

## 基于金刚石氮-空位色心的温度传感

林豪彬 张少春 董杨 郑瑜 陈向东 孙方稳

### Temperature sensing with nitrogen vacancy center in diamond

Lin Hao-Bin Zhang Shao-Chun Dong Yang Zheng Yu Chen Xiang-Dong Sun Fang-Wen

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 060302 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20211822

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211822>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

---

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

#### 基于金刚石体系中氮-空位色心的固态量子传感

Solid quantum sensor based on nitrogen-vacancy center in diamond

物理学报. 2018, 67(16): 160301 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180788>

#### 金刚石氮空位中心自旋量子调控

Quantum control of nitrogen-vacancy center in diamond

物理学报. 2018, 67(12): 120302 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180755>

#### 金刚石氮-空位色心的原子自旋声子耦合机理

Atomic spin and phonon coupling mechanism of nitrogen-vacancy center

物理学报. 2021, 70(6): 068501 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201848>

#### 基于金刚石氮-空位色心的精密磁测量

High-resolution magnetometry based on nitrogen-vacancy centers in diamond

物理学报. 2018, 67(16): 167601 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181084>

#### 固态金刚石氮空位色心光学调控优化

Optimization of optical control of nitrogen vacancy centers in solid diamond

物理学报. 2020, 69(14): 147601 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200072>

#### 金刚石氮空位色心耦合机械振子和腔场系统中方差压缩研究

Quadrature squeezing of the system consisting of nitrogen-vacancy centers in diamond coupled to cavity field and mechanical resonator

物理学报. 2018, 67(4): 040302 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172170>

专题: 固态单量子体系的调控与应用

## 基于金刚石氮-空位色心的温度传感\*

林豪彬 张少春 董杨 郑瑜 陈向东 孙方稳†

(中国科学技术大学, 中国科学院量子信息重点实验室, 合肥 230026)

(2021 年 9 月 30 日收到; 2021 年 10 月 26 日收到修改稿)

在各种物理量中, 温度是最直观和最普遍的量. 温度的剧烈变化通常意味着物体的物理性质出现波动, 因此在各个领域温度往往是重要的指标. 随着科学技术的发展, 许多领域研究和应用的尺度越来越小, 然而在小于  $10\text{ }\mu\text{m}$  的空间尺度内还没有通用的温度测量方法. 除了空间分辨率的要求, 传感器在测量过程中不应该对被测对象有巨大影响, 金刚石氮-空位 (nitrogen vacancy, NV) 色心是一种稳定的发光缺陷, 通过对其能谱和电子自旋量子态的测量, 可以获得其附近温度、电磁场等物理量的信息. 由于金刚石的化学特性稳定和热导率高, 可以进行纳米尺度的非破坏性测量. 它对细胞无毒, 也可以用于生命领域的研究. 此外, 根据金刚石的特性, NV 色心可以与光纤、扫描显微镜等技术结合, 实现不同场景中的温度测量. 本文将介绍金刚石 NV 色心的温度特性、测温原理及其在相关领域的应用.

**关键词:** 氮-空位色心, 量子传感, 温度传感**PACS:** 03.67.-a, 42.50.Dv, 76.30.Mi**DOI:** 10.7498/aps.71.20211822

## 1 引言

量子信息是当前研究的热点, 大致可以分为量子计算、量子通信和量子传感三个领域. 基于量子相干特性, 量子传感技术可以实现对微弱信号的灵敏探测. 在固态量子体系中, 金刚石氮-空位 (nitrogen vacancy, NV) 色心是最有代表性的体系, 由于其具有优越的光学性质、光学初始化能力以及基于荧光的自旋探测等特点, NV 色心在量子计算、量子通信和量子传感领域都有广泛的应用<sup>[1-7]</sup>. 不仅如此, NV 色心是金刚石中的点缺陷, 荧光发射非常稳定, 可以应用在高空间分辨率成像中, 并提高测量的空间分辨率<sup>[7-9]</sup>. 利用 NV 色心可以实现对磁场<sup>[10]</sup>、电场<sup>[11]</sup>、应力<sup>[12]</sup>和温度<sup>[13,14]</sup>等物理量高空间分辨率、高灵敏的测量. 本文主要的关注点在于利用金刚石 NV 色心实现温度测量及其相

关的应用.

无论是在生命科学还是工业领域, 温度的变化都对所关注的对象有相当大的影响. 对于生物体来说, 基因表达、蛋白质的稳定、酶-配体的相互作用和酶的活化等都受到温度的影响<sup>[15-19]</sup>. 在疫情流行的当下, 人身体温度的异常往往会被列为重点观察对象. 在工业领域中, 机械切割金属的速度取决于温度的高低, 微电子集成度的提高使得局部高温梯度可能影响器件功能的正常运行<sup>[20,21]</sup>. 当前, 温度传感器大约占有传感器市场的 80%, 并且有上升趋势. 但目前的温度传感器所能达到的空间分辨率几乎是在  $10\text{ }\mu\text{m}$  以上<sup>[22]</sup>. 因此, 对于亚微米尺度的温度传感具有很大的需求. 而金刚石 NV 色心作为温度传感具有高空间分辨率、高温度灵敏度、生物兼容性等优越性, 非常适用于微纳尺度下的温度传感.

\* 国家重点研发计划 (批准号: 2017YFA0304504)、国家自然科学基金 (批准号: 91850102, 12005218) 和河北省杰出青年科学基金 (批准号: F2019516002) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: fwsun@ustc.edu.cn

## 2 NV 色心的测温原理及实验研究

### 2.1 理论模型及实验测量

NV 色心是金刚石中的点缺陷. 在完美的金刚石碳晶格中, 一个碳原子被一个氮原子取代, 而氮原子相邻的碳原子缺失, 形成了色心. NV 色心存在两种电荷态:  $NV^-$  和  $NV^0$ . 因为对  $NV^0$  操控能力较弱, 因此多数研究的色心指的是  $NV^-$ . 如无特殊说明, 本文所指的 NV 色心均为  $NV^-$ .

对于利用 NV 色心能谱的温度变化属性进行

的 NV 色心的温度研究, 暂时并没有确定的微观模型 [13,14,23,24], 通常采用唯像公式. NV 色心自旋量子态的基态与激发是自旋三重态, 荧光零声子线位于 637 nm 附近, 实验上可以利用此零声子线的移动测量温度的变化. 此外, 可以使用光学探测磁共振谱 (optically detected magnetic resonance, ODMR) 技术探测 NV 色心的基态零场劈裂值随温度的变化, 并实现温度的测量.

在利用 NV 色心的自旋量子态做量子传感中, 其自旋基态的哈密顿量为 [25]

$$\mathcal{H}/\hbar = \underbrace{D(S_z^2 - 2/3)}_{\text{zfs}} + \underbrace{\gamma \mathbf{B} \cdot \mathbf{S}}_{\text{magnetic}} + \underbrace{\epsilon_z E_z (S_z^2 - 2/3) + \epsilon_{xy} [E_x (S_x S_y + S_y S_x) + E_y (S_x^2 + S_y^2)]}_{\text{electric}}, \quad (1)$$

其中,  $D = 2.87$  GHz 是与温度有关的零场劈裂值 (zero-field-splitting, ZFS), 即在外场作用下基态自旋三重态中  $m_s = \pm 1$  与  $m_s = 0$  劈裂;  $\mathbf{B}$  为矢量磁场;  $\mathbf{E} = \{E_x, E_y, E_z\}$  是矢量电场;  $\epsilon_z$  和  $\epsilon_{xy}$  是自旋耦合常数, 通常假设 NV 色心的主轴沿着  $z$  轴, 或者 (111) 晶面. (1) 式忽略了色心自旋与氮原子和碳原子核自旋的耦合. 从哈密顿量中可以看出色心的能量状态直接受到磁场和电场的影响. 温度的影响是间接来自于  $D$  值. 在测温实验中, 可以简化实验条件, 去除电磁场的影响. 在无外磁场与电场条件下, 哈密顿量变为

$$\mathcal{H}/\hbar = D(S_z^2 - 2/3). \quad (2)$$

同时, NV 色心的自旋为 1, 即  $S = 1$ , 又已经假设了色心的主轴沿着  $z$  方向, 故:

$$\mathcal{H}_{\pm 1}/\hbar = (1/3)D, \quad (3)$$

$$\mathcal{H}_0/\hbar = (-2/3)D. \quad (4)$$

$D$  值的变化主要与温度场有关. 利用 NV 色心进行温度测量的研究通常以测量  $D$  的移动为主. 温度区间在液氮温度至 700 K 时,  $D$  与温度具有非线性关系 [14,26]. 基于金刚石的高德拜温度性质, 孙方稳小组 [24] 提出了一个经验公式, 描述了金刚石 NV 色心零场劈裂与零声子线特征随温度变化的关系:

$$E(T) = E_0 - AT^4/(T+B)^2, \quad (5)$$

式中,  $E_0$ ,  $A$  和  $B$  均为拟合参数;  $E(T)$  与  $E_0$  根据描述的量 (零场劈裂或零声子线) 做相应变化. 在低温条件下, 温度按四次方变化; 在高温条件下, 温度成二次方变化. 在室温范围内,  $D$  值与温度的变化近似成线性,  $dD/dT = 74.2(7)$  kHz/K. 此外,

(5) 式还适用于描述金刚石材料中其他色心能谱与温度的关系.

早期科学家对于 NV 色心的温度特性并没有给予太多的关注, 当时的观点仅停留在温度的变化会对 NV 色心测量磁场的灵敏度产生影响. 2010 年 Acosta 等 [13] 对 NV 色心的温度特性进行了初步研究, 他们测量了色心的  $D$  值随温度的变化, 并给出了 280—330 K 温度区间上零场劈裂  $D$  值与温度的变化关系 (见图 1). 同年, 孙方稳小组 [14] 实验测量了 5.6—295 K 温度范围内  $D$  值和零声子线随温度的变化 (见图 2). 2013 年, 三个小组几乎同时发表了关于 NV 色心测量温度的论文, 并且空间分辨率与温度分辨率都可以达到很高的水平 [27–29]. 此后, 利用 NV 色心进行温度测量的相关研究逐渐增加 [23,30–33].

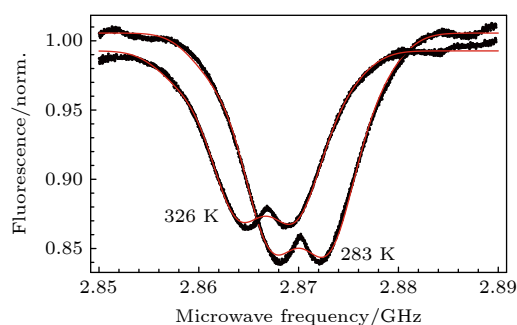


图 1 不同温度零场劈裂. 横坐标为施加的微波频率, 纵坐标为归一化的荧光强度, 两条曲线代表不同的温度 [13]

Fig. 1. Zero-field splitting with different temperatures. The horizontal coordinate is the applied microwave frequency, while the vertical coordinate is the normalized fluorescence intensity [13].

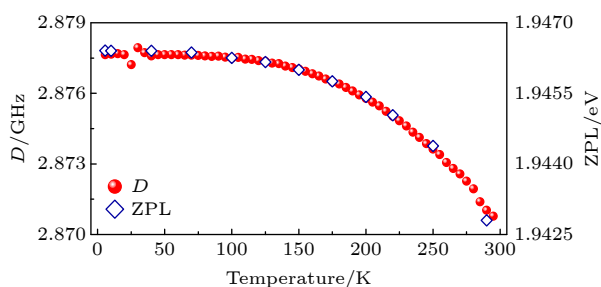

 图 2 光学探测磁共振谱和零声子线随温度的变化<sup>[14]</sup>

Fig. 2. Temperature dependent ODMR and zero-phonon line<sup>[14]</sup>.

## 2.2 利用零场劈裂测温度

与温度有关的基态零场劈裂  $D$  值可以通过 ODMR 技术测量<sup>[2,34]</sup>. 利用激光, 可以将处于基态的  $m_s = 0$  和  $m_s = \pm 1$  态分别泵浦到激发态的  $m_s = 0$  和  $m_s = \pm 1$  自旋量子态. 因为激发态的  $m_s = \pm 1$  自旋量子态先通过无辐射跃迁到亚稳态, 然后通过自发辐射回到基态中的  $m_s = 0$ , 整个过程持续的时间长于激发态  $m_s = 0$  自发辐射跃迁回到基态的  $m_s = 0$  态的时间, 单位时间内发射的荧光光子数较少. 因此可以通过光子数判断  $m_s = 0$  和  $m_s = \pm 1$  自旋量子态. 实验中, 零场 ODMR 谱就是在 2.87 GHz 微波频率附近进行扫频得到的. 首先利用激光 (通常使用 532 nm 激光) 激发色心跃迁到激发态, 之后通过荧光发射或是非辐射跃迁会使色心处于  $m_s = 0$  的状态, 实现 NV 色心的自旋初始化. 然后对处于基态的  $m_s = 0$  的态施加 2.87 GHz 左右的微波. 共振时,  $m_s = 0$  的粒子会被激发到  $m_s = \pm 1$  上,

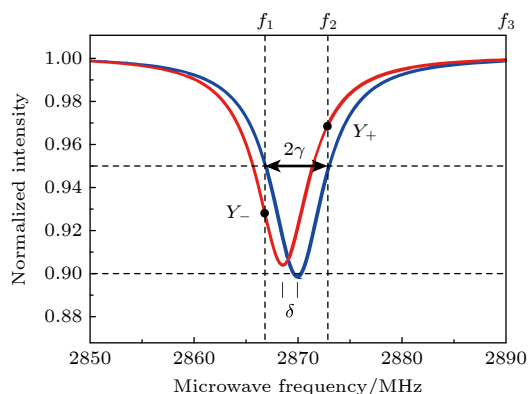


图 3 三点快速测温法. 根据图中的 3 个点—— $f_1, f_2, f_3$  拟合出 1 个完整的 ODMR 曲线. 前提是整个 ODMR 曲线的形状变化不大<sup>[36]</sup>

Fig. 3. Three-point fast thermometry. A complete ODMR curve can be fitted according to the three points in the figure—— $f_1, f_2, f_3$ <sup>[36]</sup>.

荧光计数率会低于非共振时, 得到 ODMR 谱线, 测得  $D$  值. 由于  $D$  值会随温度的变化而移动, 因此可以利用这个特点测量温度 (见图 1 和图 2)<sup>[13,14]</sup>. 利用 ODMR 测量温度, 温度分辨率比较高, 但是测量的时间比较长<sup>[35]</sup>. 除了测量稳态的温度, 测量瞬态的温度变化也很重要. 典型的温度测量是先获取 ODMR 的整个光谱, 然后进行处理数据, 通过数据拟合得到  $D$  值, 整个过程很耗时间. 2015 年, Chaung 小组<sup>[36]</sup> 给出利用三点采样的方法进行实时测量温度, 使时间分辨率优于 10  $\mu$ s (见图 3).

## 2.3 利用自旋操控提高温度测量灵敏度

利用自旋操控手段本质上也是对零场劈裂值进行测量. 借由微波场与色心的基态  $m_s = 0$  与  $m_s = \pm 1$  相互作用, 将  $D$  值测量转化为相位测量, 并通过自旋 Ramsey 测量实现. 同时可以利用动力学解耦技术抑制消相干, 提高测量灵敏度<sup>[27–29,37,38]</sup>. NV 色心的测量灵敏度与  $1/\sqrt{T_{\text{coh}}}$  成正比, 即自旋相干时间 ( $T_{\text{coh}}$ ) 越长, 测量温度的灵敏度越高. 为了避免磁场等其他物理量引起的相位干扰测量的精度, 可以通过以下序列进行排除: 首先制备出一个叠加态  $\frac{1}{\sqrt{2}}(|0\rangle + |- \rangle)$ , 经过  $\frac{\tau}{2}$  的时间获取相对相位  $\varphi_B - \varphi_D$ , 即  $\frac{1}{\sqrt{2}}(e^{-i\varphi_D}|0\rangle + e^{-i\varphi_B}|- \rangle)$ . 之后, 这个态演化为  $\frac{1}{\sqrt{2}}(e^{-i\varphi_D}|0\rangle - e^{-i\varphi_B}|+ \rangle)$ , 同时获得相对相位  $-\varphi_B - \varphi_D$ , 即  $\frac{1}{\sqrt{2}}(e^{-2i\varphi_D}|0\rangle - |+ \rangle)$ , 总相位  $-2\varphi_D = \Delta D \cdot \tau$  仅仅与  $D$  的移动成正比, 与磁场塞曼劈裂引起的能级移动完全无关 (见图 4)<sup>[28]</sup>.

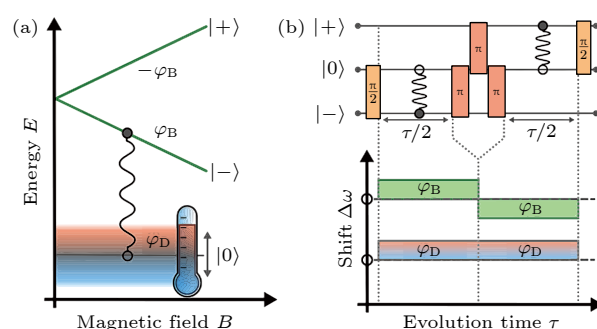


图 4 利用自旋操作消除磁场相位的影响提高温度的灵敏度. 图 (b) 中的  $\pi/2$  用于产生叠加态, 3 个  $\pi$  脉冲用于改变相位的符号, 去除磁相位的影响<sup>[28]</sup>

Fig. 4. Spin operation is used to improve the temperature sensitivity by removing the effect of the magnetic field. The  $\pi/2$  pulse in the panel (b) is used to generate the superposition state, and three  $\pi$  pulses are used to change the sign of the phase and remove the effect of the magnetic phase<sup>[28]</sup>.



虽然,量子相干控制测量的精度很高,但是时间的消耗和受环境影响十分严重<sup>[27–29]</sup>. 2018年,Wrachtrup小组<sup>[38]</sup>为复杂的生物环境中测量温度的波动提供了一种新的方式.在驱动频率的失谐和强度的变化下,仍然可以稳定地测量温度.该小组结合他们提出的最优化控制理论和脉冲序列的控制将D-Ramsey的方案转化为了Coop-D-Ramsey的方案.

## 2.4 利用零声子线测温度

零声子线是无声子贡献的荧光发射过程,由激发态直接跃迁到基态所辐射的荧光.利用零声子线测温的方法在文献中通常被称为全光方法测温<sup>[14,30,32,39]</sup>.但是,在温度低于100 K的条件下,光学的跃迁频率基本不随温度变化<sup>[14]</sup>.利用零声子线测温的优点是:测量时间较短,实验步骤简单,只需要有光谱分辨能力的探测方法即可.利用纳米金刚石,NV色心还可以与扫描探针显微镜相结合,实现温度场分布的亚微米分辨率的测量<sup>[33]</sup>.全光学的方法也可以利用色心的光学Debye-Waller因子对温度的依赖性进行温度的测量<sup>[39]</sup>.

除了以上提到的测温方式外,还可以利用测量磁场实现温度的间接测量.对于NV色心来说,测量磁场的灵敏度要高于温度的灵敏度.而物质的磁性相变往往与温度相关,尤其是在居里点(铁磁性到顺磁性)附近,磁性的变化对温度特别敏感,因此可以在居里点进行温度的间接测量,灵敏度可以大大提高<sup>[40–42]</sup>.在实现温度测量中,根据测量要求

的不同,可以采取不同测量方案.如要求时间分辨率,通常采用全光或对ODMR曲线做采点拟合的方式进行测量.如果要求温度分辨率,可以采用自旋操控或者间接测温的方式,表1列出了NV色心不同方法测量温度的灵敏度.

## 3 NV色心在温度测量方面的应用

现在普遍的测温方式大概分为3大类:荧光测温、红外测温、热电偶.红外测温的成像面积大,并且是非接触式的测温方式,适合用于避免接触的场景.而热电偶通常是利用不同金属在温度不同的条件下产生热电势进行测温的,可以很轻易和电子元件结合,广泛应用于电子产品中.但无论是红外测温,还是热电偶,空间分辨率往往不够高.而荧光测温,主要是利用物质的光学谱线形状对物体进行测温,可以做到纳米尺度的测温,所以在需要高空间分辨率的科学研究中广泛应用.按照NV色心的测温原理,可以把它归类为荧光测温.

### 3.1 生命科学的温度测量

随着生命科学领域研究的发展,观察的尺度越来越小,在细胞尺度下目前常用的测温体系按材料可划分为非荧光纳米材料和荧光纳米材料.非荧光纳米材料包括碳纳米管、银纳米球、量子点等.荧光材料主要指利用纳米颗粒的发射光谱特点(发射带宽、峰值位置、峰值强度、寿命等)受温度的影响从而实现温度的测量,如镧系元素掺杂的化合物<sup>[44]</sup>.但是荧光测温往往受限于荧光速率波动产生的系

表1 NV色心的测量灵敏度  
Table 1. Measurement sensitivity with NV color centers.

| 温度灵敏度/(mK · Hz <sup>-1/2</sup> ) | 方法                | 样品     | NV色心浓度或者碳含量                                      | 参考文献 |
|----------------------------------|-------------------|--------|--|------|
| 0.43                             | 利用自旋锁相结合ODMR      | 块状     | 0.1—1 × 10 <sup>6</sup> (99.99% <sup>12</sup> C) | [35] |
| 0.76                             | 增加NV色心的浓度         | 块状     | 2.84 × 10 <sup>6</sup>                           | [43] |
| 1.6                              | 借助磁场消磁测量温度        | 块状     | 0.15 × 10 <sup>6</sup>                           | [40] |
| 5                                | 对自旋能级进行相干操控       | 块状     | 99.995% <sup>12</sup> C                          | [28] |
| 9                                | 对自旋能级进行相干操控       | 块状     | 99.99% <sup>12</sup> C                           | [29] |
| 10                               | 对自旋能级进行相干操控       | 块状     | 1.1% <sup>13</sup> C                             | [27] |
| 10.1                             | 利用多脉冲进行相干操控       | 块状     | 1.1% <sup>13</sup> C                             | [37] |
| 11                               | 利用居里温度下磁场的改变推算出温度 | 100 nm | 500个NV   | [41] |
| 0.076                            | 利用居里温度下磁场的改变推算出温度 | 金刚石立柱  | 单个NV   | [42] |
| 130                              | 对自旋能级进行相干操控       | 50 nm  | 无相关数据  | [28] |
| 300                              | NV色心电子态的超精细结构     | 50 nm  | 100个NV   | [32] |

统误差、较低的温度灵敏度 (见图 5)<sup>[29]</sup>、局部化学环境和被测物体周围的光学属性等. 除了测量精度的限制之外, 测量材料本身的细胞毒性和化学不稳定性等特点加剧了荧光测温的应用难度.

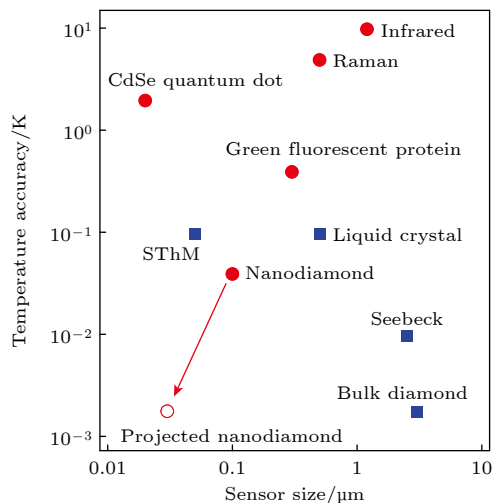


图 5 各种体系的温度灵敏度与尺寸大小. 横坐标为传感器尺寸, 纵坐标为温度灵敏度<sup>[29]</sup>

Fig. 5. Temperature sensitivity versus size for various systems. The horizontal coordinate is the sensor size and the vertical coordinate is the temperature sensitivity<sup>[29]</sup>.

当前, 可以利用 NV 色心测量细胞生热反应. 细胞受到外界刺激后往往会产生热, 进而提高自身温度. 通过测量细胞内的温度, 可以帮助理解药理学热机制. 能够做到生物兼容的亚微米测温技术是一件具有挑战性的工作. NV 色心具有生物兼容性, 且具有很高的空间分辨率, 可以进行单细胞水平的测量<sup>[29,45–47]</sup>. 图 6 演示了细胞内的温度测量,

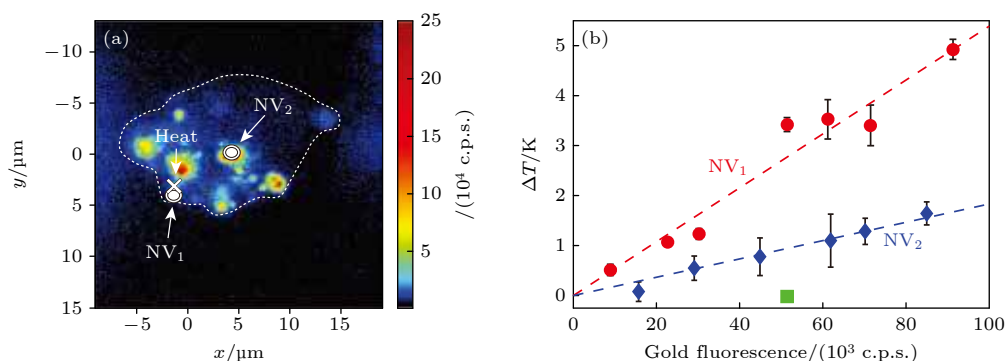


图 6 细胞内测温<sup>[29]</sup> (a) 共聚焦下的荧光图, 虚线部分是细胞膜, 白色叉的部分表示金纳米颗粒的位置, 用来加热细胞. 圆圈表示纳米金刚石的位置. 旁边的颜色条是荧光的计数率. (b) 不同金纳米颗粒的荧光条件下, 金刚石的温差

Fig. 6. Intracellular thermometry<sup>[29]</sup>. (a) Fluorescence with confocal microscopy. The dashed part shows the cell membrane. The cross shows the position of gold nanoparticles, which is used to heat the cell. The circle shows the position of nanodiamond. The color bar next to it shows the count rate of fluorescence. (b) Temperature difference of diamond under different fluorescence conditions of gold nanoparticles.

将金纳米颗粒与金刚石颗粒同时导入细胞内, 实现细胞内的温度测量和控制<sup>[29]</sup>. 2020 年, Fujiwara 等<sup>[48]</sup>将微波天线和测试平台集成在一起, 通过追踪细胞内的金刚石颗粒, 实时测量秀丽隐杆线虫细胞内的温度, 精度可以达到 0.22 K. 图 7 所示是将纳米金刚石导入线虫后, 通过 ODMR 的拟合判断出温度的变化<sup>[48]</sup>. 此外, 将纳米金刚石和金纳米颗粒一起放入人的胚胎成纤维细胞或者胚胎肾细胞中 (见图 8), 从而实现了亚细胞水平的测量<sup>[29,49]</sup>. 在一定激光功率下, 金刚石色心同时作为加热计与温度计, 利用量子相干操纵的手段可以精确地探测局部温度的变化<sup>[29]</sup>.

### 3.2 微纳结构材料的温度测量

随着电子设备尺寸的逐步变小, 其组成元件的紧密连接导致温度的波动对设备的可靠性和性能的影响越来越大. Mamaluy 和 Gao<sup>[50]</sup>认为, 2030 年以前晶体管的尺寸可能达到 5 nm 以下, 届时热波动将导致场效应管的功能失效. 因此对局部的温度分布的测量对于高度集成的电子设备有重要的作用. NV 色心能够在较大的温度范围内, 进行亚微米和高温度分辨的测量, 可以为材料研究和电子设备应用提供一个强有力的新工具.

在材料领域中, 因为低维材料的表面比很大, 其热性质也会不同于宏观尺度材料, 因此纳米级空间分辨率的温度表征对于评估设备的性能和耐用性是非常重要的一个指标, 高空间分辨率的温度测量成为迫切的需求. 测量温度分布通常有两种做法, 一种适用于点扫描的形式, 通过和原子力探头

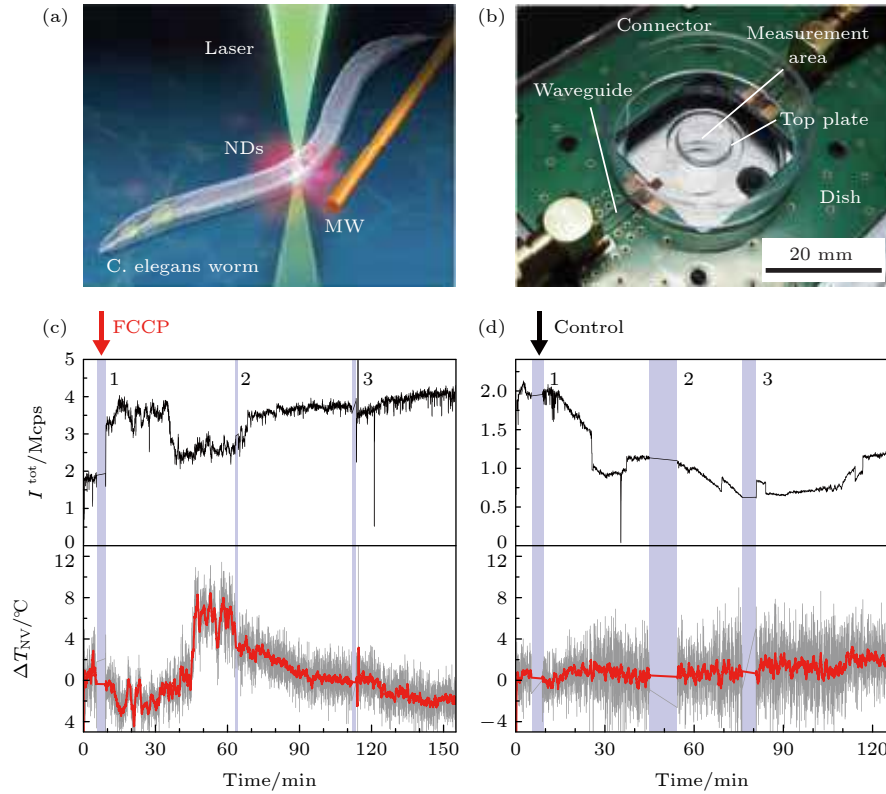


图 7 一体化细胞测温<sup>[48]</sup> (a) 线虫示意图; (b) 测量的样品室, 集成了微波、NV 色心和细胞生活环境; (c) 下半幅图为药物刺激下的温度变化反应, 上半幅图为对应的荧光强度; (d) 对照组

Fig. 7. Integrated cellular thermometry<sup>[48]</sup>: (a) Schematic diagram of *Caenorhabditis elegans* worms; (b) sample chamber: integrated microwave, NV color center and cell living environment; (c) the lower half shows the temperature change response to drug stimulation, and the upper half shows the corresponding fluorescence intensity; (d) the control.

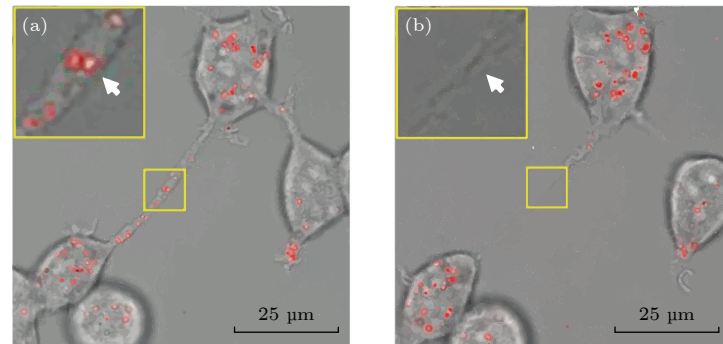


图 8 利用金刚石控制细胞的存活<sup>[49]</sup> (a) 绿色的是蛋白质, 红色的是与金纳米颗粒混合的荧光纳米金刚石; (b) 利用功率为 330  $\mu\text{W}$  的 594 nm 激光照射 6 s 后产生的结果: 细胞的膜隧道纳米管破裂了

Fig. 8. Using diamond to control cell survival<sup>[49]</sup>: (a) The green is protein and the red is fluorescent nanodiamond mixed with gold nanoparticles; (b) obtained results after a 594 nm laser irradiation at a power of 330  $\mu\text{W}$  for 6 s: the membrane tunneling nanotubes of the cell ruptured.

结合<sup>[51]</sup>, 实现高空间分辨的测量. 另外一种适用于宽场, 将纳米颗粒均匀涂抹到被测样品表面<sup>[52]</sup>, 实现宽场高速成像.

此外, NV 色心的基态  $m_s = \pm 1$  能级会受磁场的影响, 因此在测量温度的同时还可以测量电磁场<sup>[52]</sup>. 图 9 给出了晶体管的温度和磁场分布. 图 10

为通过微纳加工的方式将含有 NV 色心的金刚石转移到聚二甲基硅氧烷 (Polydimethylsiloxane, PDMS) 上, 再进行温度的测量<sup>[53]</sup>. 为了方便与实用性, 纳米或者微米级的含有 NV 色心的金刚石颗粒可以与光纤结合在一起, 进行芯片温度分布的测量 (见图 11)<sup>[54]</sup>.



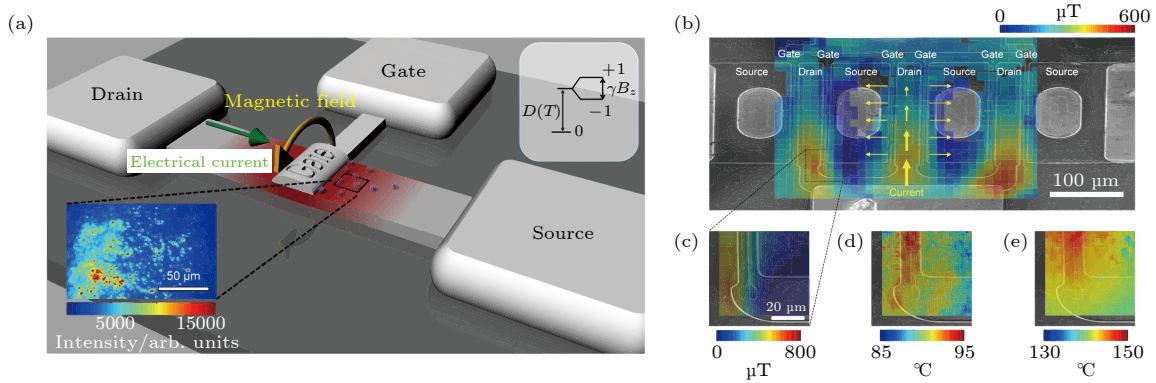


图9 NV色心对材料的温度和磁场进行表征<sup>[52]</sup> (a) 测量装置示意图, 插图中的红色小点为纳米金刚石; (b) 氮化镓高电子迁移率晶体管成像示意图; (c) 高分辨率磁场测量 (功率为 290 mW); (d), (e) 功率为 1 和 1.73 W 下沟道阻挡层的温度分布

Fig. 9. Characterizing the temperature and magnetic field of the material with NV center<sup>[52]</sup>: (a) Schematic diagram of the measurement device, and the red dots in the inset are nanodiamonds; (b) imaging schematic of a gallium nitride high-electron mobility transistor; (c) high-resolution magnetic field measurement (290 mW); (d), (e) temperature distribution of the channel stop at different powers of 1 and 1.73 W.

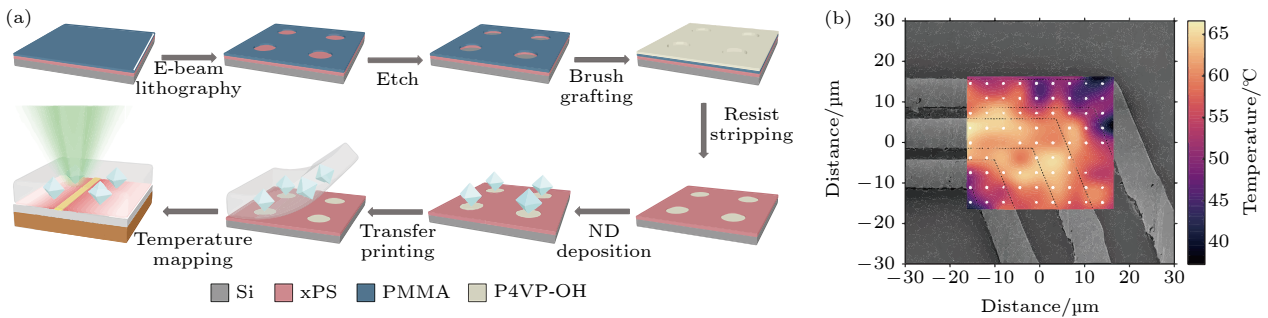


图10 利用PDMS进行局部测温<sup>[53]</sup> (a) 纳米金刚石转移到PDMS上的微纳加工工艺; (b) 通过ODMR拟合提取出温度信息, 并对温度进行重建之后的温度分布图

Fig. 10. Local temperature measurement with PDMS<sup>[53]</sup>: (a) Processing of nanodiamond transferred to PDMS; (b) temperature distribution after extracting the temperature information by ODMR fitting and reconstructing the temperature.

### 3.3 热导率的测量

热导率是物质导热能力的度量, 材料的热导率往往决定着电子设备的散热能力进而限制了电子设备的小型化和性能. 除了电子设备, 生物体的热导率的研究, 可以帮助生命科学家更好地了解生物体的热源位置. 探测纳米尺度材料的热流动需要很高的空间分辨率, 可以通过把色心粘贴到原子力显微镜的针尖上, 通过加热针尖测量热的变化来推算被测物体的热导率. 由于金刚石热导率高, 响应时间短, 对被测物体的影响小, 可以用来测相变和化学反应<sup>[33,55]</sup>. 如图12所示, 将金刚石色心粘在硅悬臂梁上, 硅与电极相互连接, 通过施加电流对金刚石加热实现测量. 其中, 信号的读取由共聚焦光路的光信号采集系统来完成.

## 4 结 论

NV色心因具有可以通过激光初始化和读取的特性, 进而可以实现对能级和自旋量子态的精确测量, 间接地测量出温度变化, 给亚微米空间分辨率的高灵敏温度测量带来了新的一种方法. 利用NV色心测量温度的主要手段可以分为利用零声子线和零场劈裂两种. 利用零声子线的测温装置简单, 测温速度快, 适用于精度要求不高, 测温速度快的应用. 利用零场劈裂值测量温度, 测量精度高, 能够测量亚微米级的局部温度, 适用于精度要求较高的应用. 当前, 基于NV色心实现的温度测量应用还处于初期阶段, 但是NV色心温度传感所具有的高空间分辨、高灵敏度、高度稳定性、宽广的测温范围等特点为生命健康、电子信息等领域中的温度测量提供了一种新的方式.



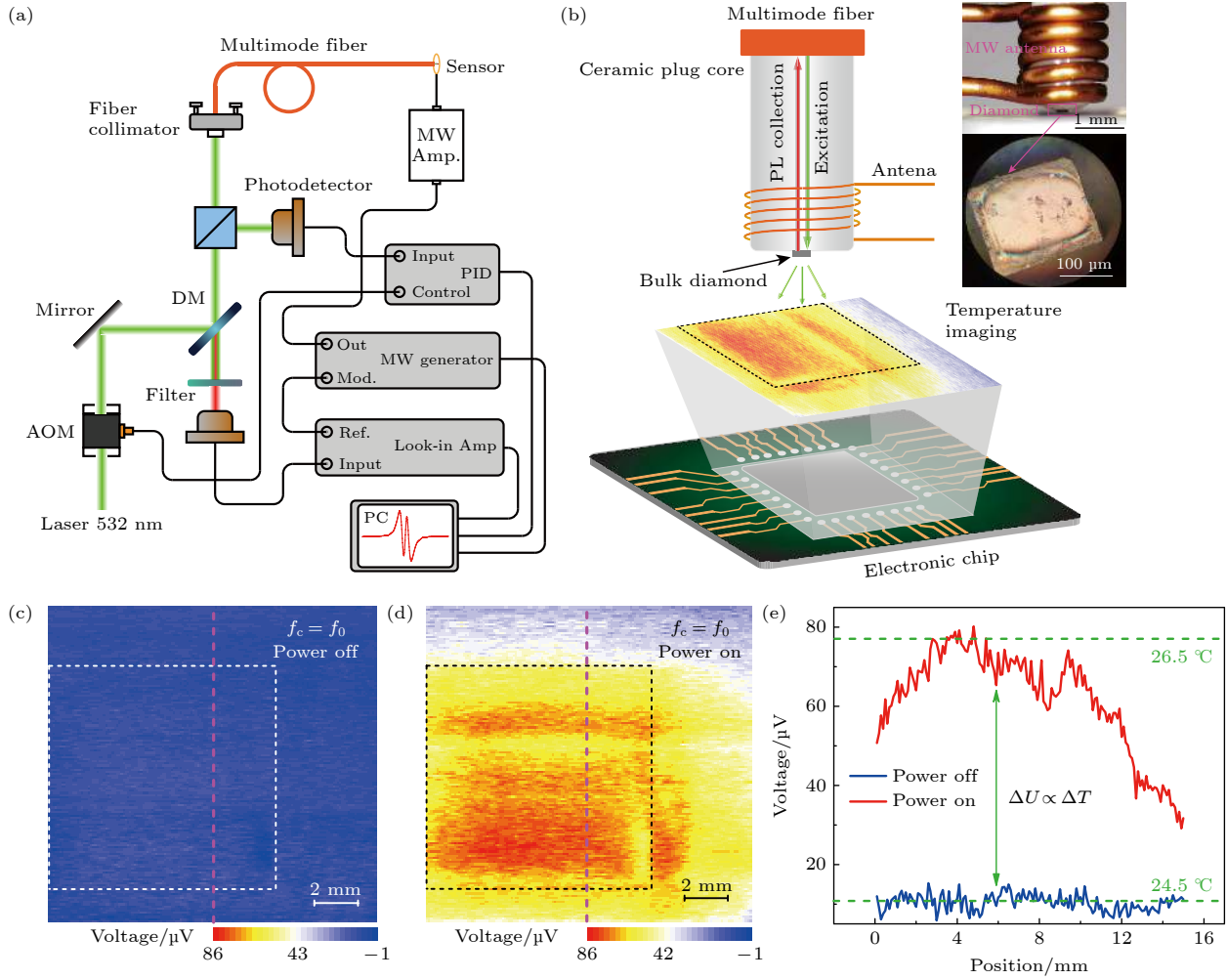


图 11 利用光纤传感对芯片温度分布进行测量<sup>[54]</sup> (a) 测量的系统, 结合了锁相放大系统与光纤系统; (b) 色心传感装置示意图, 红色的螺旋线表示微波天线; (c), (d) 芯片未通电与通电时的温度分布图; (e) 对应于图 (c) 和图 (d) 的红色虚线测量值

Fig. 11. Chip temperature distribution is measured using fiber optic sensing<sup>[54]</sup>: (a) System of measurement, combining the phase-locked amplification system with the fiber optic system; (b) schematic diagram of the color center sensing device, with the red spiral lines indicating the microwave antenna; (c), (d) temperature distribution of the chip when it is powered off and on; (e) corresponds to the red dashed line measurements in panel (c) and (d).

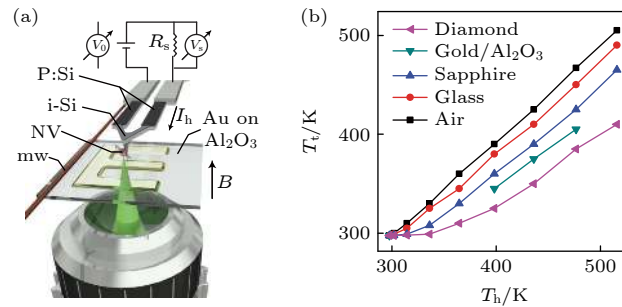


图 12 对材料热导率进行测量<sup>[33]</sup> (a) 实验装置, 电流沿着 AFM 的悬梁臂, 通过加热悬梁臂间接加热粘在上面的金刚石色心。色心发出的荧光通过一个高数值孔径的显微镜收集。 (b) 与不同介质接触后金刚石的温度, 横坐标为加热的温度, 纵坐标为金刚石的温度

Fig. 12. Measuring the thermal conductivity of materials<sup>[33]</sup>. (a) Experimental setup, where current is flowing along the cantilever arm of the AFM and indirectly heats a diamond color center attached to it by heating the cantilever arm. The fluorescence emitted from NV center is collected through a microscope in a high numerical aperture. (b) Temperature of the diamond contact with different mediums. The horizontal coordinate is the temperature of heating and the vertical coordinate is the temperature of the diamond.

## 参考文献

- [1] van Oort E, Manson N B, Glasbeek M 1988 *J. Phys. C: Solid State Phys.* **21** 4385
- [2] Gruber A 1997 *Science* **276** 2012
- [3] Jelezko F, Gaebel T, Popa I, Domhan M, Gruber A, Wrachtrup J 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 130501
- [4] Fuchs G D, Dobrovitski V V, Hanson R, Batra A, Weis C D, Schenkel T, Awschalom D D 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 117601
- [5] Neumann P, Kolesov R, Jacques V, Beck J, Tisler J, Batalov A, Rogers L, Manson N B, Balasubramanian G, Jelezko F, Wrachtrup J 2009 *New J. Phys.* **11** 013017
- [6] Childress L, Hanson R 2013 *MRS Bull.* **38** 134
- [7] Chen X, Zou C, Gong Z, Dong C, Guo G, Sun F 2015 *Light Sci. Appl.* **4** e230
- [8] Han K Y, Kim S K, Eggeling C, Hell S W 2010 *Nano Lett.* **10** 3199
- [9] Arroyo-Camejo S, Adam M P, Besbes M, Hugonin J P, Jacques V, Greffet J J, Roch J F, Hell S W, Treussart F 2013 *ACS Nano* **7** 10912
- [10] Maze J R, Stanwix P L, Hodges J S, Hong S, Taylor J M, Cappellaro P, Jiang L, Dutt M V G, Togan E, Zibrov A S, Yacoby A, Walsworth R L, Lukin M D 2008 *Nature* **455** 644
- [11] Dolde F, Fedder H, Doherty M W, Nabauer T, Remp F, Balasubramanian G, Wolf T, Reinhard F, Hollenberg L C L, Jelezko F, Wrachtrup J 2011 *Nat. Phys.* **7** 459
- [12] Ovarthaiyapong P, Lee K W, Myers B A, Jayich A C B 2014 *Nat. Commun.* **5** 4429
- [13] Acosta V M, Bauch E, Ledbetter M P, Waxman A, Bouchard L S, Budker D 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 070801
- [14] Chen X D, Dong C H, Sun F W, Zou C L, Cui J M, Han Z F, Guo G C 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 161903
- [15] Hayashi T, Fukuda N, Uchiyama S, Inada N 2015 *PLoS One* **10** e0117677
- [16] Jaque D, del Rosal B, Rodriguez E M, Maestro L M, Haro-Gonzalez P, Sol J G 2014 *Nanomedicine* **9** 1047
- [17] Somero G N 1995 *Annu. Rev. Physiol.* **57** 43
- [18] Suzuki M, Tseeb V, Oyama K, Ishiwata S I 2007 *Biophys. J.* **92** 2
- [19] Zohar O, Ikeda M, Shinagawa H, Inoue H, Nakamura H, Elbaum D, Alkon D L, Yoshioka T 1998 *Biophys. J.* **74** 82
- [20] Astakhov V P, Outeiro J 2019 *Importance of Temperature in Metal Cutting and Its Proper Measurement/Modeling* (Cham: Springer International Publishing) pp1–47
- [21] Shi L, Dames C, Lukes J R, Reddy P, Duda J, Cahill D G, Lee J, Marconnet A, Goodson K E, Bahk J H, Shakouri A, Prasher R S, Felts J, King W P, Han B, Bischof J C 2015 *Nanoscale and Microscale Thermophys. Eng.* **19** 127
- [22] Brites C D S, Balabhadra S, Carlos L D 2019 *Adv. Opt. Mater.* **7** 1801239
- [23] Doherty M W, Acosta V M, Jarmola A, Barson M S J, Manson N B, Budker D, Hollenberg L C L 2014 *Phys. Rev. B* **90** 041201
- [24] Li C C, Gong M, Chen X D, Li S, Zhao B W, Dong Y, Guo G C, Sun F W 2017 *Diamond Relat. Mater.* **74** 119
- [25] Schirhagl R, Chang K, Loretz M, Degen C L 2014 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **65** 83
- [26] Toyli D M, Christle D J, Alkauskas A, Buckley B B, Van de Walle C G, Awschalom D D 2012 *Phys. Rev. X* **2** 031001
- [27] Toyli D M, de las Casas C F, Christle D J, Dobrovitski V V, Awschalom D D 2013 *Proc. Natl. Acad. Sci.* **110** 8417
- [28] Neumann P, Jakobi I, Dolde F, Burk C, Reuter R, Waldherr G, Honert J, Wolf T, Brunner A, Shim J H, Suter D, Sumiya H, Isoya J, Wrachtrup J 2013 *Nano Lett.* **13** 2738
- [29] Kucsko G, Maurer P C, Yao N Y, Kubo M, Noh H J, Lo P K, Park H, Lukin M D 2013 *Nature* **500** 54
- [30] Fedotov I V, Blakley S, Serebryannikov E E, Safronov N A, Velichansky V L, Scully M O, Zheltikov A M 2014 *Appl. Phys. Lett.* **105** 261109
- [31] Kraus H, Soltamov V A, Fuchs F, Simin D, Sperlich A, Baranov P G, Astakhov G V, Dyakonov V 2015 *Sci. Rep.* **4** 5303
- [32] Plakhotnik T, Aman H, Chang H C 2015 *Nanotechnology* **26** 245501
- [33] Laraoui A, Aycock-Rizzo H, Gao Y, Lu X, Riedo E, Meriles C A 2015 *Nat. Commun.* **6** 8954
- [34] Jelezko F, Wrachtrup J 2006 *Phys. Status Solidi A* **203** 3207
- [35] Wojciechowski A M, Karadas M, Osterkamp C, Jankuhn S, Meijer J, Jelezko F, Huck A, Andersen U L 2018 *Appl. Phys. Lett.* **113** 013502
- [36] Tzeng Y K, Tsai P C, Liu H Y, Chen O Y, Hsu H, Yee F G, Chang M S, Chang H C 2015 *Nano Lett.* **15** 3945
- [37] Wang J, Feng F, Zhang J, Chen J, Zheng Z, Guo L, Zhang W, Song X, Guo G, Fan L, Zou C, Lou L, Zhu W, Wang G 2015 *Phys. Rev. B* **91** 155404
- [38] Konzelmann P, Rendler T, Bergholm V, Zappe A, Pfannenstill V, Garsi M, Ziem F, Niethammer M, Widmann M, Lee S Y, Neumann P, Wrachtrup J 2018 *New J. Phys.* **20** 123013
- [39] Plakhotnik T, Doherty M W, Cole J H, Chapman R, Manson N B 2014 *Nano Lett.* **14** 4989
- [40] Zhang S C, Li S, Du B, Dong Y, Zheng Y, Lin H B, Zhao B W, Zhu W, Wang G Z, Chen X D, Guo G C, Sun F W 2019 *Opt. Mater. Express* **9** 4634
- [41] Wang N, Liu G Q, Leong W H, Zeng H, Feng X, Li S H, Dolde F, Fedder H, Wrachtrup J, Cui X D, Yang S, Li Q, Liu R B 2018 *Phys. Rev. X* **8** 011042
- [42] Liu C F, Leong W H, Xia K, Feng X, Finkler A, Denisenko A, Wrachtrup J, Li Q, Liu R B 2021 *National Science Review* **8** nwa194
- [43] Hayashi K, Matsuzaki Y, Taniguchi T, Shimo-Oka T, Nakamura I, Onoda S, Ohshima T, Morishita H, Fujiwara M, Saito S, Mizuochi N 2018 *Phys. Rev. Appl.* **10** 034009
- [44] Vetrone F, Naccache R, Zamarrn A, Juarranz de la Fuente A, Sanz-Rodriguez F, Martinez Maestro L, Martin Rodriguez E, Jaque D, Garca Sol J, Capobianco J A 2010 *ACS Nano* **4** 3254
- [45] Ermakova Y G, Lanin A A, Fedotov I V, Roshchin M, Kelmanson I V, Kulik D, Bogdanova Y A, Shokhina A G, Bilan D S, Staroverov D B, Balaban P M, Fedotov A B, Sidorov-Biryukov D A, Nikitin E S, Zheltikov A M, Belousov V V 2017 *Nat. Commun.* **8** 15362
- [46] Yukawa H, Fujiwara M, Kobayashi K, Kumon Y, Miyaji K, Nishimura Y, Oshimi K, Umehara Y, Teki Y, Iwasaki T, Hatano M, Hashimoto H, Baba Y 2020 *Nanoscale Adv.* **2** 1859
- [47] Simpson D A, Morrisroe E, McCoe J M, Lombard A H, Mendis D C, Treussart F, Hall L T, Petrou S, Hollenberg L C L 2017 *ACS Nano* **11** 12077
- [48] Fujiwara M, Sun S, Dohms A, Nishimura Y, Suto K, Takezawa Y, Oshimi K, Zhao L, Sadzak N, Umehara Y, Teki Y, Komatsu N, Benson O, Shikano Y, Kage-Nakadai E 2020 *Sci. Adv.* **6** eaba9636
- [49] Tsai P C, Epperla C P, Huang J S, Chen O Y, Wu C C, Chang H C 2017 *Angew. Chem. Int. Ed.* **56** 3025

- [50] Mamaluy D, Gao X 2015 *Appl. Phys. Lett.* **106** 193503  
 [51] Yue Y, Wang X 2012 *Nano Rev.* **3** 11586  
 [52] Foy C, Zhang L, Trusheim M E, Bagnall K R, Walsh M, Wang E N, Englund D R 2020 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **12** 26525  
 [53] Andrich P, Li J, Liu X, Heremans F J, Nealey P F, Awschalom D D 2018 *Nano Lett.* **18** 4684  
 [54] Zhang S C, Dong Y, Du B, Lin H B, Li S, Zhu W, Wang G Z, Chen X D, Guo G C, Sun F W 2021 *Rev. Sci. Instrum.* **92** 044904  
 [55] Tetienne J P, Lombard A, Simpson D A, Ritchie C, Lu J, Mulvaney P, Hollenberg L C L 2016 *Nano Lett.* **16** 326

SPECIAL TOPIC—Manipulation and applications of solid-state single quantum systems

## Temperature sensing with nitrogen vacancy center in diamond<sup>\*</sup>

Lin Hao-Bin   Zhang Shao-Chun   Dong Yang   Zheng Yu

Chen Xiang-Dong   Sun Fang-Wen<sup>†</sup>

(Chinese Academy of Sciences Key Laboratory of Quantum Information, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

(Received 30 September 2021; revised manuscript received 26 October 2021)

### Abstract

Temperature is the most intuitive and widespread in various physical quantities. Violent changes in temperature usually implies the appearing of fluctuations in physical properties of an object. Therefore, temperature is often an important indicator. With the development of science and technology, the scales in many fields are being more and more miniaturized. However, there are no mature temperature measurement systems in the case where the spatial scale is less than 10  $\mu\text{m}$ . In addition to the requirement for spatial resolution, the sensor ought to exert no dramatic influence on the object to be measured. The nitrogen vacancy (NV) center in diamond is a stable luminescence defect. The measurements of its spectrum and spin state can be used to obtain the information about physical quantities near the color center, such as temperature and electro-magnetic field. Owing to its stable chemical properties and high thermal conductivity, the NV center can be applied to the noninvasive detection for nano-scale researches. It can also be used in the life field because it is non-toxic to cells. Moreover, combined with different techniques, such as optical fiber, scanning thermal microscopy, NV center can be used to measure the local temperatures in different scenarios. This review focuses on the temperature properties, the method of measuring temperature, and relevant applications of NV centers.

**Keywords:** nitrogen-vacancy center, quantum sensing, temperature sensing

**PACS:** 03.67.-a, 42.50.Dv, 76.30.Mi

**DOI:** 10.7498/aps.71.20211822

<sup>\*</sup> Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2017YFA0304504), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 91850102, 12005218), and the Science Fund for Distinguished Young Scholars of Hebei Province, China (Grant No. F2019516002).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: fwsun@ustc.edu.cn