

## 极端条件下的金刚石自旋量子传感

刘刚钦

### Diamond spin quantum sensing under extreme conditions

Liu Gang-Qin

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 066101 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20212072

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212072>

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

#### 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>

#### 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-空位色心自旋系综与超导量子电路混合系统的量子节点纠缠

Entanglement of quantum node based on hybrid system of diamond nitrogen-vacancy center spin ensembles and superconducting quantum circuits

物理学报. 2018, 67(7): 070302 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172634>

#### 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>

#### 基于金刚石NV色心的纳米尺度磁场测量和成像技术

Nanoscale magnetic field sensing and imaging based on nitrogen-vacancy center in diamond

物理学报. 2018, 67(13): 130701 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180243>

专题: 固态单量子体系的调控与应用

## 极端条件下的金刚石自旋量子传感\*

刘刚钦<sup>1)2)3)†</sup>

1) (中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家研究中心, 北京 100190)

2) (中国科学院拓扑量子计算卓越创新中心, 北京 100190)

3) (松山湖材料实验室, 东莞 523808)

(2021 年 11 月 8 日收到; 2022 年 3 月 4 日收到修改稿)

极低温、高压强、强磁场等极端条件是发现和调控新奇物态的重要途径. 为了能在极端条件下实现灵敏的物性测量, 需要发展先进的传感探测方案. 基于金刚石氮空位中心的自旋量子传感可实现磁学、电学、力学、热学等物理参数的灵敏测量, 而且拥有微纳尺度的空间分辨率和极其宽泛的工作区间, 有望成为极端条件下灵敏物性测量的重要工具. 本文主要介绍低温、高温、零场、强磁场以及高压强等极端条件下金刚石氮空位中心的光学性质和自旋相干性质, 探讨极端条件下金刚石自旋量子传感所面临的机遇和挑战. 本文也包含自旋量子传感的基础知识和极端条件下量子传感应用进展.

**关键词:** 量子传感, 氮空位中心, 极端条件, 磁性相变**PACS:** 61.72.jn, 03.67.-a, 76.70.Hb, 07.05.Fb**DOI:** 10.7498/aps.71.20212072

## 1 引言

物质的结构、状态、性质与其所处环境密切相关. 通过温度、压强、磁场等参数的调控, 可以获得丰富的物态现象和演化规律, 这是凝聚态物理、材料科学等领域的基本研究范式. 一般当所施加的实验参数远远地超越人类日常生活所允许的范围 (地表常温大气环境) 时, 就进入了所谓的非常规实验条件或者极端条件区间. 典型的极端条件包括极低温、强磁场、超高压等. 近年来, 极端条件实验技术不断发展, 使得诸多新奇物态和规律得以发现和调控, 如非常规超导电性<sup>[1,2]</sup>、磁性量子临界点<sup>[3,4]</sup>、拓扑绝缘体<sup>[5]</sup>等.

为了定量研究极端条件下的新奇物质状态及其演化规律, 需要发展能在极端条件下工作的灵敏物性测量方法和技术. 取决于具体场景和研究对

象, 待测物理量可能涵盖力学、热学、光学、电学、磁学等性质中的一种或多种. 在常规条件下, 这些物理量已有多种便捷有效的感知测量方案. 然而, 在极端条件下, 这些方案的表现常常大打折扣, 甚至完全失效. 以高压下磁性测量为例, 受限于高压腔 (如金刚石对顶砧) 对样品尺寸和探测距离的限制, 常压下拥有极高灵敏度的磁性探测方案, 如超导量子干涉器件 (SQUID)、光泵磁力仪等, 高压下都不能发挥其灵敏度优势; 而目前被广泛使用的交流磁化率等方案, 已无法满足高压极端条件下的磁性测量需求<sup>[6-8]</sup>.

近年来, 金刚石氮空位中心 (nitrogen vacancy center, NV center) 自旋量子传感发展迅速, 为极端条件下的灵敏物性测量带来了新的契机. 作为金刚石中的一种点缺陷结构, 氮空位中心拥有出色的自旋和光学性质, 其自旋量子态对所处环境的磁场、温度、压强等参数有着灵敏和确定的响应,

\* 北京市自然科学基金 (批准号: Z200009)、中国科学院 (批准号: YJKYYQ20190082, XDB28030000)、国家自然科学基金 (批准号: 11974020, 12022509, 11934018, T2121001) 和国家重点研发计划 (批准号: 2019YFA0308100) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: gqliu@iphy.ac.cn

是备受关注的微纳尺度量子传感器. 更重要的是, 得益于金刚石的稳定结构和性质, 以及光探磁共振 (optically detected magnetic resonance, ODMR) 方法的高效和便捷性, 基于金刚石 NV 自旋的量子传感方案可直接拓展至高压、低温、强场等极端条件下 (图 1(a)), 有望成为极端条件下灵敏物性测量的重要工具. 本文将从金刚石自旋量子传感的基本原理和典型表现引入, 重点介绍极端温度、压强、磁场等条件下实现金刚石自旋量子调控和传感应用所需应对的科学和技术挑战, 并通过具体的案例介绍该方向的应用进展. 关于金刚石氮空位中心量子传感的基础知识可见综述文献 [9–11], 其在凝聚态物理中的应用亦有专门的讨论 [12].

## 2 金刚石氮空位中心自旋量子传感

### 2.1 量子传感简介

量子传感 (quantum sensing) 并无统一的严格定义, 一般来说, 通过量子系统、量子性质 (如叠加态和纠缠态) 或量子现象来实现或增强物理量灵敏测量都可称为量子传感 [11]. 实现量子传感的典型物理系统包括超导量子干涉器件、原子系统 (冷原子、热原子、里德伯原子)、离子、自旋、光子以及光力复合系统等. 一方面, 得益于量子信息处理的快速发展, 这些物理系统的量子态相干调控理论和实验技术已相对成熟; 另一方面, 这些系统量子态对特定的物理量极其敏感, 提供了实现灵敏物性测量的机制.

典型的量子传感过程可分解为 3 个部分, 如图 1(b) 所示. 首先, 需要初始化量子传感器的状态, 即将其确定地制备到初始量子态上, 如量子叠加态  $\frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow\rangle + |\downarrow\rangle)$ . 随后, 让量子传感器和待测系统相互作用, 这个阶段待测系统的存在会影响传感器的量子态演化, 形成一个包含待测信息的末态. 例如, 一个自旋叠加态在磁场下演化时间  $t$  得到的末态  $\frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow\rangle + e^{i\varphi}|\downarrow\rangle)$  中, 其相位信息  $\varphi = \omega t = \gamma B t$  由外磁场  $B$  和演化时间  $t$  决定. 最后, 还需要将量子态进行读出和分析, 以得到待测物理量. 对于上面的例子, 已知  $t$  和测量所得的  $\varphi$  就能算出磁场  $B$  的大小. 注意实现量子传感的这 3 个部分可以顺序执行, 也可以并行地执行.

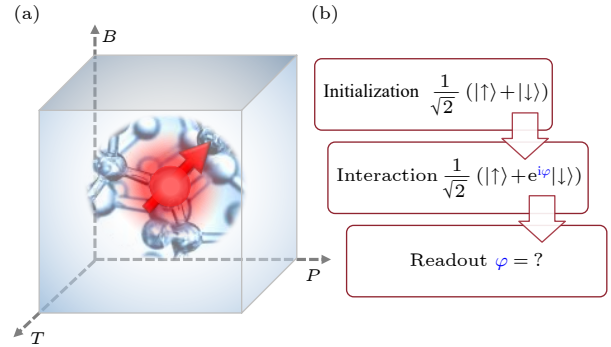


图 1 极端条件下的金刚石自旋量子传感 (a) 作为灵敏的微纳尺度量子传感方案, 金刚石氮空位中心可在极其宽泛的温度、压强、磁场下工作; (b) 典型的自旋量子传感包含量子态制备、与待测对象的相互作用、量子态读出三部分

Fig. 1. Diamond quantum sensing under extreme conditions. (a) As nanoscale quantum sensors, diamond nitrogen-vacancy centers can work under wide ranges of temperature, pressure, and magnetic field. (b) A typical spin-based quantum sensing process contains three parts: preparation of the quantum state, interaction between the sensor and the target, and readout of the quantum state.

从上面的描述可见, 量子传感和量子计算有很多共通之处: 两者都需要实现高保真度的量子态的制备 (初始化) 和读出, 对应的物理原理和实现技术相同. 两者的区别在于态演化阶段, 即量子计算需要完全可控的量子态演化以完成特定的计算任务, 如实现大数分解或无序搜索; 而量子传感需要量子态与待测对象的相互作用来获取待测信息. 在充分利用量子叠加、量子纠缠的基础上, 量子传感可实现极高的信息感知灵敏度; 作为对比, 量子计算的核心目标是实现高效的信息处理. 值得一提的是, 为了展示量子计算相对于经典计算的优越性 [13], 需要实现数目众多且性能优异的 (物理) 量子比特; 而量子传感在只有数个比特时就能实现一些经典探测方案无法完成的测量任务, 展现出显著的量子优越性, 例如基于金刚石 NV 中心可实现单分子级别的磁共振探测 [14].

### 2.2 金刚石自旋量子传感

本节简要介绍金刚石氮空位中心的结构和基本性质, 以及实现量子传感的原理. 金刚石由碳原子构成, 在自然丰度中, 99% 的碳原子为无自旋的  $^{12}\text{C}$  原子, 这提供了一个较为理想的固态低自旋噪声环境. 在金刚石晶格中, 如果一个碳原子被一个氮原子所取代, 而且旁边正好有一个空位时, 就形

成了一个较为稳定的氮空位中心结构. 这样的结构也被称为色心 (color center), 因为其能级跃迁对应能量在可见光波段, 在激光激发下会辐射出荧光光子, NV 中心是金刚石中已被发现的 100 多种色心中的一种. 由于色心结构仅包含数个原子, 基于金刚石色心自旋的量子传感具备实现纳米尺度空间分辨的潜力.

金刚石 NV 中心可被看作是自旋  $S = 1$  的电子自旋, 其基态是自旋三重态, 可作为自旋量子计算和量子传感的工作能级. NV 中心自旋量子态的初始化和读出都是通过自旋依赖的光学跃迁过程实现的, 如图 2(a) 所示, 在激光辐照下,  $m_s = 0$  的自旋状态会被激发到激发态并辐射荧光光子返回基态, 故  $m_s = 0$  被看作“亮态”; 而  $m_s = \pm 1$  的自旋状态在激发后有更大的概率通过自旋单态路径回到  $m_s = 0$  的状态, 对应过程辐射偏少, 故  $m_s = \pm 1$  态被看作“暗态”. 于是, 通过测量荧光强度就可以判断 NV 中心自旋状态. 基于同样的过程, 几微秒的连续激光极化即可将 NV 自旋抽运到  $m_s = 0$  的状态上, 实现高保真度的自旋态初始化. 除了极化和读出自旋状态, 还需要将自旋制备到特定的量子态 (如叠加态) 上, 一般可通过射频微波脉冲来实现. 施加脉冲的频率对准自旋进动频率, 通过控制脉冲长度、幅度和相位参数, 可以实现自旋量子传感器任意量子态的制备.

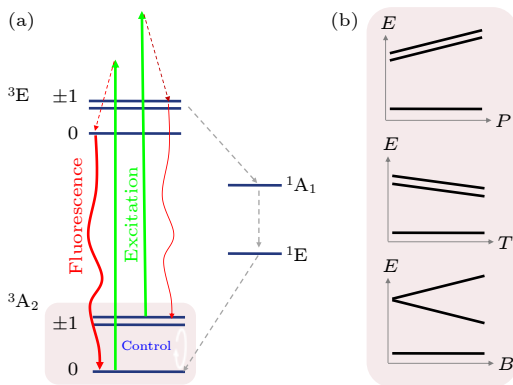


图 2 金刚石氮空位中心自旋量子传感工作原理 (a) 自旋能级结构和光学跃迁; (b) 外场对金刚石氮空位中心基态能级的影响 (从上至下: 压强、温度、磁场)  
Fig. 2. Working principle of diamond quantum sensing: (a) The energy level structure and optical transitions of a diamond NV center; (b) the energy levels of NV ground state as function of external perturbations (from top to bottom: pressure, temperature, and magnetic field).

金刚石 NV 中心自旋的基态可用如下哈密顿

量来描述:  $H = hDS_z^2 + hE(S_x^2 - S_y^2) + g\mu_B \mathbf{B} \cdot \mathbf{S}$ , 其中  $\mathbf{S} = (S_x, S_y, S_z)$  代表 NV 电子自旋;  $\mathbf{B}$  代表外加磁场;  $h$  为普朗克常数;  $\mu_B$  为玻尔磁子;  $D$  和  $E$  为金刚石晶格场决定的零场劈裂参数, 室温常压下  $D = 2.87$  GHz. 注意上述哈密顿量中没有考虑核自旋带来的超精细相互作用. 作为一个电子自旋, NV 中心对外加磁场的响应体现在  $\mathbf{B} \cdot \mathbf{S}$  一项上, 也就是塞曼效应; 对其他调控参数, 包括电场、压强、温度的响应, 都体现在  $D$  和  $E$  上. 在室温常压附近, NV 自旋基态能级对于磁场、温度、压强有着近似线性的响应, 如图 2(b) 所示. NV 自旋共振频率对磁场的耦合系数为  $2.8$  MHz/G ( $1 \text{ G} = 10^{-4} \text{ T}$ ) [15], 对温度的耦合系数是  $74$  kHz/K [16], 对压强的耦合系数是  $14.5$  MHz/GPa [17], 对沿着 NV 轴向电场的耦合系数是  $3.5 \times 10^{-3} \text{ Hz}/(\text{V} \cdot \text{m}^{-1})$ , 对垂直于 NV 轴向电场的耦合系数是  $0.17 \text{ Hz}/(\text{V} \cdot \text{m}^{-1})$  [18,19]. 可见, 作为一个自旋量子传感器, NV 中心对磁场响应最为敏感. 在实际的应用场景中, 针对不同的测试目的, 需要将不同物理量带来的信号进行有效解耦, 例如通过偏置磁场方向, 可实现针对磁场或针对电场的灵敏探测 [19].

在具体实验中, 可通过测量 NV 中心荧光强度随施加微波频率的变化来获得其自旋共振频率, 进而得到待测参数的信息, 这样的技术被称为光探磁共振 [20]. 通过光探磁共振谱线可直接获得 NV 中心所处位置的静态磁场、温度、压强信息. 除进行静态参数的测量, 金刚石 NV 中心自旋也可用于上述参数的动态测量: 如果是周期性变化的信号, 例如交变的电磁场 (射频微波) 或近邻自旋进动带来的磁场变化, 可以通过周期性调控 NV 中心自旋状态来实现相应信号的锁定测量 [14]; 对于非周期的动态信号, 例如自旋涨落或电荷涨落带来的磁噪声, 也可以通过监测 NV 中心自旋弛豫过程或相干性质来半定量地获得对应信息 [21].

### 3 极端条件下的金刚石自旋量子调控

为了能将自旋量子传感推广至极端条件下, 首先需要在极端条件下实现自旋量子态的极化、操控和测量. 本节讨论极限温度、磁场、压强下金刚石 NV 中心自旋量子调控的研究进展, 重点介绍上述极端条件对 NV 中心光学性质和自旋相干性质的影响, 以及应对方法.



### 3.1 极限温度下的自旋量子调控

首先介绍极限低温带来的影响. 室温下就拥有极长的量子相干时间是金刚石 NV 中心的核心优势之一, 这主要得益于其基态只有非常微弱的自旋-轨道相互作用, 晶格振动对自旋弛豫的影响较弱. 随着温度的降低, 晶格振动被进一步抑制, 金刚石 NV 中心的光学和自旋性质变得更加有利于量子态的调控. 光学方面, 能级的非均匀展宽被抑制, 使得共振激发变得可行, 同时自发辐射过程受到声子的影响更低, 辐射出来的光子更多集中在零声子线上, 有利于自旋和光子之间的量子信息高效传递和读取<sup>[22]</sup>. 自旋相干性质方面, 2012 年 Budker 研究团队<sup>[23]</sup>系统测量了 4—300 K 区间的自旋弛豫时间, 发现降温可显著提升 NV 中心自旋弛豫时间 ( $T_1$ ), 在达到自旋间偶极相互作用设定的限制之前, NV 中心自旋  $T_1$  表现出随温度  $T^5$  的依赖关系, 如图 3(a) 所示. 进一步地, 通过使用高纯金刚石来减少晶格中顺磁杂质 (主要是孤立的 N 原子, P1 center) 带来的弛豫通道, 同时控制金刚石样品温度到液氦低温 (3.7 K), Abobeih 等<sup>[24]</sup>实现了长达 1 h 的金刚石 NV 自旋弛豫时间, 如图 3(b) 所示.

如果进一步降低温度, 到 100 mK 以下的极低温时, 热涨落对应的能量幅度已经小于不同自旋态之间的能量差 (2.88 GHz  $\sim$  138 mK), 此时热平衡态下 NV 电子自旋就会被极化, Astner 等<sup>[25]</sup>在这样的极低温下测得集群 NV 自旋弛豫时间达到了 8 h, 发现极低温下金刚石自旋弛豫的主要机制是真空声子涨落 (phononic vacuum fluctuations). 可见, 极限低温有利于金刚石 NV 自旋获得更加优

异的量子性质, 其对应的挑战在于极端低温实验条件的获得和维持. 常温下使用的激光和微波参数将会带来显著的加热效应, 不利于极低温环境的维持, 故极低温下需要使用更高效的自旋操控和读出方案. 操控方面, 可通过提升微波线路传输和耦合效率来降低自旋操控所需的射频微波功率; 读出方面, 可通过耦合到其他量子系统, 例如用超导量子器件, 来实现 NV 自旋信息的读取<sup>[26]</sup>.

作为对比, 高温条件对金刚石 NV 中光学性质和自旋相干性质都有不利影响. 2012 年, Toyli 等<sup>[27]</sup>通过在金刚石表面制备加热器件实现了 300—700 K 温区的金刚石 NV 中心光探磁共振, 发现温度高于 550 K 之后, 金刚石 NV 中心发光速率会明显降低, 同时不同自旋态荧光信号的对比度也开始下降. 该现象被归因于 550 K 以上温度下  $m_s = 0$  的自旋状态会更多地从自旋单态路径回到基态, 导致可见光波段的荧光降低, 同时  $m_s = 0$  和  $m_s = \pm 1$  的对比度下降, 高温下自旋量子态的光学读出机制不再成立, 这限制金刚石 NV 中心的最高工作温度为 700 K 附近. 本文作者与合作者通过分析高温下光探磁共振过程后发现, 如果能实现快速的升降温, 可在低温下进行自旋态的极化和读出, 而量子态操控和传感应用可在更高的温度下进行. 随后, 利用脉冲激光加热方法实现了该高温光探磁共振方案<sup>[28]</sup>. 如图 4(a) 和图 4(b) 所示, 将包含集群 NV 中心的纳米金刚石放置在碳膜上, 先用小功率的 532 nm 绿光进行 NV 中心自旋量子态初始化, 紧接着用大功率 (毫瓦级别) 808 nm 近红外光实现纳米金刚石的快速加热, 在温度达到稳定后 (约需

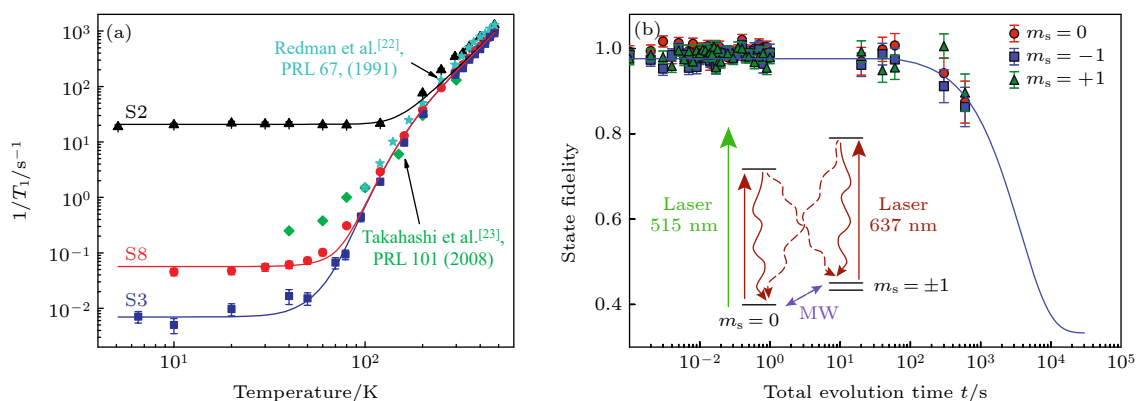


图 3 低温条件对金刚石氮空位中心自旋性质的影响 (a) 自旋弛豫速率随温度变化规律<sup>[23]</sup>; (b) 3.7 K 下 NV 中心自旋弛豫时间  $T_1$  可达 1 h<sup>[24]</sup>

Fig. 3. NV spin properties at low temperatures: (a) Spin relaxation rate as function of temperature<sup>[23]</sup>; (b) at 3.7 K, the  $T_1$  of an NV electron spin reaches 1 hour<sup>[24]</sup>.

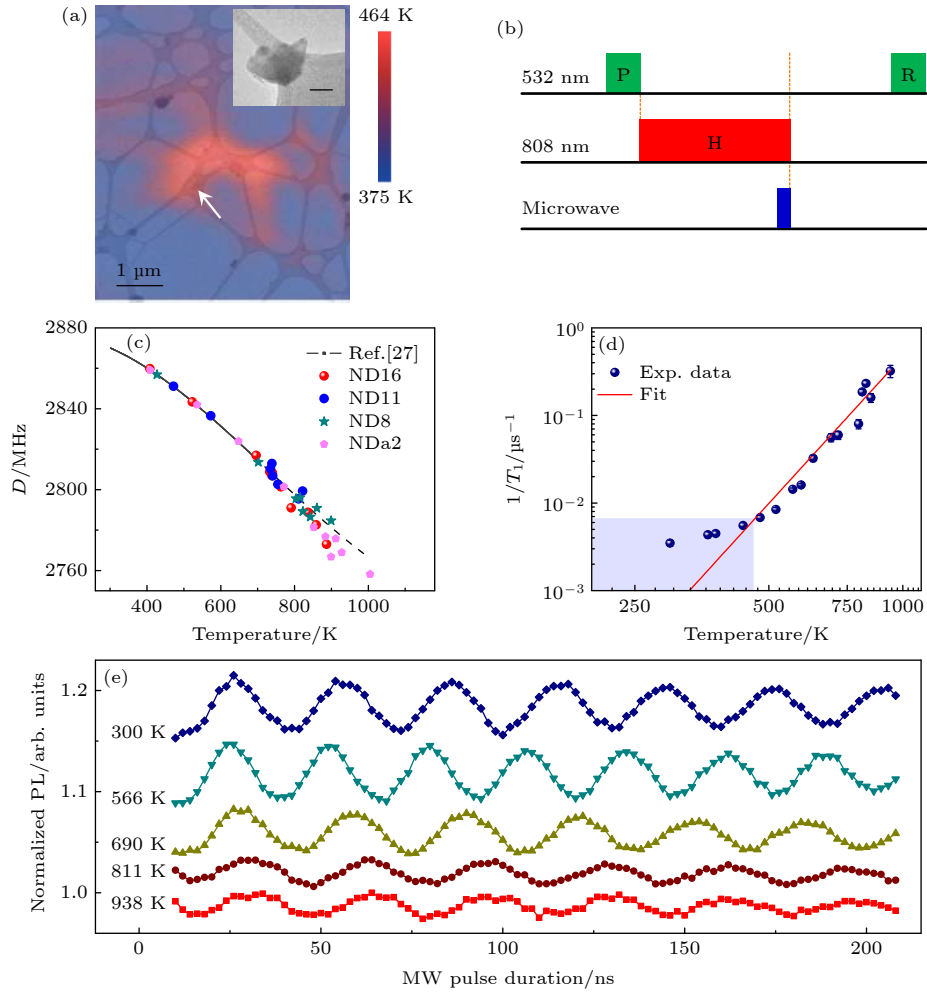


图4 高温下金刚石 NV 中心自旋量子调控<sup>[28]</sup> (a) 基于原位激光加热的快速温控; (b) 高温光探测磁共振脉冲序列; (c) 零场劈裂随温度变化规律; (d) 自旋弛豫速率随温度的变化规律; (e) 高温下自旋 Rabi 振荡

Fig. 4. Quantum control of diamond NV centers under high temperatures<sup>[28]</sup>: (a) Fast temperature control by *in-situ* laser heating and cooling; (b) pulse sequence for high-temperature ODMR; (c) temperature dependence of zero-field splitting of NV centers; (d) temperature dependence of spin relaxation rate; (e) Rabi oscillation under high temperatures.

2  $\mu$ s) 再进行高温下的自旋量子态 (微波) 操控; 最后, 在荧光读出之前, 通过一段几微秒的等待来冷却纳米金刚石, 进行自旋态的荧光读出时金刚石已回到低温. 通过这个方法, 将金刚石 NV 中心光探测磁共振的工作温区提高到了 1000 K 以上, 获得了 NV 中心零场劈裂  $D$  在 700 K 以上的温度依赖关系, 以及在 938 K 高温下 NV 自旋的 Rabi 振荡信号, 如图 4(c)—(e) 所示. 通过测量 NV 中心自旋弛豫时间随温度的变化规律, 发现高温下双声子拉曼过程 (two-phonon Raman processes) 带来的自旋弛豫过程占主导, 弛豫速率随温度呈现出  $T^5$  依赖关系. 当温度达到 1000 K 时,  $T_1$  已缩至不到 10  $\mu$ s, 该时间接近脉冲激光加热和冷却所需的时间, 故更高温度的金刚石 NV 自旋量子态操控需要更快的温度控制方案, 或者更长的自旋弛豫时间.

### 3.2 极限磁场下的自旋量子调控

作为磁场最低的极限, 先介绍零场和低场下的情况. 低磁场对金刚石 NV 中心的光学性质和自旋相干性质几乎没有影响, 自旋极化和读出方面见 2.2 节内容. 但低磁场特别是零场附近, NV 自旋量子态操控会遇到一些新的挑战, 这主要是因为零场下  $m_s = \pm 1$  的两个能级是简并的, 常用的线偏振微波无法区分它们. 进一步地, 考虑到每个 NV 中心都拥有一个  $^{14}\text{N}$  (或  $^{15}\text{N}$ ) 核自旋, 以及 NV 近邻随机分布着一些  $^{13}\text{C}$  核自旋, 核自旋与电子自旋间的超精细相互作用带来了复杂的能级结构<sup>[29]</sup>, 如图 5(a) 和图 5(b) 所示, 这对微波操控的能量覆盖范围和频率分辨提出了较高的要求. 为了解决零场下  $m_s = \pm 1$  能级简并问题, 一个方案是使用圆偏振的

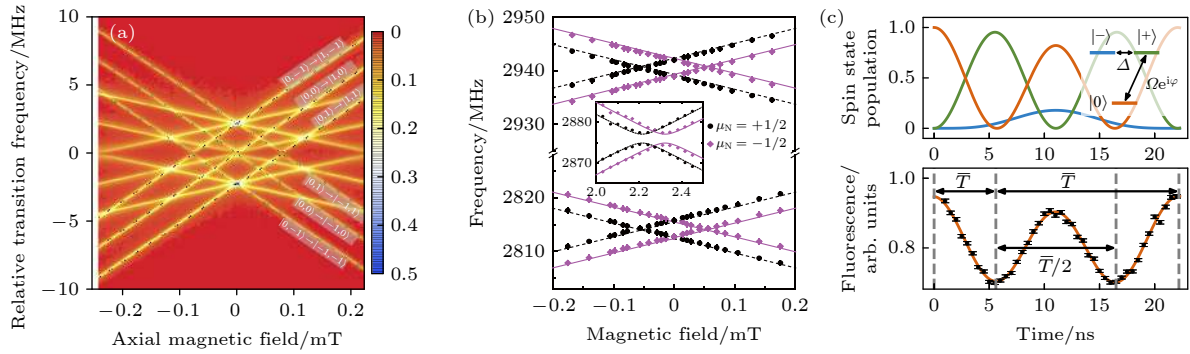


图5 零场和低磁场下金刚石自旋量子调控 (a) 零场附近基态能级简并情况<sup>[29]</sup>; (b) 基于近邻强耦合<sup>13</sup>C核自旋的零场量子传感方案<sup>[31]</sup>; (c) 基于NV自旋三能级结构的零场量子传感方案<sup>[30]</sup>

Fig. 5. Quantum control of diamond spin under zero and low magnetic fields: (a) Energy levels of NV ground state at near zero fields<sup>[29]</sup>; (b) zero-field magnetometry using hyperfine-biased NV centers<sup>[31]</sup>; (c) zero-field quantum sensing by exploiting the spin  $S = 1$  nature of the NV center<sup>[30]</sup>.

微波, 这样可以用微波偏振选择性激发  $m_s = +1$  或  $m_s = -1$  的一支<sup>[29]</sup>. 另一个方案是将前面基于二能级模型的自旋量子态控制方案推广至三能级模型, 如图 5(c) 所示, 三能级模型对应的量子态调控所需脉冲时间需要对应地调整, 但是通过合理的设计, 也能实现自由弛豫衰减 (free induction decay) 和动力学解耦 (dynamical decoupling) 等自旋操控所需的基本脉冲<sup>[30]</sup>. 值得一提的是, 零场和微弱外磁场下 NV 中心自旋的相干性质更容易受到晶格局部应力和电荷的影响, 这个现象对于浅层 NV 和纳米金刚石中的 NV 尤为明显, 它们常常带有兆赫兹量级的局部应力场, 此时 NV 基态能级为  $m_s = \pm 1$  的线性组合, 对磁场的一阶响应消失, 测磁灵敏度显著降低. 为解决该问题, 可以使用带有强耦合核自旋的 NV 中心, 等效于在中心自旋上原位加载了一个偏置磁场, 可直接克服 NV 近邻应力和电荷涨落的影响, 从而获得较好的测磁灵敏度, 是一种简单高效的零场自旋量子传感方案<sup>[31]</sup>.

作为磁场的另一个极端, 强场会显著影响金刚石 NV 中心的光学性质. 如果磁场较大 (数百高斯及以上) 而且没有沿着 NV 中心的量子化轴方向, NV 发光就会显著地降低<sup>[32]</sup>, 这是因为与 NV 量子化轴垂直的磁场分量使得  $m_s = 0, \pm 1$  自旋态出现杂化. 强磁场对自旋量子态调控的另一个挑战是所需共振微波频率的提升, 电子自旋的旋磁比为 2.8 MHz/G, 外加磁场 3 T 时 NV 自旋调控所需的微波频率达到 85 GHz 附近, 这对微波系统, 包括微波信号源、微波开关、传输线、放大器, 以及样品附近的微波天线等都提出了较高的要求. 2015 年,

Wrachtrup 团队<sup>[33]</sup>展示了 3 T 强磁场下的单个金刚石 NV 中心的自旋量子调控实验结果, 如图 6 所示, 他们使用微波波导来实现高效的高频微波传输, 并在金刚石样品附近有针对性地设计了共面波导结构来提升耦合效率, 实验获得了单个 NV 自旋的 ODMR 谱线和 Rabi 振荡信号, 见图 6(e) 和图 6(f). 该工作还实现了单个 <sup>14</sup>N 核自旋量子态单发读出, 成为实现纳米尺度高分辨核磁共振的关键技术之一 (见 4.2 节讨论). 最近, Fortman 等<sup>[34]</sup>基于集群 NV 中心, 实现了 8 T 强磁场下的 ODMR 谱测量, 这些结果说明金刚石 NV 中心可在极高磁场下工作.

### 3.3 极限压强下的自旋量子调控

和温度一样, 压强也是实现物态调控的重要热力学参数, 本节讨论高压极端条件对金刚石 NV 中心光学和自旋性质的影响. 金刚石对顶砧是实验室内获得高压条件的常用手段<sup>[35]</sup>, 如图 7(a) 所示, 其核心是两块对顶的金刚石和中间带微孔的金属垫片, 通过外力挤压金刚石与垫片微孔构成的封闭样品腔, 可实现数百吉帕的高压. 金刚石对顶砧的优势之一是拥有透明的光学窗口, 可以便捷地在高压腔内实现 NV 中心的自旋极化和读出. 当然, 对顶砧也带来了一定的空间限制, 工作距离的增大导致只能使用数值孔径偏低的物镜, 激光激发和荧光收集效率都下降. 为了增强光学信号, 可以使用集群氮空位中心进行实验. 另外, 自旋量子态调控所需的射频微波脉冲可以通过在对顶砧面上布置金属传输线来施加.



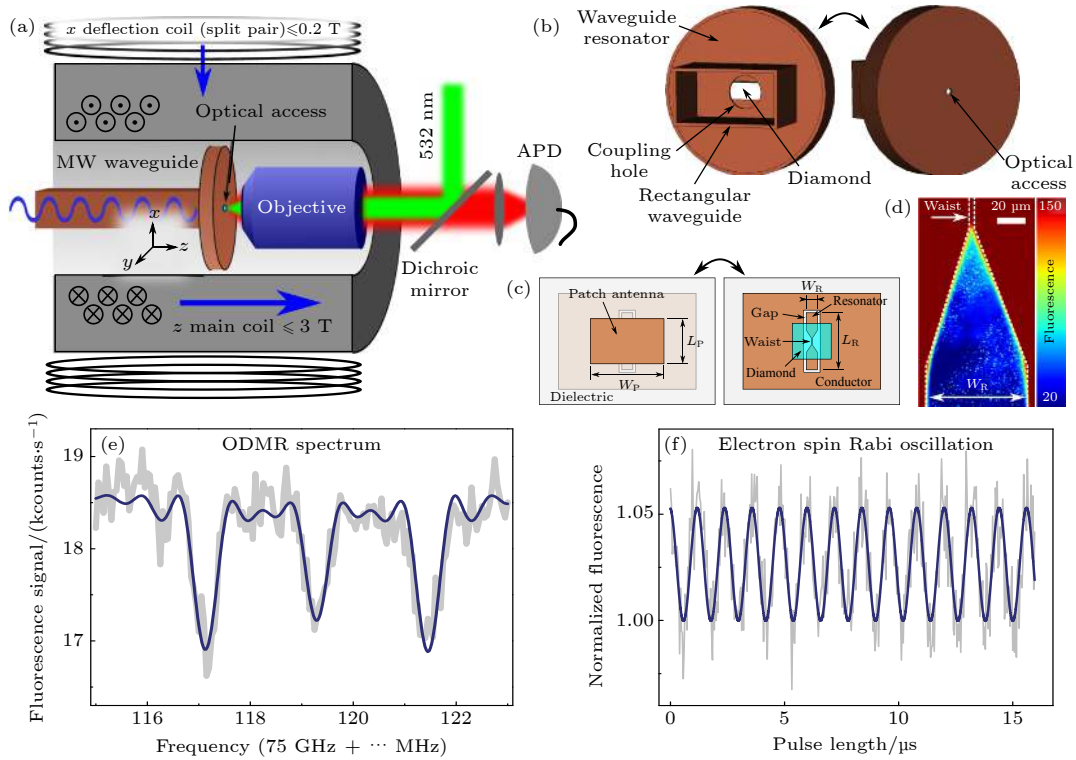


图 6 强磁场下的金刚石自旋量子调控<sup>[33]</sup> (a) 实验系统示意图; (b) 高频微波波导示意图; (c) 共面波导传输线和金刚石装载示意; (d) 金刚石近邻共面波导结构的荧光扫描图; (e) 2.78 T 磁场下的单个金刚石 NV 中心光探测磁共振谱线和 (f) Rabi 振荡

Fig. 6. Quantum control of diamond NV center under strong magnetic field<sup>[33]</sup>: (a) Experimental setup of high-field ODMR; (b) schematic of the microwave cavity resonator and (c) schematic of coplanar waveguide (CPW) transition element and diamond loading; (d) confocal image of the CPW resonator close to the diamond; (e) ODMR spectrum and (f) Rabi oscillation of an NV center at 2.78 T.

2014 年, Doherty 与合作者<sup>[17]</sup>测量了高压下金刚石 NV 中心的自旋和光学性质, 并评估了用其进行压力传感的灵敏度. 自旋性质方面, 他们首先测量了零场下光探测磁共振谱线随压强的变化规律 (见图 7(c)), 发现在大气压为 60 GPa 的范围内, 金刚石 NV 中心的零场劈裂值  $D$  随着压强有着近似线性的依赖关系, 对应斜率  $\frac{dD}{dP} = 14.58 \text{ MHz/GPa}$ , 如图 7(d) 所示. 另外, 当压强大于 4.5 GPa 之后, NV 中心零场 ODMR 谱线开始出现额外展宽和劈裂, 这是因为高压下传压介质开始固化, 各向同性的静水压条件不再成立 (见图 7(b)). 光学性质方面, 他们发现 NV 中心的零声子线 (zero-phonon line, ZPL) 随着压力升高表现出近似线性的蓝移, 响应为  $5.75 \text{ meV/GPa}$ . 依据该速率推算, 压强达到 60 GPa 时 NV 中心零声子线将移到 532 nm, 此时光探测共振实验常用的 532 nm 激光将不能直接激发 NV. 但在后续实验中, Lyapin 等<sup>[36]</sup>发现较高压强下 NV 零声子线对压强的依赖关系开始偏离线性 (趋势变缓), 在近 60 GPa 下零声子线对应

能量仍明显小于 532 nm 激光光子能量 (2.33 eV), 如图 7(e) 和图 7(f) 所示.

在随后的实验中, NV 中心零场劈裂随压强的变化规律得到了验证<sup>[37,38]</sup>. 进一步地, 在金刚石对顶砧内获得较高效率的微波天线后, 本文作者与合作者测量了高压下金刚石 NV 自旋 Rabi 振荡和自旋相干性质<sup>[37]</sup>, 如图 7(g)—(i) 所示. 在近 10 GPa 的压强范围内, 金刚石 NV 中心的自旋性质与常压一致. 值得注意的是, 压强较高的时候, 理想的静水压条件不再成立, 同时光斑范围内会出现一定的压强梯度, 这带来了额外的非均匀展宽, 表现为 ODMR 谱线的额外展宽和劈裂, 以及 Rabi 振荡信号和自由感应衰减信号外轮廓的较快衰减. 最近的实验结果显示, 基于动态核自旋极化等方案, 还可以实现 NV 中心近邻  $^{14}\text{N}$  核自旋的相干操控和核磁共振测量<sup>[39]</sup>, 这为高压下自旋量子传感提供了一个新的自由度. 总的来说, 金刚石 NV 中心可以工作在高压极端环境下, 但需要克服光学收集效率差和压强梯度带来非均匀展宽等技术挑战.



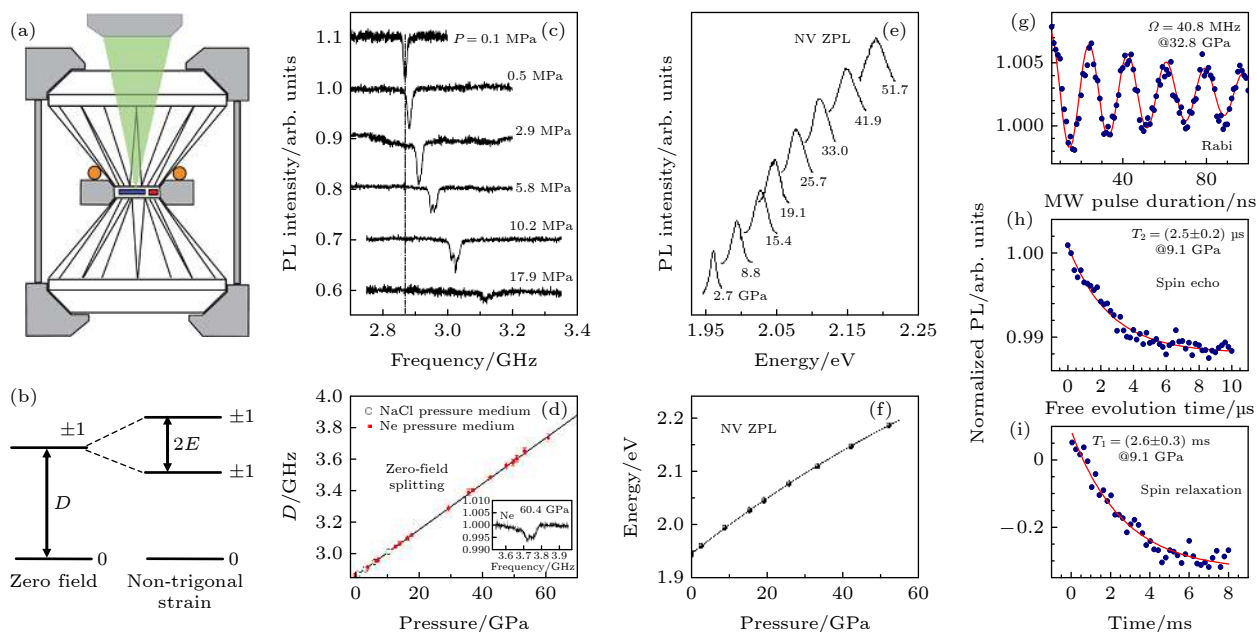


图 7 高压下金刚石 NV 自旋量子调控 (a) 金刚石对顶砧中的自旋量子传感 [17]; (b) 压力对金刚石 NV 中心基态能级的影响; (c) 不同压强下的光探磁共振谱线; (d) 零场劈裂随压强变化关系; (e) 不同压强下的 NV 中心零声子谱线及其 (f) 随压强变化规律 [36]; (g)–(i) 高压下的自旋 Rabi 振荡、自旋回波信号和自旋弛豫信号 [37]

Fig. 7. Quantum control of diamond NV center under high pressures: (a) Quantum sensing inside diamond anvil cell [17]; (b) energy levels of NV ground states under pressure; (c) ODMR spectra under different pressures; (d) dependence of zero-field splitting on pressures; (e) zero-phonon line and (f) its dependence on pressures [36]; (g)–(i) Rabi oscillation, spin echo, and spin relaxation of NV centers under high pressures [37].

## 4 极端条件下金刚石自旋量子传感应用进展

本节通过一些具体案例来介绍极端条件下金刚石自旋量子传感的应用进展. 通过前面介绍可知, 作为一种灵敏的物性测量方案, 金刚石 NV 中心的核心优势是极高的测磁灵敏度和微纳米尺度的空间分辨率, 这些优势结合低温、高温、零场、强磁场、高压等极端条件后, 为凝聚态物理、材料科学、生命科学等领域的前沿探索提供了有力的新工具.

### 4.1 低温和高温下的自旋量子传感应用

低温下比较有代表性的自旋量子传感应用是二维材料和超导薄膜的磁性测量. 二维或准二维材料体系通常在低温下才呈现出磁有序态, 而且对应的磁信号也较为微弱, 再考虑到待测磁信号随空间距离迅速衰减, 此类应用需要将金刚石自旋量子探针的纳米尺度工作距离发挥到极致. 目前较为成熟的方案是将含有单个 NV 中心的金刚石针尖和原子力显微镜进行结合. 2019 年, Thiel 等 [40] 基于单 NV 扫描探针, 在 7 K 的低温下测量了  $\text{CrI}_3$  的磁

性, 如图 8(a) 所示. 他们发现单层  $\text{CrI}_3$  展现出  $16 \mu_B/\text{nm}^2$  磁性, 偶数层的  $\text{CrI}_3$  没有磁性, 而且结构变化会带来铁磁序和反铁磁序的转化. 基于金刚石 NV 的微区磁成像方法被用于多种二维材料的研究, 详见文献 [41]. 对于超导薄膜, 穿透深度和杂散场 (stray fields) 的微区测量是至关重要的, 但该应用场景同样对测磁方案灵敏度、空间分辨率和工作温区有着较高要求. 基于金刚石 NV 中心的磁成像方案, Thiel 等 [42] 测量了铜氧化物 (YBCO) 高温超导薄膜在 4.2 K 温度下的磁通涡旋 (vortex), 如图 8(b) 所示, 通过定量分析杂散场的分布, 获得了该超导薄膜的穿透深度等关键信息, 这些结果将有助于超导微观机理的理解和应用.

除了低温, 还有很多磁性材料的相变温度在室温和高温区间, 例如常见磁性材料镍、铁、钴对应的居里温度分别是 627 K, 1043 K, 1400 K. 对于微区磁性测量, 传感器和待测对象距离很近, 两者温度相同或接近, 故高温下的应用需要量子传感器自身能耐受较高温度, 金刚石 NV 中心是为数不多的可在高温下工作的量子传感器. 如图 9 所示, 基于前面介绍的高温 ODMR 方法, 对单个镍纳米颗粒的铁磁-顺磁相变过程进行测量 [28]. 图 9(a) 展示

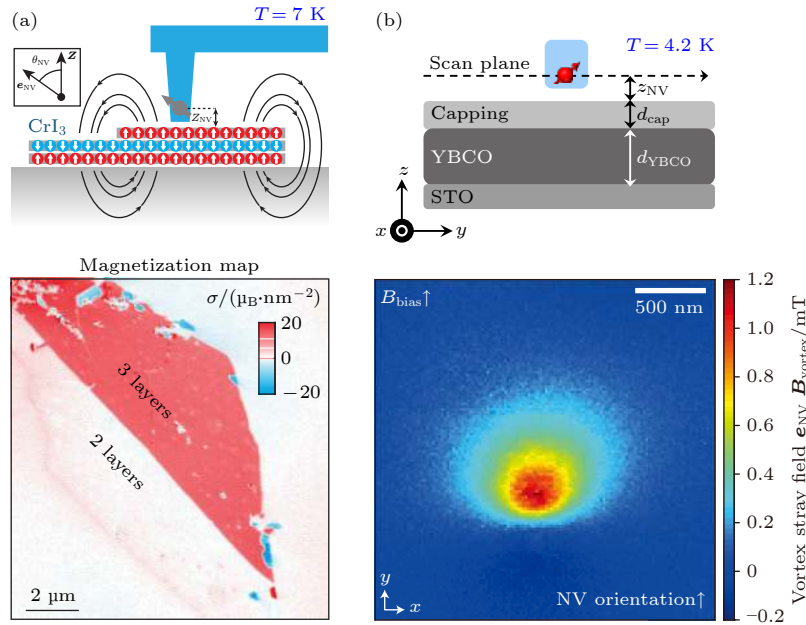


图 8 低温下金刚石自旋量子传感应用 (a) 7 K 下二维材料  $\text{CrI}_3$  的磁性成像 [40]; (b) 4.2 K 下超导薄膜 YBCO 的磁性成像 [41]

Fig. 8. Applications of diamond quantum sensing at low temperatures: (a) Map of magnetization distribution of a 2D material,  $\text{CrI}_3$ , at temperature of 7 K [40]; (b) magnetic vortex imaging of a thin-film superconductor, YBCO, at temperature of 4.2 K [41].

了不同温度下测得的纳米金刚石中集群 NV 的 ODMR 谱线, 其与一颗镍纳米颗粒 (约 100 nm) 直接接触, 样品结构见图 9(b) 插图. 在室温附近, 镍纳米颗粒处于铁磁态, 在金刚石所在范围内形成一个梯度磁场, 导致集群 NV 中心 ODMR 谱线呈现较大的展宽和劈裂; 随着温度的上升, 镍颗粒的磁性开始减弱, ODMR 谱线展宽和劈裂都随之减小. 当温度达到 630 K 以上时, 镍颗粒完全进入顺磁态, 纳米金刚石 ODMR 谱线恢复到其本征展宽和劈裂. 通过多次反复升降温过程, 观测到单个镍磁性颗粒自发对称性破缺的磁化过程: 如果温度达到居里温度以上, 降温对应自发磁化可得到与之前不一样的磁性; 如果变温过程总在居里温度以下, 则相同温度对应的磁性也是相同的.

## 4.2 零场和强磁场下的自旋量子传感应用

本节讨论极限磁场下金刚石自旋量子传感应用, 以电子顺磁共振和核磁共振方面应用进展为例. 磁共振技术在物理、化学、生物等领域有着广泛的应用. 通过分析样品内部电子自旋或核自旋的共振频率, 可获得样品中自旋种类、数量、以及微观结构等信息. 相对于用线圈进行信号提取的传统磁共振方案, 基于金刚石 NV 中心的磁共振方案将待测样品和自旋探针间距离缩减至纳米尺度, 这极大地提升了磁共振信号提取的效率. 同时, 由于可

以直接利用样品自旋的统计极化 (statistical spin polarization), 基于金刚石自旋的磁共振方案在提升信号的同时显著降低了对外加磁场的需求 [43,44]. 在此背景下, 通过巧妙地控制外加磁场, 可以获得更加优异的磁共振信号: 在零场或微弱磁场下, 可以获得样品本征的磁信息; 在强磁场下, 可以实现磁共振信号信噪比的显著提升.

先介绍基于金刚石 NV 中心的零场电子顺磁共振. 电子顺磁共振的谱线宽度主要来自于集群自旋在外加磁场下的非均匀展宽, 如果能在零场下进行测试, 磁场不均匀带来的展宽就不存在了. 在这个方向上, Kong 等 [45] 提出用金刚石 NV 自旋在微波驱动下的缀饰态 (dress states) 来探测纳米尺度的电子顺磁共振信号, 实验获得了 NV 近邻 P1 center 的零场 (0.01 G) 磁共振信号以及核自旋耦合带来的超精细劈裂. 随后, 通过将关联探测方案引入 [46], 并选择对磁噪声不敏感的自旋共振能级为探测对象, Kong 等 [47] 进一步提升了基于金刚石 NV 自旋的电子顺磁共振谱线分辨率, 达到千赫兹量级, 如图 10(a) 所示. 更多金刚石 NV 中心零场探测方面研究进展见综述文献 [48].

强磁场下的应用以核磁共振方面进展为例. 在 3 T 强磁场下, Wrachtrup 研究团队 [49] 成功将基于金刚石 NV 的核磁共振谱分辨率提升至化学位移 (chemical shift) 量级, 如图 10(b) 所示. 需

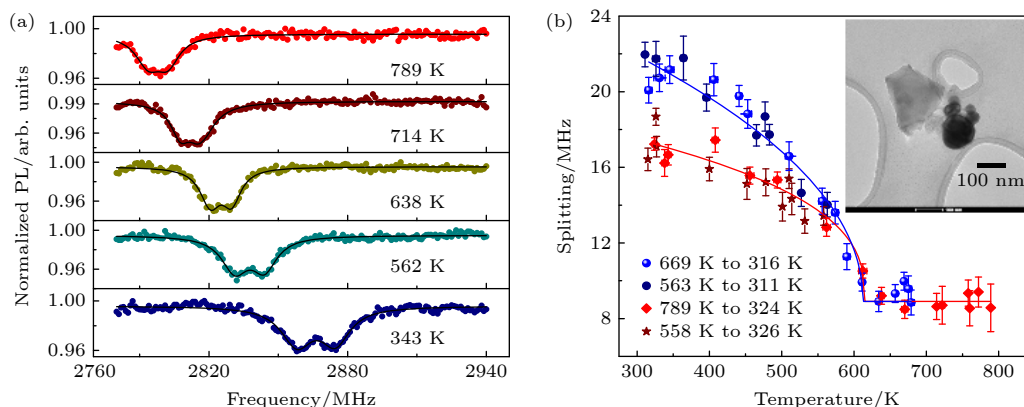


图9 高温下金刚石自旋量子传感应用<sup>[28]</sup> (a) 不同温度下单个镍纳米颗粒近邻金刚石中集群NV的光探磁共振谱线; (b) 单个纳米颗粒磁性相变过程, 其中插图为样品扫描电子显微镜图片

Fig. 9. Applications of diamond quantum sensing at high temperatures<sup>[28]</sup>: (a) ODMR spectra of a nano-diamond close to a nickel nanoparticle at different temperatures; (b) the magnetic phase transition of a single nickel nanoparticle, where the insert is SEM image of the sample.

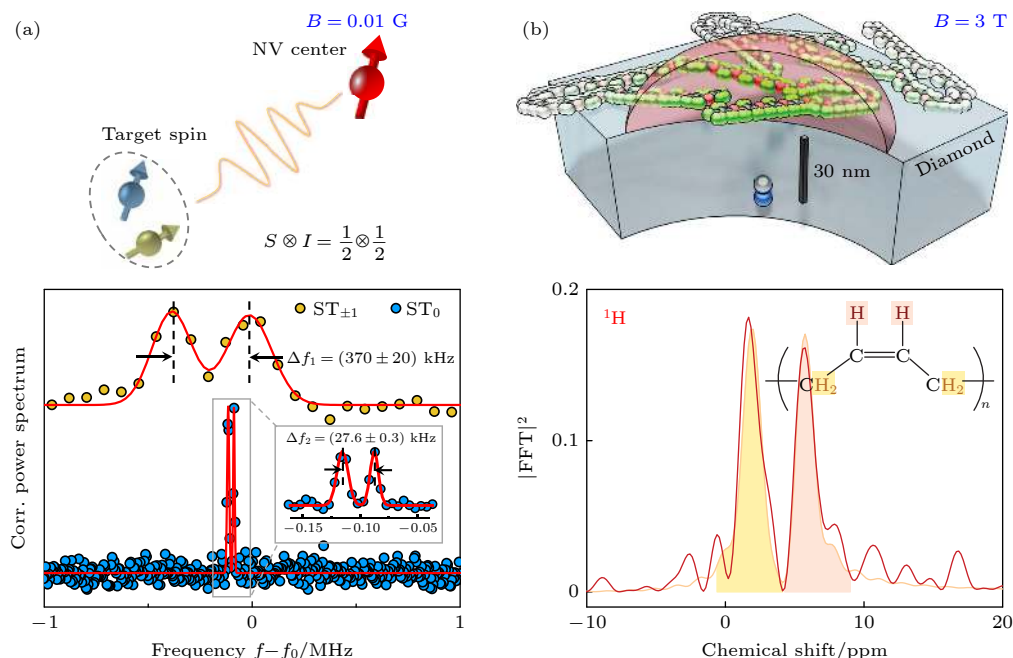


图10 极限磁场下的金刚石自旋量子传感应用 (a) 零场下 (0.01 G) 金刚石 NV 自旋辅助实现的 EPR 谱线<sup>[47]</sup>; (b) 强磁场 (3 T) 下 NV 自旋辅助实现的 NMR 谱线<sup>[49]</sup>

Fig. 10. Applications of diamond quantum sensing at zero and high magnetic fields: (a) Zero-field (0.01 G) EPR enabled by diamond NV center<sup>[47]</sup>; (b) NV-based NMR at 3 T<sup>[49]</sup>.

要注意的是, 这里的特斯拉级强磁场并不是为了提升核自旋的极化度, 而是为了加快核自旋的进动频率, 使得化学位移对应的频率差更容易分辨. 同时, 强磁场下 NV 中心内嵌的 N 核自旋寿命 ( $T_1$ ) 被显著延长, 达到 260 s, 这极大地拓展了自旋量子探针的探测时间窗口, 对应的频谱分辨率极限可达 1 mHz 量级. 在约 20 nm×20 nm×20 nm 的液态样品中, 他们实现了自旋扩散 (spin diffusion) 制约的核磁共振谱, 频谱极限分辨率达到 1 ppm (相

对于核自旋进动频率), 可明显区分  $^1\text{H}$  和  $^{19}\text{F}$  核自旋的化学位移. 在固态样品中, 通过解耦脉冲序列, 他们实现了 1.5 kHz 的谱分辨率. 这些结果显示, 金刚石 NV 自旋可在极其宽泛的磁场条件下实现灵敏的弱磁信号探测.

### 4.3 高压下的自旋量子传感应用

本节介绍高压极端条件下金刚石自旋量子传感研究进展. 在实现金刚石对顶砧内高压下 NV 自



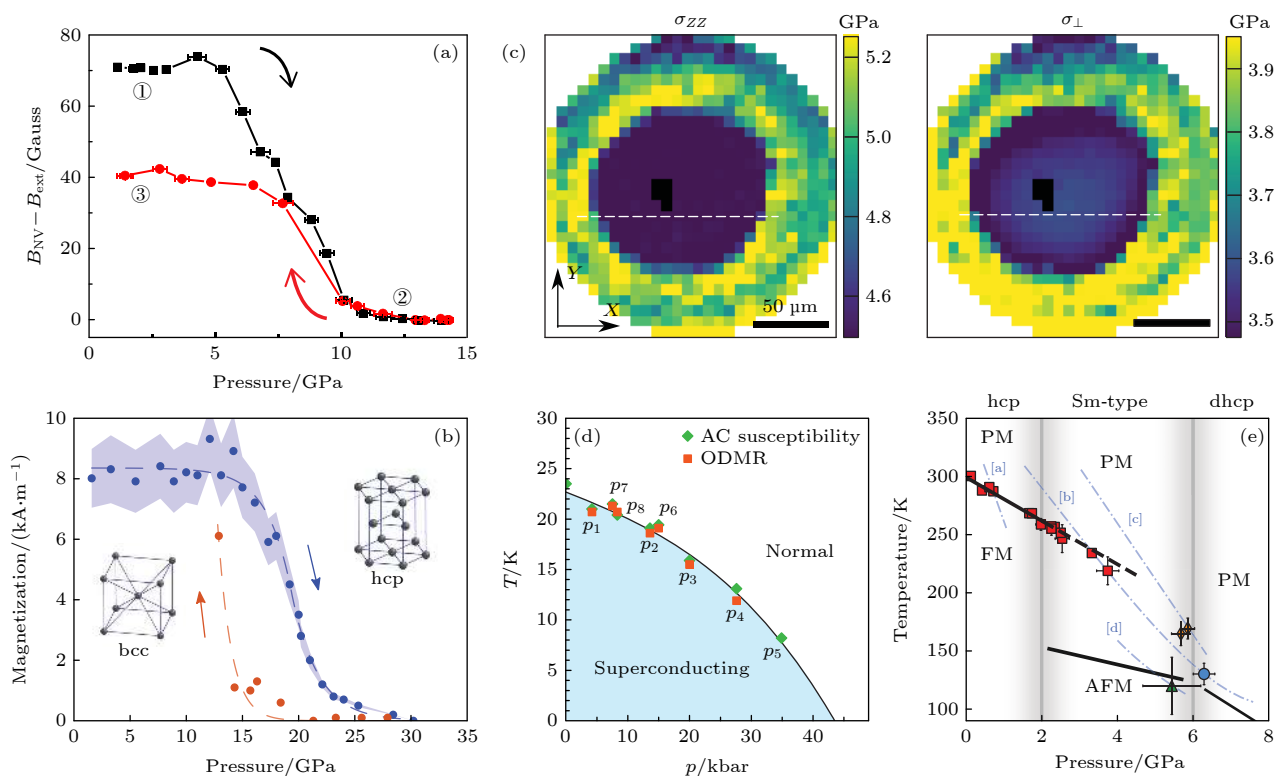


图 11 高压下金刚石自旋量子传感应用 (a) 钕铁硼 (NdFeB) [37] 和 (b) 单质铁 (Fe) 的压强驱动磁相变测量 [51,52]; (c) 高压腔内压强成像 [52]; (d) BaFe<sub>2</sub>(As<sub>0.59</sub>P<sub>0.41</sub>)<sub>2</sub> 超导相图 [53]; (e) 钆 (Gd) 磁性的压强-温度相图 [52]

Fig. 11. Applications of diamond quantum sensing under high pressures: (a), (b) The pressure induced magnetic phase transition of (a) NdFeB [37] and (b) Fe [51,52]; (c) pressure imaging inside diamond anvil cells [52]; (d), (e) the temperature-pressure phase diagram of (d) superconductor BaFe<sub>2</sub>(As<sub>0.59</sub>P<sub>0.41</sub>)<sub>2</sub> [53] and (e) Gd foil [52].

旋量子态调控之后, 最直接的应用是进行高压下微区磁性的原位测量. 2019 年, 本文作者与合作者实现了金刚石对顶砧内钕铁硼 (NdFeB) 微米颗粒磁相变过程的原位测量 [37]. 通过在待测磁性颗粒近邻位置放置包含集群 NV 中心的金刚石微米颗粒, 原位获得了高压腔内微米级样品的磁场信息, 测磁灵敏度为  $\mu\text{T}/\sqrt{\text{Hz}}$ . 通过逐渐增大压强, 可观测到 6 GPa 时原本处于铁磁态的钕铁硼样品磁性开始减弱 [50], 直到 10 GPa 时磁性完全消失, 如图 11(a) 所示. 同期还有两个研究团队测量了高压下微米尺度磁性颗粒的磁相变过程 [51,52], 如图 11(b) 所示, 他们测量的对象是微米尺度的铁单质颗粒, 在 15 GPa 附近观测到伴随着  $\alpha \leftrightarrow \epsilon$  的结构相变带来的磁性变化, 如图 11(b) 所示.

除了磁性, 金刚石 NV 中心还可用于压强的测量, 图 11(c) 展示了 Hsieh 等 [52] 用金刚石对顶砧砧面上集群 NV 中心实现的腔内压强分布的精细成像, 可见数 GPa 的压强下就存在明显的压力梯度, 这些结果对于高压实验的设计和结果分析都是至

关重要的. 进一步地, 结合温度这个基本热力学参数, 可实现更为丰富的测量, 如超导样品迈斯纳效应的原位测量, 以及磁性相变过程所对应的压强-温度相图测试等 [52,53], 如图 11(d) 和图 11(e) 所示. 这些结果说明金刚石自旋量子传感正在成为高压科学研究的得力工具.

## 5 结论和展望

本文介绍了低温、高温、零场、强场、高压等极端条件下金刚石氮空位中心的自旋和光学性质, 讨论了极端条件下实现金刚石自旋量子态相干操控和传感应用所需面对的科学和技术挑战, 并介绍了一些近期实验研究进展. 总的来说, 作为一种新兴的量子传感方案, 金刚石氮空位中心可以用于磁、力、热、电等基本物理参数的灵敏测量, 其核心优势是具备微纳米尺度的空间分辨率, 而且可在极其宽泛的磁场、温度、压强条件下工作.

量子传感与极端条件的结合可为凝聚态物理、材料科学、生命科学、地球科学等领域前沿研究带

来先进的物性测量方案,是极具潜力的前沿交叉生长点.同时,量子计算、量子网络等量子信息处理技术的快速发展将进一步带动量子传感的发展和应用.可以预见,未来会有更多重要和有趣的应用场景出现,例如极高压强下氢化物超导抗磁性的原位测量,经典噪声免疫的量子关联探测等<sup>[54]</sup>.从金刚石自旋量子传感自身的发展来看,提升探测灵敏度,拓展工作区间,发展其他参数的探测方案,以及适应更复杂的应用场景(如综合极端条件,液体环境)等方面,都需要更多更加深入的研究.值得一提的是,本文以金刚石氮空位中心为讨论对象,其中涉及的极端条件下自旋量子相干操控方法和结论对于其他固态色心,包括金刚石中硅-空位色心、锗-空位色心,以及碳化硅中双空位色心等,也有直接的参考意义.

## 参考文献

- [1] Norman M R 2011 *Science* **332** 196
- [2] Mathur N D, Grosche F M, Julian S R, Walker I R, Freye D M, Haselwimmer R K W, Lonzarich G G 1998 *Nature* **394** 39
- [3] Sachdev S, Keimer B 2011 *Phys. Today* **64** 29
- [4] Coleman P, Schofield A J 2005 *Nature* **433** 226
- [5] Hao N, Hu J 2019 *Natl. Sci. Rev.* **6** 213
- [6] Snider E, Dasenbrock-Gammon N, McBride R, Debessai M, Vindana H, Vencatasamy K, Lawler K V, Salamat A, Dias R P 2020 *Nature* **586** 373
- [7] Somayazulu M, Ahart M, Mishra A K, Geballe Z M, Baldini M, Meng Y, Struzhkin V V, Hemley R J 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 027001
- [8] Drozdov A P, Kong P P, Minkov V S, Besedin S P, Kuzovnikov M A, Mozaffari S, Balicas L, Balakirev F F, Graf D E, Prakapenka V B, Greenberg E, Knyazev D A, Tkacz M, Eremets M I 2019 *Nature* **569** 528
- [9] Rondin L, Tetienne J P, Hingant T, Roch J F, Maletinsky P, Jacques V 2014 *Reports Prog. Phys.* **77** 056503
- [10] Schirhagl R, Chang K, Loretz M, Degen C L 2014 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **65** 83
- [11] Degen C L, Reinhard F, Cappellaro P 2017 *Quantum sensing Rev. Mod. Phys.* **89** 035002
- [12] Casola F, Van Der Sar T, Yacoby A 2018 *Nat. Rev. Mater.* **3** 17088
- [13] Arute F, Arya K, Babbush R, et al. 2019 *Nature* **574** 505
- [14] Zhao N, Hu J L, Ho S W, Wan J T K, Liu R B 2011 *Nat. Nanotechnol.* **6** 242
- [15] Balasubramanian G, Chan I Y, Kolesov R, Al-Hmoud M, Tisler J, Shin C, Kim C, Wojcik A, Hemmer P R, Krueger A, others 2008 *Nature* **455** 648
- [16] Acosta V M, Bauch E, Ledbetter M P, Waxman A, Bouchard L S, Budker D 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 070801
- [17] Doherty M W, Struzhkin V V, Simpson D A, McGuinness L P, Meng Y, Stacey A, Karle T J, Hemley R J, Manson N B, Hollenberg Lloyd C L, Prawer S 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 047601
- [18] Van Oort E, Glasbeek M 1990 *Chem. Phys. Lett.* **168** 529
- [19] Dolde F, Fedder H, Doherty M W, Nöbauer T, Rempp F, Balasubramanian G, Wolf T, Reinhard F, Hollenberg L C L, Jelezko F, Wrachtrup J 2011 *Nat. Phys.* **7** 459
- [20] Gruber A, Drabenstedt A, Tietz C, Fleury L, Wrachtrup J, Borczyskowski C von 1997 *Science* **276** 2012
- [21] Steinert S, Ziem F, Hall L T, Zappe A, Schweikert M, Götz N, Aird A, Balasubramanian G, Hollenberg L, Wrachtrup J 2013 *Nat. Commun.* **4** 1607
- [22] Robledo L, Childress L, Bernien H, Hensen B, Alkemade P F A, Hanson R 2011 *Nature* **477** 574
- [23] Jarmola A, Acosta V M, Jensen K, Chemerisov S, Budker D 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 197601
- [24] Abobeih M H, Cramer J, Bakker M A, Kalb N, Markham M, Twitchen D J, Taminiiau T H 2018 *Nat. Commun.* **9** 1
- [25] Astner T, Gugler J, Angerer A, Wald S, Putz S, Mauser N J, Trupke M, Sumiya H, Onoda S, Isoya J, Schmiedmayer J, Mohn P, Majer J 2018 *Nat. Mater.* **17** 313
- [26] Zhu X, Saito S, Kemp A, Kakuyanagi K, Karimoto S, Nakano H, Munro W J, Tokura Y, Everitt M S, Nemoto K, Kasu M, Mizuochi N, Semba K 2011 *Nature* **478** 221
- [27] 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
- [28] Liu G Q, Feng X, Wang N, Li Q, Liu R B 2019 *Nat. Commun.* **10** 1344
- [29] Zheng H, Xu J, Iwata G Z, Lenz T, Michl J, Yavkin B, Nakamura K, Sumiya H, Ohshima T, Isoya J, Wrachtrup J, Wickenbrock A, Budker D 2019 *Phys. Rev. Appl.* **11** 064068
- [30] Vetter P J, Marshall A, Genov G T, Weiss T F, Striegler N, Großmann E F, Casado S O, Cerrillo J, Prior J, Neumann P, Jelezko F 2021 *arXiv: 2107.10537[quant-ph]*
- [31] Wang N, Liu C F, Fan J W, Feng X, Leong W H, Finkler A, Denisenko A, Wrachtrup J, Li Q, Liu R B 2022 *Phys. Rev. Res.* **4** 013098
- [32] Epstein R J, Mendoza F M, Kato Y K, Awschalom D D 2005 *Nat. Phys.* **1** 94
- [33] Aslam N, Pfender M, Stöhr R, Neumann P, Scheffler M, Sumiya H, Abe H, Onoda S, Ohshima T, Isoya J, Wrachtrup J 2015 *Rev. Sci. Instrum.* **86** 064704
- [34] Fortman B, Mugica-Sanchez L, Tischler N, Selco C, Hang Y, Holczer K, Takahashi S 2021 *J. Appl. Phys.* **130** 083901
- [35] Jayaraman A 1983 *Rev. Mod. Phys.* **55** 65
- [36] Lyapin S G, Ilchev I D, Novikov A P, Davydov V A, Agafonov V N 2018 *Nanosyst. Physics, Chem. Math.* **9** 55
- [37] Shang Y X, Hong F, Dai J H, Yu Hui, Lu Y N, Liu E K, Yu X H, Liu G Q, Pan X Y 2019 *Chin. Phys. Lett.* **36** 086201
- [38] Steele L G, Lawson M, Onyszcak M, Bush B T, Mei Z, Diognardi A P, King J, Parker A, Pines A, Weir S T, Evans W, Visbeck K, Vohra Y K, Curro N J 2017 *Appl. Phys. Lett.* **111** 221903
- [39] Shang Y X, Hong F, Dai J H, Lu Y N, Yu H, Yu Y H, Yu X H, Pan X Y, Liu G Q 2022 *arXiv:2203.10511[quant-ph]*
- [40] Thiel L, Wang Z, Tschudin M A, Rohner D, Gutiérrez-Lezama I, Ubrig N, Gibertini M, Giannini E, Morpurgo A F, Maletinsky P 2019 *Science* **364** 973
- [41] Marchiori E, Ceccarelli L, Rossi N, Lorenzelli L, Degen C L, Poggio M 2021 *Nat. Rev. Phys.* **4** 49
- [42] Thiel L, Rohner D, Ganzhorn M, Appel P, Neu E, Müller B, Kleiner R, Koelle D, Maletinsky P 2016 *Nat. Nanotechnol.* **11** 677
- [43] Mamin H J, Kim M, Sherwood M H, Rettner C T, Ohno K, Awschalom D D, Rugar D 2013 *Science* **339** 557
- [44] Staudacher T, Shi F, Pezzagna S, Meijer J, Du J, Meriles C A, Reinhard F, Wrachtrup J 2013 *Science* **339** 561

- [45] Kong F, Zhao P, Ye X, Wang Z, Qin Z, Yu P, Su J, Shi F, Du J 2018 *Nat. Commun.* **9** 1563
- [46] Laraoui A, Dolde F, Burk C, Reinhard F, Wrachtrup J, Meriles C A 2013 *Nat. Commun.* **4** 1
- [47] Kong F, Zhao P, Yu P, Qin Z, Huang Z, Wang Z, Wang M, Shi F, Du J 2020 *Sci. Adv.* **6** 8244
- [48] Zhao P J, Kong F, Li R, Shi F Z, Du J F 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 213301 (in Chinese) [赵鹏举, 孔飞, 李瑞, 石发展, 杜江峰 2021 物理学报 **70** 213301]
- [49] Aslam N, Pfender M, Neumann P, Reuter R, Zappe A, Oliveira F F de, Denisenko A, Sumiya H, Onoda S, Isoya J, Wrachtrup J 2017 *Science* **357** 67
- [50] Kamarád J, Arnold Z, Schneider J 1987 *J. Magn. Magn. Mater.* **67** 29
- [51] Lesik M, Plisson T, Toraille L, Renaud J, Occelli F, Schmidt M, Salord O, Delobbe A, Debuisschert T, Rondin L, Loubeyre P, Roch J F 2019 *Science* **366** 1359
- [52] Hsieh S, Bhattacharyya P, Zu C, Mittiga T, Smart T J, MacHado F, Kobrin B, Höhn T O, Rui N Z, Kamrani M, Chatterjee S, Choi S, Zaletel M, Struzhkin V V, Moore J E, Levitas V I, Jeanloz R, Yao N Y 2019 *Science* **366** 1349
- [53] Yip K Y, Ho K O, Yu K Y, Chen Y, Zhang W, Kasahara S, Mizukami Y, Shibauchi T, Matsuda Y, Goh S K, Yang S 2019 *Science* **366** 1355
- [54] Wang P, Chen C, Liu R B, Wang P, Chen C, Liu R B 2021 *Chin. Phys. Lett.* **38** 010301

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

Diamond spin quantum sensing under extreme conditions<sup>\*</sup>Liu Gang-Qin<sup>1)2)3)†</sup>

1) (*Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

2) (*CAS Center of Excellence in Topological Quantum Computation, Beijing 100190, China*)

3) (*Songshan Lake Materials Laboratory, Dongguan 523808, China*)

( Received 8 November 2021; revised manuscript received 4 March 2022 )

## Abstract

Extreme conditions, such as ultra-low temperatures, high pressures, and strong magnetic fields, are critical to producing and studying exotic states of matter. To measure physical properties under extreme conditions, the advanced sensing schemes are required. As a promising quantum sensor, the diamond nitrogen-vacancy (NV) center can detect magnetic field, electronic field, pressure, and temperature with high sensitivity. Considering its nanoscale spatial resolution and ultra-wide working range, the diamond quantum sensing can play an important role in frontier studies involving extreme conditions. This paper reviews the spin and optical properties of diamond NV center under extreme conditions, including low temperature, high temperature, zero field, strong magnetic fields, and high pressures. The opportunities and challenges of diamond quantum sensing under extreme conditions are discussed. The basic knowledge of spin-based quantum sensing and its applications under extreme conditions are also covered.

**Keywords:** quantum sensing, nitrogen-vacancy center, extreme conditions, magnetic phase transition

**PACS:** 61.72.jn, 03.67.-a, 76.70.Hb, 07.05.Fb

**DOI:** 10.7498/aps.71.20212072

<sup>\*</sup> Project supported by the Natural Science Foundation of Beijing, China (Grant No. Z2000009), Chinese Academy of Sciences (Grant Nos. YJKYYQ20190082, XDB28030000), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11974020, 12022509, 11934018, T2121001), and the National Key Research and Development Program of China (Grants No. 2019YFA 0308100).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [gqliu@iphy.ac.cn](mailto:gqliu@iphy.ac.cn)