行开关调制再进行合路，以实现不同的功率相位脉冲形状等。合路后的微波射频信号经过放大放大器进行功率放大后，再通过样品表面的微波天线作用于氮空位中心。

氮空位中心的自旋调控需要用到微波射频信号，一般电子自旋操控在微波频段，核自旋操控在射频频段。另外还需要施加静磁场改变能级位置。

以图 33 所示的一套典型微波射频线路进行介绍。实验中经常要用到不同频率的微波射频信号，因此可能需要多台微波射频信号源。可以根据需要对不同微波射频信号进行分路以后分别进行开关调制再进行合路，以实现不同的功率相位脉冲形状等。合路后的微波射频信号经过放大放大器进行功率放大后，再通过样品表面的微波天线作用于氮空位中心。

微波射频信号的开关调制可以有不同的方式。一般开关通断可以利用微波开关，幅度和相位调制等信号调制可以通过衰减器和移相等调制器件来实现。比如在第七章（室温纳米金刚石中全相位相干控制的量子克隆机）中就用到了移相器进行相位调节。而类似第四章（用于高保真度量子操控的边带选择形状化脉冲）中则需要对脉冲形状进行调制。此时可以利用任意波形发生器实现脉冲波形并通过混频器对载波信号进行实时调制。

大部分实验中需要施加外磁场，并且不同实验中对磁场大小和方向的要求会各有不同。我们使用永磁铁施加外磁场，并通过旋转台和位移台实现磁场方向和大小的调节。

3.4.3 设备控制与数据采集系统

根据前几节的介绍，各种不同的量子操控手段需要不同的实验脉冲码型。实验上我们使用高速脉冲发生卡实现脉冲时序的协调，它可以同时以 2 ns 时间分辨率，同时进行 24 位数字 TTL 控制信号输出。实现实验脉冲码型中经常用到的激光、微波、计数之间的时序关系均由高速脉冲发生卡统一控制其开关的时间。其中激光脉冲通过控制声光调制器的实现，微波脉冲一般通过控制微波开关控制。而单光子计数器转换出的光电脉冲由多功能数据采集卡计数器采集，再由高速脉冲发生卡实现光子计数控制。

对于脉冲长度超出高速脉冲发生卡控制精度的微波脉冲控制信号，比如在第七章（室温纳米金刚石中全相位相干控制的量子克隆机）中我们采用了脉冲/码型发生器产生。对于需要对脉冲波形进行控制的情形，比如在第四章（用于高保真度量子操控的边带选择形状化脉冲）中，我们使用任意波形发生器来产生波形控制信号。这两者再由高速脉冲发生卡通过触发方式进行时序协调控制。

有多种软件可以用于实验系统的控制比如 C 语言、Python 等，目前我们使

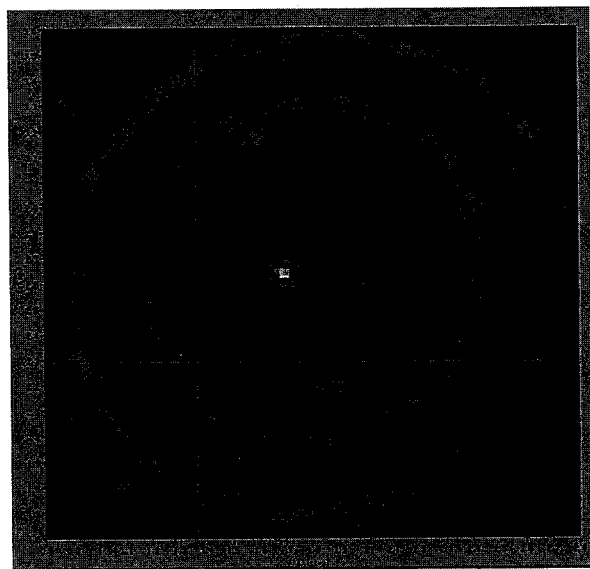


图 34 固态浸没透镜荧光扫描图

用的是美国国家仪器 (NI) 公司 LabVIEW 图形化编程语言环境。全部的设备控制和数据采集工作均由我们自主编写的控制程序来实现。并且我们尝试了多种自动反馈机制提高系统运行的自动化水平。

3.4.4 样品加工技术

由于金刚石样品加工技术与氮空位中心调控平台密切相关, 因此这里进一步介绍一下相关的加工技术, 主要包括固态浸没透镜和共面波导天线等。²

金刚石中氮空位中心的荧光发光强度较弱, 而其自旋状态的读出又依赖于光致荧光的探测, 因而荧光的收集效率在实验中是非常关键的因素。金刚石晶体的折射率比较大约为 2.42, 造成晶体内氮空位中心发出的荧光很大一部分在金刚石与空气的界面处发生全反射。因而在金刚石上方用物镜收集氮空位中心发出的荧光时效率很低, 一般每秒只有约 5 万次计数。

后来人们发明了固态浸没透镜技术 (solid immersion lens, SIL)^[114], 即在金刚石表面刻蚀出半球形结构。当氮空位中心基本位于半球球心时, 其发出的荧光到达金刚石与空气界面时均为垂直出射。从而使得很大一部分荧光可以透出金刚石晶体被物镜收集, 大幅度提高了收集效率。图 34 为我们所使用的固

² 样品加工主要由物理所微加工实验姜倩晴完成。

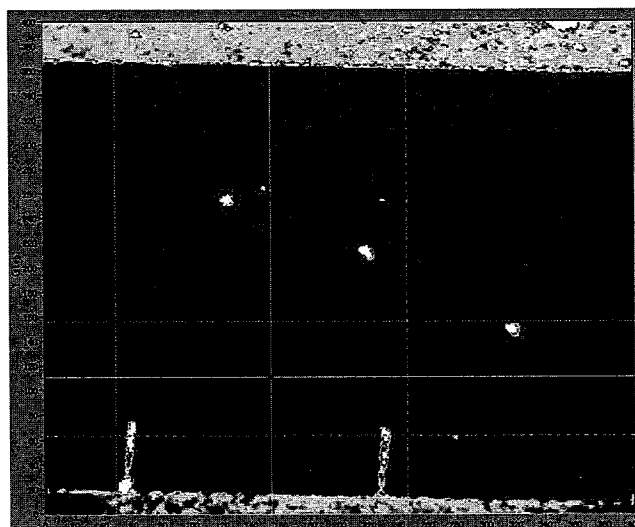


图 35 金刚石晶体表面共面波导荧光扫描图

态浸没透镜，在共聚焦荧光扫描显微系统下的荧光扫描图。通过利用固态浸没透镜，氮空位中心的荧光收集效率和信号噪声比都得到了大幅度提高。

对氮空位中心进行量子调控，需要将微波射频信号传输到金刚石表面。最早使用的方法是在金刚石表面焊接金线。由于选取的金线一般只有几十微米，稳定性差易损坏不能重复使用，难以精确定位到指定氮空位中心，且微波传输效率也比较低。于是人们开始将共面波导天线（coplanar waveguide, CPW）应用于氮空位中心调控领域。图 35 为我们使用的金刚石晶体表面共面波导天线荧光扫描图。通过使用共面波导天线，微波射频的传输效率得到了大幅度提高，并且样品可以多次使用，拆卸方便，重复性好。

第四章 用于高保真度量子操控的边带选择形状化脉冲

量子比特的高保真度操控对于实际的量子计算是非常重要的。但是，当量子比特之间存在不可避免的相互作用时，实现高保真度量子操控的难度会显著增大，变得非常具有挑战性。在这一章中，我们引入了一种边带选择的形状化脉冲技术来应对这一挑战。这种技术称为自聚焦的 BURP 脉冲，即 REBURP 脉冲技术^[115]。我们可以利用这项技术，实现对金刚石中氮空位中心电子自旋的高保真度翻转。与传统的方波脉冲相比，形状化脉冲可以在频域内一个很宽的范围都具有几乎相同的自旋翻转效果。并且这个给定的频域带宽具有很陡峭的上升和下降边沿。因此金刚石电子自旋中由中心 ^{14}N 原子造成的三个子能级都可以同时被精确翻转。与此同时，其他子能级的不必要激发被显著压制。比如由于邻近 ^{13}C 原子核自旋造成的能级劈裂可以几乎不受影响。这一技术方案有望广泛应用于量子计量学、量子探测、量子信息处理等领域。

4.1 脉冲优化技术应用背景

对于量子信息处理、量子计量学、量子探测等很多应用来说，高保真度相干操控是一项基本的先决条件。在实际的量子计算中，为了满足 DiVincenzo 条件需要具备精确的量子逻辑门^[79]。而大规模量子信息处理则需要彼此相互关联的多量子比特^[116-118]。对于局域的量子控制逻辑门而言，每一个量子比特都需要能够被准确的定位并做到分别控制^[119]。原则上，不同的量子比特是可以利用它们不同的空间位置^[120]或者不同的共振频率^[121]来加以区分控制的。但是对于类似微波场这样的控制场，它们一般很难在不干扰其他比特的情况下，仅仅聚焦到某一个比特上进行操控^[122]。因而对每个量子比特进行单独的精确控制成为一件具有挑战性的事情。为此有很多用于优化量子控制保真度的技术发展起来，比如梯度上升脉冲工程算法（gradient ascent pulse engineering, GRAPE）^[123]和形状化脉冲技术^[124]。

形状化脉冲是一种对脉冲进行特殊化设计的技术，它可以显著的压制由于

非共振激发和不必要相互作用造成的影响^[125]。这种技术会根据数值模拟优化和分析的方法对脉冲序列的幅度和相位都进行一定的调制，以便达到理想的量子操作效果。面向各种各样不同的应用，有很多种不同的脉冲形状被精巧地设计出来，比如高斯形状^[126]，Hermite 形状^[127]，以及具备边带选择、响应均匀、相位单纯特性的 BURP (band-selective, uniform response, pure-phase) 形状家族^[115]。这些形状化脉冲具有许多突出的特性，比如频率选择性^[115]、自聚焦性^[128]、实验上的稳健性等。由于这些优秀性质，形状化脉冲在核磁共振 (nuclear magnetic resonance, NMR) 系统^[129, 130]、激光光谱^[131, 132]、束缚离子以及固态自旋等大量不同的物理体系中都得到了广泛应用。

固态体系中的自旋或者赝自旋量子比特，比如量子点^[133]、超导量子电路^[134, 135]，是很有希望实现量子信息处理的候选载体。作为其中一种可能的固态自旋体系，氮空位中心近年来吸引了人们很多注意力^[19, 28, 36, 53, 122, 136]。氮空位中心由金刚石晶格中一个替代碳原子后的氮原子以及与其临近的晶格空位构成的复合结构（图 36），其电子自旋可以在室温下被光学极化和读出，可以被微波脉冲操控。氮空位中心电子自旋可以与邻近的核自旋^[28]或者电子自旋^[136]，通过超精细相互作用构成多量子比特系统。这里的核自旋可以是邻近的 ^{13}C 核自旋或中心氮原子核自旋等。然而，随着量子比特数目的增加，光学探测磁共振谱 (optically detected magnetic resonance, ODMR)^[95]会变得很密集^[122]。此时，不

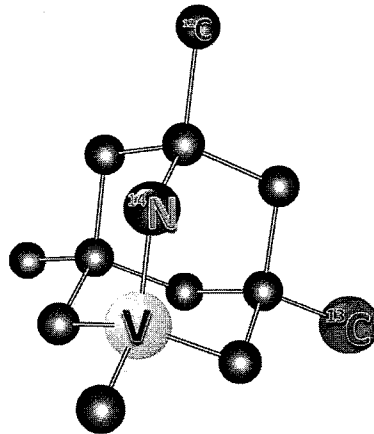


图 36 存在邻近 ^{13}C 核自旋的氮空位中心

氮空位中心由金刚石晶格中一个替代碳原子后的氮原子以及与其临近的晶格空位构成的复合结构。其电子自旋可以通过超精细相互作用与中心 ^{14}N 原子核自旋和邻近的 ^{13}C 核自旋构成多量子比特系统。

必要的相互作用^[137]和非共振激发^[76, 138]会阻碍对单个量子比特进行选择性的保真度操控。为了应对这些问题，人们提出了很多不同的技术方案^[122, 139, 140]。在这一章中，我们引入了另一种技术，即自聚焦的 BURP 脉冲 (REBURP)^[115]，来优化氮空位中心体系的控制保真度。

4.2 微波操控脉冲

包括氮空位中心在内的很多自旋或者赝自旋由微波射频脉冲进行操控。

4.2.1 传统方波脉冲

传统上用来操控氮空位中心自旋的微波控制信号，在时间域是方波脉冲，其轮廓在图 37 (a) 中给出。操控的过程可以用拉比振荡^[138]过程来描述，对应的麦克斯韦-布洛赫方程表示为：

$$\omega(t) = \omega(0) \times \left\{ 1 + \left(\frac{\Omega'}{\Omega} \right)^2 \times [\cos(\Omega t) - 1] \right\}$$

其中 Ω' 正比于微波功率的平方根，而 $\Omega = \sqrt{\Omega'^2 + \Delta^2}$ ， Δ 表示微波频率与对应能级跃迁共振频率之间的失谐量。由该式可知，在微波操控过程中不仅会有共振激发，还会造成非共振激发^[76]。进一步的由于傅里叶展开，方波在频率域上除了中心载波频率以外还有许多其他的频率成分形成很宽的谱带。综合来看，当使用方形微波脉冲驱动氮空位中心自旋时，自旋的频谱响应会很复杂，有大幅

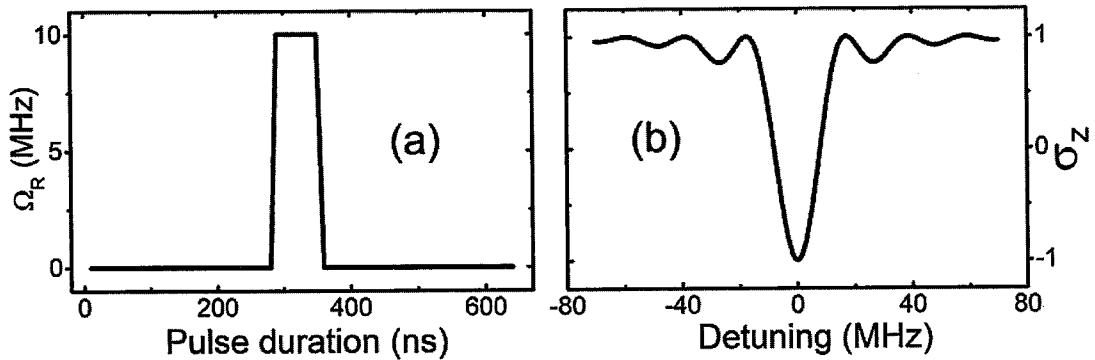


图 37 传统方波脉冲及其自旋响应谱

(a) 传统的方波脉冲在时域上的外轮廓，纵坐标为以可驱动拉比振荡频率为单位表示的微波强度。(b) 传统方波 π 脉冲的自旋响应谱，即在与被操控自旋存在不同频率失谐情况下，对已初始化自旋完成操控后自旋的 Z 分量。

展宽。具体如图 37 (b) 所示。当我们需要同时操控多个跃迁时，由于无法将微波频率同时对准多个跃迁。对于其中部分跃迁而言便会出现频率失谐，因此拉比振荡的幅度会变小，不同跃迁拉比振荡的频率也会变得不同步。量子操控的效果会变得不完美，保真度也会大幅度下降。尽管在个别情况下，通过提高微波脉冲功率可以一定程度上缓解失谐带来的问题。但提高微波功率可能会干扰到其他一些需要保护的量子态^[48]。

4.2.2 REBURP 形状化脉冲

为了克服前面提到的问题，我们引入了 REBURP 脉冲技术^[115]，REBURP 脉冲时间域上的轮廓如图 38 所示。这种脉冲是利用模拟退火方法 (simulated annealing method) 和标准的梯度下降程序 (standard gradient-descent routine) 设计出来的^[115, 129]。作为 BURP 脉冲的一种，REBURP 脉冲具有边带选择性 (B, band-selective)、一致响应性 (UR, uniform response)、相位单纯 (P, pure-phase)，在实验操作上易于实施，具有较好的稳健性。边带选择性使得 REBURP 脉冲可以在预先给定的频率范围内都具有几乎完美的量子操作效果，同时大幅压制给定范围外不需要的激发。一致响应性则可以使 REBURP 脉冲的操控效果不依赖于初始态。相位单纯特性则保证了 REBURP 脉冲可以在给定的范围内都以相同的相位激发。REBURP 脉冲还进一步有一些独特的性质，比如自聚焦性^[115, 129]。对自旋的操控可以用布洛赫球上的演化路径来描述，具有不同共振频率的自旋

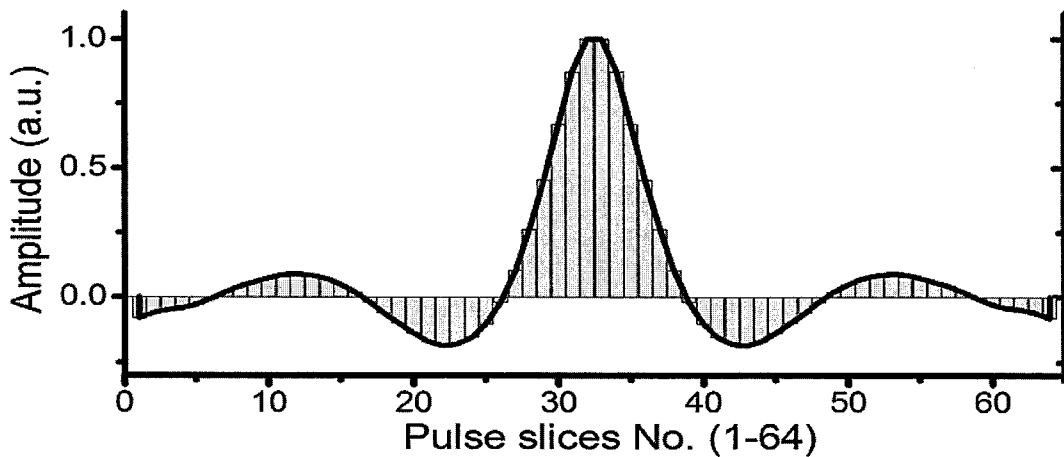


图 38 REBURP 形状化脉冲外轮廓

REBURP 形状化脉冲在时域上的外轮廓，纵坐标为微波信号幅度，负号为反向。

其在激发过程中的演化路径是不同的。而如果进行操控的脉冲具有自聚焦特性，即使激发过程中演化路径不同的自旋，只要在给定的脉冲激发范围内，完成自聚焦脉冲的操控后都会被重新聚焦到相同的目的地^[115, 129]。自聚焦特性使得 REBURP 脉冲在选定的频率范围内都具有几乎相同的激发效果，这个选定范围内的自旋可以被同时以很高的保真度进行翻转。

4.2.3 自旋响应谱

自旋响应谱为微波脉冲在与被操控自旋存在不同频率失谐情况下，对已完成初始化自旋进行操控后的自旋状态谱。通过自旋响应谱可以体现出 REBURP 脉冲的很多主要特性，响应谱的 Z 分量如图 39 所示。这样的响应谱可以通过在旋转表象下，顺序计算脉冲每一个时间片段的量子变换来得到。自旋响应谱的平坦底部作为选定的激发区域，在这一范围内几乎相同的自旋响应效果表明了 REBURP 脉冲的自聚焦特性。在这一范围外的自旋则可以在整个操作过程中保持几乎不受影响，因此不必要的激发得到了很好的压制。而边带选择性则体

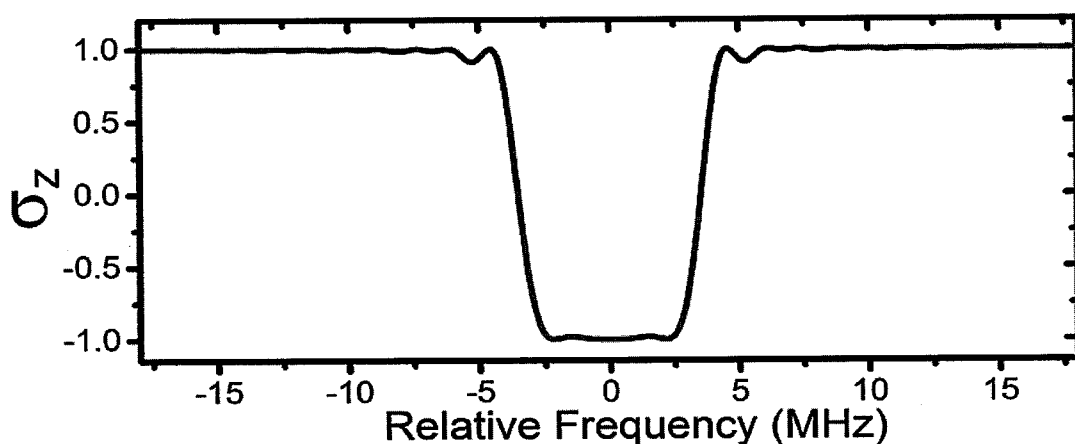


图 39 REBURP 形状化脉冲的自旋响应谱

REBURP 形状化脉冲的自旋响应谱，即在与被操控自旋存在不同频率失谐情况下，对已初始化自旋完成操控后自旋的 Z 分量。在选定频率范围内为平坦的底部，范围外则可以实现很好的压制，过渡区域上升沿和下降沿很陡峭。

现在自旋响应谱里陡直的上升沿和下降沿，这一过渡区域连接起平坦的底部和压制区域。REBURP 脉冲的这些优秀性质使其具有广泛的实际应用性，比如在自旋回波实验，多维度光谱学，磁共振成像，量子逻辑门等方面^[48]。

4.3 实验体系及装置介绍

我们选取了高纯金刚石样品中的一个单个氮空位中心来实施我们的实验。

4.3.1 氮空位中心能级体系

利用外磁场将氮空位中心电子自旋的 $m_s = \pm 1$ 能级简并劈裂开，外磁场的大小为 $\mathbf{B}$ 。负电性氮空位中心 (NV^-) 的哈密顿量可以写作下面的形式^[87]:

$$\begin{aligned} H = & \Delta S_z^2 - \gamma_e \mathbf{B} \cdot \mathbf{S} - \gamma_N \mathbf{B} \cdot \mathbf{I}^{(N)} + A_{\parallel}^{(N)} S_z I_z^{(N)} + A_{\perp}^{(N)} (S_x I_x^{(N)} + S_y I_y^{(N)}) \\ & + P \left[(I_z^{(N)})^2 + \frac{1}{3} (I^{(N)})^2 \right] - \gamma_C \mathbf{B} \cdot \sum_i \mathbf{I}_i^{(C)} + S_z \sum_i A_i \cdot \mathbf{I}_i^{(C)} \end{aligned}$$

上式中 $\Delta = 2.87 \text{ GHz}$ 是电子自旋基态的零磁场劈裂; $\mathbf{S}$, $\mathbf{I}_i^{(C)}$, $\mathbf{I}^{(N)}$ 分别是金刚石电子自旋、 ^{13}C 核自旋、 ^{14}N 核自旋; γ_e , γ_C , γ_N 分别是金刚石电子自

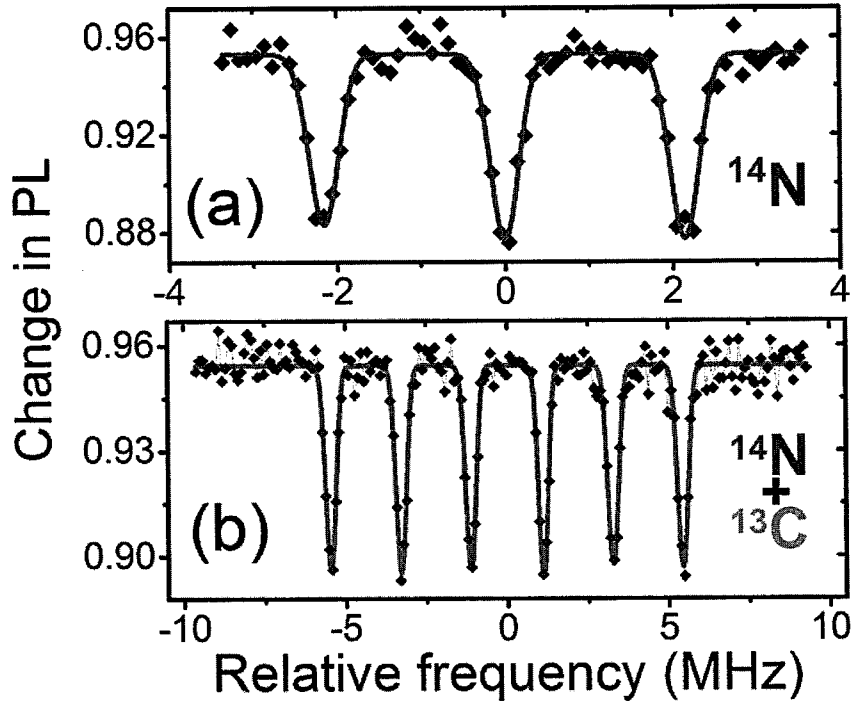


图 40 不同类型的氮空位中心光磁共振谱

(a)只有中心 ^{14}N 核自旋时的光磁共振谱，由于与中心 ^{14}N 核自旋超精细相互作用而劈裂为三个共振谷；(b) 存在邻近 ^{13}C 核自旋时的光磁共振谱。光磁共振谱会进一步劈裂为六个共振谷。

旋、 ^{13}C 核自旋、 ^{14}N 核自旋的旋磁比； $A_{\parallel}^{(N)}$ ， $A_{\perp}^{(N)}$ ， A_i 是金刚石电子自旋与 ^{13}C 核自旋、 ^{14}N 核自旋分别的超精细相互作用张量； P 是四极矩耦合张量。

图 40 不同类型的氮空位中心光磁共振谱展示了不同类型氮空位中心光磁共振谱 ($m_s = 0$ 与 $m_s = -1$ 能级之间跃迁)。其中 (a) 是一个没有邻近 ^{13}C 核自旋的纯净氮空位中心，图中可以看到由于与自旋为 1 的中心 ^{14}N 核自旋超精细相互作用而劈裂为三个共振谷。而当存在于氮空位中心邻近的 ^{13}C 核自旋时的光磁共振谱如图 40 (b) 所示，自旋为 1/2 的 ^{13}C 核自旋超精细相互作用将之前的三个共振谷进一步劈裂为六个共振谷^[141]。如果涉及更多的邻近 ^{13}C 核自旋，那么该多量子比特系统的能级结构会变得更加复杂，因而更难以控制。

4.3.2 实验系统介绍

我们用一套自主搭建的激光共聚焦扫描显微与微波调控复合系统来实现在室温下对金刚石氮空位中心自旋状态的初始化、操控和读出。为了提高光子收集效率，我们在选定的氮空位中心上刻蚀了固态浸没透镜 (solid immersion lens, SIL)^[114]。并且在这枚金刚石表面制备了共面波导天线 (coplanar waveguide, CPW) 来提高微波传输效率。微波脉冲在经过放大器放大后经过共面波导天线作用在氮空位中心来，实现对自旋的量子操控。由于实验中使用的为同一个氮

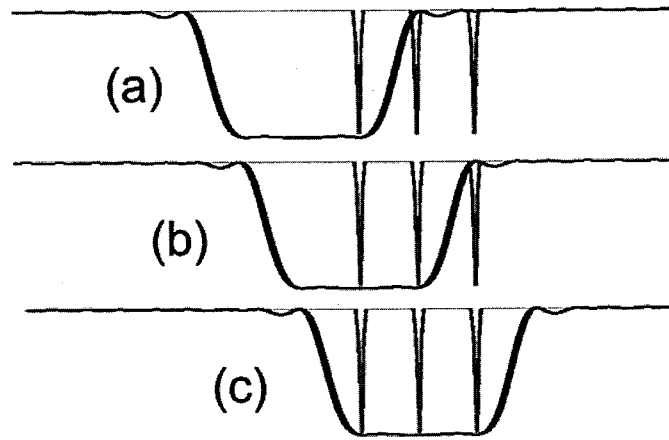


图 41 频率扫描实验示意图

扫描 REBURP 形状化脉冲的载波中心频率，使其逐步经过 ^{14}N 核自旋超精细结构的三个共振谷。在这个过程中，(a) 先是只有最左侧共振谷被激发，(b) 然后左侧两个被激发，(c) 再三个共振谷都被激发。之后从最左侧开始三个共振谷逐渐离开激发区域不再被激发。

空位中心，上面提到的不同类型光磁共振谱，我们通过调节外磁场大小来模拟实现。即当外磁场比较大时，电子自旋 $m_s = +1$ 与 $m_s = -1$ 劈裂开较远，可以作为图 40 (a) 的情景应用。而当磁场较小，电子自旋 $m_s = +1$ 与 $m_s = -1$ 之间劈裂约为 6.5 MHz 时，对应图 40 (b) 的情形。因为在 REBURP 脉冲中，只需要对微波脉冲的幅度进行调制，所以在实验中我们只需要一套微波信号源和微波线路。但一般常用的微波开关 RF Switch 只能进行 TTL 通断，这里使用一对微波混频器对载频的微波进行调制而实现的。使用一对的目的是为了在完全关断状态时更为彻底，减少微波泄漏。微波混频器的控制信号由任意波形发生器(泰克 AWG430)产生，其工作频率最大为 200MHz 即最小时间片段为 5 ns。在实验中，我们将形状化脉冲拆分为 64 个时间片段，编码到任意波形发生器中。为了便于切换传统的方波脉冲同样被编码到任意波形发生器中。我们通过改变任意波形发生器(泰克 AWG430)工作频率来改变脉冲的时间尺度。任意波形发生器工作在触发模式，受高速脉冲码型发生卡触发以实现与总体实验码型的协调。

4.4 实验验证形状化脉冲的自旋响应特性

REBURP 形状化脉冲的自旋响应特性可以通过频率扫描实验来研究，该实

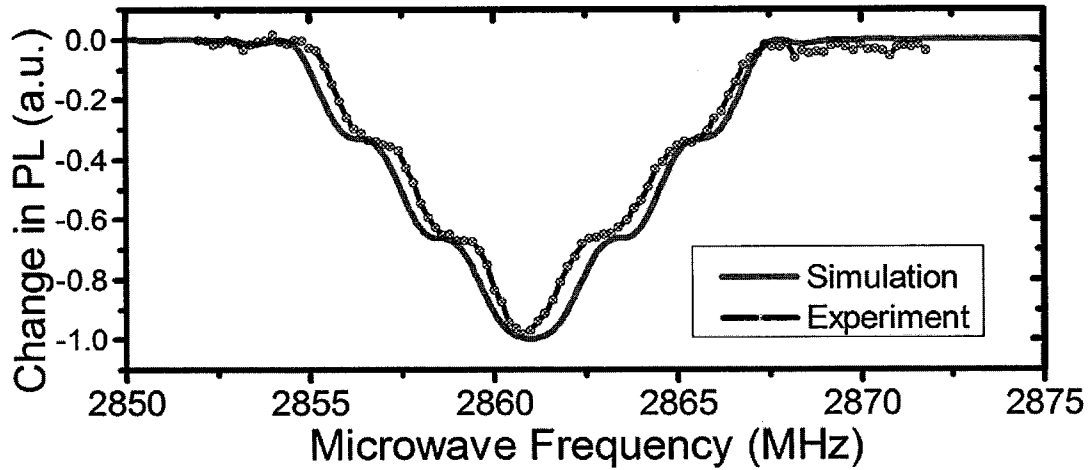


图 42 频率扫描实验模拟与实验结果对比

在使用 800 ns 时间长度的 REBURP 形状化脉冲对 ^{14}N 核自旋超精细结构的三个共振谷进行频率扫描过程中，光磁共振信号会出现先是阶梯式的下降之后再阶梯式的上升的现象。红色实线为模拟结果，蓝色点划线为实验结果再现了模拟预期。

验过程与脉冲光磁共振 (pulse ODMR) ^[97, 98] 实验类似。首先利用激光脉冲将氮空位中心电子自旋极化到 $m_s = 0$ 态。然后使用微波 π 脉冲将电子自旋激发到 $m_s = 1$ 态。在一般的脉冲光磁共振实验中, 该 π 脉冲为传统的方波脉冲。在我们的频率扫描实验中我们使用 REBURP 形状化脉冲。最后通过光子计数读出电子自旋状态。扫描微波脉冲频率, 并重复以上过程。我们将频率扫描范围选在可以覆盖光磁共振谱中 ^{14}N 核自旋超精细结构的三个共振谷 (图 40 (a))。

我们首先选取 800 ns 长度 REBURP 形状化脉冲, 经过模拟这一长度脉冲对应的自旋响应谱其平坦底部的宽度恰好可以覆盖 ^{14}N 核自旋超精细结构的三个共振谷的宽度。我们首先使用程序模拟了该长度 REBURP 形状化脉冲进行频率扫描的过程如图 41 所示。扫描 REBURP 形状化脉冲的载波中心频率, 使其逐步经过 ^{14}N 核自旋超精细结构的三个共振谷。在这个过程中, (a) 先是只有最左侧共振谷被激发, (b) 然后左侧两个被激发, (c) 再三个共振谷都被激发。之后从最左侧开始三个共振谷逐渐依次离开激发区域不再被激发。由于 REBURP 形状化脉冲的上升沿和下降沿比较陡, 所以在上述不同扫描状态过渡时, 光磁共振信号会有一段过渡的平台。模拟得到的自旋响应信号如图 42 中红色实线所示, 我们可以看到光磁共振信号, 先是阶梯式的下降之后再阶梯式的上升的现象。这是因为激发不同数目的共振谷, 会有不同比例的自旋布居被激发到 $m_s = 1$ 态, 从而荧光强度的变化不同。之后我们实际实施了这一频率扫描实验, 实验结果在图 42 中以蓝色点划线表示, 可以看到很好的再现了模拟的预期。

之后我们改变 REBURP 形状化脉冲的时间长度, 同时相应改变形状化微波

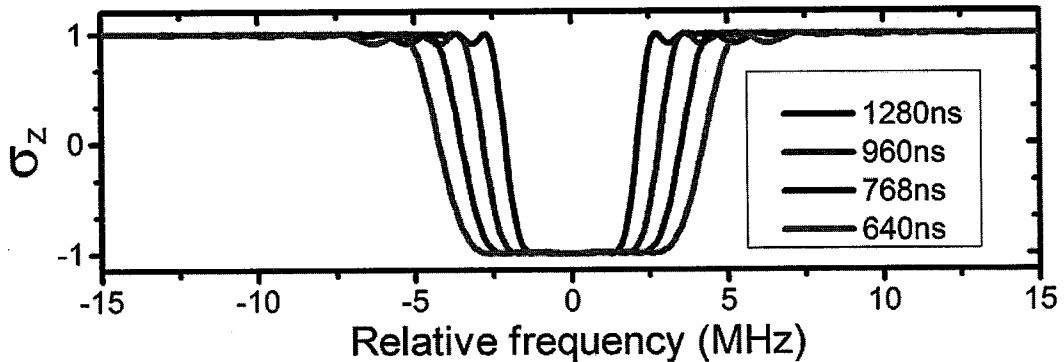


图 43 不同时间尺度形状化脉冲的自旋响应谱

当改变形状化微波脉冲峰值功率时, 需要相应形状化脉冲时间尺度过长时, 其自旋响应谱的平坦底部也会因此改变。

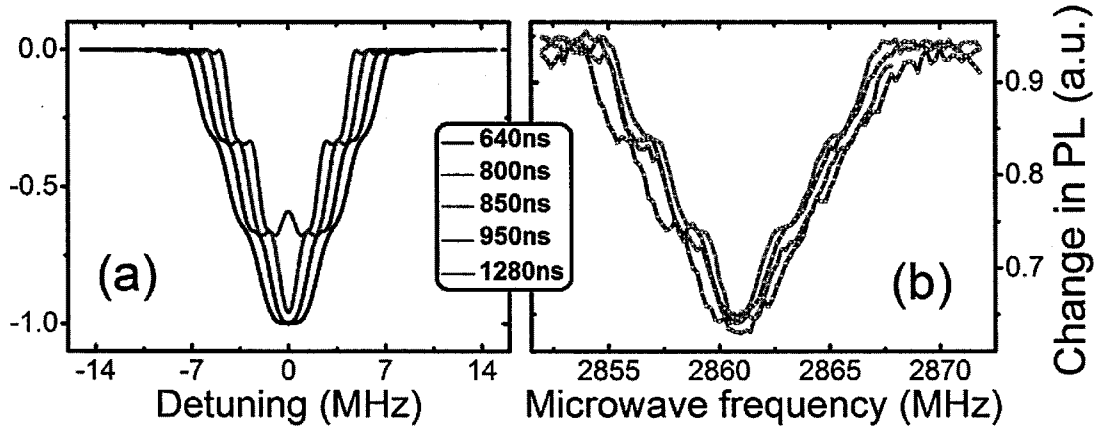


图 44 不同时间尺度 REBURP 脉冲频率扫描效果

使用几种不同时间长度的 REBURP 形状化脉冲对 ^{14}N 核自旋超精细结构的三个共振谷进行频率扫描, 光磁共振信号会出现类似的阶梯式的下降再阶梯式上升的现象。(a) 为模拟结果, (b) 为实验结果再现了模拟预期。

脉冲峰值功率, 如图 43 所示此时其自旋响应谱的平坦底部也会因此改变。我们分别对不同时间长度的形状化脉冲进行了频率扫描过程的程序模拟, 模拟结果如图 45 (a) 所示。我们看到了类似的光磁共振信号阶梯式下降再阶梯式上升的现象。而当形状化脉冲的时间尺度过长时, 对应的微波脉冲峰值功率也会降低, 自旋响应谱的平坦底部会变窄。当不足以覆盖整个 ^{14}N 核自旋超精细结构三个共振谷时, 光磁共振信号会有所不同。之后我们使用不同时间长度 REBURP 形状化脉冲进行了频率扫描实验, 相关的光磁共振实验结果展示在图 45 (a)。我们可以看到实验结果与模拟预期是吻合的。

在频率扫描实验中, 图 42 光磁共振谱中出现的台阶对应有一个或者两个共振跃迁被完全激发和翻转, 与此同时没有干扰到另外的一两个跃迁。该现象得益于图 39 中 REBURP 形状化脉冲自旋响应谱的陡直上升沿和下降沿, 验证了 REBURP 形状化脉冲的边带选择特性。图 42 光磁共振信号中中间的最深的一个谷其深度是每一个台阶深度的三倍, 表明三个共振谷可以被同时完全激发和翻转。这得益于 REBURP 形状化脉冲的自聚焦特性, 即对应图 39 自旋响应谱中宽而平的底部。实验与模拟吻合良好验证了 REBURP 形状化脉冲的几个主要特性。

4.5 实验评估形状化脉冲的操控效果

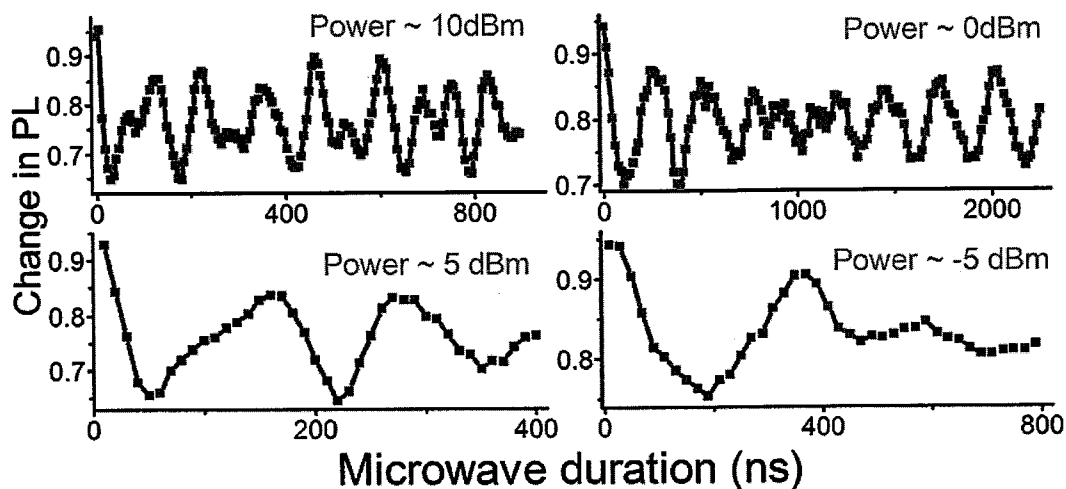


图 45 具有严重拍频的拉比振荡

在光磁共振谱具有六个邻近共振谷的情况下，使用的方波脉冲驱动拉比振荡。尽管改变了各种不同微波功率，但依然有严重的拍频现象。

接下来我们通过实验评估了 REBURP 形状化脉冲对量子操控保真度的提高效果。实验是在图 40(b) 光磁共振谱具有六个邻近共振谷的情况下进行的，这种典型的环境是为了模拟由一个 ^{13}C 原子造成的 6.5 MHz 能级劈裂。实验的目标是，在保持右边的三个共振谷不受影响的情况下，用方波或者形状化脉冲对左边的三个共振谷进行操控。

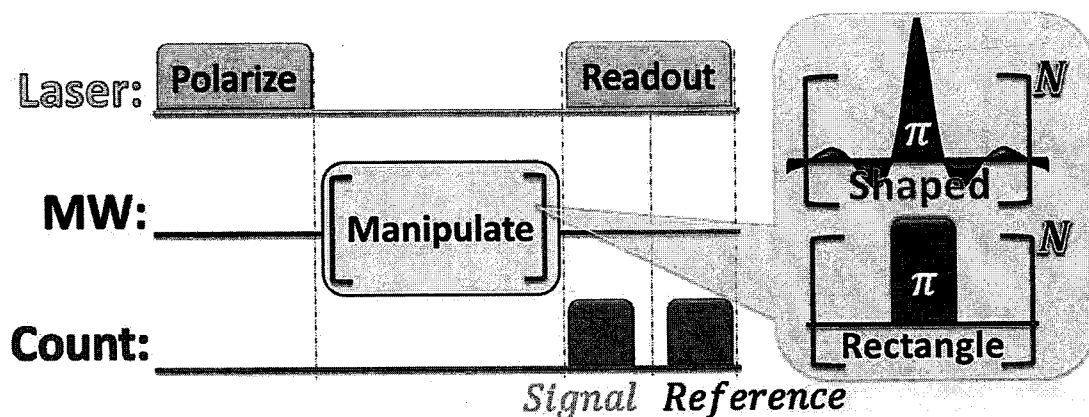


图 46 多次翻转实验脉冲码型

首先用激光脉冲对氮空位中心电子自旋完成初始化，然后使用形状化脉冲或者方波 π 脉冲对光磁共振谱六个邻近共振谷中左侧的三个进行多次翻转操作，最后通过激光和计数器脉冲读出荧光信号并记录荧光参考值以确定电子自旋状态。逐渐增加翻转次数，重复实验。

在上述给定的光磁共振谱情境下，我们将微波频率对准光磁共振谱中左侧三个共振谷的中心频率。首先尝试使用方波脉冲驱动拉比振荡，如图 44 所示我们改变了各种不同的微波功率，但无法得到正常的余弦振荡。这是由于如果微波功率较小，那么对于三个能级跃迁不同的频率失谐影响较大，使得拉比振荡有严重的拍频现象。如果微波功率较大，则又会影响到光磁共振谱中右侧的共振谷，对其产生非共振激发激发。可见，方波脉冲很宽的类似 sinc 形式的自旋响应谱，使得同步驱动光磁共振谱左边三个能级而不干扰右边三个很困难。

之后我们按照图 46 的脉冲码型，进行了多次翻转的实验测试。首先用激光脉冲对氮空位中心电子自旋完成初始化，然后使用形状化脉冲或者方波 π 脉冲对光磁共振谱六个邻近共振谷中左侧的三个进行多次翻转操作，最后通过激光和计数器脉冲读出荧光信号并记录荧光参考值以确定电子自旋状态。逐渐增加翻转次数，重复以上实验过程记录自旋状态与翻转次数的关系。

利用前边进行的方波脉冲拉比振荡，确定了几种不同微波功率对应的方波 π 脉冲。之后使用这些不同长度的方波 π 脉冲分别进行了多次翻转的效果测试，选择了其中较好的三组数据展示在图 47 上图中。我们可以看到方波脉冲在进行了四五次翻转之后，振荡已经变得十分混乱。作为对比，我们又对 REBURP 形状化脉冲进行了多次翻转的效果测试，如图 47 下图所示。可以看到进行了

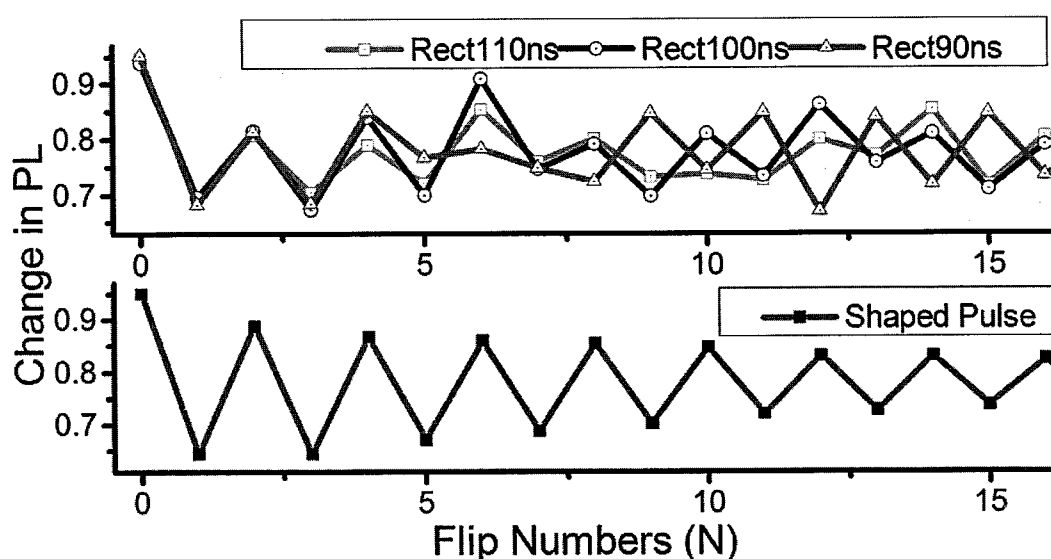


图 47 方波脉冲和形状化脉冲的多次翻转效果

上图，不同长度方波 π 脉冲多次翻转效果中相对较好的三组，但只进行几次翻转就变得混乱了。下图，REBURP 形状化脉冲的多次翻转效果，进行十六次以上仍然有规律振荡。

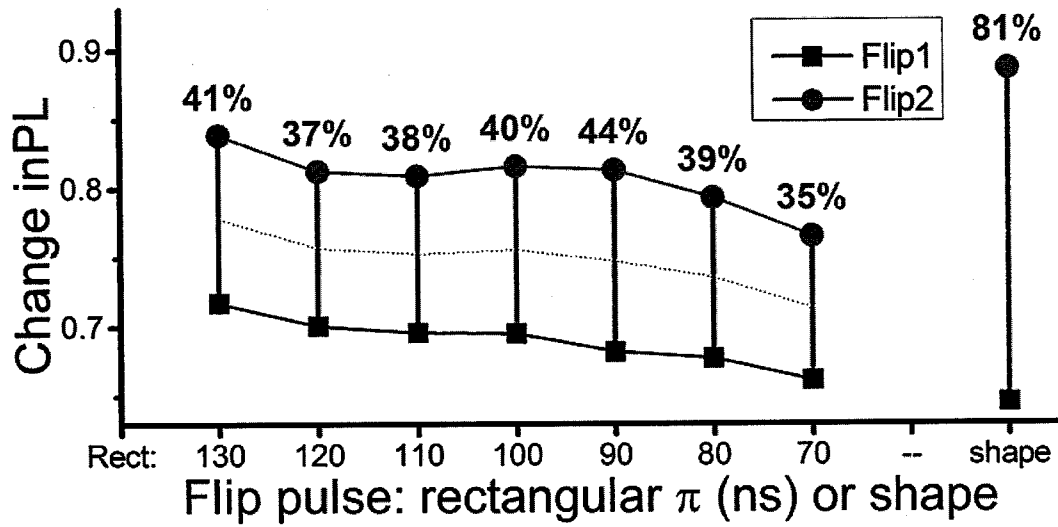


图 48 方波脉冲和形状化脉冲的二次翻转效率对比

红色圆形表示完成一次翻转后的系统状态 Flip1，黑色方形表示完成两次翻转后的系统状态 Flip2，它们之间的绿色线段体现了第二次翻转的相对翻转幅度，标注的百分比为相对于第一次翻转的相对幅度。

十六次以上的翻转后，振荡依然很有规律。方波脉冲与 REBURP 形状化脉冲的翻转效果形成了鲜明的对比。

为了定量的 REBURP 形状化脉冲对多次翻转操控保真度的提升效果，我们选择第二次翻转的效率作为一个典型值进行了比较。第二次翻转的翻转效率即相对翻转幅度，可以通过完成一次翻转后与完成两次翻转后的系统状态的差别来体现。我们将实验中测试的七种不同长度方波 π 脉冲与 REBURP 形状化脉冲的二次翻转效率一起放在图 48 中进行了对比。图中我们用红色圆形表示完成一次翻转后的系统状态，黑色方形表示完成两次翻转后的系统状态，它们之间的绿色线段体现了相对翻转幅度，标注的百分比为相对于第一次翻转的相对幅度。图中方波 π 脉冲的时间长度是连续选取的，我们可以看到无论哪种长度的方波脉冲其翻转幅度都要比形状化脉冲小的多。REBURP 形状化脉冲的二次翻转效率平均是方波 π 脉冲的两倍左右。

在本节多次翻转实验中，六个邻近共振谷的光磁共振谱情境，恰好是文献^[48]中所使用的实验环境。在那篇文章中，主要的实验误差即是控制脉冲的不完美造成的。通过本章实验，可以看到无论是在可持续翻转次数还是在二次翻转

效率方面，与传统的方波脉冲相比 REBURP 形状化脉冲都有明显的优势。根据我们的实验结果，利用形状化脉冲可以使多次操控保真度提高两倍以上。

4.6 小结

在本章中，我们介绍了一种可以用来提高操控保真度的技术，即 REBURP 形状化脉冲。我们通过在金刚石氮空位中心体系的实验验证了这一技术对保真度提升的效果。REBURP 形状化脉冲具有自聚焦、边带选择、响应一致、纯相位等许多优良特性。这种脉冲在一个选定的宽带激发区域内都有几乎一样的激发效果，区域之外则很好的抑制了非共振激发，过渡区域的上升沿下降沿也很陡直。我们通过频率扫描实验验证这些自旋响应特性。不仅如此，由于 REBURP 形状化脉冲具有响应一致性，其翻转效果不依赖于初始态，可以用于量子逻辑门等对未知量子态的相干操控。纯相位特性进一步降低了操控过程中的相位误差。由于只对微波信号的幅度进行调制，因此实验中只需要一套微波信号源和微波线路。这些特性使得 REBURP 形状化脉冲更易于实施，实验应用更稳健。在多次翻转实验中，无论是在可持续翻转次数还是在二次翻转效率方面，与传统的方波脉冲相比 REBURP 形状化脉冲都表现出了明显的优势。根据实验结果，利用形状化脉冲可以使多次操控保真度提高两倍以上。除了氮空位中心体系以外，这一通用技术可以被用于很多不同的物理体系。无论是在量子逻辑门的实施过程中，还是诸如利用动力学解耦技术进行量子探测等应用领域，REBURP 形状化脉冲都可以成为一个不错的选择。这一技术可以被广泛的应用于量子信息处理、量子度量学、量子探测等方面。³

³ 本章结果发表在: **Chang YC**, Xing J, Zhang FH, Liu GQ, Jiang QQ, Li WX, Gu CZ, Long GL, Pan XY*. "Band-selective shaped pulse for high fidelity quantum control in diamond". *Applied Physics Letters*, 104, 262403 (2014).

第五章 P1 电子自旋与 ^{13}C 核自旋环境的可控竞争

在这一章中，我们将展示一些金刚石氮空位中心集群的电子自旋相干性质的实验结果。从这些实验中我们观测到了 P1 电子自旋与 ^{13}C 核自旋两种自旋环境的可控竞争。之前的大部分工作中，其使用的金刚石样品一般只有一种主要的退相干源。比如对于氮浓度较高 Ib 型金刚石样品，其退相干主要源于 P1 电子自旋环境。而对于 IIa 型金刚石样品其氮浓度较低，一般认为 P1 电子自旋环境对其退相干的影响是可以忽略的，其退相干主要源于 ^{13}C 核自旋环境。在本章实验中我们选取的 IIa 型集群样品，其自旋回波（Hahn echo）信号有显著的周期性消失与重现（Collapse and revivals）现象，并且其相干时间（ T_2 ）可以达到 400 μs 。可见此时该样品的退相干确实受 ^{13}C 核自旋环境主导。但是进一步的实验发现，在特定的情况下 P1 电子自旋环境对该样品退相干的影响也可以变得非常突出。我们通过调节磁场大小或者施加改造过的自旋回波码型，当氮空位中心电子自旋与 P1 电子自旋共振时，样品的相干时间大幅下降到只有 140 μs 左右。因为此时 P1 电子自旋会与氮空位中心电子自旋同时被自旋回波码型中间的 π 脉冲所翻转，P1 电子自旋环境涨落不再能与 ^{13}C 核自旋环境一起被自旋回波码型消除掉。P1 电子自旋环境涨落对氮空位中心电子自旋退相干的影响在这个过程中得以保存下来，从而被凸显出来使我们看到了两种自旋环境的竞争。我们进一步的通过改造的自旋回波实验评估了 P1 电子自旋环境对该样品电子自旋退相干的贡献，另外我们还在另外一枚 IIa 型氮空位中心单点样品上也观测到了类似的自旋环境竞争现象。我们本章的实验结果和发现，对于金刚石氮空位中心系统的退相干机理给出了一些新的认识，并且有望推进氮空位中心集群等金刚石样品在量子信息处理、量子度量学等领域的广泛应用。

5.1 氮空位中心电子自旋退相干机理

作为量子信息处理、量子计量学、量子探测等应用的有力候选载体，金刚石氮空位中心近年来受到了人们的广泛关注。同时金刚石氮空位中心也是进行

自旋系统量子动力学过程研究的一种很好的固态体系平台^[42, 142]。氮空位中心是由金刚石晶格中一个替代了碳原子氮原子杂质和与之相邻的一个晶格空位构成的复合结构，电负性的氮空位中心是人们相关研究的主要对象。即使在室温下氮空位中心也可以表现出很长的相干时间^[143]，并且可以通过光学手段进行初始化和自旋状态的读出，可以利用微波脉冲进行量子态的操控。

因为具有很多独特的优势，集群氮空位中心被人们用于构成复合量子比特，精确的量子测量^[68, 144]以及磁场和活体细胞的成像^[69, 145-147]等。增加氮空位中心的数目可以大幅度的提高其与比如超导量子比特^[56-58, 147]、机械振子^[62, 148]等其他量子比特的耦合强度。数目巨大的氮空位中心由于大幅度增强了荧光强度，从而提高了各种测量的信号噪声比。前述的各种应用也要求氮空位中心具有很长的相干时间。然而，大数量的氮空位中心一般也意味着该样品会具有较高的氮杂质浓度，另外还会带来非均匀展宽等现象，这些都会降低样品的退相干时间。因此，深入理解自旋系统的退相干机制并大幅延长集群样品的自旋相干时间变得非常重要。

表格 2 已有工作不同样品退相干的主导性杂质

$N \text{ (cm}^{-3}\text{)}$	^{13}C	$T_2 \text{ (}\mu\text{s)}$	Dominating impurity	Ref
$\sim 10^{19}$	1.1%	2	^{14}N	Ref. ^[149] , ^[150]
$\sim 5 \times 10^{18}$	1.1%	5	^{14}N	Ref. ^[150]
$\leq 10^{17}$	1.1%	380	^{13}C & ^{14}N	Our Sample
$\sim 10^{16}$	1.1%	300	^{13}C	Ref. ^[149]
$\sim 5 \times 10^{15}$	1.1%	282	^{13}C	Ref. ^[142]
$\sim 10^{15}$	1.1%	630	^{13}C	Ref. ^[142] , ^[151]
$\sim 10^{17}$	0.01%	300	^{14}N	Ref. ^[149] , ^[150]
$\sim 10^{15}$	0.01%	~ 500	^{14}N	Ref. ^[143]

为了研究氮空位中心电子自旋的退相干机制，近年来人们做了大量的相关工作。这些工作主要都集中在中心自旋与周围自旋环境相耦合的模型。对于金刚石中的氮空位中心而言，其自旋环境主要由随机分布在金刚石晶体里的 ^{13}C 核自旋环境以及顺磁杂质构成^[42, 149]。这些自旋杂质在每个氮空位中心的周围形

成局域磁场（Overhauser field），这些局域磁场的涨落会导致中心电子自旋的迅速解相和退相干^[42]。以前的工作，根据其样品的不同可以大致分为三类。第一类样品其氮杂质浓度很高可以达到几百 ppm，相干时间（ T_2 ）很短可以低至只有几个微秒^[149, 150]，比如典型的 Ib 型样品或者氮离子注入过的样品。支配这种样品的退相干源为 P1 中心。而第二种样品的氮浓度足够低，从而 ^{13}C 核自旋成为其电子自旋退相干的主要原因^[142, 149, 151]。比如典型的 IIa 型金刚石样品，其氮杂质浓度一般远小于 1 ppm，相干时间可以达到几百微秒。前边的两种类型

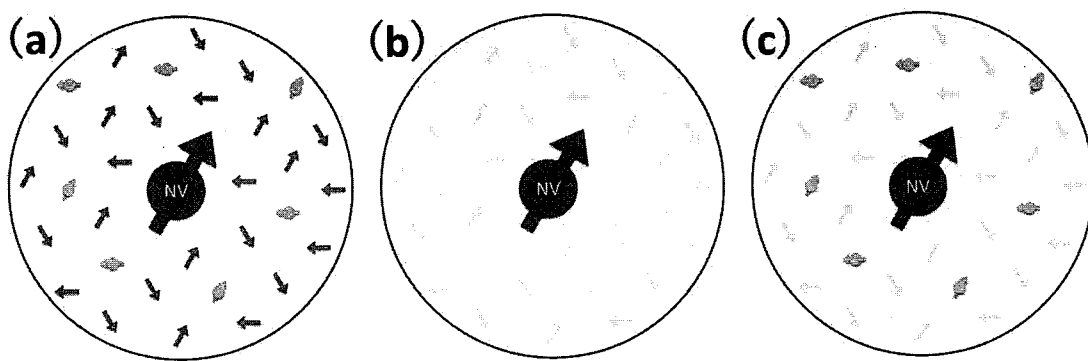


图 49 氮空位中心自旋临近不同自旋环境竞争示意图

(a) 在 IIa 型金刚石样品中，一般来说氮空位中心电子自旋的主导性的退相干源是 ^{13}C 核自旋环境（绿色箭头）。与此同时，氮空位中心周围也有一些顺磁中心，比如具有一个未成对电子的氮杂质（P1 中心，橙色箭头）。(b) 准静态噪声的影响可以被自旋回波或者其他动力学解耦技术所消除，相干时间 T_2 因此得到了延长。(c) 如果使 P1 自旋环境的准静态噪声在自旋回波码型操作的过程中保持不变，那么此时氮空位中心电子自旋的退相干主要原因将变为 P1 中心。

的样品中都含有 1.1% 自然丰度的 ^{13}C 同位素。另外的第三种金刚石样品，虽然其氮杂质浓度与第二种样品差不多，并不像第一种样品那么高，但是通过同位素工程技术降低了 ^{13}C 同位素含量（可以达到 0.01%）^[143, 149, 150]。对于这一类样品他们的中心电子自旋退相干也源于 P1 中心。

在上述的大部分工作中一般都只有一种支配性的退相干源。在本章中我们发现，无论是 ^{13}C 核自旋还是 P1 中心自旋环境在我们所用样品的退相干中都不能被忽略并存在相互竞争。这枚样品是来自 E6（Element 6）公司的一枚典型 IIa 样品，含有 1.1% 自然丰度的 ^{13}C 同位素，氮杂质浓度则小于 1 ppm。对于这种纯净金刚石样品，一般认为其电子自旋的退相干是由 ^{13}C 核自旋环境所主导的，P1 中心自旋环境通常认为可以忽略。然而我们发现当 ^{13}C 核自旋环境的作用

用被自旋回波脉冲码型消除的情况下, P1 中心自旋环境的影响有可能变得非常显著。当 ^{13}C 核自旋环境与 P1 中心自旋环境同时存在时, 自旋环境与中心自旋的相互作用会导致氮空位中心电子自旋的相干时间很短。借助自旋回波或者其他动力学解耦技术, 使环境中大部分准静态噪声与中心电子自旋解开耦合, 从而两种自旋环境的涨落都可以得到压制获得较长的相干时间。然而, 如果选择性的让某一种自旋环境与中心自旋的相互作用, 可以不被动力学解耦脉冲码型解开, 那么我们可以观测到与之前不同的实验现象。此时的相干时间会介于前面两种情况之间。

5.2 IIa 型集群金刚石样品的基础性质

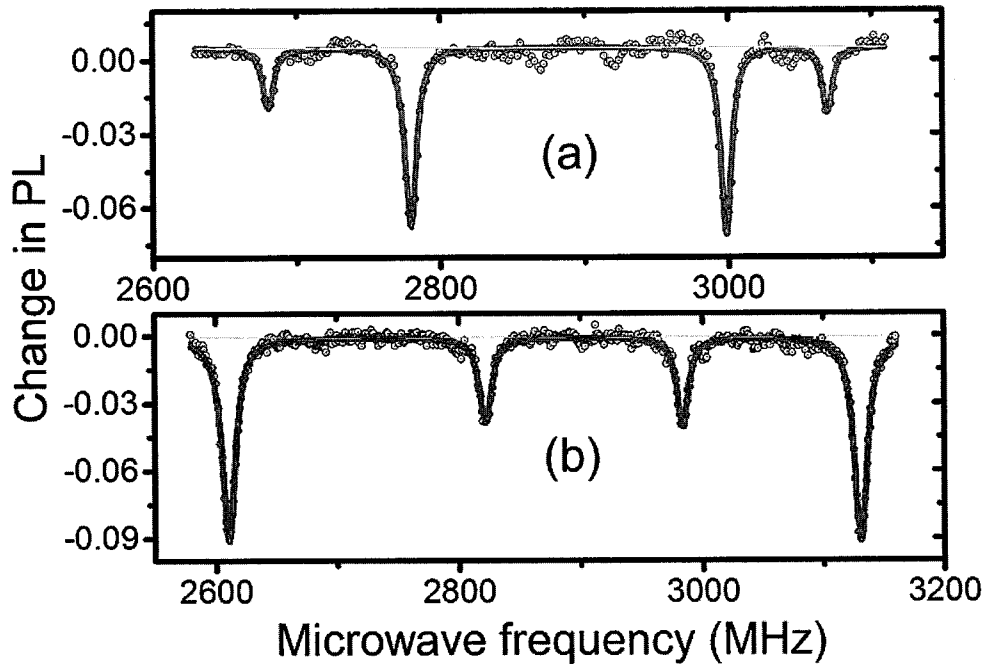


图 50 具有取向倾向性的不同光磁共振谱

对于氮空位中心集群样品, 光学探测磁共振谱最外侧两个共振谷, 对应沿外磁场所所在晶向的氮空位中心, 靠近内侧的两个共振谷对应沿不与外磁场平行的另外三个晶向的氮空位中心。(a) 当外磁场沿某些金刚石晶轴取向时的光磁共振谱, 此时四个共振谷中内侧的两个共振谷深度较深。(b) 当外磁场沿另外的某些金刚石晶轴取向时的光磁共振谱, 此时四个共振谷中外侧的两个共振谷深度较深。仅对应一个取向的共振深度, 深于对应另外三个取向的共振深度, 表明在前述取向的氮空位中心数目更多, 该样品中的氮空位中心分布具有取向倾向性。

我们的实验是使用我们自主搭建的激光共聚焦系统来实施的。在 3 mW 的激光激发下，我们所使用的氮空位中心集群样品的典型荧光强度是每秒钟一千万次光子计数左右。我们系统的激光光斑有效半径在 300 nm 左右，共聚焦系统的有效收集深度范围大概在 2.5 μm 。由此通过高斯轮廓进行拟合可以计算出，我们所使用系统光子收集的有效范围在 0.7 μm^3 。而该系统上对平面结构氮空位中心单点，不同晶格取向和激光偏振条件下的平均光子收集为每秒钟三万次计数。根据典型荧光强度，有效光子收集范围和平均氮空位中心单点光子数，我们评估得到的该集群样品氮空位中心浓度预计在 $10^{14}/\text{cm}^3$ 。

通过施加外部磁场消除电子自旋 $m_s = +1$ 与 $m_s = -1$ 的能级简并，然后进行光学探测磁共振 (ODMR) ^[19, 95] 测试。对于氮空位中心集群样品，如果外磁场没有对准金刚石的任何晶轴取向，那么对于四种不同取向的氮空位中心外磁场的夹角一般都是不同的。(存在特殊磁场取向，使外磁场与各晶轴取向的夹角相同。) 有效磁场大小也因此不同，从而造成塞曼劈裂大小不同，此时我们在光磁共振谱中一般会看到八个共振谷的存在。精确调节外磁场的方向，使外磁场对准金刚石的一个晶轴取向，此时对于另外三个晶轴取向来说，他们与外磁场的夹角相同。因而在光磁共振谱中会看到四个共振谷的存在。因为对于沿外磁场所在晶向的氮空位中心，有效磁场最大造成的塞曼劈裂也最大，因此它们

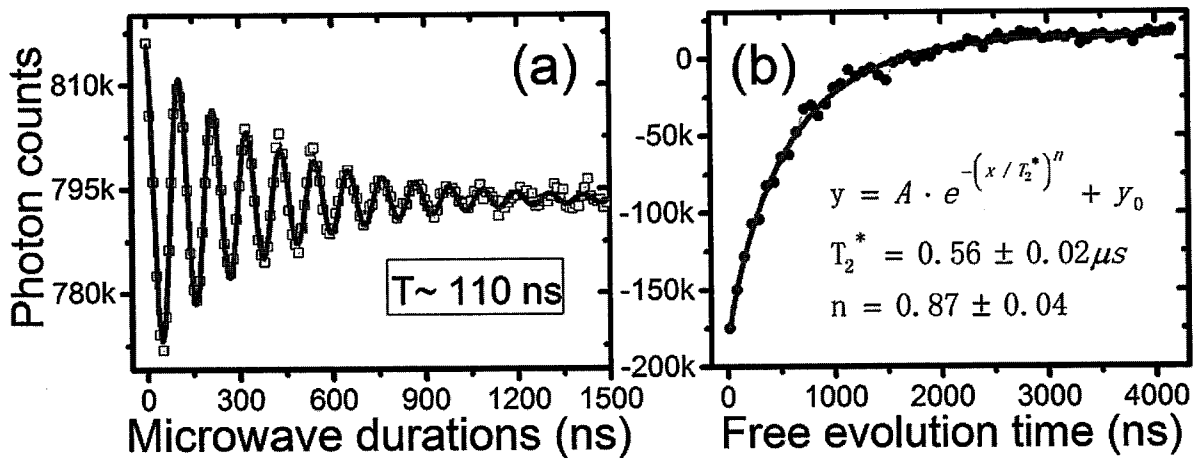


图 51 51 Ia 型集群样品的拉比振荡和自由感应衰减实验曲线

(a) 所使用的集群样品的拉比 (Rabi) 振荡信号曲线，图中振荡周期为 110 纳秒左右，振荡轮廓衰减较快。(b) 样品的自由感应衰减 (FID) 信号曲线，样品的解相时间 T_2^* 在 560 纳秒左右。

对应光磁共振谱中最外侧两个共振谷。而靠近内侧的两个共振谷则对应沿不与外磁场平行的另外三个晶向的氮空位中心。一般来说由于对应三个取向的氮空位中心，靠近内侧的两个共振谷应该是最外侧两个共振谷深度的三倍左右，类似于图 50 (a) 所示。然而在我们的样品中，我们发现当外磁场对准某些晶格取向时，光磁共振谱会如图 50 (b) 所示，即对应一个晶轴取向的共振谷可以比对应另外三个取向的共振谷还要深两倍左右。可见该取向的氮空位中心数目是比较多的，可能多于其他晶格取向。我们判断该样品中氮空位中心是具有取向倾向性的^[152]。为了充分的利用这一特性，我们将外磁场方向精确对准某种氮空位中心数量较多的晶轴取向，同时辅助调节激发光的偏振取向，以便使最外侧的共振谷深度达到最深，这样可以提高后续实验的光学读取对比度和微波操控灵敏性。

氮空位中心电子自旋的退相干一般来说可能由自旋轨道耦合的声子散射，顺磁杂质的相互作用，核自旋的超精细作用以及非均匀热展宽。为了研究我们样品的退相干性质，我们对其进行了一些基础测量。脉冲光磁共振谱的半高全宽（full width at half maximum, FWHM）在 0.7 MHz。这比一般 IIa 型样品的氮空位中心单点的线宽（0.2 MHz）要大一些，表明在氮空位中心集群样品中

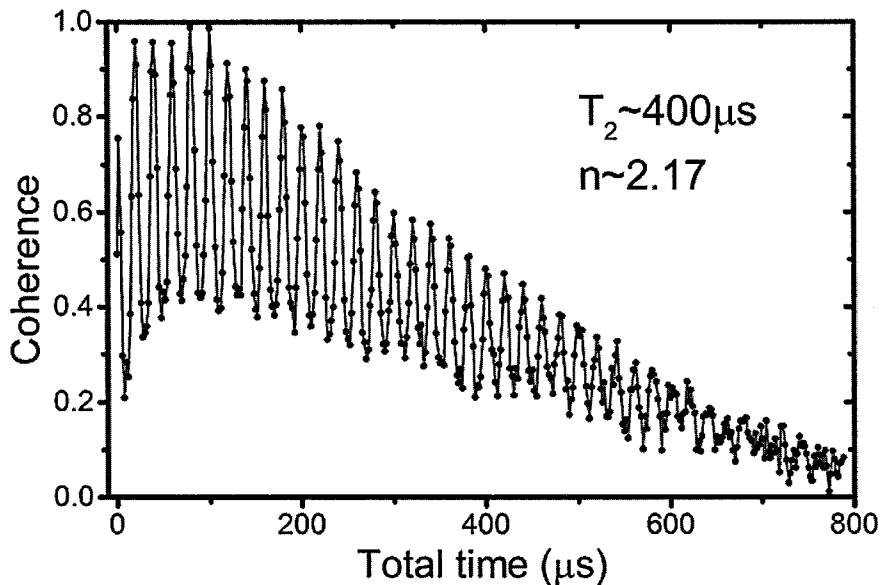


图 52 IIa 型集群样品的自旋回波实验曲线

通过测量所使用样品的自旋回波（spin echo）实验曲线得到的该样品的相干时间 T_2 可以达到 400 微秒左右，而且曲线中可以看到清晰的周期性消失与重现现象（collapses and revivals）。

非均匀展宽要更大一些。该样品的拉比振荡外轮廓衰减也要比氮空位中心单点的快许多, 从该样品的自由演化衰减信号得出的退相干时间 (T_2^*) 大概在 0.5 微秒, 而氮空位中心单点的退相干时间 (T_2^*) 可以到两个微秒。总体来看, 金刚石集群样品中氮空位中心的浓度较高, 不同氮空位中心之间的非均匀展宽是导致该样品退相干时间 (T_2^*) 较短和拉比振荡外轮廓衰减较快的主要原因。

5.3 P1 电子自旋与 ^{13}C 核自旋环境的竞争现象

由于准静态的热噪声可以通过自旋回波来消除, 我们对该样品施加自旋回波脉冲码型来进一步研究其退相干性质。在小磁场下该样品的相干时间 (T_2) 可以达到四百多微秒, 这一结果与参考文献^[142]中是吻合的。在自旋回波信号轮廓中可以观察到明显的消失和重现现象 (collapses and revivals), 这一现象是由于 ^{13}C 核自旋环境在外磁场下的拉莫尔进动所引起的。明显的消失和重现现象表明这枚样品的 ^{13}C 的丰度足够高, 对氮空位中心电子自旋退相干的影响是非常显著的。一般来讲, 典型的 IIa 型金刚石样品的退相干是由与 ^{13}C 核自旋环境超精细相互作用所主导的, 而不像 Ib 型样品那样是由比如氮电子自旋等顺磁杂质主导^[42]。较长的相干时间 (T_2) 以及明显的周期性消失与重现现象是与典型

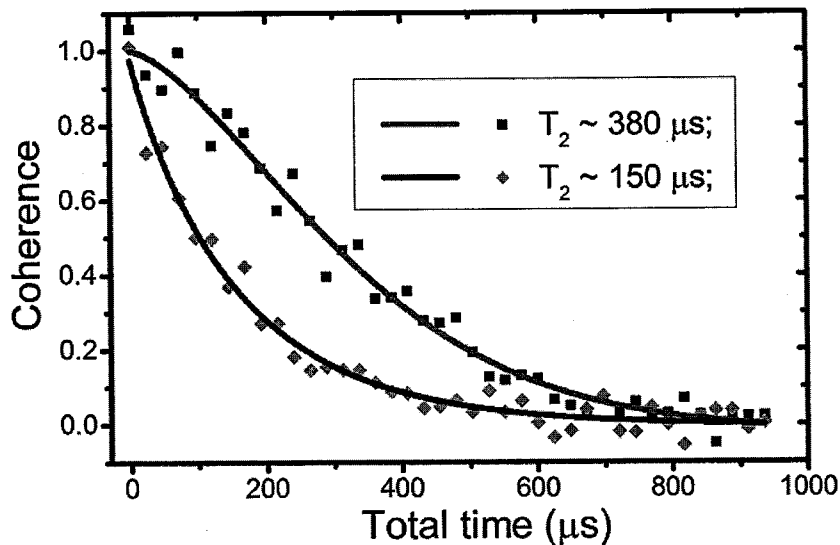


图 53 不同磁场下 IIa 型集群样品的自旋回波实验曲线

在大部分磁场下, 由自旋回波实验测得的该集群样品的相干时间 T_2 可以达到 400 微秒左右, 但是在某些磁场下相干时间 T_2 可以掉到 150 微秒左右, 衰减近 60% 以上。

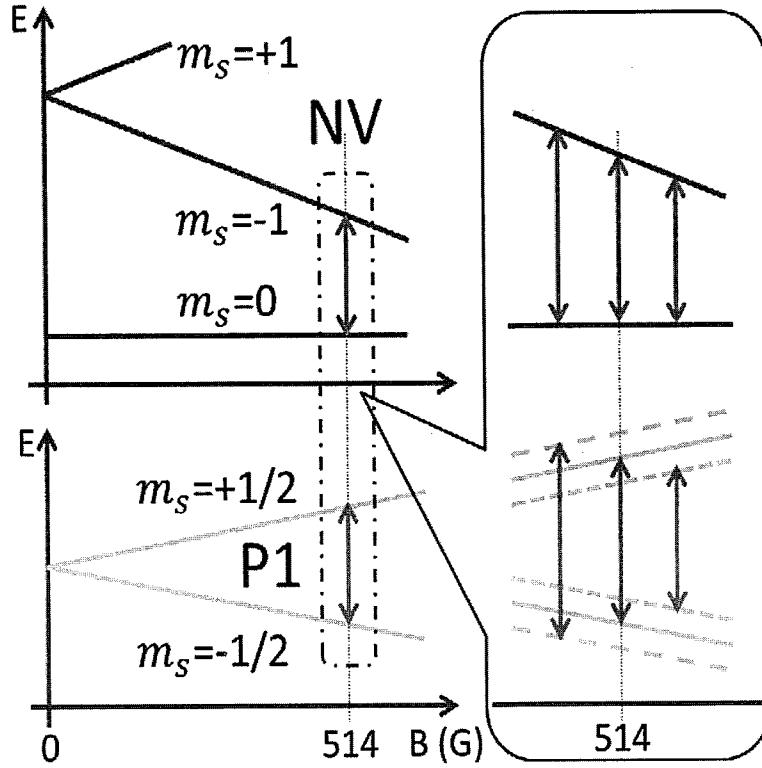


图 54 氮空位中心、P1 中心能级结构与磁场的关系

氮空位中心电子自旋为 1，零磁场下能级 $m_s = 0$ 与能级 $m_s = \pm 1$ 存在 2.87 GHz 左右的零场劈裂 D，随着磁场增大由于塞曼效应 $m_s = +1$ 与 $m_s = -1$ 会逐渐劈裂开， $m_s = 0$ 与 $m_s = -1$ 的能级差会逐渐缩小。P1 中心电子自旋为 1/2，零磁场下能级 $m_s = \pm 1/2$ 简并，随着磁场增大由于塞曼效应 $m_s = +1/2$ 与 $m_s = -1/2$ 会逐渐劈裂开，它们间的能级差会逐渐增大。当外磁场增大到一定值时，氮空位中心 $m_s = 0$ 与 $m_s = -1$ 间的能级差可能恰好与 P1 中心自旋 $m_s = +1/2$ 与 $m_s = -1/2$ 间的能级间隔相匹配即氮空位中心与 P1 中心发生共振。插图中由于超精细相互作用，P1 中心的每一个能级劈裂为三个子能级，相应的会出现三个共振的磁场位置。

的 IIa 型金刚石样品结果一致的。 ^{13}C 核自旋环境造成的局域磁场（Overhauser field）涨落是中心电子自旋退相干的主要原因。

然而在进一步的实验中我们发现当外磁场在 500 高斯附近某些特定值时，该样品的自旋回波信号外轮廓会有急剧的变化。相干时间 (T_2) 会从 400 微秒掉到 150 微秒衰减近 60%，这表明在该情况下中心自旋周围的自旋环境有显著的不同。之前曾有关于在类似磁场下荧光强度^[153, 154]、 ^{14}N 极化度^[155]、拉比振

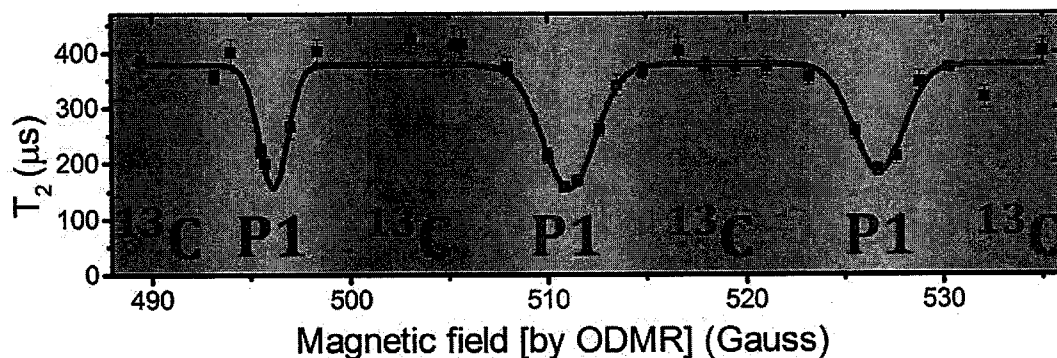


图 55 IIa 型集群样品相干时间 T_2 随磁场大小的变化关系

对磁场大小进行精确扫描，同时施加自旋回波脉冲码型测量相干时间 T_2 。当磁场大小为 P1 中心自旋与氮空位中心自旋共振的一些值时，可以观察到相干时间 T_2 60% 以上的大幅度下降。图中橙色区域当出现相干下降时，氮空位中心电子自旋的主要退相干源是 P1 中心自旋环境。图中绿色区域的其他情况下，退相干的主要原因是 ^{13}C 核自旋环境。

荡衰减^[154]以及 T_1 衰减^[156]等方面发生变化的工作。这其中的大部分变化是由于氮空位中心与 P1 中心自旋间相互作用引起自旋交换造成的^[157, 158]。

氮空位中心与 P1 中心自旋的哈密顿量分别如下所示^[153]：

$$H_{\text{NV}} = D(S_z^{\text{NV}})^2 + \gamma_{\text{NV}} B S_z^{\text{NV}}$$

$$H_{\text{P1}} = \gamma_{\text{N}} B S_z^{\text{N}} + A S^{\text{N}} \cdot I^{\text{N}}$$

其中 $\gamma_{\text{NV}} \approx \gamma_{\text{N}}$ 是氮空位中心和 P1 中心自旋的旋磁比， S^{NV} 和 S^{N} 是两者的电子自旋运算符， I^{N} 是氮原子的核自旋运算符。氮空位中心和 P1 中心的能级结构与磁场强度 B 的关系如图 54 所示^[153]，氮空位中心的 $m_s = +1$ 与 $m_s = -1$ 能级由于塞曼效应而劈裂开， $m_s = 0$ 与 $m_s = -1$ 的能级差会随着磁场增大逐渐缩小。P1 中心自旋为 $1/2$ ，其 $m_s = +1/2$ 与 $m_s = -1/2$ 能级由于塞曼效应也劈裂开，两能级间的能级差随着磁场增大会逐渐增大。随着磁场强度增大，当磁场大小为某些值时氮空位中心 $m_s = 0$ 与 $m_s = -1$ 间的能级间隔可能恰好与 P1 中心自旋 $m_s = +1/2$ 与 $m_s = -1/2$ 的能级间隔相匹配而共振。由于 P1 中心自旋的超精细结构，P1 中心自旋的每一个能级会劈裂为三个子能级，相应的符合以上共振条件的磁场值会有三个。

我们对磁场大小进行精确扫描，同时在每个磁场下施加自旋回波脉冲码型。利用指数拟合公式 $y = y_0 + A \cdot e^{-(t/T_2)^n}$ 从自旋回波信号中求得相干时间 T_2 。然后将相干时间 T_2 与磁场强度 B 的关系如图所示，当外磁场被调节到氮空位中

心与 P1 中心共振的三个磁场大小时，相干时间 T_2 会急速下降。由于此时氮空位中心与 P1 中心具有相同的共振微波频率，他们的旋磁比又是几乎相等的，因此 P1 中心自旋可以与氮空位中心电子自旋一起被微波的 π 脉冲所翻转。也就是说当能级劈裂大小相互匹配时，P1 中心自旋与氮空位中心自旋会被同步翻转，导致 P1 电子自旋环境的影响不再能被自旋回波脉冲码型所压制。在这种共振的情况下，自旋回波的脉冲码型将只能压制 ^{13}C 核自旋环境涨落造成的影响。此时由于 P1 自旋环境的影响造成自旋回波测量中得到的相干时间 T_2 大幅衰减。因此，在氮空位中心与 P1 中心自旋共振的时候，即使氮浓度比较低，P1 中心自旋环境也可以对相干时间 T_2 产生很大幅度的影响。

5.4 P1 电子自旋与 ^{13}C 核自旋环境竞争的机理

为了进一步验证这一现象的机理，我们设计并实施一项新的实验。如图 56 所示，我们在自旋回波脉冲码型中原有的 π 脉冲的位置额外再添加一其他频率 π 脉冲并同时施加。我们首先将磁场固定在 P1 中心与氮空位中心自旋不共振的大小。对外加 π 脉冲的频率进行扫描的同时，利用改造过的自旋回波脉冲来测量样品在这种情况下的相干时间 T_2 。我们将测量出的相干时间 T_2 与外加 π 脉冲频率的关系画在图 57 中。当外加 π 脉冲的频率调制到对应某个 P1 中心自旋能级劈裂的位置时，相干时间 T_2 会大幅下降。我们一共观测到了五个相干时间 T_2 下降的谷。这是因为 P1 中心的取向也是沿着金刚石的晶轴方向，其中有的 P1 中心沿着目前外磁场所在的 111 晶向，另外一些 P1 中心沿着另外三个晶

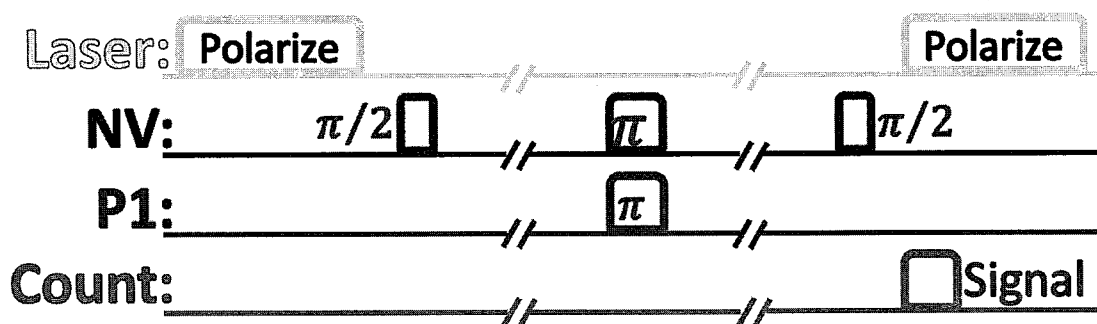


图 56 改造过的自旋回波脉冲码型

在自旋回波脉冲码型中原有的 π 脉冲的位置额外再添加一其他频率 π 脉冲并同时施加。

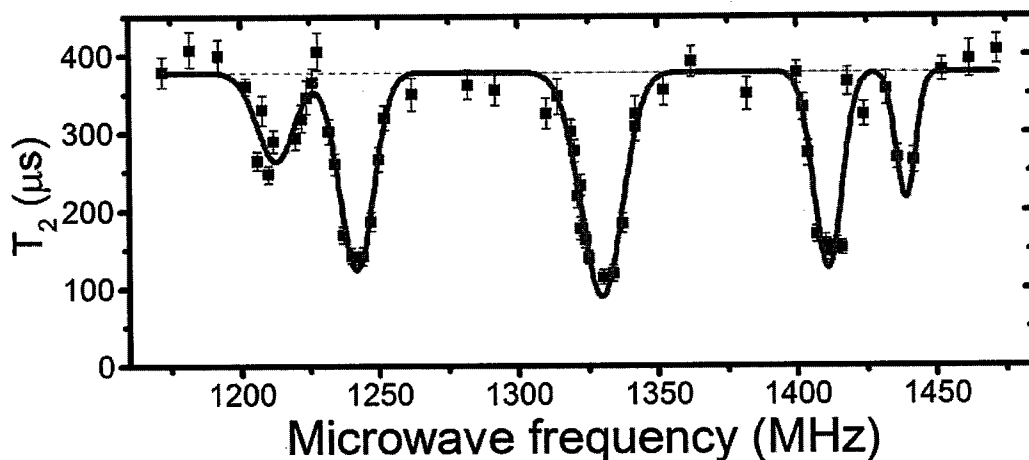


图 57 相干时间与外加微波脉冲频率的关系

固定磁场为 P1 中心与氮空位中心自旋不共振的大小，利用改造过的自旋回波脉冲来测量的相干时间 T_2 与外加 π 脉冲频率的关系画在图中。

向并且这三个非 111 方向与 111 的夹角是相同的。111 方向 P1 中心与非 111 方向的能级劈裂系数是不同的，劈裂的中心频率相同，对应图中中间的谷。最外侧两个较浅的谷对应 111 方向的 P1 中心，次外侧两个较深的谷则对应三个非 111 方向的 P1 中心。

我们这里使用的改造后的自旋回波脉冲与自旋回波双共振 (spin echo double resonance, SEDOR) ^[159] 的方案类似，我们由此可以计算氮空位中心自旋与 P1 中心自旋之间的耦合强度 (b_{P1})。先通过图 57 中每个谷利用关系 $(b_{P1})_i/\sqrt{2} = 1/(T'_2)_i$ 计算每个谷对应的耦合强度 $(b_{P1})_i$ ，其中 $(T'_2)_i$ 为每个谷位置由改造后自旋回波脉冲测量出的相干时间^[159]。总的氮空位中心自旋与 P1 中心自旋之间的耦合强度 (b_{P1}) 再按照关系 $b_{P1} = \sqrt{\sum (b_{P1})_i^2}$ 计算得到的值为 $0.024 \mu\text{s}^{-1}$ 。^[159]而氮空位中心与整个环境的耦合强度 (b_{total}) 按照关系 $b_{total}/\sqrt{2} = 1/T_2^*$ 从自由演化衰减实验中得到的值为 $2.52 \mu\text{s}^{-1}$ 。由此可见 P1 中心自旋的影响占整个环境的影响只有 1% 左右。 ^{13}C 核自旋环境贡献了整个自旋环境影响的主要部分。尽管 P1 中心的浓度很低，但是当 ^{13}C 核自旋环境的影响被自旋回波脉冲码型或者其他动力学解耦技术消除以后，P1 中心自旋的影响是不能被忽略的。通过相干时间 T_2 的降低反映出了 ^{13}C 核自旋环境与 P1 中心自旋环境间的竞争，并且这一竞争可以通过改变磁场或者施加额外的 π 微波脉

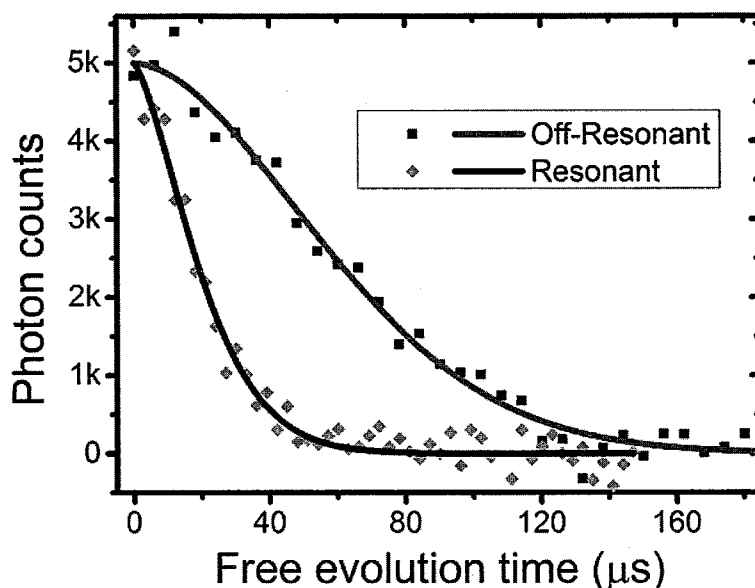


图 58 氮空位中心单点的自旋环境竞争现象

P1 中心自旋与氮空位中心自旋共振和非共振两种情况下, 不同的自旋回波信号外轮廓。

冲来控制。当相干时间 T_2 的出现降低时, 氮空位中心电子自旋退相干的主要原因是 P1 中心自旋, (图 55 中的橙色区域)。相反的其他情况下 (图 55 中的绿色区域), ^{13}C 核自旋环境是氮空位中心电子自旋退相干的主要原因。

为了进一步的研究 ^{13}C 核自旋环境与 P1 中心自旋环境间的可控竞争过程, 验证该现象是否为普遍性现象, 我们在一个氮空位中心的单点上进行了类似的实验。我们所研究的氮空位中心单点是在一块来自 Sumicrystal 公司的 IIa 型金刚石样品中。图 58 中给出了 P1 中心自旋与氮空位中心自旋共振和非共振两种情况下, 氮空位中心电子自旋不同的自旋回波信号外轮廓。我们可以从中看出, P1 中心自旋也可以对氮空位中心单点的相干时间产生显著的影响, 影响程度可以超过 50% 以上。

5.5 小结

综上所述, 本章对 IIa 型金刚石样品中氮空位中心特别是集群氮空位中心的电子自旋退相干机理的进行了一定的实验研究。实验中样品较长的相干时间 T_2 和明显的周期性消失和重现现象表明 ^{13}C 核自旋环境的局域磁场(Overhauser

field) 涨落对该样品氮空位中心电子自旋的退相干影响是很大的。但当 P1 中心自旋与氮空位中心电子自旋的能级劈裂恰好彼此匹配时, P1 中心自旋可以与氮空位中心电子自旋一起同步被自旋回波脉冲码型中的 π 脉冲所翻转。在这种共振情况下, 自旋回波脉冲码型只能压制 ^{13}C 核自旋环境的涨落的影响, 而不再能压制 P1 中心自旋环境的影响。此时由于 P1 自旋环境的影响造成自旋回波测量中得到的相干时间 T_2 大幅衰减。尽管评估出的氮空位中心自旋与 P1 中心自旋环境间的相互作用强度大概只占整个环境的百分之一左右, 但是通过改变外磁场大小或者施加额外的控制脉冲, 我们可以观测到自旋环境可控竞争。我们还进一步在日本 Sumicrystal IIa 型金刚石样品的氮空位中心单点上观察到了类似的自旋环境竞争现象。我们的实验结果显示即使在 IIa 型样品中无论是氮空位中心集群还是单点, P1 中心自旋的影响也可以在某些情况下变得很显著而不可忽略。这一实验结果促进我们进一步认识氮空位中心系统的退相干机制。对该实验现象的研究将会对氮空位中心特别是集群氮空位中心的各方面应用产生帮助, 比如耦合氮空位中心与超导量子比特的复合量子比特系统以及弱磁场探测等领域。⁴

⁴ 本章结果目前二轮审稿中: Chang YC, Wang N, Liu GQ, Pan XY*. Controllable competition between P1 center electron spin and ^{13}C nuclear spin in diamond.

第六章 金刚石中氮空位中心电子自旋相干性的集聚增强

在这一章中，我们展示了通过窄带激发实现氮空位中心集群电子自旋相干性大幅度延长。由于可以为量子腔、超导量子比特等其他量子系统提供可控耦合，并且有希望作为量子寄存器成为量子中继器的重要组成部分，固态体系中的集群自旋近年来受到了人们的广泛关注。对集群自旋中特定成分进行选择集聚的频谱技术，成为了完整的利用集群自旋优势的一方面需求。在这一章中，我们提出了一套通过利用选择性脉冲来对集群自旋进行相干时间集聚延长的方案，并且在氮空位中心集群系统进行了实验实施。在这一实验中，选择性脉冲在两个层面发生作用，一方面它消除了不同氮空位中心之间的非均匀效应，另一方面也消除了每个氮空位中心自身周边 ^{13}C 核自旋环境的非均匀展宽。我们研究了电子自旋的退相干时间 T_2^* 与选择性脉冲的关系。我们观察到退相干时间 T_2^* 可以达到几十倍的大幅度增长，并且这一增长过程是与选择性脉冲长度正相关的。这一相干性增强方案提供了一条新的获得长相干时间的途径，它充分利用了集群自旋的集聚效应。这一研究将有助于于集群自旋的应用过程，比如量

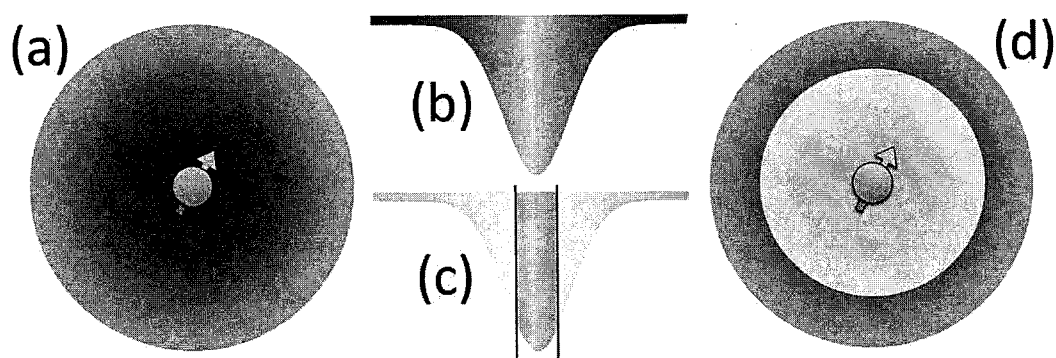


图 59 中心自旋的非均匀展宽示意图

(a) 在纯净金刚石中，由随机分布的 ^{13}C 核自旋等构成的自旋环境是中心电子自旋退相干的主要原因。(b) 自旋环境的热涨落和量子涨落等，会导致氮空位中心电子自旋的非均匀展宽。。如果从中心自旋的整个谱中选取一个较窄的范围 (c)，将会对应自旋环境中与中心自旋耦合较弱的部分 (d)。

子信息处理、量子度量等。

6.1 相干性集聚增强的研究背景和基本原理

固态自旋集群系统近来成为非常具有吸引力的量子信息、高灵敏度测量等的应用平台，比如像金刚石中氮空位中心就是其中一种。由于与周边自旋环境的耦合比较弱，因此这类体系一般都表现出很长的相干时间。它们因此也成为对于其他可快速操作量子系统很优秀的量子寄存器，比如超导量子比特^[56-58, 147]，机械振子^[62, 148]等系统。另外金刚石氮空位中心可以很方便地通过光学方法实现初始化，并且可以实现对自旋状态的高保真度读取。由于这些优点，氮空位中心集群样品已被用于精确磁场探测^[67, 68, 144]、活细胞成像^[69, 145, 146]等领域。

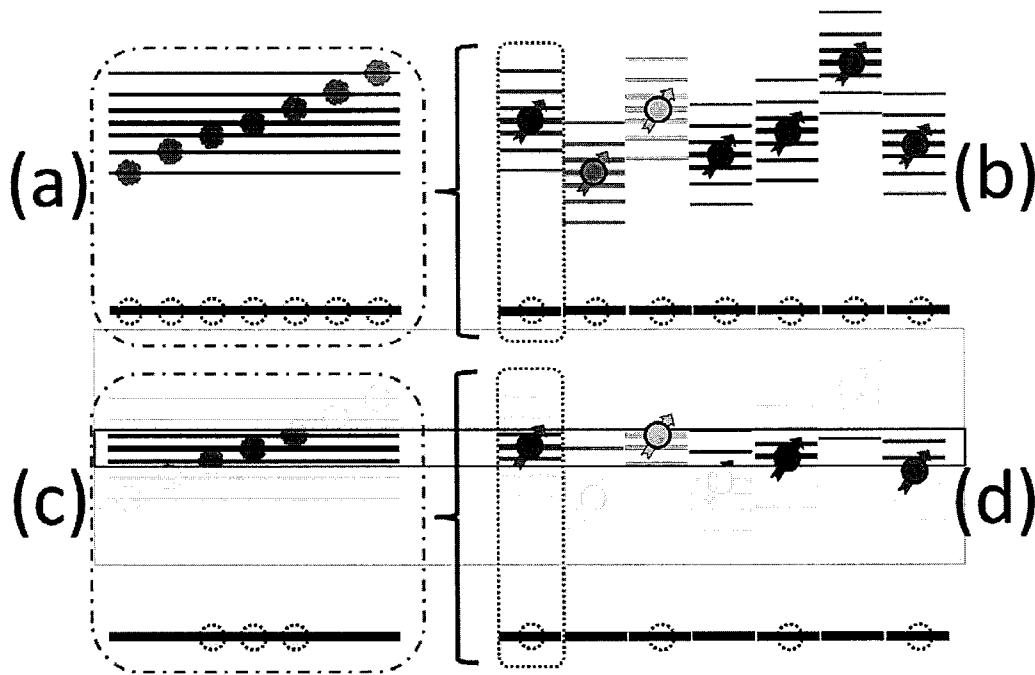


图 60 相干性集聚增强的原理示意图

(a) 周边自旋环境的热涨落和量子涨落等，会导致氮空位中心电子自旋的非均匀展宽。(b) 集群样品中由于每一个单独的氮空位中心，其周边的自旋环境及其涨落会相差很大。伴随自旋数目的提高，一般会同时带来更大的非均匀展宽。通过使用弱微波功率 π 脉冲进行窄带激发，(c) 不但可以压制氮空位中心单点非均匀展宽效应的影响，(d) 还可以进一步的压制每个不同的氮空位中心之间差异造成的展宽效应。

在纯净金刚石中，由随机分布的 ^{13}C 核自旋等构成的自旋环境是中心电子自旋退相干的主要原因（图 50（a））。自旋环境的热涨落和量子涨落等，会导致氮空位中心电子自旋的非均匀展宽（图 51（a））。对于集群应用而言，为了提高与目标量子系统的耦合强度，以及提高信号噪声比，需要较大数目的单个自旋^[57]。但由于每一个单独的氮空位中心，其周边的自旋环境及其涨落会相差很大，（图 51（b））所以伴随自旋数目的提高，一般会同时带来更大的非均匀展宽，（图 50（b））并导致自旋集群相干时间的降低。在这种情况下，我们有必要寻找方法来选择并集聚某些特定的自旋，使其在增强与其他系统耦合强度的同时依然保持较长的相干时间。

我们注意到如果从中心自旋的整个谱中选取一个较窄的范围（图 50（c）），将会对应与中心自旋耦合的部分特定类型自旋环境（图 50（d））。受此启发，我们提出了一项利用窄带激发来压制非均匀展宽效应从而延长相干时间的方案。通过使用弱微波功率 π 脉冲进行窄带激发，可以选择性的驱动与特定类型自旋耦合的中心自旋。窄带选择性激发可以压制氮空位中心单点非均匀展宽效应的影响（图 51（c）），原则上对于氮空位中心单点这是有效的。但对于单点而言，窄带选择的过程中，信号幅度会大幅度降低甚至会导致无法实际应用。此时，集群的优势体现出来，由于自旋数目增加，信号幅度可以得到大幅度提高。同时，窄带选择脉冲会在新的层面发挥作用，即它可以进一步的压制每个不同的氮空位中心之间差异造成的展宽效应（图 51（d））。我们研究了样品电子自旋的退相干时间 T_2^* 域选择性 π 脉冲长度之间的关系。当使用较长的选择脉冲时，我们在实验上观察到了显著的退相干时间 T_2^* 延长，可以达到几十倍。

6.2 实验体系介绍

我们用来实施相干性集聚增强方案的体系还是金刚石负电性的氮空位中心，如前几章所述，它是由金刚石晶格中一个取代碳原子后的氮原子以及与之相邻的晶格空位构成的复合结构。

6.2.1 氮空位中心的非均匀展宽效应

氮空位中心的电子自旋为 1，其基态为三能级： $m_s = 0, \pm 1$ 。金刚石晶格中除了含有大部分自旋为 0 的 ^{12}C 原子核，还有很多随机分布自旋为 1/2 的 ^{13}C

原子核（自然丰度为 1.1%）。由于氮空位中心电子自旋会与 ^{13}C 核自旋 $\{I_i\}$ 产生耦合，所以整个系统的完整哈密顿量可以写作^[42]：

$$H = H_{NV} + H_{bath} + H_{int}$$

在外磁场 $\mathbf{B}$ 下，氮空位中心，自旋环境各自的哈密顿量以及两者之间的超精细相互作用项可以写作^[87]：

$$\begin{aligned} H_{NV} &= -\gamma_e \mathbf{B} \cdot \mathbf{S} + \Delta S_z^2, \\ H_{bath} &= -\gamma_c \mathbf{B} \cdot \sum_i \mathbf{I}_i + H_{dip}, \\ H_{int} &= \mathbf{S} \cdot \sum_i \mathbf{A}_i \cdot \mathbf{I}_i = \mathbf{b} \cdot \mathbf{S}, \end{aligned}$$

上述表达式中 γ_e 和 γ_c 分别是电子自旋和 ^{13}C 核自旋的旋磁比， $\Delta = 2.87 \text{ GHz}$ 是电子自旋能级 $m_s = 0$ 与 $m_s = \pm 1$ 之间的零外磁场劈裂大小。 H_{dip} 是 ^{13}C 核自旋之间的偶极相互作用项， $\mathbf{A}_i$ 是第 i 个 ^{13}C 核自旋的超精细相互作用张量。 $\mathbf{b}$ 是由自旋环境与中心电子自旋耦合提供的有效磁场。由于自旋环境的热分布以及量子演化，有效磁场 $\mathbf{b}$ 的涨落会导致中心电子自旋的退相干。环境中自旋状态的一种热分布状态 $|j\rangle$ 对应中心自旋一个随机的局域场（Overhauser field） $\mathbf{b}_j$ 。热分布状态 $|j\rangle$ 的涨落带来局域场（Overhauser field） $\mathbf{b}_j$ 的不同而造成中心自旋非均匀展宽。局域场（Overhauser field） $\mathbf{b}_j$ 的随机涨落进一步导致了中心电子自旋的退相干^[42]。为了提高相干时间，我们使用选择性脉冲来过滤和压制非均匀展宽。利用窄带激发，只有对应特定局域场（Overhauser field） $\mathbf{b}_j$ 的少量自旋配置会被选择出来，从而延长相干时间。但在这个过滤压制过程中，信号幅度会大幅度降低，使得这一方案对氮空位中心单点难以实用化。

6.2.2 利用氮空位中心集群样品增大信号

为了增大信号幅度，我们使用了氮空位中心集群样品来实施相干性集聚增强的实验方案。使用的样品是 Element 6 公司的 IIa 型块材样品，具有 1.1% 自然丰度的 ^{13}C 核自旋，和低于 1 ppm 的氮杂质浓度。利用实验室自主搭建的激光共聚焦显微与微波操控复合系统，实现对氮空位中心自旋状态的初始化、操纵和读出。通过对单个氮空位中心进行三维扫描轮廓的评估，可以判断我们共聚焦系统的激光光斑直径在 300 nm 左右，荧光收集的有效深度约为 2.5 μm 。3 mW 激光激发下，样品的典型荧光强度为一千万次计数每秒。利用单点进行归一化，评估该样品每立方厘米含有约 10^{14} 个氮空位中心。微波脉冲信号通过样

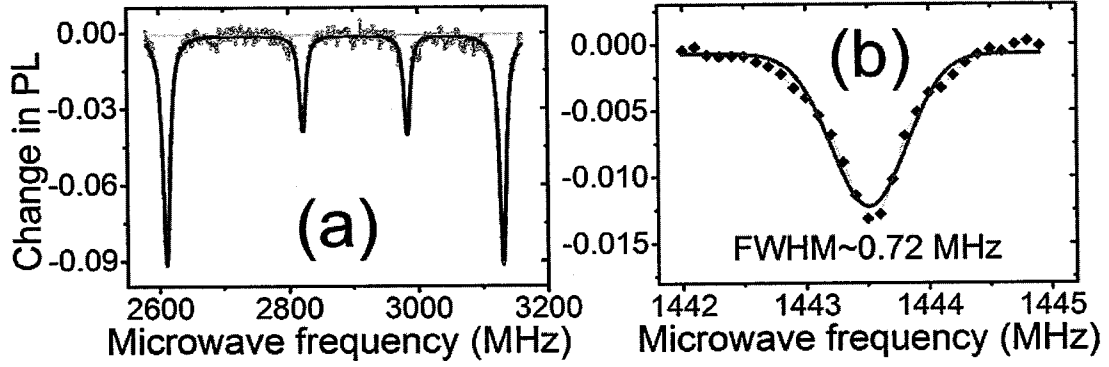


图 61 氮空位中心集群样品的光磁共振谱

(a) 集群样品的光磁共振谱中，外侧的两个共振谷深度可以达到内侧两个共振谷的两倍以上，表明该样品氮空位中心分布具有倾向性。(b) 脉冲光磁共振谱显示该样品展宽的半高全宽大概在 0.7 MHz 左右。

品表面的共面波导天线传输到样品上对氮空位中心自旋进行操控。共面波导间隙中的一个激光光斑大小的固定区域，被用来在室温下实施后续的实验。

利用一个可调节永磁铁施加外磁场，解除能级 $m_s = +1$ 与 $m_s = -1$ 间的简并。与上一章介绍的类似，通过光学探测磁共振谱我们发现这枚样品中的氮空位中心在某些晶轴取向上具有倾向性的分布^[152]（图 52 (a)）。将外磁场对准一个具有倾向性的取向，并定义为[111]方向。结合激光偏振调节，特定取向的氮空位中心可以达到全部收集荧光的 70%左右。结合样品氮空位中心浓度，我们

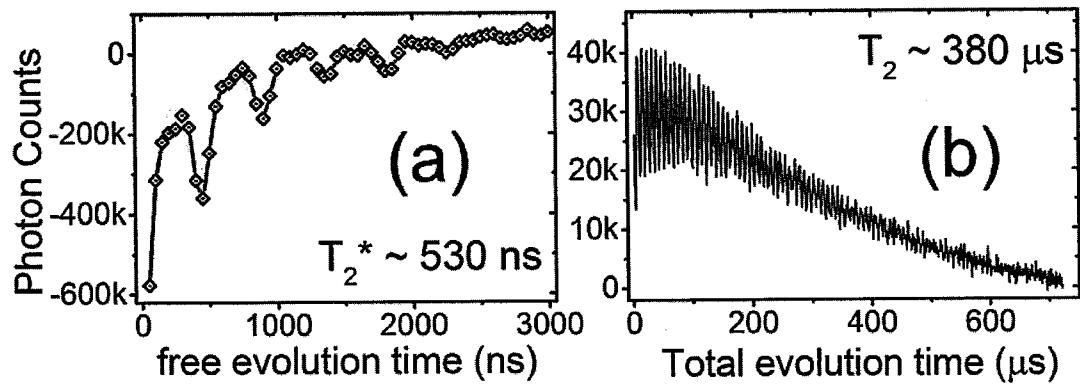


图 62 氮空位中心集群样品的基本相干性质

(a) 集群样品的自由弛豫衰减信号（FID）曲线，拟合得到该样品的退相干时间 T_2^* 约为 500 纳秒左右。(b) 集群样品的自旋回波（spin echo）实验曲线，拟合得到该样品的相干时间 T_2 约为 380 微秒左右。

判断在一个激光光斑范围内，我们会同时操控大概 100 个氮空位中心。并且在这个范围内，微波和磁场都可以认识是均匀的。由此我们改善了氮空位中心测量的光学读取对比度，同时提高了微波操控的灵敏度。

6.2.3 氮空位中心集群样品的基本相干性质

该样品氮空位中心自旋的脉冲光磁共振谱的半高全宽约为 0.7 MHz (图 52 (b)), 与 IIa 型样品中氮空位中心单点的 0.2 MHz 左右相比要宽许多。相应的, 该样品的退相干时间 T_2^* 只有 0.5 μs 左右 (图 53 (a)), 而氮空位中心单点可以达到 2 μs 左右。一般来说, 在典型的 IIa 型金刚石样品中, 氮空位中心电子自旋的退相干由 ^{13}C 核自旋环境的超精细相互作用主导。^[41, 42]而在典型的 Ib 型金刚石样品氮空位中心电子自旋的退相干则由顺磁杂质主导, 比如未成对氮原子电子自旋构成的 P1 中心。因为自旋回波码型可以消除准静态的热噪声, 我们进行了自旋回波信号的测量, 以便确定该集群样品的退相干机理。(图 53 (a)) 该样品由自旋回波信号拟合得到的相干时间 T_2 可以达到 380 μs 以上, 显示氮

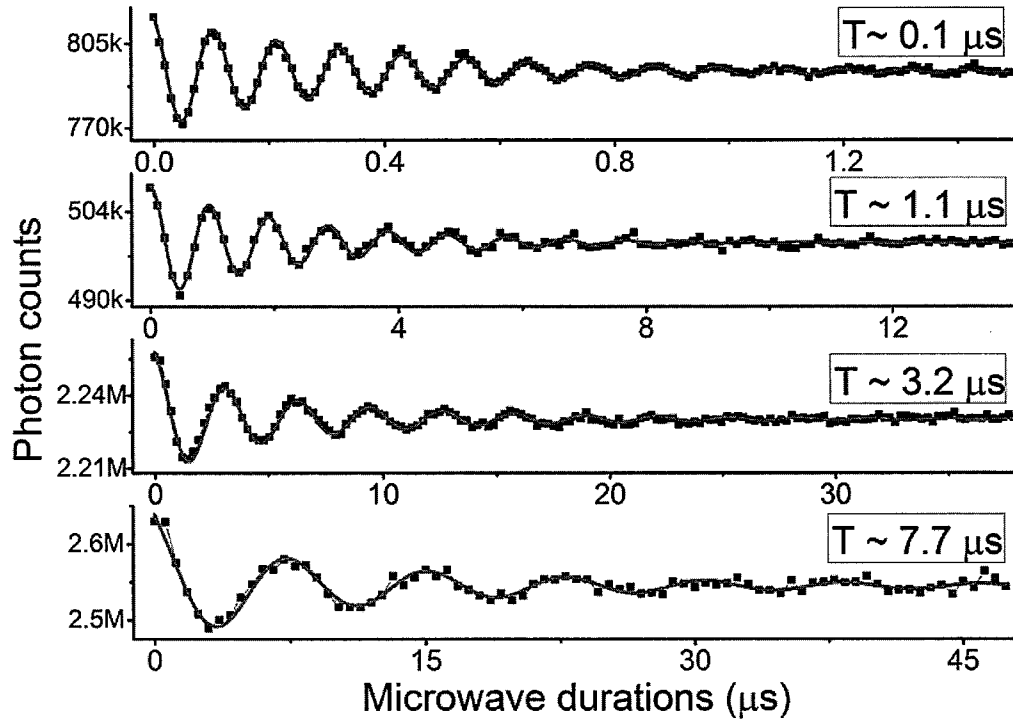


图 63 不同振荡周期的拉比振荡

不同微波功率驱动下, 拉比振荡周期 T 会不同, 振荡周期较长时, 振荡可持续时间也较长。

电子自旋的影响是比较小的。同时该自旋回波信号中的由于 ^{13}C 核自旋拉莫尔进动导致的周期性消失和重现 (collapses and revivals) 现象也是很明显的。这些现象表明, 与典型的 IIa 型金刚石一致, 这枚样品的主要退相干因素是 ^{13}C 核自旋环境。 ^{13}C 核自旋环境的局域场 (Overhauser field) 涨落导致了 T_2^* 衰减过程中的退相干。集群样品中每个单独氮空位中心周边自旋环境的配置都是很不相同的, 包括随机的位置和状态分布。因此集群样品的非均匀展宽要比氮空位中心单点大得多, 退相干时间 T_2^* 也相应的要短。

6.3 相干性集聚增强的实验过程

为了减少超精细结构等的干扰以及进一步的增强实验信号幅度, 我们将磁场增大到 510 高斯左右。此时由于电子自旋激发态的能级交错效应 (level anticrossing in the electronic excited state, ESLAC) ^[111-113], 中心的 ^{14}N 核自旋以及大部分较强耦合 ^{13}C 核自旋 (耦合强度一般大于 MHz) 都得到了极化。 ^{14}N 核自旋三个子能级上的布居此时被聚集到一个子能级。

6.3.1 窄带激发效果测试

我们在拉比振荡中也观测到了非均匀展宽的影响。拉比振荡的外轮廓衰减

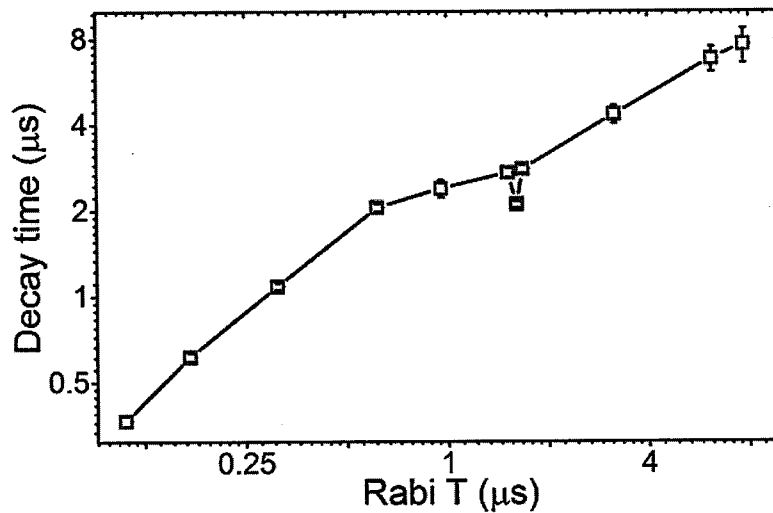


图 64 拉比衰减时间与拉比振荡周期的关系

拉比外轮廓衰减的特征时间随着拉比振荡周期的增长而延长, 图中小的谷是由于满足 Hartman Hahn 条件。

比较快，特别是当驱动功率比较高时。比如（图 54 最上图）当拉比振荡周期为 100 ns 时，典型的衰减特征时间只有几百纳秒。这种情形下我们对窄带弱激发的效果进行验证。我们逐渐降低微波功率，图 54 中展示了几个典型的不同振荡周期的拉比振荡，当驱动功率较弱时，拉比振荡周期变长，拟合得到的振荡外轮廓衰减特征时间也得到了延长。图 55 则描绘了拉比外轮廓衰减特征时间与拉比振荡周期的关系，其中除去由于满足 Hartman Hahn 条件造成的小的谷外^[160, 161]，衰减特征时间都随着振荡周期的变长而延长。这一现象可以解释为较长的拉比振荡周期对应弱的微波功率，其激发带宽较窄，可以过滤和压制自旋环境的非均匀展宽。¹³C 核自旋环境局域场（Overhauser field）的有效涨落在这一滤波过程中得到了压制，因此弱微波驱动的拉比振荡可以持续更长时间。

6.3.2 相干性集聚增强的改进方案

通过拉比振荡的实验，窄带激发可以延长操控时间得到了验证。但是仅仅依靠窄带激发对于实际的量子操作应用来说却并不方便。一般在微波驱动功率

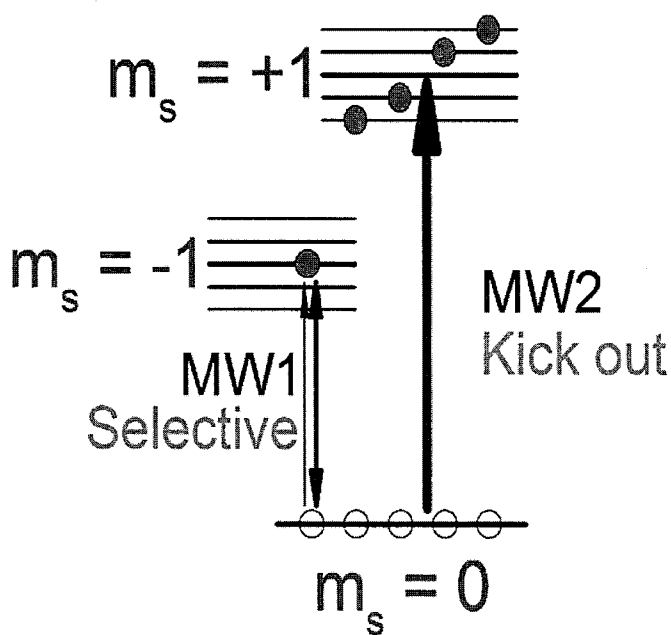


图 65 相干性集聚增强的改进方案

氮空位中心电子自旋的能级结构以及对应的共振微波：对应 $m_s = 0$ 与 $m_s = -1$ 之间跃迁的 MW1 被用于选择性脉冲以及后续的量子操控脉冲，对应 $m_s = 0$ 与 $m_s = +1$ 之间的 MW2 被用于踢出多余的布居。

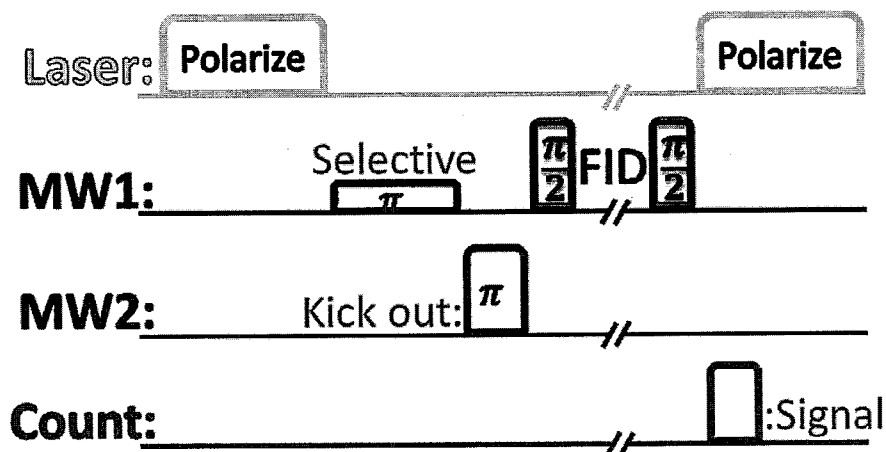


图 66 相干性集聚增强实验脉冲码型

首先利用激光脉冲将氮空位中心电子自旋初始化到 $m_s = 0$ ，之后用弱微波功率的 MW1 π 脉冲选择与特定类型自旋环境耦合的氮空位中心到 $m_s = -1$ ，将残留的多余氮空位中心被 MW2 的强微波功率 π 脉冲踢出到 $m_s = +1$ 。随后施加 FID 的脉冲码型来测量退相干时间 T_2^* ，最后电子自旋状态通过激光和计数脉冲读出。

降低的过程中，相干操控的保真度也会降低。由于弱微波功率完成一项指定操作也会消耗更长的时间，所以退相干时间与操控速度之比这个关键参数在窄带激发的过程中并没有得到改善。为了克服这一问题我们通过充分利用氮空位中心电子自旋的三能级结构来进一步完善相干性集聚增强方案。子能级 $m_s = 0$ 与 $m_s = -1$ 被作为工作子空间，另一个子能级 $m_s = +1$ 则作为辅助子空间。当利用窄带弱微波脉冲将特定的氮空位中心布居从 $m_s = 0$ 能级选择到 $m_s = -1$ 能级以后，我们将残留在 $m_s = 0$ 的多余布居全部踢出到辅助子空间 $m_s = +1$ 。在此之后我们就可以利用强的微波脉冲进行后续的各种相干量子操控应用。这样我们一方面获得了长的相干时间，另一方面又通过使用强微波脉冲提高了量子操作速度，因而退相干时间与操控速度之比将会得到大幅度改善。

6.3.3 相干性集聚增强实验流程

为了定量评估相干性集聚增强改进方案的效果，我们施加图 57 中的实验脉冲码型进行自由感应衰减(FID)测量。其中的 MW1 对应 $m_s = 0$ 与 $m_s = -1$ 之间能级跃迁，MW2 对应 $m_s = 0$ 与 $m_s = +1$ 之间的能级跃迁。首先利用激光脉冲将氮空位中心电子自旋初始化到 $m_s = 0$ ，之后用弱微波功率的 MW1 π 脉冲选择与特定类型自旋环境耦合的氮空位中心到 $m_s = -1$ 。由于该样品脉冲光磁

共振谱的半高全宽大概在 0.7 MHz，我们可以使用 20 ns 长度（对应 25 MHz）的 MW2 强微波功率 π 脉冲将残留的多余氮空位中心比较彻底的踢出^[48]到 $m_s = +1$ 。随后施加 FID 的脉冲码型来测量退相干时间 T_2^* ，最后电子自旋状态通过激光和计数脉冲读出作为信号。我们会将极化好的电子自旋进行一段与上述操控时间相等的空闲等待后读出的光子计数另外记录下来作为参考。经过码型操控的实验信号会减去空闲等待的参考作为最终的结果，以便去除背景荧光的影响。

6.4 相干性集聚增强实验结果分析

我们逐步的延长选择性 π 脉冲的时间长度，从几百纳秒延长到几十微秒，并且在每种情况下分别进行自由感应衰减的测量。在中我们展示了不同选择性

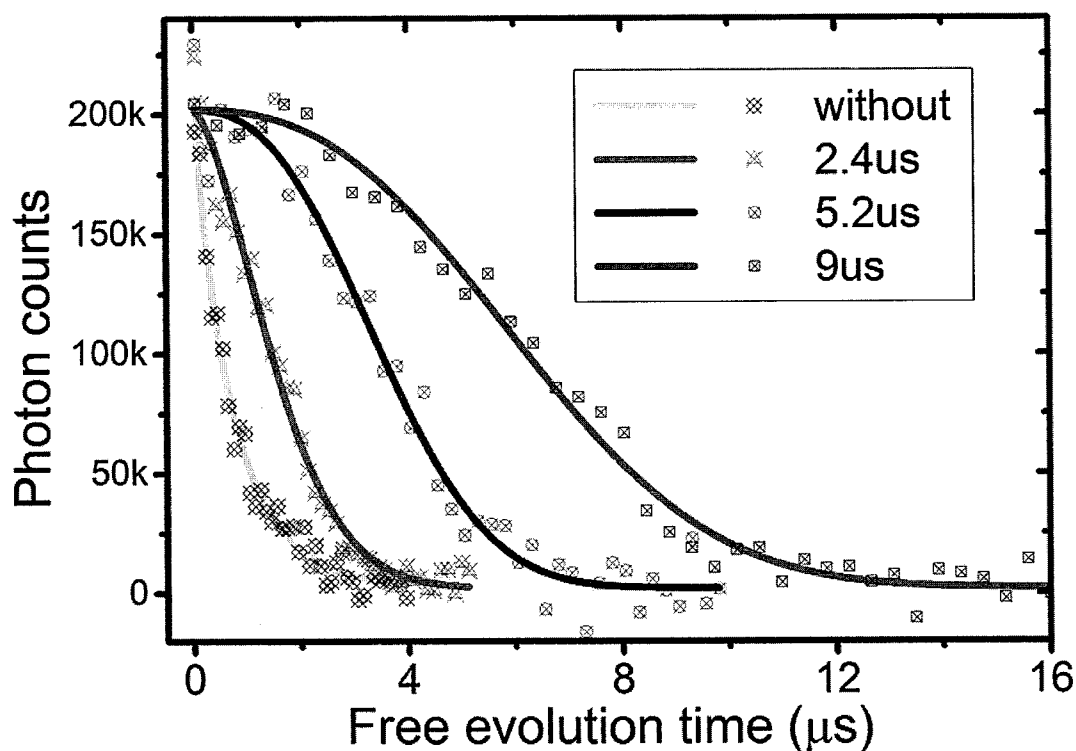


图 67 不同选择性脉冲长度的自由感应衰减曲线

不同选择性脉冲长度下测量得到的三条典型的自由弛豫衰减信号曲线，以及作为对比的没有进行选择性脉冲造作时的自由弛豫衰减曲线。为了方便对比，每条曲线的光子数做了统一。散点为原始的实验数据，实线为利用指数函数 $y = y_0 + A \cdot \exp(-(t/T_2^*)^n)$ 得到的拟合曲线。

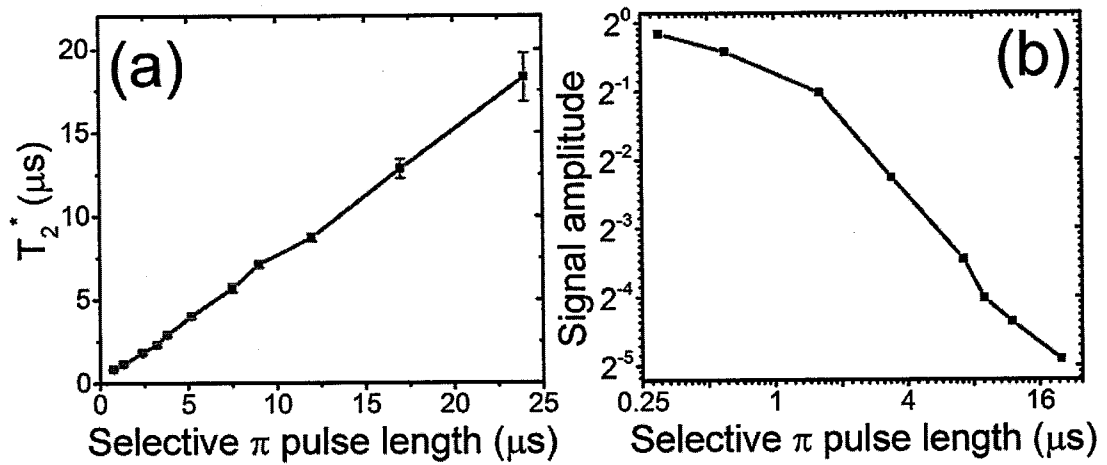


图 68 退相干时间及信号幅度与选择性脉冲的关系

(a) 由自由弛豫衰减曲线拟合得到的退相干时间 T_2^* 随着选择性脉冲长度的增加而延长, 获得了几十倍的延长。(b) 归一化后的信号幅度随着选择性脉冲长度的增加而大幅度降低, 该图为双对数坐标。

脉冲长度下测量得到的三个典型的自由感应衰减信号曲线, 没有进行选择性脉冲操作的自由感应衰减曲线也画在图中进行对比。为了得到一致的光子数, 各条实验曲线采集的实验时间有所不同。利用指数函数

$y = y_0 + A \cdot \exp(-(t/T_2^*)^n)$ 对实验数据进行拟合得出退相干时间 T_2^* 。我们将退相干时间 T_2^* 与选择性脉冲长度的关系在图 59 (a) 中进行了展示。我们观测到退相干时间 T_2^* 达到几十倍以上的大幅度延长, 这一延长与选择性脉冲的长度成正比。实验得到的最长退相干时间 T_2^* 达到 20 微秒左右, 比一般氮空位中心单点的 T_2^* 要长出很多。可见选择性 π 脉冲不仅可以消除不同氮空位中心之间的非均匀展宽效应, 还可以进一步压制单个氮空位中心周边 ^{13}C 核自旋环境涨落造成的非均匀展宽效应。归一化后的信号幅度与选择性 π 脉冲长度的关系如图 59

(b) 所示, 可以看到在选择性脉冲长度增长的过程中, 信号幅度有大幅度降低 (双对数坐标)。并且在图 59 (a) 中没有看到退相干时间的延长效果没有减缓趋势, 可见如果有更大数目的氮空位中心被用于增强信号的话, 我们有希望得到比目前更好的相干性增强效果。从体系的哈密顿量可以看出, 通过选择性 π 脉冲可以将贡献相同局域场 (Overhauser field) b_J 的部分自旋环境脉冲选择出来。从这个角度讲, 我们成功的对由热分布导致的非均匀展宽进行了抑制。

6.5 小结

在本章中，我们提出了利用窄带激发进行相干性集聚增强的技术方案，并且在金刚石氮空位中心进行了实验演示。窄带激发可以抑制非均匀展宽效应的影响，但在这个过程中信号幅度会大幅度衰减。使得在氮空位中心单点中利用窄带激发延长相干性不能实现有效的实际应用，于是我们选择利用自旋集群的优势来大幅度提高信号幅度。我们还选用了具有晶向取向性的氮空位中心集群样品，并且利用 ESLAC 电子自旋激发态能级交错效应，以便实现信号的进一步提高。通过使用弱微波功率驱动一系列拉比振荡实验，验证了窄带激发可以延长相干操控时间。但是使用弱微波脉冲进行量子操作耗时较长，甚至会降低操作保真度。单纯利用窄带激发无法改善退相干时间与操控速度的比值这一量子信息处理的关键参数。为此我们充分利用氮空位中心的三能级结构改进了实验方案，借助辅助子空间和踢出脉冲使得利用该方案进行实际的量子操控成为可能。接下来我们实施了自由弛豫测量来定量评估相干性集聚增强方案的效果。我们研究了电子自旋退相干时间 T_2^* 与选择性脉冲长度之间的关系。我们观测到退相干时间 T_2^* 达到几十倍以上的延长，这一延长与选择性脉冲的长度成正比。在这一实验中，选择性脉冲在两个层面发生作用，一方面它消除了不同氮空位中心之间的非均匀效应，另一方面也消除了每个氮空位中心自身周边 ^{13}C 核自旋环境的非均匀展宽。这使得我们可以得到长于氮空位中心单点很多的退相干时间 T_2^* ，如果信号幅度能得到进一步增强的话有望获得更长的退相干时间。我们提出的这一相干性集聚增强方案提供了一种获得长相干时间的新途径，这将在量子信息处理，量子度量学等很多方面对自旋集群的应用产生促进作用。⁵

⁵ 本章结果成稿为: Chang YC†, Wang N†, Liu GQ, Wang P, Jiang QQ, Xing J, Li WX, Gu CZ, Yang W, Zhao N, Liu RB, Pan XY*. Collective coherence enhancement of NV electron spin in diamond. 投稿准备中

第七章 室温纳米金刚石中全相位相干控制的量子克隆机

与经典世界中的情况不同，量子世界中一个未知的量子态是不能够被理想克隆的，这被称作不可克隆原理（no-cloning theorem）^[77, 78]。不过，由于实现各种不同的应用的需要，人们期望能够实现对未知量子态近似的或者概率的克隆，并且人们设计出了许多满足这样要求的量子克隆机。因为可以用于攻击在量子保密通讯中密钥分发所使用的 BB84（Bennett-Brassard 1984）态，相位克隆机成为量子克隆机中特别受关注的一种。在这一章中，我们第一次在室温下使用固态体系——纳米金刚石中的氮空位中心——实现并演示了全相位可控的量子相位克隆机。这种相位协变克隆机对于布洛赫球赤道面上的所有量子态都工作的很好。在实验中我们实现了对相位的高保真度控制和测量，量子态克隆的实验结果也与理论预期吻合的很好。这一章的实验结果对相位可控量子信息处理器件做了基础展示。

7.1 相位协变量子克隆机背景介绍

在量子力学中，不可克隆原理（no-cloning theorem）^[77, 78]是量子信息处理的一项基本原理。这一原理表明我们无法实现对未知量子态的理想的完全克隆。但它并没有禁止我们对量子态进行近似的克隆^[162-167]或者以一定概率实现克隆^[168]。为了克隆量子态，人们提出了很多种不同的量子克隆机方案，并且在多种物理体系上得到了实现和演示^[169-171]。这些量子克隆机方案可以实现对未知量子态的近似或者概率克隆，有两篇综述文章^[172, 173]对此有相关总结。除了探究量子世界中克隆过程的潜力，量子克隆的另一直接用途是其在分析量子密钥分发（quantum key distributions, QKD）^[9]安全性过程中扮演的重要角色，这是因为量子密钥分发的安全是依赖于不可克隆原理的。一种可以被窃听者采用的量子策略是对传输信息 BB84 态进行量子克隆。量子克隆 BB84 态等价于克隆四个量子态—— $(|0\rangle + e^{i\varphi}|1\rangle)/\sqrt{2}$ ，其中 $\varphi = j\pi/2$, $j = 0, 1, 2, 3$ ——在本章中我们也将其称作 BB84 态。并且这所有的四个量子态都是位于布洛赫球的赤道面上。

在通用的量子克隆中，一个么正变换作用于一个由 BB84 输入态组成的系统——包括空白态和输入态——最后获得两个理想的拷贝输出。通用的形式可以写作： $U|00R\rangle = a|00A\rangle + b|01B\rangle + c|10C\rangle + d|11D\rangle$

$U|10R\rangle = e|00E\rangle + f|01F\rangle + g|10G\rangle + h|11H\rangle$ 。因为 BB84 态是被随机使用的，所以通过量子克隆进行的攻击必须对四个 BB84 态都是对称和等价的。一般来说我们可以使用输入态与输出拷贝之间的保真度来量化两者之间的相似度，并且可以用其作为对量子克隆机品质的一个量度。如果两份拷贝是等价的，那么可以通过变换—— $|00\rangle \rightarrow |00\rangle$, $|10\rangle \rightarrow (|01\rangle + |10\rangle)/\sqrt{2}$ ——来实现对 BB84 态的优化克隆。在这个过程中，辅助比特并不是必需的，除去辅助比特可以节省有限的量子比特资源。该克隆过程对应的优化保真度是 $F = 1/2 + 1/\sqrt{8}$ 。有趣的是，我们注意到上述的克隆变化和保真度对于克隆布洛赫球赤道上所有量子态都是优化的，这些量子态的形式可以写作 $(|0\rangle + e^{i\varphi}|1\rangle)/\sqrt{2}$ ，并且其中的相位 φ 是任意的^[166, 174-177]。因此量子相位克隆机对于克隆 BB84 态是优化的。

对于这一克隆方案之前在固态系统中的实验展示^[178]，只制备了两个不同相位态，并且只测量了一些固定的相位参数，其中的相位是通过自由的时间演化

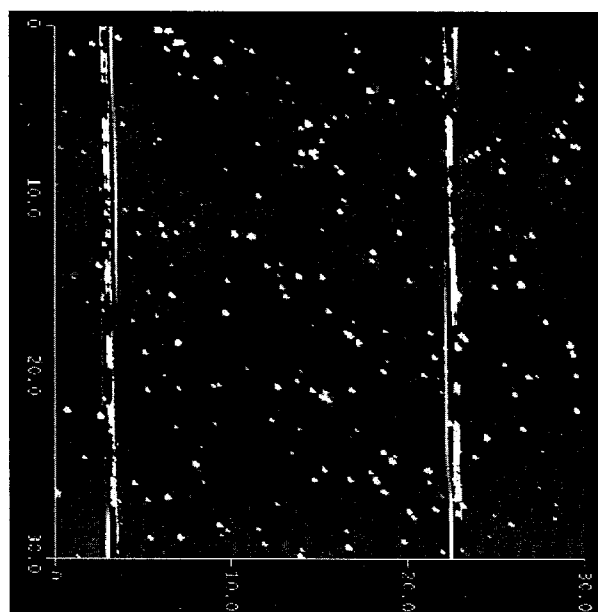


图 69 纳米金刚石样品的原子力显微镜扫描图

扫描范围为 30 微米见方，图中亮点为纳米颗粒，平均粒径在 100 nm 左右。

来实现的。在本章中，所有实验过程的不同相位都得到了精确的制备和操控，这一方案保证了相位克隆机的成功实施。实验过程中的测量采用的是标准的量子态层析成像方法（state tomography）。下面具体介绍一下实验演示的过程。

7.2 实验样品基本特性

本章中的实验选取纳米金刚石中的氮空位中心在室温下进行的。金刚石这一固态系统是进行量子信息处理（quantum information processing, QIP）的最有希望能的候选载体之一^[19, 29]。很多的相干控制和操作过程在该系统中得到了实现和展示^[27, 28, 30, 33, 44, 50, 63, 89-94]。由于相干时间较短，所以在纳米金刚石中进行实验要比使用金刚石块材更具挑战性。不过与此同时，纳米金刚石也显示出一些在进一步的集成和应用中更大的潜力所在。与金刚石块材相比，纳米金刚石具有许多突出的特性。由于纳米金刚石处于亚波长尺度，避免了界面处的反射效应，因此其荧光收集效率要显著高于金刚石块材^[179]。除此之外，借助于微纳加工技术的帮助，可以对纳米金刚石进行操控并使其耦合到其他系统上，比如纳米线^[180, 181]、光子晶体^[182]、波导^[183, 184]，微球^[185]，光纤^[186]等。因此纳米金刚石在很多应用中都扮演了重要的角色，例如在纳米尺度的磁场成像过程中，

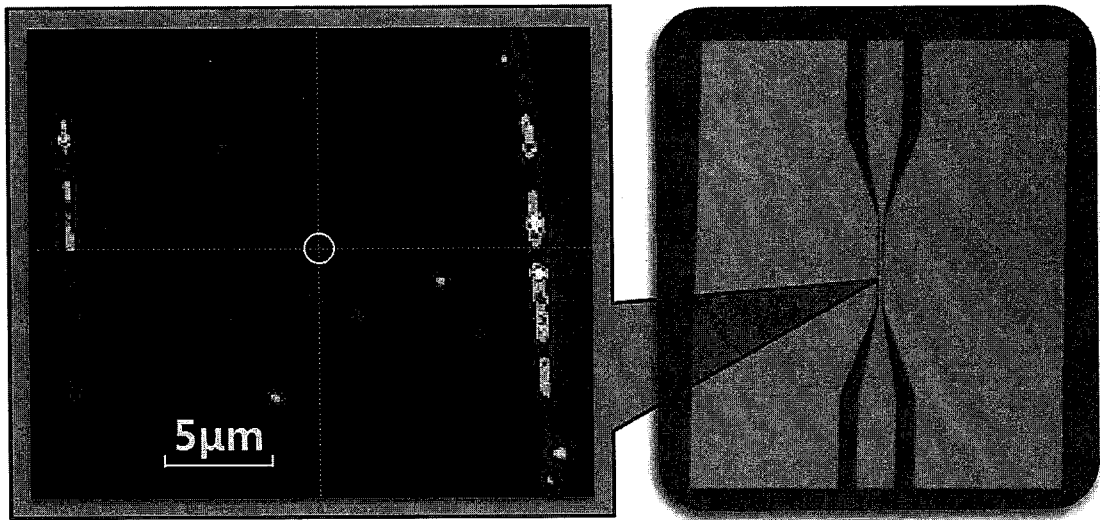


图 70 纳米金刚石样品荧光扫描图与共面波导天线

左图为纳米金刚石样品的荧光扫描图，其中黄色圆圈出的为实验选取的纳米金刚石氮空位中心。右图为石英基底的共面波导天线光学照片（1 cm 见方），左图相当于其局部很小区域。

可以将纳米金刚石粘附在原子力显微镜（atomic force microscope, AFM）的针尖上来对磁场进行测量^[63, 64]。通过将单个的纳米金刚石与金纳米颗粒装配在一起，纳米金刚石也展示出了其在等离激元增强的单光子辐射过程中的应用^[187]。因为其荧光亮度、光子稳定性和生物兼容性^[188]等许多优点，荧光纳米金刚石在生物物理学领域也有广泛的应用前景。

在图 59 中，给出了我们使用的纳米金刚石样品原子力显微镜扫描图，图中的亮点为纳米颗粒，平均粒径在 50 nm 左右，其中部分为纳米金刚石。图 60 中左图是样品的荧光扫描图，黄色圆圈出的是我们本章实验中使用的氮空位中心。纳米金刚石中氮空位中心的典型荧光强度在每秒十万次计数左右，大概是金刚石块材中氮空位中心的两倍左右。纳米金刚石有许多优秀性质，但对于相干控制也存在不少新的挑战。由于相比金刚石块材更为复杂的自旋环境^[189]，导致了纳米金刚石中的氮空位中心一般其解相时间 T_2^* 都比较短。纳米金刚石中氮空位中心的典型解相时间 T_2^* 只有几百个纳秒。图 61 左图中显示了所用氮空位中心的拉姆齐信号曲线，拟合得到的解相时间 T_2^* 在七百纳秒左右。因此在将自旋量子态应用于量子信息处理的过程中，对电子自旋量子态的快速操控变得非常关键。特别是在具体实验中，微波传输线路较为复杂时，大量微波元件会造成微波功率的大幅度损耗。在信号源和放大器功率有限的情况下，要实现高速

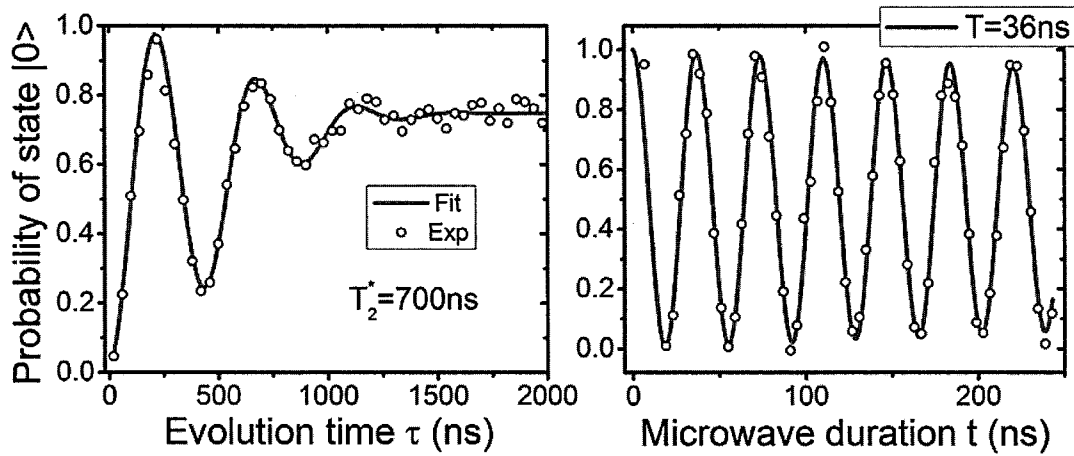


图 71 纳米金刚石样品中典型的自由感应衰减和拉比振荡实验曲线

左图为所使用纳米金刚石氮空位中心电子自旋的自由感应衰减（FID）实验曲线，由其拟合得到的解相时间 T_2^* 在 700 ns 左右；右图中为该空位中心电子自旋的典型拉比（Rabi）振荡实验曲线，其振荡周期 T 为 36 ns，对应振荡频率约为 30 MHz。

的量子操控就对微波天线的传输效率提出了很高的要求。因此在这一章的实验中，我们在石英基底上使用微纳加工手段精心制备了共面波导天线（coplanar waveguide, CPW），如图 60 所示。将纳米金刚石颗粒悬涂在上述的石英基底上面，并利用共面波导天线将操控用的微波脉冲信号传输到纳米金刚石样品。在微波系信号的驱动下，该氮空位中心电子自旋的拉比（Rabi）振荡频率可以达到 50 MHz 以上，对应的翻转 π 脉冲长度在 10 ns。这一时间长度远小于纳米金刚石中大部分氮空位中心的解相时间。因此在氮空位中心电子自旋退相干之前，可以做相当多次量子操控。图 61 右图展示了实验过程中的典型拉比振荡。

7.3 相位协变量子克隆机的实施方案

对于第一节讲述的优化相位协变量子克隆机，其具体的实施过程包括制备

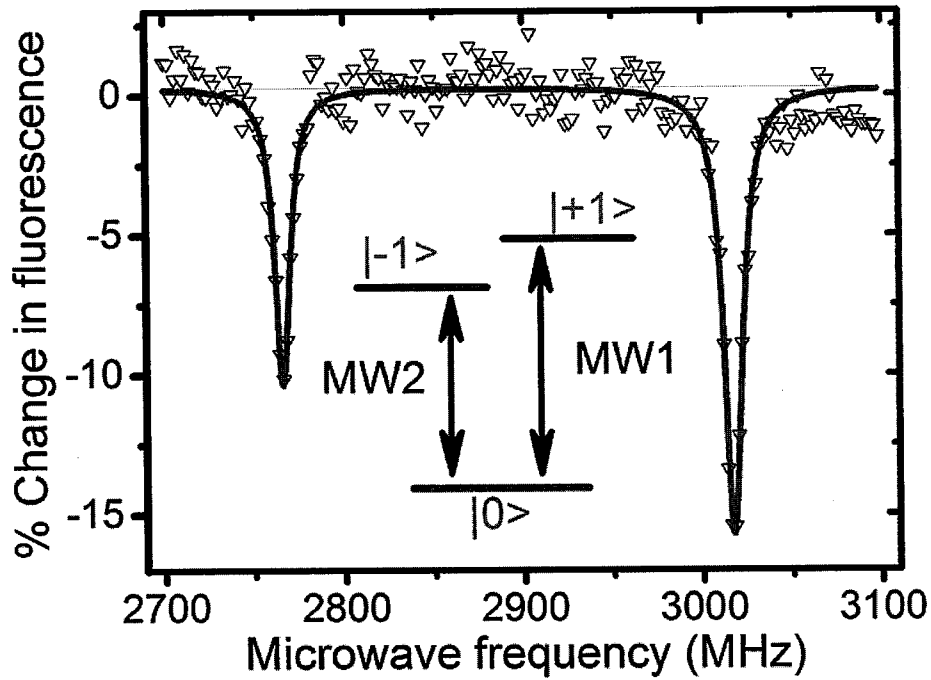


图 72 氮空位中心的能级结构和光磁共振谱

氮空位中心电子自旋的基态三能级结构，外磁场下能级 $m_s = +1$ 与 $m_s = -1$ 劈裂开 250 MHz 左右后的光学探测磁共振谱。能级 $m_s = 0$ 、 $m_s = +1$ 与 $m_s = -1$ 对应的量子态分别记做 $|0\rangle$ 、 $|+1\rangle$ 和 $|-1\rangle$ ，对应能级跃迁 $|0\rangle \leftrightarrow |+1\rangle$ 的共振微波信号记做 MW1，对应能级跃迁 $|0\rangle \leftrightarrow |-1\rangle$ 的共振微波信号记做 MW2。

BB84 输入态，量子克隆过程以及最后输出拷贝的读取测量。

7.3.1 相位协变量子克隆机的编码方案

我们利用氮空位中心电子自旋的三能级结构来实施这一克隆方案。氮空位中心电子自旋的能级结构及对应的光学探测磁共振谱（optically detected magnetic resonance, ODMR）如所示。通过施加外磁场将能级 $m_s = +1$ 与 $m_s = -1$ 劈裂开 250 MHz 左右。并将能级 $m_s = 0$ 、 $m_s = +1$ 与 $m_s = -1$ 对应的量子态分别记做 $|0\rangle$ 、 $|+1\rangle$ 和 $|-1\rangle$ 。对应能级跃迁 $|0\rangle \leftrightarrow |+1\rangle$ 的共振微波信号记做 MW1，对应能级跃迁 $|0\rangle \leftrightarrow |-1\rangle$ 的共振微波信号记做 MW2。

逻辑上的 BB84 态与物理上电子自旋态之间的编码关系为^[178]：

$$e^{i\varphi}|+1\rangle \sim |00\rangle_l, \quad |0\rangle \sim e^{i\varphi}|10\rangle_l, \quad |-1\rangle \sim e^{i\varphi}|01\rangle_l.$$

制备的 BB84 输入态逻辑形式为： $|\text{Input}\rangle_l = (|00\rangle_l + e^{i\varphi}|10\rangle_l)/\sqrt{2}$ 。

根据编码方案输入态对应的物理形式为： $|\text{Input}\rangle = (|0\rangle + e^{i\varphi}|+1\rangle)/\sqrt{2}$ 。

按照克隆方案，输出拷贝的逻辑形式应该为：

$$|\text{Output}\rangle_l = (e^{i\varphi}|01\rangle_l + e^{i\varphi}|10\rangle_l)/2 + |00\rangle_l/\sqrt{2}.$$

根据编码方案输出拷贝对应的物理形式为：

$$|\text{Output}\rangle = (|0\rangle + |-1\rangle)/2 + e^{i\varphi}|+1\rangle/\sqrt{2}.$$

整个克隆过程的逻辑形式可以表示成：

$$(|00\rangle_l + e^{i\varphi}|10\rangle_l)/\sqrt{2} \Rightarrow (e^{i\varphi}|01\rangle_l + e^{i\varphi}|10\rangle_l)/2 + |00\rangle_l/\sqrt{2}.$$

根据编码方案克隆过程的物理形式可以表示成：

$$(|0\rangle + e^{i\varphi}|+1\rangle)/\sqrt{2} \Rightarrow (|0\rangle + |-1\rangle)/2 + e^{i\varphi}|+1\rangle/\sqrt{2}.$$

由此我们可以将量子克隆的物理实现过程归结为，首先制备 BB84 输入态

$(|0\rangle + e^{i\varphi}|+1\rangle)/\sqrt{2}$ ，然后通过量子操控将其变换为输出态 $(|0\rangle + |-1\rangle)/2 + e^{i\varphi}|+1\rangle/\sqrt{2}$ ，最后对输出的拷贝进行读出测量。

需要说明的是，上述的逻辑态与物理态之间的编码对应关系也可以简化为：

$$|+1\rangle \sim |00\rangle_l, \quad |0\rangle \sim |10\rangle_l, \quad |-1\rangle \sim |01\rangle_l.$$

这样的话,制备的物理输入态 $(|0\rangle + e^{i\varphi}|+1\rangle)/\sqrt{2}$ 对应的逻辑输入态实际上为正常形式下的 $(|1\rangle + e^{i\varphi}|0\rangle)/\sqrt{2}$ 。当实验中相位 φ 完成在全部四个角度变化时,两种形式是可以等价的。

7.3.2 实验装置介绍

这一章中我们同样使用实验室自主搭建的激光共聚焦显微系统来定位和操控纳米金刚石中的氮空位中心。微波射频部分的实验装置如图 63 所示。根据前边介绍的实验过程,需要同时对能级跃迁 $|0\rangle \leftrightarrow |+1\rangle$ 以及 $|0\rangle \leftrightarrow |-1\rangle$ 进行激发和操控。因此在本章的实验中我们使用了两台微波信号源,对应的微波频率分别调节为对应能级跃迁 $|0\rangle \leftrightarrow |+1\rangle$ 的共振频率 MW1, 和对应能级跃迁 $|0\rangle \leftrightarrow |-1\rangle$ 的共振频率 MW2。

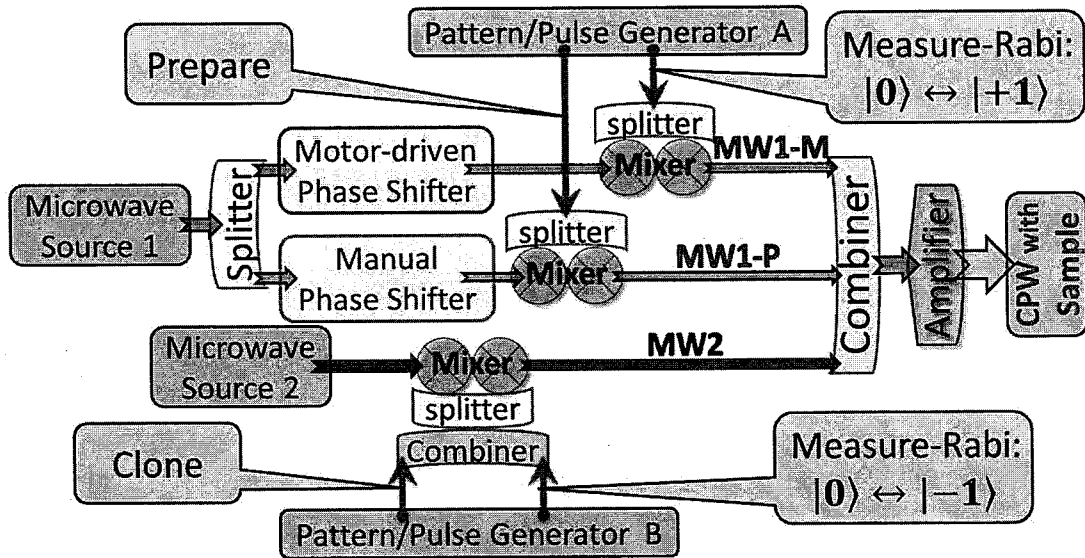


图 73 相位协变量子克隆实验装置示意图

两台微波信号源分别产生微波信号 MW1 和 MW2: 其中 MW2 被用于克隆操作和后续对 $|0\rangle \leftrightarrow |-1\rangle$ 子空间进行测量读出, MW1 则被分为两个支路, 均含有用于调节相位的移相器的。手动移相器一路为 MW1-P 支路, 用于制备输入态; 电动移相器一路为 MW1-M 支路用于后续对 $|0\rangle \leftrightarrow |+1\rangle$ 子空间进行测量读出。各支路的通断均由一对微波混频器来实现, 控制信号则由码型/脉冲发生器产生。三条支路在完成码型控制后通过合路器合为一, 经过放大器的功率放大后传输到共面波导天线, 最终作用于纳米金刚石中的氮空位中心。

通过功分器将 MW1 的微波分为两路，一条支路用于制备 BB84 输入态，记做 MW1-P；另一条支路用于后续对 $|0\rangle \leftrightarrow |+1\rangle$ 的子空间进行测量读出。这两个支路都串联有机械移相器，用于调节微波信号的相对相位。该机械移相器的调节范围是 $180^\circ/\text{GHz}$ ，比如对于频率为 2.87GHz 的微波信号其调节范围可以达到 500° 。移相器上具有计数器，可以根据微波频率计算出不同刻度位置的相对相位。另外我们还设计组装了一套相位测量装置，同一频率不同微波支路之间的相对相位。MW1-P 制备支路中的移相器通过手动调节以实现 BB84 态不同输入相位。MW1-M 测量支路中的移相器则通过测量程序电动控制，自动在两个选定的相位点 X 和 Y 之间切换，这两个相位点的相对相位相差 90° 。当电动移相器位于 X 相位点时，调节 MW1-P 制备支路的手动移相器，使两条支路的相对相位为零，将该移相器位置定义 0° 相位位置。相应的相位点 Y 的位置即为 90° 相位位置。MW2 的微波支路本身既用于克隆操作也用于后续对 $|0\rangle \leftrightarrow |-1\rangle$ 的子空间进行测量读出。

各微波支路的通断均由微波混频器来实现，由于一只混频器的开关通断比较低，因此每条微波支路中都是由一对混频器串联使用以提高通断比。混频器的控制信号则由码型/脉冲发生器（Agilent 81110A）产生：每台码型发生器具

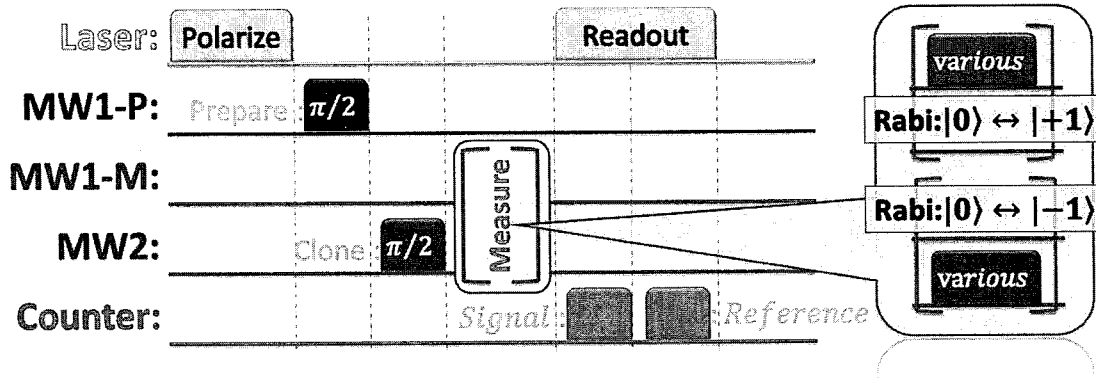


图 74 相位协变量子克隆实验脉冲码型

首先使用 3 微秒的激光脉冲将氮空位中心电子自旋初始化到 $|0\rangle$ 态，用 $\pi/2$ 长度的 MW1-P 脉冲制备到叠加态 $(|0\rangle + e^{i\varphi}|+1\rangle)/\sqrt{2}$ 。接下来的克隆过程，用 $\pi/2$ 长度的 MW2 脉冲将输入态变换到物理输出态 $(|0\rangle + |-1\rangle)/2 + e^{i\varphi}|+1\rangle/\sqrt{2}$ 。之后使用变化长度的 MW1-P 脉冲和 MW2 脉冲，分别实施 $|0\rangle \leftrightarrow |+1\rangle$ 和 $|0\rangle \leftrightarrow |-1\rangle$ 子空间的拉比振荡，完成对输出态相位和布居测量。最后使用激光和计数器脉冲读出电子自旋状态，会紧跟着信号采集再读取一个参考值。

有两个通道，分别提供初态制备、 $|0\rangle \leftrightarrow | +1\rangle$ 子空间测量、克隆过程、 $|0\rangle \leftrightarrow | -1\rangle$ 子空间测量的控制信号。码型发生器运行在触发模式时间分辨率可以优于 0.1 纳秒，触发信号则统一由控制电脑上的高速脉冲发生卡协调与激光、光子计数等的时序。MW1-P、MW1-M、MW2 三条微波支路在完成码型控制后通过微波合路器合为一路，经过放大器的功率放大后传输到共面波导天线，最终作用于纳米金刚石中的氮空位中心。

7.3.3 实验流程

根据上述的相位协变量子克隆编码方案以及实验装置的情况，我们确定了如图 64 相位协变量子克隆实验脉冲码型所示的实验控制码型。首先使用 3 微秒的激光脉冲将氮空位中心电子自旋初始化到 $|0\rangle$ 态，用 $\pi/2$ 长度的 MW1-P 脉冲制备到叠加态 $(|0\rangle + e^{i\varphi}|+1\rangle)/\sqrt{2}$ ，即对应输入逻辑态 $|\text{Input}\rangle_l = (|00\rangle_l + e^{i\varphi}|10\rangle_l)/\sqrt{2}$ 。这一过程中对逻辑态而言将第一个比特的输入态制备与第二个比特的空白态初始化结合在了一起。接下来的克隆过程，我们用 $\pi/2$ 长度的 MW2 脉冲将物理输入态 $(|0\rangle + e^{i\varphi}|+1\rangle)/\sqrt{2}$ 变换到物理输出态 $(|0\rangle + |-1\rangle)/2 + e^{i\varphi}|+1\rangle/\sqrt{2}$ ，相应的我们也就得到了逻辑态的拷贝输出 $|\text{Output}\rangle_l = (e^{i\varphi}|01\rangle_l + e^{i\varphi}|10\rangle_l)/2 + |00\rangle_l/\sqrt{2}$ 。

为了完成对物理输出态的相位和布居数测量，我们使用变化长度的 MW1-P 脉冲和 MW2 脉冲，分别实施 $|0\rangle \leftrightarrow | +1\rangle$ 和 $|0\rangle \leftrightarrow | -1\rangle$ 子空间的拉比振荡。最后使用激光和计数器脉冲读出电子自旋状态信号，会紧跟着信号采集再读取一个参考值。以上的整个过程中，我们会重复几十万次以便得到足够信噪比的统计测量结果。制备过程中量子态的相位 φ 我们会再变化不同的值，分别进行后续的克隆和测量过程。

7.4 实验相关技术过程

下面我们就实验流程中用到的一些相关技术过程做一下说明和介绍。

7.4.1 相位量子态的制备

当微波对应的拉比振荡周期为 T 时，一个时间长度为 t 的微波脉冲可以将自旋量子比特（对应的布洛赫矢量 $\mathbf{P}$ ）绕布洛赫球面赤道面上的一根轴旋转角度 $\theta = 2\pi T/t$ ，我们一般也称这样的微波脉冲长度为 θ 。而旋转轴则是由微波脉冲的相位 φ 决定的，如图 65 所示。在前面实验装置介绍中，我们已经将电动移相器位于 X 相位点，以及手动移相器与之等相位的位置定义为 0° 相位位置。因此在本章的实验中，量子叠加态 $|\psi\rangle = \cos\frac{\theta}{2}|0\rangle + \sin\frac{\theta}{2}|1\rangle$ 的具体制备过程为：将手动移相器置于 φ 位置，首先施加微波脉冲将电子自旋极化到 $|0\rangle$ 然后施加 $\theta = 2\pi/t$ 长度的微波脉冲。

7.4.2 量子态的相位测量

量子态的相位对应其布洛赫矢量 $\mathbf{P}$ 的 X 分量 (P_x) 和 Y 分量 (P_y) 之间的比例关系。但对于氮空位中心体系而言，只有自旋的 Z 分量可以通过荧光光子数来读取。因此我们需要设法将 X 分量或者 Y 分量转化为 Z 分量再进行读取。通过施加 X 相位或者 Y 相位的 $\pi/2$ 微波脉冲，我们可以将一个量子态的布洛赫

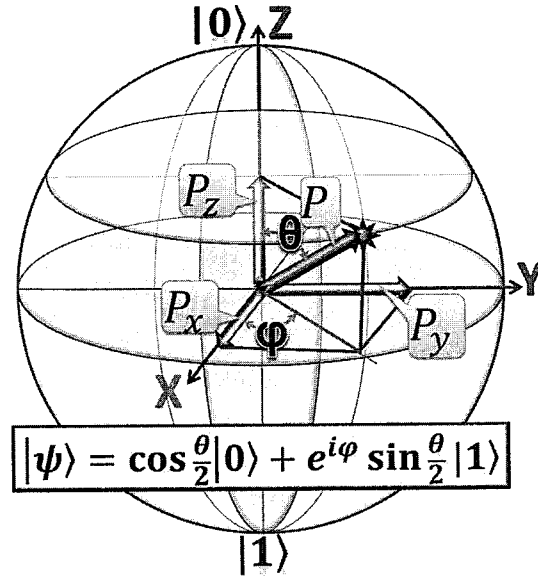


图 75 相位量子态的制备

量子叠加态 $|\psi\rangle = \cos\frac{\theta}{2}|0\rangle + \sin\frac{\theta}{2}|1\rangle$ 的布洛赫球表示，及其各分量。

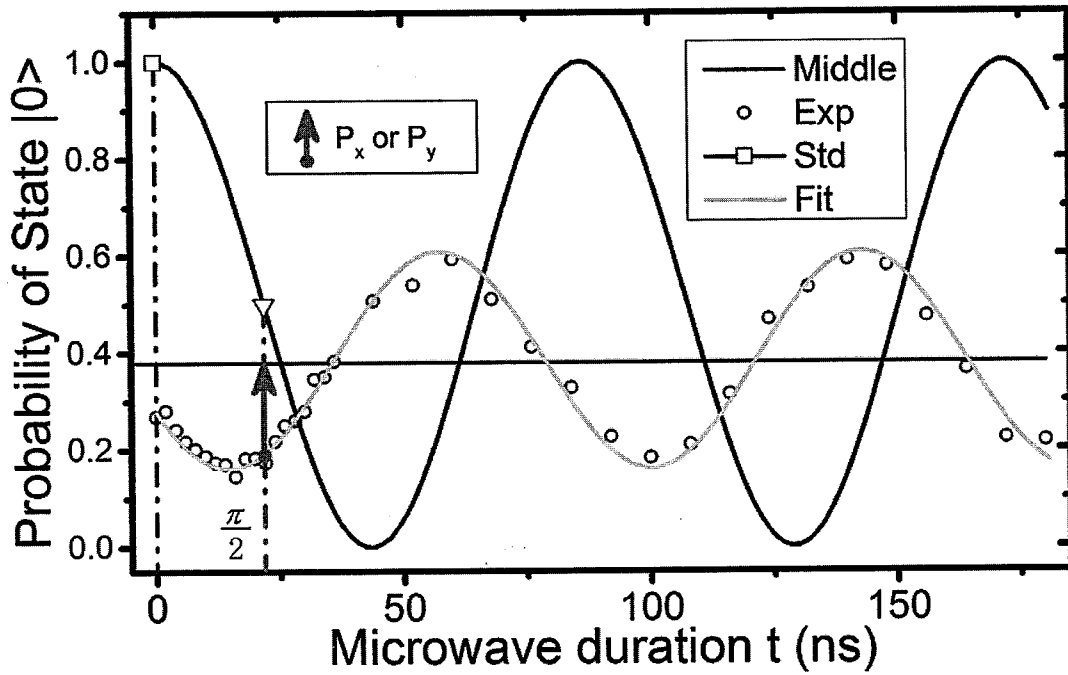


图 76 量子态的相位测量过程

用 X 或者 Y 相位的 MW1-M 脉冲对待测态做拉比振荡 Rabi X, Rabi Y 并用标准拉比（蓝色实线）进行归一化。红黄色散点为 Rabi X, Rabi Y 的实验数据，绿色实线为拟合曲线及棕色为其振荡中线。在绿色拟合线中找到 $\pi/2$ 位置（粉色），读出该位置距棕色中线的振幅（橙色箭头），包含正负号后即得到 P_x 或 P_y 分量的观测值。

矢量绕着布洛赫球的 x 轴或者 y 轴旋转 90° [190, 191]。如图 65 所示，经过以上旋转，量子态对应布洛赫矢量 $\mathbf{P}$ 的 X 分量 (P_x) 或者 Y 分量 (P_y) 就会被转化到 Z 分量 (P_z) 的位置。具体在实验过程中，我们首先用 MW1-M 微波脉冲对初始态 $|0\rangle$ 做一标准拉比振荡，拟合得出标准振荡幅度以及 $\pi/2$ 脉冲长度，如图 66 蓝色实线为标准拉比的拟合曲线。之后分别用 X 相位和 Y 相位的 MW1-M 微波脉冲对待测量态做拉比振荡 Rabi X, Rabi Y 并用标准拉比进行归一化。在图 66 中 Rabi X, Rabi Y 的实验数据用红黄色散点表示，对其进行拟合得到绿色实线的拟合曲线及棕色的振荡中线。利用由标准拉比得到的 $\pi/2$ 脉冲长度，在绿色拟合线中找到 $\pi/2$ 位置（粉色）。读出该位置距离棕色振荡中线的振幅（橙色箭头），包含正负号后即得到了布洛赫球表示中 P_x 或 P_y 分量的观测值 P_x^* , P_y^* 。最后待测量量子态的相位可以根据关系 $\tan^{-1}(P_y/P_x)$ 得出。

需要说明的是, 由于我们将利用 X 相位和 Y 相位微波脉冲制备得到的量子态相位分别定义为 0° 和 90° 。因此实际上通过施加 X 相位或者 Y 相位的微波脉冲时, 按照右手螺旋, 那么量子态布洛赫矢量的旋转轴分别应为 y 轴或者-x 轴。为了叙述和理解方便, 仍表述为 x 轴或者 y 轴。 P_x^* , P_y^* 中的*上标是由于实验观测值为归一化到三能级, 并含有退相干因素, 详见保真度计算部分。

7.4.3 量子态的布居测量

氮空位中心电子自旋的 Z 分量可以直接通过激光激发下的荧光强度来确定, 而自旋的 Z 分量则对应 $|0\rangle$ 布居与 $|1\rangle$ 布居的相互关系。实验操作上, $|0\rangle$ 布居可以比较容易的直接由相应拉比振荡的起始点来确定。 $|1\rangle$ 布居则是通过微波脉冲将布洛赫矢量旋转 180° , 即将 Z 分量反转以后再读出的。具体的本章的实验, $|0\rangle$ 与 $|-1\rangle$ 之间的关系, 我们使用 MW2 微波脉冲实施拉比振荡 Rabi C; $|0\rangle$ 与 $|+1\rangle$ 之间的布居关系, 我们首先用 MW1-M 微波脉冲实施拉比振荡 Rabi S。并且依

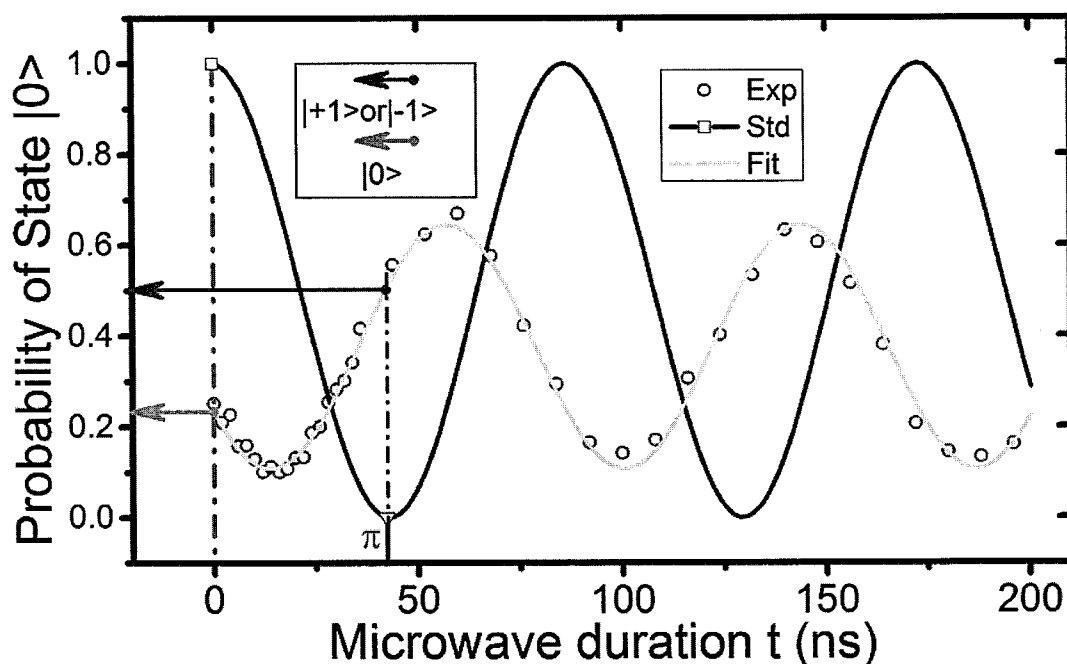


图 77 量子态的布居测量过程

用 MW2 或者 MW1-M 脉冲对待测态做拉比振荡 Rabi C, Rabi S, 并用各自标准拉比 (蓝色实线) 进行归一化。红黄色散点为 Rabi C, Rabi S 的实验数据, 绿色实线为拟合曲线。拉比振荡起始点 (粉色) 的归一化后高度 (橙色箭头) 即为 $|0\rangle$ 的布居。在绿色拟合线中找到 π 位置 (粉色), 该位置归一化后的高度 (橙色箭头), 即为 $|-1\rangle$ 或者 $|+1\rangle$ 的布居。

然会使用对应微波脉冲对初始态 $|0\rangle$ 做一标准拉比振荡，拟合得出 π 脉冲长度并对 Rabi C, Rabi S 进行归一化，如图 67 中蓝色实线为标准拉比的拟合曲线。在图 67 中 Rabi C, Rabi S 的实验数据用红黄色散点表示，对其进行拟合得到绿色实线的拟合曲线。拉比振荡起始点（粉色）的归一化后高度（橙色箭头）即为 $|0\rangle$ 的布居。由于 Rabi C 和 Rabi S 都会得出 $|0\rangle$ 的布居，可以取其平均值。利用由标准拉比得到的 π 脉冲长度，在绿色拟合线中找到 π 位置（紫色）。读出该位置归一化后的高度（绿色箭头），即为 $| -1\rangle$ 或者 $| +1\rangle$ 的布居。

实际实验中我们发现如果这个过程中不对 MW1-M 的相位做限制的话，有时由于被测态与测量微波间相对相位差过大会降低测量过程的保真度。比如两者接近反向时，保真度最低可能只有 80%左右。为此在实际实验中会根据上一步已经测出的相位结果，设定 MW1-M 为相近的相位实施拉比振荡 Rabi S。

7.5 实验结果分析

在介绍完了实验装置、实验流程和相关实验技术后，我们开始进行相关的实验，并对实验结果进行分析。

7.5.1 相位控制与测量精度测试

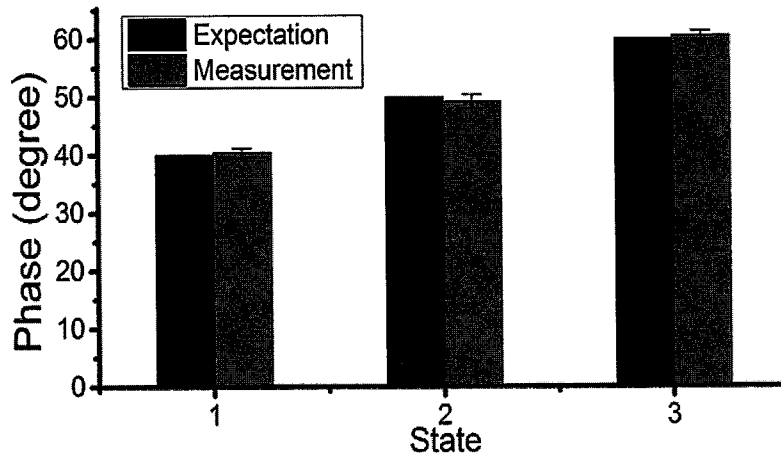


图 78 相位控制与测量精度测试

三个不同相位的量子态，黑色为其预期相位，红色为测量得到相位值。

Error bar 为七次测量的标准差。

在进行正式的量子克隆之前，我们先对我们微波相位控制，量子态相位测量的精度进行了测试。我们改变 MW1-P 中移相器的位置，分别制备了三个量子态。量子态均为 $(|0\rangle + e^{i\varphi}|+1\rangle)/\sqrt{2}$ 形式，其中相位 φ 的期望值分别为 40° ， 50° 和 60° 。我们对三个量子态分别进行了测量如图 68 所示，测量的平均值分别为 40.4° ， 49.2° 和 60.5° 。测量的偏差分别为 $+0.4^\circ$ ， -0.8° 和 $+0.5^\circ$ ，我们进行的七次测量的标准差分别为 $\pm 0.8^\circ$ ， $\pm 1.2^\circ$ 和 $\pm 0.8^\circ$ 。这些结果表明我们可以实现高精度的相位控制和测量，并且具有长时间重复的相位稳定性，可以实施后续克隆过程。

7.5.2 相位测量实验结果

我们进行了四个量子态的克隆，分别将其标记为 Φ_1 ， Φ_2 ， Φ_3 ，和 Φ_4 。几个输入态的均具有 $(|0\rangle + e^{i\varphi}|+1\rangle)/\sqrt{2}$ 的形式，均匀地分布在布洛赫球赤道面上，可以作为 BB84 态。

在完成输入态的制备后，我们首先测量了输入态的相位。以量子态 Φ_1 为例，

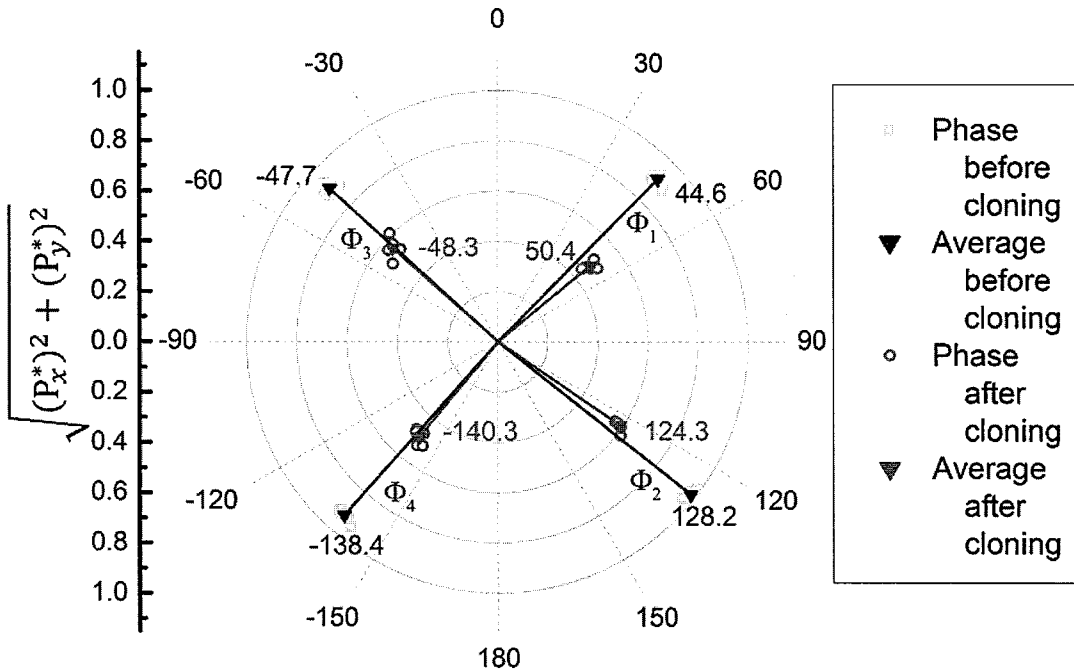


图 79 相位测量实验结果

绿色方形为对四个输入态 Φ_1 ， Φ_2 ， Φ_3 ，和 Φ_4 的相位测量实验结果，蓝色三角形为五次测量的平均值。粉色原型为克隆后输出态的相位测量结果，红色三角位相应的测量平均值。

我们进行了五次相位测量，测量结果以绿色空心方形显示在图 69 的极坐标中，其幅值则对应 $\sqrt{(P_x^*)^2 + (P_x^*)^2}$ 。相位测量的平均值为 44.6° ，图 69 中以蓝色实心三角表示并以实线连接极点，五次测量的标准差为 $\pm 2.4^\circ$ 。类似的我们对 Φ_2 ， Φ_3 ，和 Φ_4 的相位测量结果分别为 $128.3^\circ \pm 1.6^\circ$ ， $-47.7^\circ \pm 1.7^\circ$ 和 $-138.4^\circ \pm 2.0^\circ$ 。

完成输入态的相位测量后，我们通过施加 MW2 π 脉冲分别将输入态变换为 $(|0\rangle + |-1\rangle)/2 + e^{i\varphi}|+1\rangle/\sqrt{2}$ 完成克隆过程。我们对输出态同样进行了五次相位测量，测量结果以粉色空心圆形显示在图 69 的极坐标中，平均值以红色实心三角表示并以实线连接极点。对 Φ_1 ， Φ_2 ， Φ_3 ，和 Φ_4 的四个量子态输出克隆的相位测量结果分别为 $50.4^\circ \pm 1.9^\circ$ ， $124.3^\circ \pm 1.7^\circ$ ， $-48.3^\circ \pm 3.3^\circ$ 和 $-140.3^\circ \pm 2.9^\circ$ 。

可见四个量子态克隆前后的相位变化分别为 $+5.8^\circ$ ， -3.9° ， -0.6° 和 -1.9° 。从图 69 中蓝色实线与红色实线之间的偏移，我们判断这一实验误差是可以接收的，在合理范围内。总体上在克隆过程中，相位信息得到了很好的保存。

7.5.3 布居测量实验结果

为了确定克隆过程保真度，不仅要测量相位信息还需要测量量子态的布居信息。由于输出态为 $(|0\rangle + |-1\rangle)/2 + e^{i\varphi}|+1\rangle/\sqrt{2}$ 形式，因此理论上输出克隆的 $|0\rangle$ 布居为 25%， $|+1\rangle$ 布居为 50%， $|-1\rangle$ 布居为 25%。以量子态 Φ_1 为例，我们同样进行了五次布居测量。由 $|0\rangle$ 与 $|+1\rangle$ 子空间得到的测量结果为， $|0\rangle$ 布

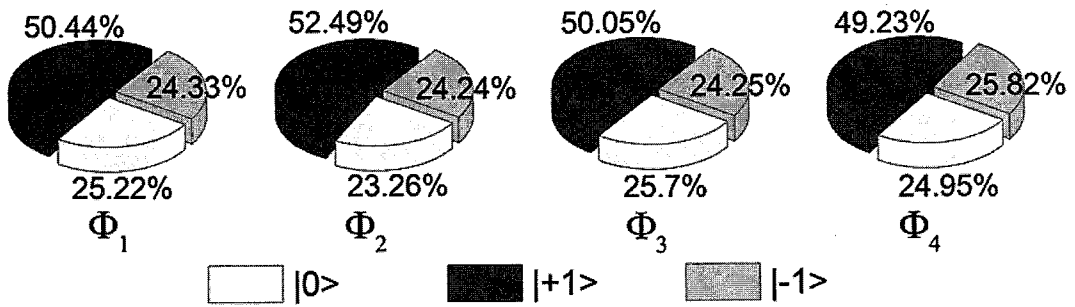


图 80 布居测量实验结果

对四个输入态 Φ_1 ， Φ_2 ， Φ_3 ，和 Φ_4 的布居测量实验结果，其中黄色为 $|0\rangle$ 布居，红色为 $|+1\rangle$ 布居，绿色为 $|-1\rangle$ 的布居。

居占(25.4 ± 1.3)%, $|+1\rangle$ 布居占(51.1 ± 2.1)%。由 $|0\rangle$ 与 $|-1\rangle$ 子空间得到的测量结果为, $|0\rangle$ 布居占(25.9 ± 0.8)%, $|-1\rangle$ 布居占(24.7 ± 1.5)%。综合两者结果归一化以后, 得到测量结果显示在图 70 中。其中黄色为 $|0\rangle$ 布居占25.22%, 红色为 $|+1\rangle$ 布居占50.44%, 绿色为 $|-1\rangle$ 布居占24.33%。类似的对于量子态 Φ_2 , $|0\rangle$ 布居占23.26%, $|+1\rangle$ 布居占52.49%, $|-1\rangle$ 布居占24.24%; 对于量子态 Φ_3 , $|0\rangle$ 布居占25.7%, $|+1\rangle$ 布居占50.05%, $|-1\rangle$ 布居占24.25%; 对于量子态 Φ_4 , $|0\rangle$ 布居占24.95%, $|+1\rangle$ 布居占49.23%, $|-1\rangle$ 布居占25.82%。总体上, 以上布居测量结果都与预期值吻合很好。

7.6 密度矩阵与保真度

在上一节中我们得到了相位测量和布居测量结果, 这一节我们利用上述结果还原量子态的密度矩阵, 即完成量子态层析成像 (state tomography), 并计算评估整个克隆过程的保真度。

7.6.1 克隆输出态的密度矩阵

理论上克隆输出态的形式为输出态为 $(|0\rangle + |-1\rangle)/2 + e^{i\varphi}|+1\rangle/\sqrt{2}$ 。由于所有实验中 $|-1\rangle$ 的相对相位一直被固定为 0° , 在不考虑退相干的情况下我们可以将实验上的输出态表示为 $\alpha|0\rangle + \beta e^{i\varphi}|+1\rangle + \gamma|-1\rangle$, 其中 $\alpha^2 + \beta^2 + \gamma^2 = 1$ 。根据欧拉公式 $e^{i\varphi} = \cos \varphi + i \sin \varphi = x + iy$, 将输出态改写为 $\alpha|0\rangle + \beta(x + iy)|+1\rangle + \gamma|-1\rangle$ 。考虑退相干的情况下, 其中并不保证 $x^2 + y^2 = 1$ 。与上一节的实验结果对应有, $|0\rangle$ 布居占 α^2 , $|+1\rangle$ 布居占 β^2 , $|-1\rangle$ 布居占 γ^2 。而相位实验结果 P_x^* 对应 $(\alpha^2 + \beta^2)x$, P_y^* 对应 $(\alpha^2 + \beta^2)y$ 。由此我们得到克隆输出态的密度矩阵为:

$$\begin{bmatrix} \alpha^2 & \alpha\beta(P_x^* - iP_y^*)/(\alpha^2 + \beta^2) & \alpha\gamma \\ \alpha\beta(P_x^* + iP_y^*)/(\alpha^2 + \beta^2) & \beta^2 & \beta\gamma(P_x^* + iP_y^*)/(\alpha^2 + \beta^2) \\ \alpha\gamma & \beta\gamma(P_x^* - iP_y^*)/(\alpha^2 + \beta^2) & \gamma^2 \end{bmatrix}.$$

根据上述结论, 我们可以得到 Φ_1 , Φ_2 , Φ_3 , 和 Φ_4 四个量子态的密度矩阵, 我们将其展示在图 71 中。密度矩阵的对角元素与图中是一一对应的, 其中黄色表示 $\rho_{0,0}$ 元素, 红色表示 $\rho_{+1,+1}$ 元素, 绿色表示 $\rho_{-1,-1}$ 元素。由于密度矩阵是

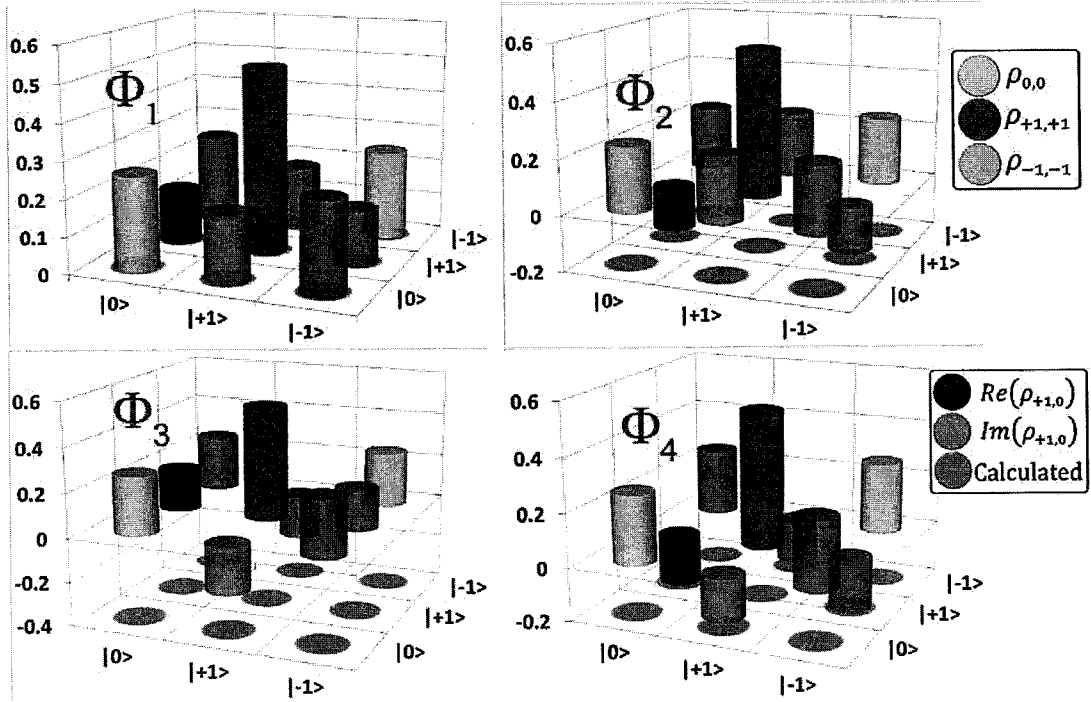


图 81 克隆输出态的密度矩阵

Φ_1 , Φ_2 , Φ_3 , 和 Φ_4 四个量子态的密度矩阵, 其中黄色表示 $\rho_{0,0}$ 元素, 红色表示 $\rho_{+1,+1}$ 元素, 绿色表示 $\rho_{-1,-1}$ 元素。非对角元素中深蓝色对应实部 $\text{Re}(\rho_{+1,0}) = (\rho_{0,+1} + \rho_{+1,0})/2$, 水蓝色对应虚部 $\text{Im}(\rho_{+1,0}) = (\rho_{+1,0} - \rho_{0,+1})/2$, 其他棕色为与 $|-1\rangle$ 相关的非对角元。

共轭的, 因此我们可以将非对角元的实部和虚部在同一个图中展示出来, 图中深蓝色的对应实部 $\text{Re}(\rho_{+1,0}) = (\rho_{0,+1} + \rho_{+1,0})/2$, 图中水蓝色对应虚部 $\text{Im}(\rho_{+1,0}) = (\rho_{+1,0} - \rho_{0,+1})/2$, 其他与 $|-1\rangle$ 相关的非对角元类似方法处理。总体上图 71 中各元素对应关系为:

$$\begin{bmatrix} \alpha^2 & \alpha\beta P_x^*/(\alpha^2 + \beta^2) & \alpha\gamma \\ \alpha\beta P_y^*/(\alpha^2 + \beta^2) & \beta^2 & \beta\gamma P_y^*/(\alpha^2 + \beta^2) \\ \alpha\gamma & \beta\gamma P_x^*/(\alpha^2 + \beta^2) & \gamma^2 \end{bmatrix}.$$

7.6.2 克隆保真度

将克隆过程完成后的物理输出态按照 7.3.1 节给出的编码方案进行解密得到逻辑输出态, 由此我们可以计算输入态与完成克隆后克隆拷贝之间的保真度。克隆过程的物理输出态为 $|\text{Output}\rangle = (|0\rangle + |-1\rangle)/2 + e^{i\varphi}|+1\rangle/\sqrt{2}$, 解码后逻辑输出态为 $|\text{Output}\rangle_l = (e^{i\varphi}|01\rangle_l + e^{i\varphi}|10\rangle_l)/2 + |00\rangle_l/\sqrt{2}$ 。首先求出逻辑输

出态的 4×4 密度矩阵，然后分别对两个量子比特求迹除掉另一比特的自由度，我们可以分别得到两个拷贝的 4×4 密度矩阵 ρ_1 和 ρ_2 。在实验过程中，我们注意到在完成输入态制备进行测量时，得到的 P_x 和 P_y 由于退相干其平方和小于1^[192]。因此我们将 $(P_x)^2 + (P_y)^2$ 归一化到1，并按照比例对克隆结束后相位测量的结果 P_x^* 和 P_y^* 进行了补偿。我们将补偿后计算得到的两份拷贝密度矩阵记为 ρ_1^c 和 ρ_2^c 。按照保真度的计算公式，两份拷贝的保真度分别为 $F_1^c = \langle \psi | \rho_1^c | \psi \rangle$ 和 $F_2^c = \langle \psi | \rho_2^c | \psi \rangle$ ，其中 $|\psi\rangle = (|0\rangle + e^{i\varphi}|1\rangle)/\sqrt{2}$ 为输入态。我们对 Φ_1, Φ_2, Φ_3 ，和 Φ_4 四个分别计算了其两份拷贝的保真度。对于量子态 Φ_1 ， $F_1^c = 78.5\%$ ， $F_2^c = 78.0\%$ ；对量子态 Φ_2 ， $F_1^c = 79.7\%$ ， $F_2^c = 80.3\%$ ；对量子态 Φ_3 ， $F_1^c = 84.6\%$ ， $F_2^c = 83.0\%$ ；对量子态 Φ_4 ， $F_1^c = 79.0\%$ ， $F_2^c = 79.5\%$ 。平均对量子态 Φ_1 保真度为78.3%；对量子态 Φ_2 保真度为80.0%；对量子态 Φ_3 保真度为83.8%；对量子态 Φ_4 保真度为79.2%。整体上实验保真度为80.3%。

对于相位协变量子克隆机，提取出相对布居信息和相位信息 φ 就已经足够。因此我们可以假设实验过程中的相位退相干可以忽略，将相位幅度衰减全部进行补偿还原，单独计算克隆过程的相位保真度。忽略相位衰减以后两份拷贝的保真度为 $F_1 = \langle \psi | \rho_1 | \psi \rangle$ 和 $F_2 = \langle \psi | \rho_2 | \psi \rangle$ 。计算后的结果展示在图 72 中，其中蓝色和绿色为对两份拷贝各自保真度，粉色为总体保真度。对量子态 Φ_1 ， $F_1 = 84.9\%$ ， $F_2 = 84.3\%$ ；对量子态 Φ_2 ， $F_1 = 84.6\%$ ， $F_2 = 85.3\%$ ；对量子态 Φ_3 ， $F_1 = 85.9\%$ ， $F_2 = 84.8\%$ ；对量子态 Φ_4 ， $F_1 = 85.0\%$ ， $F_2 = 85.6\%$ 。平均对量子态 Φ_1 保真度为84.6%；对量子态 Φ_2 保真度为85.0%；对量子态 Φ_3 保真度

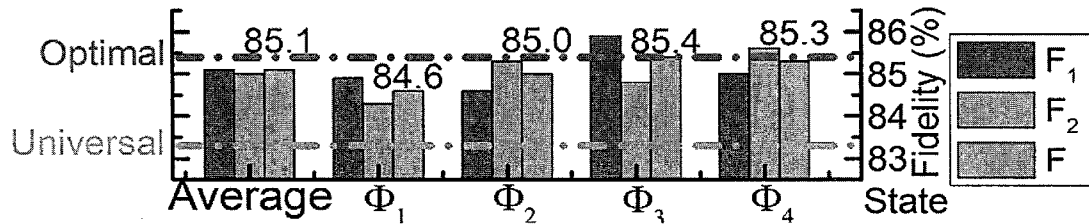


图 82 相位克隆保真度

Φ_1, Φ_2, Φ_3 ，和 Φ_4 四个量子态以及平均的克隆保真度，其中蓝色和绿色为对两份拷贝各自保真度，粉色为总体保真度。该优化克隆机机的理论保真度为85.4%，超出了通用量子克隆机的保真度上线83.3%。

为85.4%；对量子态 Φ_4 保真度为85.3%。整体上实验保真度为85.1%，与理论预期值85.4%很接近，说明我们成功实现了该优化相位量子克隆方案。

7.7 小结

在这一章中，我们第一次在由纳米金刚石构成的固态自旋体系中，演示了室温下全相位可控的量子相位克隆机。纳米金刚石有很多便于长远应用的优点，但是它的退相干解相时间比较短，也带来了许多挑战。我们通过制备共面波导天线来提高微波的传输效率，更高的拉比振荡频率使我們可以在系统退相干之前实施更多的操作。在这一章的实验中，微波相位得到了精确的全面控制，同时量子态的相位也实现了准确的测量。利用这些技术发展作为基础，我们在我们的纳米金刚石氮空位中心系统实施了这一优化相位协变量子克隆机。实验结果采用了更准确的标准量子态层析成像方法。由于退相干导致的相位幅度衰减造成平均的实验保真度只有理论值的94%即80.3%。这一问题后续可以通过选择具有较好相干时间的氮空位中心，进一步提高操控速度以及采用动力学解耦技术等来改善^[104, 193-195]。对于相位克隆机，我们可以基于相位衰减可以忽略的假设，仅提出相对布居和相位信息 ϕ 来评估相位保真度。通过这种方式得到的相位保真度平均为85.1%，如图 72 所示，很接近理论预期值85.4%，超出了通用量子克隆机的保真度上限83.3%。实验中我们选取的几个克隆对象可以被用作量子密钥分发中的 BB84 态。因此这一高保真度克隆对分析量子密钥分发的安全性可以发挥重要作用。这一实验的缺点是两个逻辑比特被编码到一个自旋三重态系统中。一种可能的解决方案是利用氮空位中心的电子自旋和核自旋来编码，但由于两者的相干时间尺度不同会有一定挑战。总体上，对于量子态相位的全面控制和高保真度读取将成为量子信息处理进一步应用的基础之一。在纳米金刚石中实现量子比特的相干操控以及量子克隆机的演示，也为我们展示了可扩展量子信息处理器件的美好前景。⁶

⁶ 本章结果发表在: **Chang YC**, Liu GQ, Liu DQ, Fan H, Pan XY*. “Room-temperature quantum cloning machine with full coherent phase control in nanodiamond”, Scientific Reports 3, 1498 (2013).

第八章 总结与展望

下面对本论文的主要内容做一下回顾总结：

首先在前两章对量子信息发展历程和基本概念、金刚石中氮空位中心的研究概况和基本性质做了介绍。在第三章中对本文采用的主要研究方法即光学探测磁共振技术进行了介绍。具体包括光磁共振谱、拉比振荡等氮空位中心电子自旋、核自旋的量子操控手段，以及自由感应衰减(FID)、自旋回波(spin echo)等相干性质的表征手段。之后介绍了本文实验所使用的仪器平台，即实验室自主搭建的光学探测磁共振平台。

之后的几章是论文的主体部分，主要介绍了围绕金刚石中氮空位中心自旋相干性质与量子操控进行的一些研究结果。在第四章我们从量子操控的技术手段入手，介绍一种微波脉冲操控技术，即 REBURP 形状化脉冲，大幅度提高了量子操控的保真度。这种脉冲在设定的宽带激发区域内几乎具有一样的激发效果，并很好的抑制了区域之外的非共振激发，上升下降的过渡也很陡直。这些自旋响应特性通过对氮空位中心电子自旋超精细谱进行频率扫描实验得到了验证。而在多次翻转实验中，REBURP 形状化脉冲在可持续翻转次数以及二次翻转效率等方面都比传统的方波脉冲具有明显优势。根据实验结果，通过引入形状化脉冲技术可以将多次量子操控的保真度提升两倍以上。这一通用技术易于实施，实验应用稳健，可在多种物理体系得到使用。并且在量子信息处理、量子探测、量子度量等应用领域都可以成为不错的选择。

目前在与超导量子比特等系统构成复合量子比特系统，以及进行量子探测成像等应用领域中，氮空位中心集群样品都具有着重要的应用价值，接下来在第五章中我们对集群氮空位中心的退相干机理进行了一定的实验研究。实验中样品的相干时间 T_2 较长，自旋回波信号中周期性消失重现现象明显，表明 ^{13}C 核自旋环境带来的局域场涨落确实对该样品电子自旋退相干影响很大。但当 P1 中心与氮空位中心电子自旋发生共振时，P1 中心自旋会跟随氮空位中心电子自旋同步被自旋回波码型中 π 脉冲反转。这种情况下，自旋回波码型不再能压制 P1 自旋环境造成的影响，而 ^{13}C 核自旋环境的涨落依然可以被抑制。此时 P1

自旋环境的影响导致相干时间 T_2 大幅衰减。虽然评估出的 P1 中心自旋环境的影响强度在整个环境只占百分之一左右,但通过外磁场调节或者施加控制脉冲,可以观测到了不同自旋环境的可控竞争。我们进一步在氮空位中心单点样品也观察到了类似现象。这些实验结果表明即使在 IIa 型样品中, P1 中心自旋的影响也是不可忽略的, 甚至某些情况下会变得非常显著。该实验现象的研究将促进对氮空位中心自旋退相干机制的进一步认识, 也将对集群氮空位中心在复合量子比特、量子探测成像等领域的应用产生帮助。

相干性是发挥量子并行计算优越性的基础, 如何延长系统相干时间, 是量子信息研究的一个重要领域。在第六章中我们提出了一种增强相干时间的新方案, 通过选择性窄带激发非均匀展宽进行激发, 并发挥集群样品集聚优势增强信号。实验中我们使用弱功率微波驱动的一系列拉比振荡, 验证了选择性窄带激发能够延长操控时间。但窄带激发在抑制非均匀展宽效应的同时, 信号幅度也大幅度衰减使得单自旋无法实际应用该方案。于是我们利用自旋集群的集聚优势实现信号增强, 取向倾向性样品以及 ESLAC 核自旋极化也被用于信号的进一步提高。但量子操作使用弱功率微波脉冲耗时较长, 仅仅使用窄带激发无法退相干时间与操控速度之比无法得到改善。我们借助氮空位中心三能级结构, 使用辅助子空间和踢出脉冲改进实验方案。接下来利用自由感应衰减对该方案进行定量评估中, 我们随着减弱选择性脉冲, 电子自旋退相干时间 T_2^* 也实现了大幅延长, 最长达到了几十倍以上延长。这一相干性增强方案发挥了集群样品集聚优势, 开拓了集群样品在量子信息处理, 量子探测成像, 量子度量学等领域的应用, 为自旋相干性的延长提供了一种新途径。

量子密钥分发是量子保密通讯的重要组成部分, 而其理论基础是不可克隆原理, 量子克隆机可以用于分析量子保密通讯的安全性。在第七章我们利用纳米金刚石中的氮空位中心, 在室温下进行了全相位可控的相位协变克隆机实验演示。在实验中实现了对微波相位的精确全面控制, 以及对量子态相位的准确测量。以此为基础利用优化量子相位克隆机编码方案, 对可用作量子密钥分发的四个 BB84 态进行了量子克隆, 实验结果以量子态层析成像方法给出。提出克隆输出态的相对布居以及相位 ϕ 信息还原出量子态密度矩阵。进一步计算出的相位保真度平均可以达到 85.1%, 很接近理论上给出的预期值 85.4%, 超过了通用量子克隆机的克隆保真度上限 83.3%。实验中我们选取的几个克隆对象

可以被用作量子密钥分发中的 BB84 态。这一高保真度的量子克隆的实现，对于量子密钥分发安全性的分析可以发挥重要作用。对量子态相位的进行全面控制和精确读取是量子信息处理的基础之一，同时纳米金刚石的应用也展示了可扩展量子信息处理的前景。

综上所述，我们对金刚石中氮空位中心集群自旋的相干性质进行了一系列研究，对氮空位中心的量子操控过程提出了一些优化和改进方案，并展示了一项利用氮空位中心系统进行量子信息处理的一项具体应用。这些研究结构将促进氮空位中心的广泛应用，例如物理量的量子度量，量子探测与成像，与其他量子比特系统耦合构成复合量子比特进而实现可扩展量子计算等领域。

量子信息作为一门新兴的交叉学科，吸引了世界范围内的研究力量，取得了很多阶段性的研究成果^[36, 37, 54, 57, 196, 197]。目前量子通讯已经逐渐走出了实验室，走向实用化甚至已经开始迈向商业化^[198-200]。与之相比，量子计算的研究可能还有很长的路要走。在量子计算的物理实现过程中面临的困难主要集中在两个方面，即可扩展性和退相干抑制^[75]。量子比特系统的可扩展性，一般依赖于量子比特之间的耦合作用。而易于耦合的体系一般也较容易受到周围环境影响，从而造成较快的退相干时间。在物理上实现量子计算需要在体系在退相干之前，可以完成足够多的相干操作^[75, 76, 79, 80]。应对退相干问题的途径主要有动力学解耦技术^[104, 201, 202]，量子纠错方案^[203-205]，自旋环境的动力学极化^[160, 161, 206, 207]，免退相干子空间理论等^[208-210]。实现可扩展量子计算的一种途径是利用不同量子比特系统构成复合量子比特系统，实现不同系统的优势互补。金刚石中氮空位中心与超导量子比特，是近年来受到关注的复合量子比特系统构成方案之一^[57, 58, 135, 147]。氮空位中心相干时间较长可以用于信息存储，而超导量子电路易于扩展并且操控较快可以用于量子操作。中国科学院物理研究所固态量子信息与计算实验室，同时具备金刚石氮空位中心与超导量子比特研究小组，实现并优化两种体系之间的可控耦合是后续的一个重要努力方向。