arXiv:2305.06269v1 [quant-ph] 10 May 2023

利用金刚石中的氮-空位中心系综进行高灵敏度交流和直流磁力测量

John F. Barry[1], * Matthew H. Steinecker, [1] Scott T. Alsid, [1,2] Jonah Majumder, [1] Linh M. Pham, [1] Michael F. O'Keefe, [1] 和 Danielle A. Braje[1]
[1] *Lincoln Laboratory, Massachusetts Institute of Technology, Lexington, Massachusetts 02421, USA*
[2] *Department of Nuclear Science and Engineering, Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, Massachusetts 02139, USA*（日期：2023年5月10日）

固态自旋量子传感有望在实现高空间分辨率、宽带宽和大动态范围的同时，达到与原子蒸气室和超导器件等更成熟的量子传感技术相当的灵敏度。然而，尽管理论灵敏度极限相当，体固态量子传感器的性能迄今仍落后于这些更成熟的替代方案。近期一篇综述 [1] 提出了几种提升金刚石中氮-空位缺陷磁力计性能的途径；金刚石是研究最深入的固态量子传感平台。通过实施其中几种技术，我们展示了迄今报道的灵敏度最高的基于氮-空位中心的体磁力计。我们的方法结合了定制金刚石生长以实现低应变和较长的本征退相干时间；分别采用双量子拉姆齐和哈恩回波磁力测量序列进行宽带和窄带磁力测量；并通过 P1 驱动进一步延长退相干时间。值得注意的是，该器件未包含磁通集中器，从而保留了氮空位中心对磁场的固定响应。该磁力计实现了宽带 近直流灵敏度 ~ 460 飞特·秒$^{1/2}$ 以及窄带交流灵敏度 ~ 210 飞特·秒$^{1/2}$。我们详细介绍了实验装置，并指出了未来进一步改进的潜在途径。

目录

I. 引言 3

II. 进展概述 3
A. 金刚石 1. 用于实现低应变和高 T_2^* 的定制金刚石生长 2. 传感器构造中的热学、力学和电磁考量 B. 光学 1. 光捕获金刚石波导 2. 全内反射和介质反射器光收集 3. 积分平衡光电探测器 C. 偏置磁场 D. 微波 1. 介质谐振器和微波传输 E. 双量子磁力测量 F. P_1驱动 G. 脉冲序列与噪声降低 1. 共振驱动与相位调制 2. 噪声扣除方案 4 4 4 6 6 6 7 8 8

III. 实验结果 8
A. 实验概述 B. 脉冲序列 9 9
C. 脉冲光探测磁共振 9
D. T_2^* 扩展 E. T_2 扩展 10 10 11 12 12 13

IV. 磁测演示 13
A. 拉姆齐磁力测量 B. 哈恩回波磁力测量 14 15

V. 讨论与展望 15
A. 遇到的障碍 B. 改进前景 C. 扩展至其他传感方案 15 16 16

VI. 致谢 16

参考文献："在金刚石中利用氮-空位中心系综进行高灵敏度交流和直流磁力测量"的补充材料 17 19

VII. 光学与机械设计 19
A. 激光器、声光调制器、光纤耦合及向金刚石传输光线 B. 金刚石的其他细节 C. 金刚石安装用黏合剂的选择 D. 光捕获金刚石波导的细节 E. 光收集细节 F. 平衡电路的其他细节 1. 平衡电路的电气设计考量 19 22 22 22 22 24 25

VIII. 偏置磁场 A. 偏置磁场设计、构造和对准的更多细节 26 26

* 通讯作者。
john.barry@ll.mit.edu

B. 偏置磁场梯度27

IX. 微波 27
A. 关于微波传输和介质谐振器的补充细节
B. 双量子微波脉冲优化C. 数字移相器 27

29
30

X. P1 驱动 30
A. P1 共振频率计算 B. P1 线圈设计与 30
实现 C. P1 驱动传输 D. T_2^* 和 T_2 扩 30
展详情 32
32

XI. 磁力测量 34
A. 读出保真度优化 B. 测试场校准 34
34

XII. 灵敏度测量 36
A. 一般考量 B. 拉姆齐磁力测量灵敏度 36
测量 C. 哈恩回波灵敏度测量
37
38

XIII. 灵敏度理论极限 38
A. 散粒噪声、参考噪声、数字化器噪声 38B.
Ramsey 理论灵敏度 39C. Hahn 回波理论灵敏度
39D. 关于所遇障碍的更多细节 40

I. 引言

近年来，利用固态自旋缺陷系统进行量子传感已越来越受到关注，被视为现有原子气体和超导量子传感器的替代方案。固态自旋缺陷系统有望实现与原子和超导传感器相媲美的灵敏度，同时还具备重要的额外能力，包括由刚性晶格提供的固定传感轴、与多种环境兼容，以及高空间分辨率、高带宽和大动态范围。

目前用于量子传感研究最多的固态自旋缺陷系统，是金刚石中的带负电氮空位（NV^-）缺陷，主要用于磁力测量。金刚石中的 NV^- 中心相比大多数其他固态缺陷，具有极长的相干时间；但由于荧光收集效率通常较低，且自旋态依赖的荧光对比度本身较低，对系统自旋态进行高保真光学读出仍面临挑战。此外，尽管理论上金 [2]，刚石可实现较长的相干时间，但在实际应用中，宽带低频（$\lesssim$ 10 kHz）磁力测量的退相干时间受限于更短的时间尺度，这是由周围环境中的 ^{13}C 和替位氮（亦称 P1 中心）造成的应变及偶极展宽所致。

近期一篇综述 [1] 指出了若干有望提升体块 NV 金刚石磁力计灵敏度的方法。过去十年中，其中若干改进已分别得到应用，包括使用高 ^{12}C 纯度金刚石 [2]，双量子磁力测量以消除共模退相干源 [3–7]，驱动自旋浴以减弱 P1 引起的退相干 [7–9]，采用相位调制噪声扣除方案以消除拉姆齐序列中的低频噪声 [10, 11]，以及采用光捕获金刚石波导几何结构以提高激发效率 [12]。此外也有其他进展，例如使用介质谐振器来提升微波强度和均匀性 [13, 14]。然而，迄今为止，这些改进尚未全部成功结合；已报道的最佳灵敏度依赖于磁通集中器 [15] 或微波腔读出 [16]，等专门技术，分别实现了 0.9 pT·s$^{1/2}$ 和 3 pT·s$^{1/2}$ 的灵敏度。对于不使用磁通集中器的常规读出，利用氮空位中心系综进行的窄带交流磁力测量和宽带直流敏感磁力测量，其灵敏度均仅接近 10 pT·s$^{1/2}$ [10, 17–19]。

在此，我们报告了一种 NV 系综磁力计，在不使用磁通聚集器的情况下，其宽带和窄带传感灵敏度均达到迄今报道的最佳水平。该器件结合了上述技术进展与其他创新改进，包括低梯度磁偏置场设计、接近 100% 收集效率的光学系统、用于最大限度降低激光强度噪声的平衡光电探测，以及定制的非金属 mechanical 支撑结构，以避免交流磁场衰减。综合这些改进，所研制的磁力计使用拉姆齐序列实现了 $\sim$ 460 fT·s$^{1/2}$ 宽带灵敏度，并使用哈恩回波序列实现了 $\sim$ 210 fT·s$^{1/2}$ 窄带交流灵敏度。该器件未采用磁通集中器，因此保留了 NV^- 中心对磁场的已知响应特性。

本文组织如下：第II 节介绍典型 NV 磁力计实验装置各个方面的系统改进，尤其是金刚石、荧光收集光学系统、偏置磁场、微波传输和脉冲序列。第III 节详细介绍完整的实验装置，并讨论拉姆齐和哈恩回波磁力测量中的退相干时间 T_2^*、退相干时间 T_2以及磁场灵敏度。第IV节报告将该器件用作磁力计所获得的结果。最后，第V节讨论未来前景和后续步骤。实验装置各组成部分、测量以及灵敏度计算的更多细节见补充材料。

II. 进展概述

采用拉姆齐干涉法的 NV^- 宽带系综磁力计的理论灵敏度极限为 [1]

$$\eta_{\mathrm{Ram}}^{\mathrm{ens}} \approx \underbrace{\frac{\hbar}{\Delta m_s g_e \mu_B}\frac{1}{\sqrt{N\tau}}}_{\text{Spin projection limit}} \underbrace{\frac{1}{e^{-(\tau/T_2^*)^p}}}_{\text{Spin dephasing}} \underbrace{\sqrt{1+\frac{1}{C^2 n_{\mathrm{avg}}}}}_{\text{Readout}} \times \underbrace{\sqrt{\frac{t_{\mathrm{I}}+\tau+t_{\mathrm{R}}+t_{\mathrm{D}}}{\tau}}}_{\text{Overhead time}} \tag{1}$$

其中，$\hbar$ 表示约化普朗克常数，Δm_s 表示干涉态之间自旋量子数的差值，$g_e \approx 2$ 表示 NV^- 中心的电子 g 因子 [20]，μ_B 表示玻尔磁子，N 表示参与测量的 NV^- 中心数量，τ 表示每次测量的自由进动时间，T_2^* 表示退相干时间，p 表示拉伸指数参数 [7]，C 表示测量对比度 [21]，n_{avg} 表示每次测量中每个 NV^- 中心收集到的平均光子数，t_{I} 表示初始化时间，t_{R} 表示 NV^- 系综荧光读出时间，t_{D} 表示测量序列中的任何额外死时间。公式 1 对单一 NV 类别的情况进行了隐含处理，并假设磁场平行于 NV 轴；对于实际的 NV 系综测量，需要进行数量级为 1 的几何修正，以考虑轴向未与磁场对齐的 NVs 的响应减弱；见补充材料第 XIII 节 B。我们注意到，哈恩回波方案中的灵敏度函数形式相似，只是以退相干时间 T_2 替代退相干时间 [1]。

因子 $\sigma_R = \sqrt{1+1/[C^2 n_{\mathrm{avg}}]}$ 在公式 1 量化了由于

对比度和光子散粒噪声的限制，NV 自旋读出并不完美，因此 $\sigma_R = 1$ 对应于自旋投影极限读出 [22]。通常σ_R 用读出保真度表示 $\mathcal{F}$，其中$\sigma_R = 1/\mathcal{F}$。在 $C^2 n_{\mathrm{avg}} \ll 1$ 的极限下，读出保真度 $\mathcal{F}$可用 $\mathcal{F} \approx C\sqrt{n_{\mathrm{avg}}}$近似表示。

方程 1 表明，对于受散粒噪声限制的器件，要优化灵敏度，就必须最大化退相干时间、测量对比度、参与探测的自旋数量，以及每个 NV 中心每次测量检测到的平均光子数- 。在实践中，后两个量通常难以独立测量，因此我们将每次测量检测到的光子总数 $\mathcal{N} \equiv N n_{\mathrm{avg}}$ 定义为一种可通过实验获取的替代指标，并以此进行优化。随后，利用上述读出保真度近似，对于拉姆齐方案，受散粒噪声限制的灵敏度方程可表示为

$$\eta_{\mathrm{Ram}}^{\mathrm{ens,sho}} \approx \frac{\hbar}{\Delta m_s g_e \mu_B} \frac{1}{C e^{-(\tau/T_2^*)^p} \sqrt{\mathcal{N}}} \frac{\sqrt{t_{\mathrm{I}} + \tau + t_{\mathrm{R}} + t_{\mathrm{D}}}}{\tau}. \quad (2)$$

虽然有多种技术可以优化上述相互关联的各项参数，但本研究采用的总体策略遵循参考文献 [1], ，该文献指出，在构建高灵敏度宽带NV磁力计时，延长退相干时间应当是核心关注点。然而，在延长退相干时间的同时，还必须对采用传统光学读出的NV磁力计的各个组成部分进行系统性优化，以提升其性能：金刚石衬底及其安装方式、NV荧光收集光学系统、静态偏置场、微波传输系统以及磁力测量脉冲序列。本节其余部分将概述这些设计决策，包括对若干已得到验证的改进方案进行整合，以及引入新颖且非标准的技术。主要设计选择和改进成果总结于表 I。

A. 金刚石

1. *Tailored diamond growth for low strain and high T_2^**

对于 NV-金刚石磁力计，系综自旋的特性决定了器件灵敏度的基本极限。如果磁力计采用拉姆齐型询问和传统光学读出，优化后器件的灵敏度取决于被询问的 NV- 缺陷数量 N、退相干时间 T_2^*以及读出保真度 $\mathcal{F}$，详见公式1。这三个参数都受金刚石特性的影响，应尽可能提高。

为了优化磁力测量性能，采用化学气相沉积（CVD）技术在内部生长金刚石。本研究所采用的金刚石由一层厚度为 70-μm 的 ^{15}N 掺杂层构成，该层生长在 IIa 型金刚石衬底上。由于在 CVD 生长过程中，衬底应变往往会向上传播 [26], 因此仅使用低应变衬底 [27, 28]。选择氮同位素 ^{15}N 而非 ^{14}N，以减少所需的微波频率数量。CVD 生长完成后，通过激光切割去除金刚石两侧各约 1 mm 的部分，因为研究发现这些区域的应变高于内部区域。估计所得掺杂层中含有数量级为 3×10^{11} NV- 缺陷。有关金刚石的更多细节，请参见补充材料第 VIIB 节。

退相干时间 T_2^* 可能受金刚石中每个 NV- 中心附近的核自旋或电子自旋限制。为减轻 ^{13}C造成的偶极展宽，使用同位素纯度为99.999%的 ^{12}C甲烷生长 ^{15}N掺杂层。对同批次样品的二次离子质谱分析发现，该层的碳同位素纯度为99.998%的 ^{12}C，与文献 [29, 30]中的结果相近。根据文献 [1], 中的估算，估计金刚石中 ^{13}C导致的退相干时间对于双量子（双量子）方案为$T_{2,\mathrm{DQ}}^*\{^{13}\mathrm{C}\} = 250$ μs。在双量子方案中，我们测得$T_{2,\mathrm{DQ}}^* = 14$ μs和$T_{2,\mathrm{DQ}} = 136$，根据文献 [1, 31]提供的标度关系，这对应于 $[^{15}\mathrm{N}] = 0.4 \pm 0.2$ ppm。

2. *Thermal, mechanical, and electromagnetic considerations in sensor construction*

将金刚石安装用于磁力计时，机械结构必须兼顾三项主要设计目标：高热导率，以免金刚石温度升高导致对比度降低；稳定的机械安装，以限制振动引起的噪声；以及尽量少使用导电材料，避免交流磁场受到不必要的衰减。

温度随时间变化或过高都可能对基于 NV 的磁力计造成问题。首先，当金刚石温度高于 ~ 300 K 时，测量对比度 C [21] 会下降， [23], 从而降低器件灵敏度。其次，NV- 中心的零场劈裂$D \sim 2.87$ GHz 会以 $\approx$ -74 kHz/K 的速率移动。 [32–34]因此，不必要的温度变化可能使施加的微波偏离预期的塞曼共振，从而再次降低灵敏度。

金刚石的主要热负载来自光学激发、微波脉冲和 P1 驱动，后两项热量主要源于金刚石周围环境的升温。我们注意到，施加于金刚石的时间平均光功率最高可达 4 W；若不采取散热措施，足以使金刚石显著升温。此外，要将金刚石维持在恒定温度并非易事。例如，本工作中使用的各种脉冲序列（光学、微波和 P1 驱动占空比各不相同）会产生不同的热负载。此外，细微的变化

表 I. 提高 NV^- 系综灵敏度的已实施技术概述

子系统	方法	参数优化的	方法描述
金刚石	• ^{15}NV 同位素 • ^{12}C 同位素纯度 • 低应变生长	C T_2^* T_2^*	• 减少所需的微波音调数量，并降低不必要的串扰。 • 99.998% ^{12}C 同位素纯度可减弱与 ^{13}C 原子核的偶极耦合 [2]。 • 在低应变衬底上生长，可实现低应变的 ^{15}NV 层；生长后去除发生应变的边缘。
	• 热稳定性	T_2^*, C, 稳定性	• 4H 碳化硅兼作金刚石的散热器和热扩散器，防止温度过高及由此导致的对比度损失 [23]。
光学	• 光捕获金刚石波导 • 全内反射透镜 & 反射器 • 平衡电路	$\mathcal{N}$，激光功率 $\mathcal{N}$ 激光噪声	• 固定的 532 纳米光在金刚石内部全内反射，直到 ab-被吸收，从而充分利用固定的激光功率 [12]。 • 全内反射（TIR）透镜与介质反射器的组合可将几乎所有从金刚石射出的光传送至光电二极管。 • 平衡电路将宽带激光强度引起的噪声降至荧光光电流散粒噪声的 5%。
Bias 磁场	• [100]场 • 环形几何结构	T_2^*, C T_2^*	•沿 [100] 轴的静态场在四种 NV 类别上的投影相等，因此可以。所有氮空位中心都对磁测信号有所贡献。 • 大型、远距离放置的圆形磁体阵列可产生均匀磁场，从而降低非均匀性。非均匀展宽。
微波	• 介电质谐振器 • 高斯脉冲	微波功率 and 均匀性 C	• 与宽带替代方案相比，所需的微波功率更低，并且提高了氮空位中心系综体积内的微波均匀性。 • 高斯包络微波脉冲可减轻串扰 [24, 25]。
脉冲序列 & 噪声减法	• 双量子 • P1 驱动 • 噪声抵消方案 • 数字相位调制	T_2^*，噪声 T_2^* 噪声 C，噪声	• 减轻纵向应变和温度引起的退相干效应。共振频移，同时使有效旋磁比加倍 [4, 10]。 • 抑制替位氮引起的退相干 [7–9]。 • 测量序列中最后一个微波脉冲的相移可分离磁信号与噪声的区分 [11] • 避免了变容二极管或PIN二极管移相器通常引入的噪声同时可实现噪声抵消并观察条纹用于共振激发。

传输至金刚石的光功率发生变化，可能导致金刚石温度显著变化。为确保光学热负荷保持稳定而采取的进一步措施，详见补充材料第VIIA节。

为应对上述热学挑战，将金刚石粘接在一块直径为 50.8 mm、厚度为 330-μm 的半绝缘 4H碳化硅晶圆上，该晶圆兼具散热器和热扩散器的作用。垂直于晶圆表面和平行于晶圆表面方向的热导率分别约为 490 W/(m·K) 和 390 W/(m·K) [35, 36]。此外，4H碳化硅具有高刚度（杨氏模量约为 500 GPa [37]），在 2.87 GHz 下的损耗角正切值为 $\lesssim 10^{-4}$，并且 [38], 易于商业购得，且兼容介电质涂层的沉积。高刚度的安装结构有助于避免低频机械共振，以免引发金刚石因振动而发生位移。低损耗角正切值可确保碳化硅晶圆吸收的微波能量极少。碳化硅的光学透明性便于故障排查和对准；即使涂覆了反射性介电质涂层，在蓝色可见光区域仍能保持一定程度的透明度（见第IIB2节）。此外，激光- 和 NV 荧光强度足够高，即使经过介电质涂层衰减，仍可观察到。

金刚石的杨氏模量约为 1150 GPa，因此是一种极其坚硬的材料。 [39], 然而，人们发现，将金刚石粘附到碳化硅晶圆上的胶黏剂会产生机械力，对金刚石施加足够的应力，使塞曼共振线宽增大至原来的两倍或更多。使用氰基丙烯酸酯、5 分钟环氧胶和聚氨酯粘附金刚石时，均观察到这种由胶黏剂引起的共振展宽；而使用聚二甲基硅氧烷（PDMS）时则没有。因此，本研究所示的所有数据均采用后一种胶黏剂。有关胶黏剂选择的更多信息，请参见补充材料第VIIC 节。

该传感器的主要用途之一是测量千赫兹频段的交流磁场。由于导电材料会衰减此类频率的磁场 [40], ，因此传感器尽可能采用非金属材料。碳化硅晶圆的机械支撑结构由一种 3D 打印的陶瓷填充塑料（Somos PerFORM）制成，并通过一根直径为 25.4 mm 的玻璃纤维填充 PEEK 杆固定在支撑光学平台上。这两种材料的热膨胀系数都很低，而且与标准塑料相比，其刚度极高。如补充材料第 VIID 节所述，该安装结构还可使碳化硅晶圆和金刚石一起旋转。第 IIB 节详细介绍了用于收集 NV 荧光的光导管；它由尼龙柔性支架支撑，而第 II D1 节所述的介质谐振器则由一根外径为 1 英寸的氧化铝管固定。四根较长的石英杆分别连接金刚石、光导管、光电二极管和介质谐振器的支架，使这些组件与金刚石保持刚性对齐，同时需要时也可轻松地将其移离金刚石。补充材料中提供了传感器头的示意图；参见补充材料图 10。

最后，除了避免使用导电材料外，还需确保传感器头其余部分仅采用非磁性材料。因此，几乎所有螺钉均由尼龙或黄铜制成，而传感器头组件主要采用 3D 打印的陶瓷填充塑料（Somos PerFORM）、玻璃纤维填充 PEEK、石英、氧化铝、碳化硅及其他各种塑料制造。传感器头安装在铝制光学平台上，与传感器头之间隔开 $\sim$100 mm。

B. 光学

1. *Light-trapping diamond waveguide*

为尽可能高效地利用现有的 532 纳米激发光，传感器采用光捕获金刚石波导技术 [12], ，使激发光在金刚石内部全内反射，直至被完全吸收。为实现这一效果，将原本为正方体的金刚石的一角切削成斜面，使其与相邻两侧面呈 45 度角，从而形成一个额外表面，532纳米激光可通过该表面聚焦进入金刚石。通过入射面适当对准后，光便会因全内反射而被限制在金刚石内部，在四个垂直侧面之间多次反射（也可能在顶面和底面之间反射）。虽然所有光路最终都会从金刚石中逸出，但实际上可以找到一些光路，使几乎所有激发光都被金刚石吸收。因此，与传统的单程方法相比，光捕获金刚石波导技术能更充分地利用固定的可用激光功率；对于 NV 浓度足够低、单次通过时呈光学薄态的金刚石，这种技术尤其有用。补充材料第VIID 节提供了有关光捕获金刚石波导技术的更多详情。

2. *TIR and dielectric reflector light collection*

对于 NV中心的传统光学读出 [1],在低对比度极限下 C，读出保真度 $\mathcal{F}$与每次测量中每个NV收集到的平均光子数的平方根成正比- 。也就是说， $\mathcal{F} \propto \sqrt{\mathcal{N}/N} = \sqrt{n_{\mathrm{avg}}}$; 参见公式2。在此工作区间内，可以通过提高几何收集效率来增强灵敏度 η_{geo}，其定义为 $\mathcal{N}/\mathcal{N}_{\mathrm{max}}$，其中 $\mathcal{N}$ 和$\mathcal{N}_{\mathrm{max}}$ 分别表示单次测量中从NV-系综收集到的光子数和该系综发射的光子数 [1]。

多种方法已证明，对于立方毫米级NV系综体积，可以获得较高的η_{geo} （即 $\eta_{\mathrm{geo}} \gtrsim 0.1$） [1, 17, 18, 41, 42]。我们采用了一种如图所示的方案

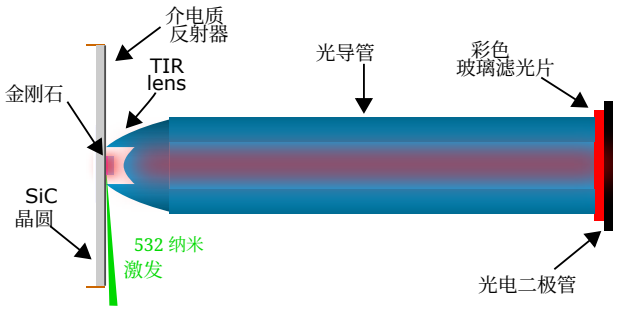

图1. 本研究中采用的荧光收集光学系统的横截面。金刚石中的紫粉色区域表示 NV 掺杂部分。532 纳米激光在进入金刚石之前，先穿过全内反射透镜上的一个小型三角形缺口（图中未显示）。

图 1中所示，该方案能够收集金刚石发出的近乎全部荧光，并且其 η_{geo} 高于现有方案。该方法引入了两项主要创新。首先，在金刚石安装基底上涂覆多层介质反射涂层（Thorlabs E02），以反射绝大部分背离收集光学系统发出的荧光。其次，在金刚石周围设置一个全内反射（TIR）透镜。由于展度守恒，该透镜能够将初始荧光准直至更小的角度范围，同时覆盖更大的面积。这些技术结合起来，确保能够高效收集几乎所有 4π 球面度范围内的荧光。该方法的优点包括兼容未经改动的长方体金刚石形状以及光俘获金刚石波导法 [12]。此外，信号通道只需一个光电二极管，且光电二极管的位置可以远离金刚石。

由于离开金刚石的光只有极少数路径能够逃逸而无法被收集，因此 η_{geo} 的值预计接近于 1。要以 5% 或更高的精度可靠地量化 η_{geo} 的值并非易事。然而，利用 Zemax 对光收集进行的仿真表明，金刚石发出的光有 92% 能够传输至光导管末端。为了通过实验验证这一仿真结果，采用了一个小型球形朗伯散射体（Spectralon），以模拟金刚石的准各向同性荧光发射。当该散射体被放置在金刚石所在位置并受到 532纳米光照射时，在光导管输出端测得的光子数量占输入 532 纳米光子总数的 $0.90^{+0.05}_{-0.15}$。光收集系统的更多详细信息见第 VIIE节。

3. *Integrating balanced photodetector*

在系综 NV⁻ 磁力计中，可能产生较大的荧光功率，$\gtrsim 10$ mW。对高光子通量荧光进行散粒噪声极限测量面临两个主要的技术难题。首先，

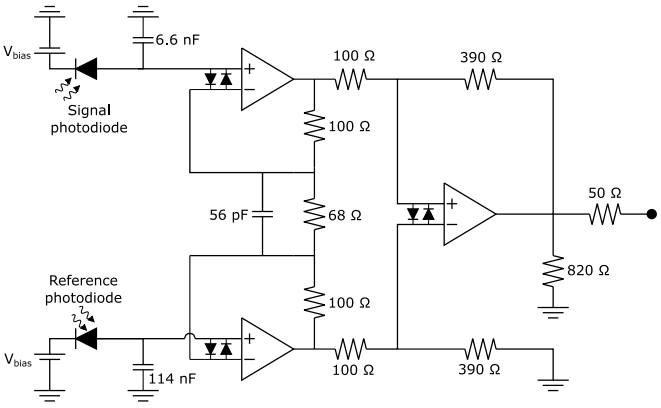

图 2. **积分平衡光电探测器电子学**。 信号臂和参考臂中的入射光电流分别在电容器上积分。随后，仪表放大器对各积分电容器上的电压进行差分并放大。只有在读出光脉冲结束后，才以采样保持的方式对电路输出进行数字化。最后，使用晶体管-晶体管逻辑控制的开关（图中未示出）对两个积分电容器放电，以便重复这一过程。

现有模数转换器的动态范围不足以在将数字化器噪声控制在光学散粒噪声以下的同时，对全量程NV荧光信号进行数字化。其次，激发光残余的强度噪声（RIN）几乎总是会转化为所采集荧光中的噪声，使其超过散粒噪声极限 [43–47]。

这两个问题都可以通过将 NV 荧光光电流与一个相同光电二极管采样的 532 纳米激发光进行比较来缓解，这一方法的灵感来自参考文献 [43–47]。为简便起见，我们分别将这两种光电流称为信号光电流和参考光电流。数字化仪的量程现在只需覆盖信号光电流与参考光电流之间的差值，而非信号光电流的全量程，因此避开了动态范围问题。激光强度噪声问题也大幅减轻，因为绝大多数激光强度噪声会同时出现在信号和参考光电流中。我们设计了一种模拟电路，称为平衡电路，如图2所示，其输出电压与积分后的信号光电流除以参考光电流成正比。更多细节见第VIIF节。

C. 偏置磁场

在没有外部场时，$|m_s = \pm 1\rangle$ NV^- 电子基态自旋三重态的塞曼态是简并的。施加一个永久偏置磁场$\mathbf{B}_0$ 会打破这种简并，使 $|m_s=0\rangle \leftrightarrow |m_s=1\rangle$和 $|m_s=0\rangle \leftrightarrow |m_s=-1\rangle$跃迁在光谱上可分辨 [48]。我们施加了一个 $B_0 = 20.23$ 高斯的偏置磁场，其方向垂直于金刚石的两个大 {100}面，以确保能够用相同的微波频率驱动沿四个不同晶体学方向排列的氮空位中心的塞曼跃迁（见第IIIC节）。因此，用四个微波频率即可驱动从 $|m_s = 0\rangle$ 到 $|m_s = \pm 1\rangle$的全部 16 个允许跃迁，涵盖两种核自旋态。然而，在此方案中，偏置场的精确对准至关重要，因为偏置场必须在整个金刚石内保持均匀，且方向必须使沿所有四个晶体学取向排列的氮空位中心完全简并。满足这两个条件可将系综塞曼共振频率的变化降至最低，否则这种变化可能会限制观测到的 T_2^* 数值，并降低拉姆齐磁力测量的灵敏度。

为尽量减小金刚石内部偏置场的变化并优化磁场对准，偏置磁场由两组大型定制磁体阵列产生，这些阵列安装在电动执行器上。这种方法可实现原位调整磁场对准，同时在进动时间扫描过程中监测退相干。有关偏置磁场的设计、构造和对准流程的更多详情，请参阅补充材料第VIII A节；补充材料第VIIIB节则给出了偏置磁场均匀性容差的计算示例。

为尽量减小外部磁场的影响，传感器被置于由 1.6 毫米厚的 μ-金属制成的三层圆柱形磁屏蔽罩内。最内层直径为 610 毫米、长度为 2134 毫米；中间层直径为 762 毫米、长度为 2286 毫米；最外层直径为 914 毫米、长度为 2438 毫米。屏蔽罩的一端永久封闭，另一端则在测试期间保持敞开。屏蔽罩内的地磁场衰减至 ~ 10 纳特斯拉或更低。

D. 微波

1. *Dielectric resonator and microwave delivery*

NV^- 基态塞曼子能级中的布居通过频率接近零场分裂 ~ 2.87 GHz 的微波磁场进行操控。这种微波磁场的均匀振幅记为 B_1，这样可以使系综中的氮空位中心经历相同的布洛赫矢量旋转。然而，采用微带线或线圈等非谐振微波传输方案时，若要在 3 mm $\times$ 3 mm $\times$ 0.07 mm 的氮空位掺杂体积内实现均匀的拉比频率 $\gtrsim 2\pi \times 1$ MHz，可能需要

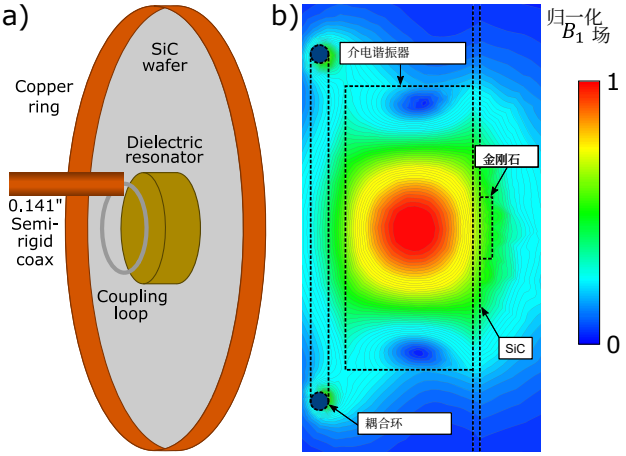

图 3. **介质谐振器微波传输**。(a) 将介质谐振器放置在碳化硅晶圆中央。金刚石沿介质谐振器的对称轴粘附在碳化硅晶圆的另一侧。半刚性同轴电缆将微波激励信号耦合至介质谐振器的 $TE_{01\delta}$ 模式。(b) 介质谐振器产生的归一化 B_1 场强度的有限元仿真。谐振器、碳化硅晶圆、耦合环和金刚石以黑色虚线勾勒。

微波功率远高于 10 W。然而，由于只需在 2.87 GHz 附近 ~ 10 MHz 的带宽内进行激发，谐振微波结构相较于非谐振方案可大幅降低所需的微波功率。对于加载品质因数为 Q_L 的谐振器，微波磁场 B_1 与 $\sqrt{Q_L}$ 成正比，而半高全宽（FWHM）带宽与 $1/Q_L$ 成正比。

因此，我们采用靠近金刚石的圆柱形介质谐振器来产生 B_1 磁场，如图3所示。安装后，介质谐振器的加载品质因数为 $Q_L \sim 260$，因此带宽约为 11 MHz，中心频率为 2。868 GHz。使用 2 W 放大器（Minicircuits ZVE-8G+），该方案可在 3 mm $\times$ 3 mm $\times$ 0.5 mm 的金刚石体积内提供 $\sim 2\pi \times 10$ MHz 的拉比频率。

如果用于寻址特定跃迁的微波驱动同时驱动相邻跃迁，则会产生额外的实验复杂性。这种非预期的串扰会降低对不同 NV 塞曼子能级 [24] 分别独立调节布洛赫矢量旋转的能力。对于该器件而言，串扰尤为值得关注，因为其偏置磁场 $B_0 \approx 2.23$gauss 在每个 NV 轴上的投影为 1.29 高斯，产生的塞曼位移相对较小，仅为 $\approx \pm 3.6$ MHz。由于 ^{15}NV 超精细分裂的量级相近，约为 3.0 MHz，因此更难避免此类串扰。

我们发现，持续时间为 $\sim 1\,\mu$s 的方形包络微波脉冲固有的傅里叶展宽会导致不可接受程度的串扰。因此，我们采用高斯包络微波脉冲，其半高全宽为 0.6 μs，场强为 B_1，

加以应用 [24]。这些高斯包络微波脉冲是通过将高斯波形从任意波形发生器输入混频器的中频端口，并将微波信号输入本振端口而产生的。有关介质谐振器和微波传输的更多详情，请参阅补充材料第 IXA 节。

E. 双量子磁力测量

该传感器采用双量子（DQ）测量协议 [1, 3, 4, 7]，相较于更常用的单量子比特（SQ）协议，该协议具有两项性能优势。首先，双量子协议可减轻应变和温度引起的共振频移及展宽，从而延长退相干时间，并允许使用更长的自由进动时间 τ。其次，双量子协议使磁场相关的相位累积速率加倍，因此角进动速率为 $2\gamma_e = 2 \times 2\pi \times 2.8\,\text{MHz/高斯}$，而非 $\gamma_e = 2\pi \times 2.8$ MHz/高斯。

可使用公式2定量评估双量子协议的性能优势。对于双量子协议，设定$\Delta m_s = 2$而非单量子协议所用的 $\Delta m_s = 1$，并结合各协议测得的退相位时间，即可计入加倍的相位累积速率。测得的典型退相位时间为$T_{2,\,\text{单量子协议}}^{*} \approx 8.7\ \mu\text{s}$，采用双量子协议时则为 $T_{2,\,\text{DQ}}^{*} \approx 14\ \mu\text{s}$。由于双量子协议使相位累积速率恰好加倍，并使这颗金刚石测得的退相位时间增加约 50%，因此预计对该金刚石采用双量子协议，相较于单量子协议可将灵敏度提高约三倍。

F. P_1驱动

在本研究中，采用双量子（DQ）测量方案来抑制多种退相位和退相干机制 [1, 7]；参见第IIE节。对于此处使用的金刚石，双量子测量中观测到的大多数残余 NV^- 退相位和退相干源于与替位顺磁氮的偶极耦合，这种氮也称为 P1 中心。减弱这种耦合后，T_2^* 和 T_2 的值可以得到提升，这一点已首先在文献 [7–9]中得到展示。

为将 NV^- 自旋与 P1 自旋浴解耦，在 NV^- 自由进动时间内施加连续波（CW）射频（RF）场，以近共振方式驱动 P1 自旋。这些射频场使 P1 中心发生拉比振荡；如果在拉姆齐测量中裸 NV^- 退相干时间内驱动 P1 自旋中心完成至少数次旋转，则由 P1 引起的大部分展宽都会被消除。因此，理想情况下，驱动 P1 中心的射频磁场强度B_1^{P1}应满足 $\gamma_e B_1^{\text{P1}} \gg 2/T_2^*$。关于展宽抑制与$^-$ 场强之间的函数形式和标度关系，详见参考文献 $^-$ 。

在 B_1^{P1}场强下的展宽抑制将在参考文献 [7] 中进行完整讨论。类似的分析也适用于哈恩回波序列，在这种情况下，需要在裸相干时间内完成数次拉比振荡。

对于沿 $B_0 = 2.23$ 方向的 $\langle 100 \rangle$ 高斯磁场，可以观察到四种不同的偶极允许 P1 跃迁。这些跃迁可由 22、25、135 和 139 MHz 的射频磁场驱动。为在金刚石体积范围内实现所需的射频场强，该器件采用两个由谐振槽路驱动的多匝线圈，分别对应 22 和 25 MHz 共振，以及 135 和 139 MHz 共振。使用这两个线圈，在双量子拉姆齐序列中施加 P1 驱动可使 $2\times$ 增加约 $T_{2,\,\text{DQ}}^{*}$（见第 IIID节）；而在双量子哈恩回波中加入 P1 驱动后，$2.4\times$ 约延长 $T_{2,\,\text{DQ}}$（见第 IIIE节）。关于 P1 共振频率计算、谐振线圈环路构造以及射频馈送方案的讨论，请参见补充材料第 X 节。

G. 脉冲序列与噪声降低

1. *Resonant driving and phase modulation*

在 NV 系统的典型拉姆齐方案中，微波频率会调至非共振状态，使自由感应衰减（FID）条纹随进动时间变化而出现 [11]。这种非共振激发会妨碍实现最佳布居转移，需要更高功率来补偿失谐，并可能导致不同共振之间的非共振交叉激发增强。此外，使用单个微波音调激发多个跃迁（例如 NV 超精细结构产生的跃迁）时，往往会产生多个 FID 振荡频率，可能带来不便。

为避免上述非理想情况，此处的器件改为对每个分辨出的塞曼跃迁施加共振微波脉冲。然而，在这种共振驱动下不会累积相位，因此观察不到 FID 条纹。为解决这一问题，最终的微波脉冲会相对于第一个微波脉冲移相，移相量随进动时间而变化 τ。对于单量子拉姆齐 FID，第二个微波脉冲的相位偏移为$\omega_m \tau$，在共振驱动下产生具有条纹频率ω_m 的单音迹线。通过调节 ω_m，即可按需设定条纹频率。

更一般地，当施加一个相对于目标跃迁失谐$\Delta\omega$ 的微波音调时，单量子拉姆齐协议所累积的相位为

$$\phi_m = (\Delta\omega + \omega_m)\,\tau, \tag{3}$$

从而在角频率 $\Delta\omega + \omega_m$ 处产生条纹。为了优化微波脉冲的频率和幅度，首先调节微波频率，直到观测到的条纹频率与 ω_m 相符，然后将微波幅度调至略低于在线观看中文字幕

随后对其进行调整，以使观测到的 FID 条纹振幅最大化。

在双量子拉姆齐方案中， [7]， 条纹源于$|m_s = 1\rangle$与 $|m_s = -1\rangle$ 态之间的差分相位累积。在此，对作用于 $|m_s = \pm 1\rangle$ 态的第二个拉姆齐脉冲施加$\pm\omega_m\tau$的附加相位，并在共振微波驱动下观测到角频率为$2\omega_m$ 的条纹。在双量子哈恩回波方案中，将 $\pm\omega_m\tau$的附加相位施加到最后一个微波脉冲上，同样会产生角频率为 $2\omega_m$的条纹。

最后，可以添加相移，确保磁力计工作在最大条纹斜率处。这种灵活性很重要，因为施加的微波频率受限于序列重复率的整数倍（见补充材料第 IXB 节），因此无法通过调节微波频率将条纹斜率完美调至最大值。

我们发现，数字移相器的性能优于模拟相位调制，同时还能够方便、精确且即时地修改所施加的相移参数；参见第 IXC节。

2. *Noise subtraction schemes*

基于脉冲序列的噪声抵消可以通过消除连续序列之间相关的噪声来提高灵敏度。例如，振动、低频激光强度变化，或微波相位和振幅噪声，都可能产生相对于脉冲序列重复率变化缓慢的噪声。噪声扣除方案通常通过安排磁信号在相邻序列之间呈差分、噪声呈共模的方式来实现；随后对连续序列进行相减，即可保留磁信号，同时抑制噪声。

通过改变施加于最后一个微波脉冲的相移，可使磁信号在连续序列之间实现差分编码。例如，在单量子比特（SQ）序列中， π 相移会反转干涉态之间的最终布居差，从而反转磁信号 [49]。类似地，在双量子（DQ）序列中，对双量子叠加态涉及的任一共振施加 π 相移会反转信号，而对两个共振均施加 π 相移则会恢复信号原有的极性 [4]。在某些情况下，这些噪声扣除方案还可防止脉冲序列不完善造成的影响，例如，在 DQ 磁力测量中消除由不完善的 π 脉冲导致的残余单量子成分 [11]。

图 16 展示了本研究所用各噪声抵消方案施加的相位。对于进动时间扫描，扫描中的每一步都重复四次，并采用“4 态”相移序列，以最大限度地防止微波脉冲不完善造成的影响（图 16b）。对于拉姆齐磁力测量，采用“2 态”噪声抵消方案，如图 16a 所示。因此，信号编码在比“4 态”方案更高的频率上，从而减小 $1/f$ 噪声的影响。在这两种方案中，施加到最后一个微波脉冲的任何额外相位（例如，为观察共振处的条纹，参见 II G1）都会叠加到噪声抵消相移上。在哈恩回波磁力测量中（图 16c），第一组序列在双量子对之间施加 $\pi/2$ 相移，第二组序列则施加 $-\pi/2$ 相移；这样可确保在小测试磁场下工作于最大条纹斜率处，且无需额外施加相移。对于所有方案，给定电子自旋跃迁的每种核自旋态都施加相同的相移。

根据占主导地位的噪声源，基于脉冲序列的噪声抵消可能会提高器件噪声底。通常，这种噪声抵消会使噪声底提高 $\lesssim 50\%$，但这种影响尚未得到充分理解。噪声底的升高可能与微波噪声有关，因为在关闭所有微波时，基于脉冲序列的噪声抵消会使噪声底提高 $\lesssim 1\%$。

III. 实验结果

A. 实验概述

来自一台 532 纳米、12 瓦激光器的光由声光调制器 (AOM) 进行开关调制，并通过光子晶体光纤传输至传感器头。光从光纤射出后，经过偏振片和聚焦透镜。聚焦后的光进入采用光捕获金刚石波导构型的金刚石刻面角部。产生的 NV荧光由一片硼硅酸盐全内反射 (TIR) 透镜收集，该透镜连接至六边形硼硅酸盐导光管；光从导光管射出后，经过彩色玻璃滤光片到达大面积光电二极管。为激光噪声消除提供参考信号，在 532 纳米光进入金刚石之前对其进行取样，并将取样光引导至另一只大面积光电二极管前方的一片薄特氟龙片上，该片用作漫射体。每只光电二极管产生的光电流由电容器积分，仪表放大器对所得电压进行差分并放大。最后，将放大后的差分电压数字化，以便后续进行基于软件的处理。有关平衡光电探测硬件的更多详情，请参见补充材料第 VIIF 节。

虽然$I = \frac{1}{2}$ NV 的 ^{15}核自旋会产生 16 个不同的、偶极跃迁允许的电子基态塞曼共振，但将偏置磁场合理地沿金刚石的 [100] 方向定向后，仅能分辨出四个共振。每个共振都由一个独立的信号发生器合成单一微波音调来激励。四个音调分别进行数字相位调制，然后合并。所得合成信号与高斯脉冲混频，以生成高斯包络脉冲波形，

随后将这些波形放大，并传输至半刚性非磁性同轴电缆末端的线圈。线圈产生的微波场耦合至圆柱形介质谐振器，其谐振频率以 $\approx$ 2.865 GHz 为中心，位于金刚石附近。

为驱动自旋浴（P1），三个信号发生器分别产生频率为 23、135 和 139 MHz 的射频信号。135 和 139 MHz 信号合并、放大，并耦合至一个共振频率接近 137 MHz 的谐振线圈。23 MHz 信号也经过放大，并送入一个共振频率接近 23 MHz 的类似线圈。两个谐振线圈均靠近金刚石。

任意波形发生器控制 532纳米光、微波、P1 驱动、平衡光电探测电路、数字化仪和数字移相器的触发与门控脉冲时序。有关传感器各主要组件的更多讨论，请参见第II节。

B. 脉冲序列

图 4展示了本工作中使用的部分脉冲序列。每个序列均以一个持续时间为 t_I 的 532 nm 激光初始化脉冲开始。每个序列的中间部分由若干自由进动时段以及穿插其间的微波脉冲组成。每个序列结束时，会读出 NV$^-$ 荧光；向金刚石施加一个持续时间为 t_R 的光脉冲，在此期间，平衡电路对光电流进行积分，随后将其数字化（见第 II B3节）。

采用脉冲式光学探测磁共振（ODMR）序列来测量 NV$^-$ 磁共振谱 [50]。在初始化与读出之间，一个持续时间为 100 μs 的高斯平顶 SQ 微波脉冲将布居从 $|m_s = 0\rangle$ 态转移到其中一个$|m_s = \pm 1\rangle$ 态，从而使磁共振信号得以观测。拉姆齐序列及相关的自由感应衰减（FID）脉冲序列分别用于宽带磁力测量和退相干包络的测量。在拉姆齐序列中，两个高斯形状的双量子（DQ）π 脉冲，其半高全宽（FWHM）为 0.6 μs，分别定义了 40 µs 进动过程的起始和结束。为了避免可能产生的交流塞曼位移，在拉姆齐磁力测量过程中，微波脉冲期间不施加 P1 驱动。在进动时间内，P1 驱动的施加时间为 35µs。

自由感应衰减序列与拉姆齐序列类似，但经过修改以测量 T_2^* 退相干。尽管该序列的总长度仍保持固定为 91 µs，第一微波脉冲的延迟时间可变，而第二个微波脉冲保持固定。P1 驱动也会在初始化和读出之间的整个时间段内施加，这与拉姆齐情形略有不同，因为此时驱动不会与微波脉冲重叠。等效的拉姆齐和自由感应衰减测量也可以在单量子基底中进行。

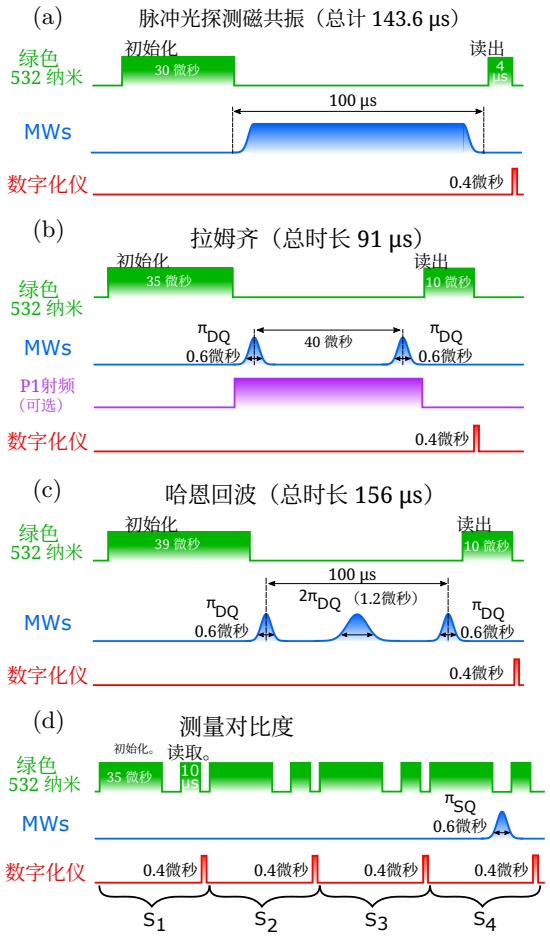

图4. **本研究中使用的选定脉冲序列**。(a-d) 对于所有序列，均在所示时间内施加532纳米激光，以初始化氮空位中心。随后，对氮空位中心态进行微波操控和/或自由进动。最后，再次施加激光以读取系综信号，并在激光熄灭后，触发数字化仪，对积分平衡光电探测器上累积的电压进行采样。有关每个序列中所施加微波操控的更多细节见正文。(b) 可选择在进动期间施加P1驱动，以延长退相干时间。(b-c) 为了进行脉冲优化和诊断，还可以通过固定最后一个微波脉冲的时序并改变初始脉冲的时序，进行进动时间扫描。(d) 为了诊断初始化效率和测量对比度，可以执行一系列四个脉冲序列，其中仅在最后一个脉冲序列期间施加微波操控。

哈恩回波序列在拉姆齐序列的基础上进行了几处改动。首先，在自由进动时间的中点施加一个半高全宽为 1.2 μs 的高斯双量子回波脉冲，以重新聚焦退相位。其次，将初始化时间增加至 $t_I = 39$ μs。第三，将自由进动时间增加至 $\tau = 100$ µs。与自由感应衰减序列类似，我们将序列总时长固定为 156 µs，并通过改变第一个和第二个微波脉冲之间的延迟时间来测量 T_2 退相干时间，同时定位胆

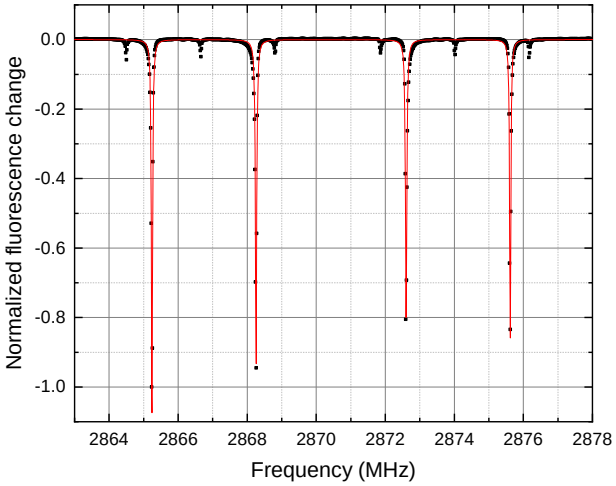

图 5. **NV 的脉冲光探测磁共振- 塞曼共振**。四个较大的特征来自金刚石中的 ^{15}NV，而六个较小的特征则来自金刚石中不需要的 ^{14}NV。对数据进行洛伦兹拟合后，得到半高全宽线宽为 34 至 46 kHz。该数据的平均时间为 1 秒。

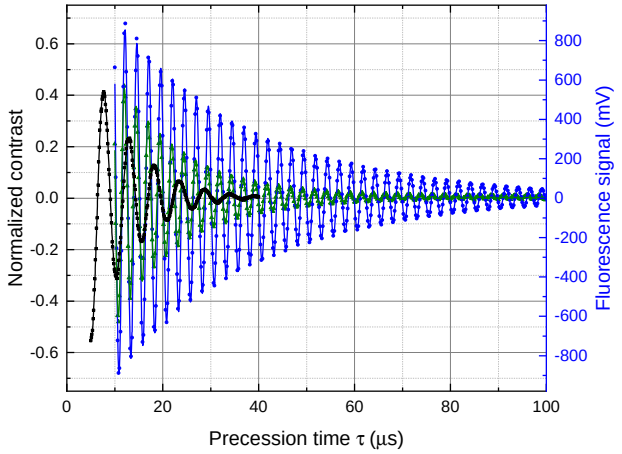

图 6. **延长 T_2^* 退相干时间**。采用单量子比特协议（■）、双量子协议（▲）以及采用 P1 驱动的双量子协议（●），分别采集总时长为 1 秒的自由感应衰减条纹。曲线为式 4的拟合结果，得到 $T_{2,\,\mathrm{SQ}}^* = 8.7(1)$ μ秒、$T_{2,\,\mathrm{DQ}}^* = 14.0(1)$ μ秒，以及 $T_{2,\,\mathrm{DQ+P1}}^* = 28.6(2)$ μ秒，其中拉伸指数参数固定为 $p = 1$。双量子方案比单量子比特方案具有更长的退相干时间，尤其是在施加 P1 驱动时。注意，与单量子比特测量相比，两种双量子测量的条纹频率加倍，体现了其对磁场的响应加倍，详见第IIE节。归一化对比度（左侧刻度）为进动时间 τ时的荧光信号除以根据指数衰减拟合得到的时间 $\tau = 0$ 时的预期信号。右侧刻度显示采用 P1 驱动的双量子方案下，以原始单位表示的荧光信号。

第三种是固定的，因此在保持连续微波脉冲之间间隔相等的同时改变进动时间。如果使用 P1 驱动，则会在初始化和读出之间的整个时段内施加。微波脉冲频率和功率的优化见第IXB节。

测量对比度序列用于确定初始化保真度和测量对比度 C随初始化和读出激光脉冲持续时间的变化情况。通过观察在不施加任何微波脉冲的情况下三个相邻序列中的信号变化，可以确定初始化保真度。第四个序列通过单个微波脉冲将已充分初始化的布居转移到某个 $|m_s = \pm 1\rangle$ 态，从而确定测量对比度；参见补充材料第 XIA节。

C. 脉冲光探测磁共振

对 NV$^-$ 磁共振谱进行精确测量，可以实现塞曼共振识别、偏置磁场对准以及常规诊断。然而，由于此处使用的金刚石具有低至 34 kHz 的跃迁线宽，因此 CW-ODMR 方法并不适用 [1, 50]。使用 CW-ODMR 观测如此窄的线宽，不仅要求 MW 拉比频率低于跃迁线宽，还需要降低光学泵浦速率，这会大幅延长测量时间 [50]。另一种方法是采用 Dr´eau 等人提出的方法获取磁共振谱，该方法称为脉冲光探测磁共振 [50]，（pulsed ODMR） [1]。在这种方法中，分别在不同时间向金刚石施加光学激发和微波，并在改变微波频率的同时记录荧光；参见图 4a。由于光学光学激发与微波在时间上错开，可避免光诱导的塞曼共振功率展宽 [50]。

通过脉冲光探测磁共振采集的磁共振数据如图5所示。由于脉冲光探测磁共振用于诊断，而非磁力测量，因此避免谱线展宽至关重要，而测量对比度则是次要考虑因素。因此，所选用的脉冲光探测磁共振方案采用一个较弱的 100 μs 微波脉冲，其时长远大于 T_2^*，以避免傅里叶展宽共振峰。在偏置磁场经过最佳对准后，我们观测到半高全宽线宽在 34 至 46 kHz 之间变化。若假设线型为洛伦兹型，则这些线宽对应的 $T_{2,\,\mathrm{SQ}}^*$ 值为 6.4 至 9.4 μs，与采用 Ramsey 干涉测量的结果一致；详见下一节。

D. T_2^* 延长

如参考文献 [1, 7]，所述，将双量子（DQ）测量方案与 P1 驱动相结合，可以显著延长系综的退相干时间 T_2^*。图6 展示了使用单量子比特（SQ）协议、双量子（DQ）协议以及双量子协议测量的不同时间 τ 下的自由感应衰减（FID）条纹，以及 DQ 协议

采用 P1 驱动。使用 SQ 协议的测量采用 $|m_s = 0\rangle \leftrightarrow |m_s = -1\rangle$ 跃迁，并驱动图 5 中所示的两个低频塞曼共振，这些共振与两个 ^{15}NV 核自旋态相关。使用 DQ 协议的测量采用$|m_s = 0\rangle \leftrightarrow |m_s = -1\rangle$ 和 $|m_s = 0\rangle \leftrightarrow |m_s = +1\rangle$ 跃迁，因此驱动同一图中所示的全部四个 ^{15}NV 塞曼共振。所有四个跃迁均在共振频率上寻址，最终的 MW 脉冲在数字上进行 200 kHz（SQ）或 400 kHz（DQ）的相位调制，以产生自由感应衰减条纹；参见第 IIG1节。为减小噪声，测量采用第 IIG2节所述的 2 态（SQ）或 4 态（DQ）噪声抵消方法。

对于所有三种方案，自由感应衰减数据均先减去均值，再拟合为如下形式的衰减正弦信号 $y(\tau)$

$$y(\tau) = Ae^{-(\tau/T_2^*)^p} \sin[2\pi f\tau + \phi], \qquad (4)$$

其中，f 表示条纹频率，ϕ 为相位，p 为拉伸指数参数，A 为振幅 [7]。为比较这三种方案，将 p 固定为 1，使拟合值 T_2^* 单独表征时间退相干。在 $p = 1$ 条件下，拟合结果为：单量子比特基底下，SQ $= 8.7(1)$ μs；双量子基底下，$T_{2,\mathrm{DQ}}^* = 14.0(1)$ μs；采用 P1 驱动的双量子基底下，$T_{2,\mathrm{DQ+P1}}^* = 28.6(2)$ μs。根据假设 $p = 1$，利用公式 2 可以确定灵敏度的预期提升幅度；结果表明，与单量子比特方案相比，采用双量子方案预计可将灵敏度提高 3.1×。在双量子方案中加入 P1 驱动后，相对于单量子比特方案，灵敏度提升幅度预计可增至 5.8× 。当允许 p 变化时的拟合参数及本节计算详见补充材料第 X D 节；关于 $p \neq 1$ 成因的讨论见参考文献 [7]。

E. T_2延长

P1 驱动也能有效延长哈恩回波 T_2相干时间。 T_2 相干时间的测量方法与 T_2^*类似，但在进动过程的中点额外施加一个回波微波脉冲。如图4所示，该回波脉冲的持续时间是第一个和最后一个脉冲的两倍（参见，并重新聚焦退相干。图7展示了在有无 P1 驱动的情况下，以双量子基测得的哈恩回波干涉条纹。按照上一节所述的方法，将条纹数据拟合到公式4 可得$T_{2,\ \mathrm{DQ}} = 136(3)$ μ（无 P1 驱动时），以及$T_{2,\ \mathrm{DQ+P1}} = 324(16)$ μ（有 P1 驱动时）。预计在双量子哈恩回波方案中加入 P1 驱动可使灵敏度提高 1。8×，具体详见补充材料第 XD节。

在实践中，额外的技术噪声源和 P1 驱动期间存在的其他限制可能会阻碍预期灵敏度提升的实现。在哈恩回波磁力测量中（但在拉姆齐磁力测量中不会），这些噪声源在本研究的实验中无法得到充分抑制，因此本文展示的哈恩回波磁力测量结果未采用 P1 驱动。下一节将进一步讨论这些噪声源及其抑制方法。

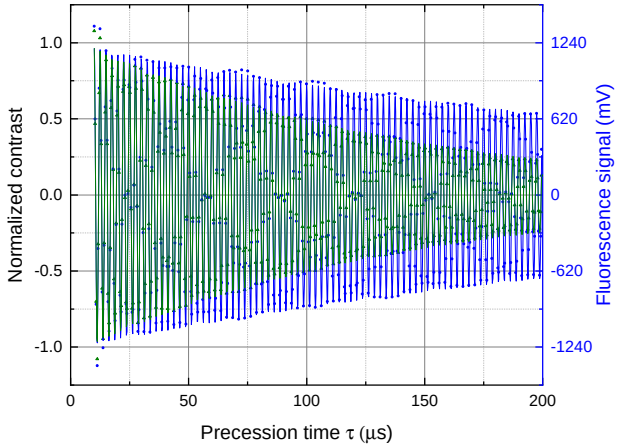

图 7. **延长哈恩回波 T_2 退相干时间**。使用双量子海恩回波协议，分别在不进行（▲）和进行（●）P1 驱动的情况下测量干涉条纹，每次总计 1 秒。曲线为对方程 4的拟合，得到 $T_{2,\mathrm{DQ}} = 140(2)$ $_{\mathrm{DQ+P1}} =$ 324 16 1 秒（无 P1 驱动）和 $T_{2,()}$ μ 秒（有 P 驱动），两者均满足 $p = 1$。与图 6 中的自由感应衰减数据一样，归一化对比度（左侧刻度）表示进动时间 τ 处的荧光信号除以基于指数衰减拟合得到的时间 $\tau = 0$ 处预期信号。右侧刻度显示有 P1 驱动时以原始单位表示的荧光信号。

IV. 磁测演示

该磁力计在两种配置下进行了测试。在第一种配置中，器件采用双量子拉姆齐序列，可探测频率低至直流的宽带磁场。在第二种配置中，器件采用双量子海恩回波序列，可探测围绕一个窄带预选频率的交流磁场，该频率取决于微波脉冲间隔。

在这两种配置中，磁力计的响应通过施加一个与器件偏置场平行的小幅校准测试磁场来测量。该测试磁场由函数发生器向串联已知电阻的多匝线圈施加已知电压产生。确定施加的测试磁场需要计算或测量 κ测试磁场幅度与函数发生器电压输出之间的比例常数。 κ 的值通过三种不同方式确定，详见补充材料第XIB节：根据已知几何参数和电流计算磁场；使用商用磁力计测量磁场；最后，利用固定的 NV旋磁比校准磁场。

最后一种方法测定磁场以及相应的

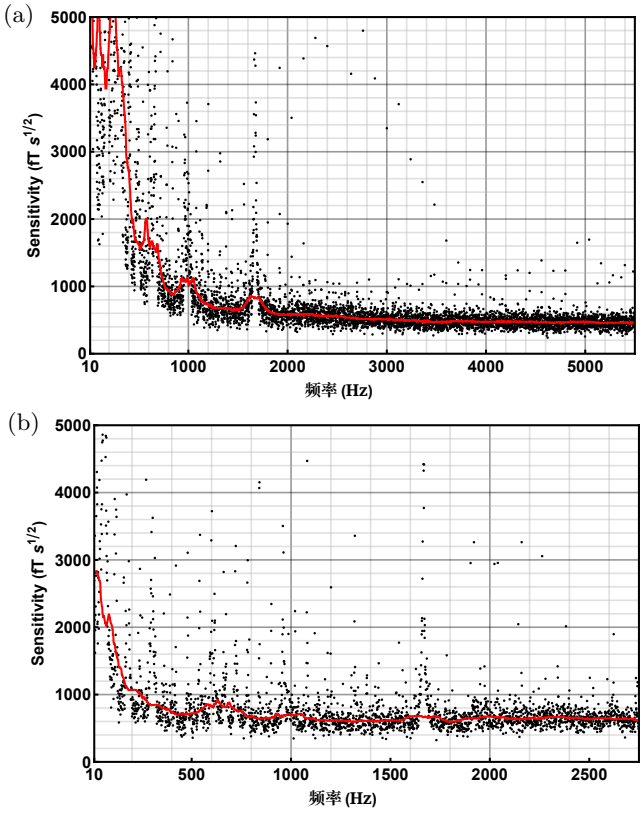

图 8. **拉姆齐磁力测量灵敏度谱**。 (a) 采用双量子拉姆齐协议、40-µs 进动时间并施加 P1 驱动时的灵敏度谱。未进行噪声抵消。该器件实现的最低灵敏度为 460 fT·s$^{1/2}$。在约一半的 5.5 kHz 测量带宽范围内，器件噪声相对于该值的增幅小于 20%。(b) 采用双量子拉姆齐协议、40-µs 进动时间、施加 P1 驱动并进行双态噪声抵消时的灵敏度谱。该器件实现的最低灵敏度为 640 fT·s$^{1/2}$。在 2750 Hz 测量带宽的 65% 范围内，器件噪声的增幅小于 20%。对于两个子图，原始灵敏度数据（·）和经过 100 点中值滤波的数据（—）均通过对十次持续 1 s 的采集结果进行均方根平均计算得出。有关脉冲序列、P1 驱动和噪声抵消的更多细节见正文。为符合灵敏度的惯例，数据以双边谱的正频率半部分表示。有关灵敏度测量的更多信息，请参见补充材料第 XIB 节和第 XII 节。

使拉姆齐或哈恩回波干涉测量条纹移动一个周期所需的电压。由于产生 2π 相位累积的磁场值仅取决于基本常数和已知的进动时间，因此预计这种方法的准确度最高。使用 Ramsey 磁测序列，我们测得 $\kappa = 201$ nT/V（直流测试磁场）；而哈恩回波方法测得$\kappa = 198$nT/V（6.4 kHz 测试磁场），两者仅相差 1.4%；详见第 IVB节。

A. 拉姆齐磁力测量

在本研究中，单次双量子拉姆齐序列由 $t_{\mathrm{I}} = 35$ µ秒光学初始化、 $\tau = 40$ µ秒自由进动时间、 $t_{\mathrm{R}} = 10$ µ秒光学读出以及 $t_{\mathrm{D}} = 6$ µ秒死时间组成。初始化和读出时间的选择旨在近似最大化读出保真度；参见补充材料第XIA节。尽管$T_{2,\ \mathrm{DQ+P1}}^{*}$ 在第III D 节报告的数值表明，最佳自由进动时间为 $\tau \sim 24$ µ秒，但我们发现，略长的进动时间能降低噪声底并提高灵敏度；因此改用 $\tau = 40$ µ秒。

拉姆齐测量以 $f_{\mathrm{rep}}^{\mathrm{Ram}} = 11$ kHz 的重复频率进行。所得磁力计数据按 1 秒时长分段记录，然后通过矩形窗进行傅里叶变换，得到频率分辨率为 1 Hz 的幅度谱密度。在 10 Hz 处施加一个已知大小的测试磁场，从而将电压幅度谱密度转换为磁场单位。进动期间施加 P1 驱动，持续 35 µ秒；高斯脉冲期间则不施加。此持续时间的 P1 驱动几乎保留了全部 T_2^* 扩展，同时消除了 P1 驱动在读出和数字化期间开启时观察到的额外噪声。

在未采用任何噪声扣除方案的情况下，该器件在其 5.5 kHz 的测量带宽内实现了 460 fT· s$^{1/2}$的最低灵敏度，如图 8a 所示，并在补充材料第 XII节中作了进一步详细说明。然而，在未采用任何噪声扣除方案的情况下，该器件在低于 ~ 2 kHz 的频率范围内表现出明显的低频噪声。如图8b 所示，采用两态噪声消除可以抑制部分低频噪声，但代价是带宽和最低灵敏度受到影响，带宽降至 $f_{\mathrm{rep}}/4 = 2.75$ kHz，最低灵敏度则升高至 640 fT·s$^{1/2}$ 。导致噪声增加的具体机制尚未得到充分理解，但在未施加微波的情况下，噪声水平大致相同，例如，两态噪声扣除前后的差异在 $\sim 1\%$ 以内。这一观察结果表明，导致该现象的机制可能与微波噪声有关，而不仅仅是激光噪声。

按照第 IIG2 节所述，使用双量子协议和四态噪声抵消来操作器件，可以消除因状态转移不完善而产生的残余单量子信号成分 [11, 51] ，因此能够最准确地测量 $T_{2,\ \mathrm{DQ}}^{*}$。然而，这种四态噪声抵消并不用于磁力测量，因为带宽会进一步降至 $f_{\mathrm{rep}}/8 = 1.375$ kHz，且相较于两态噪声消除，噪声底会进一步升高。

为确认观测到的灵敏度与根据测得的对比度和光子散粒噪声预期的灵敏度一致，我们计算了散粒噪声极限灵敏度，结果为 $\eta^{\mathrm{ens},\ \mathrm{sho\ Ram}} = 260$ fT·s$^{1/2}$；见补充材料第 IVA 节。关闭微波脉冲时，荧光光电流上的观测噪声约比散粒噪声高 5%；见补充材料第 XIIIA 节。开启微波脉冲后，噪声在 2 kHz 至 5.5 kHz 频段内升至高于散粒噪声 $\sim 60\%$。因此，这项分析表明，该器件应当

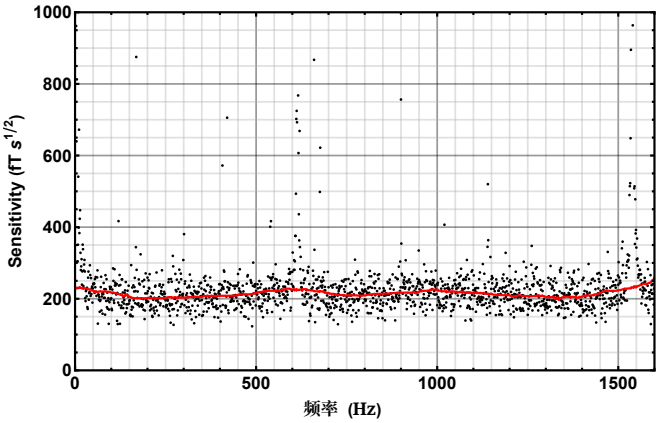

图 9. **哈恩回波磁力测量灵敏度谱**。 双量子哈恩回波协议的灵敏度谱，总进动时间为 100 µs，图中显示原始值（·）以及应用 100 点中位数滤波后的结果（—）。该器件实现的灵敏度噪声底为 $\approx 210\ \mathrm{fT\cdot s^{1/2}}$；在 1.6 kHz 测量带宽的 80% 范围内，器件噪声增加不到百分之二十。未施加 P1 驱动。与图 8一样，数据通过对十次时长为 1 秒的采集进行均方根平均计算得出。有关序列和噪声抵消的更多细节见正文。为符合惯例，数据以双边谱的正频率半边显示。有关灵敏度确定的更多细节，见补充材料第 XIIC 节。

能够在高于 2 kHz 的频率下实现接近 420 $\mathrm{fT\cdot s^{1/2}}$ 的灵敏度，这与图 8a 所示的最小宽带灵敏度一致。

B. 哈恩回波磁力测量

单个双量子哈恩回波（HE）序列由 $t_\mathrm{I} = 39$ µs 的光学初始化、 $\tau = 100$ µs 的进动时间、 $t_\mathrm{R} = 10$ µs 的光学读出，以及$t_\mathrm{D} = 7$ µs 的死区时间组成。单个哈恩回波序列以 $f_\mathrm{rep}^\mathrm{HE} = 6.4$ kHz 的重复频率运行。随后，连续记录长度为 1 秒的数据，并按照第 IVA节所述进行傅里叶变换和滤波。预期磁力计对频率等于 $f_\mathrm{rep}^\mathrm{HE}$的磁场响应最大，且其相位满足磁场过零时刻与重聚焦脉冲的中点重合。

为减轻哈恩回波磁力计中的低频噪声，采用双态噪声抵消；见第 IIG2节。第一种状态由一个脉冲序列构成，其最后一个脉冲在上、下跃迁频率（包括两个超精细分量）之间对称地施加 $\pi/2$ 相位差；第二种状态则施加 $-\pi/2$ 相位差。哈恩回波磁力测量中所施加相位的示意图见补充材料图 16 。该方案在未施加测试磁场时产生最大斜率，且第二种状态的响应相对于第一种状态反向，因此，可以将两种状态的信号相减以抑制噪声，同时保留磁力计的响应。

使用哈恩回波序列测量磁力计灵敏度的方法如下。施加频率为 $f_\mathrm{rep}^\mathrm{HE}$ 的方波测试磁场，并调整磁场的相位，使过零点出现在进动时间的中点。随机改变测试磁场的幅值并记录磁力计数据，从而获得以每特斯拉原生信号单位表示的驱动响应。同时，在未施加测试磁场时记录磁力计数据，并进行傅里叶变换，得到以原生信号单位乘以秒的平方根表示的幅度谱密度。结合这两项测量即可得到灵敏度谱，单位为 $\mathrm{T\cdot s^{1/2}}$，如图 9 所示，详见补充材料第 XIIC节。测量结果表明，对 6.4 kHz 交流磁场的振幅调制，其最低灵敏度为 $\approx 210\ \mathrm{fT\cdot s^{1/2}}$，如图 9所示。该数值与计算得到的光子散粒噪声限制灵敏度 $\eta^{\mathrm{ens,\ sho\ HE}} = 90\ \mathrm{fT\cdot s^{1/2}}$一致；详见补充材料第 XIIIC节。

如第IIIE节所述，由于 P1 驱动带来的电子噪声增加抵消了相干时间延长所带来的灵敏度提升，因此在哈恩回波磁力测量中不采用 P1 驱动。与拉姆齐情形类似，四态方案的应用因此仅用于确定 $T_{2,\mathrm{DQ}}$。

V. 讨论与展望

本文致力于落实参考文献 [1] 中提出的方法，以提高基于系综的 NV 磁力计的灵敏度。与参考文献 [1], 一样，延长退相干时间是本文关注的核心。退相干时间越长，给定测量过程中的相位累积就越大，从而能够提高磁力计的灵敏度。除了采用针对这一应用专门生长、具有优良应变和偶极展宽特性的定制金刚石外，还通过双量子方案和 P1 驱动 [7] 进一步延长了 T_2^* 退相干时间。因此，该器件在宽带和窄带磁力测量模式下，均实现了迄今为止无磁通集中器 NV 磁力计所报道的最佳灵敏度。然而，在这一全新的退相干时间和灵敏度水平下，构建和运行 NV 金刚石磁力计也带来了意料之外的挑战，下面将对此进行讨论。

A. 遇到的障碍

本研究遇到的主要技术障碍总结如下。关于这些技术障碍的更多细节见补充材料第XIIID节。

对超低噪声微波信号链的需求构成了本工作的重大挑战，因此需要谨慎选择组件、测量所实现的微波噪声水平，并反复迭代信号链设计。

尽管付出了这些努力，微波噪声仍被认为会限制器件性能。

为尽量降低噪声以及微波共振频率的热致漂移，必须仔细控制激光耦合进光纤、随后进入金刚石的对准情况。在器件优化和磁力测量过程中，会监测到达金刚石的激光功率；当功率下降 $\gtrsim 1\%$ 时，便会调整激光与光纤电缆的对准。

P1 驱动期间施加的高射频功率会给金刚石带来另一项相当大的热负荷。尽管从 P1 线圈到传感器头外部存在高热导率的散热路径，系统仍需要较长时间才能达到热平衡。

P1 驱动还会产生电磁干扰（EMI），因此需要采取抑制措施，并限制所施加的功率。例如，在双量子 Ramsey 序列中，无法将 P1 驱动时长延长至最后一个 π 脉冲，否则会增加器件噪声；经查，这一影响是由线圈振铃期间存在的射频电磁干扰耦合至光电二极管平衡电路所致。

尽管采用了噪声扣除方案，器件仍对某些低频非磁性噪声源敏感。这些噪声扣除方案的性能限制因素仍需进一步研究，以确定能否提高噪声抑制能力。

最后，对于采用这种设计的磁力计，未来的应用可能会带来更多复杂因素。与其他 NV 系综磁力计相比，这里对相对较长退相干时间的依赖，使拉姆齐磁力测量对直流磁场梯度更加敏感。此外，通过施加$\mathbf{B}_0$ 使其恰好垂直于金刚石的 {100} 前表面，现有器件将非简并塞曼跃迁的数量从一般情况下的十六个减少到四个。尽管这些特性有利于静态实验室器件，但它们要求对所施加的偏置场进行仔细调节；对于受方向动态变化的地球磁场影响的便携式器件，则需要改进这一方案。一种解决方法是利用线圈抵消地球磁场，但驱动线圈的电流源可能会产生额外噪声。另一种方法是沿不同轴向施加更大的偏置磁场，以分辨全部十六个跃迁，然后按顺序或同时对它们进行测量 [10], ，但微波控制方案会复杂得多。在这两种情况下，计算结果均表明，只有当磁场梯度 $\ll 200$ nT 覆盖 NV^-探测体积时，才能获得最佳拉姆齐磁力测量性能；参见补充材料第VIIIB节。

B. 改进前景

有几种方法可以提高未来器件的灵敏度。例如，通过使用磁通集中器聚焦入射磁场线，其他 NV 磁力计的器件响应可超越电子旋磁比所设定的上限。 [15, 52, 53] 然而，这类器件存在局限性。例如，依赖几何结构的磁通聚焦使器件响应无法与基本常数挂钩。更关键的是，磁通集中器聚集的磁场线往往伴随着较大的磁场梯度，这可能会妨碍长本征退相干时间的利用。

提高读出保真度也能提升灵敏度。例如，辅助量子比特辅助的重复读出已在单个 NV 中实现了接近 1 的读出保真度 [54–56] ，近期也已应用于氮空位中心系综 [57]。然而，这种读出方法需要较强的偏置磁场，而由此产生的较大梯度也可能使得难以利用较长的退相干时间。腔增强纯微波读出方法[16, 58] 或可提供另一种提高读出保真度的途径。

另一个值得探索的方向是改进金刚石材料。由于本研究使用的金刚石未经辐照，其亮度可能还有提升空间。此处的金刚石测量对比度为$C = 0.0334$ ，而已有研究已实现高达 0.06 [59] 的数值。

C. 扩展至其他传感方案

本研究所述的进展不仅适用于拉姆齐和哈恩回波磁力测量。例如，与现有研究相比，该装置已展示出拉比磁力测量灵敏度的大幅提升 [60] 。该器件兼容更复杂的脉冲序列，例如 CPMG [49, 61, 62],XY [63, 64]等 [19, 65, 66]。我们曾简要尝试基于 CPMG 和 XY 的脉冲序列，但尽管利用了更长的相干时间，其灵敏度仍低于哈恩回波。我们并未全面调查性能下降的原因，但推测微波噪声是主要因素。为覆盖范围更广的磁场频率，目前正在开展工作，以实现近期提出的量子频率混合技术 [67]。

VI. 致谢

作者感谢 Reginald Wilcox 设计偏置磁体阵列，并感谢 Chuck Wurio 培育本研究所用的金刚石。本研究由国防高级研究计划局（DARPA）以及国防部负责研究与工程的副部长提供经费支持，资金来源为美国空军合同编号 FA8702-15-D-0001。S.T.A. 获得美国国家科学基金会（NSF）通过 NSF 研究生研究奖学金计划提供的资助。文中表达的观点、意见和／或研究结果仅代表作者本人，不应被解读为代表国防部或美国政府的官方观点或政策。

[1] J. F. Barry、J. M. Schloss、E. Bauch、M. J. Turner、C. A. Hart、L. M. Pham 和 R. L. Walsworth，《现代物理评论》92, 015004 (2020)。[2] G. Balasubramanian、P. Neumann、D. Twitchen、M. Markham、R. Kolesov、N. Mizuochi、J. Isoya、J. Achard、J. Beck、J. Tissler、V. Jacques、P. R. Hem- mer、F. Jelezko 和 J. Wrachtrup，《自然·材料》8, 383 (2009)。[3] K. Fang、V. M. Acosta、C. Santori、Z. Huang、K. M. Itoh、H. Watanabe、S. Shikata 和 R. G. Beausoleil，《物理评论快报》110, 130802 (2013)。[4] H. J. Mamin、M. H. Sherwood、M. Kim、C. T. Rettner、K. Ohno、D. D. Awschalom 和 D. Rugar，《物理评论快报》113, 030803 (2014)。[5] O. Moussa、I. Hincks 和 D. G. Cory，《磁共振杂志》249, 24 (2014)。[6] A. Angerer、T. N¨obauer、G. Wachter、M. Markham、A. Stacey、J. Majer、J. Schmiedmayer 和 M. Trupke，ArXiv 电子预印本 (2015)，arXiv:1509.01637 [quant-ph]。[7] E. Bauch、C. A. Hart、J. M. Schloss、M. J. Turner、J. F. Barry、P. Kehayias、S. Singh 和 R. L. Walsworth，《物理评论 X》8, 031025 (2018)。[8] G. de Lange、T. van der Sar、M. Blok、Z.-H. Wang、V. Do- brovitski 和 R. Hanson，《科学报告》2, 382 (2012)。[9] H. S. Knowles、D. M. Kara 和 M. Atat¨ure，《自然·材料》13, 21 (2013)。[10] J. M. Schloss、J. F. Barry、M. J. Turner 和 R. L. Walsworth，《物理评论·应用》10, 034044 (2018)。[11] C. A. Hart、J. M. Schloss、M. J. Turner、P. J. Scheidegger、E. Bauch 和 R. L. Walsworth，《物理评论·应用》15, 044020 2021( )。[12] H. Clevenson、M. E. Trusheim、C. Teale、T. Schroder、D. Braje 和 D. Englund，《自然·物理》11, 393 (2015)。[13] P. Kapitanova、V. V. Soshenko、V. V. Vorobyov、V. Yaroshenko、S. V. Bolshedvorsky、V. Sorokin 和 A. Akimov，载于 *Quantum Photonic Devices 2018*，第 10733 卷，由 C. Soci、M. Agio 和 K. Srinivasan 编辑，国际光学与光子学学会（SPIE，2018），第 9–15 页。[14] E. R. Eisenach、J. F. Barry、L. M. Pham、R. G. Rojas、D. R. Englund 和 D. A. Braje，《科学仪器评论》89, 094705 2018( )。[15] I. Fescenko、A. Jarmola、I. Savukov、P. Kehayias、J. Smits、J. Damron、N. Ristoff、N. Mosavian 和 V. M. Acosta，《物理评论·研究》2, 023394 (2020)。[16] E. R. Eisenach、J. F. Barry、M. F. O' Keeffe、J. M. Schloss、M. H. Steinecker、D. R. Englund 和 D. A. Braje，《自然·通讯》12, 094705 (2021)。[17] T. Wolf、P. Neumann、K. Nakamura、H. Sumiya、T. Ohshima、J. Isoya 和 J. Wrachtrup，《物理评论 X》5, 041001 (2015)。[18] J. F. Barry、M. J. Turner、J. M. Schloss、D. R. Glenn、Y. Song、M. D. Lukin、H. Park 和 R. L. Walsworth，《美国国家科学院院刊》113, 14133 (2016)。[19] D. R. Glenn、D. B. Bucher、J. Lee、M. D. Lukin、H. Park 和 R. L. Walsworth，《自然》555, 351 (2018)。[20] M. W. Doherty、N. B. Manson、P. Delaney、F. Jelezko、J. Wrachtrup 和 L. C. Hollenberg，《物理学报告》528, 1 (2013)。[21] J. M. Taylor、P. Cappellaro、L. Childress、L. Jiang、D. Budker、P. R. Hemmer、A. Yacoby、R. Walsworth、以及 M. D. Lukin，《自然·物理》4, 810 (2008)。[22] W. M. Itano, J. C. Bergquist, J. J. Bollinger, J. M. Gilli- gan, D. J. Heinzen, F. L. Moore, M. G. Raizen, 和 D. J. Wineland，《物理评论 A》47, 3554 (1993)。[23] D. M. Toyli, D. J. Christle, A. Alkauskas, B. B. Buckley, C. G. Van de Walle, 和 D. D. Awschalom，《物理评论 X》2, 031001 (2012)。[24] L. M. K. Vandersypen 和 I. L. Chuang，《现代物理评论》76, 1037 (2005)。[25] G. Fuchs, V. Dobrovitski, D. Toyli, F. Heremans, 和 D. Awschalom，《科学》326, 1520 (2009)。[26] I. Friel, S. Clewes, H. Dhillon, N. Perkins, D. Twitchen, 和 G. Scarsbrook，《钻石与相关材料》18, 808 (2009)，Diamond 2008 会议论文集，第19届欧洲金刚石、类金刚石材料、碳纳米管、氮化物和碳化硅会议。[27] U. F. D'Haenens-Johansson, A. Katrusha, P. Johnson, W. Wang, *et al.*，《宝石与宝石学》51 (2015)。[28] A. Tallaire, V. Mille, O. Brinza, T. N. T. Thi, J. Brom, Y. Loguinov, A. Katrusha, A. Koliadin, 和 J. Achard，《钻石与相关材料》77, 146 (2017)。[29] T. Teraji, T. Taniguchi, S. Koizumi, Y. Koide, 和 J. Isoya，《应用物理快报》6, 055601 (2013)。[30] T. Teraji, T. Yamamoto, K. Watanabe, Y. Koide, J. Isoya, S. Onoda, T. Ohshima, L. J. Rogers, F. Jelezko, P. Neumann, J. Wrachtrup, 和 S. Koizu mi，Phys. Sta- tus Solidi A 212, 2365 (2015)。[31] E. Bauch, S. Singh, J. Lee, C. A. Hart, J. M. Schloss, M. J. Turner, J. F. Barry, L. M. Pham, N. Bar-Gill, S. F. Yelin, 和 R. L. Walsworth，《物理评论 B》102, 134210 (2020)。[32] V. M. Acosta, E. Bauch, M. P. Ledbetter, A. Waxman, L.-S. Bouchard, 和 D. Budker，《物理评论快报》104, 070801 2010( )。[33] G. Kucsko, P. C. Maurer, N. Y. Yao, M. Kubo, H. J. Noh, P. K. Lo, H. Park, 和 M. D. Lukin，《自然》500, 54 2013( )。[34] D. M. Toyli, C. F. de las Casas, D. J. Christle, V. V. Dobrovitski, 和 D. D. Awschalom，《美国国家科学院院刊》110, 8417 (2013)。[35] "碳化硅材料目录"，(2021)，在线；访问日期：2021年1月1日。[36] N. H. Protik, A. Katre, L. Lindsay, J. Carrete, N. Mingo, 和 D. Broido，《今日材料：物理》1, 31 (2017)。[37] J. Chen, A. Fahim, J. C. Suhling, 和 R. C. Jaeger, 载于 *2019 18th IEEE Intersociety Conference on Thermal and Thermomechanical Phenomena in Electronic Sys- tems (ITherm)* 2019 835 840 ( ) pp. –。[38] J. G. Hartnett, D. Mouneyrac, J. Krupka, J.-M. le Floch, M. E. Tobar, 和 D. Cros，《应用物理学杂志》109, 064107 (2011)。[39]《材料研究通报》27, 1407 (1992)。[40] J. F. Hoburg，《IEEE电磁兼容汇刊》37, 574 (1995)。[41] D. Le Sage, L. M. Pham, N. Bar-Gill, C. Belthangady, M. D. Lukin, A. Yacoby, 和 R. L. Walsworth，《物理评论 B》85, 121202 (2012)。[42] Z. Ma, S. Zhang, Y. Fu, H. Yuan, Y. Shi, J. Gao, L. Qin, J. Tang, J. Liu, 和 Y. Li，《光学快报》26, 382 (2018)。[43] P. C. D. Hobbs，载于 *Laser Noise*，第1376卷，R. Roy 编，国际光学与光子学学会。

（SPIE，1991）第 216–221 页。[44] P. C. Hobbs，《光学与光子学新闻》2，17（1991）。[45] K. L. Haller 和 P. C. D. Hobbs，载于 *Optical Methods for Ultrasensitive Detection and Analysis: Techniques and Applications* 1435，，第 卷，由 B. L. Fearey 编，国际光学与光子学学会（SPIE，1991），第 298–309 页。[46] P. C. D. Hobbs，《应用光学》36，903（1997）。[47] P. C. Hobbs，*Building electro-optical systems: making it all work* 2011（Wiley，）。[48] 对于四种晶体学 NV 取向中的每一种，我们都将量子化轴定义为沿 NV 轴，并将量子化轴的方向设定为使磁偏置场的投影为正的方向。[49] N. Bar-Gill、L. M. Pham、A. Jarmola、D. Budker 和 R. L. Walsworth，《自然·通讯》4，1743（2013）。[50] A. Dr´eau、M. Lesik、L. Rondin、P. Spinicelli、O. Arcizet、J.-F. Roch 和 V. Jacques，《物理评论 B》84，195（2011）。[51] Z. Kazi、I. M. Shelby、H. Watanabe、K. M. Itoh、V. Shut- thanandan、P. A. Wiggins 和 K.-M. C. Fu，《物理评论·应用》15，054032（2021）。[52] Y. Xie、H. Yu、Y. Zhu、X. Qin、X. Rong、C.-K. Duan 和 J. Du，《科学通报》66，127（2021）。[53] J. Zhang、T. Liu、L. Xu、G. Bian、P. Fan、M. Li、C. Xu 和 H. Yuan，《钻石与相关材料》125，109035（2022）。[54] L. Jiang、J. S. Hodges、J. R. Maze、P. Maurer、J. M. Taylor、D. G. Cory、P. R. Hemmer、R. L. Walsworth、A. Yacoby、A. S. Zibrov 和 M. D. Lukin，《科学》326，267 2009（）。[55] P. Neumann、J. Beck、M. Steiner、F. Rempp、H. Fedder、P. R. Hemmer、J. Wrachtrup 和 F. Jelezko，《科学》329，542（2010）。[56] I. Lovchinsky、A. O. Sushkov、E. Urbach、N. P. de Leon、S. Choi、K. De Greve、R. Evans、R. Gertner、E. Bersin、C. M¨uller、L. McGuinness、F. Jelezko、R. L. Walsworth、H. Park 和 M. D. Lukin，《科学》351，836（2016）。[57] N. Arunkumar、K. S. Olsson、J. T. Oon、C. Hart、D. B. Bucher、D. Glenn、M. D. Lukin、H. Park、D. Ham 和 R. L. Walsworth，“固态自旋系综中的量子逻辑增强传感”（2022）。[58] J. Ebel、T. Joas、M. Schalk、P. Weinbrenner、A. Angerer、J. Majer 和 F. Reinhard，《量子科学与技术》6，03LT01（2021）。[59] A. M. Edmonds、C. A. Hart、M. J. Turner、P.-O. Colard、J. M. Schloss、K. S. Olsson、R. Trubko、M. L. Markham、A. Rathmill、B. Horne-Smith、W. Lew、A. Manickam、S. Bruce、P. G. Kaup、J. C. Russo、M. J. DiMario、J. T. South、J. T. Hansen、D. J. Twitchen 和 R. L. Walsworth，《量子技术材料》1，025001（2021）。[60] S. T. Alsid、J. M. Schloss、M. H. Steinecker、J. F. Barry、A. C. Maccabe、G. Wang、P. Cappellaro 和 D. A. Braje，“具有皮特斯拉级灵敏度的固态微波磁力计”（2022）。[61] L. M. Pham、N. Bar-Gill、C. Belthangady、D. Le Sage、P. Cappellaro、M. D. Lukin、A. Yacoby 和 R. L. Walsworth，《物理评论 B》86，045214（2012）。[62] C. A. Ryan、J. S. Hodges 和 D. G. Cory，《物理评论快报》105，200402（2010）。[63] A. Maudsley，《磁共振杂志》（1969 69，488 1986）（）。[64] T. Gullion、D. B. Baker 和 M. S. Conradi，《磁共振杂志》（1969）89，479（1990）。[65] J. M. Boss、K. S. Cujia、J. Zopes 和 C. L. Degen，《科学》356，837（2017）。[66] S. Schmitt、T. Gefen、F. M. St¨urner、T. Unden、G. Wolff、C. M¨uller、J. Scheuer、B. Naydenov、M. Markham、S. Pezzagna、J. Meijer、I. Schwarz、M. Plenio、A. Ret- zker、L. P. McGuinness 和 F. Jelezko，《科学》356，832（2017）。[67] G. Wang、Y.-X. Liu、J. M. Schloss、S. T. Alsid、D. A. Braje 和 P. Cappellaro，《物理评论 X》12，021061（2022）。[68] S. T. Alsid、J. F. Barry、L. M. Pham、J. M. Schloss、M. F. O’Keeffe、P. Cappellaro 和 D. A. Braje，《物理评论应用》12，044003（2019）。[69] Thorlabs Inc.，个人通信（2021）。[70] E. Fraczek、V. G. Savitski、M. Dale、B. G. Breeze、P. Dig- gle、M. Markham、A. Bennett、H. Dhillon、M. E. Newton 和 A. J. Kemp，《光学材料快报》7，2571（2017）。[71] R. Freeman，《核磁共振波谱进展》32，59（1998）。[72] E. Bauch，*Optimizing Solid-State Spins in Diamond for Nano- to Millimeter-Scale Magnetic Field Sensing* ，博士论文，哈佛大学（2018）。[73] J. H. N. Loubser 和 J. A. van Wyk，《物理学进展报告》41，1201（1978）。[74] C. A. J. Ammerlaan 和 E. A. Burgemeister，《物理评论快报》47，954（1981）。[75] A. Cox、M. E. Newton 和 J. M. Baker，《物理学：凝聚态》6，551（1994）。[76] W. V. Smith、P. P. Sorokin、I. L. Gelles 和 G. J. Lasher，《物理评论》115，1546（1959）。[77] M. L. Goldman、M. W. Doherty、A. Sipahigil、N. Y. Yao、S. D. Bennett、N. B. Manson、A. Kubanek 和 M. D. Lukin，《物理评论 B》91，165201（2015）。[78] M. L. Goldman、A. Sipahigil、M. W. Doherty、N. Y. Yao、S. D. Bennett、M. Markham、D. J. Twitchen、N. B. Manson、A. Kubanek 和 M. D. Lukin，《物理评论快报》114，145502（2015）。

《金刚石中氮-空位中心系综的高灵敏度交流和直流磁力测量》补充材料

VII. 光学与机械设计

A. 激光、声光调制器、光纤耦合及向金刚石输送光线

如正文所述，拉姆齐和哈恩回波序列依赖脉冲光学激发，既用于初始化 NV^- 量子态，也用于读取这些量子态。所需的脉冲光由声光调制器（AOM）对连续波激光器的输出进行门控而产生。随后，脉冲光通过光纤传送至金刚石。图中显示了连续波激光器经声光调制器并进入光纤的光束路径11。

具体而言，产生 12 W、波长为 532 纳米的绿色激光（Lighthouse Photonics Sprout H），并使用焦距为 400 mm 的消色差透镜（Thorlabs AC254-400-A）将其聚焦至声光调制器中。选择该声光调制器（Gooch & Housego 3250-220），是因为它具有较高的衍射效率（最高达 $\approx 93\%$，具体取决于聚焦情况）、较快的上升时间（最低可达 ~ 10 ns，具体取决于聚焦情况），并且能够承受较高的光功率而不受损（因为声光调制器的晶体材料是石英，而非二氧化碲）。声光调制器用螺栓固定在一个挖空的铝块中，该铝块连接到大型无源散热器上，以防施加的射频功率因热效应损坏声光调制器。即使采用这种散热方式，占空比仍被限制在 $\lesssim 70\%$ 以内，以避免热损伤。挖空的铝块、声光调制器和散热器安装在五轴调节台（Newport 9081）上，可调整声光调制器相对于入射激光的位置和角度。通过这种调整，可以最大化声光调制器的衍射效率，从而最大化输送至光纤的光量。使用这枚焦距为 400 mm 的透镜时，我们通常可实现 87% 至 90% 的衍射效率。

驱动声光调制器射频输入端的电子设备链路如图 12 所示。信号发生器（Agilent 5182B）合成初始的 250 MHz 射频信号。随后，该射频信号依次经过两个串联开关（Mini-Circuits ZASWA-2-50-DR+）进行门控，由一个 20 dB 定向耦合器（Olektron 0-D3-20U）采样以供诊断，衰减 10 dB，经放大（Mini-Circuits ZHL-03-5W+），并在驱动声光调制器本身之前进行隔离。

AOM 的一级衍射光束经一枚焦距为 75 mm 的最佳形状透镜（Thorlabs LBF254-075-A）聚焦，耦合进入一根单模保偏光子晶体光纤（NKT Photonics LMA-PM-15）。该光纤安装在一个五轴光纤对准平台（Newport 561D-XYZ，配备 Newport 561-TILT）上。75 mm 透镜前方的两面反射镜可用于光束位置调整，并可通过粘滑式压电致动器（Newport 8302）进行调节。完成初始光纤对准后，此后只需调节这两面反射镜……

调整的是反射镜支架，而不是五轴光纤对准台。

在实验序列期间，声光调制器的门控由任意波形发生器（Tektronix 5014C）上的一个数字通道直接控制。然而，在将新序列载入内存时，任意波形发生器无法输出波形（例如，为了从进动时间扫描模式切换到磁力测量模式）。因此，在序列载入期间，计算机控制的开关（RLC Electronics SR- 2-MIN-H-TL）会将信号临时切换至另一台波形发生器（是德科技 33600A），以控制声光调制器的门控，如图12所示。这台波形发生器输出方波，其声光调制器门控占空比与实验序列中使用的相同。因此，在序列载入内存期间，施加到声光调制器的时间平均射频功率以及施加到金刚石的时间平均光功率保持不变。由于声光调制器、光纤和金刚石具有热滞后特性，且对热负载变化的响应时间较长，使用替代的声光调制器门控信号可提高传感器的稳定性，并避免切换序列后热瞬变带来的影响。

光子晶体光纤将脉冲激发光传送至磁屏蔽罩内的传感器头（参见第 IIC 节）。在传感器头处，一个$f = 50$ mm 透镜（Thorlabs AC254-050-A）将从光子晶体光纤射出的光准直。随后，光通过一个偏振分束器，该分束器的方向设置为仅透射垂直偏振光，从而将偏振噪声转化为强度噪声。将偏振噪声转化为强度噪声是明智之举；尽管这两种噪声源都会引起金刚石荧光变化，但平衡电路会校正强度噪声导致的荧光变化，却不会校正偏振噪声导致的荧光变化。通过偏振分束器后，光经一个 $f = 200$ mm 透镜（Thorlabs LBF254-200-A）聚焦到金刚石中。通过调节两个非磁性反射镜架（Radiant Dyes MDI-3-3025 非磁性）上的倾斜控制器，将激发光在空间上对准金刚石；其中一个控制光子晶体光纤的输出，另一个控制 $f = 200$ mm 聚焦透镜后的反射镜。沿光束路径平移这个 $f = 200$ mm 透镜，可改变金刚石内激发光的强度。

在进入金刚石之前，先对脉冲光学激发光进行取样；光束取样器（Thorlabs BSF10-A）前表面的反射光被送至参考光电二极管（见图 10），而光束取样器后表面的反射光则由D形反射镜（Thorlabs PFD05-03-P01）分离，并由一个诊断光电二极管进行监测。诊断光电二极管能够持续监测传输至传感器头的光，因此也能监测光子晶体光纤的耦合效率。如果诊断光电二极管信号低于某一阈值，则进入光子晶体光纤的耦合将

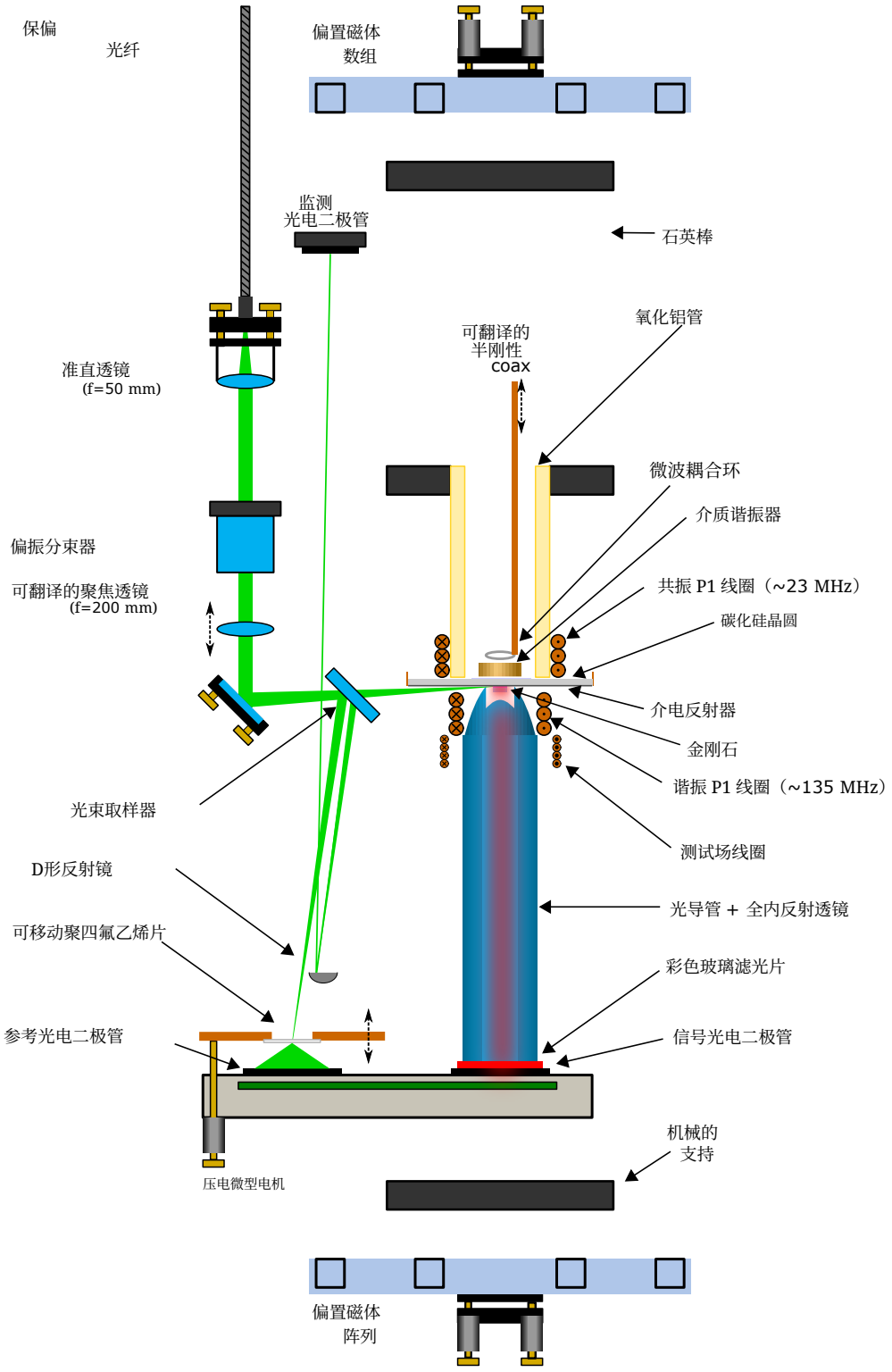

图10。**Sens　或头部示意图**。为清晰起见，省略了零件编号，但可在正文中找到。

表 II. 部分符号列表

Name	符号	近似值	单位
旋磁比	g_e	≈ 2	无量纲
玻尔磁子	μ_B	9.274×10^{-24}	J/T
真空磁导率	μ_0	1.257×10^{-16}	H/m
旋磁比	γ_e	$\approx 2\pi \times 28 \times 10^9$	$\mathrm{rad \cdot s^{-1} T^{-1}}$
静磁场	B_0	2.23	高斯
信号积分电容器	C_{sig}	6.6×10^{-9}	法拉
参考积分电容器 C_{ref}		114×10^{-9}	法拉
平均信号光电流	$\bar{I}_{\mathrm{sig}}$	4.8×10^{-3}	安培
$\bar{}$平均参考光电流 I_{ref}		82.9×10^{-3}	安培
数字化仪的读出噪声（均方根值）	σ_{dig}	0.023×10^{-3}	伏特
初始化时间	t_I	35×10^{-6} (拉姆齐)	s
		39×10^{-6} (哈恩回波)	s
自由进动时间	τ	40×10^{-6} (拉姆齐)	s
		100×10^{-6} (哈恩回波)	s
读出时间	t_R	10^{-5} (拉姆齐)	s
		10^{-5} (哈恩回波)	s
额外死区时间	t_D	6×10^{-6} (拉姆齐)	s
		7×10^{-6} (哈恩回波)	s
开销时间	t_O	5.1×10^{-5} (拉姆齐)	s
		5.6×10^{-5} (哈恩回波)	s
总序列时间	$\tau + t_O$	9.1×10^{-5} (拉姆齐)	s
		1.56×10^{-4} (哈恩回波)	s
序列重复频率	$f_{\mathrm{rep}}^{\mathrm{Ram}}$	1.1×10^4	Hz
	$f_{\mathrm{rep}}^{\mathrm{HE}}$	6.4×10^3	Hz
相对初始化效率 κ_I		0.98	无量纲

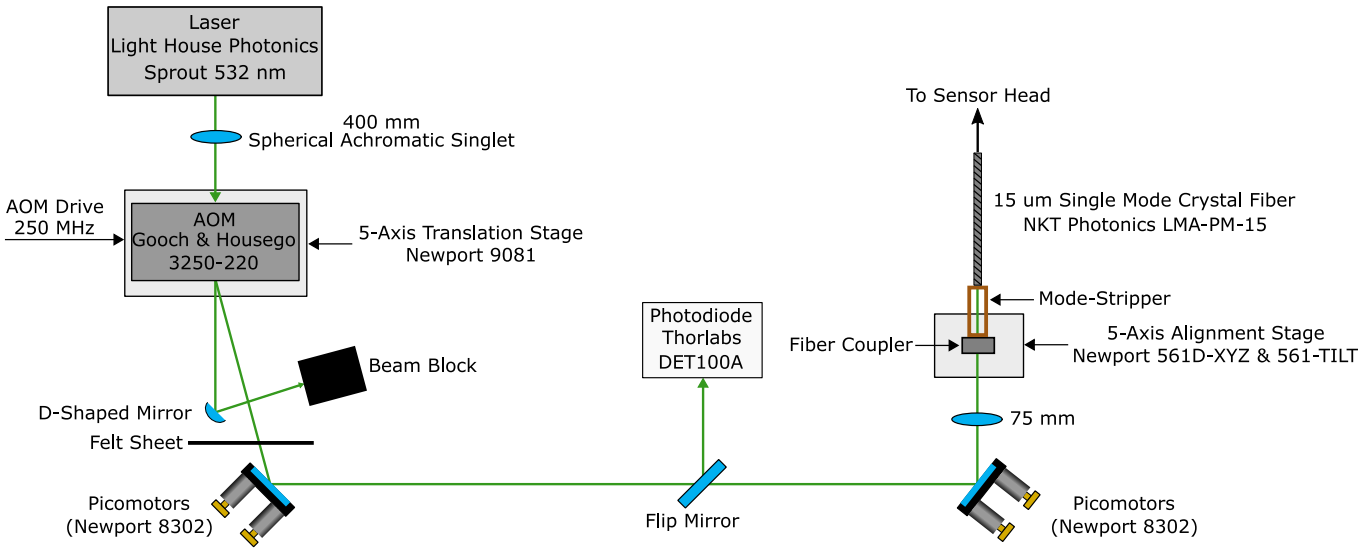

图11。**激光源光学系统**。 激光通过声光调制器后，一级衍射光束经对准后耦合进入光子晶体光纤。光子晶体光纤将光传送至传感器头。为确保安全并减小气流的影响，正常运行期间这些光学元件均置于封闭空间内。通过两面由压电滑移-粘滑式执行器驱动的反射镜，可远程调整光纤对准。

通过远程控制光子晶体光纤之前的两个对准反射镜，重新优化了对准（见图 11）。确保光高效耦合进入光子晶体光纤，可缓解多项难题；这样不仅能使光对传感器头部施加稳定的热负载，还能最大限度地降低脉冲光学激发中的对准相关强度噪声。

B. 金刚石的其他细节

金刚石晶体是一块 $3 \times 3 \times 0.62$ 毫米^3 芯片，具有 $\langle 110 \rangle$ 个侧面和一个 $\{100\}$ 前表面。为实现光俘获金刚石波导技术 [12], ，在一个边缘切出一个 250 μ米宽的刻槽，其相对于相邻侧面呈 45 度角，如图 13所示。金刚石未经辐照；因此，N 到 NV 的^{tot} 转化效率较低，估计为 $\sim 10^{-2}$。在低功率 532 纳米激发下，我们采用参考文献 [$[\text{NV}^-]/[\text{NV}^{\text{T}}] \sim \frac{2}{3}$ 中概述的装置和方法进行估算。 [68]。

C. 金刚石安装用胶粘剂的选择

在某些条件下，发现将金刚石粘接到碳化硅散热器上的粘合剂类型会对磁共振的线宽产生不利影响。我们推测，使用多种粘合剂时观察到的谱线展宽，是由于金刚石、碳化硅和粘合剂之间热膨胀系数的差异，在使用初始化/读出激光加热时使金刚石承受了较大的应力。此外，粘合剂在固化过程中的膨胀或收缩，即使在没有温度变化的情况下，也可能产生应力。无论产生应力的具体机制如何，我们假设杨氏模量较低的粘合剂最不容易引起谱线展宽。此外，理想的粘合剂应能够承受高达约 100℃ 的温度，对可见光透明，具有较高的热导率和较低的介电损耗（以避免吸收介电谐振器施加的微波），并且易于去除，无需特别复杂的操作（例如，优先选择可通过在丙酮中超声处理去除的粘合剂，而不是需要浸入加热硫酸中才能去除的粘合剂）。

为评估黏合剂造成的应变，首先测量了金刚石通过双面胶带粘附在碳化硅晶圆上，并使用脉冲光探测磁共振 [50] 进行探测时的共振线宽；这种方法得到的线宽稳定且较窄，因此假定未发生展宽。随后，将这些线宽与使用黏合剂将金刚石粘接到碳化硅晶圆上时测得的线宽进行比较。我们测试了多种黏合剂；导致线宽显著展宽（$\gtrsim$ 20kHz）的黏合剂包括 Loctite 454 和 Loctite 495（氰基丙烯酸酯）、Devcon 20845 五分钟环氧胶，以及 Clear Gorilla Glue（聚氨酯）。使用这些黏合剂均无法稳定获得较窄的磁共振线宽。无论金刚石是安装在碳化硅还是蓝宝石上，也无论衬底是否镀有反射性介电质镜面涂层，都观察到了线宽展宽。

最终，使用 Sylgard 184（聚二甲基硅氧烷，也称为 PDMS）将金刚石粘附到碳化硅晶圆上，没有造成额外的展宽。选择 PDMS 是因为它的杨氏模量异常低（$\sim$ 2 MPa），而且符合上述理想粘合剂的大多数标准。

D. 光捕获金刚石波导细节

预计光陷阱金刚石波导技术对入射光相对于金刚石平面的偏振状态敏感 [12], ；我们还发现，产生的荧光量也强烈取决于激光传播轴相对于金刚石入射面的角度。尽管激光通过保偏光纤传送至传感器头，但后续的偏振片可确保施加到金刚石上的激光偏振状态一致。此外，金刚石与碳化硅组件的定制支架可以可重复地微调金刚石表面相对于入射激光的角度。该支架由多个部件组成，其中包括一个用于夹紧金刚石/碳化硅组件的圆柱形嵌件。嵌件带有杠杆臂，支架的固定部分则设有顶丝，分别抵住杠杆臂两侧。调节这些螺钉即可旋转嵌件，从而带动金刚石/碳化硅组件旋转，同时基本保持金刚石的位置不变。

不过，光捕获金刚石波导技术会给磁力计设计带来额外的考量。由于该技术会激发 NV 层中的所有 NV 中心，因此偏置磁场和微波磁场必须在整个体积内足够均匀，同时微波场和 P1 场必须足够强。

E. 光收集详情

全内反射透镜通过光学环氧树脂（Epotek 302-3M）与一根长 125 mm 的六边形 BK7 光导管（Edmund Optics #$84-535$）连接。光导管后接一片厚 3 mm 的 Schott RG645 彩色玻璃滤光片（Edmund Optics #66-097），再接一只 28 mm $\times$ 28 mm 光电二极管（滨松 S3584-09）。光导管与滤光片之间以及滤光片与光电二极管之间均未使用折射率匹配油或黏合剂。

实验中使用了两种全内反射透镜：一种塑料全内反射透镜（Carclo Optics，#10193），以及一种定制的硼硅酸盐全内反射透镜，其几何形状与塑料全内反射透镜相似。所有光收集效率测量均使用塑料全内反射透镜完成，而硼硅酸盐全内反射透镜则用于所有

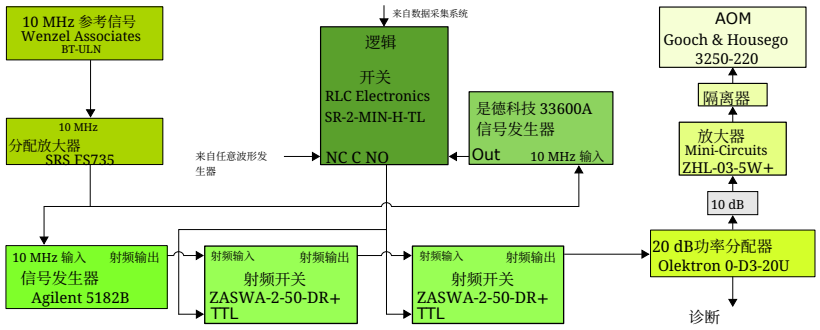

图12. **声光调制器信号链**。 一个250 MHz信号经过两个射频开关进行门控，随后被放大并发送至声光调制器。

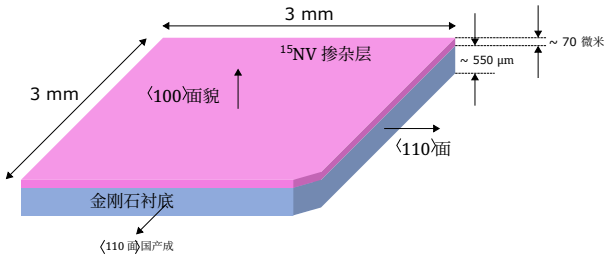

图13. 本研究所用的金刚石几何结构。 ^{15}氮空位中心-层厚度约为 70 μ 米，生长在厚度约为 550 μ 米的衬底上。一个角切削成斜面，以便采用金刚石光陷阱波导技术。

磁力测量。两个全内反射透镜的集光效率相近，但硼硅酸盐透镜在意外受到聚焦激光照射时不会烧焦或熔化。全内反射透镜上的一个小型（~ 1毫米^2）三角形缺口可使 532 纳米激发光到达金刚石。

一种不可忽略的损耗机制可能源于介电反射器堆栈在某些角度下无法完美反射 NV 发射波长 $\gtrsim$ 700 纳米 [69]的 p 偏振光。我们估计，该机制会导致 1% 至 10% 的 NV$^-$ 荧光损耗。未来可通过在碳化硅晶圆上涂覆定制涂层，而非使用现成的宽带反射涂层（Thorlabs E02），来减少或消除此项损耗。预计金刚石中的氮或氮空位中心对荧光的吸收很小，约为 1% 或更低 [1, 70]。

这种光收集方案无需改变金刚石板原有的长方体形状，这是其他增强光收集方案所不具备的一项潜在优势 [17]。然而，对收集系统进行基于光线追迹的建模（Zemax）表明，对于长方体形钻石，金刚石内部存在光无法逸出的闭合路径。我们通过对一块尺寸为 3 mm $\times$ 3 mm $\times$ 0.5 mm 的金刚石的一个大面进行粗化，验证了这一假设。我们发现，使用金刚石砂纸（Thorlabs LF30D）粗化表面后，收集到的光增加了 30 %。尽管本文所收集的数据并未采用粗化技术，但这一方法或许对该器件未来的迭代版本有价值。

此外，还采用了一颗明亮的明亮式切割钻石来评估系统的集光效率。将经过校准的绿光功率施加到这颗明亮式切割钻石上，并测量收集到的红色荧光量。施加与 116 mA 直接光电流相对应的 532 纳米激发功率后，由收集到的红色荧光产生的光电流为 28.6 mA。其中，这些光电流已根据量子效率进行缩放（532 纳米与 ~ 700 nm 的量子效率不同），从而确保每单位光电流在不同波长下均对应相同的光子通量。

校正金刚石入射面处 17% 的损耗后，这相当于绿色输入光子到红色收集光子的转换效率为 0.30。金刚石和 NV 系统均存在多种损耗机制（氮对 532 纳米光的吸收、未能从金刚石中逸出的闭合光路、经过滤波波长处 NV^0 缺陷的吸收及随后产生的荧光，以及 NV 系统非 100% 的辐射效率），因此这一数值不能直接用作 η_{geo} 的估算值。然而，使用给定的测试金刚石，输入光子近乎以 100% 的效率转换为收集到的荧光光子，这充分展示了该收集系统异常出色的效率。

尽管该系统的几何收集效率很高，但光学读出中仍存在其他效率损失。光电二极管在 700 nm 及以上波长处的量子效率为 95%，在 600-825 nm 范围内则高于 90%。如上文所述，并非所有发出的光都能逸出该长方体形钻石。最后，所选的介质反射涂层对于 p 偏振 NV$^-$ 发射光可能并非最优，其中一部分该偏振光的角分布会穿过介质涂层逸出。

F. 关于平衡电路的更多细节

正如正文所述，NV 荧光光电流的散粒噪声极限读出受到激光强度噪声和数字化仪动态范围有限这两方面因素的影响。

数字化仪的动态范围定义为均方根满量程与数字化过程中引入的均方根加性噪声之比。理想情况下，这种加性噪声应小于信号光电流上的散粒噪声，以免降低磁力计的信噪比（SNR）。与此同时，数字化仪需要对光电流脉冲的整个满量程范围进行数字化。这两个条件共同决定了数字化仪的动态范围要求。遗憾的是，预期的光电流（~ 10 mA）导致所需动态范围达到或超出现有数字化仪的能力。在文献 [10, 18] 所述的连续波光探测磁共振实验中，通过对光电二极管信号进行交流耦合，克服了这一难题；这样，数字化仪的量程只需覆盖光电流中占直流值百分之几的对比度，而不必覆盖整个光电流。然而，对于脉冲式拉姆齐磁力计，这种变通方法显然并不适用，因此需要采用其他方法。

此外，532 nm 激发光上的分数强度波动通常会转化为 NV 荧光发射中幅度相近的分数波动。在千赫兹量级及以下的频率上，这些分数强度波动往往远高于散粒噪声。例如，一款数瓦级高品质绿色激光器（如 Coherent Verdi V 或本研究使用的 Lighthouse Photonics Sprout）的噪声指标规定为：从 10 Hz 到 1 GHz 的积分噪声总量约为 0

.02%。实验发现，这种激光强度噪声会使采集到的NV 光电流噪声高于散粒噪声，幅度约为 30×-100× 。若不加以抑制，噪声增加将直接导致灵敏度按相同比例变差。正如正文所述，我们的器件采用了平衡电路，以绿色激发光作为荧光光电流的参考信号。这种方法基本解决了上述两个问题，下面将对此进行详细说明。

在状态读出期间，NV荧光被引导至一个光电二极管（称为信号光电二极管），该二极管会在$t_{\mathrm{R}} = 10$ μ秒的读出时长内将入射光转换为光电流。该信号光电流的¯平均值为 I_{sig}，并由一个容值为 $C_{\mathrm{sig}} = 6.6$ nF 的电容器积分。同时，对 532 纳米激发光进行取样，并将其引导至一个相同的光电二极管（称为参考光电二极管），该二极管产生¯平均光电流 I_{ref} ，并由一个容值为 $C_{\mathrm{ref}} = 114$ nF 的电容器积分。为降低此参考步骤带来的噪声贡献，参考光强设得高于信号光强，因此需要使用更大的电容器，详见第 XIIIA节。读出光脉冲结束后，信号电容器和参考电容器上的电压分别与读出期间各自光电二极管检测到的积分光电流成正比。随后，信号电容器和参考电容器上的电压相减，并由仪表放大器放大。完成数字化后，由晶体管-晶体管逻辑信号控制的模拟开关（Vishay Si1900DL）会将两个积分电容器接地，直至下一次读出激光脉冲到来前，之后重复这一过程。

仪表放大器的输出被传送至一台 50 Ω 分配放大器（SRS FS730），其四个输出通道输入一台 4 通道数字化仪（Gage Applied Razor Express CSE1632），并在软件中取平均值。延长数字化周期可以降低数字化仪带来的噪声。我们发现，在 200 MHz 采样率下，0.4 μs 的数字化周期足以将运行期间数字化仪的加性噪声限制在 $\approx 2.4\%$ 的散粒噪声以内，详见第 XIIIA 节。正如第 XIII A 节进一步详述的那样，完整平衡电路和数字化系统的性能接近最优，其噪声仅比 NV≈ 5荧光光电流本身的散粒噪声极限高 - %。

为便于故障排查，非磁性机械开关还可将信号光电二极管和参考光电二极管分别端接到平衡电路板上配备的50 Ω电阻器。两个50 Ω端接电阻两端的电压可通过两个SMA连接器获得。这些信号可连接至示波器的高阻输入端。该模式适用于执行初始激光对准、检查信号和参考光电流值，以及粗略检查稳定性/噪声。还可以评估光电二极管的上升时间，但这需要低阻抗端接。

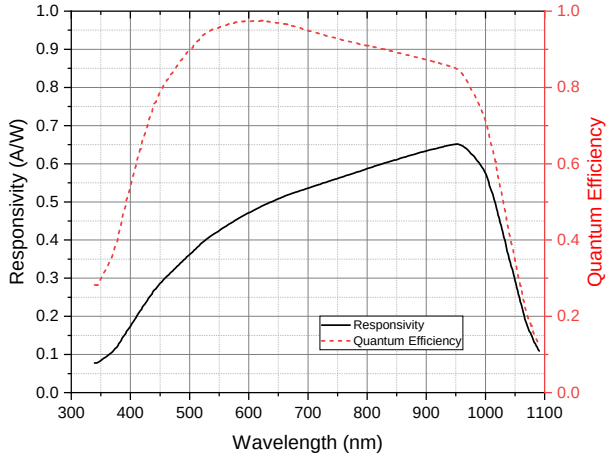

图14. **光电二极管的量子效率和响应度**。数据根据制造商滨松提供的图表重新绘制。

1. *Balancing circuit electrical design considerations*

系统设计还需考虑以下因素。首先，使用了有效面积为28 mm × 28 mm的大型光电二极管（滨松S3584-09）。由于收集系统的展度是守恒量，大面积光电二极管能够收集从金刚石发射的几乎所有 4π 立体角内的光，如第 II B2节所述。所选光电二极管在600 nm附近采用增透膜镀层以实现最高效率，如图 14所示。制造商规定的量子效率为 $> 90\%$，覆盖500 nm至825 nm范围，与NV^- 发射光谱（∼ 600至850 nm）具有良好的重叠。在早期原型中，使用的是较小的光电二极管（滨松S3590-09），但后来更换为当前的光电二极管，以提高光收集能力。

遗憾的是，较大的光电二极管面积必然伴随着较大的电容，这很容易导致上升时间过长，无法满足要求。通过增大反向偏置电压 [47]，可以降低光电二极管的电容。因此，光电二极管采用 +32 V 的反向偏置电压，使其电容约为 330 pF，3 分贝带宽约为 10 MHz，预期上升时间为 35 ns。对于大多数所需的诊断应用而言，这一上升时间已经足够快，而且远快于磁力测量运行所需的速度，因为在磁力测量运行中，所有光电流都会在一个 10 μs 的读出周期内积分。理想情况下，为了保留有关金刚石荧光时间形状的信息，NV信号的上升时间应由 ^{3}E 激发态寿命（约 13 ns） [20], 决定，而不应受光电二极管电容的限制。如果有需要，可以将平衡电路替换为面积更小、响应速度更快的光电二极管，以用于此类诊断，但对于本研究而言，这并无必要。

每个光电二极管反向偏置电压上的噪声

可能会导致采集到的光电流出现噪声。每个光电二极管的反向偏置电压都经过两个串联的电容倍增器滤波 [47]，随后接入三个 33 μF 非磁性钽聚合物电容器（Kemet T543X336M050AHE040）并联组成的电容组，并将其置于每个光电二极管附近。电压滤波效果足够显著，即使切断光电二极管偏置电源，电路仍能继续运行数秒。

如第VIIF 节和正文所述，平衡电路采用仪表放大器架构。该架构可确保良好的共模抑制，并放大信号积分电容器与参考积分电容器上的电压差。用于构成仪表放大器的运算放大器为亚德诺半导体 ADA4898-1，之所以选用它，是因为其 $1/f$ 噪声拐角频率低（约为 10 Hz），且动态范围出色；该器件的输入电压噪声密度为 $e_n = 0.85\ \mathrm{nV}/\sqrt{\mathrm{Hz}}$，共模电压摆幅高达 ± 11.4 V。每个运算放大器均由两个保护二极管（1N4148）防护，以免受到任一极性的差分过压影响。此外，仪表放大器的两个输入端均由两个串联的瞬态电压抑制（TVS）二极管防护，以免受到共模过压影响（Littelfuse SLVU2.8HTG 和 Texas Instruments TPD1E05U06DPYT）。

根据图中的电阻器数值2，仪表放大器的增益应为 15.36。然而，为了与连接到 SRS 分配放大器的 50 欧姆同轴线实现阻抗匹配，在同轴线上串联一个 50 Ω 电阻器，从而使有效增益降至 $15.36/2 = 7.68$。

正确选择用作积分电容器的电容器类型，对电路按设计运行至关重要。所选用的积分电容器是非磁性（经实证确定）的薄膜电容器（Kemet R82MC2100DQ50K 或类似产品）。使用薄膜电容器，是因为与其他常用类型的电容器相比，它们不易出现声学机电共振或其他非理想行为。我们注意到，还试用了许多其他电容器，包括 C0G、Y5V、Z5U 和 X7R 陶瓷电容器。Y5V、Z5U 和 X7R 电容器会产生振铃，这被认为是电容器的压电共振所致。使用薄膜电容器或 C0G 陶瓷电容器时，均未观察到有害振铃。最终选择薄膜电容器而非 C0G 电容器，是因为更容易采购到多种数值且经实证确认无磁性的型号。积分电容器的数值根据给定的积分时间和信号光电流进行选择，使每个电容器上的积分电荷产生约 8 V 的电压，略低于用于保护运算放大器的 TVS 二极管的导通阈值。较低的积分信号电压并不可取，因为仪表放大器和数字化仪中都存在固定的附加读出噪声。

有时需要调整积分电压-平衡电路的信号臂或参考臂上的光强。在理论上，当两条支路完全平衡时，预期能够获得最佳的噪声抵消性能。此外，在实际应用中，如果两条支路的光强偏离平衡状态过大，平衡电路将无法正常工作；平衡电路后级的仪表放大器要求读出光脉冲之后每个积分电容器上的电压足够接近，以避免放大器输出进入饱和状态。

有两种方法可以平衡两臂。通过更换积分电容器进行粗略平衡调节。日常运行所需的精细平衡调节，则通过平移一片安装在参考光电二极管前方、距离可调的薄特氟龙片来实现。使用非磁性致动器（Newport 8301-UHV-NM Picomotor）即可远程完成这一平移。我们还尝试了其他几种方法，但效果都不够理想，包括给其中一个电容器施加直流偏置电压，以及加热其中一个电容器。然而，通过电容器电压偏置来调节平衡，需要使用高-κ 介电常数电容器（X7R、Y5V），这会产生振铃，推测是由压电共振所致。通过温度进行调节的速度慢得无法接受，而且同样需要使用性能不理想的电容器。另一方面，机械式平衡调节易于实现和排查故障。

VIII. 偏置磁场

A. 关于偏置磁场的设计、构建和对准的更多细节

偏置磁场 $\mathbf{B_0}$ 由两组圆形磁铁阵列产生，分别置于金刚石大面积 $\{100\}$ 表面的两侧。每组阵列由八块轴向磁化的圆柱形 Sm_2Co_{17} 永磁体组成，每块直径和长度均为 12.7 mm。每组阵列中的八块磁铁沿直径为 173.2 mm 的圆形布局周边对称排列；磁铁的轴向磁化方向垂直于圆形布局平面。每组阵列中的磁铁固定在一个整体式轮辐结构的周边，该结构由陶瓷塑料复合材料（Somos PerFORM）3D 打印而成，并用尼龙螺钉夹紧固定。选择 Sm_2Co_{17} 磁铁而非传统 NdFeB 磁铁，是因为前者的温度系数较低，约为 -0.03%/K。两组阵列的中心均沿垂直于金刚石最大 $\{100\}$ 表面的方向放置，距离为 ≈ 590 mm。

如正文所述，偏置场的对准对于最大限度地提升磁力计的性能至关重要，主要基于两个方面的考虑。首先，应尽可能减小金刚石内部的梯度，因为此类梯度会缩短观测到的退相干时间。其次，对于诸如此类的方案。

如本工作中的情况，偏置磁场应精确地等量投影到全部四个 NV 取向上，从而使不同取向的跃迁共振由相同的微波频率激发。为有助于满足这两个标准，每个轮辐结构的轮毂都安装在非磁性反射镜支架上，该支架可对圆形磁体阵列进行俯仰、倾斜和轴向平移（朝向或远离金刚石）调节。

阵列的调节过程如下：首先，将一个阵列放置在距离金刚石约295 mm的位置，同时使用脉冲光探测磁共振监测磁共振光谱，并手动调整阵列的方向 [50]。当NV取向呈现简并状态，且重叠跃迁的线宽大致达到最小值后，通过远程控制非磁性反射镜支架上的压电滑动执行器（Newport 8301-UHV-NM Picomotor），进一步精细调整对准，以减小观测到的线宽。随后，将第二个阵列添加到装置中，并重复相同的过程。最后，将磁力计配置为双量子拉姆齐进动时间扫描模式，以测量自由感应衰减，并反复调整压电滑动执行器，使观测到的 T_2^* 达到最大值。

为了在对准过程中实时估算 T_2^*，首先对自由感应衰减测量信号进行均值扣除和希尔伯特变换，以生成复数信号。该复数信号的模值即为自由感应衰减（FID）的包络。假设 $p = 1$，对包络进行线性化处理并拟合，从而得到 T_2^* 的估计值。

B. 偏置磁场梯度

施加于金刚石的偏置磁场在空间上的变化会使 NV⁻ 塞曼共振展宽，从而降低拉姆齐磁力测量的灵敏度。为尽量减小磁场梯度对退相干时间的不利影响，梯度引起的线宽应远小于总线宽。换言之，在角进动频率为 γ_e 的 SQ 基底中，系综上的梯度 ΔB 理想情况下应满足

$$\gamma_e \Delta B \ll \frac{2}{T^*_{2,\mathrm{SQ}}}. \tag{5}$$

在 DQ 基底中，必须考虑加倍的进动速率 $2\gamma_e$；除非满足以下条件，否则梯度会造成问题：

$$\gamma_e \Delta B \ll \frac{1}{T^*_{2,\mathrm{DQ}}}. \tag{6}$$

对于我们实验中测得的典型双量子退相干时间，$T^*_{2,\mathrm{DQ}} = 30$ μ秒，磁场梯度会降低测得的退相干时间，除非在用于传感的 NV⁻ 中心所覆盖的体积内，$\Delta B \ll 200$ nT。

IX. 微波

A. 关于微波传输和介质谐振器的更多细节

如正文所述，拉姆齐和哈恩回波脉冲序列 [7, 11] 依靠共振微波脉冲来操控 NV⁻ 系综的塞曼子能级。这项任务可分为四个主要部分：生成微波信号、对微波信号进行高斯包络整形、功率放大，最后将微波场施加到 NV⁻ 系综上。完整的信号链（包括微波隔离器）如图15所示。

采用所选的偏置磁场对准方式（见第IIC节），双量子方案需要四个不同的微波频率，以寻址两种核自旋态的所有塞曼跃迁。四路微波信号分别生成（Rohde & Schwarz SMA 100B），然后各自进行数字移相（亚德诺半导体 HMC647ALP6E；见附录IXC），之后再合并（Narda 4456）。这种实现方式可对四路不同的微波信号分别进行频率、振幅和相位控制。随后将合成的微波信号分路（Weinschel 1515），其中一半功率送至相位噪声分析仪（Keysight E5052B 或 Rohde & Schwarz FSWP8）进行诊断或接入终端，另一半功率则送至混频器的本振端口以进行脉冲整形，下一节将对此进行讨论。

为降低交叉激发误差，采用高斯包络微波脉冲，而非方形包络微波脉冲 [24, 25, 71]。拉姆齐序列所需的两个高斯包络由任意波形发生器（Keysight 33622A）上的专用通道生成，并在适当时刻触发每个包络（Tektronix AWG5014C）。对于哈恩回波序列，另一个任意波形发生器（Keysight 33622A）生成回波脉冲的高斯包络，且回波脉冲的长度设为 π （Ramsey）脉冲的两倍。所有高斯包络均经过低通滤波（Mini-Circuits BLP-1.9+）、合并（Weinschel 1515），并在驱动混频器（Watkins Johnson M1K）的中频端口之前衰减 16 分贝。上一段所述的合成微波信号驱动混频器的本振端口，因此在混频器的射频端口生成所需的高斯包络微波脉冲。高斯包络微波脉冲的半高全宽（FWHM）以电压而非功率测量，拉姆齐脉冲为 0.6 μs，哈恩回波脉冲为 1.2 μs。

从混频器的射频端口输出的信号经过放大器（Mini-Circuits ZVE-8G+）放大，并通过高通滤波器（Mini- Circuits VHF-2000+）进行高通滤波，随后通过低损耗同轴电缆（Carlisle UTiFLEX UFB311A）传输至传感器头。在放大器前后紧邻的位置分别放置了一对 20 分贝定向耦合器；两个定向耦合器的耦合端口均连接至一个

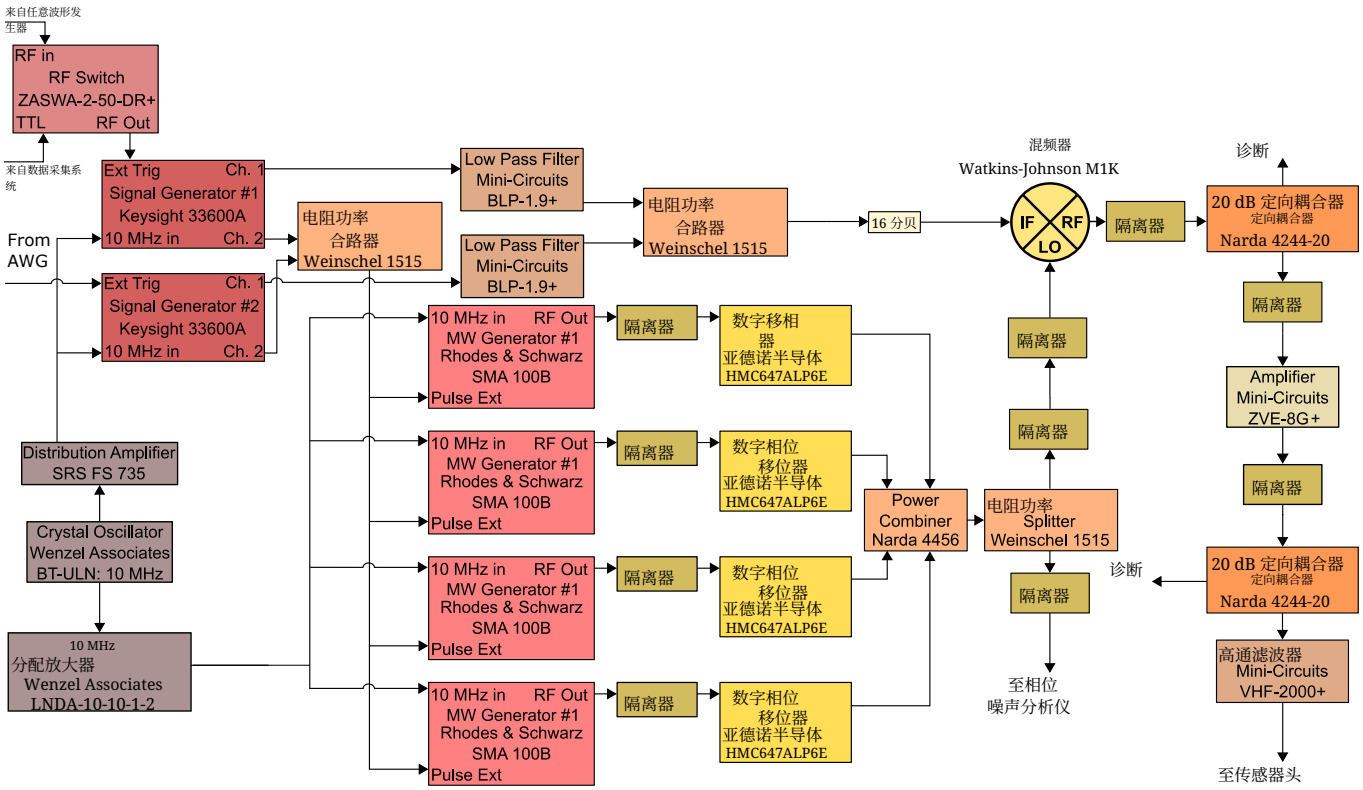

图15. **微波信号生成与控制**。生成的微波经过隔离器和数字移相器后进行合成，并发送至混频器的本振端口。另行生成一个独立的高斯信号，经过低通滤波器后发送至混频器的中频端口，从而产生高斯包络微波脉冲。所得信号经过放大和高通滤波后，发送至传感器头。

用于诊断的 40 GS/s 示波器。实时查看实际的高斯包络微波脉冲，有助于诊断同步、参考时钟或其他与时序相关的问题。

为降低所需微波功率并改善金刚石上的 B_1 均匀性，传感器头在金刚石附近采用圆柱形介质谐振器来产生 B_1 磁场。介质谐振器直径为 13.85 mm，高度为 6.22 mm，相对介电常数为 $\epsilon_r \approx 45$，并以 $TE_{01\delta}$ 模式工作。介质谐振器安装在非磁性、非导电的平移机构上，并压在碳化硅晶圆上（由于碳化硅的相对介电常数为 $\epsilon_r \approx 10$，这会降低谐振频率），位于金刚石的另一侧。由于介质谐振器不导电，因此不会干扰施加到传感器上的亚 MHz 交流磁场。微波辐射通过一个由 0.141 英寸半刚性非磁性同轴电缆（Tek-Stock UT-141C）制成的环形天线耦合进入介质谐振器。使用矢量网络分析仪调整耦合环相对于介质谐振器的位置，以实现临界耦合，并在介质谐振器附近添加微波吸收泡沫。这种泡沫拓宽了介质谐振器的共振范围，使其覆盖所有必要的 NV^- 共振。一个直径为 56 mm、由厚 60 微米的铜箔制成的环形结构为介质谐振器提供部分屏蔽；若无此屏蔽，则无法观测到共振。数值模拟表明，该铜箔对施加的交流测试磁场影响可忽略不计。

B. 双量子微波脉冲优化

如正文所述，传感器采用双量子（DQ）协议，相较于单量子比特（SQ）协议具有性能优势。本文将详细介绍双量子协议中所应用微波脉冲的优化过程。

为确保实验重复之间的一致性，微波频率 f_1, f_2, f_3, f_4 被限制为 f_{rep} 的整数倍， f_{rep}是执行测量序列的速率。例如，当以 $f_{\mathrm{rep}} = 5500$ Hz 执行拉姆齐干涉测量序列时，所有微波频率都被限制为 5500 Hz 的整数倍。此限制可确保所有微波信号在每个测量序列中的相位相同。忽略此限制时，会在频率 $f_i \bmod f_{\mathrm{rep}}$、 $f_i - f_j \bmod f_{\mathrm{rep}}$ 处出现强烈的杂散信号，以及更高阶的产物。由于微波态制备脉冲的时长与微波载波频率之间的 $1/[f_i - f_j]$ 拍频周期相近，这些脉冲之间时而相长、时而相消的干涉程度可能解释了在 f_1, f_2, f_3, f_4 未被限制为 f_{rep} 的整数倍时出现杂散信号的原因。

对于拉姆齐序列，频率和功率的四个微波源分别按如下方式设置。首先，将器件设为进动时间扫描模式，并分别调整四个不同频率，使其在单量子协议的自由感应衰减（FID）中获得最大条纹振幅。此处，每个微波信号的功率和频率均独立优化。接着，将所有四个微波源的功率提高 3 分贝，以在双量子协议中实现 π 脉冲，记为 π_{DQ}。此时，关闭对应于一个 ^{15}NV核自旋态的信号发生器，并检查自由感应衰减条纹频率，确保双光子跃迁尽可能接近共振。随后，对应于另一个 ^{15}NV核自旋态的信号发生器也重复这一过程，然后开启全部四个信号发生器。我们注意到，在拉姆齐扫描序列的给定进动时间处，来自两组双量子共振的自由感应衰减条纹可能发生相长干涉或相消干涉。由于所施加的微波频率必须为实验重复频率的整数倍，因此无法使两组双量子共振的双光子失谐完全匹配。可独立调整每个信号发生器在最终拉姆齐脉冲期间施加的相移，以确保在给定进动时间处，自由感应衰减条纹实现最大相长干涉。此外，调整这四个相位还能使自由感应衰减信号在选定进动时间处的斜率最大化（即使自由感应衰减曲线在给定进动时间处出现过零点）。

随后，将器件加载至拉姆齐磁测模式，并采用选定的进动时间 τ，同时施加一个较弱的测试磁场。改变施加到各个发生器上的末脉冲相移，以观察何时测试磁场信号达到最大值。然而，四台微波发生器的参数无法彼此独立地完全优化。为校正放大器饱和、非共振交叉激发以及微波频率之间的干扰，再次调节每台微波发生器的功率，以使测试磁场信号幅度最大化。进一步的优化通过迭代调节各发生器的频率、功率，以及必要时的末脉冲相位来实现。通过同时改变全部四台发生器的频率，补偿金刚石温度的微小变化。由于发生器在频率变化时无法保持微波相位之间的一致相对关系，即使同时改变各发生器的频率，也需要调节施加的功率，以补偿拉姆齐脉冲期间不同程度的相长和相消干涉。不过，通常只有当发生器频率的变化改变了某个双量子共振对的双光子失谐时，才需要进一步改变末脉冲相移。

对于哈恩回波序列，优化过程与拉姆齐模式下相同，但需禁用回波脉冲。就在从进动时间扫描模式切换到磁力测量模式之前，启用回波脉冲。回波脉冲的长度设置为拉姆齐脉冲长度的两倍。

脉冲 [4], 并且，正如预期，该脉冲长度经确认能够提供观测到的最佳退相干时间。

C. 数字移相器

对于基于相位调制的噪声消除方案、共振自由感应衰减振荡的观测，以及传感器在干涉仪条纹最大斜率处的运行（见第 IIG节），必须对所施加的微波信号进行相位控制。然而，研究发现，模拟移相器固有的加性噪声和非线性会产生不必要的微波调制，其程度足以使其成为该器件的主要噪声来源。因此，本研究采用数字移相器实现相位控制。

如图15所示，每个微波发生器的输出端均连接一个 6 位数字移相器（Analog Devices EV1H MC647ALP6）。每个移相器均可独立控制，所需的相移被加载到 USB 数字输出器件的缓冲区中，任意波形发生器发出的触发信号则使输出依次切换至所需的相位。这种解决方案能够灵活且近乎瞬时地重新编程相移，例如，启用或禁用产生共振时自由感应衰减的相位调制，或在不同的噪声扣除方案之间进行切换。

尽管我们发现数字移相器的性能优于模拟实现，但也注意到这些器件存在两项不足。首先，移相器在产生预期相移的同时，也会导致幅度略有变化。其次，器件的分辨率有限，而且施加的相移并非完全独立于频率。因此，实际施加的相移可能与预期值略有偏差。

X. P1 驱动

A. P1 共振频率计算

要对 P1 中心进行近共振驱动，必须确定它们在静态偏置场 B_0 下的跃迁频率。这些频率可由自旋哈密顿量 H_{P1} 的本征能量计算得到，该哈密顿量描述替位 ^{15}N 缺陷。忽略应变和核塞曼相互作用时，完整的自旋哈密顿量为:

$$\frac{H_{P1}}{h} = \frac{\mu_B}{h}\mathbf{B}\cdot\mathbf{g}\cdot\mathbf{S} + \mathbf{S}\cdot\mathbf{A}\cdot\mathbf{I}, \tag{7}$$

其中 μ_B 为玻尔磁子， h 为普朗克常数，$\mathbf{B}$为磁场，$\mathbf{g}$ 为电子 g 因子张量，$\mathbf{S}$为电子自旋矢量（$S = 1/2$），$\mathbf{A}$ 为超精细张量，$\mathbf{I}$ 为核自旋矢量（$I = 1/2$） [72], 且由于 $I = 1/2$ 对于^{15}N，不存在电子四极效应。动态 Jahn-Teller 效应 [73, 74]使 P1 缺陷沿任意一条 $\langle 111\rangle$ 晶轴发生位移，从而形成三方对称性。对于特定的 [111]方向，可通过变换到主坐标系来简化哈密顿量，此时 $\mathbf{g} = \mathrm{diag}\{g_\perp, g_\perp, g_\parallel\}$且 $\mathbf{A} = \mathrm{diag}\{A_\perp, A_\perp, A_\parallel\}$。轴向和横向超精细耦合分别为 $A_\perp = -113.83$ MHz 和 $A_\parallel = -159.7$ MHz [75], ; 为简化起见，假设 g 因子是各向同性的，因此 $g_\perp = g_\parallel = g$ [76]。

在这些简化条件下，静态磁场 $\mathbf{B}_0$ 下每种 Jahn-Teller 取向对应的哈密顿量为

$$\frac{H_{P1}}{h} = \frac{g\mu_B}{h}\mathbf{B}_0\cdot\mathbf{S} + A_\parallel \mathbf{S}_z\cdot\mathbf{I}_z + A_\perp\left(\mathbf{S}_x\cdot\mathbf{I}_x + \mathbf{S}_y\cdot\mathbf{I}_y\right). \tag{8}$$

P1 共振频率的计算方法如下：使用数值 $g\mu_B/h = 2.8$ MHz/G 和 $B_0 = 2.23$ 高斯对哈密顿量进行对角化，再根据本征能量之差计算出 12 种可能的跃迁频率。为确定哪些跃迁满足偶极选择定则，我们使用表示 P1 驱动场方向的电子自旋算符，计算每对本征态之间的跃迁矩阵元。我们发现，允许的偶极跃迁频率约为 22、25、135 和 139 MHz，并以这些频率作为 P1 驱动频率。

B. P1 线圈设计与实现

文献中自旋浴驱动的实现方式[7–9] 通常会将所有射频驱动信号合并到单个宽带传输结构上，例如线圈或共面波导。虽然这种方法足以探测较小体积内的氮空位中心，但光捕获金刚石波导配置（见第 IIB 1 节）要求在整个 NV^- 掺杂层上实现较高的 P1 拉比频率。因此，我们采用两个由谐振槽路驱动的多匝线圈。第一个线圈用于激发低频 P1 共振，频率为 $\omega_1^{\mathrm{P1}} \approx 2\pi \times 22$ MHz 和 $\omega_2^{\mathrm{P1}} \approx 2\pi \times 25$ MHz；第二个线圈用于激发较高频率的共振，频率为 $\omega_3^{\mathrm{P1}} \approx 2\pi \times 135$ MHz 和 $\omega_4^{\mathrm{P1}} \approx 2\pi \times 139$ MHz。低频 P1 线圈是单层螺线管，绕线间距紧密，使用直径为 2.05 mm 的铜线在直径为 33 mm 的线圈骨架上绕制 6 匝；高频 P1 线圈则由直径为 2.05 mm 的导线绕制成两匝平面线圈，线圈平均直径为 $\approx$21 mm。由于低频和高频线圈在满驱动功率及 100% 占空比下的耗散功率分别可达 30 W 和 100 W，因此每个线圈都通过导热胶（Arctic Alumina）连接到一块氮化铝板上进行散热。这些板随后用导热膏（Arctic Silver 5）夹紧在独立的安装块（Thorlabs TS240）上。安装块固定在传感器下方的大型铝制光学平台上，从而为被动空气冷却提供通往大面积表面的高导热路径。

图 17(a) 展示了用于与两个线圈匹配的网络电路拓扑。低频 P1 线圈与四个高电压 10 pF 电容并联连接

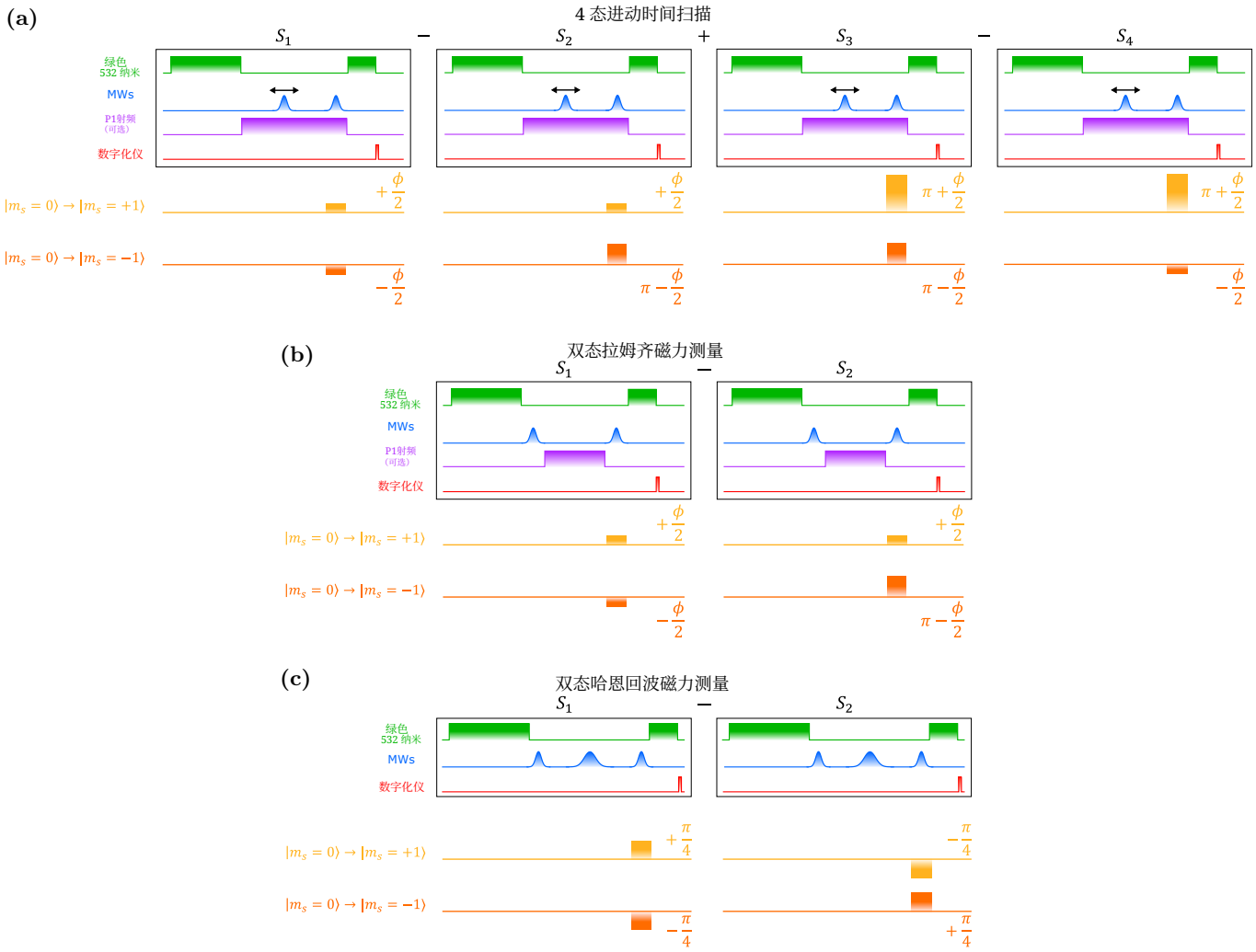

图16。 **磁力测量和自由感应衰减脉冲序列中施加的相位**。 (a) 在采用四态噪声扣除的双量子测量中，按照所示相位完成脉冲序列，并按图所示对信号进行加减，以消除噪声并抑制不完美的双量子 π 脉冲。相移 ϕ 随给定序列的进动时间而变化，即使施加共振微波，也能观测到条纹。虽然图中展示的是拉姆齐进动时间扫描，但加入回波脉冲后也可用于哈恩回波扫描。(b) 在采用两态噪声消除的双量子拉姆齐磁力测量中，脉冲序列先以 ϕ 相对相位移完成，再以 $\phi-\pi$ 相对相位移完成，该相位移是针对寻址高频和低频自旋跃迁的微波而言；随后将这两个脉冲序列的信号相减。相移 ϕ 使系统能够在最大条纹斜率处运行，而相移 π 则反转信号以实现噪声抵消。(c) 在双量子哈恩回波磁力测量中，先以相对相位移 $\pi/2$完成一个脉冲序列，再以相对相位移 $-\pi/2$完成另一个脉冲序列。由于哈恩回波磁力测量不受静态失谐影响，这些相移可确保系统在最大条纹斜率处运行（针对较小的测试磁场），并反转第二个序列的信号以实现噪声抵消。对于所有图，非零相移仅施加于每个序列的最后一个脉冲。磁力计测量脉冲序列时序的详情见图 4。

电容器，这些元件与一个自制的可调电容器串联，该电容器由覆有 Kapton 胶带的铜箔片制成。整个电路连接在一根半刚性同轴电缆的末端两端。使用 HP 4192A LF 阻抗分析仪测得裸线圈的电感为 990 nH。高频 P1 线圈的构造方式类似，线圈两端并联一个≈9 pF 电容器，并串联一个类似的铜箔片和 Kapton 胶带可调电容器；线圈电感为 120 nH。

对于两个电路，通过使用矢量网络分析仪（Agilent FieldFox N9923A）测量 S_{11}，确定其共振频率 f_0 和加载品质因数 Q_L。在设备运行时采用相同的近临界耦合进行原位测量，低频电路的共振中心频率为 ≈23 MHz，加载品质因数为 $Q_{\mathrm{L}}^{\mathrm{low}} \approx 60$，半高全宽为 ≈0.4 MHz；高频电路的共振中心频率为 ≈ 135 MHz，$Q^{\mathrm{high}}\mathrm{L} \approx 20$，半高全宽为 ≈8 MHz。对于给定的 Q_L和共振频率 f_0，激励 P1 中心的横向磁场 B_1^{P1} 的 $1/e$ 振铃衰减时间由$\tau_{\mathrm{ring}} = Q_L/(\pi f_0)$ [14]给出。低频和高频谐振槽路的计算振铃衰减时间分别为 $\tau_1 \sim 800$ ns 和 $\tau_2 \sim 50$ ns。

C. P1 驱动

如图所示，三个射频信号发生器用于驱动 P1 自旋浴。17(b)。对于高频 P1 驱动，两个信号发生器（Agilent E8663D 和 Agilent E8267D）产生的信号先衰减 10 dB，然后合并（Wienschel 1515）。合并后的输出再衰减 8 dB，随后经放大（Mini-Circuits ZHL-100W-52-S+），然后通过一个 40 dB 双定向耦合器（Werlatone C3910-102），其正向耦合端口接入 50 Ω 负载。来自直通端口的信号经电容耦合进入高频谐振槽路，任何反射信号都会沿原路返回并通过定向耦合器。反向耦合端口连接至示波器；监测反射信号即可检测高频槽路共振的任何变化。

对于低频 P1 驱动，单台信号发生器（Agilent E8663D）的输出首先经过 8 分贝衰减，然后送入一台大功率放大器（Mini-Circuits LZY-22+），再接至一个 20 分贝双定向耦合器（ HP 778D ）。正向耦合端接入 50Ω 终端，而贯通端的信号则先经过一个直流隔断器（Mini-Circuits BLK-89-S+），再通过电容耦合输入低频 P1 线圈的谐振槽路。所有反射信号都会经定向耦合器返回，反向耦合端的信号则通过一个 23 分贝衰减器后输入示波器。由于低频 P1 线圈的带宽有限，因此只使用一台信号发生器；发生器的频率设为 23.2 MHz。

三个射频发生器均由双通道任意波形发生器（Keysight 33622A）控制门控，其中一个通道控制低频 P1 线圈的发生器，另一个通道控制高频 P1 线圈的两个发生器。本实验仅采用连续 P1 驱动，但为降低热负荷和电子噪声，P1 驱动仅在拉姆齐和哈恩回波序列中第一个与最后一个微波脉冲之间施加。我们发现，必须在激光读出脉冲和数字化之前足够早地关闭 P1 驱动；研究发现，P1 线圈的射频辐射会严重干扰光电二极管平衡电路，因此必须提前足够长时间关闭线圈，以留出谐振回路的振铃衰减时间。

通过在自由感应衰减测量期间实时最大化 T_2^* 值来调节施加到 P1 线圈的驱动频率（见第 VIIIA节）。对于可变进动时间实验（如自由感应衰减诊断中所用），P1 驱动设置为开启固定时长，该时长对应于实验中的最长进动时间。由于 P1 线圈的热负荷很大，且它们与金刚石距离很近，因此必须留出时间让金刚石达到稳态温度，然后再最终调节所施加的微波脉冲频率，如补充材料第 IXB节所述。

D. T_2^* 和 T_2 扩展细节

延长 NV 系综的退相干时间 T_2^* 可以延长拉姆齐序列中的自由进动时间 τ，从而提高灵敏度。预期的灵敏度提升可以按如下方式计算：首先，对于给定的 T_2^*，确定 τ的取值，使其最小化方程 2中的以下因子：

$$\frac{1}{\Delta m_s}\frac{1}{e^{-\tau/T_2^*}}\frac{\sqrt{\tau + t_{\mathrm{O}}}}{\tau}, \tag{9}$$

已确定；其中 $t_{\mathrm{O}} = t_{\mathrm{I}} + t_{\mathrm{R}} + t_{\mathrm{D}}$ 为额外耗时，是初始化时间 t_{I}、荧光读出时间 t_{R}以及任何其他额外空闲时间 t_{D}之和；并且我们隐含地假设 $p = 1$。其次，将最优的 τ 代入公式 9，同时使用给定的T_2^*。利用这一过程，对采用单量子比特拉姆齐、双量子拉姆齐以及带有 P1 驱动的双量子拉姆齐方案所获得的 T_2^*值进行处理，即可评估采用双量子方案以及双量子方案结合 P1 驱动所获得的灵敏度增强。我们发现，与单量子比特拉姆齐相比，双量子拉姆齐预计可实现 3.1× 倍的性能提升，而在双量子拉姆齐中加入 P1 驱动，则可实现 5.8× 倍的性能提升。

哈恩回波磁力测量的评估过程与此类似。首先，使用方程 τ 确定最优的9，但将 T_2 替换为 T_2^*。其次，将 τ 的最优值代回方程9 ，针对给定的 T_2 值进行计算，并比较有无 P1 驱动时双量子哈恩回波的结果。仅根据 T_2 的扩展情况，数据表明，在双量子哈恩回波中加入 P1 驱动

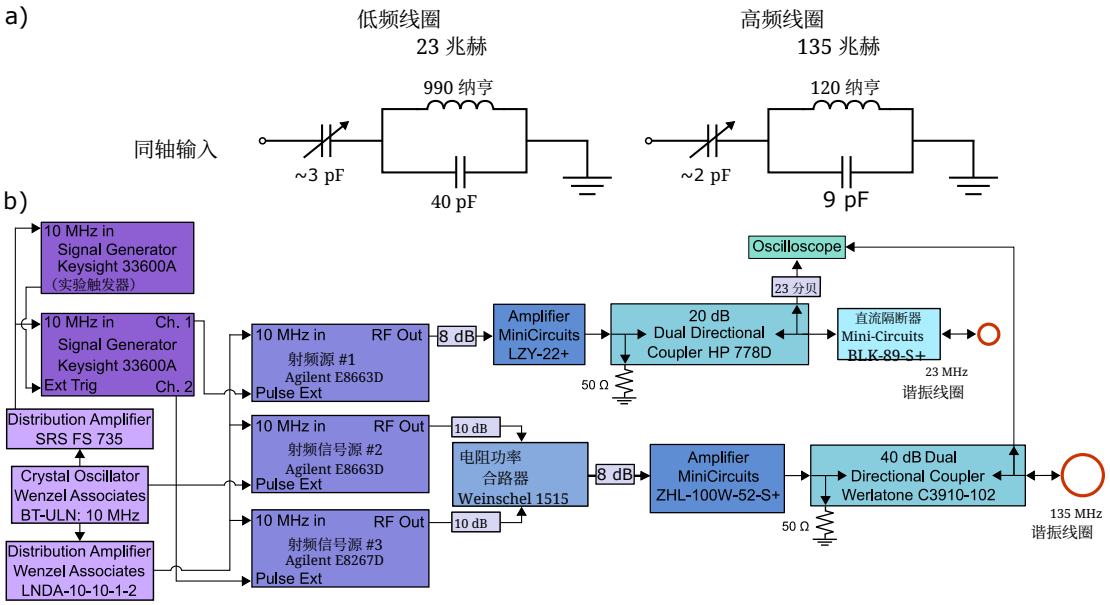

图 17. **P1 驱动的射频元件和设置**。 (a) 正文中所述的低频和高频 P1 线圈的谐振槽路设计。(b) P1 驱动的信号链。

Name	SQ	DQ	双量子+P1 驱动
T_2^* 具有可变参数 p 10。	8(2); $p = 0.72(2)$	7.5(6); $p = 0.72(2)$	24.7(9); $p = 0.90(2)$
<escape>T_2^* with fixed p</escape>	8.1(1); $p \equiv 1$	14.0(1); $p \equiv 1$	28.6(2); $p \equiv 1$
T_2 可变 p 未测量		142(3); $p = 1.14(3)$	320(20); $p = 1.02(7)$
T_2 固定 p	未测量	136(3); $p \equiv 1$	324(16); $p \equiv 1$

表III. **系综退相干和退相位数据**。 所有数值均以 μ秒为单位。

应得到 1。8× 灵敏度增强；此计算未纳入第 IIIE 节所述由 P1 驱动引入的其他技术噪声源。

为了便于比较不同方案，T_2^*和 T_2 值是在将拉伸指数参数固定为 $p = 1$的条件下确定的。此方法确保仅由 T_2^*或 T_2 值来表征时间退相干或退相干。若允许 p 变化，则可以进行更复杂的分析；表 III 列出了拟合得到的 T_2^*和 T_2 值，包括 $p = 1$ 以及可变的 p。

XI. 磁力测量

A. 读出保真度优化

$|m_s = 0\rangle$ 与 $|m_s = \pm1\rangle$ NV⁻ 电子基态的可区分性由读出保真度 $\mathcal{F}$ [21]量化。读出保真度满足 $0 \leq \mathcal{F} \leq 1$；其上限代表受投影噪声限制的自旋态读出 [22]，下限则代表无信息读出。该量直接影响 NV 磁力计可实现的灵敏度。对于基于干涉测量的 NV 磁力计，读出保真度为 [1, 21]

$$\mathcal{F} = \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{1}{C^2 n_{\mathrm{avg}}}}}, \tag{10}$$

其中，C 是测量对比度，[21], 表示将氮空位中心最大程度制备到 $|m_s = 0\rangle$ 态而非 $|m_s = \pm1\rangle$态时所收集光子数的不对称性；n_{avg} 是单个读出周期内每个氮空位中心检测到的荧光光子平均数。测量对比度 C 有时也称为条纹可见度。

尽管 C 从根本上受氮空位中心⁻ ^3E激发态中依赖自旋的分支比不对称性限制，但 [77, 78], 观察到的测量对比度也取决于氮空位中心⁻ 系综极化至 $|m_s = 0\rangle$ 自旋态的初始极化程度、（激光）读出时长 t_R，以及来自非目标氮空位中心⁰ 缺陷的荧光比例 [1]。

我们采用一种由四个连续脉冲序列组成的方案，分别记为 S_1、S_2、S_3 和 S_4，以确定测量对比度 C 以及光学初始化的效率。如图 4d 所示，所有四个序列均包含 $t_I = 35$ μ 秒的光学初始化和 $t_R = 10$ μ 秒的光学读出。不过，第四个序列 S_4在光学初始化与光学读出之间加入了一个微波 π_{SQ} 脉冲；该 π_{SQ} 脉冲将 $|m_s = 0\rangle$ 态的两种超精细能级布居均转移至$|m_s = -1\rangle$ 态。采用这一方案，来自 S_4的信号与来自 $|m_s = -1\rangle$ 态的荧光密切对应，而来自 S_1、S_2 和 S_3 的信号则主要对应于来自 $|m_s = 0\rangle$ 态的荧光，且制备效率依次提高。

尽管光电二极管平衡电路通过将收集到的 NV⁻ 荧光与施加的 532 纳米光进行比较，有效地对收集到的荧光信号实现了交流耦合，但通过测量信号光电流并结合已知的平衡电路增益，可以确定 S_1、S_2、S_3 和 S_4 共有的直流偏置。计入这一共模信号后，在 S_1、S_2、S_3 和 S_4 之后进行的荧光测量，所得归一化信号分别为 0.99871、0.99993、1.00000 和 0.93416。所实现的测量对比度 C 为 [21]

$$C = \frac{S_1 - S_4}{S_1 + S_4} = 0.0334, \tag{11}$$

这大致对应于干涉条纹的分数振幅（即约为峰峰值的一半）。

由于 $S_2 \approx S_3$，我们假设来自 S_3 的信号对应于近乎最大程度的初始化。单次 $t_I = 35$ μs 初始化的初始化效率κ_I 可粗略估算为

$$\kappa_I \approx \frac{S_1 - S_4}{S_3 - S_4} = 0.980. \tag{12}$$

需要指出的是，κ_I 表示相对于无限长初始化脉冲所能达到的效率而言，观测到的初始化效率；由于持续发生的 T_1衰减过程，这与绝对极化效率有所不同。

由于 κ_I 已经非常接近 1，因此将氮空位中心初始化到 $|m_s = 0\rangle$ 态，预计不会因将光学初始化时间延长至所用的 35 μs以上而有明显改善。另一方面，由于 $t_I \lesssim \tau + t_R + t_D$，大幅缩短 t_I 只会使测量序列的总时长略微减少，对灵敏度几乎没有改善，甚至毫无改善。

荧光读出的持续时间 t_R会影响 n_{avg} 和 C。尽管 n_{avg} 会随读出持续时间增加，但随着氮空位中心在读出过程中重新极化，观测到的 C 最终会下降。t_R 的最优值需要平衡这两种相互竞争的影响，以最大化读出保真度。我们观测到，在 $t_R \approx 10$ μs时读出保真度达到最佳，并在此器件中采用 $t_R = 10$ μs。

B. 测试场校准

用于产生测试磁场的线圈和电子设备如图所示18。对测试磁场幅值进行精确校准对于准确评估磁力计的灵敏度至关重要。校准系数 κ，单位为 nT/V，用于表征信号发生器的电压与所产生的测试磁场幅值之间的比例关系。该值 κ 通过四种不同的方法确定。

第一种校准方法根据已知的线圈几何结构和施加电流确定 κ 的值。

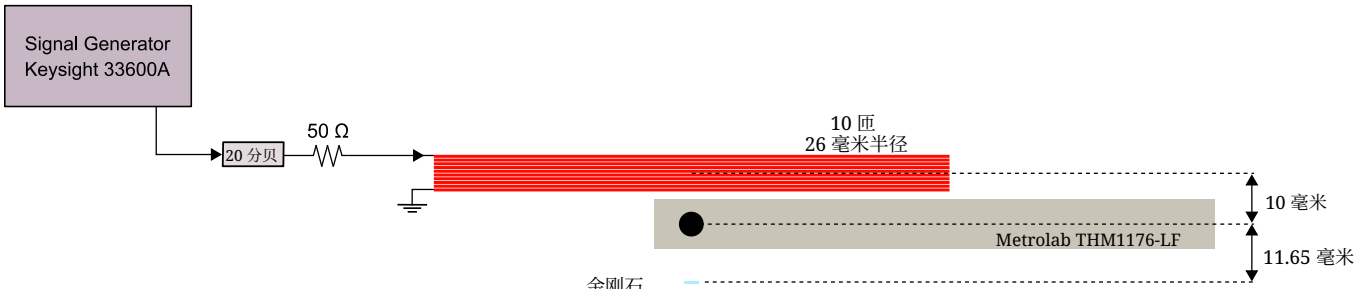

图18. **测试线圈信号链及几何结构**。 测试磁场通过放置在距离金刚石较近位置的一个10匝测试线圈施加。测试磁场的驱动电压由信号发生器提供，其输出端连接至一个由20 分贝衰减器、50 Ω电阻器和测试线圈本身组成的串联电路。放置在图示位置的商用磁力计提供了校准测试磁场的多种方法之一；在设备运行期间，该磁力计会被移除。

测试线圈的半径为 $r_t = 26$ 毫米， $N_t = 10$ 匝，且如图 $z_{\text{coil}} = 21.7$ 所示，距金刚石18毫米。测试线圈与一个 50 Ω电阻器串联，并由函数发生器驱动，其输出首先衰减 20 分贝，使输出电压降低 10×。计算得到的均方根磁场为

$$B_{\text{rms}}(z) = \frac{\mu_0 I_{\text{rms}} N_{\text{t}}}{2} \frac{r_t^2}{\left(r_t^2 + z^2\right)^{3/2}}, \tag{13}$$

其中， $I_{\text{rms}} = \frac{V_{\text{rms}}}{50\ \Omega} \times \frac{1}{10}$， V_{rms} 是发生器的均方根输出电压， μ_0 是真空磁导率。使用这些参数，式13 得出 $\kappa = 219$ nT/V。

采用第二种校准方法时，移除光导管，并如图18所示，将商用磁力计（Metrolab THM1176-LF）放置在金刚石附近。商用磁力计的尺寸限制了其放置位置，使其距测试线圈约 10 毫米、距金刚石 11.65 毫米。信号发生器以 10 Hz 输出 3 V 均方根正弦信号时，商用磁力计测得的均方根磁场为 1165 nT。考虑商用磁力计与金刚石之间的偏移，并使用式13，计算得出 $\kappa = 230$ nT/V。

第三种校准方法利用 NV⁻ 的固定陀磁比 γ_e ，预计比上述两种方法更加准确。在自由进动时间为 τ的双量子拉姆齐序列中，恒定磁场 B 会导致相位累积为

$$\phi = 2\gamma_e B F_{\text{pro}} \tau. \tag{14}$$

这里， $\gamma_e = g_e \mu_B/\hbar$，而 $F_{\text{pro}} = 1/\sqrt{3}$ 是用于修正磁场对准情况的角度修正量，该磁场垂直于金刚石的 (100) 前表面施加。对于给定的进动时间 τ，如果改变磁场，使干涉仪相位前进 2π，即一个条纹，则磁场变化量 ΔB 为

$$\Delta B = \frac{1}{F_{\text{pro}}} \frac{2\pi}{2\gamma_e} \frac{1}{\tau}. \tag{15}$$

对于进动时间为 τ =19.8 μ 秒的拉姆齐序列， $\Delta B = \sqrt{3} \times 901$ nT $= 1561$ nT。将 ΔB除以使相位前进一个条纹所需的实测电压，可得 $\kappa = 201$ nT/V。

我们最终的校准方法将前述技术应用于双量子比特哈恩回波磁力测量。若自由进动时间间隔内存在振幅为 B 的方波磁场，并在回波脉冲处改变符号，则累积相位仍由方程 14给出。对于 $\tau = 100$ μs 的哈恩回波序列，我们计算得出，一个条纹周期对应于 $\Delta B = \sqrt{3} \times 178$ nT $= 309$ nT。如图19所示，记录哈恩回波磁力测量信号随电压的变化，我们得到 $\kappa = 198$ nT/V；有关哈恩回波磁力测量中磁场校准的更多信息，请参见补充材料第 XIIC 节。该数值比通过拉姆齐条纹确定的数值小 1.4%。这一差异可能是多种效应共同作用的结果，这些效应在百分比量级上不可忽略。具体而言，金刚石附近的金属（例如 P1 驱动线圈）会导致磁场衰减；测试线圈电阻随频率升高而增大，导致电流减小；测试线圈电感随频率升高而增大，也会导致电流减小。这些因素都可能使频率升高时，在给定电压振幅下产生的磁场减弱。

尽管这四种不同的方法所得出的传感器校准结果彼此相差不超过 15%，但由于我们预期这些技术具有最高的准确性，因此在拉姆齐磁力测量和哈恩回波磁力测量中，我们采用根据条纹间距确定的校准结果来计算灵敏度。关于灵敏度的计算，将在第 XII节中进一步讨论。

XII. 灵敏度测量

A. 一般性考量

磁场灵敏度定义为

$$\eta \equiv \delta B \sqrt{T} \tag{16}$$

其中， δB 是最小可探测磁场，定义为在测量持续时间 T [21, 41] 后使信噪比（SNR）达到 1 的磁场。对于白高斯噪声，灵敏度也可以等价地写为 [10] 即

$$\eta \equiv \sigma_B \sqrt{T} = \frac{\sigma_B}{\sqrt{2\Delta f}}, \tag{17}$$

其中， σ_B 是一系列测量结果的标准差，每次测量的时间为 T；按照惯例， $\Delta f = 1/(2T)$ 表示单边频谱上的测量带宽。

对于白噪声，由公式 16 定义的器件灵敏度，等于双边幅度谱密度在单个 1 Hz 频段内的均方根噪声（或者，等于单边幅度谱密度在 0.5 Hz 带宽内的噪声，正如公式 17所示，但直流情况除外）。这种灵敏度定义对直流场和交流场均适用，并隐含地假设信号的相位已知。之所以选择这种灵敏度定义及其相位已知的假设，是因为它与自旋投影极限下的灵敏度理论计算一致，与假设交流信号相位已知的主流哈恩回波文献一致，也与最初具有开创性意义的 NV 磁力测量论文中采用的定义一致 [21]。遗憾的是，这一定义与单边幅度谱密度在 1 Hz 带宽内的均方根噪声不一致；采用后者定义将得到更高的灵敏度$\sqrt{2}\times$ 。更多讨论请参见参考文献 [15]。

一般而言，在存在非白噪声源时，更适合考虑频域内感兴趣频带中的噪声。按照惯例，我们可以对时间序列进行傅里叶变换

测量结果，并将磁力计原生电压单位下的谱密度除以通过施加已知（均方根）磁场得到的校准系数，从而以均方根磁场单位表示所得的幅度谱密度；这里假设频谱范围内的响应均匀（见第 B-节XIB）。由此可得到灵敏度随感兴趣频率变化的频谱。通常，器件的最小灵敏度报告为器件噪声在低噪声频带中的幅度谱密度。

然而，从幅度谱密度的噪声底确定器件灵敏度的通常做法，会带来一个磁力测量文献中鲜少讨论的微妙问题。根据帕塞瓦尔定理，磁场平方对时间的积分等于磁场频谱平方对频率的积分。因此，对感兴趣频带内的幅度谱密度进行适当平均时，应采用均方根平均（或者等价地，采用该频带内功率谱密度的平均值），而不是幅度谱密度的平均值。或者，要根据连续测量的平均值确定灵敏度，应对幅度谱密度取均方根平均。在这种情况下，我们有

$$\eta(f) = \left\langle B^d(f) \right\rangle_{\mathrm{rms}}, \tag{18}$$

其中，$\eta(f)$表示灵敏度幅度谱密度，$B^d(f)$表示双边磁场幅度谱密度，$< \cdot >_{\mathrm{rms}}$ 表示均方根平均。我们还可以写成

$$\eta(f) = \frac{1}{\sqrt{2}} \left\langle B^s(f) \right\rangle_{\mathrm{rms}}, \tag{19}$$

其中，$B^s(f)$ 表示单边磁场幅度谱密度，前置因子 $\alpha_{\text{s-d}} = 1/\sqrt{2}$ 在除直流（DC）以外的情况下，可用于将单边谱密度转换为双边谱密度。

<escape>无论是在单次采集的频谱中对频率频点进行平均，还是对多次采集所得的频谱进行平均，都必须使用均方根平均，以适当地保留数据中存在的总噪声功率。在后一种情况下，对足够多次采集所得的频谱进行均方根平均后，可以对幅度谱密度的相应频带取均值或中位数，从而正确确定器件的最低灵敏度。我们通过仿真验证，对于加性白高斯噪声，对来自 5 次采集的频谱进行均方根平均，已足以使幅度谱密度的中位数得到的最低灵敏度在 $\sim$ 1% 水平上保持准确。图 8 和图 9 中展示的灵敏度数据，均由每幅图中 10 次采集的频谱进行均方根平均得到。</escape>

在特定频率存在较大杂散信号时，使用中位数优于对噪声底的均方根平均值进行朴素计算，因为后者可能会即使少量较大的伪值也会对结果产生显著影响。尽管可以手动排除含有杂散峰的频率，或通过滤除高于特定值的离群值来自动排除，但我们发现通过中位数计算灵敏度更为方便，也能更好地适应实验条件的变化；在器件的实时优化过程中，这一点尤为重要。

最后，尽管这与本文所呈现的数据无关，但我们注意到，将这种基于中位数的灵敏度计算方法应用于单次数据采集的幅度谱密度时，会出现一些细微的复杂问题。具体而言，为了使用基于中位数的方法和单次数据采集的频谱获得准确的灵敏度，必须应用若干校正因子。在假设噪声为白高斯噪声的情况下，幅度谱密度的中位数必须乘以一个因子

$$\alpha = \left(\sqrt{\frac{4}{\pi}}\right)\left(\frac{1}{2}\sqrt{\frac{\pi}{\ln(2)}}\right) \approx 1.201, \tag{20}$$

其中，第一个因子校正均方根平均值与算术平均值之间的比值，第二个因子校正算术平均值与中位数之间的比值。这些因子源于时域（实值）加性白高斯噪声经傅里叶变换成为频域（复值）信号后的统计特性。具体而言，这些因子可视为瑞利分布特性的结果，瑞利分布描述了复值频域噪声的幅值。

B. 拉姆齐磁力测量灵敏度测量

在进行拉姆齐磁力测量时，施加一个 10 Hz 的校准测试磁场，其均方根振幅为$B_{\mathrm{rms}} = \kappa \cdot 50\,\mathrm{mV} = 10\,\mathrm{nT}$。对每次持续 1 s 的数据采集进行傅里叶变换，并对所得的双边频谱（包含 1 Hz 频点）进行缩放，使+10 Hz 频点和 -10 Hz 频点的幅值均为$B_{\mathrm{rms}} = \frac{1}{\sqrt{2}} \times 10\,\mathrm{nT}$。该缩放确保单边幅度谱密度中唯一的 10 Hz 频点的幅值为 $B_{\mathrm{rms}} = 10\ \mathrm{nT}$。

本文提供的灵敏度谱，是对连续采集的 10 组、每组时长 1 秒的谱进行均方根平均后计算得出的。随后，通过计算相应频带内灵敏度的中位数来确定最低灵敏度。大约有二十多个带宽为 1 Hz 的陷波滤波器（大多位于 60 Hz 的谐波处）用于去除杂散信号，但这些滤波不会影响灵敏度。对于拉姆齐磁力测量，最低灵敏度是通过计算谱中最后 10% 频率频点的中位数得出的。

C. 哈恩回波灵敏度测量

为计算哈恩回波灵敏度，我们首先验证施加到测试线圈的电压与磁场之间的校准关系，因为残余金属部件可能会部分屏蔽传感器，使其免受哈恩回波测试期间施加的 6.4 kHz 磁场的影响。首先，我们按照第 IXB 节所述，在进动时间扫描模式下粗略优化双量子拉姆齐微波参数。随后，我们启用回波脉冲并切换到磁力测量模式。使用测试线圈施加方波磁场，并在回波脉冲的中点从高电压切换至低电压。如正文所述（见第 IVB 节），在连续的实验重复中，向最后一个脉冲施加 $\pm\pi/2$ 相移。这两次实验重复之间的差异即为哈恩回波磁力测量信号，此循环将无限重复。

随后扫描方波的幅度，并记录哈恩回波磁力测量信号的平均值。接着，使用带加性偏移的正弦信号进行数据拟合，如图 19 所示。根据方程 15，对于总进动时间为 $\tau = 100$ μs 的哈恩回波序列，我们发现以磁场单位表示的条纹间距为 309 nT，并将该数值设为正弦波拟合所得的周期，从而得到每单位施加电压对应的磁场校准值。如第 XIB 节所述，所得 6.4 kHz 测试场校准值与近直流校准值的差异在 1.4% 以内。

完成初始校准后，还可以通过迭代进一步优化。首先，将测试场幅度设置为约等于校准过程中找到的第一个信号最大值；然后调节微波功率和频率，使观测到的信号最大化。接下来关闭测试场，并调节微波功率和频率以产生最小噪声，随后根据需要重复该过程。

在找到能够产生最高信号和最低噪声的微波功率及频率设置后，再次按照随机顺序扫描一系列外加磁场幅值，并记录每个扫描步骤对应的磁力测量轨迹。与校准过程一样，将磁场幅值扫描中每个步骤的平均信号值拟合为正弦信号，以确定最大斜率，其单位为每 nT 外加磁场所对应的器件信号。外加磁场为零时记录的轨迹，在.....期间记录。
并紧接着场强扫描之后，用于确定器件噪声谱。具体而言，对 10 次采集所得的谱（每次采集时长为 1 秒）进行均方根平均，以生成噪声谱。随后将噪声谱除以测得的斜率，得到灵敏度谱。通过计算该灵敏度谱的中位数，我们得出优化后的哈恩回波灵敏度为 $\eta \approx 210$ fT/$\sqrt{\text{Hz}}$。

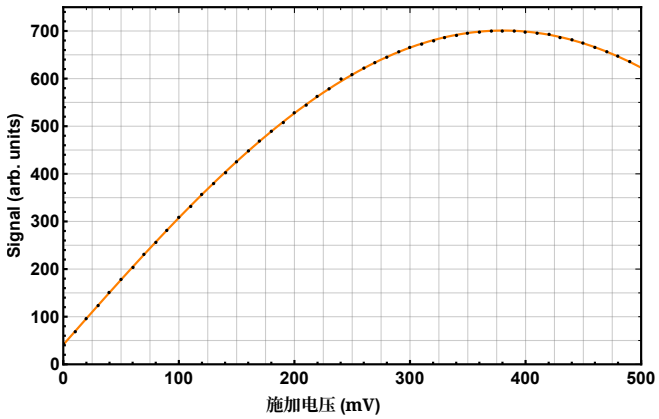

图19. 哈恩回波磁力测量信号随所施加方波的标称幅度变化的关系。数据（·）采用带加性偏移的正弦信号（—）进行拟合，如正文所述。最佳拟合对应的角频率为 $4.03\times10^{-3}\,(\text{mV})^{-1}$，振幅、相位和偏移量分别为684、0.0365和16.1。零 y截距的微小偏差归因于数字移相器的不完美性，尤其是插入损耗对所选相位的轻微依赖。

XIII. 灵敏度的理论极限

计算理论极限可以验证已报告的结果是否合理，并深入了解器件改进的潜在方向。

A. 散粒噪声、参考噪声、数字化仪 oise

单次读出期间 t_R 信号光电二极管和参考光电二极管收集的光电子数量为

$$\mathcal{N}_{\text{sig}} = \frac{\bar{I}_{\text{sig}} t_R}{q}, \qquad \mathcal{N}_{\text{ref}} = \frac{\bar{I}_{\text{ref}} t_R}{q}, \tag{21}$$

其中，$\bar{I}_{\text{sig}}$ 和 $\bar{I}_{\text{ref}}$ 分别为读出期间信号光电二极管和参考光电二极管的平均光电流，q 为电子电荷的绝对值。本研究中的数据采集参数为 $\bar{I} \approx 4.8$ mA、$\bar{I}_{\text{ref}} \approx 82.9$ mA和 $t_R = 10$ μs，因此 $\mathcal{N}_{\text{sig}} \approx 3.0\times10^{11}$ 和 $\mathcal{N}_{\text{ref}} \approx 5.2\times10^{12}$。

信号和参考光电流在电容器上进行积分，电容值分别为 $\mathcal{C}_{\text{sig}} = 6.6$ nF 和 $\mathcal{C}_{\text{ref}} = 114$nF，从而产生电压

$$V_{\text{sig}} = \frac{\bar{I}_{\text{sig}} t_R}{\mathcal{C}_{\text{sig}}} \quad \text{and} \quad V_{\text{ref}} = \frac{\bar{I}_{\text{ref}} t_R}{\mathcal{C}_{\text{ref}}}. \tag{22}$$

对于给定的 $\bar{I}_{\text{sig}}$ 值，首先对 $\mathcal{C}_{\text{sig}}$ 和 $\mathcal{C}_{\text{ref}}$ 的值进行粗略调整，使得 $V_{\text{sig}} \approx V_{\text{ref}}$。接下来，通过改变到达参考光电二极管的光量比例来调整 $\bar{I}_{\text{ref}}$ 的值，使 V_{ref} 紧密地匹配 V_{sig}。给定的 $\bar{I}_{\text{sig}}, \bar{I}_{\text{ref}}, \mathcal{C}_{\text{sig}}, \mathcal{C}_{\text{ref}}$ 和

t_{R} 在每个读出积分周期结束时产生 $V_{\mathrm{sig}} \approx V_{\mathrm{ref}} \approx 7.3$ V。

收集到的光电子数量的散粒噪声通常是基于荧光的测量中的一种基本噪声源。对于单次读出，光电子散粒噪声会使信号和参考光电二极管上观测到的光电子数量分别产生均方根变化 $\sqrt{\mathcal{N}_{\mathrm{sig}}}$ 和 $\sqrt{\mathcal{N}_{\mathrm{ref}}}$。这种光电子散粒噪声会在信号和参考积分电容器上产生积分电压噪声，其大小为

$$\sigma_{\mathrm{sig}} = \frac{\sqrt{q\bar{I}_{\mathrm{sig}} t_R}}{\mathcal{C}_{\mathrm{sig}}} \quad \text{and} \quad \sigma_{\mathrm{ref}} = \frac{\sqrt{q\bar{I}_{\mathrm{ref}} t_R}}{\mathcal{C}_{\mathrm{ref}}}, \tag{23}$$

因此 $\sigma_{\mathrm{sig}} \approx 13$ μV，且 $\sigma_{\mathrm{ref}} \approx 3.2$ μV。由于光电子散粒噪声 σ_{sig} 代表一个基本极限，因此可以相对于 σ_{sig}来评估加性噪声源。对于补充材料第 VIIF节所述的平衡方案，将参考电压从信号电压中减去，会使噪声相较于单独的 σ_{sig} 增加以下倍数

$$\kappa_{\mathrm{bal}} = \sqrt{1 + \frac{\bar{I}_{\mathrm{ref}} \mathcal{C}_{\mathrm{sig}}^2}{\bar{I}_{\mathrm{sig}} \mathcal{C}_{\mathrm{ref}}^2}} \approx \sqrt{1 + \frac{\mathcal{C}_{\mathrm{sig}}}{\mathcal{C}_{\mathrm{ref}}}}, \tag{24}$$

由此得到 $\kappa_{\mathrm{bal}} = 1.029$。

平衡电路中的其他噪声源贡献可以忽略不计。每个 ADA4898 运算放大器的输入电压噪声（e_n ≈0.85 nV/√Hz）在 $t_{\mathrm{R}} = 10$ μs 的读出时间内积分后为 190 nV 均方根值。ADA4898 的输入电流噪声（2.4 pA/√Hz）、仪表放大器中相关的 $\sim 100\Omega$ 电阻器上的约翰逊-奈奎斯特噪声，以及积分电容器上的热复位噪声，同样都可忽略不计。

模拟平衡电路的有效增益为 G=7.69。$V_{\mathrm{sig}} \approx 7.3$ V 的积分信号电压对应于假设的 $GV_{\mathrm{sig}} \approx 56$ V 输出电压。尽管在实际操作中，减去参考电压会使平衡电路的输出降至接近零，但可以将此≈56 V 数值视为未进行参考信号相减时，平衡电路输出端会观测到的信号。将噪声电压在适当情况下乘以 G 后，可与 GV_{sig} 的数值进行比较，以确定加性噪声的相对值，并与散粒噪声的相对值进行比较。

数字化过程会为每次读出引入额外的 $\sigma_{\mathrm{dig}} = 23$ μV 均方根电压噪声。这种数字化噪声与平衡电路输出端的噪声以平方和开根号的方式叠加。因此，单次读出中由信号散粒噪声、参考散粒噪声和数字化器噪声导致的总均方根电压噪声为

$$\sigma_{\mathrm{tot}} = \sqrt{G^2 \sigma_{\mathrm{sig}}^2 \kappa_{\mathrm{bal}}^2 + \sigma_{\mathrm{dig}}^2}. \tag{25}$$

代入上述数值后，我们发现数字化噪声使总噪声增加了 $\approx 1.024\times$。对于一次 10 μs 的读出，我们测得 $\sigma_{\mathrm{tot}} \approx 0.1075$ mV，其中≈ 95% 来自信号光电二极管上的散粒噪声。换言之，整个平衡电路和数字化过程使噪声仅比 NV 荧光光电流的散粒噪声极限高出 ≈ 5%。

B. 拉姆齐理论灵敏度

光子散粒噪声受限的拉姆齐 NV⁻ 系综宽带磁力计的理论灵敏度为 [1]

$$\eta_{\mathrm{Ram}}^{\mathrm{ens,sho}} \approx \frac{\hbar}{\Delta m_s g_e \mu_B} \frac{1}{Ce^{-(\tau/T_2^*)^p}\sqrt{\mathcal{N}}} \times \frac{\sqrt{t_{\mathrm{I}}+\tau+t_{\mathrm{R}}+t_{\mathrm{D}}}}{\tau} \times \frac{1}{F_{\mathrm{pro}}} \tag{26}$$

其中，F_{pro} 表示所施加磁场在选定的 NV 轴上的投影。当偏置场和测试磁场均垂直于金刚石{100} 前表面时，则 $F_{\mathrm{pro}} = 1/\sqrt{3}$。

采用 P1 驱动的双量子方案时，我们通常会观察到退相干时间$T_{2,\mathrm{DQ+P1}}^* \approx 30$ μs。对于 $C = 0.0334$，$T_2^* = 28.6$ μs,$\tau = 40$ μs 的进动时间，以及 $p = 1$，我们预期 $Ce^{-(\tau/T_2^*)^p} \approx 0.0079$。实际测量得到 $Ce^{-(\tau/T_2^*)^p} = 0.0082$，因此在后续计算中采用该值。

我们的拉姆齐磁力测量序列的时间参数由以下数值描述：$t_{\mathrm{I}} = 35$ μ秒、$\tau = 40$ μ秒、$t_{\mathrm{R}} = 10$ μ秒和$t_{\mathrm{D}} = 6$ μ秒。在典型的实验条件下，我们测得信号光电流为 $I_{\mathrm{sig}} \approx 4.8$ 毫安，对应于每次测量中的$\mathcal{N}_{\mathrm{sig}} \approx 3 \times 10^{11}$ 个信号光电子。最后，对于 Δm_s =2 双量子磁力测量，我们根据公式26计算得出光子散粒噪声限制下的双量子拉姆齐灵敏度为

$$\eta_{\mathrm{Ram}}^{\mathrm{ens,sho}} \approx 260 \text{ fT}/\sqrt{\text{Hz}}. \tag{27}$$

C. 哈恩回波的理论灵敏度

采用哈恩回波的光子散粒噪声受限 NV 系综磁力计对交流电报信号的理论灵敏度为

$$\eta_{\mathrm{Hahn}}^{\mathrm{ens,sho}} \approx \frac{\hbar}{\Delta m_s g_e \mu_B} \frac{1}{Ce^{-(\tau/T_2)^p}\sqrt{\mathcal{N}}} \times \frac{\sqrt{t_{\mathrm{I}}+\tau+t_{\mathrm{R}}+t_{\mathrm{D}}}}{\tau} \frac{1}{F_{\mathrm{pro}}}, \tag{28}$$

其中 $F_{\mathrm{pro}} = 1/\sqrt{3}$ 是所施加的 [100]- 取向交流磁场在所选 NV 轴上的投影。与其他参考文献相比，式 $2/\pi$ 中相差约一个数量级的因子，例如 28 ，源于灵敏度是相对于均方根振幅而非振幅 [21] 定义的，且信号为电报信号而非正弦信号 [1]。

哈恩回波是在没有 P1 驱动的情况下执行的，因此我们根据 $T_{2,\ \mathrm{DQ}}$ 而非$T_{2,\ \mathrm{DQ+P1}}$计算预期灵敏度的近似值。对于 $C = 0.0334$, $T_{2,\ \mathrm{DQ}}$ =136 μs、$\tau = 100$ μs 的进动时间以及 $p = 1$，我们预计 $Ce^{-(\tau/T_{2,\mathrm{DQ}})^p} \approx 0.0160$。在实际测量中，项 $Ce^{-(\tau/T_{2,\mathrm{DQ}})^p}$ 的值为 0.0125，对于一个

进动时间 $\tau = 100$ μ秒。对于 $\Delta m_s = 2$ 采用双量子方案进行测量时， $t_{\mathrm{I}} = 39$ μ秒，$\tau = 100$ μ秒， $t_{\mathrm{R}} = 10$ μ秒，$t_{\mathrm{D}} = 7$ μ秒，以及 $I_{\mathrm{sig}} = 4.8$ 毫安的信号光电流，其对应于每次测量产生 $\mathcal{N} = 3 \times 10^{11}$ 个光电子。根据公式28，我们计算得到光子散粒噪声受限的双量子哈恩回波灵敏度为

$$\eta_{\mathrm{Hahn}}^{\mathrm{ens,sho}} = 90\ \mathrm{fT}/\sqrt{\mathrm{Hz}}. \tag{29}$$

D. 遇到的障碍的补充细节

本研究中遇到的主要技术障碍包括与 P1 驱动相关的电噪声；施加于传感器头的激光、微波和射频功率所引起的热问题；以及限制器件性能、使其无法达到散粒噪声极限的微波噪声。

P1 驱动期间施加的高射频功率会带来电气和热学方面的挑战。除了正文中所述的 P1 驱动持续时间和功率限制外，还需要在部分直流电源线上安装铁氧体扼流圈，以确保在 P1 驱动条件下器件能够稳定运行。尽管 P1 驱动提高了拉姆齐磁力测量的灵敏度，但与 P1 驱动相关的额外噪声抵消了其在哈恩回波磁力测量中所实现的更长相干时间带来的优势，因此，不采用 P1 驱动时获得的哈恩回波灵敏度反而优于采用 P1 驱动时的结果。未来，可以通过加强对敏感组件的屏蔽、在回波脉冲期间关闭 P1 驱动，或采用脉冲式 P1 驱动，来减轻与 P1 驱动相关的电噪声。尽管这种电噪声并不像散粒噪声或约翰逊噪声那样具有根本性，但要确保由所施加的 ~ 100 W 射频功率产生的谐振增强场不会增加器件噪声，可能仍然具有一定难度。

位于金刚石附近的 P1 驱动线圈产生的热负荷，以及照射到金刚石上的高光功率，都要求在设备运行前进行充分的热平衡，并且需要谨慎维持这些来源产生的热负荷稳定。施加于介质谐振器的微波功率也可能产生不可忽略的热负荷，但这并非热漂移的主要来源。

相比之下，在设备优化和磁力测量期间，会监测到达金刚石的激光功率；每当功率下降 $\gtrsim$ 1%时，便会调整耦合进光纤电缆的激光对准。对准射入金刚石本身的激光则无需如此频繁，但要实现最佳性能，应根据设备的运行配置调整这一对准。例如，激光功率或序列重复率发生变化时，可能需要重新对准。未来的设备可以加入自动反馈，以保持光功率稳定，例如通过调节声光或电光调制器的通光量。自动光纤对准工具也可能通过维持接近最佳的光纤耦合效率来减少漂移。然而，无论采用何种方法来维持稳定的热负载，设备运行所需的高功率基本上都意味着金刚石的温度会达到稳态，并显著高于周围环境温度。

对极低噪声微波信号链的需求，是本工作的另一项重大挑战。即使在选择信号发生器（Rohde and Schwartz SMA100B，配备 SMAB-B711(N) 选件）时，已将相位噪声和幅度噪声作为首要标准，开启微波后，设备噪声仍高于其他情况下观测到的近散粒噪声极限水平。对于哈恩回波和拉姆齐磁力测量，该设备中的限制性噪声源被认为是微波相位噪声。尽管幅度噪声可能并非完全可以忽略，双量子拉姆齐和哈恩回波对微波幅度噪声在一阶上不敏感，而且放大器饱和还会进一步抑制幅度噪声。未来的设备或可采用性能更优的固定频率源，并与在相对较低频率（例如$\sim$ 100 MHz）下运行的可调谐源混频，从而降低微波相位噪声。