

# 基于金刚石量子传感的纳米磁成像及凝聚态物理应用

丁哲<sup>1,2</sup> 石发展<sup>1,2,3,†</sup> 杜江峰<sup>1,2,3,††</sup>

(1 中国科学技术大学 中国科学院微观磁共振重点实验室 合肥 230026)

(2 中国科学技术大学 合肥微尺度物质科学国家研究中心 合肥 230026)

(3 中国科学技术大学 近代物理系 合肥 230026)

## Nanoscale magnetic imaging based on quantum sensing with diamond and its applications to condensed matter physics

DING Zhe<sup>1,2</sup> SHI Fa-Zhan<sup>1,2,3,†</sup> DU Jiang-Feng<sup>1,2,3,††</sup>

(1 CAS Key Laboratory of Microscale Magnetic Resonance, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

(2 Laboratory for Physical Sciences at the Microscale, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

(3 Department of Modern Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

2020-04-30 收到

† email: fzshi@ustc.edu.cn

†† email: djf@ustc.edu.cn

DOI: 10.7693/wl20200602

**摘要** 作为凝聚态物理的重要方向,磁性的研究不仅是发展自旋电子学器件的基础,也是突破已有材料和器件功能壁垒的关键之一。磁性材料的纳米分辨率成像对认识和理解物质微观性质至关重要。金刚石中的氮—空位(NV)色心是一种对磁信号敏感的原子缺陷,经过十余年的深入研究,其已经发展为兼具高灵敏度和高空间分辨率的磁量子传感器,能够以纳米分辨率对单层磁性材料进行成像。它作为一种广谱(DC-GHz)、高灵敏度(nT/Hz<sup>1/2</sup>)、高空间分辨率(~10 nm,理论极限~1 nm)的磁成像技术,可以对包括二维磁性材料、电流分布、电导率分布乃至单个电子自旋,少数核自旋进行纳米磁成像。文章从NV色心微观结构和性质出发,介绍其作为量子传感进行磁信号探测和成像的原理;进一步从技术层面介绍谱仪的构成和探针制备;最后选取有代表性的工作,简要介绍NV扫描显微镜在各方面的应用。

**关键词** 量子传感,氮—空位色心,金刚石,纳米磁成像

**Abstract** The nano-scale imaging of magnetism is important for studying the microscopic local properties of matter. Nitrogen-vacancy (NV) scanning microscopy is such a technique based on NV center quantum sensing in diamond. As a magnetic imaging technique with a broad spectrum (DC to GHz), high sensitivity (nT/Hz<sup>1/2</sup>) and high spatial resolution (~10 nm, theoretical limit ~1 nm), it is able to image ferromagnetic material, electric current distribution, electric conductivity, and even the spin of a single electron and a few nuclear spins on the nano-scale. This review introduces the principle of NV quantum sensing and magnetic imaging based on its microstructure and properties. The structure of a NV scanning microscope, fabrication of NV probes, and methods to determine their main parameters are then described. Finally, we select some representative published works on the application of NV scanning microscopy in different fields.

**Keywords** quantum sensing, nitrogen-vacancy color center, diamond, nanoscale magnetic imaging

## 1 引言

随着各种显微成像技术的发展,人们对物质微观结构的认识愈发清晰。磁性作为物质的基本性质之一,其微观成像是实验物理重要的研究方向。磁存储、自旋电子学等领域的兴起对磁性的微观研究提出了技术上的需求。当前比较成熟的磁成像技术有磁光克尔显微镜(MOKE)<sup>[1, 2]</sup>、磁力显微镜(MFM)<sup>[3, 4]</sup>、扫描超导量子干涉仪显微镜(scanning SQUID microscopy)<sup>[5, 6]</sup>、扫描透射X射线显微镜(STXM)<sup>[7, 8]</sup>、小角中子散射(SANS)<sup>[9, 10]</sup>、洛伦兹透射电镜(LTEM)<sup>[11, 12]</sup>、极化电子隧穿显微镜(SP-STM)<sup>[13, 14]</sup>等。这些技术因原理不同而有各自的优缺点。评估一个磁学显微技术的核心参数是:空间分辨率和灵敏度,而在实际应用中往往需要考虑更多因素,包括对安装环境(振动、光照等)、样品环境(温度、气压、外场等)及样品性质(厚度、平整度、导电性、铁磁性等)的要求。为了方便应用,在灵敏度和空间分辨率满足要求的前提下,对以上诸多因素要求更低的显微技术具有更广阔的应用前景。

基于金刚石NV色心的量子传感扫描磁成像技术(以下简称NV扫描显微镜技术)就是这样一种纳米分辨率磁成像技术。NV色心(Nitrogen-Vacancy center)是金刚石中的一种顺磁类原子缺陷,有特殊的自旋极化关联的光跃迁,可以用光探测磁共振技术(ODMR)对NV单自旋进行量子操控和光读出。研究者发现ODMR技术可以对单NV进行量子操控后<sup>[15]</sup>,利用该技术在NV上进行了自旋动力学和量子计算的相关研究<sup>[16-18]</sup>,为NV色心磁探测做好了前期技术探索。2008年前后研究者开始利用NV色心进行磁信号探测和成像研究<sup>[19-22]</sup>。结合实空间扫描成像<sup>[21-23]</sup>实现了本文将介绍的NV扫描显微镜技术。得益于金刚石单晶的物理特性,NV色心在室温大气环境下具有毫秒量级的长相干时间,从而拥有高灵敏度磁探测能力。单个NV色心在探测恒定磁场时,灵敏度受 $T_2^*$ 限制,能达到 $\mu\text{T}/\text{Hz}^{1/2}$ 量级,探测千赫兹到兆赫兹范围的交变磁场时,灵敏度受 $T_2$ 限制,能达到 $\text{nT}/\text{Hz}^{1/2}$ 量级。NV色心本身的电子云分布决定了其空间分辨率极

限是亚纳米,但是近表面NV性质不稳定限制了其探测距离,从而降低了空间分辨率,目前实验能够达到的分辨率约为10 nm。综上,NV色心作为一种磁成像扫描探针被越来越多的研究者青睐,已经被用在铁磁薄膜<sup>[24-27]</sup>、螺旋序反铁磁薄膜<sup>[28]</sup>、磁斯格明子<sup>[29-32]</sup>、二维铁磁材料<sup>[33]</sup>、超导材料<sup>[34]</sup>、平面电流<sup>[35-37]</sup>、金属电导率<sup>[38]</sup>、单电子自旋<sup>[39]</sup>等微观成像上。除了本文介绍的扫描成像技术以外,结合梯度磁场<sup>[40, 41]</sup>、光学超分辨<sup>[42, 43]</sup>、普通光学宽场成像<sup>[35]</sup>等的NV磁成像技术也得到了长足发展。

本文第二节主要是原理,介绍NV色心的基本结构、哈密顿量、调控手段和测磁及成像原理;第三节主要介绍NV探针的制备、参数标定等技术;第四节介绍国内外各研究方向的代表性工作;最后一节总结全文并结合本技术的优缺点对未来发展进行展望。

## 2 金刚石量子传感原理和成像技术

### 2.1 NV色心的结构和哈密顿量

NV色心全称氮-空位色心,其结构是金刚石中的两个相邻碳位一个被氮原子取代,另一个缺失,如图1(a)所示。其中N原子提供两个电子,和空位相邻的三个C原子各提供一个未成对电子,再额外俘获一个电子,一共6个电子。此结构带一个负电荷,文献中也记作 $\text{NV}^-$ 。如果失去这个额外电子,就会成为不带电的 $\text{NV}^0$ ,本文中NV色心专指 $\text{NV}^-$ 。

NV色心满足 $C_{3v}$ 对称,考虑微观结构时一般选对称轴,也就是氮位和空位的连线为 $z$ 轴,也称NV轴。通过群论分析、第一性原理计算结合光谱学实验,研究者基本确定了其电子轨道构型,基态构型如图1(b)所示<sup>[44-47]</sup>。基态能级如图1(c)所示,其中 $^3\text{A}_2$ 是自旋三重态, $^1\text{A}_1$ 、 $^1\text{E}$ 均是自旋单重态。第一性原理计算表明,基态自旋三重态 $^3\text{A}_2$ 的电子密度分布主要在NV轴垂直面上,向外延伸在 $5 \text{ \AA}$ 之内<sup>[45]</sup>,这说明NV电子自旋本身具有原子量级尺寸,有潜力实现亚纳米空间分辨率。因此单个NV色心在进行量子传感时也常被

称为NV探针。本文只涉及 ${}^3A_2$ 的自旋动力学，激发态的分析不再赘述。之后关于NV量子态，如果没有特殊提及，均指基态 ${}^3A_2$ 的自旋态。

NV色心基态哈密顿量为

$$H = DS_z^2 + \gamma_e B_z S_z + QI_z^2 + \gamma_n \mathbf{B} \cdot \mathbf{I} + A_{zz} S_z I_z, \quad (1)$$

$S_z$ 是电子自旋 $z$ 分量，自旋量子数为1。 $I_z$ 是氮核自旋 $z$ 分量，由于 ${}^{15}\text{N}$ 天然丰度极低，这里只考虑 ${}^{14}\text{N}$ 的情况，其自旋量子数为1。 $\mathbf{I}$ 是核自旋的矢量算符。基态电子三重态有自旋-自旋相互作用，有零场劈裂 $D=2870$  MHz， ${}^{14}\text{N}$ 核自旋有电四极矩 $Q=-4.95$  MHz，电子和核自旋旋磁比分别为 $\gamma_e=-2.803$  MHz/G和 $\gamma_n=307.8$  Hz/G。 $A_{zz}$ 是电子和核自旋超精细耦合张量 $z$ 主轴分量。下文一般默认外磁场 $\gamma_e |\mathbf{B}| \ll D$ ，由久期近似，忽略塞曼项的 $x, y$ 分量；同样由久期近似，超精细耦合项的 $x, y$ 分量也被忽略。

## 2.2 光探测磁共振技术

光探测磁共振(Optical Detection Magnetic Resonance, 简称ODMR)技术，顾名思义，利用光学方法对NV的量子态进行探测，利用磁共振方法对NV的量子态进行操控。本小节描述其中最基本的两个过程：激光泵浦和微波操控。

实验中一般使用波长532 nm/520 nm的激光进行泵浦，注意基态-激发态能级差对应约637 nm的波长，泵浦导致短波非共振激发，如图1(c)所示。此时，NV跃迁至激发态声子边带，之后自旋守恒弛豫到激发态。由于自旋轨道耦合，此后自旋态 $|\pm 1\rangle$ 会较大概率从三重态进入单重态，通过无辐射跃迁最终回到基态的 $|0\rangle$ 或 $|1\rangle$ 。而自旋态 $|0\rangle$ 则会跃迁回基态的 $|0\rangle$ 并辐射光子。这一过程有两个作用：首先，光子计数与自旋关联， $|0\rangle$ 释放光子概率大，因此也称之为亮态，而 $|\pm 1\rangle$ 称为暗态，这一特点可以用来进行自旋态的读出；其次， $|0\rangle$ 和 $|\pm 1\rangle$ 两种自旋态都会有较大概率跃迁回 $|0\rangle$ ，可以通过持续泵浦高保真制备极化态。这里有个技术细节：虽然激发态寿命 $\sim 10$  ns，但极化速度受基态单重态寿命( $\sim 250$  ns)限制，一般为保证初态制备保真度，让NV在基态和激发态间

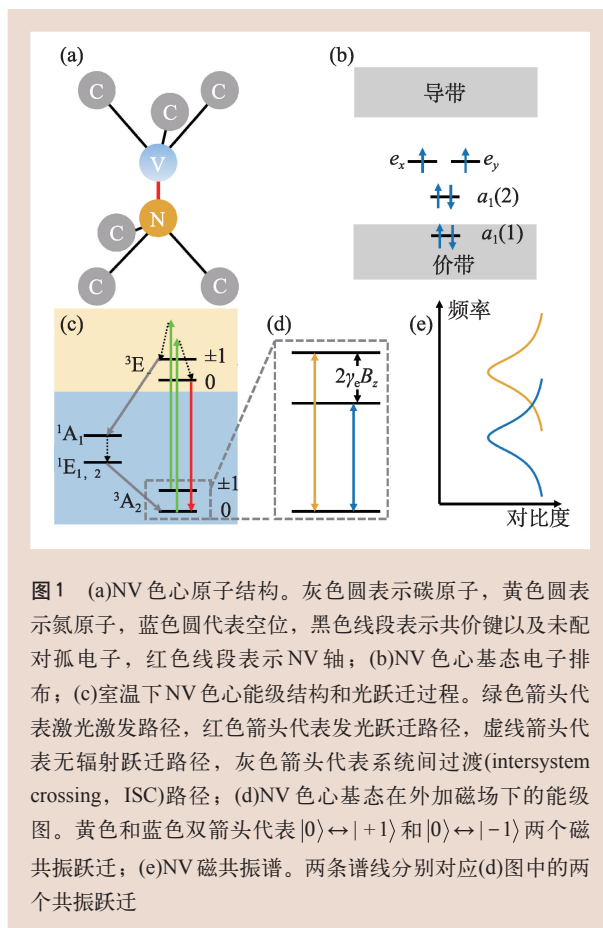


图1 (a)NV色心原子结构。灰色圆表示碳原子，黄色圆表示氮原子，蓝色圆代表空位，黑色线段表示共价键以及未配对孤电子，红色线段表示NV轴；(b)NV色心基态电子排布；(c)室温下NV色心能级结构和光跃迁过程。绿色箭头代表激光激发路径，红色箭头代表发光跃迁路径，虚线箭头代表无辐射跃迁路径，灰色箭头代表系统间过渡(intersystem crossing, ISC)路径；(d)NV色心基态在外加磁场下的能级图。黄色和蓝色双箭头代表 $|0\rangle \leftrightarrow |\pm 1\rangle$ 和 $|0\rangle \leftrightarrow |-\rangle$ 两个磁共振跃迁；(e)NV磁共振谱。两条谱线分别对应(d)图中的两个共振跃迁

多次跃迁，泵浦时间在 $1 \mu\text{s}$ 左右。

外加磁场下，原先简并的 $|\pm 1\rangle$ 发生塞曼劈裂，如图1(d)所示。此时 $|0\rangle$ 和 $|\pm 1\rangle$ 之间的能级差变为 $\omega_{\pm} = D \pm \gamma_e B_z$ ，若施加对应频率的微波就会激发NV在相应能级间的振荡，从而在磁共振谱中观测到相应的谱峰，如图1(e)所示。在观测到磁共振谱峰之后可以确定微波共振频率，实现特定自旋态的微波操控。在共振操控状态下，另外一个态几乎不参与演化，下文中会将NV简化为共振的两态构成的系统。

综上，NV色心特定能级可以通过磁共振操控，激光泵浦能实现其初始化和读出，哈密顿量中的塞曼项直接由外加磁场决定。通过2.3节讨论将看出，NV色心满足量子传感器的所有要求。

## 2.3 基于NV的量子传感

简言之，量子传感器必须是可控的，可读出并与待测物理量有耦合的量子体系。受量子计算

机 DiVincenzo 判据的启发, 有研究者提出了量子传感器的判据<sup>[48]</sup>:

(1) 量子传感器本身是量子系统, 具有可操纵的分立能级。一般情况下, 问题简化成双能级体系;

(2) 量子传感器必须可以被初始化到某已知状态; 其量子态也必须可以读出;

(3) 量子传感器可以被相干操控, 即在探测过程中可以利用其量子叠加性。这一条在某些实验中不是必要条件(比如下面会介绍的连续波谱实验以及弛豫实验);

(4) 量子传感器必须和待测物理量  $V$  有耦合。定义  $\gamma_p = \partial^q p / \partial V^q$  为传感系数。 $p$  是量子传感器输出的信号, 一般是其末态的概率分布。注意耦合方式不一定是线性的, 利用  $q$  阶耦合的传感叫做  $q$  阶传感。

NV 在探测时, 先通过激光初始化到  $|0\rangle$ , 之后通过微波操控演化到适合做量子传感的初态上。该初态与 2.4 节将探讨的工作模式有关, 比如 Ramsey 模式的初态是叠加态,  $T_1$  弛豫模式的初态则是极化态。此后演化一段时间  $t$ , 由于本文主要讨论的是磁成像, 演化哈密顿量中的有效项就是塞曼项。最后对演化末态进行测量。由于噪声的存在, 上述过程需要重复  $N$  次累积数据, 以此估计末态坍缩到亮态/暗态的概率分布(此分布是两点分布, 下面专用坍缩到暗态的概率  $p$  描述)。最后根据该分布计算对应的物理量。

信噪比(Signal-to-Noise Ratio, SNR)是衡量一次量子传感的关键参数。采用微分分析, 假定信号  $V$  的一个微小变化  $\delta V$  引起了末态分布的变化  $\delta p(t)$ :

$$\text{SNR} = \frac{\delta p_{\text{obs}}(t)}{\sigma_p}, \quad (2)$$

$\sigma_p$  是标定噪声强度的标准差。 $\delta p_{\text{obs}}(t)$  是真实探测中观测到的信号, 由于量子系统的退相干和弛豫, 以及操控保真度的问题, 这个值会小于  $\delta p(t)$ 。NV 的退相干主要由金刚石晶格中环境自旋耦合导致, 包括  $^{13}\text{C}$  核自旋及顺磁缺陷如 P1 等; 弛豫主要来自声子的耦合; 再考虑到金刚石制备工艺、实验条件等多方面因素, NV 量子态

的演化非常复杂。本文不做过多讨论, 仅用下述唯像公式简明考虑退相干和弛豫效应对测量的影响:

$$\delta p_{\text{obs}}(t) = \delta p(t) e^{-\omega T_x t}, \quad (3)$$

$T_x$  代表  $T_2^*$ 、 $T_2$  或  $T_1$ , 在实验中可通过无被测信号情况下的测试数据进行拟合得到这些参数。

$\sigma_p$  指代的噪声有两个主要来源: 量子噪声和读出噪声。量子噪声是做投影测量时随机坍缩产生的噪声,  $\sigma_{p,\text{quantum}}^2 \sim \frac{1}{4N}$ ; 读出噪声主要来自探测 NV 信号光子时的散粒噪声。总的标准差为

$$\sigma_p = \frac{\sigma_{p,\text{quantum}}}{C_p} = \frac{1}{2\sqrt{N}C_p}, \quad (4)$$

其中噪声约化系数  $C_p < 1$  与光子探测效率有关。3.2 节中会介绍, 由于金刚石的折射率很高, 大部分荧光会在表面发生全反射而无法探测。当前常用的, 通过表面形貌加工、光学优化的柱状 NV 探针计数率大概有 500 kcps, 对应探测效率约为 3%, 相应的  $C_p \sim 0.26$ <sup>[19]</sup>。

讨论实际应用时, 往往关心的不是重复次数  $N$ , 而是探测总时间  $T = N(t + t_m)$ 。 $t_m$  是实验中初态制备、末态读出等操作使用的时间。将所有因素考虑进来之后, 得到最常用的信噪比公式:

$$\text{SNR} = \delta p(t) e^{-\omega T_x t} 2C_p \sqrt{\frac{T}{t + t_m}}. \quad (5)$$

最后, 传感器的灵敏度是指单位探测时间内可以实现  $\text{SNR} \geq 1$  的最小信号:

$$\eta = \left( \frac{e^{\omega T_x \sqrt{t + t_m}}}{2C_p \partial V^q p} \right)^{1/q}, \quad (6)$$

$q$  是量子传感的阶数,  $V$  指待测物理量, 式子单位是  $\text{Hz}^{-\frac{1}{2q}}$ 。

## 2.4 NV 色心测磁的工作模式

本节根据待测磁信号的时域性质将 NV 色心测磁模式分为三类: 静磁场到低频磁场(kHz 以下), 交变磁场(kHz—0.1 GHz)和低频噪声场(GHz 左右)。综合三种探测模式, NV 色心可以探测 DC—GHz 频谱范围内的磁信号。

### 2.4.1 静磁场和低频磁场测量

对稳恒电流，静态磁结构的成像需要先对其产生的静磁场进行探测。NV对静磁场的测量主要有三种方法：连续波谱、脉冲波谱和Ramsey测量。如果磁场缓变(kHz以下)，测量时间内近似认为不变，该方法也适用。连续波谱实验中，激光和微波同时施加，单光子探测器持续探测全过程中的光子数，通过扫描微波频率产生频谱。连续波谱不是典型的量子传感过程，实验中系统处于开放稳态，相干性在此实验中几乎不起作用。连续波谱的微观过程可以用图2(c)中的简化模型表示<sup>[49]</sup>。该模型将激光泵浦过程抽象为两个参数： $\Gamma_p$ 表示激光导致的弛豫速率， $\Gamma_c$ 表示激光导致的退相干速率。此外，自旋-晶格弛豫速率 $\Gamma_1$ ，不均匀退相干速率 $\Gamma_2^*$ ，微波场强度，即拉比频率 $\Omega_R$ 都会影响最终线型。通过对稳态体系的分析，利用亮态光子数 $N_0$ 做归一化，连续波频谱呈洛伦兹线形，如图2(b)所示，

$$CW(f) = \frac{N(f)}{N_0} = 1 - \frac{A}{(f-f_0)^2/\Delta f^2 + 1}, \quad (7)$$

$A$ 是谱线对比度， $f_0$ 为共振频率，谱线的半高全宽(FWHM)为 $2\Delta f$ 。 $A$ 和 $\Delta f$ 受激光和微波功率的综合影响<sup>[49]</sup>。

下面估算连续波谱的灵敏度。测试基准点定在频谱一阶导绝对值最大处，距共振频率 $\Delta f/\sqrt{3}$ 的位置。此时，一个小的磁场变化导致光子计数的变化为

$$\delta N = \frac{\partial N}{\partial f} \frac{df}{dB} \delta B = \frac{3\sqrt{3}AN_0}{8\Delta f} \gamma_c \delta B. \quad (8)$$

噪声主要是散粒噪声，用基准点的计数来估计：

$$\begin{aligned} \sigma_N &= \sqrt{N(f=f_0 \pm \Delta f/\sqrt{3})} \\ &= \sqrt{N_0(1-3A/4)}, \end{aligned} \quad (9)$$

从而，信噪比

$$SNR = \frac{\delta N}{\sigma_N} = \frac{3\sqrt{3}A\sqrt{N_0}}{8\Delta f\sqrt{1-3A/4}} \gamma_c \delta B. \quad (10)$$

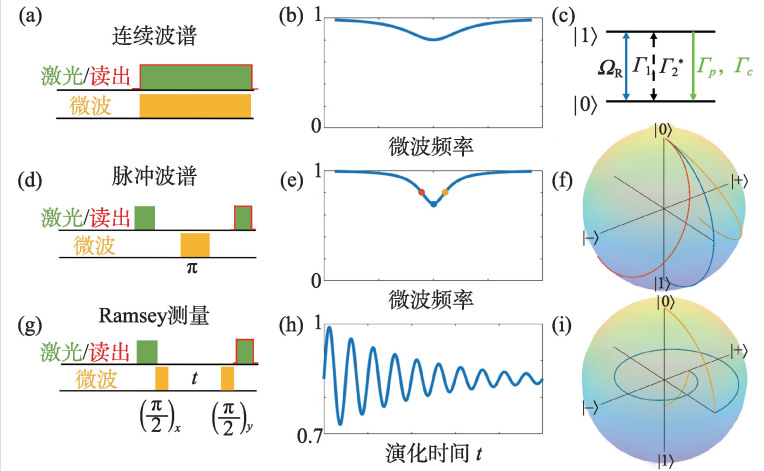


图2 DC场测量的3种方法。同一行的左侧是相应方法的脉冲序列图，红色折线代表读出触发电平，高电平读出；中间是典型的实验结果；右侧是实验原理。(f)中的3条演化路径与(e)中3个圆点相对应

根据灵敏度的定义，我们得到：

$$\eta_{CW} = \frac{8\Delta f\sqrt{1-3A/4}}{3\sqrt{3}\gamma_c A\sqrt{N_0}} \sim \frac{1.54\Delta f}{\gamma_c A\sqrt{N_0}}, \quad (11)$$

单位是 $\text{Hz}^{-1/2}$ ， $N_0$ 是NV亮态计数率，简化时使用了一个合理的近似： $A \ll 1$ 。通过分析连续波谱过程中的细致平衡方程，可以发现灵敏度对激光功率和微波功率均不单调，增加微波功率会增加展宽但是相应的增加对比度；增加激光功率会增加展宽降低对比度，但是增加了光子计数率。实验表明，连续波谱的灵敏度比参数经过优化的脉冲波谱要差<sup>[49]</sup>。

脉冲波谱的实验过程如图2(d)所示。NV被极化后，施加微波驱动，微波长度取共振情况 $\pi$ 脉冲长度，图2(f)中蓝线显示的是该过程下旋转坐标系中Bloch矢旋转路径。扫描微波频率，统计各频点下读出的光子数，用亮态光子计数归一化得到脉冲波谱。当微波频率偏离共振频率时，在旋转坐标系下相当于增加一个沿 $z$ 轴的偏共振磁场 $A=2\pi(f-f_0)$ ，Bloch矢的旋转轴由共振时的 $x$ 轴变为 $(\Omega_R, A, 0)/(\Omega_R, A, 0)$ ，圆频率由共振时的 $\Omega_R$ 变为 $\sqrt{\Omega_R^2 + A^2}$ 。相应的轨迹见图2(f)中的红线和黄线。拉比振荡幅度 $\sim \frac{\Omega_R^2}{\Omega_R^2 + A^2}$ ，满足洛伦兹线型，但由于旋转角度在偏共振时也会偏离 $\pi$ ，真

实线型比洛伦兹型略陡。分析灵敏度时不同线型仅相差一个系数，不会导致量级上的差异，因此分析中一般采用洛伦兹线型。

强微波驱动下， $\Delta f \sim \Omega_R$ ，称为功率展宽，为提高灵敏度须降低微波功率。微波驱动下量子系统退相干速率随驱动强度降低而升高，最终上限由  $\Gamma_2^*$  决定。为达到最优灵敏度，要在功率展宽和退相干中做权衡，取最优微波功率，量级上满足  $\Omega_R \sim \Gamma_2^*$ 。此时  $\Delta f \sim \frac{1}{2} \Gamma_2^* = \frac{\sqrt{\ln 2}}{\pi T_2^*}$ 。直接套用连续波谱的灵敏度公式可以估算脉冲谱的灵敏度：

$$\eta_{\text{pulse}} \sim \frac{\Delta f}{\gamma_e A \sqrt{\dot{N}'_0}} \sim \frac{1}{\gamma_e T_2^* A_M \sqrt{\dot{N}'_0}} \sqrt{\frac{T_2^* + t_1 + t_R}{t_R}}. \quad (12)$$

上式忽略了线型引入的常数以及峰宽和  $\Gamma_2^*$  之间的系数。其中

$$\dot{N}'_0 = \frac{T_2^* + t_1 + t_R}{t_R} \dot{N}_0$$

是脉冲实验的等效光子计数率， $t_1$  和  $t_R$  分别是初始化和读出使用的时间。相对于连续波谱，脉冲波谱主要优势在于激光功率对谱的线型没有影响，可以加饱和功率激光以得到最高光子计数率；通过优化脉冲强度，可以得到接近  $A_M$  的对比度以及由  $T_2^*$  决定的峰宽下界。光子计数率、对比度和峰宽这三个因素共同决定了两个谱学方法的灵敏度，连续波谱中三者互相影响，脉冲谱中却几乎可以同时达到理论最优值，因此容易理解，参数优化后的脉冲波谱的灵敏度优于连续波谱灵敏度。

Ramsey 测量脉冲序列如图 2(g) 所示。激光极化后，先用  $(\pi/2)_x$  脉冲将 NV 制备到叠加态，之后自由演化过程中与偏共振磁场耦合，在叠加态两分量之间产生相位差，最后用  $(\pi/2)_y$  脉冲将相位差转化为布居度，用激光读出。这一过程在 Bloch 球上可以直观表示为图 2(i)，而图 2(h) 展示了在偏共振较大时的实验结果，在 Ramsey 衰减时间内 Bloch 矢因偏共振场发生多个周期的进动。量子传感过程中，这个偏共振场就是待测磁场  $\delta B$ ，微分分析中进动角度是个小量，信号微分为  $\delta p = \pi \gamma_e \delta B t$ ，与(6)式联立，得到 Ramsey 方法的灵敏度：

$$\eta_{\text{Ramsey}} = \frac{e^{i\Gamma_2^*} \sqrt{t + t_m}}{2\pi C_p \gamma_e t} \sim \frac{\sqrt{T_2^* + t_m}}{C_p \gamma_e T_2^*}. \quad (13)$$

可以看到，限制静磁场的三种测量方法灵敏度的最关键参数均是  $T_2^*$ ，这三者灵敏度没有量级上的区别。单个 NV 测量静磁场的灵敏度在  $\mu\text{T}/\text{Hz}^{1/2}$  量级。

#### 2.4.2 交变磁场测量

对动态磁结构，诸如核自旋的进动，电子自旋的翻转，交变电流密度等的纳米成像也是研究者经常关心的。下面将看到，NV 色心对交变磁场的探测灵敏度要远高于静磁场，可以达到  $\text{nT}/\text{Hz}^{1/2}$  量级。我们假定交流信号是单频的：

$$\delta B(t) = b \cos(2\pi f_{\text{ac}} t + \alpha), \quad (14)$$

这里  $\alpha$  是信号与 NV 探测序列的相位差。用于探测的序列叫做动力学解耦 (dynamical decoupling, DD)，最初是核磁共振中延长相干时间的技术<sup>[50]</sup>。通过不停对自旋施加  $\pi$  脉冲进行翻转，导致静态及准静态噪声在一个  $\pi$  脉冲前后对自旋的影响相互抵消。解耦序列中可以连续施加多个  $\pi$  脉冲，两个  $\pi$  脉冲间隔时间记作  $\tau$ 。动力学解耦可以直观地理解成一个带通滤波器，其带通中心频率是  $\frac{1}{2\tau}$ 。 $\pi$  脉冲越多，在达到相干时间时的  $\tau$  越短，基频越高，对低频噪声的滤波效果越好。研究者已经实现了 1 s 的相干时间<sup>[51]</sup>。这里的相干时间记作  $T_2$ ，由于过滤了低频噪声，相较于  $T_2^*$  有量级上的提升，这也是 NV 对交变信号测量的灵敏度能达到  $\text{nT}/\text{Hz}^{1/2}$  的主要原因。

一种常用的动力学解耦序列 Carr—Purcell—Meiboom—Gill (CPMG) 如图 3(a) 所示，激光极化 NV 后，施加  $\left(\frac{\pi}{2}\right)_x - \left[\frac{\tau}{2} - (\pi)_x - \frac{\tau}{2}\right] - \left(\frac{\pi}{2}\right)_{x/y}$ 。方括号中是一个解耦基本单元，整个序列中重复  $n$  次。脉冲脚标指代微波相位，最后一个  $\left(\frac{\pi}{2}\right)_{x/y}$  取  $x$  相位做二阶探测，取  $y$  相位做一阶探测。在分析探测过程时可以采用自旋的“随体坐标系”，将自旋翻转理解成对整个参照系的等效翻转，也就是对外磁场做了调制，调制函数  $y(t')$  如图 3(b) 所示，积累的相位为

$$\delta\phi(t) = \gamma_e \int_0^t \delta B(t') y(t') dt', \quad (15)$$

其中探测时间  $t = N\tau$ 。在频域下有<sup>[48]</sup>

$$\delta\phi(t) = \gamma_e b t W(f_{\text{ac}}, \alpha). \quad (16)$$

这里窗函数

$$W(f, \alpha) = \frac{\sin(\pi ft)}{\pi ft} [1 - \sec(\pi f \tau)] \cos(\pi ft + \alpha). \quad (17)$$

图3(c)中绘制了  $\alpha = 0, \pi$  的情况。

如果确保交变磁场和探测序列相位锁定，比如对人工产生的交变电流的成像中，我们使用一阶探测。此时类似Ramsey探测的分析，得到灵敏度

$$\eta_{AC}^{(1)} \sim \frac{1}{C_p \gamma_c \sqrt{T_2}}. \quad (18)$$

这里注意，对于NV来说， $T_2 \gg t_m$ ，因此略去  $t_m$ 。

从图3(c)很直观地看到，正反相的窗函数完全抵消。事实上，如果交变磁场的相位均匀随机分布，比如探测核自旋进动时，一阶探测最终结果是  $\phi = \gamma_c b t \langle W \rangle_\alpha = 0$ 。这种情况下需要二阶测量，即序列最后一个  $\pi/2$  脉冲选择  $x$  相位。此时， $|1\rangle$  概率  $\delta p = \frac{1}{2}(1 - \cos(\delta\phi))$ ，一阶项为零， $\delta p \sim (\delta\phi)^2$ 。多次平均后，由于相位随机，最终

$$\delta p \sim (\delta\phi)^2 = (\gamma_c b t)^2 \langle W^2(f_{ac}) \rangle_\alpha. \quad (19)$$

代入(6)式，看到

$$\eta_{AC}^{(2)} \sim \frac{1}{\sqrt{C_p \gamma_c T_2^{3/4}}}. \quad (20)$$

二阶测，量受  $T_2$  影响更强，通过高阶动力学解耦延长  $T_2$ ，结合优化的读出技术，已经可以实现对单个蛋白质分子上核自旋的探测<sup>[52]</sup>。

### 2.4.3 噪声场测量

动力学解耦方法虽然灵敏度很高，但受微波操控速度以及NV相干时间所限，其探测频率范围是有限的。比较极限的上下界量级是kHz~0.1GHz。对于这个范围之外，尤其是GHz量级的噪声场，最常用的是弛豫方法。这种方法已经被用于对自旋波、超顺磁颗粒、磁性离子、导体约翰逊噪声等的探测或成像。

弛豫是将NV制备到极化态后自旋态在噪声影响下随机翻转，数学期望上表现为Bloch矢量长度衰减的过程。该过程的特征时间记作  $T_1$ ，主导它的是横向共振噪声场

$$(T_1)^{-1} = \frac{1}{2} \gamma_c^2 S_n(\omega_0), \quad (21)$$

$S_n(\omega)$  是横向噪声谱， $\omega_0$  是NV  $|0\rangle$  和  $|1\rangle$  间的能级差。

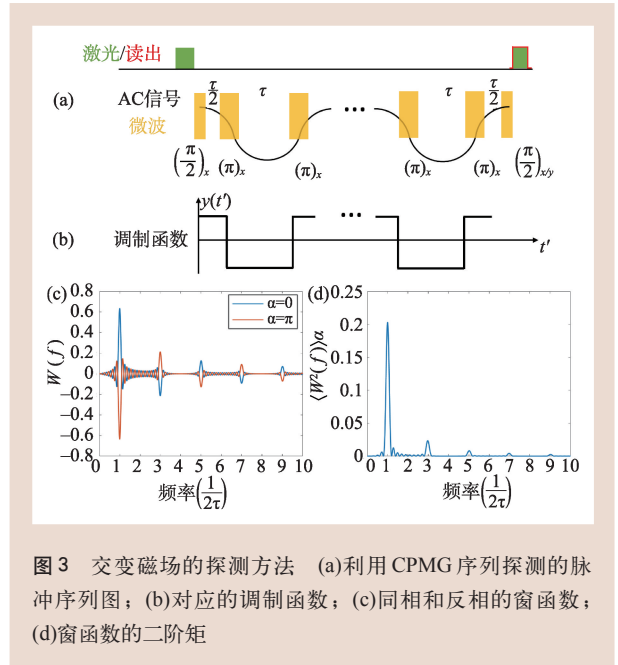


图3 交变磁场的探测方法 (a)利用CPMG序列探测的脉冲序列图；(b)对应的调制函数；(c)同相和反相的窗函数；(d)窗函数的二阶矩

除了此处介绍的最基本的探测手段之外，NV进行磁量子传感的方案和改进还有很多，我们将在展望部分粗略介绍。

## 2.5 NV色心磁成像原理

这里介绍二维近似下静态磁化分布的成像原理。NV扫描显微技术中，NV色心作为扫描探针，在样品待测区域进行二维扫描。收集到的信号是样品在NV扫描平面上产生的磁场，即杂散场(stray field)。每个像素点探测该位置下杂散场在NV轴上的投影分量。如图4(b)所示，扫描过程中NV与样品间的距离记作  $d$ 。所谓二维近似指样品厚度  $t \ll d$ ，此时可以忽略样品厚度，仅求其磁化强度的面密度。

如图4(b)所示，建立坐标系。我们定义样品位置  $z = 0$ ，那么NV的扫描面是  $z = d$ 。由静磁学知识，在  $z > 0$  的空间中，磁场是无旋场，可以定义磁标势：

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}) = \nabla U(\mathbf{r}); \quad \nabla^2 U = 0. \quad (22)$$

上式后一个关系来自磁场的无源性。由解的唯一性定理，已知  $z > 0$  空间内某  $z$  平面上的  $U$  分布，那么  $z > 0$  空间中任何一点的  $U$ ，以至  $\mathbf{B}$  也就确定了。具体说来，已知  $z = z_0$  平面上的磁标势分

布, 利用傅里叶变换, 可以在 $xy$ 频域内给出任意点的 $U$ :

$$\hat{U}(\mathbf{k}, z_0 + h) = e^{-hk} \hat{U}(\mathbf{k}, z_0). \quad (23)$$

计算其梯度可以得到不同 $z$ 平面下磁场的表达式, 这进一步说明, 知道某个 $z$ 平面上磁场的某方向投影的分布之后, 整个自由上半空间的磁场全矢量分布也就确定了。换句话说, 通过NV进行2D扫描, 虽然原始数据只有 $z=d$ 平面内NV轴上的磁场分量, 但实际上, 其信息量已经覆盖了整个上半空间的全部矢量杂散场。

之后的任务就是通过杂散场反推出样品磁化强度分布。正向问题很简单, 就是对磁偶极子积分的问题<sup>[53]</sup>:

$$\begin{aligned} \hat{B}_i(\mathbf{k}, d) &= D_{ij}(\mathbf{k}, d) \hat{m}_j(\mathbf{k}); \\ D_{ij}(\mathbf{k}, d) &= (\mu_0/2) u_i u_j k e^{-dk}. \end{aligned} \quad (24)$$

我们需要解决上式的逆问题, 困难在于偶极子格林函数不可逆,  $\text{rank}(D_{ij})=1$ , 因此一般来说, 以上问题的逆问题没有唯一解。对于某些特殊问题, 比如面外易磁化的铁磁材料<sup>[33]</sup>或者与其等价的面内电流<sup>[36, 37]</sup>, 解空间本身就是一维的, 这些问题可以严格求解。一般情况, 如果想要有唯一解, 就要另加约束条件把解空间压缩到一维<sup>[54]</sup>。最后, 即使无法完全求解, 根据对材料的先验知识建模, 结合NV探针的扫描成像数据进行拟合也可以提供有用的微观信息<sup>[32, 25]</sup>。

最后介绍NV扫描技术的空间分辨率 $\lambda$ 。将(24)式的 $z$ 分量写在实空间, 可以得到<sup>[53]</sup>:

$$\begin{aligned} B_z(\mathbf{r}, d) &= -\mu_0/2 [\alpha_z(\mathbf{r}, d) * \nabla^2 m_z(\mathbf{r}) \\ &+ \alpha_{xy}(\mathbf{r}, d) * \nabla \cdot \mathbf{m}_{xy}(\mathbf{r})]. \end{aligned} \quad (25)$$

面内分量和面外分量的格林函数(也称点扩散函

数), 分别是

$$\begin{aligned} \alpha_{xy}(\mathbf{r}, d) &= \frac{d}{2\pi(\mathbf{r}^2 + d^2)^{3/2}}; \\ \alpha_z(\mathbf{r}, d) &= \frac{1}{2\pi(\mathbf{r}^2 + d^2)^{1/2}}. \end{aligned} \quad (26)$$

可见, 格林函数的峰宽, 亦即空间不确定性可以用NV与样品的距离 $d$ 标定。此外, 外界振动以及力探测器石英音叉的本征振动会引入不稳定性 $\sigma$ , 与格林函数引入的不确定性综合就是空间分辨率:

$$\lambda = \sqrt{d^2 + \sigma^2}. \quad (27)$$

当前较常见的参数量级是: NV深度~10 nm; 外界振动与仪器机械设计、隔振台选择以及实验室环境密切相关, 理想情况下可以限制~1 nm; 音叉的本征振动也可以限制在~1 nm。因此, 由于 $d \gg \sigma$ , 目前决定空间分辨率的主要因素是NV探针与样品的距离, 这一参数的标定以及改进方案将在技术以及展望两节简单介绍。

### 3 金刚石量子传感磁成像技术

#### 3.1 NV扫描显微镜整体结构

如图4(a)所示, 整个仪器大致分为光探测磁共振(ODMR)部分和扫描成像部分。首先介绍ODMR部分, 图4(a)右下角是微波系统, 波源产生微波, 开关在时序发生器的控制下产生指定序列, 通过探针附近的环形天线发射, 共振驱动NV。微波系统上方是产生泵浦光的激光二极管。镜头、双色镜、滤波片、空间滤波系统以及单光子探测器一起组成共聚焦系统, 用于读出NV自旋态。下方的磁铁用来提供一个恒定外磁场以区分NV两个暗态。剩下的部分是扫描成像部分, 红色五边形代表NV探针; 左侧与之相连的是石英音叉以及锁相放大器, 利用闭环负反馈技术维持探针与样品之间的距离。实验过程中样品在纳米位移台的驱动下进行扫描, 在每

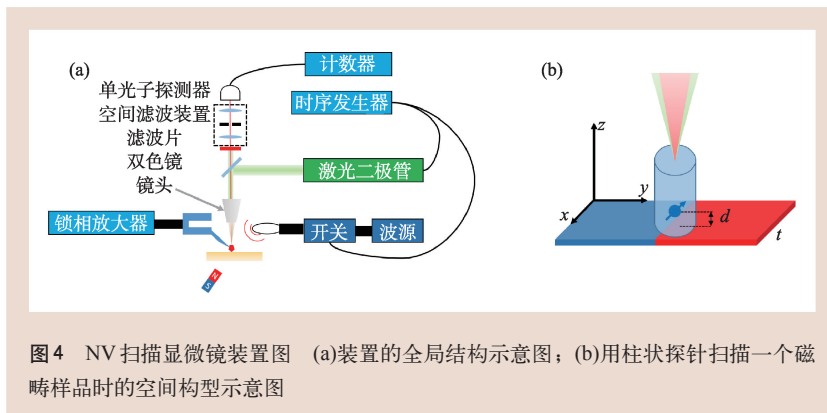


图4 NV扫描显微镜装置图 (a)装置的全局结构示意图; (b)用柱状探针扫描一个磁畴样品时的空间构型示意图



个扫描像素点，ODMR 部分进行信号采集并通过计数器将原始数据传输到计算机分析保存。

### 3.2 金刚石探针的制备

早期工作将纳米金刚石颗粒粘在商用 AFM 探针上使用<sup>[21, 24]</sup>。这种做法对微纳加工要求低，但是可控性差，NV 相干时间短，现在已经很少使用。当前几乎所有探针的制备方法是在单晶金刚石中通过离子注入结合退火产生满足特定深度分布的 NV<sup>[58]</sup>，之后利用光刻和电子束刻蚀制备光子收集优化结构。

一种最常见的结构如图 5(a) 所示，利用光刻和电子束刻蚀技术制备带柱状微腔的金刚石探针。这种微腔端面直径在百纳米量级，高度在微米量级，利用空间构型约束 NV 荧光出射模式，缩小发散角，减少金刚石上界面全反射从而提高光子收集效率。但是离子注入产生的 NV 空间分布随机，无法确保每一块探针都存在 NV，Jayich 小组为克服这个问题，制备了密集的阵列型金刚石探针，如图 5(b) 所示。它的缺点是，对探针和样品间的夹角过于敏感，如果稍有倾斜，就会导致 NV 探针无法靠近样品制约空间分辨率。

上述柱状探针由于端面半径较大，无法进行精细的表面形貌成像。为解决这一问题，Maletinsky 小组探索了金字塔形探针的制备<sup>[57]</sup>，如图 5(c) 所示。金字塔尖端曲率半径~10 nm，可以进行较高空间分辨率的形貌成像。此外，该结构还进一步缩小探针和待测样品间的距离，提高了磁成像实验的分辨率和灵敏度。

### 3.3 NV 色心参数标定

NV 探针的主要参数有：光子计数率、亮暗态光子计数对比度、弛豫和相干时间(包括  $T_1$ 、

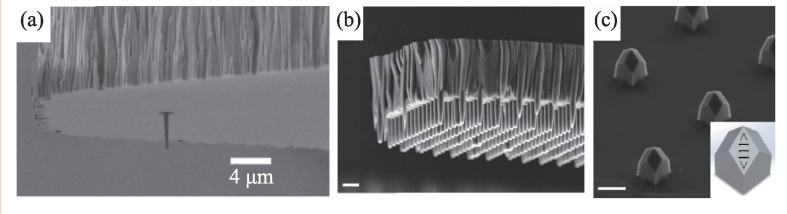


图5 当前常用的金刚石探针的SEM形貌图 (a)Yacoby组使用的单纳米柱NV探针<sup>[55]</sup>；(b)Jayich组使用的阵列纳米柱NV探针<sup>[56]</sup>；(c)Maletinsky组探索的金字塔形NV探针<sup>[57]</sup>

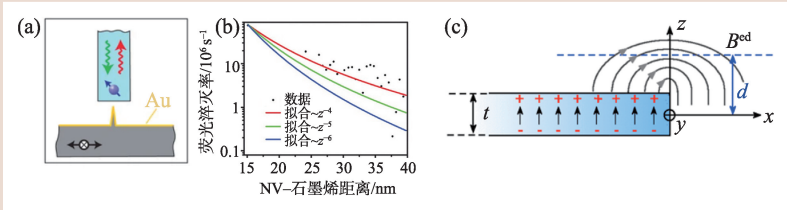


图6 标定NV深度常用方法 (a)用纳米金针尖定位NV位置及深度的示意图；(b)NV色心荧光淬灭率与其距石墨烯距离的关系，拟合显示，四次方衰减最符合实验结果<sup>[59]</sup>；(c)利用铁磁薄膜标定NV深度的方法示意图

$T_2^*$ 、 $T_2$ )、NV 轴方向以及 NV 深度。前三项在 2.4 节中已经有提及。NV 轴方向的标定比较简单，可以用高斯计先标定出 NV 处的磁场，之后利用连续波谱得到 NV 轴向磁场投影，由于 NV 轴方向受金刚石晶向的限制，可以确定其方向。下面重点介绍 NV 深度的标定。

用 NV 探针扫描金针尖<sup>[23]</sup>，金针尖靠近 NV 色心时会导致 NV 荧光淬灭，通过淬灭导致的暗斑尺寸可以估算 NV 的深度，如图 6(a) 所示。由于金针尖有高度，暗斑的尺寸是对金针尖积分的结果，因此这种方法量化比较困难。但是如果将金针尖换作二维材料，对深度的估计就会更加准确，如图 6(b) 所示，是 NV 与石墨烯在不同距离下的荧光淬灭率<sup>[59]</sup>。

如图 6(c)，NV 探针对准均匀面外磁化的铁磁薄膜边缘进行一维扫描，同时收集连续波谱信号<sup>[60]</sup>。磁场分布是已知的：

$$B_x(x, d) = \frac{\mu_0 M_s}{4\pi} \ln \left( \frac{x^2 + (d + t/2)^2}{x^2 + (d - t/2)^2} \right), \quad (28)$$

$$B_z(x, d) = \frac{\mu_0 M_s}{4\pi} \left[ \operatorname{atan} \left( \frac{x}{d + t/2} \right) - \operatorname{atan} \left( \frac{x}{d - t/2} \right) \right]. \quad (29)$$

对采集到的 NV 轴磁场投影曲线进行拟合，可以

同时得到NV轴方向和NV深度。

最后,对浅NV( $d \sim 10$  nm),有精度更高的方法<sup>[61]</sup>。利用2.4节交变磁场部分介绍的方法,在金刚石表面滴加含有高旋磁核自旋的液体(比如镜头油含有 $^1\text{H}$ 核自旋),在深度 $d$ 下 $^1\text{H}$ 核产生的噪声场强度为

$$B_{\text{RMS}}^2 = \rho \left( \frac{\mu_0 \gamma_n}{4\pi} \right)^2 \frac{5\pi}{96d^3}. \quad (30)$$

这里 $\rho$ 是 $^1\text{H}$ 核自旋密度。可以用动力学解耦和噪声谱共振时的对比度计算NV的深度。由于核自旋信号较弱,而这个公式随 $d$ 增加呈3次方衰减,因此只能用于浅NV深度的确定。

## 4 金刚石量子传感磁成像实验工作

近年来,NV扫描技术已经产生了不少优秀工作。本节按照待测样品性质分磁化强度成像、

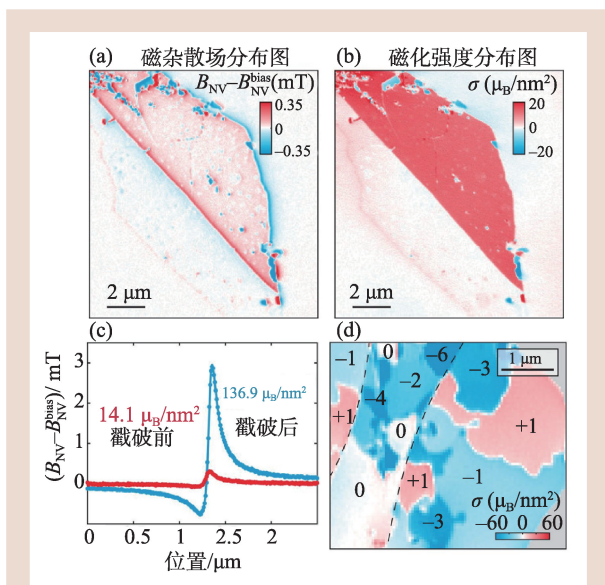


图7  $\text{CrI}_3$ 的成像结果<sup>[33]</sup>

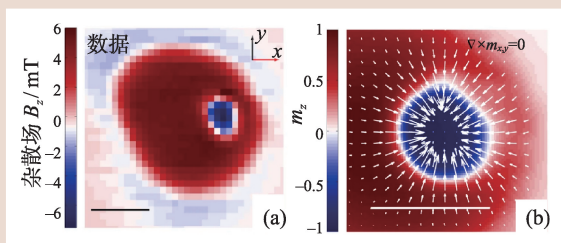


图8 多层膜斯格明子成像结果<sup>[31]</sup>

电流成像、弛豫成像和超越二维模型4个部分,介绍一些有代表性的工作。

### 4.1 磁化强度成像

Maletinsky小组在沿NV轴、1725 G下对单层及少层的二维铁磁材料 $\text{CrI}_3$ 进行了成像。如图7所示,图(a)展示的是某块样品表面杂散场分布的原始数据,该样品左下部分有两个晶格厚度,右上部分有三个晶格厚度。图(b)是根据图(a)重构出的磁化强度分布图。由于 $\text{CrI}_3$ 是面外易磁化材料,可以认为磁化强度仅分布在 $z$ 轴,根据2.5节的分析我们知道,这个重构不需要任何先验信息,结果是确定的。他们在实验中还发现,当样品被戳破时,多层样品的磁性会被增强,图7(c)展示的就是一块9层晶格的样品在戳破前后的杂散场分布以及据此算出的磁化强度。最后,他们还观测到了该样品的磁畴分布,并且发现各畴磁化强度保持在单层的整数倍,这个倍数还与层数的奇偶性相同。如图7(d)所示,图中数字表示磁化强度对单层的倍数,两条虚线之间层数为偶,两侧为奇。

Yacoby组在室温下对Pt/Co/Ta多层膜斯格明子进行了成像<sup>[31]</sup>,空间分辨率达到10 nm。杂散场成像如图8(a),图中显示的是杂散场 $z$ 分量的分布。通过2.5节中的分析我们知道,虽然NV探针直接成像的是杂散场在NV轴上的投影,但这一分布事实上已经包括了杂散场的所有信息。但是,仅凭杂散场信息无法重构出磁化强度分布。文中对面内磁化形式进行了规范,定义一个参量 $\lambda$ 可以通过局域旋转变换将一个Bloch型斯格明子( $\lambda=0$ )变为Néel型( $\lambda=1$ )。再对材料饱和磁化强度标定就实现了对解空间的限定。如图8(b)展示了Néel规范下的重构结果,图中颜色代表磁化强度 $z$ 方向分量,箭头代表面内分量。作者通过连续调节 $\lambda$ 发现,只有Néel规范下重构结果的斯格明子数才达到1。

### 4.2 电流成像

Degen组测量了金属纳米线和碳纳米管内电流的杂散场<sup>[36]</sup>,给出了电流密度分布,灵敏度可达

亚 $\mu\text{A}$ ，空间分辨率优于30 nm。图9展示了该工作中对碳纳米管电流的成像结果。图9(a)是给碳纳米管通稳恒电流，利用连续波谱方法对静磁场做的成像，对应的电流重构是图9(b)。这一工作还提出了另一个工作模式，给碳纳米管施加与NV探针共振的交变电流，观测NV连续波谱的对比度，进而反推出NV轴垂直方向上的交变磁场。这一结果展示在图9(c)中，通过这一数据也可以重构出电流分布，如图9(d)，而且效果比稳恒电流的方法更好。

Maletinsky小组在约4 K温度下对超导材料 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 的电流涡旋进行杂散场成像<sup>[34]</sup>。实验结果如图10所示。图中展示了一个涡旋电流杂散场在NV轴上投影的二维分布。他们还根据Pearl涡旋模型和磁单极子模型分别拟合了一维扫描杂散场曲线，发现Pearl涡旋模型要远远优于磁单极子模型的描述。

### 4.3 弛豫成像

如本文第2.4节介绍的，利用NV色心的弛豫性质可以对某些高频噪声信号进行探测。将这一技术与纳米扫描技术结合就可以实现对相应材料的探测。杜江峰小组完成了NV色心肝癌HepG2细胞内铁蛋白成像的实验<sup>[62]</sup>，空间分辨率达到10 nm。铁蛋白是细胞中常见的一种蛋白复合物，其外径约12 nm，内包一个直径8 nm的核，核中有约4500个磁性铁离子，这些铁离子在室温下不断翻转产生磁噪声。细胞中铁蛋白一般以团簇状态存在，称为铁蛋白簇。测量磁噪声对NV色心自旋弛豫时间 $T_1$ 的影响，可以对铁蛋白簇进行纳米成像。实验结果如图11所示。图11(a)是实空间二维扫描得到的噪声垂直NV轴分量的空间分布，按照图11(a)中红色箭头方向进行一维扫描得到图11(b)，图11(b)的约50 nm平台代表了该团簇的尺寸。对图11(b)上升沿进行细致分析，看到空间分辨率约为8.3 nm，如图11(b)内嵌小图所示。此外，该工作中将NV扫描结果与冷冻电镜结果对照，两者互相吻合。

Jayich组利用NV在金属纳米薄膜上方进行二

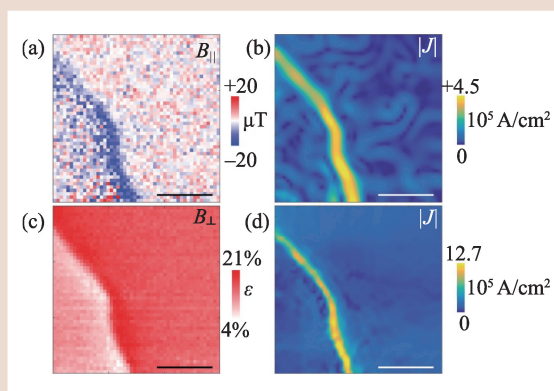


图9 通电碳纳米管产生磁场及重构电流密度<sup>[36]</sup>

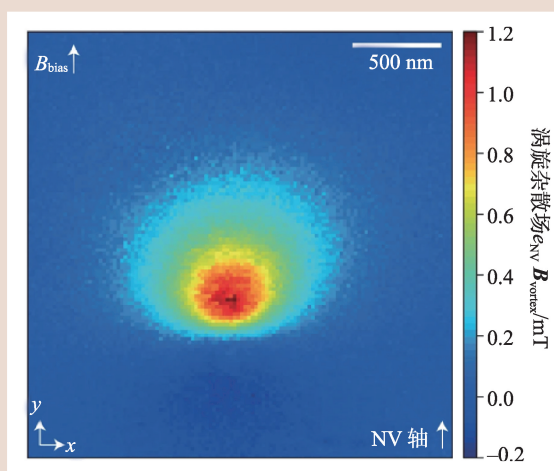


图10 超导体表面涡旋电流成像<sup>[34]</sup>

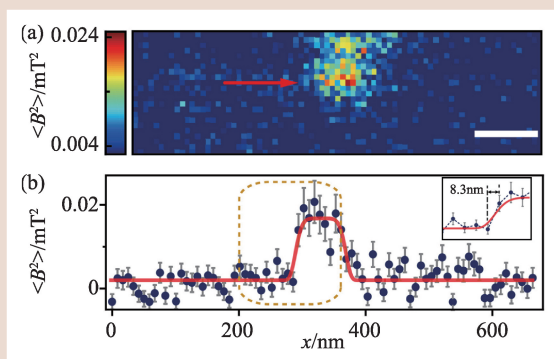


图11 对细胞内铁蛋白簇的高分辨率磁成像<sup>[62]</sup>

维扫描，并进行 $T_1$ 的探测<sup>[38]</sup>。如图12所示，图(a)是金属薄膜样品的SEM形貌图，方框内部分的弛豫成像如(b)图所示。由于Johnson—Nyquist关系，金属产生的噪声场直接和电导率呈函数关系。因此对NV的弛豫成像也就直接提供了材料电导率的成像。值得一提的是，由于NV的 $T_1$ 过

长(毫秒量级), 此类实验一般来说耗时难以接受, 作者在扫描速度上做了两个改进: 首先, 传统弛豫测量需要对一系列演化时间  $t$  采样, 之后通过拟合确定  $T_1$ ; 使用“自适应扫描算法”, 根据前一像素点的数据调整后一像素点的弛豫测量时间, 仅须对曲线上某一个点进行采样即可。另外, 使用自旋-电荷态转换的方法提高了等效的光子计数率(也就是(4)式中的  $C_p$ ), 从而加快了实验速度。

#### 4.4 超出二维模型

因为杂散场成像原理上的局限性, 即使在二维模型近似下完全重构样品性状也只在有限几种情况中可以实现。但是, 对更多情况, 二维模型的

近似并不满足, 此时需要结合对材料的先验知识, 合理建模并对 NV 扫描结果进行拟合, 提取有用信息。Jacques 组使用连续波谱方法测量了多铁薄膜  $\text{BiFeO}_3$  (BFO) 的杂散场<sup>[28]</sup>, 测得约 70 nm 空间周期的反铁磁螺旋序结构, 实验结果见图 13。其中(a)、(b)、(c)显示了在  $P_1^+$  铁电极化时的反铁磁螺旋序, (d)、(e)、(f)是利用 PFM 翻转铁电极化到  $P_4^-$  方向后的反铁磁螺旋序。图 13(c)和(f)内嵌的小图显示了相应情况下反铁磁序和铁电序的微观图景, 其中红色箭头标定的  $K_1, K_1'$  是相应的螺旋序波矢。作者还通过对反铁磁螺旋序的参数拟合, 结合微磁学建模标定了 BFO 薄膜内 DM 相互作用的强度。

## 5 总结和展望

本文从 NV 色心的微观结构和量子传感的基本原理出发, 介绍了利用 NV 色心进行磁传感的方法。之后进一步介绍了如何将上述方法结合到纳米扫描技术中, 用以实现纳米尺度的磁成像。之后我们从技术角度出发, 介绍了如何在实验上制备核心元件——NV 探针, 以及对探针性质的

标定和对仪器整体性质的评估。最后, 本文举例分析了利用 NV 扫描技术实现的成像工作。从这些分析中可以看出, NV 扫描技术作为一种新型纳米尺度磁成像技术, 有灵敏度、空间分辨率高, 对样品扰动低, 适用范围广, 实验手段灵活多样等优点。目前越来越多的实验小组正在采用本技术进行凝聚态材料的微观性质研究。

尽管已有大量应

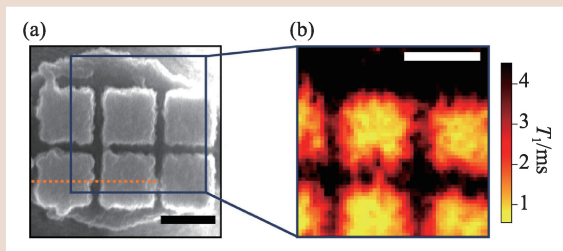


图 12 金属电导率成像结果<sup>[38]</sup>

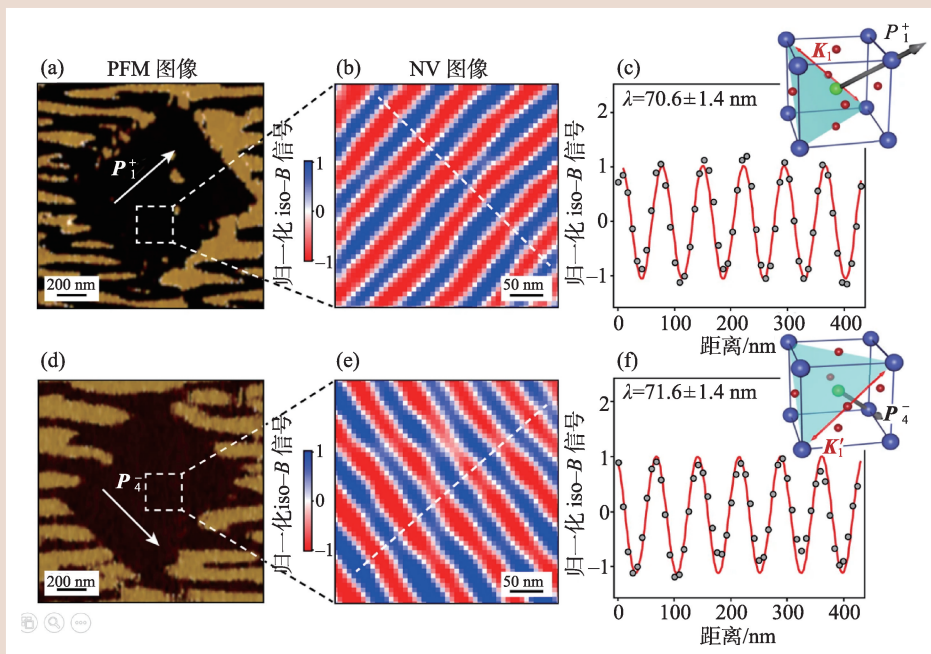


图 13 对 BFO 薄膜反铁磁螺旋序的成像工作<sup>[28]</sup>

用,但NV扫描显微镜的工作性能尚未被开发到极限。为提升灵敏度,研究者进行了大量的探索。主要的思路有如下几条。首先,可以延长相干时间,通过提高金刚石纯度,施加高阶动力学解耦<sup>[63]</sup>,利用双量子跃迁<sup>[64]</sup>、人工驱动金刚石中的背景自旋<sup>[64]</sup>等方法可以实现相干时间的延长。其次,提高荧光探测效率也是努力的方向。研究者通过设计更加合理的光腔以提高荧光收集效率<sup>[65, 66]</sup>,通过核自旋寄存器对单次测量得到的结果进行复用<sup>[67]</sup>,利用自旋—电荷转换延长有效荧光发射时间<sup>[38]</sup>、利用激发态能级交叉点将极化信号转移以提高亮暗态光子数对比度<sup>[68]</sup>。最后,理论上使用纠缠资源可以提高传感系数 $\gamma_p$ <sup>[48]</sup>,从而大幅度提升灵敏度,但是这需要在纳米精度上控制多个NV探针的位置,当前的微加工技术还无法实现这一点。

除了灵敏度,NV扫描的空间分辨率也有一

定提升空间。从2.5节分析可以看出,制约空间分辨率的主要因素是NV深度,为此,提升接近表面NV的电荷稳定性就成为了重要的研究方向。目前有研究表明,通过对金刚石表面化学环境进行适当加工可以提升该性能<sup>[69, 70]</sup>。此外,在探测交变磁场时还涉及谱分辨率的问题,本文分析时采用单色信号做近似忽略了这个问题。事实上,在梯度磁场存在的情况下,通过提升谱分辨率也可以利用谱学成像方法进一步提升空间分辨率。目前这方面的工作也不少,比如动力学解耦结合连续读出<sup>[71, 72]</sup>和关联谱测量<sup>[73]</sup>等。

综上,NV扫描显微技术作为一种新兴的纳米尺度磁成像技术,在诸多领域已经有了广泛应用。其各项性能还有很大的提升空间,未来将在纳米成像方面有更多的应用。

致 谢 感谢李玉鑫和孙豫蒙两位同学参与

3、4小节的部分文字编辑工作。

## 参考文献

- [1] Lewis E, Faraday M, Kerr J *et al.* The Effects of a Magnetic Field on Radiation: Memoirs by Faraday, Kerr, and Zeeman. No.8 in Scientific Memoirs, VIII, American Book Company, 1900
- [2] Qiu Z Q, Bader S D. Review of Scientific Instruments, 2000, 71 (3):1243
- [3] Winkler A, Mühl T, Menzel S *et al.* Journal of Applied Physics, 2006, 99(10): 104905
- [4] 曹永泽, 赵越. 物理学报, 2019, 68(16): 168502-1
- [5] Buchner M, Höfler K, Henne B *et al.* Journal of Applied Physics, 2018, 124(16): 161101
- [6] Chatrathorn S, Fleet E F, Wellstood F C *et al.* Applied Physics Letters, 2000, 76(16): 2304
- [7] Felten A, Bittencourt C, Pireaux J J *et al.* Nano Letters, 2007, 7, (8): 2435
- [8] Giles L J, Grigoropoulos A, Szilagyi R K. The Journal of Physical Chemistry A, 2012, 116(50): 12280
- [9] Aswal V K, Goyal P S, Thiyagarajan P. The Journal of Physical Chemistry B, 1998, 102(14): 2469
- [10] Kotlarchyk M, Chen S. The Journal of Chemical Physics, 1983, 79(5): 2461
- [11] Song D, Tavabi A H, Li Z A *et al.* Nature Communications, 2017, 8: 15348
- [12] Li M, Lau D, De Graef M *et al.* Phys. Rev. Materials, 2019, 3: 064409
- [13] Wortmann D, Heinze S, Kurz P *et al.* Phys. Rev. Lett., 2001, 86: 4132
- [14] Berbil-Bautista L, Krause S, Bode M *et al.* Phys. Rev. B, 2007, 76: 064411
- [15] Gruber A, Dräbenstedt A, Tietz C *et al.* Science, 1997, 276: 2012
- [16] Jelezko F, Gaebel T, Popa I *et al.* Physical Review Letters, 2004, 92: 076401
- [17] Jelezko F, Popa I, Gruber A *et al.* Applied Physics Letters, 2002, 81: 2160
- [18] Jelezko F, Gaebel T, Popa I *et al.* Physical Review Letters, 2004, 93: 130501
- [19] Taylor J M, Cappellaro P, Childress L *et al.* Nature Physics, 2008, 4: 810
- [20] Maze J R, Stanwix P L, Hodges J S *et al.* Nature, 2008, 455: 644
- [21] Balasubramanian G, Chan I Y, Kolesov R *et al.* Nature, 2008, 455: 648
- [22] Degen C L. Applied Physics Letters, 2008, 92: 243111
- [23] Maletinsky P, Hong S, Grinolds M S *et al.* Nature Nanotechnology, 2012, 7: 320
- [24] Tetienne J P, Hingant T, Kim J V *et al.* Science, 2014, 344: 1366
- [25] Tetienne J P, Hingant T, Martínez L J *et al.* Nature Communications, 2015, 6: 6733

- [26] Gross I, Martínez L J, Tetienne J P *et al.* *Physical Review B*, 2016, 94:064413
- [27] Hingant T, Tetienne J P, Martínez L *et al.* *Physical Review Applied*, 2015, 4:014003
- [28] Gross I, Akhtar W, Garcia V *et al.* *Nature*, 2017, 549:252
- [29] Yu G, Jenkins A, Ma X *et al.* *Nano Letters*, 2018, 18:980
- [30] Gross I, Akhtar W, Hrabec A *et al.* *Physical Review Materials*, 2018, 2:024406
- [31] Dovzhenko Y, Casola F, Schlotter S *et al.* *Nature Communications*, 2018, 9:2712
- [32] Jenkins A, Pelliccione M, Yu G *et al.* *Physical Review Materials*, 2019, 3:083801
- [33] Thiel L, Wang Z, Tschudin M A *et al.* *Science*, 2019, 364:973
- [34] Thiel L, Rohner D, Ganzhorn M *et al.* *Nature Nanotechnology*, 2016, 11:677
- [35] Tetienne J P, Dontschuk N, Broadway D A *et al.* *Science Advances*, 2017, 3:e1602429
- [36] Chang K, Eichler A, Rhensius J *et al.* *Nano Letters*, 2017, 17:2367
- [37] Ku M J H, Zhou T X, Li Q *et al.* *Imaging Viscous Flow of the Dirac Fluid in Graphene Using a Quantum Spin Magnetometer*, 2019, arXiv:1905.10791
- [38] Ariyaratne A, Bluvstein D, Myers B A *et al.* *Nature Communications*, 2018, 9:1
- [39] Grinolds M S, Hong S, Maletinsky P *et al.* *Nature Physics*, 2013, 9:215
- [40] Arai K, Belthangady C, Zhang H *et al.* *Nature Nanotechnology*, 2015, 10:859
- [41] Zhang H, Arai K, Belthangady C *et al.* *npj Quantum Information*, 2017, 3:1
- [42] Pfender M, Aslam N, Waldherr G *et al.* *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 2014, 111:14669
- [43] Jaskula J C, Bauch E, Arroyo-Camejo S *et al.* *Optics Express*, 2017, 25:11048
- [44] Maze J R, Gali A, Togan E *et al.* *New Journal of Physics*, 2011, 13(2):025025
- [45] Gali A, Fyta M, Kaxiras E. *Physical Review B*, 2008, 77:155206
- [46] Doherty M W, Manson N B, Delaney P *et al.* *New Journal of Physics*, 2011, 13:025019
- [47] Lenef A, Rand S C. *Physical Review B*, 1996, 53:13441
- [48] Degen C, Reinhard F, Cappellaro P. *Reviews of Modern Physics*, 2017, 89:035002
- [49] Dréau A, Lesik M, Rondin L *et al.* *Physical Review B*, 2011, 84:195204
- [50] Slichter C P. *Principles of Magnetic Resonance*. Springer Series in Solid-State Sciences, Berlin Heidelberg: Springer-Verlag, 3 ed., 1990
- [51] Abobeih M H, Cramer J, Bakker M A *et al.* *Nature Communications*, 2018, 9:1
- [52] Lovchinsky I, Sushkov A O, Urbach E *et al.* *Science*, 2016, 351:836
- [53] Casola F, van der Sar T, Yacoby A. *Nature Reviews Materials*, 2018, 3:17088
- [54] Thiel L, Wang Z, Tschudin M A *et al.* *Science*, 2019, 364:973
- [55] Zhou T X, Stöhr R J, Yacoby A. *Applied Physics Letters*, 2017, 111:163106
- [56] Pelliccione M, Jenkins A, Ovarthaiyapong P *et al.* *Nature Nanotechnology*, 2016, 11:700
- [57] Batzer M, Shields B, Neu E. *Single crystal diamond pyramids for applications in nanoscale quantum sensing*, 2019, arXiv:1910.10737.
- [58] Lehtinen O, Naydenov B, Börner P *et al.* *Physical Review B*, 2016, 93:035202
- [59] Tisler J, Oeckinghaus T, Stöhr R J *et al.* *Nano Letters*, 2013, 13:3152
- [60] Hingant T, Tetienne J P, Martínez L J *et al.* *Phys. Rev. Applied*, 2015, 4:014003
- [61] Pham L M, DeVience S J, Casola F *et al.* *Physical Review B*, 2016, 93:045425
- [62] Wang P, Chen S, Guo M *et al.* *Science Advances*, 2019, 5:eaau8038
- [63] Müller C, Kong X, Cai J M *et al.* *Nature Communications*, 2014, 5:4703
- [64] Bauch E, Hart C A, Schloss J M *et al.* *Physical Review X*, 2018, 8:031025
- [65] Li L, Chen E H, Zheng J *et al.* *Nano Letters*, 2015, 15:1493
- [66] Wan N H, Shields B J, Kim D *et al.* *Nano Letters*, 2018, 18:2787
- [67] Lovchinsky I, Sushkov A O, Urbach E *et al.* *Science*, 2016, 351:836
- [68] Steiner M, Neumann P, Beck J *et al.* *Physical Review B*, 2010, 81:035205
- [69] Yamano H, Kawai S, Kato K *et al.* *Japanese Journal of Applied Physics*, 2017, 56:04CK08
- [70] Hauf M V, Grotz B, Naydenov B *et al.* *Physical Review B*, 2011, 83:081304
- [71] Cujia K S, Boss J M, Herb K *et al.* *Nature*, 2019, 571:230
- [72] Boss J M, Cujia K S, Zopes J *et al.* *Science*, 2017, 356:837
- [73] Aslam N, Pfender M, Neumann P *et al.* *Science*, 2017, 357:67