

基于金刚石氮-空位色心的磁测量技术

靖克, 谢一进, 蓝子桁, 荣星, 杜江峰*

(中国科学技术大学, 安徽 合肥 230026)

摘要: 磁测量是推动人类社会发展不可或缺的技术之一。以高探测灵敏度、高空间分辨率等关键指标作为牵引, 近年来, 多种量子体系被用于精密磁测量技术发展, 金刚石氮-空位色心固态自旋体系就是其中之一。本文简述了氮-空位色心体系的精密磁测量技术及其应用研究, 介绍了基于金刚石氮-空位色心自旋体系磁测量的原理和优势、基于该体系的磁测量方法研究工作、以及面向材料成像和生命科学等领域开展的研究工作, 指出了未来基于金刚石氮-空位色心体系的精密磁测量技术有望发展新型矢量高灵敏度、高空间分辨率磁测量装备, 为更多研究领域譬如地磁测绘、工业无损检测等重大应用提供新的支撑。

关键词: 磁测量技术; 金刚石; 氮-空位色心; 量子精密测量

中图分类号: TB939 **文献标志码:** A **文章编号:** 1674-5795(2023)04-0015-18

Magnetometry based on nitrogen-vacancy center in diamond

JING Ke, XIE Yijin, LAN Ziheng, RONG Xing, DU Jiangfeng*

(University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

Abstract: Magnetometry is an indispensable technology in human society. Magnetometers based on quantum sensing technologies have been developed in many quantum systems to realize high spatial resolution and sensitivity. Nitrogen-vacancy (NV) center in diamond is one of the quantum systems. This article provides an overview of the precision magnetic measurement technology based on the NV center system and its applications in various fields. Principles and advantages of using the NV center for magnetic field measurement are included in this paper. The research status of the magnetometry is also presented. Besides, practical applications of the magnetometry based on NV center in the field of materials imaging and life sciences are demonstrated. In the future, the magnetometry based on NV center will play an important role in the development of high sensitivity and spatial resolution vector magnetometer and facilitate more applications as geomagnetic mapping, nondestructive testing and others.

Key words: magnetometry; diamond; nitrogen-vacancy center; quantum sensing

0 引言

磁是物质的一种基本属性^[1], 对物质磁性的探索与利用推动着人类科技的进步和发展。古时

的司南利用带磁性物体与磁场的相互作用来定性判断磁场的方向。高斯于1832年发明^[2]的磁强计是最早的磁场量化测量仪器, 其原理是: 通过观察被磁化的针状材料在不同条件下的摆动所耗费

收稿日期: 2022-11-25; 修回日期: 2022-12-06

基金项目: 中国科学院战略性先导科技专项(C类)(XDC07000000)

引用格式: 靖克, 谢一进, 蓝子桁, 等. 基于金刚石氮-空位色心的磁测量技术[J]. 计测技术, 2023, 43 (4): 15-32.

Citation: JING K, XIE Y J, LAN Z H, et al. Magnetometry based on nitrogen-vacancy center in diamond[J]. Metrology & Measurement Technology, 2023, 43(4):15-32.



的时间来实现对磁场的测量。随着科技的进步,霍尔磁强计^[3]、磁通门磁强计^[4]和磁阻磁强计^[5]等不同原理的磁测量设备也不断涌现。随着对磁测量精度和灵敏度要求的逐步提高,基于量子体系的精密测量技术走入了人们的视野。量子体系的行为与物理常数有关,因此量子测量设备可以实现经典物理体系无法达到的的准确度、精度和可重复性^[6]。目前,基于量子体系的磁强计主要包括原子/光泵浦磁强计^[7]、超导量子干涉仪^[8]以及金刚石氮-空位(Nitrogen-Vacancy, NV)色心磁强计^[9-10]。其中,金刚石NV色心磁强计以其复杂工作环境兼容能力^[11],与前述两种磁强计比肩的理论灵敏度指标^[9]以及原子尺度的空间分辨率^[12]等优异特性,在磁测量领域具有不可替代的地位。

金刚石NV色心是一种点缺陷,可以通过激光进行初始化和读出,通过磁共振技术进行量子态调控。室温条件下, NV色心这一固态自旋体系具有毫秒量级的相干时间。自1997年实现单个NV色心的光探测磁共振实验以来^[13],该体系在量子计算^[14-15]和量子精密测量^[16]等领域得到了快速发展。精密磁测量是其中一个重要的发展方向,其原子尺度大小,使得单个氮-空位色心在高空间分辨率磁场测量中取得了广泛应用^[17-19]。而通过对众多自旋进行统计平均,氮-空位色心系综以降低空间分辨力为代价,得到了更高的测量信噪比^[20]。针对不同的应用场景和指标需求,基于单色心和系综体系分别发展了相应的技术路线。

文章聚焦NV色心体系,综述基于该体系的精密磁测量工作。通过介绍NV色心体系的基本结构与性质、基于NV色心的磁场测量原理、基于NV色心体系的磁测量方法关键技术发展及基于NV色心体系的磁测量技术发展与应用,最后总结并展望了基于NV色心磁测量技术的未来发展方向。

1 金刚石NV色心

1.1 NV色心结构与性质

NV色心是金刚石中一种具有 C_{3v} 对称性的点缺陷,由一个替代碳原子的氮原子和相邻的空位组成,如图1(a)所示。常见的NV色心有带负电荷和不带电荷两种带电状态。通常,被用于实验研究的NV色心是带负电荷的,称为NV⁻色心,另一种

不带电荷的NV色心是NV⁰色心。两种电荷态可以相互转化,这种转化与激光波长、激光功率和样品自身的性质有关。虽然两种色心都具有顺磁性,但NV⁰色心自身对环境干扰并不敏感,只有NV⁻色心对外界物理量具有敏感响应的特点,适于用量子传感领域。因此为实现NV⁻色心的高极化度,应避免激光波长过短造成NV⁻色心电子电离转化成NV⁰色心。一般来说,532 nm的绿色激光是极化NV⁻色心效率最高的。本文后续研究是基于NV色心的磁场传感技术发展,若无特殊说明,所述NV色心均代指NV⁻色心。

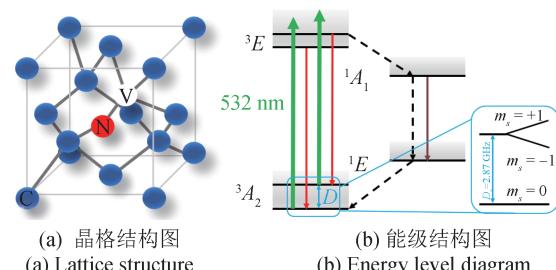


图1 NV色心晶格结构图及其能级结构图^[21]

Fig.1 Lattice structure and energy level diagram of NV center^[21]

NV色心能级结构如图1 (b) 所示。其基态 3A_2 为自旋三重态,分为 $|m_s = 0\rangle$ 态和 $|m_s = \pm 1\rangle$ 态,其中,在无外磁场时, $|m_s = \pm 1\rangle$ 是简并的二重态。由于自旋-自旋相互作用,基态 $|m_s = 0\rangle$ 和 $|m_s = \pm 1\rangle$ 之间存在2.87 GHz的零场劈裂。同样地,NV色心的激发态 3E 也是自旋三重态,激发态的 $|m_s = 0\rangle$ 和 $|m_s = \pm 1\rangle$ 之间有1.41 GHz的零场劈裂。此外,在基态 3A_2 与激发态 3E 之间还有两个自旋单重态的亚稳态 1A_1 和 1E ,它们的存在给NV色心的荧光特性带来了巨大的影响。NV色心可以被532 nm的激光从基态 3A_2 激发到激发态 3E ,然后退激发回 3A_2 态。处于激发态 3E 的NV色心有两种主要的退激发路径,一是发射荧光回到基态,二是通过系间窜越(Inter-system Crossing, ISC)机制,经由单态 1A_1 和 1E 回到基态,这一过程不辐射荧光。两条路径的发生概率取决于NV色心处于基态时的自旋状态,即NV色心基态处于 $|m_s = 0\rangle$ 和 $|m_s = \pm 1\rangle$ 态时,其被激光激发后退激发时发出荧光光子的概率不同。处于 $|m_s = 0\rangle$ 态的NV色心被激发后,其退激发所产生的荧光光子的概率更大。因此, $|m_s = 0\rangle$ 态又被称

为“亮”态，与之相反的 $|m_s = \pm 1\rangle$ 态被称为“暗”态。这个特征是NV色心能够被光极化和读出的关键原因。对于系综NV色心来说，大量的NV色心同时被激光照射，因此可以通过荧光光强来判断

$$\begin{aligned} \mathbf{H} &= \mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_{\text{nuclear}} + \mathbf{H}_{\text{eleclstr}} \\ \mathbf{H}_0 &= DS_z^2 + \gamma(B_x S_x + B_y S_y + B_z S_z) \\ \mathbf{H}_{\text{nuclear}} &= A_{\parallel} S_z \mathbf{I}_z + A_{\perp} (S_x \mathbf{I}_x + S_y \mathbf{I}_y) + P [I_z^2 - I(I+1)/3] - \gamma_N (B_x \mathbf{I}_x + B_y \mathbf{I}_y + B_z \mathbf{I}_z) \\ \mathbf{H}_{\text{eleclstr}} &= (d_{\parallel} E_z + M_z) S_z^2 + (d_{\perp} E_x + M_x) (S_y^2 - S_x^2) + (d_{\perp} E_y + M_y) (S_x S_y + S_y S_x) + \\ &\quad (d_{\perp} E_x + N_x) (S_x S_z + S_z S_x) + (d_{\perp} E_y + N_y) (S_y S_z + S_z S_y) \end{aligned} \quad (1)$$

式中： \mathbf{H}_0 包括了NV色心电子自旋的零场劈裂项以及塞曼劈裂项； $\mathbf{H}_{\text{nuclear}}$ 中包含了NV色心电子自旋与其邻近核自旋的超精细相互作用项，核自旋本身的核四极矩项与塞曼劈裂项； $\mathbf{H}_{\text{eleclstr}}$ 为NV色心与电场和应力相互作用的哈密顿量；常数D为NV色心电子自旋的零场分裂项； γ 为电子自旋旋磁比； A_{\parallel} 与 A_{\perp} 分别为轴向与横向超精细耦合系数；P为核四极矩参数； γ_N 为氮核自旋旋磁比； d_{\parallel} 与 d_{\perp} 分别为NV色心电子自旋的电偶极矩； $\{M_z, M_x, M_y, N_x, N_y\}$ 为自旋-应力耦合参数；矢量 \mathbf{B} 为磁感应强度矢量， $\mathbf{B} = (B_x, B_y, B_z)$ ； \mathbf{S} 为无量纲自旋为1的电子自旋算符， $\mathbf{S} = (S_x, S_y, S_z)$ ； \mathbf{I} 为无量纲的氮核自旋算符， $\mathbf{I} = (I_x, I_y, I_z)$ ，通常为丰度更高的¹⁴N核自旋，此时自旋为1，若为¹⁵N核自旋则自旋为1/2； \mathbf{E} 为电场/应力的矢量， $\mathbf{E} = (E_x, E_y, E_z)$ ；Z方向为沿着NV色心的主轴方向。

基于前面的讨论可知，NV色心在被532 nm的激光极化后，其在 $|m_s = 0\rangle$ 态上的布居度会偏离热平衡态并逐渐增加，从而实现NV色心的极化。极化后，可以通过施加频率等于 $|m_s = 0\rangle$ 和 $|m_s = \pm 1\rangle$ 之间能极差的振荡磁场对NV色心进行相干操控。由于该振荡磁场的频率一般在微波波段，因此称之为微波场或微波操控场。

1.3 NV色心的弛豫

刻画NV色心弛豫性质的参数有3种弛豫时间：自旋-晶格弛豫时间 T_1 、自旋-自旋弛豫时间 T_2 和非均匀弛豫时间 T_2^* 。

晶格的振动使得NV色心与周围的环境发生相互作用，也可以描述为NV色心与晶格振动声子之间的相互作用，会导致被激光极化的NV色心弛豫回到极化前的热平衡态。由于这个弛豫是晶格振动导致的，因此描述该过程的特征时间常数被称为自旋-晶格弛豫时间 T_1 。自旋-晶格弛豫的过程

其处于 $|m_s = 0\rangle$ 和 $|m_s = \pm 1\rangle$ 态的布居度。

1.2 NV色心基态哈密顿量

令普朗克常数为1，室温下NV色心电子自旋三重态的哈密顿量表示为^[22]

在布洛赫球上反映了NV色心Z方向的弛豫特征，因此时间常数 T_1 也被称为纵向弛豫时间。

NV色心与周围的自旋之间的相互作用导致的弛豫被称为自旋-自旋弛豫，其时间常数称为自旋-自旋弛豫时间 T_2 。自旋-自旋弛豫的过程在布洛赫球上反映了NV色心XY平面内的弛豫特征，因此时间常数 T_2 也被称为横向弛豫时间。

非均匀自旋弛豫是由于NV色心所感受到的局部磁场不均匀导致的。与 T_2 类似， T_2^* 也是描述NV色心自旋退相干过程的特征时间。不考虑其退相干来源时，两者均可用于描述NV色心在布洛赫球XY平面上的弛豫过程，可以统称为横向弛豫时间。

2 基于NV色心的磁测量原理

基于NV色心的磁测量的基本原理为塞曼效应。当磁场发生变化时，NV色心电子基态塞曼分裂能级差的改变会对NV色心电子的自旋态产生影响。通过对NV色心进行光学读出，根据依赖于NV色心电子自旋态的荧光强度就可以反推得到磁场的变化量，从而完成磁测量。

根据激发光和操控场在时域上的连续性，基于NV色心的磁测量方法可以分为连续波(Continuous Wave, CW)磁测量方法和脉冲(Pulsed)磁测量方法。

2.1 连续波磁测量方法

连续波磁测量方法通过施加时域上连续的激发光和操控场，使NV色心电子自旋达到稳态。当磁场发生变化时，由于塞曼分裂能级差改变，跃迁的共振条件同样会发生改变，系统原本的稳态会被破坏并迅速达到新的稳态，荧光强度相应发生变化。利用荧光强度的变化量可以反推得到磁场的变化量，从而实现对磁场的测量。该测量过程如图2所示。

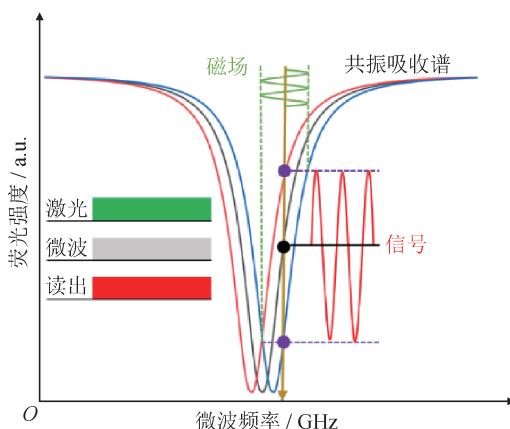
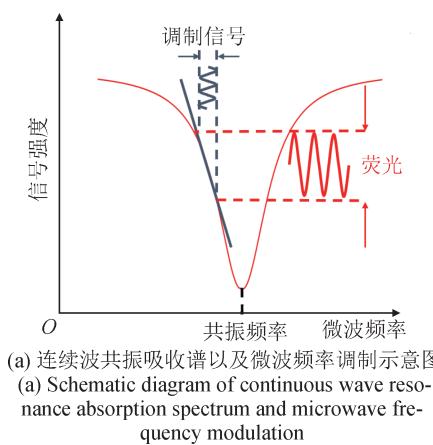
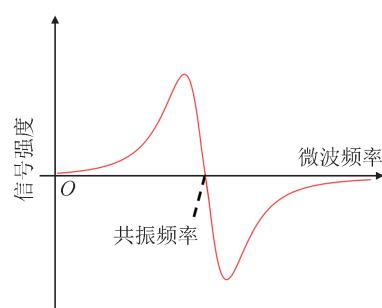


图2 NV色心连续波磁测量方法原理示意图
Fig.2 Schematic of continuous-wave NV magnetometry



(a) 连续波共振吸收谱以及微波频率调制示意图
(a) Schematic diagram of continuous wave resonance absorption spectrum and microwave frequency modulation



(b) 连续波一阶微分谱曲线示意图
(b) Diagram of first order differential spectrum curve of continuous wave

图3 微波频率调制方法原理示意图
Fig.3 Schematic of continuous-wave NV magnetometry with microwave frequency modulation

2.2 脉冲磁测量方法

脉冲磁测量方法通过施加脉冲形式的激发光和操控场,使电子自旋处于叠加态(态矢指向布洛赫球的赤道),处于叠加态的自旋会在磁场的作用下积累动力学相位,最终,通过一个 $\pi/2$ 脉冲使自旋回到 $|m_s = 0\rangle$ 或 $|m_s = \pm 1\rangle$ 态,就可以对与磁场大小有关的动力学相位进行读出,从而实现对磁场的测量。常见的脉冲磁测量方法有拉姆齐(Ramsey)干涉法、自旋回波(Spin-echo)法以及动力学去耦法,其实验序列如图4所示^[24]。

由于NV色心的退相干时间限制,Ramsey干涉法适用于低频磁信号测量,Spin-cho和动力学去耦法适用于高频磁信号测量(此处以10 kHz频率作为分界线)^[16, 24]。在低频磁测量方面,Ramsey干涉法可以有效规避激光和微波带来的额外展宽^[25],理论上是比连续波方法更为优秀的磁测量手段^[26]。Spin-echo和动力学去耦法通过施加微波脉冲翻转

连续波方法中还可采用相敏检测的方法提升实验信噪比,施加频率调制的微波操控场是实现方法之一^[23]。频率调制的微波信号使得共振吸收峰附近的NV色心荧光信号发生与调制频率相同的振荡,通过解调可得到共振吸收谱的一阶微分形式,如图3所示。此方法可以在探测端避开电子学系统的 $1/f$ 噪声,有效提高实验信噪比。激光幅度调制也是可替代方法之一,但实现激光调制的系统更为复杂,且用于调制的声光调制器会带来功率损失,光学斩波器无法实现数千赫兹以上的高频调制,因此实际应用较少。

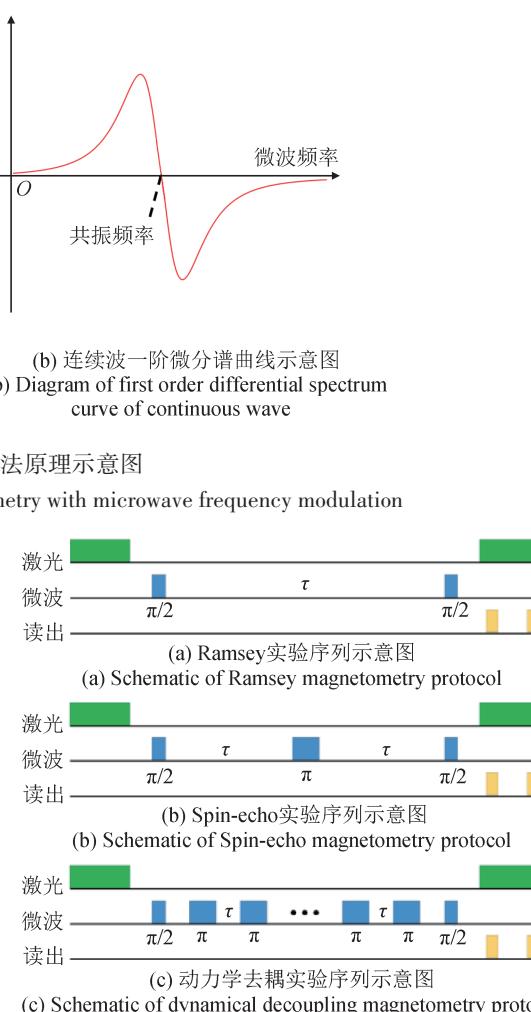


图4 常用NV色心脉冲磁测量方法实验序列示意图^[24]
Fig.4 Several common pulsed magnetometry protocols based on NV center^[24]

电子自旋,从而平均掉电子自旋与环境之间的耦合,达到抑制退相干的目的^[16]。通过设计动力学去耦序列,可以消除不完美微波脉冲的负面效应,进一步提升实验信噪比。

3 NV色心磁测量应用中的关键技术

实现基于金刚石NV色心的磁场测量首先要搭建光探测磁共振(Optical Detected Magnetic Resonance, ODMR)实验系统。完整的ODMR实验系统主要包括：包含NV色心的金刚石敏感单元；用于金刚石样品激发和荧光收集的光学单元；操控NV色心电子自旋态的微波单元；系统整体控制与读出的电子学单元。除搭建系统所需的商用部件外，提升NV色心磁测量系统性能还需发展的关键技术包括：样品制备技术、高效光学激发技术、高效荧光收集技术以及微波天线设计技术等。

3.1 金刚石样品制备技术

虽然天然金刚石的储量丰富，但天然金刚石的尺寸、杂质浓度和产量均不可控制，不适合进行有可重复性要求的科学实验。随着物理、化学与工程制造业的发展，金刚石可以被人工合成。通过控制生长条件，人工合成金刚石可以表现出指定的物理化学性质。人造金刚石主要有两种生产方式：高温高压法(High-Pressure High-Temperature, HPHT)和化学气相沉积法(Chemical Vapor Deposition, CVD)，如图5所示。其中CVD方法可以控制杂质浓度^[27]，且在一定条件下可以生成特定方向排列的NV色心^[28]。

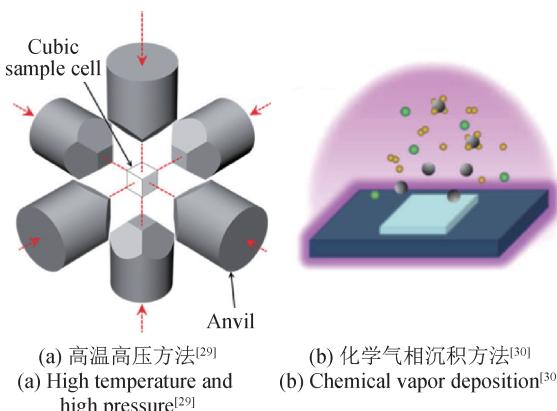


图5 常用人造金刚石合成方法原理示意图

Fig.5 Preparation methods of artificial diamond

在人工合成金刚石中产生所需的NV色心还需经过辐照和高温退火。辐照的目的是在金刚石中产生空位，通常包含电子辐照或离子辐照。高温退火的目的在于使空位迁移并与替代N原子结合形成NV色心，退火的温度在800~1 000 ℃^[31]。制备

金刚石样品的过程中，需要考虑的成品参数包括：NV色心浓度、孤立N原子浓度、其他杂质浓度、不均匀应力、¹³C核自旋浓度以及样品尺寸大小等。目前，已有多篇论文开展了上述参数对金刚石样品性质影响的研究与综述^[32-34]。

最终使用前，还需要对制备的人工金刚石样品进行切割、研磨、镀膜或腐蚀等操作，使其表面形貌能够匹配实验对传感器的需求。

3.2 高效光学激发技术

高效的光学激发技术能够有效提升基于NV色心体系的ODMR实验信噪比。这一技术方向主要关心两个指标：有效激发体积和激发光功率密度。其中，提升有效激发体积意味着提高了参与实验的NV色心的数量，而提升激发光功率密度意味着增加对比度和光电流大小^[35]。共聚焦方案是ODMR实验中最常见的激发/收集方法。虽然通过物镜汇聚后的激发光斑光功率密度较高，但金刚石样品的激发体积和荧光收集角度受共聚焦方案的空间选择性限制，导致整体用于传感的NV色心数目相对较少。

有效增加光激发体积的方式是利用金刚石高折射率的特性，使激光从侧边入射，在金刚石内部形成反射，增加激发光在金刚石内部的光程。图6展示了部分已发表的提升激发光激发效率的实验方案^[23, 36-38]。图6(a)~(c)采用了侧面入射的方式增加了激发光在金刚石内部的光程进而提升激发效率。其中图6(c)中利用金刚石高折射率的特点，通过全反射的方式将激发光囚禁在金刚石样品中，实现了激发效率相比于单通激发方式两个数量级以上的提升效果^[37]。图6(d)所示的工作中使用532 nm的绿光光腔实现了约 $3.5 \times 10^{-2} \text{ mm}^3$ 样品体积的有效激发，配合泵浦光吸收读出方法和相敏检测方法，实现了测量带宽195 Hz内磁噪声平台200 pT/Hz^{1/2}^[38]。

3.3 高效荧光收集技术

由于金刚石的高折射率特性，NV色心退激发产生的荧光信号会在金刚石内部形成全反射，进而造成荧光信号收集效率的降低，因此发展相应的高效荧光收集技术是提升ODMR实验系统性能的关键技术之一。

图7展示了为提升荧光收集效率发展的不同实

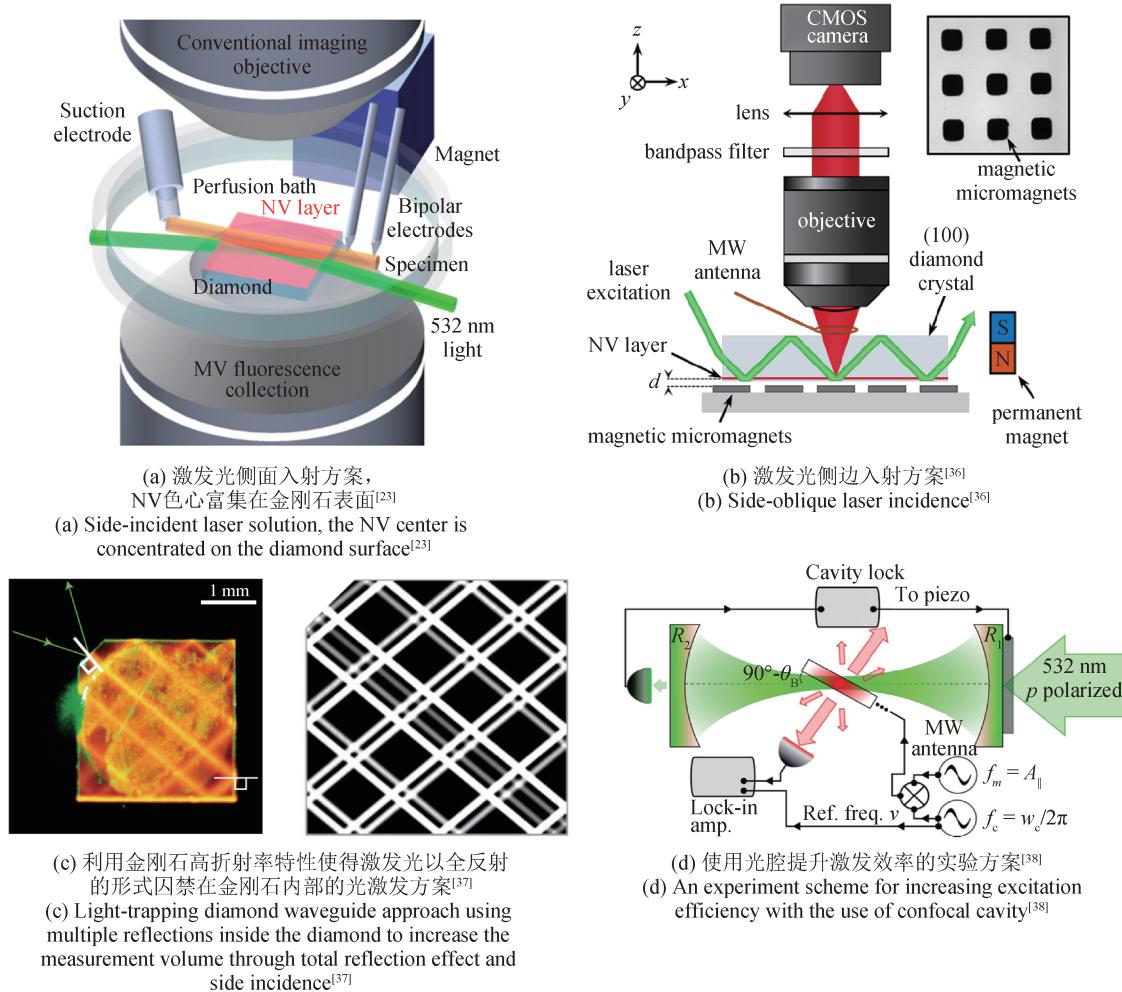


Fig.6 Numerous solutions for increasing the excitation efficiency of diamond NV center samples

验方法，大体上可分为两类：一类主要面向单色心实验，如图7(a)所示的固体沉浸透镜(Solid-Immersion-Lenses, SIL)^[39]和图7(b)所示的金刚石纳米柱^[40]，其设计旨在收集nm³到μm³体积的荧光信号，另一类是针对块状金刚石样品进行荧光收集，主要面向系综实验。图7(c)和图7(d)展示了两种块状金刚石荧光信号收集方式。图7(c)为斯图加特大学Wrachtrup团队发展的抛物面透镜荧光收集方式^[41]，该方法可以实现金刚石一个表面荧光信号的高效收集。图7(d)为哈佛大学Walsworth团队发展的光波导边带荧光收集方法^[42]，该方法通过多表面覆盖的方式实现了金刚石荧光信号的高效收集，但同时采用多个光电探测器提升了系统的复杂度和读出端的同步要求。除此之外，对金刚石样品进行表面镀膜处理也是有效提升金刚石荧光收集效率的一种方法^[43-44]。

3.4 微波天线设计

为了提升基于NV色心的实验系统性能，除发展光激发技术和荧光收集技术外，均匀、高效的微波场转化技术也是不可或缺的实验需求之一，其关键在于微波天线的设计与实现。在微波天线的设计过程中，需要注意的参数有：微波场转化效率、微波场覆盖区域大小、微波场均匀性以及天线覆盖的频率带宽。

图8给出了基于NV色心的ODMR实验发展的几种微波天线。早期的实验中，铜线^[45]和简单的线圈^[47]被用于产生微波场，其优势在于结构简单易于实现，但是微波场的均匀性难以保证。为提升微波场的均匀性，基于共平面波导结构的环形微波天线被提出并作为微波场发生单元。图8(b)所示的双开口环就是其中一种典型的平面天线结构^[46]。进一步微波谐振腔也被用于ODMR实验中，

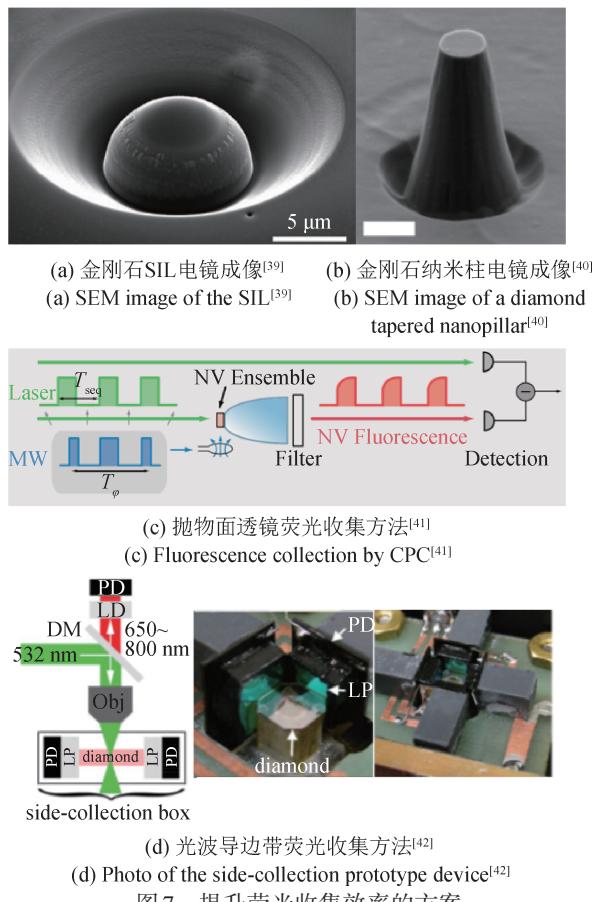


Fig.7 Methods proposed to improve the fluorescence collection efficiency

实现高效率、高均匀性微波场转化。图8(d)所示

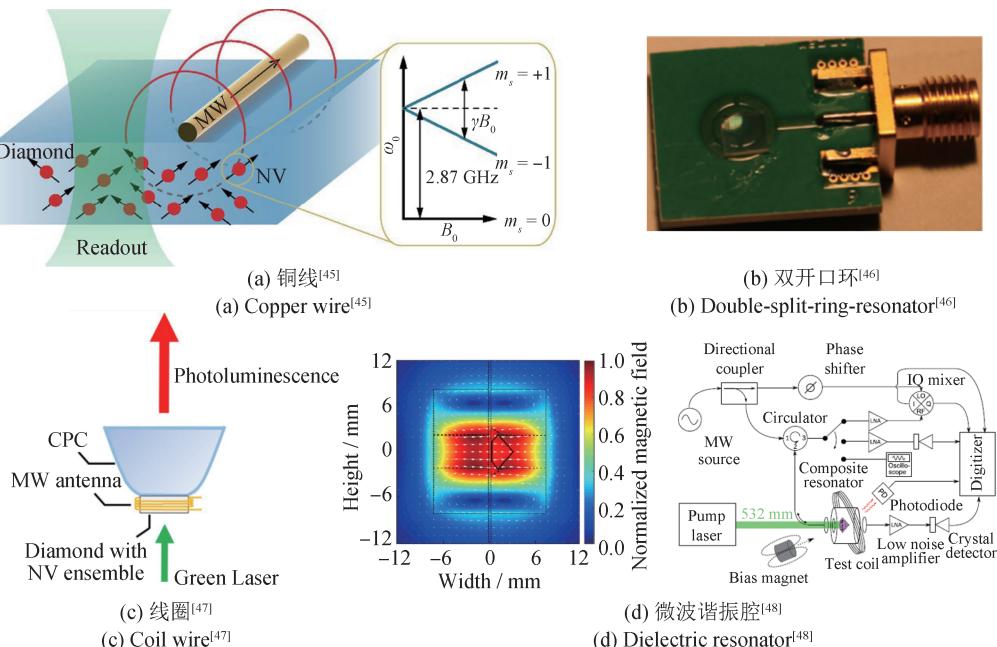


Fig.8 Microwave antenna for NV based ODMR system

为基于NV色心的磁测量系统中使用介质谐振腔作为微波天线的实例^[48]。

在面向特殊实验应用时还需要设计具备特殊性能的微波天线，例如零磁场条件下，NV色心的 $|m_s = \pm 1\rangle$ 的量子态简并，若用线偏振微波操控NV色心，那么 $|m_s = \pm 1\rangle$ 量子态对应能级产生的磁信号响应相互抵消，无法进行有效的磁测量实验。因此需要设计圆偏振微波天线以实现单一能级控制^[49-51]。

4 基于NV色心磁测量技术的发展与应用

2008年，有研究者提出金刚石NV色心可以用于磁场传感。Taylor等多位教授给出的一个关键性结论是：一块数毫米大小的金刚石样品理论上可以实现的交流磁场探测灵敏度达到 $3 \text{ fT/Hz}^{1/2}$ ^[9-10]。随后，基于NV色心面向不同频段、不同空间尺度的磁场测量技术研究迅速升温，开始了长达十余年的蓬勃发展。

NV色心作为一种高空间分辨率、高灵敏度的量子传感器，已经在物理学^[52-53]、生物医药学^[54-55]、材料科学^[56-57]等领域开展了应用研究。

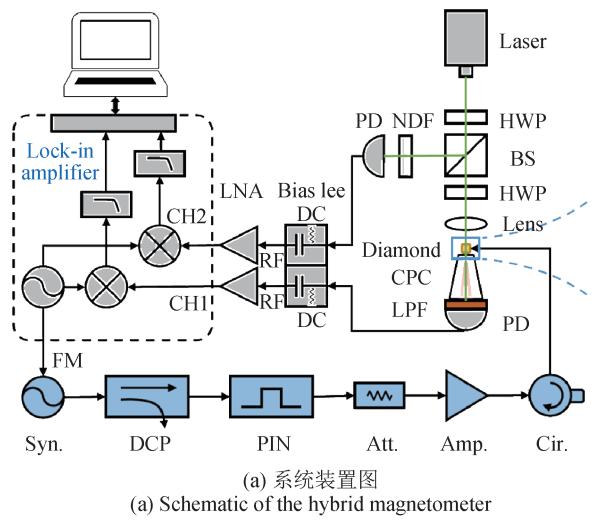
4.1 磁测量方法发展

上述第2节和第3节分别介绍了基于NV色心的磁测量方法原理及关键技术。在此基础上，围

绕NV色心体系的十余年磁测量技术发展历程中,多种测量方法被提出用于提升探测灵敏度指标或适配不同应用场景。

4.1.1 磁通聚集复合磁测量方法

借鉴传统的磁强计(例如霍尔磁强计、磁阻类磁强计和磁通门磁强计等),使用高磁导率材料制成的磁通聚集器与敏感单元形成复合磁强计的方法能够有效提升低频磁测量灵敏度^[58-60]。2020年,Acosta教授团队将磁通聚集器与系综NV色心相结合发展了复合磁测量实验方法,该方法实现了灵敏度指标 $0.9 \text{ pT/Hz}^{1/2}$ @ $10\text{~}1000 \text{ Hz}$ ^[61]。这是基于NV色心磁测量工作首次低频灵敏度指标突破 $\text{pT/Hz}^{1/2}$ 水平。2021年,杜江峰教授团队进一步优



(a) Schematic of the hybrid magnetometer

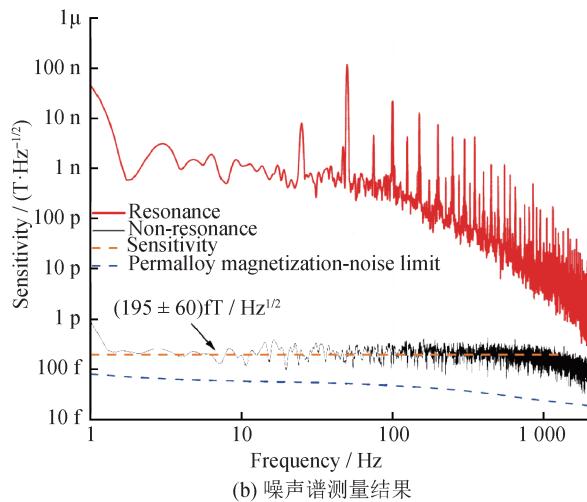


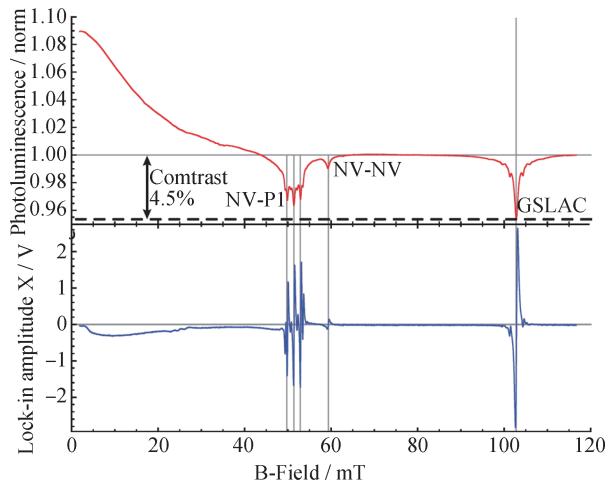
图9 杜江峰教授团队发展的基于NV色心与磁通聚集复合磁测量方法^[62]

Fig.9 Hybrid magnetometer based on the ensemble nitrogen-vacancy centers and flux concentrators^[62]

化磁通聚集器尺寸和形状,搭建了如图9(a)所示的复合磁测量实验平台。图9(b)展示了上述复合磁测量实验平台的噪声谱测试结果,通过计算带宽内($1\text{~}1302 \text{ Hz}$)噪声谱均值可得到该方法的灵敏度指标约为 $0.2 \text{ pT/Hz}^{1/2}$ ^[62]。这也是目前已报道的基于NV色心的磁测量实验工作中达到的最优灵敏度指标。

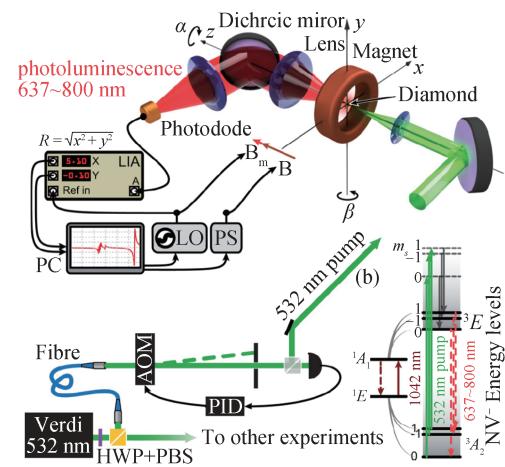
4.1.2 无 microwave磁场测量方法

基于NV色心在 $\sim 500 \text{ Gauss}$ 和 $\sim 1024 \text{ Gauss}$ 外磁场条件下产生的能级免交叉结构,如图10(a)所示,2016年,Budker教授团队首次提出利用该特征发展无 microwave的磁场测量技术^[63],图10(b)给出了实验系统的装置示意图。2020年,该团队进



(a) NV色心系综样品产生的荧光信号强度随外磁场变化测试结果

(a) NV-photoluminescence as a function of the applied magnetic field



(b) 无 microwave磁场测量实验系统装置图

(b) Schematic of the microwave-free experimental setup

图10 基于NV色心无 microwave磁场测量方法^[63]

Fig.10 Microwave-free magnetic field measurement scheme based on NV center^[63]

步将无微波单轴矢量磁测量技术发展成为了三维矢量磁场测量，三轴磁噪声平台均为 $0.3 \text{ nT/Hz}^{1/2}$ （测量带宽 $1 \sim 500 \text{ Hz}$ 内噪声谱均值）^[64]。该技术的优势在于不引入微波场，从而避免了微波噪声的引入。同时，在应用于金属无损检测场景时，不会引入微波带来的额外涡流损耗。但强偏置场的要求导致系统的集成化发展与实际应用受到一定程度的限制。

2022年，杜江峰教授团队在无微波磁测量方

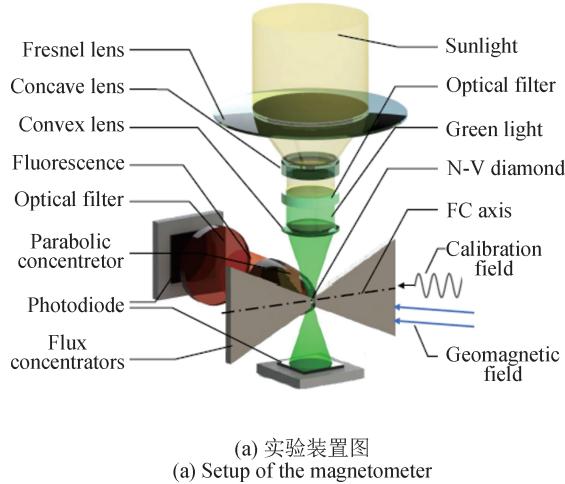


图11 基于NV色心无微波阳光驱动磁强计^[65]
Fig.11 Demonstration of microwave-free sunlight-driven magnetometry^[65]

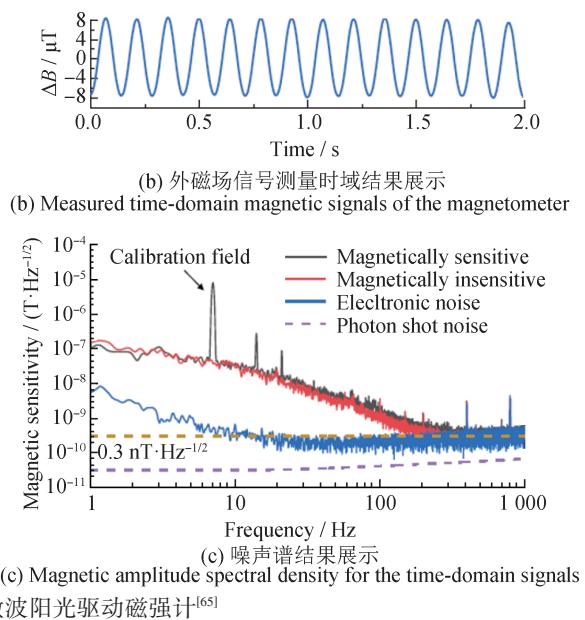
4.1.3 四轴矢量磁场测量方法

由于金刚石内NV色心固定的晶格取向及GHz量级的零场分裂，使其本身具有矢量磁测量的特性。考虑到单晶金刚石内NV色心天然具有4种不同的取向，若能够同时加以利用则可以实现三维矢量外磁场的测量^[66-69]。图12展示了基于单块金刚石系综NV色心样品的三维矢量磁测量原理。由于金刚石晶格结构的稳定性，有望基于单块金刚石实现极低轴向误差的三维矢量磁强计，从而取代其它基于3单轴磁强计构建的三维矢量磁强计。

4.1.4 非荧光读出方法

基于荧光收集方案的ODMR实验有收集效率低、谱线对比度低和光学散粒噪声大等缺点，这些问题限制了基于NV色心体系的磁测量系统灵敏度指标。面对上述问题，多种非荧光读出方法被开发出来，以期实现系统灵敏度的提升。

法的基础上结合了磁通聚集复合磁测量方法，将偏置场要求降低至地磁场~0.5 Gauss水平，实现了灵敏度指标 $0.3 \text{ nT/Hz}^{1/2}$ @ 320 Hz^[65]，如图11所示。除此之外，该工作的一个重要创新在于直接利用阳光驱动NV色心，为量子技术的能量消耗问题带来了潜在的解决方案。未来该方法可以扩展到多种量子体系，从而向自供能的量子传感以及可持续发展的量子技术迈出重要的一步。



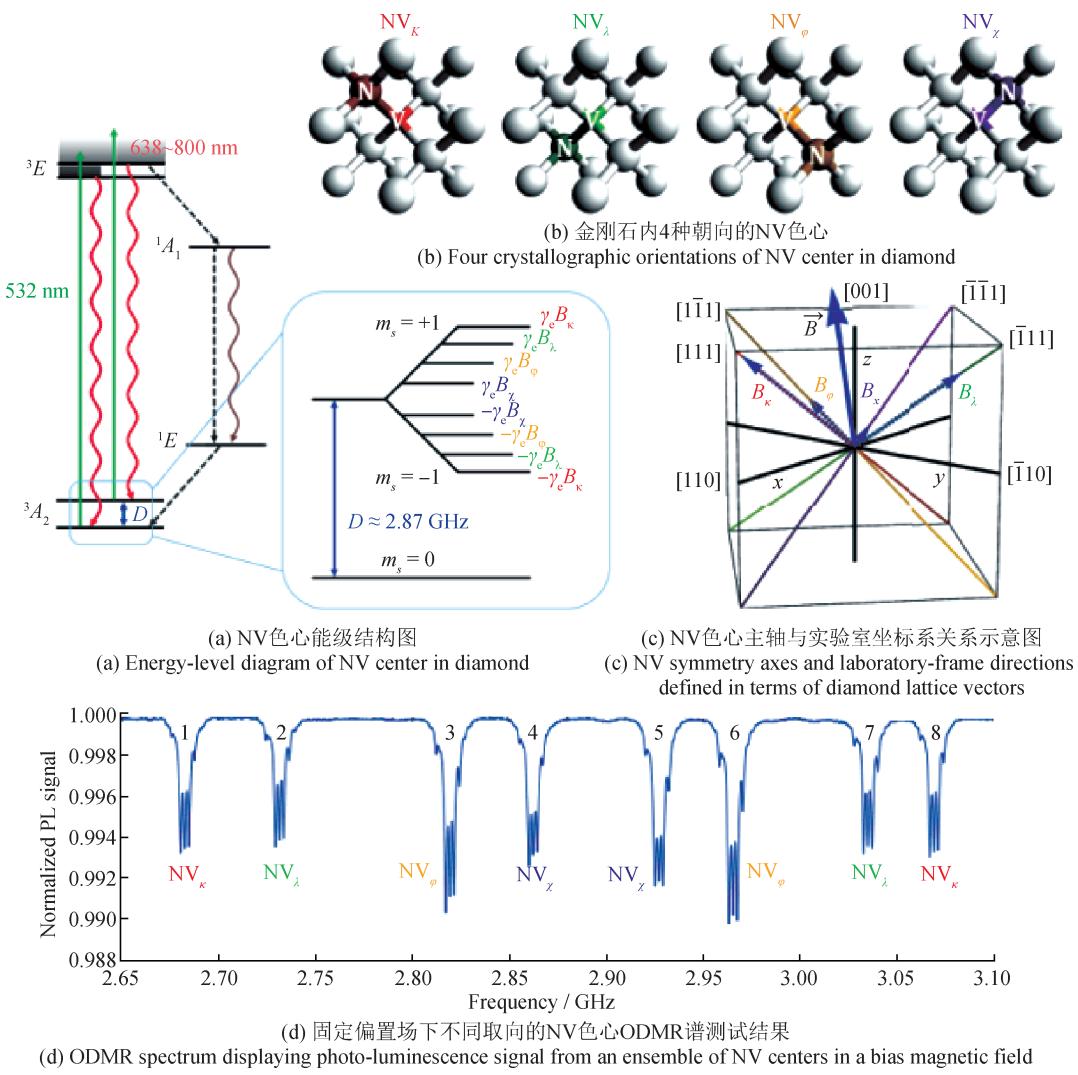
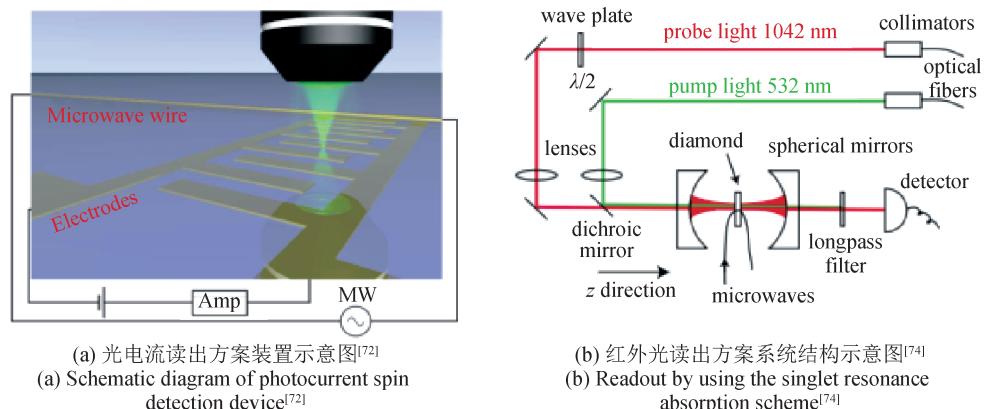
电荷态的转换与自旋量子态相关，因此可以通过读出光电流的方式对自旋量子态进行有效读出，如图13(a)所示。这种读出方式不再需要光学信号收集端，只需要电学设备辅助探测，在集成化和小型化方面也具有一定的优势^[70-72]。

NV色心单态发出的1024 nm的红外光也可以用来读出NV色心的电子自旋态^[73]。类比荧光读出方式，相敏检测和光腔结构等均可以用于提升红外读出方法中系统灵敏度，如图13(b)所示^[74-76]。

4.2 磁传感器集成化发展

系统集成化发展是实验技术从实验室走向应用的必经之路。目前，面向NV色心的磁强计集成化发展主要集中在探头部分，方法是将高功率的激光单元和微波单元独立出来，减小其余部分的尺寸和距离。

图14给出了几种不同的集成化NV磁强计方

图12 基于NV色心三维矢量磁测量原理示意图^[69]Fig.12 Principle of three-dimensional magnetic field vector measurements based on NV centers^[69]图13 基于NV色心非荧光读出方案
Fig.13 Non-fluorescent spin readout method based on NV center

案。图14(a)展示了2019年Englund教授团队将金刚石样品与互补式金属氧化物半导体(Complementary Metal-Oxide-Semiconductor, CMOS)芯片集成的工

作^[77]。该工作将微波波源、激光滤波光栅以及光电二极管等关键器件集成在了芯片以及印刷电路板上。图14(b)展示了一种基于光纤集成的NV色

心磁强计^[78]。Sekino 团队通过把金刚石样品粘接在光纤的一端并从另一端施加激光和收集荧光的方法实现了金刚石磁强计的小型化，并将其应用在生物医学等领域。2021 年，Jelezko 团队开发出了一种通过光纤提供激光，集成了微波天线、荧

光与参考激光探测器的 NV 色心磁强计探头，其磁测量灵敏度可达 $344 \text{ pT/Hz}^{1/2}$ ^[79]，如图 14(c) 所示。虽然该工作灵敏度指标突破了纳特斯拉水平，但其集成度相对较低，且仍需外接微波单元、激光单元以及信号处理单元。

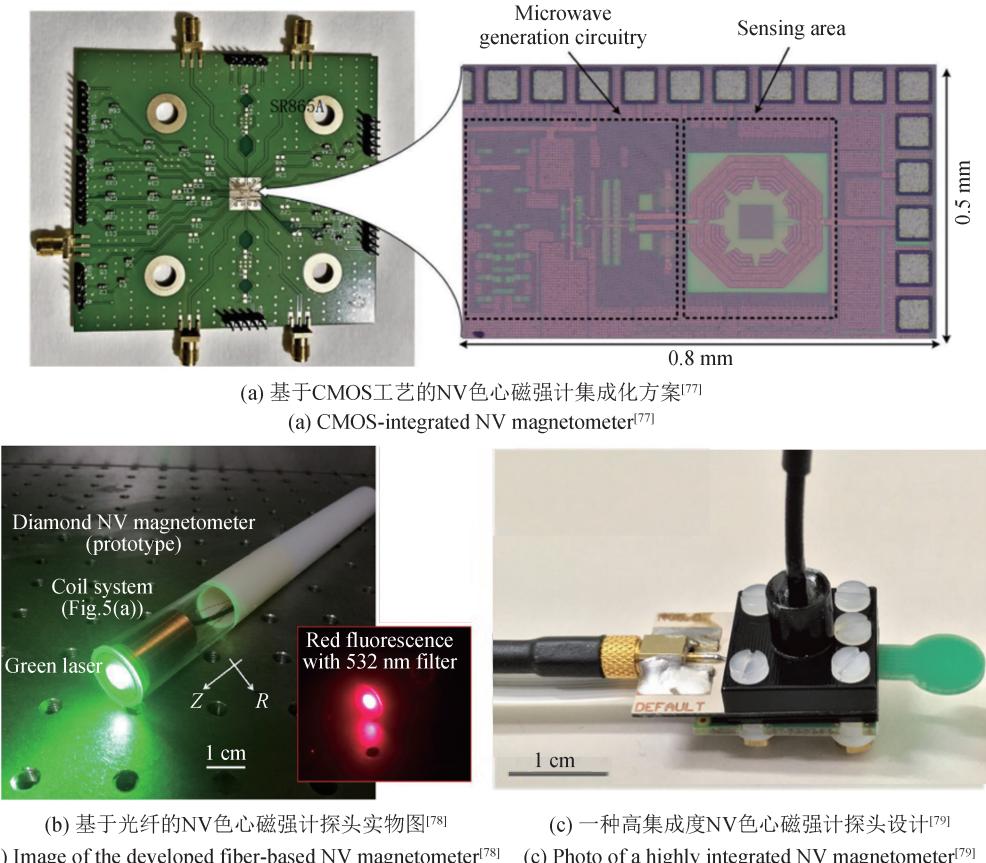


图 14 基于 NV 色心的磁强计集成化方案

Fig.14 Integrated schemes of magnetometer based on NV centers in diamond

4.3 磁成像应用

基于 NV 的磁成像技术主要有两个发展方向：一是基于单色心的扫描成像技术；二是基于块状系综金刚石样品的宽场成像技术^[80]。

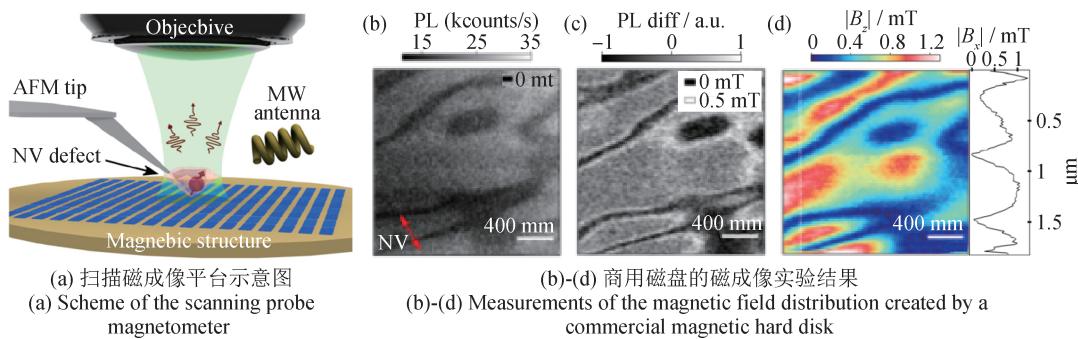
单 NV 色心具有高空间分辨率的特性，基于单色心可发展纳米尺度磁成像^[81]。具体实现方法是结合原子力显微镜实验技术，将单 NV 色心置于针尖探头处，通过扫描完成样品磁场分布重构。图 15(a) 中给出了一种基于单 NV 色心的纳米尺度磁成像实验平台结构。基于该实验平台，图 15(b)~(d) 展示了对商用磁盘磁场分布成像的实验结果^[82]。

上述高空间分辨率磁成像技术在生命科学领域以及物质科学领域均有重要应用^[83~86]。但高空

间分辨率的实现牺牲了用于传感的 NV 色心数目，因此通常上述方法灵敏度较低，同时能够探测的空间体积较小。

第二种基于 NV 色心的磁成像方式是利用金刚石表面一层 NV 色心实现宽场成像^[87~90]。其原理是待测样品置于金刚石样品表面，利用金刚石样品中不同位置 NV 色心感受到不同磁场大小进行磁场分布重构。相比单色心的扫描磁成像方法，宽场成像的实验系统更简单，成像视角更宽广。目前最优的宽场磁成像空间分辨率可达 400 nm ^[80]。

图 16(a) 展示了宽场磁成像系统结构图，目前这一技术已经应用到诸多实验工作中。图 16(b)~(g) 展示了宽场磁成像技术在金刚石科学^[91]、化学

图15 基于单NV色心的纳米尺度磁成像实验^[82]Fig.15 Nanoscale magnetic field mapping with a single spin scanning probe magnetometer^[82]

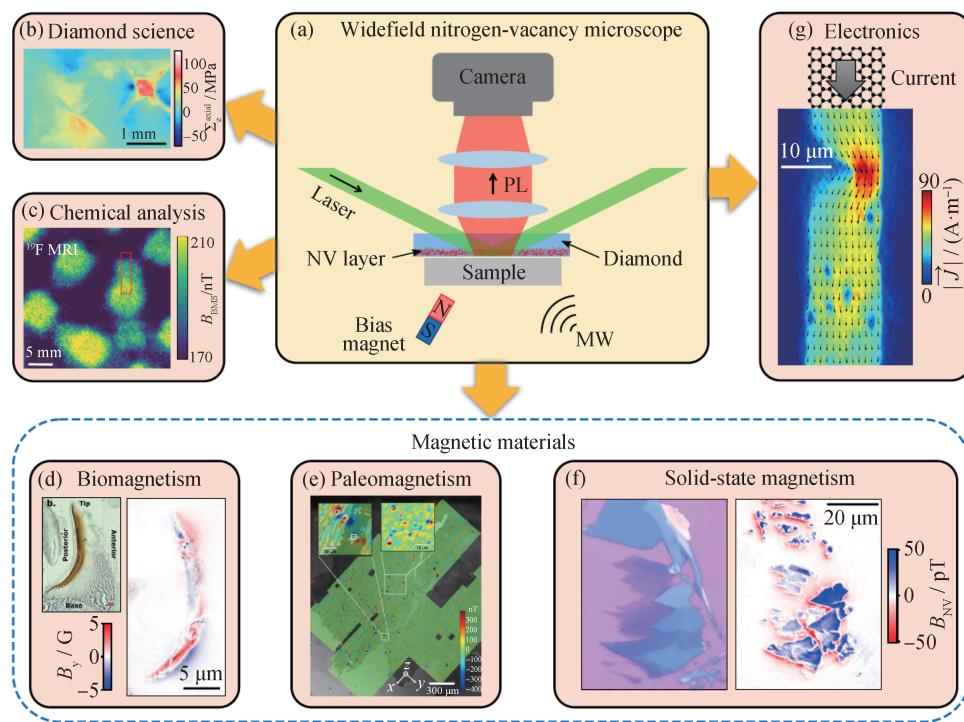
分析^[92]、材料科学^[73-75]以及电子科学^[96]等领域的实验结果。

4.4 生命科学应用

金刚石的物理化学稳定性以及生物反应惰性使得NV色心能够被用于生命科学领域探索。基于NV色心的磁测量技术在生命科学方面的应用仍然可以分为单NV色心磁测量和系综NV色心磁测量两个方面。其中，单NV色心磁测量主要利用其纳米级尺度实现对生物大分子或磁性颗粒的高分辨

率谱学研究。而基于系综NV色心的磁测量方法则多被用于生物磁信号与电信号的传感。

2015年，杜江峰教授团队利用单NV色心实现了单个生物蛋白质分子的首次谱学检测^[97]。2018年，该团队又实现了水溶液中单个DNA分子谱学观测^[98]。2019年，该团队利用单NV色心扫描磁成像技术，实现了细胞内铁蛋白的原位检测^[85]，如图17(a)所示。该实验的成功为单细胞内结合蛋白的磁成像检测打下了技术基础。

图16 基于NV色心的宽场磁成像工作^[80]Fig.16 Widefield NV microscope^[80]

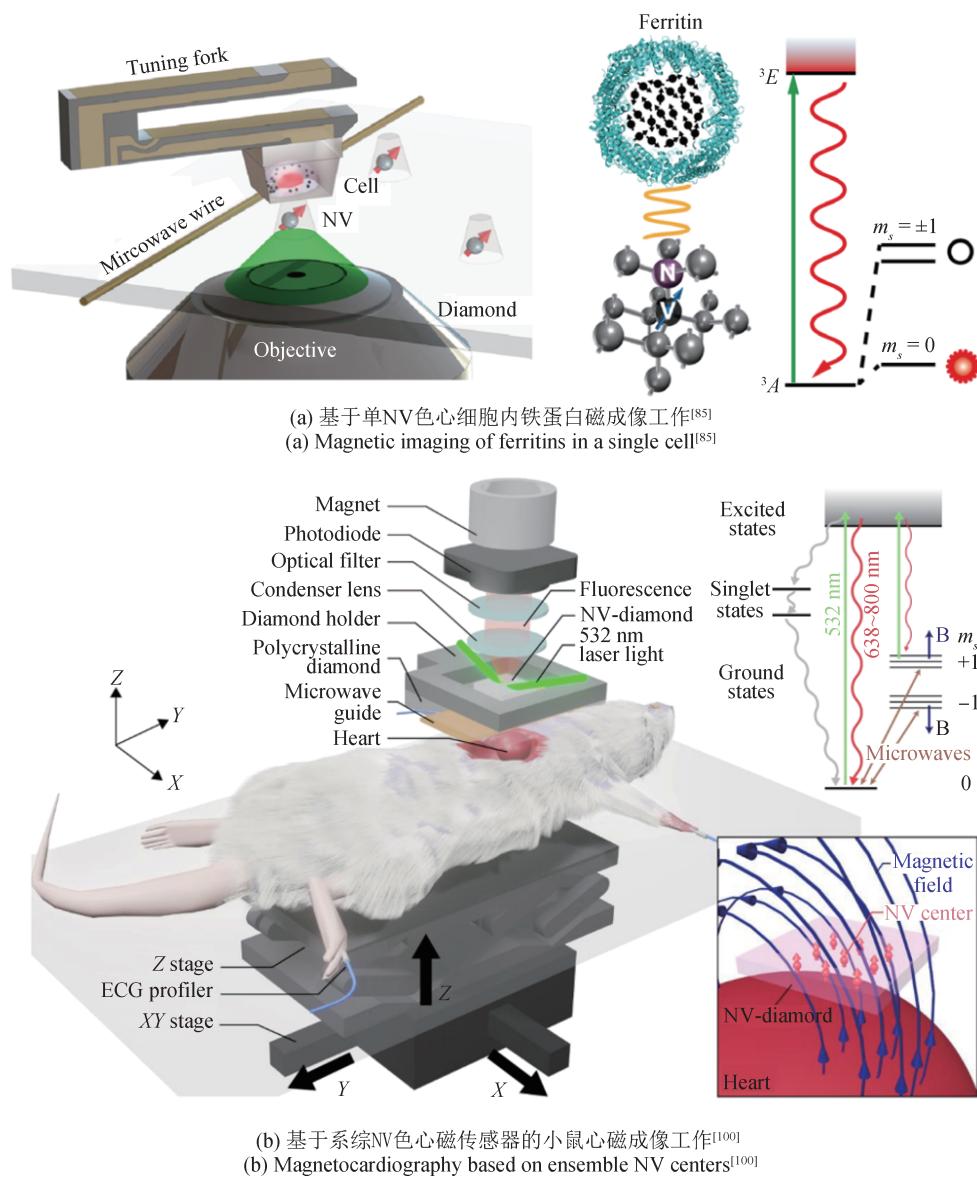


图17 基于NV色心磁测量技术的生命科学应用工作

Fig.17 Applications of NV magnetometry in bioscience

基于系综NV色心的磁测量技术以其高灵敏度的优势,有望将金刚石磁传感器发展为体外生物电、磁信号传感器。2016年,Walsworth教授利用灵敏度 $15\text{ pT/Hz}^{1/2}$ @ $80\sim2000\text{ Hz}$ 的系综NV磁传感器对蠕虫神经元生物电信号进行测量,这是首次成功实现系综NV色心对生物电信号的传感^[23]。至此,多篇文章展望了系综NV色心磁传感器用于心磁、脑磁信号测量^[11, 99]。图17(b)展示了2022年Iwasaki团队利用系综NV色心磁传感器实现的小鼠心磁测量实验工作^[100]。该工作使用的系综NV磁传感器灵敏度在 $\sim200\text{ Hz}$ 测量带宽范围内为 $140\text{ pT/Hz}^{1/2}$ 。为采集到小鼠心磁信号,实验过程中

将小鼠胸腔剖开以拉进传感器与磁源之间的距离。该工作提示了系综NV色心磁传感器用于无损心磁信号测量的可能性,为未来进一步突破打下了基础。

5 总结与展望

金刚石NV色心体系以其优秀的物理化学性质受到广泛的关注与研究。本文以精密磁测量方向为切入点,介绍了围绕NV色心体系在该领域展开的一系列研究工作。

得益于色心原子尺度大小,单NV色心能够实现纳米尺度高空间分辨率磁场测量与成像,在生

命科学领域已被用于研究DNA分子、生物蛋白、活体细胞等。

另一方面,利用金刚石系综NV色心样品,在牺牲一定程度的空间分辨率条件下,有望实现飞特斯拉水平的磁探测灵敏度指标。结合其四主轴矢量磁测量能力以及无微波磁场测量能力等,基于系综NV色心的磁测量技术已在工业无损检测、古地磁学研究等领域得到了广泛应用。

未来基于NV色心的磁测量技术发展方向主要有两个:灵敏度的进一步提升;集成化与小型化发展。灵敏度的提升主要工作将集中在金刚石样品性质优化和探测方法优化两个方面。样品的优化旨在提升NV色心的相干时间。从制备工艺上,可以减缓金刚石样品生长速度,从而减少杂质引入以及其他自旋缺陷产生。同时采用同位素纯化CVD方法,排除¹³C等同位素对NV色心弛豫造成负面影响也是优化金刚石样品的有效方法之一。探测方法的优化可以从激发、操控与读出三方面入手,譬如:提升激发光利用效率,增加用于传感的NV色心数目;设计高转化效率、高均匀性微波辐射结构;提高荧光收集效率或发展新型非荧光读出方法。

集成化与小型化发展是实现NV色心磁测量技术到实际生产生活中应用的必经之路。短期内基于印制电路板技术、高频电路设计技术、模数混合电路设计技术、微波电路设计技术、硬件编程技术以及三维打印技术等,再结合现有可获得的商用光学、电子学、激光元器件,可实现基于印制集成电路的小型化金刚石磁强计板级设计。从中长期来看,基于微机电制造工艺,将金刚石样品与硅基器件乃至碳基器件结合,发展传感读出一体化的超高集成度小型化金刚石磁强计具有光明的前景。该磁强计可以被用于生物体内、高温高压等复杂环境的磁信号传感。

参考文献

- [1] 姜寿亭,李卫.凝聚态磁性物理[M].北京:科学出版社,2003.
JIANG S T, LI W. Condensed state magnetic physics [M]. Beijing: Science Press, 2003. (in Chinese)
- [2] GAUSS C F. The intensity of the Earth's magnetic force reduced to absolute measurement [J]. Royal Scientific Society, 1832.
- [3] PEARSON G. A magnetic field strength meter employing the hall effect in germanium [J]. Review of Scientific Instruments, 1948, 19(4): 263-265.
- [4] PRIMDAHL F. The fluxgate magnetometer [J]. Journal of Physics E: Scientific Instruments, 1979, 12(4): 241253.
- [5] BAIBICH M N, BROTO J M, FERT A, et al. Giant magnetoresistance of Fe / Cr magnetic superlattices [J]. Physical Review Letters, 1988, 61(21): 2472-2475.
- [6] BUDKER D, ROMALIS M. Optical magnetometry [J]. Nature Physics, 2007, 3(4): 227-234.
- [7] BLOOM A L. Principles of operation of the rubidium vapor magnetometer [J]. Applied Optics, 1962, 1(1): 61-68.
- [8] JAKLEVIC R C, LAMBE J, SILVER A H, et al. Quantum interference effects in Josephson tunneling [J]. Physical Review Letters, 1964, 12(7): 159-160.
- [9] TAYLOR J, CAPPELLARO P, CHILDRESS L, et al. High-sensitivity diamond magnetometer with nanoscale resolution [J]. Nature Physics, 2008, 4(10): 810-816.
- [10] DEGEN C L. Scanning magnetic field microscope with a diamond single-spin sensor [J]. Applied Physics Letters, 2008, 92(24): 243111.
- [11] FU KMC, IWATA G Z, WICKENBROCK A, et al. Sensitive magnetometry in challenging environments [J]. AVS Quantum Science, 2020, 2(4): 044702.
- [12] ZHAO N, HU J L, HO S W, et al. Atomic-scale magnetometry of distant nuclear spin clusters via nitrogen-vacancy spin in diamond [J]. Nature Nanotechnology, 2011, 6(4): 242-246.
- [13] AWSCHALOM D D, FLATTÉ M E. Challenges for semiconductor spintronics [J]. Nature Physics, 2007, 3(3): 153-159.
- [14] LADD T D, JELEZKO F, LAFLAMME R, et al. Quantum computers [J]. Nature, 2010, 464(7285): 45-53.
- [15] PEZZAGNA S, MEIJER J. Quantum computer based on color centers in diamond [J]. Applied Physics Reviews, 2021, 8(1): 011308.
- [16] DEGEN C L, REINHARD F, CAPPELLARO P. Quantum sensing [J]. Reviews of Modern Physics, 2017, 89(3): 035002.
- [17] GRINOLDS M, WARNER M, DE GREVE K, et al. Sub-nanometre resolution in three-dimensional magnetic resonance imaging of individual dark spins [J]. Nature Nanotechnology, 2014, 9(4): 279-284.
- [18] ARAI K, BELTHANGADY C, ZHANG H, et al. Fourier

- magnetic imaging with nanoscale resolution and compressed sensing speed-up using electronic spins in diamond [J]. *Nature Nanotechnology*, 2015, 10(10): 859–864.
- [19] JASKULA J C, BAUCH E, ARROYO-CAMEJO S, et al. Superresolution optical magnetic imaging and spectroscopy using individual electronic spins in diamond [J]. *Optics Express*, 2017, 25(10): 11048–11064.
- [20] ACOSTA V M, BAUCH E, LEDBETTER M P, et al. Diamonds with a high density of nitrogen-vacancy centers for magnetometry applications [J]. *Physical Review B*, 2009, 80(11): 115202.
- [21] 靖克. 宽带电子顺磁共振技术研究及应用 [D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2022.
- JING K. Research and application of broadband electron paramagnetic resonance [D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2022. (in Chinese)
- [22] BARRY J F, SCHLOSS J M, BAUCH E, et al. Sensitivity optimization for NV diamond magnetometry [J]. *Reviews of Modern Physics*, 2020, 92(1): 015004.
- [23] BARRY J F, TURNER M J, SCHLOSS J M, et al. Optical magnetic detection of single-neuron action potentials using quantum defects in diamond [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 2016, 113 (49) : 14133–14138.
- [24] 谢一进. 基于金刚石氮-空位色心系综的磁测量方法研究 [D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2020.
- XIE Y J. Magnetometry based on the ensemble nitrogen-vacancy centers in diamond [D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2022. (in Chinese)
- [25] DRÉAU A, LESIK M, RONDIN L, et al. Avoiding power broadening in optically detected magnetic resonance of single NV defects for enhanced DE magnetic field sensitivity [J]. *Physical Review B*, 2011, 84(19): 195204.
- [26] ZHANG J, XU L, BIAN G, et al. Diamond nitrogen-vacancy center magnetometry: advances and challenges [J]. arXiv Preprint arXiv:2010.10231, 2020.
- [27] EDMONDS A M, HART C A, TURNER M J, et al. Generation of nitrogen-vacancy ensembles in diamond for quantum sensors: Optimization and scalability of CVD processes [J]. arXiv Preprint arXiv:2004.01746, 2020.
- [28] CHOUAIEB S, MARTÍNEZ L J, AKHTAR W, et al. Optimizing synthetic diamond samples for quantum sensing technologies by tuning the growth temperature [J]. *Diamond and Related Materials*, 2019, 96: 85–89.
- [29] LIAO M, SHEN B, WANG Z. Ultra-wide bandgap semiconducotor materials [M]. Cambridge: Elsevier, 2019: 119.
- [30] QIAN F, DENG J, XIONG F, et al. Direct growth of high quality graphene nanowalls on dielectric surfaces by plasma-enhanced chemical vapor deposition for photo detection [J]. *Optical Materials Express*, 2020, 10(11): 2909–2918.
- [31] YAMAMOTO T, UMEDA T, WATANABE K, et al. Extending spin coherence times of diamond qubits by high-temperature annealing [J]. *Physical Review B*, 2013, 88 (7): 075206.
- [32] SMITH J M, MEYNELL S A, JAYICH A C B, et al. Colour centre generation in diamond for quantum technologies [J]. *Nanophotonics*, 2019, 8(11): 1889–1906.
- [33] MARKHAM M L, DODSON J M, SCARSBROOK G A, et al. CVD diamond for spintronics [J]. *Diamond and Related Materials*, 2011, 20(2): 134–139.
- [34] ACHARD J, JACQUES V, TALLAIRE A. Chemical vapour deposition diamond single crystals with nitrogen-vacancy centres: a review of material synthesis and technology for quantum sensing applications [J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2020, 53(31): 313001.
- [35] GUPTA A, HACQUEBARD L, CHILDRESS L. Efficient signal processing for time-resolved fluorescence detection of nitrogen-vacancy spins in diamond [J]. *JOSA B*, 2016, 33(3): B28–B34.
- [36] TORAILLE L, AÏZEL K, BALLOUL É, et al. Optical magnetometry of single biocompatible micromagnets for quantitative magnetogenetic and magnetomechanical assays [J]. *Nano Letters*, 2018, 18(12): 7635–7641.
- [37] CLEVENSON H, TRUSHEIM M E, TEALE C, et al. Broadband magnetometry and temperature sensing with a light-trapping diamond waveguide [J]. *Nature Physics*, 2015, 11(5): 393–397.
- [38] AHMADI S, EL-ELLA H A R, HANSEN J O B, et al. Pump-enhanced continuous-wave magnetometry using nitrogen-vacancy ensembles [J]. *Physical Review Applied*, 2017, 8(3): 034001.
- [39] JAMALI M, GERHARDT I, REZAI M, et al. Microscopic diamond solid-immersion-lenses fabricated around single defect centers by focused ion beam milling [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2014, 85(12): 123703.
- [40] MOMENZADEH S A, STOHR R J, DE OLIVEIRA F F, et al. Nanoengineered diamond waveguide as a robust bright platform for nanomagnetometry using shallow nitrogen-vacancy centers [J]. *Nano Letters*, 2015, 15(1): 165–169.
- [41] WOLF T, NEUMANN P, NAKAMURA K, et al. Sub-

- picotesla diamond magnetometry [J]. *Physical Review X*, 2015, 5(4): 041001.
- [42] LE SAGE D, PHAM L M, BAR-GILL N, et al. Efficient photon detection from color centers in a diamond optical waveguide [J]. *Physical Review B*, 2012, 85 (12) : 121202.
- [43] YEUNG T K, LE SAGE D, PHAM L M, et al. Anti-reflection coating for nitrogen-vacancy optical measurements in diamond [J]. *Applied Physics Letters*, 2012, 100 (25) : 251111.
- [44] YU H, XIE Y, ZHU Y, et al. Enhanced sensitivity of the nitrogen-vacancy ensemble magnetometer via surface coating [J]. *Applied Physics Letters*, 2020, 117(20): 204002.
- [45] WANG P, YUAN Z, HUANG P, et al. High-resolution vector microwave magnetometry based on solid-state spins in diamond [J]. *Nature Communications*, 2015, 6(1): 1-5.
- [46] BAYAT K, CHOY J, FARROKH BAROOGHI M, et al. Efficient, uniform, and large areamicrowave magnetic coupling to NV centers in diamond using double split-ring resonators [J]. *Nano Letters*, 2014, 14(3): 1208-1213.
- [47] PARK C, LEE D. Design and simulation of a strong and uniform microwave antenna for a large volume of nitrogen-vacancy ensembles in diamond [J]. *Journal of the Korean Physical Society*, 2021, 78(4): 280-283.
- [48] EISENACH E R, BARRY J F, O' KEEFFE M F, et al. Cavity-enhanced microwave readout of a solid-state spin sensor [J]. *Nature Communications*, 2021, 12(1): 1-7.
- [49] HERRMANN J, APPLETON M A, SASAKI K, et al. Polarization-and frequency-tunable microwave circuit for selective excitation of nitrogen-vacancy spins in diamond [J]. *Applied Physics Letters*, 2016, 109(18): 183111.
- [50] MRÓZEK M, MLYNARCZYK J, RUDNICKI D S, et al. Circularly polarized microwaves for magnetic resonance study in the GHz range: application to nitrogen-vacancy in diamonds [J]. *Applied Physics Letters*, 2015, 107 (1) : 013505.
- [51] YANG X, ZHANG N, YUAN H, et al. Microstrip-line resonator with broadband, circularly polarized, uniform microwave field for nitrogen vacancy center ensembles in diamond [J]. *AIP Advances*, 2019, 9(7): 075213.
- [52] RONG X, WANG M, GENG J, et al. Searching for an exotic spin-dependent interaction with a single electron-spin quantum sensor [J]. *Nature Communications*, 2018, 9(1) : 1-7.
- [53] JIAO M, GUO M, RONG X, et al. Experimental constraint on an exotic parity-odd spin-and velocity-dependent interaction with a single electron spin quantum sensor [J]. *Physical Review Letters*, 2021, 127(1): 010501.
- [54] SHI F, KONG F, ZHAO P, et al. Single-DNA electron spin resonance spectroscopy in aqueous solutions [J]. *Nature Methods*, 2018, 15(9): 697-699.
- [55] SCHIRHAGL R, CHANG K, LORETZ M, et al. Nitrogen-vacancy centers in diamond: nanoscale sensors for physics and biology [J]. *Annual Review of Physical Chemistry*, 2014, 65: 83-105.
- [56] CASOLA F, VAN DER SAR T, YACOBY A. Probing condensed matter physics with magnetometry based on nitrogen-vacancy centres in diamond [J]. *Nature Reviews Materials*, 2018, 3(1): 1-13.
- [57] XU C, ZHANG J, YUAN H, et al. Burst eddy current testing with diamond magnetometry [J]. *Applied Physics Letters*, 2022, 120(8): 084104.
- [58] GRIFFITH W C, JIMENEZ-MARTINEZ R, SHAH V, et al. Miniature atomic magnetometer integrated with flux concentrators [J]. *Applied Physics Letters*, 2009, 94(2) : 023502.
- [59] HU J, PAN M, TIAN W, et al. 1/f noise suppression of giant magnetoresistive sensors with vertical motion flux modulation [J]. *Applied Physics Letters*, 2012, 100(24) : 244102.
- [60] BONDARENKO S I, SHABLO A A, PAVLOV P P, et al. Ferromagnetic concentrator of a magnetic field for the planar HTSC SQUID [J]. *Physica C: Superconductivity*, 2002, 372: 158-161.
- [61] FESCIENKO I, JARMOLA A, SAVUKOV I, et al. Diamond magnetometer enhanced by ferrite flux concentrators [J]. *Physical Review Research*, 2020, 2(2): 023394.
- [62] XIE Y, YU H, ZHU Y, et al. A hybrid magnetometer towards femtotesla sensitivity under ambient conditions [J]. *Science Bulletin*, 2021, 66(2): 127-132.
- [63] WICKENBROCK A, ZHENG H, BOUGAS L, et al. Microwave-free magnetometry with nitrogen-vacancy centers in diamond [J]. *Applied Physics Letters*, 2016, 109 (5) : 053505.
- [64] ZHENG H, SUN Z, CHATZIDROSOS G, et al. Microwave-free vector magnetometry with nitrogen-vacancy centers along a single axis in diamond [J]. *Physical Review Applied*, 2020, 13(4): 044023.
- [65] ZHU Y, XIE Y, JING K, et al. Sunlight-driven quantum magnetometry [J]. *PRX Energy*, 2022, 1:033002.

- [66] MAERTZ B J, WIJNHEIJMER A P, FUCHS G D, et al. Vector magnetic field microscopy using nitrogen vacancy centers in diamond [J]. *Applied Physics Letters*, 2010, 96 (9): 092504.
- [67] KITAZAWA S, MATSUZAKI Y, SAIJO S, et al. Vector-magnetic-field sensing via multifrequency control of nitrogen-vacancy centers in diamond [J]. *Physical Review A*, 2017, 96(4): 042115.
- [68] ZHANG C, YUAN H, ZHANG N, et al. Vector magnetometer based on synchronous manipulation of nitrogen-vacancy centers in all crystal directions [J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2018, 51(15): 155102.
- [69] SCHLOSS J M, BARRY J F, TURNER M J, et al. Simultaneous broadband vector magnetometry using solid-state spins [J]. *Physical Review Applied*, 2018, 10 (3) : 034044.
- [70] BOURGEOIS E, JARMOLA A, SIYUSHEV P, et al. Photoelectric detection of electron spin resonance of nitrogen-vacancy centres in diamond [J]. *Nature Communications*, 2015, 6(1): 1-8.
- [71] HRUBESCH F M, BRAUNBECK G, STUTZMANN M, et al. Efficient electrical spin readout of NV-centers in diamond [J]. *Physical Review Letters*, 2017, 118 (3) : 037601.
- [72] SIYUSHEV P, NESLADEK M, BOURGEOIS E, et al. Photoelectrical imaging and coherent spin-state readout of single nitrogen-vacancy centers in diamond [J]. *Science*, 2019, 363(6428): 728-731.
- [73] MEIRZADA I, WOLF S A, NAIMAN A, et al. Enhanced spin state readout of nitrogen-vacancy centers in diamond using infrared fluorescence [J]. *Physical Review B*, 2019, 100(12): 125436.
- [74] JENSEN K, LEEFER N, JARMOLA A, et al. Cavity-enhanced room-temperature magnetometry using absorption by nitrogen-vacancy centers in diamond [J]. *Physical Review Letters*, 2014, 112(16): 160802.
- [75] DUMEIGE Y, CHIPAUX M, JACQUES V, et al. Magnetometry with nitrogen - vacancy ensembles in diamond based on infrared absorption in a doubly resonant optical cavity [J]. *Physical Review B*, 2013, 87(15): 155202.
- [76] CHATZIDROSOS G, WICKENBROCK A, BOUGAS L, et al. Miniature cavity-enhanced diamond magnetometer [J]. *Physical Review Applied*, 2017, 8(4): 044019.
- [77] KIM D, IBRAHIM M I, FOY C, et al. A CMOS-integrated quantum sensor based on nitrogen-vacancy centres [J]. *Nature Electronics*, 2019, 2(7): 284-289.
- [78] KUWAHATA A, KITAIZUMI T, SAICHI K, et al. Magnetometer with nitrogen-vacancy center in a bulk diamond for detecting magnetic nanoparticles in biomedical applications [J]. *Scientific Reports*, 2020, 10(1): 1-9.
- [79] STÜRNER F M, BRENNEIS A, BUCK T, et al. Integrated and portable magnetometer based on nitrogen-vacancy ensembles in diamond [J]. *Advanced Quantum Technologies*, 2021, 4(4): 2000111.
- [80] SCHOLTEN S C, HEALEY A J, ROBERTSON I O, et al. Widefield quantum microscopy with nitrogen-vacancy centers in diamond: Strengths, limitations, and prospects [J]. *Journal of Applied Physics*, 2021, 130(15): 150902.
- [81] HONG S, GRINOLDS M S, PHAM L M, et al. Nanoscale magnetometry with NV centers in diamond [J]. *MRS Bulletin*, 2013, 38(2): 155-161.
- [82] RONDIN L, TETIENNE J P, SPINICELLI P, et al. Nanoscale magnetic field mapping with a single spin scanning probe magnetometer [J]. *Applied Physics Letters*, 2012, 100(15): 153118.
- [83] DOVZHENKO Y, CASOLA F, SCHLITTER S, et al. Magnetostatic twists in room-temperature skyrmions explored by nitrogen-vacancy center spin texture reconstruction [J]. *Nature Communications*, 2018, 9(1): 1-7.
- [84] JENKINS A, PELLICCIONE M, YU G, et al. Single-spin sensing of domain-wall structure and dynamics in a thin-film skyrmion host [J]. *Physical Review Materials*, 2019, 3(8): 083801.
- [85] WANG P, CHEN S, GUO M, et al. Nanoscale magnetic imaging of ferritins in a single cell [J]. *Science Advances*, 2019, 5(4): eaau8038.
- [86] BORETTI A, ROSA L, BLACKLEDGE J, et al. Nitrogen-vacancy centers in diamond for nanoscale magnetic resonance imaging applications [J]. *Beilstein Journal of Nanotechnology*, 2019, 10(1): 2128-2151.
- [87] STEINERT S, DOLDE F, NEUMANN P, et al. High sensitivity magnetic imaging using an array of spins in diamond [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2010, 81 (4) : 043705.
- [88] PHAM L M, LE SAGE D, STANWIX P L, et al. Magnetic field imaging with nitrogen - vacancy ensembles [J]. *New Journal of Physics*, 2011, 13(4): 045021.
- [89] CHIPAUX M, TALLAIRE A, ACHARD J, et al. Magnetic imaging with an ensemble of nitrogen-vacancy centers in diamond [J]. *The European Physical Journal D*, 2015, 69

- (7): 1–10.
- [90] SIMPSON D A, TETIENNE J P, MCCOY J M, et al. Magneto-optical imaging of thin magnetic films using spins in diamond[J]. *Scientific Reports*, 2016, 6(1): 1–8.
- [91] KEHAYIAS P, TURNER M J, TRUBKO R, et al. Imaging crystal stress in diamond using ensembles of nitrogen-vacancy centers [J]. *Physical Review B*, 2019, 100(17): 174103.
- [92] ZIEM F, GARSI M, FEDDER H, et al. Quantitative nanoscale MRI with a wide field of view [J]. *Scientific Reports*, 2019, 9(1): 1–9.
- [93] MCCOY J M, MATSUOKA M, DE GILLE R W, et al. Quantum magnetic imaging of iron biominerization in teeth of the chiton *Acanthopleura hirtosa* [J]. *Small Methods*, 2020, 4(3): 1900754.
- [94] GLENN D R, FU R R, KEHAYIAS P, et al. Micrometer-scale magnetic imaging of geological samples using a quantum diamond microscope [J]. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 2017, 18(8): 3254–3267.
- [95] BROADWAY D A, SCHOLTEN S C, TAN C, et al. Imaging domain reversal in an ultrathin van der Waals ferromagnet[J]. *Advanced Materials*, 2020, 32(39): 2003314.
- [96] TETIENNE J P, DONTSCHUK N, BROADWAY D A, et al. Quantum imaging of current flow in graphene [J]. *Science Advances*, 2017, 3(4): 1602429.
- [97] SHI F, ZHANG Q, WANG P, et al. Single-protein spin resonance spectroscopy under ambient conditions [J]. *Science*, 2015, 347(6226): 1135–1138.
- [98] SHI F, KONG F, ZHAO P, et al. Single-DNA electron spin resonance spectroscopy in aqueous solutions [J]. *Nature Methods*, 2018, 15(9): 697–699.
- [99] MURZIN D, MAPPS D J, LEVADA K, et al. Ultrasensitive magnetic field sensors for biomedical applications [J]. *Sensors*, 2020, 20(6): 1569.
- [100] ARAI K, KUWAHATA A, NISHITANI D, et al. Millimetre-scale magnetocardiography of living rats with thoracotomy [J]. *Communications Physics*, 2022, 5(1): 1–10.

(本文编辑: 朱俊真)



第一作者: 靖克(1994—),男,博士,主要研究方向为量子精密测量。2017年获大连理工大学学士学位,2022年获中国科学技术大学博士学位。博士研究生期间主要从事基于金刚石氮-空位色心的精密磁测量方法研究、电子顺磁共振设备研制工作。



通讯作者: 杜江峰(1969—),男,教授,博士,主要研究方向为自旋量子物理。中国科学院院士,教育部长江学者特聘教授,国家杰出青年科学基金获得者,首批国家万人计划“中青年科技创新领军人才”入选者,国家重点研发计划项目首席科学家。长期从事量子物理及其应用的实验研究,在自旋量子计算和模拟、量子精密测量等领域具有突出贡献,发表论文300余篇,2012年作为第一完成人获得国家自然科学奖二等奖,2011年、2018年获得教育部自然科学奖一等奖,2021年获得安徽省重大科技成就奖等。