使用扩展速率方程模型探索室温金刚石微波激射器的自旋动力学

Yongqiang Wen，[1,2] Philip L. Diggle，[1,2] Neil McN. Alford，[1,2] 和 Daan M. Arroo[1,2*]1)帝国理工学院材料系，英国伦敦 *Exhibition Road，SW7 2AZ*2)伦敦纳米技术中心，英国伦敦 *Gordon Street 17-19*号，*WC1H 0AH*

（*电子邮箱：d.arroo14@imperial.ac.uk）

（日期：2023年4月10日）

微波激射器——激光器的微波对应物——是相干微波源，可用作振荡器或量子极限放大器。微波激射器历来需要在高真空和低温下运行，但近期研究已证明，基于金刚石的微波激射器可在室温和常压下运行，从而为其作为超低噪声微波放大器应用于新领域开辟了道路。要使这些新应用能够大规模实现，必须优化金刚石微波激射器：在减小尺寸、最大化增益的同时，提高可放大信号的最大输入功率。在此，我们建立并数值求解扩展速率方程模型，以详细描述微波激射动力学的现象学特征，并确定腔、谐振器和增益介质所需的最佳性质，从而开发便携式微波激射器件。最后，我们提出了优化金刚石微波激射器所用金刚石增益介质和介质谐振器材料参数的方法，并探讨了如何进一步发展速率方程模型，以纳入温度和氮浓度对自旋寿命的影响。

arXiv:2304.03217v2 [cond-mat.mtrl-sci] 7 Apr 2023

探索使用扩展速率方程模型的室温金刚石微波激射器自旋动力学

I. 引言

由于具有较长的自旋弛豫时间，金刚石中的带负电氮-空位缺陷中心（NV^-）[1,2] 已被广泛用作室温量子材料，用于量子计量[3–5]、通信和量子信息处理[6–9]。近年来，其应用范围已扩展到激光器的微波对应物，即所谓的微波激射器。尽管微波激射器在低噪声微波放大方面无可匹敌，但由于其运行所需的高真空和低温条件，历史上仅限于深空通信和射电天文学等小众应用。因此，基于有机[10–13] 和无机[14–18] 增益介质的室温微波激射器的成功演示，为广泛应用微波激射器作为超低噪声微波放大器开辟了道路。除射电天文学和通信技术中的现有应用外，微波激射器对于许多量子技术所必需的低功率微波信号处理也日益受到关注[19]。在后一个方面，微波激射器或许比目前用于此类应用的约瑟夫森参量放大器更具优势，后者动态范围有限且容易饱和[20]。

NV^- 缺陷是一个$S = 1$ 自旋中心，可以使用一个由基态三重态和激发态三重态组成的简单哈密顿量来描述。NV^- 缺陷可以通过波长为637纳米或更短的激光脉冲被光激发至激发态三重态，随后它们可以通过自旋守恒的辐射衰减，或通过自旋选择性的非辐射衰减进行弛豫；后者的净效应是优先将电子从激发态$m_s = \pm 1$态经由亚稳态单重态转移至$m_s = 0$ 基态，如图1所示。这些自旋选择性跃迁意味着NV^- 中心可以通过光学方式进行控制和读出。该缺陷具有较长的T_1 自旋-晶格弛豫时间（最长可达6ms[21]）和T_2 自旋-自旋弛豫时间（在同位素纯化的 ^{12}C金刚石中为1.8ms[22], 0，在具有天然丰度^{13}C同位素的金刚石中为[23]），在室温下尤其如此。正是这些特性使得NV^- 缺陷系综可用作室温微波激射器的增益介质，以及激光器[24]的增益介质。微波激射阈值泵浦率与$(T_1(C-1))^{-1}$成正比，其中$C = 4g^2N/(\kappa_c\kappa_s)$是协作性，$g$是每个自旋与腔场之间的耦合强度，$N$是自旋数量，$\kappa_c$ 是腔损耗率，κ_s 是自旋的退相位率，而T_1 是自旋-晶格弛豫时间[15]。微波激射频率由$m_s = 0$ 能级与$m_s = -1$能级之间的能量差决定，因此，微波激射频率可以通过外部磁场借助塞曼效应进行调谐[3,25]。

尽管室温金刚石微波激射器的实验演示和表征令人印象深刻[15,17,18]，但在解决诸如制备含有足够数量NV^-中心的金刚石增益介质、高品质因数腔、强且均匀的外部磁场以及与NV^-轴对齐等技术难题之前，金刚石微波激射器的广泛应用仍将面临挑战[26]。在此，我们使用扩展速率方程模拟，研究微波激射器性能如何取决于金刚石增益介质和介电谐振器的特性。

具体而言，我们将有时用于模拟 NV^- 色心[16] 光物理过程的标准一阶速率方程，扩展为一组耦合的二阶方程，并将腔内光子数纳入其中。扩展后的二阶速率方程纳入了腔内光子数，因此可以显式模拟 NV^- 色心在不同能态下的布居数以及光子数随时间的演化。我们利用这些速率方程，模拟波长为 532 nm 的光学抽运下 NV^- 色心的自旋动力学。结果展示了随腔的加载品质因数和谐振器的模体积等参数变化的微波激射动力学。除了有助于室温金刚石微波激射器的设计，本文提出的扩展速率方程还可用于描述微波模式冷却器件[11] 以及基于金刚石中 NV^- 色心[27]的量子热机。

II. 理论模型

NV^- 电子能级的布居数可由图 1 所示的七能级模型描述，其中能级 1 和 4 分别对应 $m_s = 0$ 态，而能级 2、5 和 3、6 分别对应$m_s = -1$ 和$m_s = +1$ 。在光学激发作用下，不同 NV^- 自旋缺陷态的自旋动力学通过基于七能级模型、采用扩展布洛赫方程形式[28,29]建立的速率方程进行描述。在该模型中，激光分别将电子从基态子能级 1、2 和 3 抽运至激发态子能级 4、5 和 6，且均具有相同的光学抽运强度 Ω_l。激光泵浦强度定义如下。

$$\Omega_l = \mathscr{E}\mathbf{D_{ij}}/\hbar \tag{1}$$

其中，$\mathscr{E}$是激光的电场，$\mathbf{D_{ij}}$ 是能级i 与能级j之间诱导跃迁的偶极矩，例如基态三重态与激发三重态。当使用532纳米的绿光激发NV^- 自旋缺陷，使其从基态的1、2和3号自旋子能级跃迁时，缺陷会“越过”跃迁至相应的激发态子能级

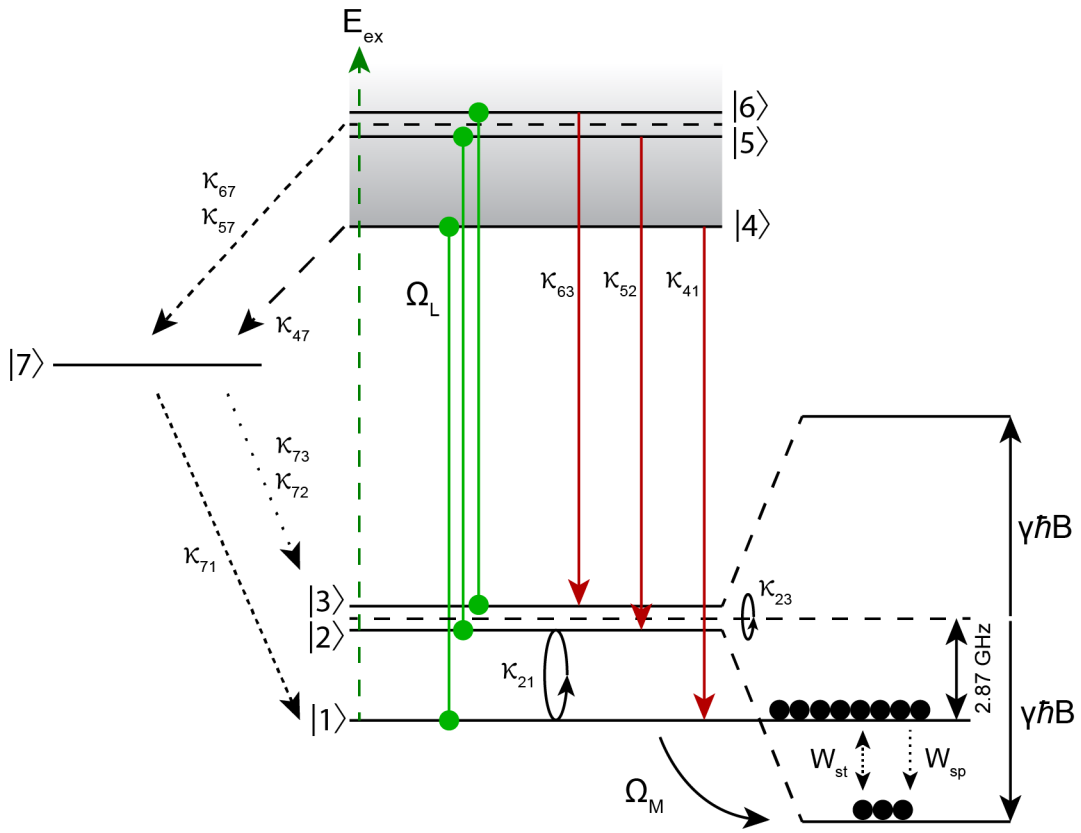


图 1. 该图展示了七能级模型的能级、衰减率和泵浦速率。第 4、5 和 6 级中的激发态声子带以绿色区域表示。绿色虚线表示 532纳米激光，它将布居数泵浦至声子带；绿色实线则表示由泵浦强度 Ω_l 表示的跃迁。 Ω_m 表示微波激发。i 表示能级，κ_{ij} 表示从能级 i 到能级 j 的布居数耗尽率， $\gamma\hbar B$ 表示塞曼分裂，W_{st} 和 W_{sp} 分别表示受激发射率和自发发射率。虚线表示的速率大于点线表示的速率，线中的虚线或点越多，速率越高。

随后以非辐射方式弛豫至由能级4、5和6表示的激发态声子基态。由于声子弛豫通常比光泵浦速率快得多，因此跃迁 $1 \rightarrow 4$、 $2 \rightarrow 5$ 和 $3 \rightarrow 6$ 采用共同的速率，记为 Ω_l。从激发态出发，NV^- 中心既可以通过自发发射637纳米光子而发生辐射衰减（以红线及相应的衰减率表示），也可以通过系间窜越发生非辐射衰减，我们用单重态7表示这一过程。

激发态的布居数随后以衰减率 κ_{41}、 κ_{52} 和 κ_{63} 衰减回相应的基态子能级。此外，激发能级的布居数也会衰减至

单重态，即能级 7，其跃迁速率分别为 κ_{47}、 κ_{57} 和 κ_{67}。能级 5 和能级 6 的布居数更容易跃迁到单重态，速率分别为 κ_{57}、 $\kappa_{67} \gg \kappa_{47}$。能级 7 的布居数以速率 κ_{71} 衰减回能级 1，并以速率 κ_{72} 和 κ_{73} 衰减至能级 2 和能级 3。此外，由于各能级之间的能量差很小，在室温下处于热平衡时，能级 1、能级 2 和能级 3 的布居数大致相等。任何自旋极化都会以纵向弛豫速率 κ_{21} 去极化。因此，速率方程构成了以 7 能级 Jaynes-Cummings 哈密顿量为基准表示的密度矩阵元的运动方程。

$$\mathscr{H} = \sum_{i=1}^{7} \hbar\omega_i |i\rangle\langle i| + \hbar\Omega_m (|1\rangle\langle 2| + |2\rangle\langle 1|) + \hbar\Omega_l \sum_{\substack{i=1,2,3 \\ j=4,5,6}} (|i\rangle\langle j| + |j\rangle\langle i|) \tag{2}$$

其中 ω_i 是$i$th能级的频率， $|i\rangle$是NV^- 中心的， ω_m 是微波激发强度， Ω_l 是光场的耦合强度，即由激发激光在NV^- 处的电场振幅以及NV^- 中心基态到激发态的跃迁偶极矩所确定的泵浦强度。

速率方程可以通过取哈密顿量的矩阵元推导得到。各能级之间的衰减率被添加到对角项中，用于表示布居数；而退相位项被添加到非对角项中，用于表示相干性。光子数被视为一个二阶速率方程，该方程取决于热光子的数量以及自发和受激跃迁速率。这些附加项使速率方- 程能够得到扩展，例如通过自发和受激发射率的影响扩展工作频率，以及相干项中的退相位和失谐项；这些相干项描述自旋与腔场之间的相干性以及该模型的光谱特性。

完整的矩阵方程见附录A。使用[27], 中报告的速率，采用 RK45方法和隐式后向微分方法[30] 对其进行数值求解，以模拟金刚石微波激射器的时间演化。

一般而言，NV^- 基态和激发态的偶极矩可能取决于特定金刚石样品中的应变大小

表 I. 用于描述腔中 NV^- 中心系综时间演化的跃迁速率，以生成图 3–8 所示结果。数值基于文献[27]中的实验结果。

参数	数值（MHz）
$\kappa_{41}=\kappa_{52}=\kappa_{63}$	65.9
$\kappa_{57}=\kappa_{67}$	53.3
κ_{47}	7.9
κ_{71}	0.98
$\kappa_{72}=\kappa_{73}$	0.73
$\kappa_{21}=\kappa_{23}$	2×10^{-4}

，但在这些模拟中，我们使用的偶极矩为 5.2 C·m，该数值根据荧光寿命[31]估算得出。电场振幅由 NV^- 中心处可用的激光泵浦功率决定，同时还取决于吸收偶极矩方向、激光偏振和激光光斑大小。

III. 微波激射器模拟

当施加约 102.5 mT 以上的磁场，且$m_s=-1$ 态能量低于$m_s=0$ 态时，可使用七能级速率方程预测微波激射的运行。光学抽运使$m_s=0$ 态极化，从而实现粒子数反转。布居数会通过自旋-晶格弛豫在$m_s=0$ 态与$m_s=-1$ 态之间交换，以维持热平衡，交换速率为 κ_{12}；此外，自发发射和受激发射也会导致光子发射过程。布居数会通过自旋-晶格弛豫和受激吸收，从$m_s=-1$ 态激发至$m_s=0$ 态。在微波（MW）频谱中，自旋-晶格弛豫速率约为 10^2 Hz，远高于自由空间中的自发发射率，后者约为 10^{-13} Hz[32]。激发自旋优先通过自旋弛豫机制将能量传递给晶格，从而弛豫。自由空间中自发发射的微波光子可以忽略不计。自发发射率与爱因斯坦系数**A** 和**B**有关；这两个系数从现象学角度描述自发发射和受激发射过程的速率，并且可以通过普赛尔效应增强。增强幅度正比于加载品质因数，反比于模体积Q/V_m，而该关系

这体现于微波激射系统的品质指标——协作性C中；其中，$C > 1$ 可视为实现微波激射的必要但非充分条件[15]。

从一个态i 到另一个态 j 的跃迁速率由相应两个态的磁偶极矩阵元决定，$\mathbf{d_{ij}} = \langle i|\mathbf{H}\cdot\mathbf{S}|j\rangle$，其中$\mathbf{H}$为磁场，$\mathbf{S}$ 为自旋矢量；同时还取决于电磁场的态密度，$\rho(\omega)$ as$W \propto |\mathbf{d_{ij}}|^2\rho(\omega)$ $\hbar$。如果将发射体置于腔中，态密度会发生变化，发射速率也会随之增加或降低。速率的变化由珀塞尔因子决定，$F = \frac{3}{4\pi^2}\frac{Q}{V_m}\left(\frac{\lambda}{n}\right)^3$，其中$Q$ 为腔体加载品质因数，c 为光速，ω 为频率，V_m 为模体积，n 为腔内折射率[32]。自发发射速率和受激发射速率均与珀塞尔因子成正比。若要增强给定频率下的自发发射速率，需要较高的品质因数和较小的模体积。珀塞尔因子与频率$F \sim \omega^{-3}$有关，因此，如果模体积没有相对于频率迅速增大，在低频下运行微波激射器或许更有利。根据爱因斯坦系数，受激发射速率和吸收速率与自发发射率相关。

如果将发射体置于腔中，电磁场的态密度会因态数减少而发生改变，从而提高自发发射率。受激发射率为 $\kappa_{st} = \kappa_{sp}u(\nu)c^3\pi^2/h\omega^3$，其中 $u(\nu)$ 是微波场的能量密度，κ_{sp} 是自发发射率。在微波激射模拟中，腔内的初始光子数由热平衡时的热光子数决定，即 $n_{th} = (e^{\hbar\omega/k_BT} - 1)^{-1}$。在 9.22 GHz 和室温下，$n_{th}$ 约为 661。微波光子通过自发发射产生，并触发受激发射和吸收。对于真实的发射过程，退相位和退相干会对速率产生影响，此时态密度由线宽函数 $g(\omega)$ 替代。已知微波的磁场为 $\mathbf{H}$，受激跃迁速率可表示为[34]:

$$W = \frac{1}{4}\left(\frac{2\pi g\mu_0\mu_B\mathbf{H}}{h}\right)^2 g(\omega)\sigma^2 \tag{3}$$

其中 $\sigma^2 = \mathbf{H}^*\cdot\sigma\sigma^*\cdot\mathbf{H}\mathbf{H}^*\cdot\mathbf{H}$可解释为磁化率的归一化虚部。对于与具有正圆偏振的微波场相互作用的二能级系统，σ^2 的最大值为 0.5；而具有负圆偏振的微波场会阻碍自旋进动，因此其值为 0[35]。若磁场能量密度为 $H^2 = nhf\,\mu_0/V_m$，其中 V_m 为模体积，n 为光子数

模态，并且$W = Bn$，则共振时的爱因斯坦**B** 系数为[34]:

$$\mathbf{B} = \frac{1}{4}\left(\frac{2\pi g\mu_B}{h}\right)^2 \frac{\mu_0 T_2^* h f \eta}{V_m} \tag{4}$$

w此处填充因子 η 和模体积V_m 分别定义为

$$\eta = \frac{\int_{sample} |\mathbf{H}|^2 dV}{\int_{mode} |\mathbf{H}|^2 dV} \tag{5}$$

$$V_m = \frac{\int_{sample} |\mathbf{H}|^2 dV}{|\mathbf{H}_{max}|^2} \tag{6}$$

更高的　　填充因子越大，样品与腔模的相互作用就越强。

对于下一节中介绍的结果，使用表 I 和表 II 中的参数。使用有限元软件 CSTMicrowaveStudio，利用公式 (4) 和(5) 估算模体积和填充因子。在 CST仿真中，我们在一个内径为 31mm、高度为 30mm的铜腔中，对一个内径为 5mm、外径为 10 mm 的蓝宝石谐振器进行建模，该谐振器安装在一个高度为 12mm的蓝宝石支柱上。图 2 展示了腔的 $TE_{01\delta}$ 模式的磁场能量密度。B 系数约为 $1.98\times10^{-6}\ s^{-1}$。自发跃迁速率由[35]给出:

$$A = \frac{8\pi^3 \mu_0 f^3 (g\mu_B)^2}{3hc^3} \tag{7}$$

在9.22GHz下，自发发射率约为 $1.57\times10^{-12}\ s^{-1}$，这比受激跃迁速率和自旋弛豫速率慢得多。已知爱因斯坦**A** 和**B**系数后，从能级i 出发的受激发射率简单地表示为$W_{st} = B\rho_{ii}N(\omega)$，其中$N(\omega)$是在频率 ω 下的光子数，而从能级i 出发的自发发射率为$W^{sp} = A\rho_{ii}$。

光学抽运相互作用强度为 10 Hz。初始布居数由玻尔兹曼分布 $e^{\hbar\omega_m/k_BT}$确定，初始光子数为 $(e^{\hbar\omega_m/k_BT}-1)^{-1}$，其中$k_B$为玻尔兹曼常数，$T$ 为温度， ω_m 为腔场的频率，即$m = 0$ 态与$m = -1$ 态之间的频率差。

观察腔内光子数随腔体加载品质因数的变化（图 3），在其他参数固定的情况下，我们可以将微波激射阈值确定为腔内光子数比热布居数高一个数量级的点。微波激射器输出功率（单位为 dBm）可使用 $10\log_{10}((nh\omega_m^2/Q_m)/1\text{mW})$ 进行估算，其中 ω_m 是微波激射器的工作频率，h 是普朗克常数，n 是腔内光子数，而 Q_m 是外部负载的品质因数，可通过 $Q_m = 1/(1/Q_l - 1/Q_u)$ 进行估算，其中 Q_l 和 Q_u 是

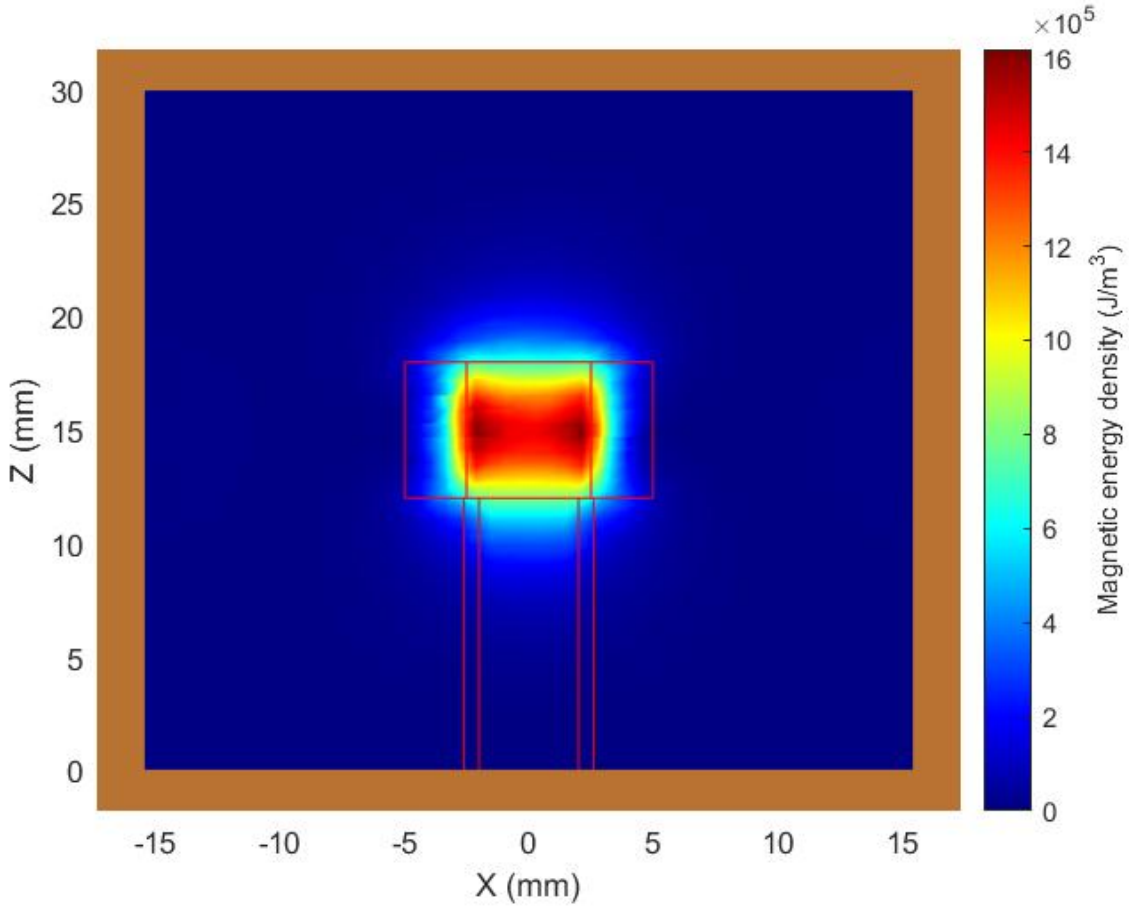


图 2. 使用 CST Microwave Studio 模拟的圆柱形铜腔 $TE_{01\delta}$ 模式磁场的能量密度。红色轮廓显示蓝宝石谐振器和支柱的边界。铜腔壁显示为包围图像的外壳。

加载品质因数和未加载 Q 因子。假设加载 Q（即 x 轴上的品质因数）为 30000，未加载 Q 为 50000，在耦合常数为 0.67 的欠耦合状态下，图中计算得出的微波激射器输出（未经过任何放大器）为 -108.5 dBm。图 3 中的曲线从较低的品质因数开始，此时光子数接近热光子数，这表明没有发生微波激射。随着品质因数增加，光子数也随之增加。达到某一阈值 Q 因子时，光子数显著增加，此处曲线斜率最大。此时，光子发射率高于腔衰减率，因此腔内光子数增加；超过这一点后，微波激射器便可维持运行，因为更高的品质因数意味着腔具有更长的光子寿命。在这种情况下，发射主要由受激过程主导。

表 II. 用于描述腔内 NV^- 中心系综时间演化的速率方程中的可变参数。可用 NV^-的数量、微波激射器频率 ω、退相位时间 T_2^*以及 Q因子取自[15]。其他参数通过 CST Microwave Studio 仿真获得。

参数	数值
N	4×10^{13}
ω	$2\pi\times$ 9.22 GHz
T_2^*	0.5 μs
V_m	0.2 cm^3
Q	30,000
η	0.05
B	432 mT
Ω_l	10 Hz

图4和图5研究了品质因数固定为30,000时，微波激射器在不同泵浦强度下的性能。显然，当泵浦强度约为1 kHz时，微波激射器的运行趋于饱和，此时提高泵浦强度并不会带来进一步改善。如果像图5所示继续增加泵浦功率，当激发泵浦强度超过100 kHz后，光子数会减少。在如此高的泵浦强度下，基态布居数被泵浦至激发态，并积累在单重态 $|7\rangle$ 中，因为其向基态的衰减率 κ_{71}相较于 κ_{63}，κ_{52}，κ_{41}较慢。总体而言，高泵浦强度下参与微波激射的自旋数会减少，从而导致腔内光子数减少。

图6展示了模体积的阈值特性；模体积与珀塞尔因子和协作性成反比。正如预期，较小的模体积会增加腔内参与微波激射的光子数。对于表1和表2中的参数，阈值约为0.3 cm^3, , 而模体积更大时则无法发生微波激射。

图 7 展示了微波激射光子数随泵浦强度和加载品质因数的变化。深蓝色区域表示由于损耗较大且泵浦强度较低，不会发生微波激射效应。第二个区域为深绿色，表示“初始脉泽”区域，此处受激发射开始积累，光子数高于热光子数。在该区域，输入微波激射器的外部微波信号会得到放大，但微波激射器无法作为振荡器运行。在浅绿色区域，微波激射器处于运行状态，其中

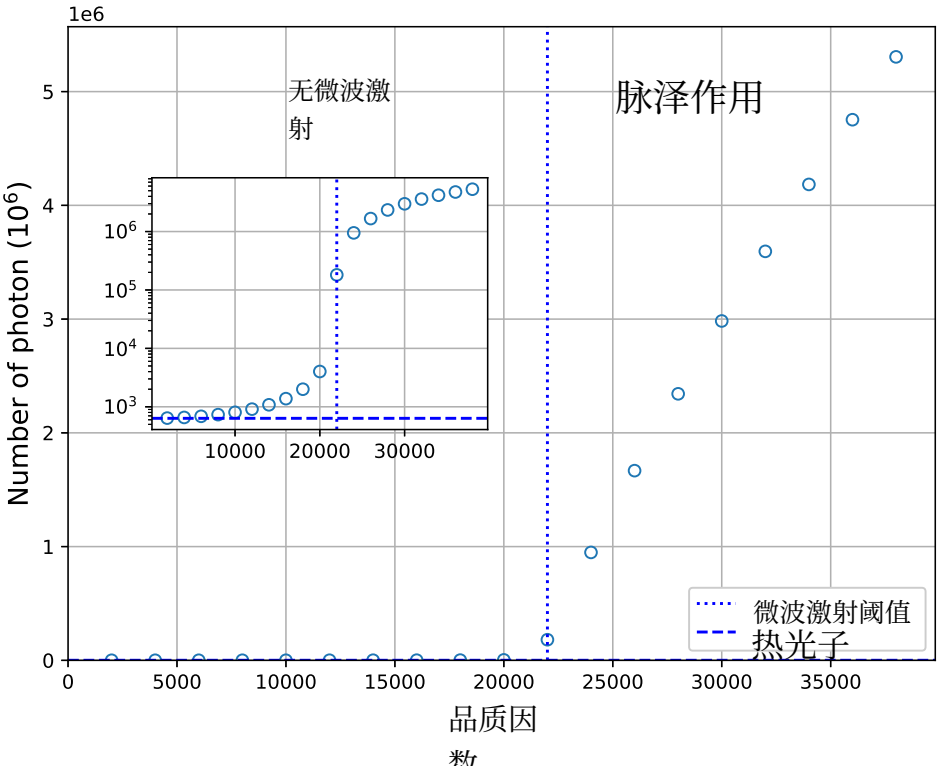


图 3. 稳态光子数随负载腔品质因数的变化。光子数相对于Q 品质因数呈现阈值行为；对于表 I 中列出的参数，微波激射在Q = 22000 左右开始。插图以对数刻度显示了微波激射的开始过程。

受激发射 n 得以维持，器件能够实现自持微波激射振荡。

图 8 展示了腔内光子数随增益介质填充因子的变化，其中填充因子定义为受照射增益介质体积与模体积之比，同样显示出明显的微波激射阈值。结果表明，阈值约为 0.03；超过该值后，腔内维持的光子数显著增加，超过热布居数。随着填充因子接近 1，腔内光子数单调增加。

假设微波激射过程中NV^- 中心的数量保持不变。由于实现微波激射器运行所需的泵浦功率足够低，激光激发导致的NV中心电离和复-合很弱[24,36]，因此这一假设是合理的。同样，假设所有速率均保持不变。实际上，金刚石会被激光加热，这将导致 T_1 时间以及 T_2 时间的缩短。两个相干时间都随温度变化，如 T^5, 而

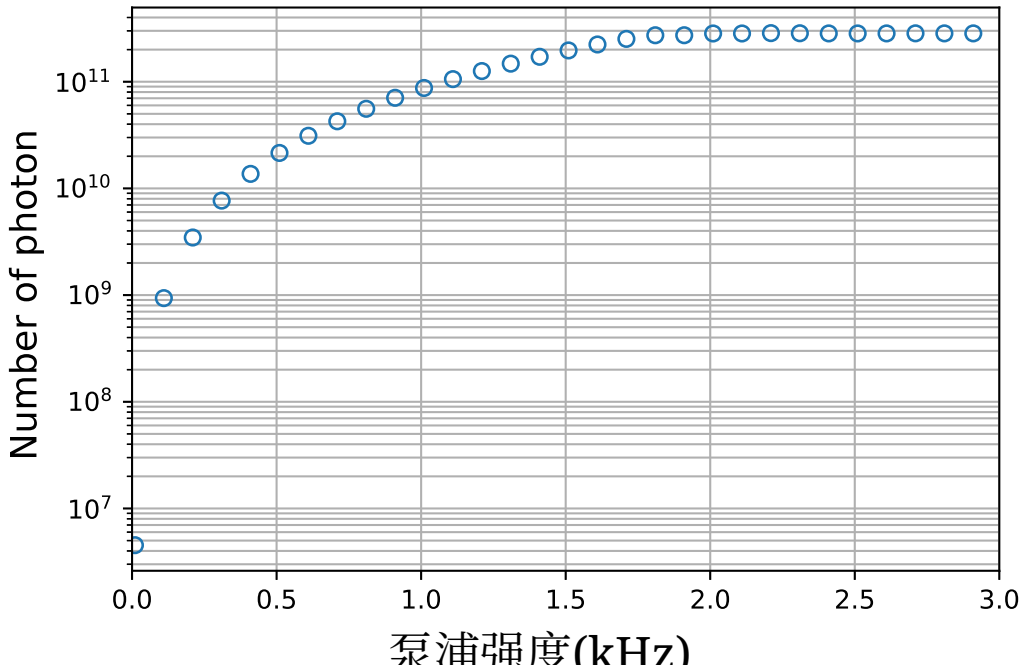


图4.由公式 (1) 定义的稳态光子数随光泵浦强度的变化关系（低泵浦强度下）。对于表I中列出的参数，光子数在泵浦强度约为 1.5 kHz 时达到饱和。

由场不均匀性引起的T_2^*对温度的依赖性很弱[37]。零场分裂也与温度有关[38],，但由于这一效应也很弱，因此在该模型中将其忽略。所有这些温度效应都会使微波激射器线宽增宽。近期一项实验表明，高功率会显著升高温度，尤其是T_1 时间，这会影响增益介质维持粒子数反转的能力，从而使微波激射器作用无法实现[18] 。若能在此处提出的速率方程方法中纳入此类效应，将会很有意义。

对我们的速率方程模型进行进一步有趣的扩展，可以是明确模拟 NV 浓度对 T_2 时间的影响。首先，NV^- 浓度的变化不会影响协作性，因为自旋衰减率 κ_s 与NV^- 浓度成正比，因此协作性中的N/κ_s 因子是恒定的。然而，由于金刚石样品中NV^- 的浓度不仅取决于氮杂质的浓度，还取决于此类杂质转化为氮空位中心的效率，以及两种可能电荷态（NV^- 和 NV^0）的相对布居数，而这两种电荷态中的每一种都可能具有

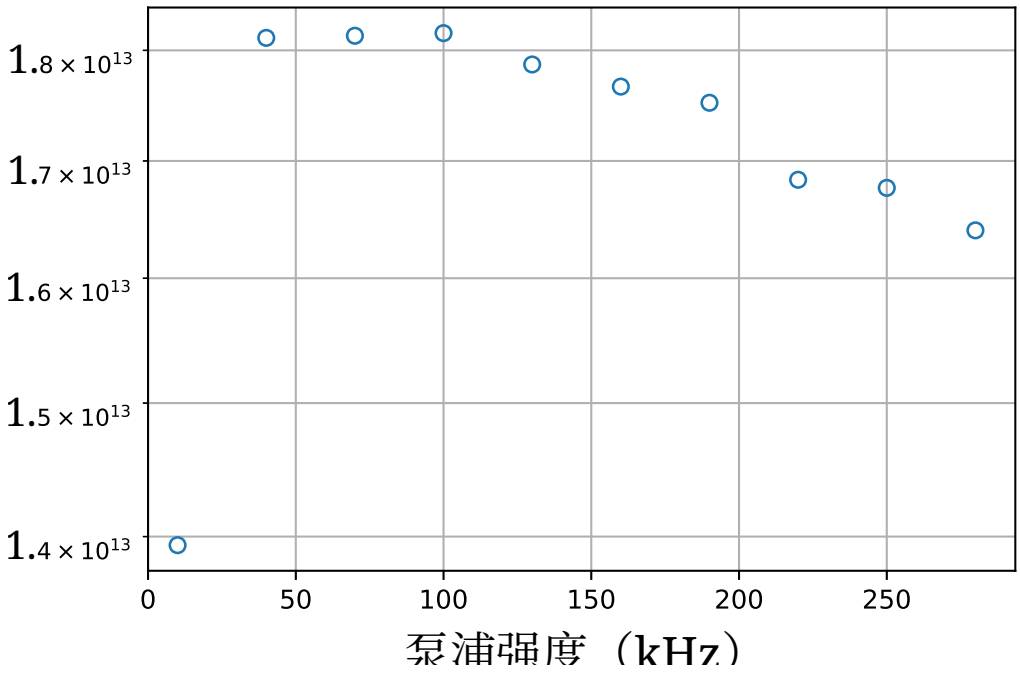


图5. 稳态光子数作为光泵浦强度的函数，其中光泵浦强度由方程定义。

(1)，在高泵浦强度下。对于表 I 中列出的参数，当泵浦强度超过约 100 kHz 时，微波光子数开始减少，因为 NV^- 中心开始积聚在衰减率较慢的 $|7\rangle$态中。这会降低粒子数反转并抑制微波激射器的作用。

对自旋衰减率的独立影响，协作性对于真实系统中的NV^-并非独立。$NV:NV^-$ 的比值通常[15] 约为14:1，但对于一个经过优化的系统，据报道该比值为 6.95:1[40]。最后，我们预计，更高的浓度会导致自吸收增加[41], ，这一点未在我们的模型中予以考虑，但它会通过增加有效腔衰减率，再次倾向于提高阈值泵浦功率。

一个重要问题是磁场不均匀性如何影响金刚石微波激射器；为了开发可扩展的室温金刚石微波激射器，确定所需的最小磁场不均匀性将十分重要。NV^- 共振的均匀线宽约为1 MHz[42] ，在这些模拟中，假设金刚石体积范围内所施加磁场的空间不均匀性足够小，从而产生的塞曼位移处于 NV^- 中心的均匀线宽范围内。对于 1 MHz的本征线宽，这意味着磁场不均匀性应为 < 0.03 mT。在实际应用中，磁场不均匀性越小，越

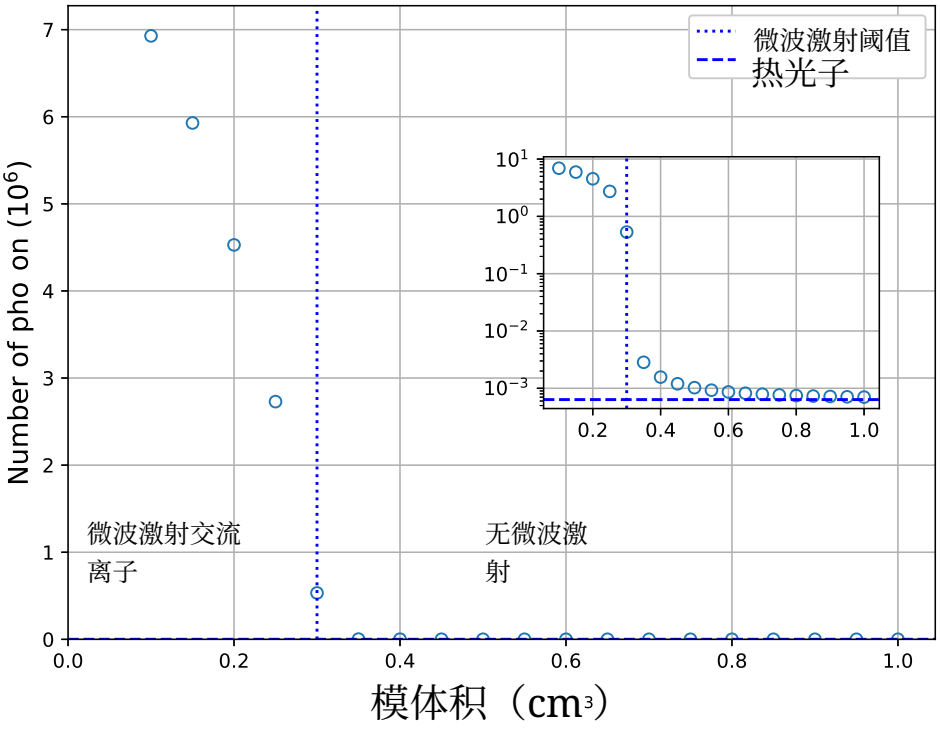


图 6. 对于表 I 所列参数，稳态微波光子数随腔模体积的变化。微波激射阈值出现在模体积约为 0.3 cm^3 时。插图以对数刻度显示了起始过程。

改善微波激射器性能。

IV. 结论

我们采用了扩展的二阶速率方程，其中纳入了腔内光子数以及不同 NV 能级之间的相干性，以模拟基于金刚石的微波激射器中 NV^- 中心系综的自旋动力学。模型预测了微波激射器的行为随增益介质和谐振器材料参数的变化，与近期实验结果[18]吻合良好。

协作性及相关的珀塞尔因数是关键参数；提高这些参数将降低微波激射的泵浦功率阈值。一方面，这需要较高的品质因数和较小的模体积，但金刚石增益介质的固有材料参数，例如

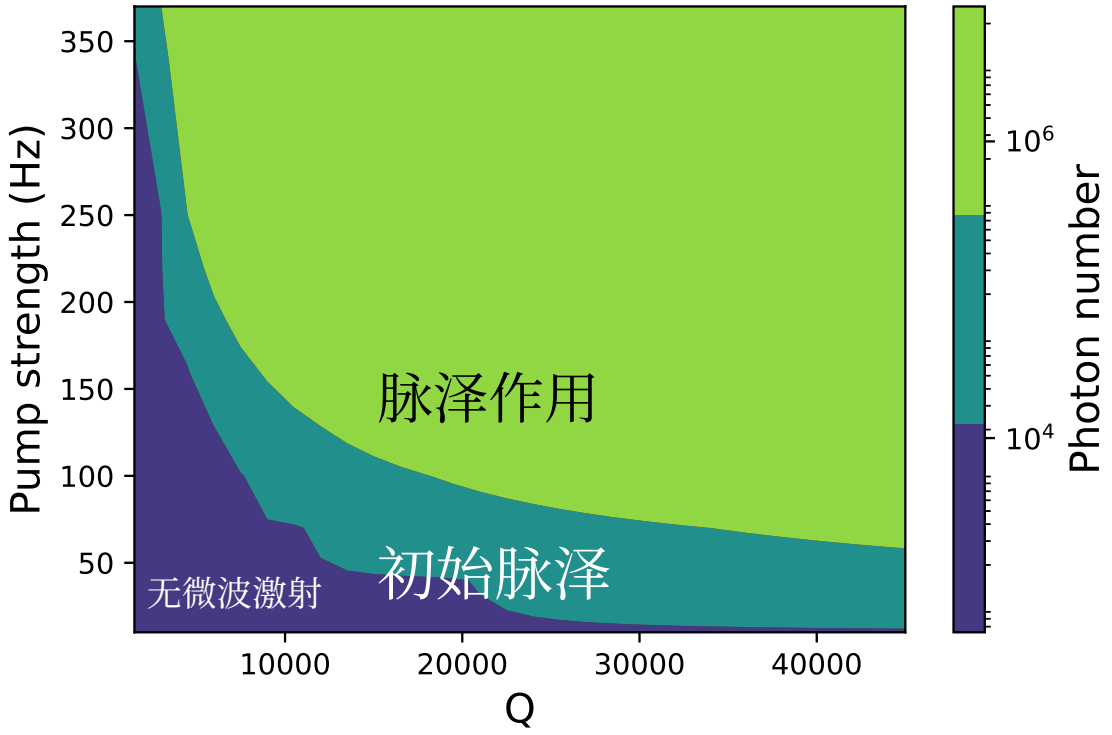


图 7. 稳态微波光子数随光泵浦强度和腔体加载品质因数的变化关系。我们识别出脉泽工作区、非脉泽工作区，以及一个中间的“初始脉泽”工作区；在该工作区中，受激发射占主导地位，但微波激射器无法实现自持振荡。在所有泵浦强度下，光子数都如预期那样随品质因数单调增加。

NV^- 的浓度和 T_2^* 也发挥着重要作用。其中，较长的 T_2^* 以及更多的激发自旋较为有利；这些因素由样品的填充因子和浓度决定。较高的泵浦强度最终会减少微波激射器光子的数量，因为布居数最终会进入单重态，而由于动力学瓶颈，粒子数反转会降低，导致 NV^- 中心在 $|7\rangle$ 态中积累。因此，通过珀塞尔增强提高从 $|7\rangle$ 态出发的跃迁速率，或对从 $|7\rangle$态出发的跃迁进行共振泵浦，可能是提高脉泽功率输出的途径。

注意这些因素将有助于设计适合大规模生产的基于金刚石的微波激射器。

我们进一步提出了改进微波激射器应用中 NV^- 集合建模的方法。

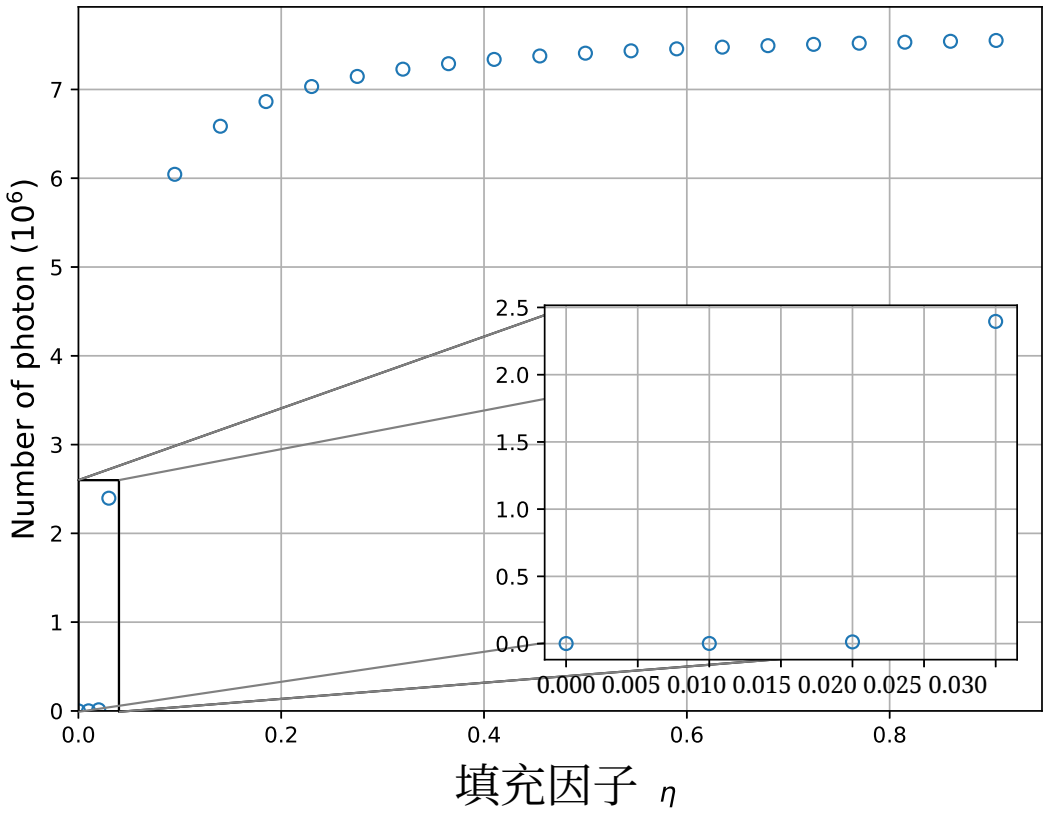


图 8. 腔中的微波光子数随填充因子的变化关系，填充因子由式 4 定义。当填充因子高于 $\eta = 0.3$ 时，光子数趋于饱和。插图显示了填充因子为 0.03 时微波激射的开始。

。如果考虑 NV^- 到 NV^0 的电荷态转换，以及温度和 NV^- 浓度对自旋寿命的影响，那么，通过最大化 NV^- 中心数量和泵浦功率来提高输出功率和协作性，与最大化相干时间之间的权衡将更加明晰。此类改进需要进一步的实验数据，尤其是关于电荷态比例与自旋寿命之间关系的数据。

本文所提出的方法能够明确计算微波激射器输出的时间演化，尤其适用于“初始脉泽”状态：在该状态下，受激发射占主导地位并超过自发发射，但又不足以维持微波激射器的自激振荡，因此不太适合采用基于稳态的求解方法。金刚石微波激射器的完整时间依赖响应对于技术应用也将十分有用，在这些应用中，微波激射器可用于

使用扩展速率方程模型探索室温金刚石微波激射器的自旋动力学，以放大任意时间依赖的微波信号。

更广泛地说，本文提出的扩展速率方程模型将有助于对其他基于自旋缺陷系综的量子技术进行建模，例如金刚石磁力计[3] 以及基于其他增益介质的室温微波激射器，如SiC中的硅空位缺陷[43–45]。

致谢

本研究获得了英国工程与自然科学研究委员会通过 NAME 计划项目资助（EP/V001914/1）以及项目资助 EP/S000798/1 的支持。作者还谨此感谢亨利·罗伊斯研究所提供的支持。

作者声明不存在需要披露的利益冲突。

参考文献

[1]A.M.Zaitsev，《金刚石的光学性质》（Springer-Verlag，柏林海德堡，2001年）。[2] M. W.Doherty、N.B. Manson、P. Delaney、F. Jelezko、J.Wrachtrup 和 L.C.Hollenberg，“金刚石中的氮-空位色心”，《物理学报告》**528**，1–45（2013年）。[3] J.F. Barry、J. M.Schloss、E.Bauch、M. J. Turner、C. A. Hart、L.M.Pham 和 R.L.Walsworth，“NV-金刚石磁力计的灵敏度优化”，《现代物理评论》**92**，015004（2020年）。[4]S. M. Graham、A. T. M.A.Rahman、L.Munn、R. L. Patel、A. J.Newman、C. J.Stephen、G.Colston、A. Nikitin、A. M. Edmonds、D. J. Twitchen、M. L. Markham 和 G. W. Morley，“使用未屏蔽的30 pT/√Hz灵敏度的光纤耦合金刚石磁力计”，（2023年），arXiv:2211.09170 [physics.app-ph]。[5]R. Patel、L. Zhou、A. Frangeskou、G. Stimpson、B. Breeze、A. Nikitin、M. Dale、E. Nichols、W. Thornley、B. Green、等，“使用光纤耦合金刚石传感器的亚纳特斯拉磁力测量”，《物理评论应用》**14**，044058（2020年）。[6]B. Hensen、H. Bernien、A. E. Dréau、A. Reiserer、N. Kalb、M. S. Blok、J. Ruitenberg、R. F. Vermeulen、R. N. Schouten、C. Abellán、等，“利用相隔1.3公里的电子自旋实现无漏洞贝尔不等式违背”，《自然》**526**，682–686（2015年）。

[7]M. Ruf, N. H. Wan, H. Choi, D. Englund, and R. Hanson, 《基于金刚石中色心的量子网络》, 《应用物理学杂志》**130**, 070901 (2021年).[8]C. E. Bradley, J. Randall, M. H. Abobeih, R. Berrevoets, M. Degen, M. A. Bakker, M. Markham, D. T witchen, and T. H. Taminiau, 《具有长达一分钟量子存储能力的十量子比特固态自旋寄存器》, 《物理评论X》**9**, 031045 (2019年).[9]J. Weber, W. Koehl, J. Varley, A. Janotti, B. Buckley, C. Van de Walle, and D. D. Awschalom, 《利用缺陷进行量子计算》, 《美国国家科学院院刊》**107**, 8513–8518 (2010).[10]M. Oxborrow, J. D. Breeze, and N. M. Alford, 《室温固态微波激射器》, 《自然》**488**, 353–356 (2012).[11]W. Ng, H. Wu, and M. Oxborrow, 《利用超极化NV-金刚石在实验台上对微波模式进行准连续冷却》, 《应用物理快报》**119**, 234001 (2021年).[12]W. Ng, X. Xu, M. Attwood, H. Wu, Z. Meng, X. Chen, and M. Oxborrow, 《让位于并五苯：掺杂对三联苯的二氮并五苯——一种具有强耦合、用于腔量子电动力学的零场室温微波激射器》, 《先进材料》, 2300441 (2023 年).[13]M. Attwood, X. Xu, M. Newns, Z. Meng, R. Ingle, H. Wu, X. Chen, W. Xu, W. Ng, T. Abiola, V. Stavros, and M. Oxborrow, 《N-杂并五苯作为室温微波激射器的有机增益介质》, ChemRxiv (2023年), 10.26434/chemrxiv-2023-j0rj6.[14]L. Jin, M. Pfender, N. Aslam, P. Neumann, S. Yang, J. Wrachtrup, and R.-B. Liu, 《室温金刚石微波激射器方案》, Nature Communications**6**, 1–8 (2015).[15]J. D. Breeze, E. Salvadori, J. Sathian, N. M. Alford, and C. W. Kay, 《连续波室温金刚石微波激射器》, 《自然》**555**, 493–496 (2018年).[16] A. Sherman, L. Buchbinder, S. Ding, and A. Blank, 《基于金刚石的微波激射器性能分析》, 《应用物理学杂志》**129**, 144503 (2021年).[17]A. Sherman, O. Zgadzai, B. Koren, I. Peretz, E. Laster, and A. Blank, 《基于金刚石的微波量子放大器》, 《科学进展》**8**, eade6527 (2022年), https://www.science.org/doi/pdf/10.1126/sciadv.ade6527.[18]C. W. Zollitsch, S. Ruloff, Y. Fett, H. T. Wiedemann, R. Richter, J. D. Breeze, and C. W. Kay, 《通过谐振器品质因数调谐表征微波激射阈值》, arXiv预印本 arXiv:2302.10811 (2023年).[19]D. M. Arroo, N. M. Alford, and J. D. Breeze, 《室温固态微波激射器展望》, 《应用物理快报》**119**, 140502 (2021年).

[20]A. Roy and M. Devoret, 《约瑟夫森电路中量子信号参量放大的介绍》, Comptes Rendus Physique**17**, 740–755 (2016).[21]A. Jarmola, V. Acosta, K. Jensen, S. Chemerisov, and D. Budker, 《金刚石中氮-空位系综的纵向自旋弛豫与温度和磁场的依赖关系》, Physical Review Letters**108**, 197601 (2012).[22]G. Balasubramanian, P. Neumann, D. Twitchen, M. Markham, R. Kolesov, N. Mizuochi, J. Isoya, J. Achard, J. Beck, J. Tissler, 等, 《同位素工程化金刚石中的超长自旋相干时间》, Nature Materials**8**, 383–387 (2009).[23]P. L. Stanwix, L. M. Pham, J. R. Maze, D. Le Sage, T. K. Yeung, P. Cappellaro, P. R. Hemmer, A. Yacoby, M. D. Lukin, and R. L. Walsworth, 《金刚石中氮-空位电子自旋系综的相干性》, Physical Review B**82**, 201201 (2010).[24]A. Savvin, A. Dormidonov, E. Smetanina, V. Mitrokhin, E. Lipatov, D. Genin, S. Potanin, A. Yelisseyev, and V. Vins, 《NV^- 金刚石激光器》, Nature Communications**12**, 7118 (2021年).[25]F. Jelezko and J. Wrachtrup, 《金刚石中的单缺陷中心：综述》, physica status solidi (a)**203**, 3207–3225 (2006).[26]A. Patel, Z. Chowdhry, A. Prabhakar, and V. P. Bhallamudi, 《组装金刚石微波激射器》, 载于*2021 IEEE*国防光子学研究与应用会议（*RAPID*）（IEEE, 2021年）.[27]J. Klatzow, J. N. Becker, P. M. Ledingham, C. Weinzetl, K. T. Kaczmarek, D. J. Saunders, J. Nunn, I. A. Walmsley, R. Uzdin, and E. Poem, 《微观热机运行中量子效应的实验演示》, Physical Review Letters **122**, 110601 (2019年).[28]K. Jensen, V. Acosta, A. Jarmola, and D. Budker, 《金刚石中氮-空位中心系综磁共振的光致窄化》, Physical Review B**87**, 014115 (2013年).[29]I. Popa，金刚石中单缺陷中心的脉冲磁共振（博士论文，斯图加特大学数学与物理学院，2006年）.[30]W. T. Vetterling, W. H. Press, S. A. Teukolsky, and B. P. Flannery, 《数值 *recipes*：科学计算的艺术》（剑桥大学出版社，2002年）.[31]A. Alkauskas, B. B. Buckley, D. D. Awschalom, and C. G. Van de Walle, 《金刚石NV中心三重态跃迁发光线型的第一性原理理论》, New Journal of Physics**16**, 073026 (2014年).[32]E. M. Purcell, 《射频下的自发发射概率》, 载于《受限电子与光子》（Springer, 1995）第839–839页。

[33]V. B.Berestetskii、E. M.Lifshitz 和L. P. Pitaevskii，《量子电动力学：第4卷》，第4卷（Butterworth-Heinemann，1982年）。[34]A. Vuylsteke，《微波激射理论基础》（Van Nostrand，1960年）。[35]A. E. Siegman，《微波固态微波激射器》（McGraw-Hill Book Company，1964年）。[36]I. Cardoso Barbosa、J. Gutsche 和A.Widera，“电荷态转换对氮-空位中心弛豫测量的影响”，arXiv 电子预印本，arXiv–2301（2023年）。[37]S. Lin、C. Weng、Y. Yang、J. Zhao、Y. Guo、J.Zhang、L. Lou、W. Zhu和G.Wang，“金刚石中氮-空位中心系综在高达600 K温度下的温度依赖的相干性质”，Physical Review B**104**，155430（2021年）。[38]X.-D. Chen、C.-H. Dong、F.-W. Sun、C.-L. Zou、J.-M.Cui、Z.-F.Han和 G.-C.Guo，“金刚石中氮-空位中心的温度依赖能级偏移”，《应用物理快报》**99**，161903（2011年）。[39]Z.-H.Wang和S.Takahashi，“金刚石中氮-空位中心的自旋退相干和电子自旋浴噪声”，Physical Review B**87**，115122（2013年）。[40]A. M.Edmonds、C. A.Hart、M. J. Turner、P.-O. Colard、J. M.Schloss、K. S.Olsson、R. Trubko、M. L. Markham、A. Rathmill、B. Horne-Smith、等，“具有高浓度氮的化学气相沉积金刚石的表征及其在磁场传感应用中的表现”，《量子技术材料》**1**，025001（2021年）。[41]T.-S.Ahn、R. O. Al-Kaysi、A. M. Müller、K.M. Wentz和C.J. Bardeen，“对通过积分球测量获得的固态光致发光量子产率进行自吸收校正”，《科学仪器评论》**78**，086105（2007年）。[42]B.Fortman和S. Takahashi，“理解由单个氮-空位中心在金刚石中探测到的电子自旋共振谱线宽”，《物理化学杂志A》**123**，6350–6355（2019年）。[43]H. Kraus、V. Solta mov、D. Riedel、S. Väth、F. Fuchs、A. Sperlich、P. Baranov、V.Dyakonov和G. Astakhov，“基于碳化硅中自旋缺陷的室温量子微波发射器”，《自然·物理》**10**，157–162（2014年）。[44]M. Fischer、A. Sperlich、H. Kraus、T. Ohshima、G.Astakhov和V. Dyakonov，“为实现受激微波发射而对碳化硅中的自旋缺陷进行高效光学抽运”，《物理评论应用》**9**，054006（2018年）。[45]A. Gottscholl、M. Wagenhöfer、M.Klimmer、S.Scherbel、C. Kasper、V. Baianov、G. V. Astakhov、V. Dyakonov和A.Sperlich，“用于微波激射器应用的碳化硅中自旋缺陷的超辐射”，《光子学前沿》**3**（2022年），10.3389/fphot.2022.886354。

附录 A：矩阵方程

我们以矩阵形式给出用于数值求解并生成本文结果的速率方程。密度矩阵 ρ 的整体运动方程为

$$\dot{\boldsymbol{\rho}} = \mathbf{M}\boldsymbol{\rho}$$

$$\boldsymbol{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{11} \\ \rho_{22} \\ \rho_{33} \\ \rho_{44} \\ \rho_{55} \\ \rho_{66} \\ \rho_{77} \\ \rho_{12} \\ \rho_{21} \\ \rho_{13} \\ \rho_{31} \\ \rho_{14} \\ \rho_{41} \\ \rho_{25} \\ \rho_{52} \\ \rho_{63} \\ \rho_{36} \end{pmatrix}$$

$$\mathbf{M} = \begin{bmatrix} \mathbf{M_{11}} & \mathbf{M_{12}} \\ \mathbf{M_{21}} & \mathbf{M_{22}} \end{bmatrix}$$

其中 $\mathbf{M_{ij}}$ 是$\mathbf{M}$ 的子矩阵，用于通过分离对时间演化的不同贡献来阐明该方程。$\mathbf{M_{11}}$ 是 7×7 布居子矩阵，用于描述七能级模型的自旋动力学。$\mathbf{M_{12}}$ 和$\mathbf{M_{21}}$ 分别是布居耦合子矩阵，即 7×10和 10×7，用于描述激光场和微波场与七能级模型的耦合。最后，$\mathbf{M_{22}}$ 是描述耦合场相干性的相干子矩阵。该17×17 矩阵包含 7 个非零对角项和 10 个非对角项。这些子矩阵

探索使用扩展速率方程模型的室温金刚石微波激射器自旋动力学

明确给出为

$$\mathbf{M_{22}} = \begin{bmatrix} -\gamma_m + i\Delta_m & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -\gamma_m + i\Delta_m & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\gamma_m + i\Delta_m & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -\gamma_m + 我\Delta_m & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -\gamma_l + i\Delta_l & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -\gamma_l + i\Delta_l & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -\gamma_l + i\Delta_l & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -\gamma_l + i\Delta_l & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -\gamma_l + i\Delta_l & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -\gamma_l + i\Delta_l \end{bmatrix}$$

$$\mathbf{M_{11}} = \begin{bmatrix} -2\kappa_{21} & \kappa_{21} & \kappa_{21} & \kappa_{41} & 0 & 0 & \kappa_{71} \\ \kappa_{21} & -2\kappa_{21} & \kappa_{21} & 0 & \kappa_{52} & 0 & 0 \\ \kappa_{21} & \kappa_{21} & -2\kappa_{21} & 0 & 0 & \kappa_{63} & \kappa_{73} \\ 0 & 0 & 0 & -(\kappa_{41}+\kappa_{47}) & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -(\kappa_{52}+\kappa_{57}) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -(\kappa_{63}+\kappa_{67}) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \kappa_{47} & \kappa_{57} & \kappa_{67} & -(\kappa_{71}+\kappa_{72}+\kappa_{73}) \end{bmatrix}$$

$$\mathbf{M_{12}} = \begin{bmatrix} -\frac{\Omega_m}{2}i & \frac{\Omega_m}{2}i & -\frac{\Omega_m}{2}i & \frac{\Omega_m}{2}i & -\frac{\Omega_l}{2}i & \frac{\Omega_l}{2}i & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \frac{\Omega_m}{2}i & -\frac{\Omega_m}{2}i & 0 & 0 & 0 & 0 & -\frac{\Omega_l}{2}i & \frac{\Omega_l}{2}i & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{\Omega_m}{2}i & -\frac{\Omega_m}{2}i & 0 & 0 & 0 & 0 & -\frac{\Omega_l}{2}i & \frac{\Omega_l}{2}i \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{\Omega_l}{2}i & -\frac{\Omega_l}{2}i & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{\Omega_l}{2}i & -\frac{\Omega_l}{2}i & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{\Omega_l}{2}i & -\frac{\Omega_l}{2}i \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

$$\mathbf{M_{21}} = \begin{bmatrix} -\frac{\Omega_m}{2}i & \frac{\Omega_m}{2}i & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \frac{\Omega_m}{2}i & -\frac{\Omega_m}{2}i & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -\frac{\Omega_m}{2}i & 0 & \frac{\Omega_m}{2}i & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \frac{\Omega_m}{2}i & 0 & -\frac{\Omega_m}{2}i & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -\frac{\Omega_m}{2}i & 0 & 0 & \frac{\Omega_m}{2}i & 0 & 0 & 0 \\ \frac{\Omega_m}{2}i & 0 & 0 & -\frac{\Omega_m}{2}i & 0 & 0 & 0 \\ -\frac{\Omega_l}{2}i & 0 & 0 & 0 & \frac{\Omega_l}{2}i & 0 & 0 \\ \frac{\Omega_l}{2}i & 0 & 0 & 0 & -\frac{\Omega_l}{2}i & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{\Omega_l}{2}i & 0 & 0 & 0 & \frac{\Omega_l}{2}i & 0 \\ 0 & \frac{\Omega_l}{2}i & 0 & 0 & 0 & -\frac{\Omega_l}{2}i & 0 \\ 0 & 0 & -\frac{\Omega_l}{2}i & 0 & 0 & 0 & \frac{\Omega_l}{2}i \\ 0 & 0 & \frac{\Omega_l}{2}i & 0 & 0 & 0 & -\frac{\Omega_l}{2}i \end{bmatrix}$$

其中， γ_m 是微波耦合自旋态的退相位率， γ_l 是激光耦合态的退相干率， Δ_l 是激光相对于 $1 \to 4$、$2 \to 5$ 和 $3 \to 6$ 的跃迁频率的失谐。对于本文所展示的结果，激光被建模为共振激发基态至激发态，因此失谐 Δ_l 为零。 Δ_m 是微波相对于微波激射器工作频率的失谐。

在扩展速率方程中，向一阶速率方程添加了一个额外的二阶项，用于表示光子数。

$$\frac{da}{dt} = \kappa_{sp}\rho_{11} + \kappa_{st}(\rho_{11} - \rho_{22})a - \kappa_c(n_{th} - a)$$

其中 κ_{sp} 是自发发射率， κ_{st} 是受激发射率。