六方氮化硼–PbI_2 异质结构中 V_{B^-} 缺陷的能量转移增强发射与量子传感

E. Mayner[1], Ya. Zhumagulov[2], C. de Giorgio[3], F.Chu[1], P.Swain[4], G. Fantner[4], A. Kis[3], O. Yazyev[2], A. Radenovic[1]

[1] *LBEN*，生物技术研究所，洛桑联邦理工学院（*EPFL*），瑞士洛桑 *CH-1015*。

[2] *C3MP*，洛桑联邦理工学院（*EPFL*），物理研究所，瑞士洛桑 *1015*

[3] *LANES*，电气工程研究所，洛桑联邦理工学院（*EPFL*），瑞士洛桑 *CH-1015*

[4] *LBNI*，生物技术研究所，洛桑联邦理工学院（*EPFL*），瑞士洛桑 *CH-1015*。

电子邮箱：eveline.mayner@epfl.ch，aleksandra.radenovic@epfl.ch

摘要

二维材料中的自旋缺陷在量子信息技术和传感应用方面具有巨大潜力。六方氮化硼（hBN）中带负电的硼空位（V_{B^-}）作为量子传感器备受关注，因其已证实对温度、磁场和压力具有灵敏度。[1] 然而，其应用迄今一直受限于固有的微弱光致发光（PL）。通过与敏化供体层，碘化铅（PbI2）构建范德华异质结构，我们有效地将V_{B^-} 的光致发光强度提高了5-45×，同时保持与其他异质结构及范德华光电子平台的兼容性。异质结处的I型能带排列能够实现高效激子迁移并抑制反向电子转移，而强光谱重叠between碘化铅（PbI2）的发射与缺陷吸收则支持高效的荧光共振能量转移。从头算密度泛函理论（密度泛函理论）预测了一种光子棘轮机制，该机制可增强吸收和发射，并通过最小程度的杂化维持磁共振（光探测磁共振）对比度。实验上，该异质结构表现出增强的连续波光探测磁共振灵敏度，并可作为外部磁场的精确探针。这项工作为放大纳米材料中的微弱缺陷信号建立了概念验证，凸显了一种调控其光学和磁学响应的新策略。

引言

固体中的光学可寻址自旋缺陷已成为量子光子信息处理[2–5] 与传感的前景广阔的平台。[6,7] 基于这些平台的量子传感已在各类应用和器件尺度上证明有效，从探测单个核自旋[8] 到测量完整电池系统中的电流。[9] 碳化硅[10–12] 和金刚石[2,13–15]中的色心是量子技术中得到充分研究的缺陷平台[4] ，且NV（基于金刚石的）中心已被集成到兼容 CMOS 的器件中。[16] 然而，金刚石和碳化硅的块体三维特性限制了它们向平面器件架构的集成；尤其对于金刚石，器件微型化会在空间尺度缩放与噪声性能之间带来权衡，并容易受到不受控表面功能化的影响。[17,18]

或者，对二维层状材料中的自旋缺陷进行光学读出，在量子应用方面具有多种基础和技术优势。[19,20] 对于量子传感，探针与目标之间的纳米尺度近距离使得高灵敏度、高分辨率量子传感成为可能。与金刚石相比，六方氮化硼具有原子级洁净的表面，悬挂键和电荷陷阱极少。[21] 其平坦特性也有助于与光电子器件轻松兼容。长期以来，六方氮化硼一直用作范德华电子学中的封装层或栅介质材料。[22–25] 因此，引入纳米尺度近距离的 V_{B^-} 传感层无需增加制造复杂度，同时还能提供器件局域物理性质的信息。与此相应，六方氮化硼中的 V_{B^-} 已被用于对另一种范德华材料进行宽场传感；[26] 鉴于二维材料种类繁多，器件设计及二维传感器灵敏度提升方面蕴藏着巨大机遇。[27–29]

通过多种缺陷候选体，已在六方氮化硼中实现了对自旋-光子界面的控制，包括带负电的硼空位（V_{B^-}）[30–35] 和与碳相关的[36,37,8,38] 缺陷。一种实现自旋-光子极化和读出的方法是光探测磁共振（ODMR）：使缺陷极化至高自旋基态或激发态，并利用系统中与自旋相关的激发、衰减和系间窜越速率读出其状态。ODMR 可通过光学读出实现对磁场、电场、应变、温度和压力的传感。[1,31,39]

高灵敏度 ODMR 和宽场 ODMR 均需要较强的光致发光信号。然而，尽管 V_{B^-} 的平坦结构使其成为光电子器件和宽场传感中传感应用的天然选择，但作为传感器，它仍受到若干因素限制，因而目前适用性有限。这些因素包括快速退相干[32,40,41] 和低亮度。[42,43] 为延长相干时间，人们采用了动态解耦自旋序列[40,44] ，并研究了改变缺陷密度[40,45] 和深度的影响。[46] 研究发现，缺陷密度与相干时间 T_{2XY-8}成反比。[40] 然而，V_{B^-} 发射较暗，因此相关研究仅在系综中开展，且需要较高密度才能实现明亮发射。[47] 提升亮度的方法主要是通过腔体工程实现珀塞尔增强。[48–50] 然而，此类腔体和/或柱状结构会降低将缺陷传感器轻松集成到平面电子器件中的便利性。

我们报告称，只需在范德华异质结构中添加另一层，即可增强 V_{B^-} 缺陷的发射强度和整体灵敏度。通过在低温下进行实验，我们发现，在存在碘化铅(II)（PbI_2）层时，V_{B^-} 缺陷的吸收和光致发光特性均得到显著改善。理论框架支持了这一现象：PbI_2 充当“光子棘轮”，高效地将激子汇聚至发光的六方氮化硼层。所观察到的增强效果在室温和低激光功率条件下仍然存在，表明该方法在不同实验

参数下均具有稳健性。此外，我们还报告了缺陷对外部环境因素的整体灵敏度有所提高，这一点已通过采用多个激发波长进行的连续波光学探测磁共振（cw- ODMR）测量得到证实。作为这种灵敏度增强的示例，我们展示了 V_{B^-} 缺陷的光学响应随所施加外部磁场变化的情况。

除发射和灵敏度方面的这些提升之外，据我们所知，我们的工作首次记录了通过能量转移机制实现缺陷发射增强的实例。这代表着自旋-光子界面工程以及基于二维材料开发高灵敏度量子传感器方面的一项重大进展。

1 结果与讨论

本文所述结果来自对中子辐照 hBN 块体晶体进行剥离所得的样品。V_{B^-} 色心是通过此前所述的中子辐照以 2.6×10^{16} n cm^{-2} 的剂量在块体晶体中产生的[32]。假设这些缺陷均匀分布于整个晶体中。然而，由于本研究关注的是增强 V_{B^-} 的微弱光致发光（PL），为考虑薄片间厚度和缺陷密度的差异，我们制备了能够分析孤立材料的几何结构异质结，并确保不同区域之间采用一致的 hBN 封盖。随后，对同一辐照薄片在有无供体层的情况下进行 V_{B^-} 发射的比较。为清晰和便于表述，我们将普通 hBN 称为“hBN”，将中子辐照的 hBN 称为“V_{B^-}”。在本研究中，我们构建了四层范德华异质结构（如方法部分所述）：顶部和底部为本征 hBN 封盖层，随后是 V_{B^-} 层，下面为碘化铅层（PbI_2）。示例结构如**图 1a**所示，并在**图 1d**中以示意图呈现。

PbI_2 层被视为供体和敏化剂/天线，可增强受体 hBN 中 V_{B^-} 的吸收和发射。预计 PbI_2 自由激子（FE）的发射位于约 510 纳米，而 V_{B^-} 缺陷的宽带发射预计位于 750 至 850 纳米。四层异质结构中的能量转移通过热图得到证明；这些热图展示了 PbI2 自由激子和 V_{B^-} 发射强度，数据来源于连续两次扫描所采集的空间分辨光谱，光栅分别聚焦于低能量和高能量区域。白光图像中的白色虚线勾勒出了所映射的异质结构区域（**图 1a**）。观察到 PbI2 FE 向 V_{B^-} 态发生能量转移的明确证据，表现为给体猝灭和受体增强。具体而言，在异质结构的重叠区域可明显观察到 FE 发射减弱（**图 1b**），同时，局域于同一区域的 V_{B^-} 发射增强（**图 1c**）。来自异质结构不同区域的特征光谱（**图 1e**）也证明了热图中观察到的现象：PbI_2的 FE 在耦合的 PbI_2- V_{B^-} 异质结构（蓝色）中强度降低，相较之下，覆盖的 PbI2 区域（绿色）中的 FE 强度更高；与此同时，与覆盖但未耦合的 V_{B^-} 薄片（红色）相比，异质结构中的 V_{B^-} 峰强度增加。

在多层 PbI_2 薄片的高分辨率 TEM 图像中，可以观察到结构不均匀性的迹象（**图 1f**）。这些结构不均匀性导致 PbI_2 单独光谱中出现 650 至 750 nm 的宽光致发光峰（因此在异质结构光谱中也能观察到），该峰被称为 PbI_2 自陷激子（STE）。文中稍后将进一步讨论 PbI_2 中存在 STE 的证据，但 STE 的长尾与 V_{B^-} 峰重叠。因此，为避免高估异质结构对缺陷的增强作用，我们按照**图 1g**所示，使用差分强度计算增强因子。V_{B^-} 光谱显示为扣除背景光谱后的结果，而异质结构光谱显示为扣除 PbI_2

光谱后的结果。两条光谱采用不同的刻度绘制，以便尽管刻度不同，仍能看清两个峰。比较这两条光谱可知，与未耦合的 V_{B^-} 峰相比，耦合结构中的缺陷信号总体增强了 45 倍，这证实了我们异质结构的有效性。

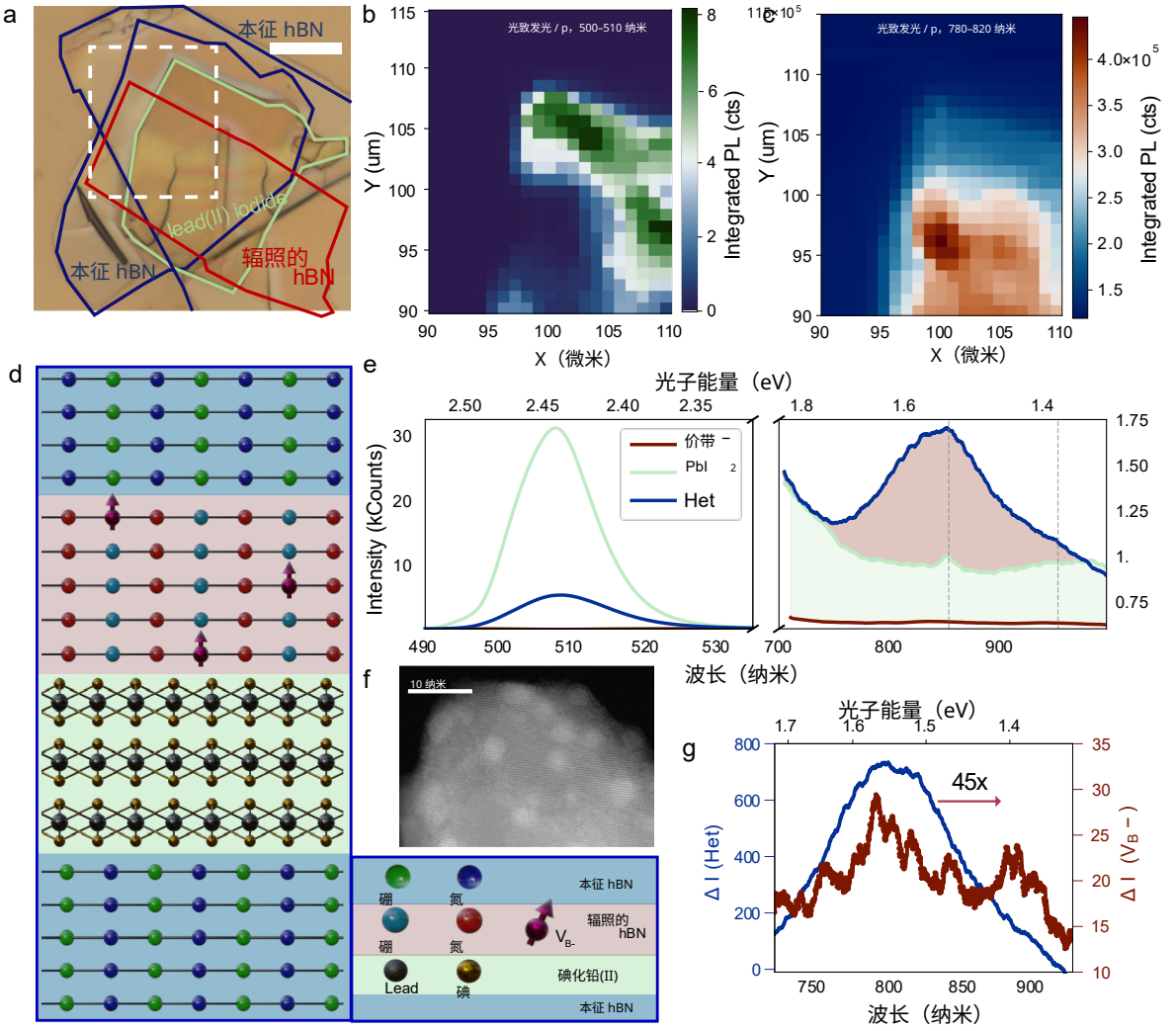


图 1 六方氮化硼–碘化铅异质结构在 4 开尔文下增强的缺陷发射：a) 四层范德华（vdW）异质结构的白光图像。在该结构中，顶层和底层由本征 hBN 构成，作为封盖层，并以深蓝色标示。紧邻顶部 hBN 封盖层下方的是含有带负电的硼空位（V_{B^-}）的中子辐照 hBN 层，以红色标示。其下方为以浅绿色勾勒出的 PbI_2, 。白色虚线所示区域对应于在 4 开尔文温度下进行扫描的区域。**b)** PL 强度图显示了与碘化铅自由激子（FE）峰相关的信号，波长范围为 500–510 纳米（≈505 ± 5 纳米）。**c)** V_{B^-} 缺陷峰的 PL 强度图是在 780–820 纳米（≈800 ± 20 纳米）范围内测得的。**d)** 异质结构的渲染示意图。该渲染图包含原子类型图例，其中中子辐照和本征 hBN 中的硼原子与氮原子以不同颜色显示，以便清晰区分中子辐照 hBN 和本征 hBN。**e)** 绘出了与 b) 和 c) 图中所标识区域对应的 PL 光谱。碘化铅显示出明显的 FE 峰和 STE 峰。**f)** 高分辨率透射电子显微镜（TEM）显示了碘化铅在原子尺度上的结构特征。**g)** 对 e) 图所示光谱进行差分强度分析。从 V_{B^-} 光谱中减去了背景光谱，并从异质结构光谱中减去了 PbI_2 光谱，从而在低温扫描中得到 45× 的增强因子。

在不存在应变或电场时，带负电的硼空位的量子效率较低，这可归因于基态（GS）与激发态（ES）三重态流形之间的偶极禁阻跃迁[42]。本研究并非旨在改变该缺陷的内禀发射过程，而是引入光吸收的替代途径。在异质结构中，其电子结构和光学跃迁矩阵元不同于各单独材料，因而吸收和发射特性也发生改变。重要的是，耦合系统支持涉及两种材料光子态的光学过程。在激光激发下，PbI_2 可以吸收一系列能量范围内的光子。如**图 2a**所示，其中一种代表性途径如下：PbI_2 吸收能量为ω1的光子，随后发射能量较低的红外光子 ω2。剩余能量用于激发V_{B^-}缺陷，随后该缺陷以其特征跃迁能量Ω = ω1 − ω2发射光子。这样，一个高能光子实际上被转换为两个低能激子——一个红外光子和一个由缺陷发射的光子。该过程源于系统的二阶非线性光学响应。频率为Ω时的二阶极化P可表示为二阶极化率张量$\chi^{(2)}$ 与相互作用的电磁场之积，即E(ω1)激光场和E(ω2)红外光子场：

$$P^{(2)}(-\Omega) = \Sigma_{j,k}\chi^{(2)}_{ijk}(-\Omega;\omega 1,-\omega 2)E_j(\omega_1)E^*_k(\omega_2) \quad 1)$$

在本研究中，我们仅考虑这一占主导地位的双光子非线性途径，预计它是最快的辐射通道。本文未纳入声子辅助过程和更高阶多光子机制。反过来，非线性极化决定了 V_{B^-} 发射强度 I，该强度与其大小的平方成正比。

$$I(\Omega) \propto \left|P^{(2)}(\Omega)\right|^2 \quad 2)$$

从头算密度泛函理论的详细信息和计算见补充信息第1节。缺陷周围计算得到的自旋密度分布如**图2b**所示，与先前的理论研究一致。[30] 补充信息图1展示了用于密度泛函理论计算的超胞，分别对应六方氮化硼中的孤立 V_{B^-} 缺陷和 PbI2堆叠结构。结果表明，缺陷与 PbI_2 态之间的电子杂化可以忽略。因此，自旋缺陷的本征辐射和非辐射途径基本不受影响，其作为自旋量子比特的功能得以保留。正文后续将讨论能带结构和杂化结构（**图3d**）。补充材料第4节介绍了一种基于7×7 自旋哈密顿量的高度简化模型，并计算了 PbI2耦合前后本征态组成和基态混合的变化。

对于低于 PbI_2 带隙的能量，异质结构的吸收也有所增强，这表明在受辐照的六方氮化硼存在时，PbI_2 激子谱线发生了重整化；此前在其他二维材料中也观察到了这一现象。[51,52] 在**图2c**所示的差分反射率扫描中，测量范围为550–555纳米，温度为4开尔文；异质结构区域的差分反射率（蓝色）低于单独的PbI_2 层或V_{B^-} 层。在**图2d**中，将未耦合时缺陷的理论吸收与缺陷和PbI_2, 耦合时的缺陷吸收进行了比较，能量范围低于V_{B^-} 发射波长。对于所有低于V_{B^-}发射能量的波长，吸收均有所增加, 其中激发能量高于PbI_2 带隙时，吸收增强尤为显著。

理论上也预测了发射增强（方程2），并估计在大多数激光激发波长下增强约一个数量级，这与实验观察到的增强幅度一致，后者为5至45倍。使用超连续谱激光器在异质结构区域测量了光致发光激发（PLE）光谱，同时保持激发功率恒定。PLE数据还显示，当

以低于PbI_2 带隙的能量进行激发时（补充信息图3），缺陷发射（使用775长通滤光片收集的发射）增强，这支持了PbI_2激子在受辐照的六方氮化硼附近发生重整化的假设。

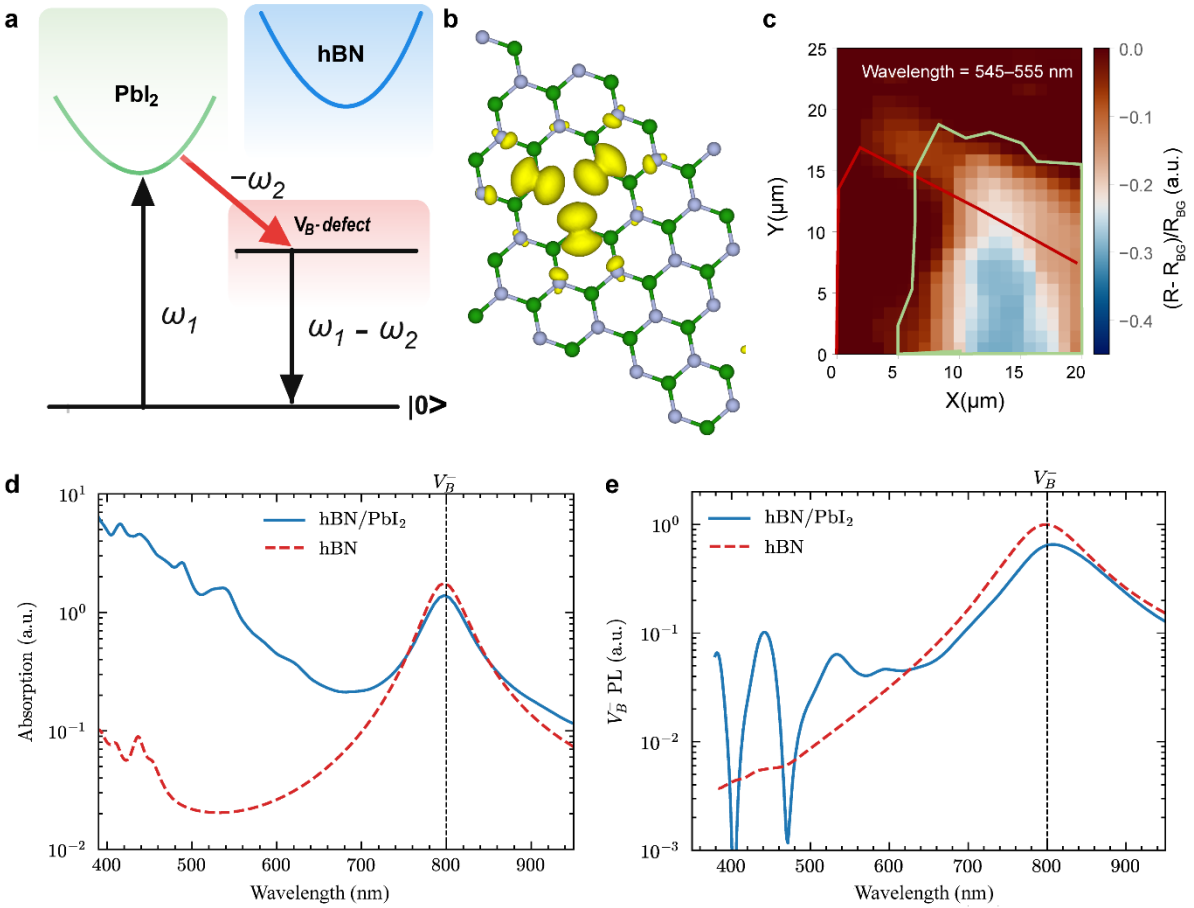


图 2 的能量转移机制及预测光学响应：V_{B^-} 缺陷。 **a)** 示意图展示了导致发射增强的能量转移过程，以及 PbI_2 与六方氮化硼中 V_{B^-} 缺陷之间的耦合。**b)**空位周围的自旋密度。 **c)** 图 1 中异质结构在 4开尔文下的差分反射率（吸收）。PbI_2 （绿色轮廓）与 V_{B^-} （红色轮廓）之间的耦合增强了吸收，甚至在 PbI_2 带隙以上也是如此。**d)**采用密度泛函理论模拟的缺陷单独存在（红色虚线）及与碘化铅耦合（蓝色）时的预期吸收。可以看出，在低于缺陷发射能量时，耦合结构中的吸收会增强；该发射能量以黑色竖直虚线标示。 **e)** 理论计算得到的未耦合缺陷（绿色虚线）和 PbI_2-V_{B^-} 耦合结构（蓝色）的光致发光强度。缺陷的发射能量线同样以黑色竖直虚线标示

在理论上和低温下确认耦合结构中的吸收与光致发光均得到增强后，我们评估了其室温性能，以判断其是否适用于环境条件下的实际传感。我们在异质结构中清晰地观察到，与 4开尔文下的情况（**图 1a-c**）相同的特征：供体（PbI_2）猝灭，受体（V_{B^-}）增强；这一现象在室温下（**图3a-c**）同样存在。总体而言，我们观察到室温下的增强范围为 4 至 18 倍，其测定方式与室温下**图 1** 所述相同。室温下 PL 光谱的差分光谱见补充信息图 4，对应的室温 PL 如图 3 所示。PL 光谱的共聚焦测量方法详见方法；另一个在室温下检测的异质结构示例见补充信息图 5。

能量转移（ET）通过两种途径实现：I型能带排列和荧光共振能量转移（FRET）。由于碘化铅具有

有利的带隙（2.4 eV）以及与V_{B^-}“带隙”之间的能带排列，同时六方氮化硼具有宽带隙和层状晶体结构，可进行机械剥离并轻松集成到范德华异质结构中，因此选择碘化铅作为供体材料。过渡金属二硫属化物（TMDs）也在考虑范围内，但其带隙通常处于1.0–2.0 eV范围内，对应红光至近红外区域，目前无法满足蓝光至紫外发射的需求。相比之下，碘化铅$_2$ 在绿光至蓝光光谱范围内发射，并具有较高的吸收（接近10^5 cm^{-1}），[55,56] 因此成为颇具吸引力的供体材料。它还表现出有趣的光学性质，例如光子上转换[57] 和超快可饱和吸收[58]。

虽然碘化铅带隙的大小和真空能级位置已相对明确，但V_{B^-}“带隙”是根据先前研究从理论上推断得出的。[59,60,30] 通过密度泛函理论（DFT）获得的两种材料的电子能带见**图3d**。碘化铅的价带远低于缺陷的最高占据轨道，因此，电子从碘化铅迁移到六方氮化硼中的V_{B^-} 态时，会移动到较低能量的态。另一方面，两种材料的导带态能量相近，碘化铅的导带略低于缺陷的导带。这可能意味着激子无法有效迁移。然而，考虑到密度泛函理论能量计算公认的误差，以及实验结果表明情况并非如此，可以接受这一较小的能量势垒，从而允许激子从碘化铅迁移到V_{B^-}，这正是I型能带排列的特征。**图3e** 展示了这一过程的简化示意图，其中能带间隙周围的数值表示各材料价带和导带相对于真空的能量；这些数值围绕**图3f**中通过开尔文探针力显微镜（KPFM）测定的费米能级标出。

通过在真空中进行的开尔文探针力显微镜（KPFM）实验，测量了三种异质结构材料的费米能级及其因堆叠产生的轻微变化。KPFM 从真空能级测量费米能级。在我们的结构中，费米能级因材料而异，但始终处于 0.5 eV 的范围内，从而能够实现本文讨论的能量转移。结构外的区域为金，其费米能级距真空能级 5.1 eV。KPFM 的测量流程和校准方法详见 方法。为确定堆叠过程中的能带弯曲效应，用于 KPFM 的结构包含分别具有一层、两层和三层的区域。结果表明，正如本研究及以往理论研究所预测的那样，鉴于光学测量已充分确定 PbI_2 的带隙大小以及理论预测的 V_{B^-} 的带隙大小，各材料的费米能级能够良好对齐，从而促进通过激子迁移实现能量转移。耦合结构中还存在福斯特共振能量转移，这一点得到了 **图3g** 中实验发射光谱和吸收光谱的支持。吸收光谱采用块状中子辐照六方氮化硼晶体进行记录。

最后，分别记录了异质结构中和裸 VB- 中缺陷的寿命，激发时使用 555纳米激光（**图3h**）。使用 775纳米长通滤光片滤除碘化铅$_2$中 STE 的发射。观察到异质结构中的缺陷寿命更短，这可能是由于重原子铅和碘的存在增强了自旋轨道耦合和系间窜越，同时折射率差异也带来了微弱的珀塞尔效应。还使用 460纳米激发测量了缺陷在 4开尔文下位于异质结构上和异质结构外时的寿命；这次激发能量高于碘化铅$_2$ 带隙。该数据同样使用 775 nm长通滤光片记录，显示出相同的寿命缩短现象（补充信息图6）。补充信息图6还报告了异质结构和碘化铅的寿命，表明能量转移会缩短供体寿命，但缩短幅度太小，无法得出确切结论。尽管此处的数据经过归一化，增强

在低于碘化铅带隙的能量下激发时，仍可观察到发射，这与理论预测一致（**图2e**

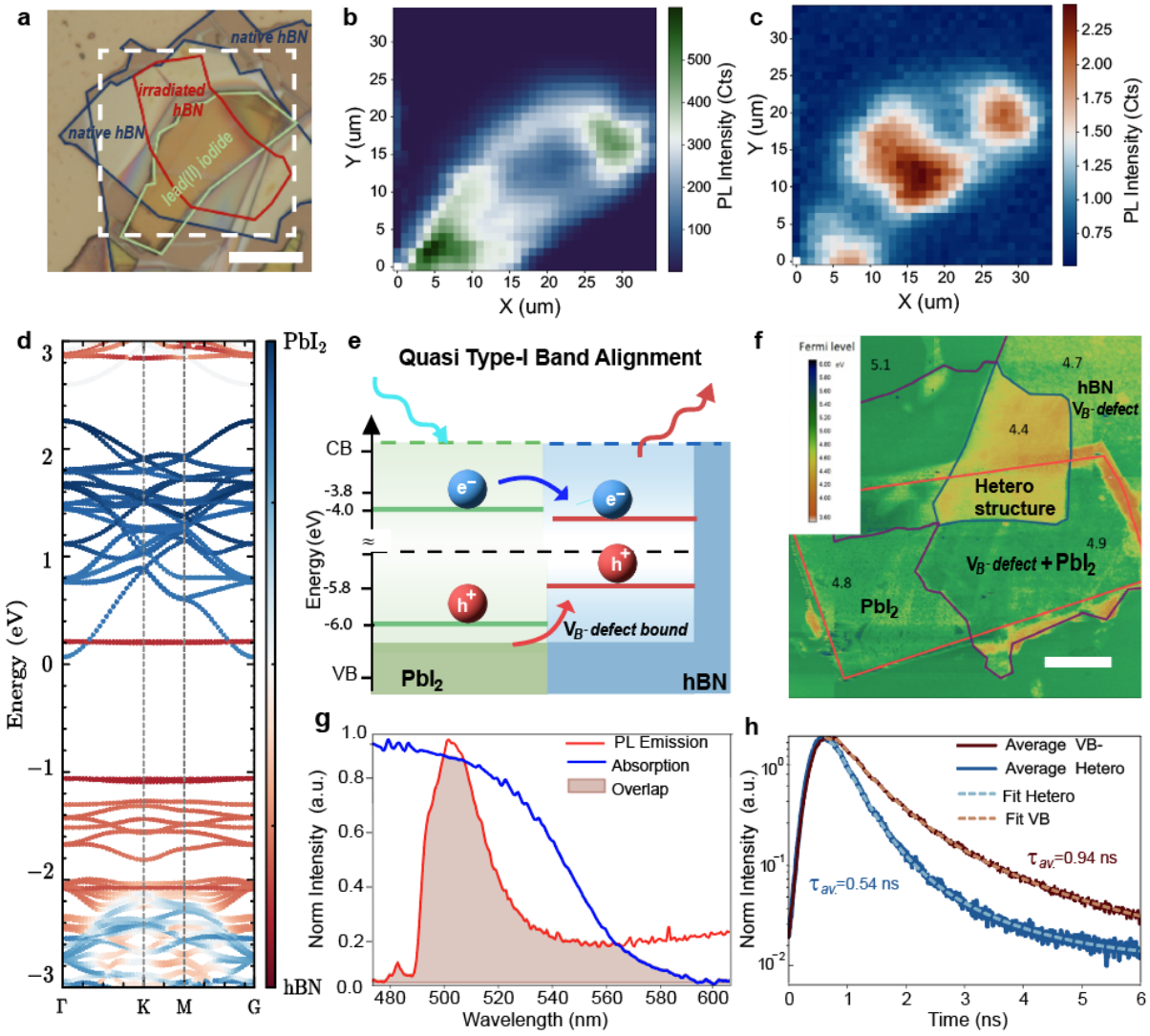


图3 室温异质结构响应： **a)** 所成像的四层范德华异质结构的白光图像。顶层和底层由本征 hBN 薄片构成，作为封盖层，并以深蓝色标示。顶层 hBN 下方是中子辐照 hBN 层（V_{B^-}），以红色标示。其下为以浅绿色勾勒的碘化铅$_2$, 。白色虚线所示区域在室温下进行了映射。 **b)** 碘化铅$_2$自由激子峰信号的 PL 强度图， 510 ± 10 纳米。 **c)** 在800 ± 20 纳米处检测到的 V_{B^-} 的 PL 强度图。 **d)** 密度泛函理论计算得到的碘化铅$_2$ （蓝色）和 hBN 中 V_{B^-} （红色）的能带图，其中白色表示完全杂化。 **e)** I 型（交错式）能带排列的简化示意图，带隙大小依据理论确定，并以开尔文探针力显微镜测得的费米能级为中心。 **f)** 碘化铅$_2$ （底层，红色）、V_{B^-} （中层，紫色）和 hBN（顶层，蓝色）重叠层的开尔文探针力显微镜图像。 **g)** 福斯特共振能量转移所需的发射与吸收重叠积分。碘化铅的发射以红色表示，中子辐照 hBN 的吸收以蓝色表示。 **h)** 耦合结构（红色）与未耦合结构（蓝色；当前标注有误）的寿命。观察到异质结构的寿命较短。两者均采用双指数衰减曲线拟合。

为探究异质结构中各种激子的复合机制，我们对相关区域进行了详细的功率分析。功率范围为 1.5 微瓦至 16 微瓦。共聚焦扫描使用光斑直径为一微米的激光器进行（功率密度为 1.91 kW cm^{-2} 至 20.4 kW cm^{-2}。我们选择激发和采集参数，以确保缺陷信号清晰可见，同时避免 PbI2 自由激子发射饱和。在碘化铅$_2$ 区域观察到两个主要的激子特征（**图4a**）：自由激子（FE）和宽发射特征

覆盖600至750纳米的自陷激子（STE）。当激子因晶格发生畸变而被局域化时，便会产生STE，[62] 这一现象也与碘空位的存在有关。[63] 这种局域化会使发射能量显著红移，形成宽光谱特征，反映多个振电带之间的跃迁。补充信息图7以示意图形式展示了STE机制，随后将进一步讨论辐照诱导的不均匀性。为研究STE和结构不均匀性，我们进行了高分辨TEM和元素分析TEM（分别见**图 4b**和**4c**）。TEM图像显示了PL中观察到的结构不均匀性。样品中既有较薄和较厚的层，也有铅积聚区域，这与此前的预测一致，即橙红区域的STE发射与碘空位有关。[63]

在异质结构中，随着激发功率增加，自由激子、STE和V_{B^-} 的发射均随之增强（**图 4c**）。插图还显示了差分强度（het-PbI_2, , 如**图 1e**所述）随激光功率的变化。随着激光功率增加，V_{B^-} 发射变得更加明显。补充信息图8展示了中子辐照区域的PL随功率的变化，其中V_{B^-} 峰也随激光激发功率增加而增强，但增速较慢，且整体强度低于异质结构。

图 4f展示了碘化铅–六方氮化硼异质结构中随功率变化的发射光谱，显示随着激发通量增加，V_{B^-} 缺陷发射持续增强。在测量功率范围内未观察到滚降，表明缺陷系综仍远未达到饱和。幂律分析得到耦合区域和非耦合区域相近的标度指数，说明碘化铅并未改变缺陷系综的本征辐射效率，而是增强了 V_{B^-} 中心所经历的有效激发，这与我们提出的能量转移机制相符。相应地，在异质结构中，V_{B^-} 峰强度随功率增加的速度约快 33× （功率增加 9）倍于单独的中子辐照六方氮化硼（补充图 8）。对于异质结构光谱，峰强度通过双高斯拟合提取；对于中子辐照区域，则采用单高斯拟合（补充图 8）。

图 4e通过将 V_{B^-} 发射强度的变化与基线缺陷光致发光进行对比，量化了系综级耦合。观察到的线性标度关系表明，碘化铅诱导的增强与缺陷的本征发射强度成正比，这与能量转移事件增加而非缺陷饱和相一致。鉴于碘化铅激子库实际上不受限，这一行为支持转移受限区间，即相当一部分供体激子通过竞争性路径复合；这与在耦合结构光谱中持续观察到的碘化铅自由激子和自陷激子发射峰相符。

温度依赖的光致发光（**图4g**）表明，冷却时碘化铅自由激子发射增强了数个数量级，同时异质结构中的 V_{B^-} 缺陷发光也相应增强。这表明，供体激子效率的提升会增强缺陷敏化，并意味着低温下性能还可进一步提升。

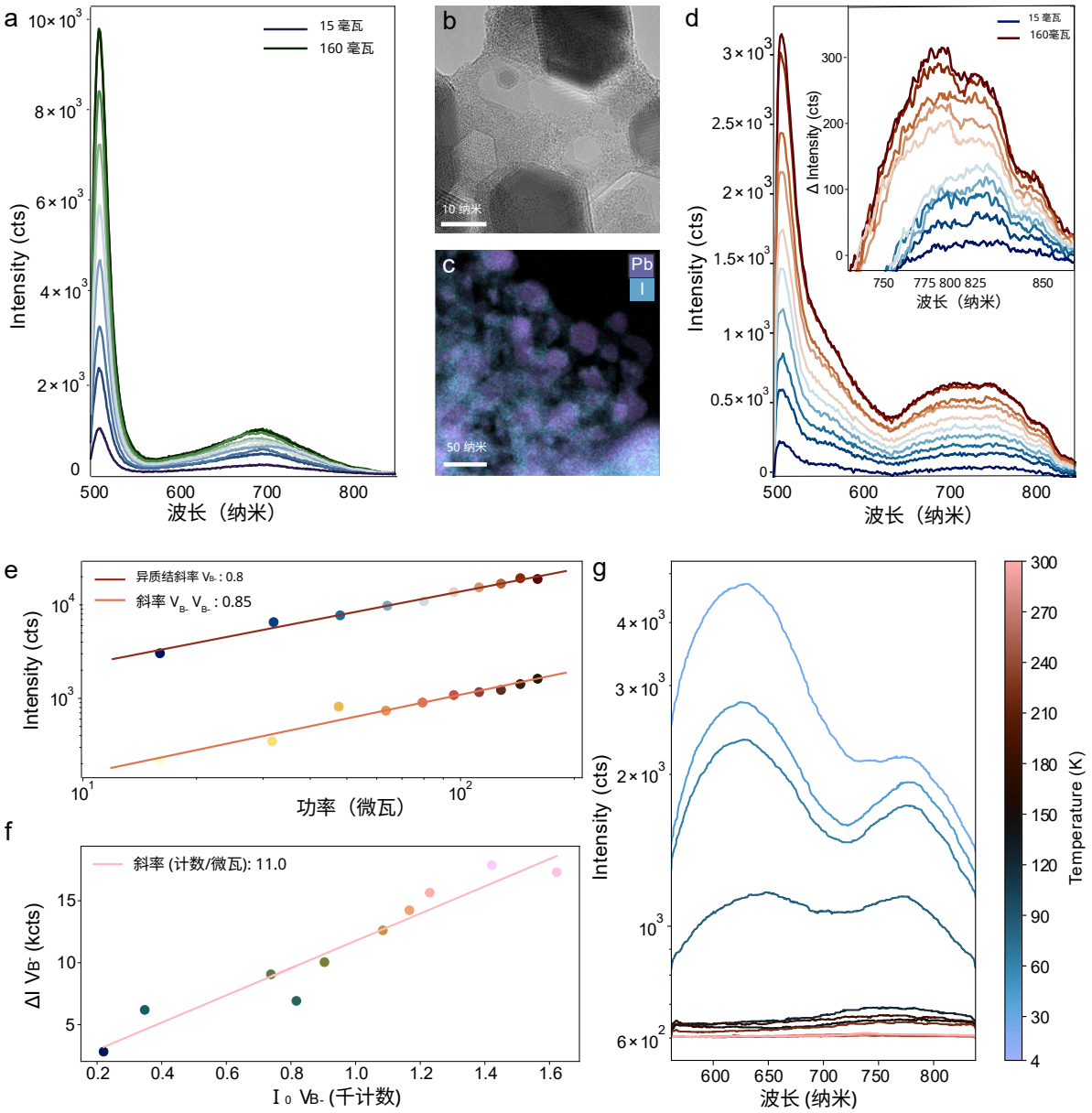


图 4 发射特性：a) 异质结构中 PbI_2 （以六方氮化硼覆盖）区域的光致发光强度随功率的变化，该区域称为 PbI_2。已扣除背景（异质结构外区域）。功率在 1 微米光斑范围内从 15 微瓦增至 160 微瓦（功率密度从 1.91 kW cm^{-2} 增至 20.4 kW cm^{-2}）。**b)** PbI_2 薄片的高分辨透射电子显微镜图像，显示出局部结构不均匀性。比例尺为 10 纳米。**c)** PbI_2 薄片的元素分析透射电子显微镜（能量色散X射线谱）图像。铅以紫色显示，碘以蓝色显示。比例尺为 50 纳米。可以观察到铅积聚区域。**d).** 异质结构区域（全部四层）的光致发光强度随功率的变化。已扣除背景。插图显示差分异质结构光致发光，其中差分光致发光定义为全部四层异质结构区域的光致发光减去 PbI_2 区域的光致发光。扣除自陷激子后可还原出缺陷的光致发光。**e)** 功率图展示了异质结构与中子辐照六方氮化硼中 V_{B^-} 峰的强度。**f)** 与碘化铅供体层耦合和未耦合的 V_{B^-} 系综发射之间的差值，绘制时以未耦合缺陷发光的基线为参照。**g)**低能缺陷光谱区的光致发光强度随温度的变化。

V_{B^-} 缺陷的主要研究价值在于其作为量子比特平台的潜力，此处则将其用作传感器。通过光吸收/激光辐照，V_{B^-} 电子自旋可经非共振激发，从自旋三重态基态跃迁至自旋三重态激发态。由于非辐射自旋翻转衰变通道（可通过

系间窜越）会优先耦合到激发态的 m_s= +-1 子能级，对 m_s= +-1 态进行激发会导致较低的 PL。V_{B^-} 量子比特的简化能级图如**图5a**所示，其中 D_{gs} 是室温下子能级 |0〉与 |±1〉之间的天然基态劈裂，D_{es} 是室温下子能级 |0〉与 |±1〉之间的天然激发态劈裂。PL 的这种差异使人们能够读出电子自旋态，这种差异称为对比度。

本文使用光学探测磁共振（ODMR）来探测这些态。在光探测磁共振（ODMR）中，通过天线向样品传输微波，同时扫描微波的频率并监测 PL。装置如**图5b所示，**光探测磁共振（ODMR）方法的进一步介绍见方法。当频率经过某一跃迁时，如果其能量等于基态电子自旋子能级之间的能量，PL 信号会下降，从而表明发生了共振。

$$v_{1,2} = \frac{D_{gs}}{h} \pm \frac{1}{h} * \sqrt{E_{gs}^2 + (g\mu_B B)^2} \qquad 3)$$

包括外部磁场在内的共振特征完整形式由公式3描述： D_{gs} 和 E_{gs}分别表示基态纵向和横向零场分裂参数。h为普朗克常数。μ_B 为玻尔磁子，g 为朗德因子（2.000）。根据本研究，我们得出D_{gs}/h = 3。46吉赫以及E_{gs}/h= 55 ±5 兆赫，这与先前关于V_{B^-}.[32,64]的研究结果非常吻合。

在我们的情况下，光致发光计数作为微波频率的函数被记录，并比较了异质结构的不同区域。该系统由488纳米（**图5c**）或555纳米（**图5d**）激光器进行非共振激发；在这两种情况下，我们均观察到异质结构区域中光致发光信号的显著增强，同时保留了与V_{B^-} 区域相同的共振特征。如公式3所示，m_s= ±1 子能级之间的能量差可由磁场改变，B。缺陷的光学探测磁共振谱的共振特征随磁场的变化如**图5e**和 **图5g**所示。

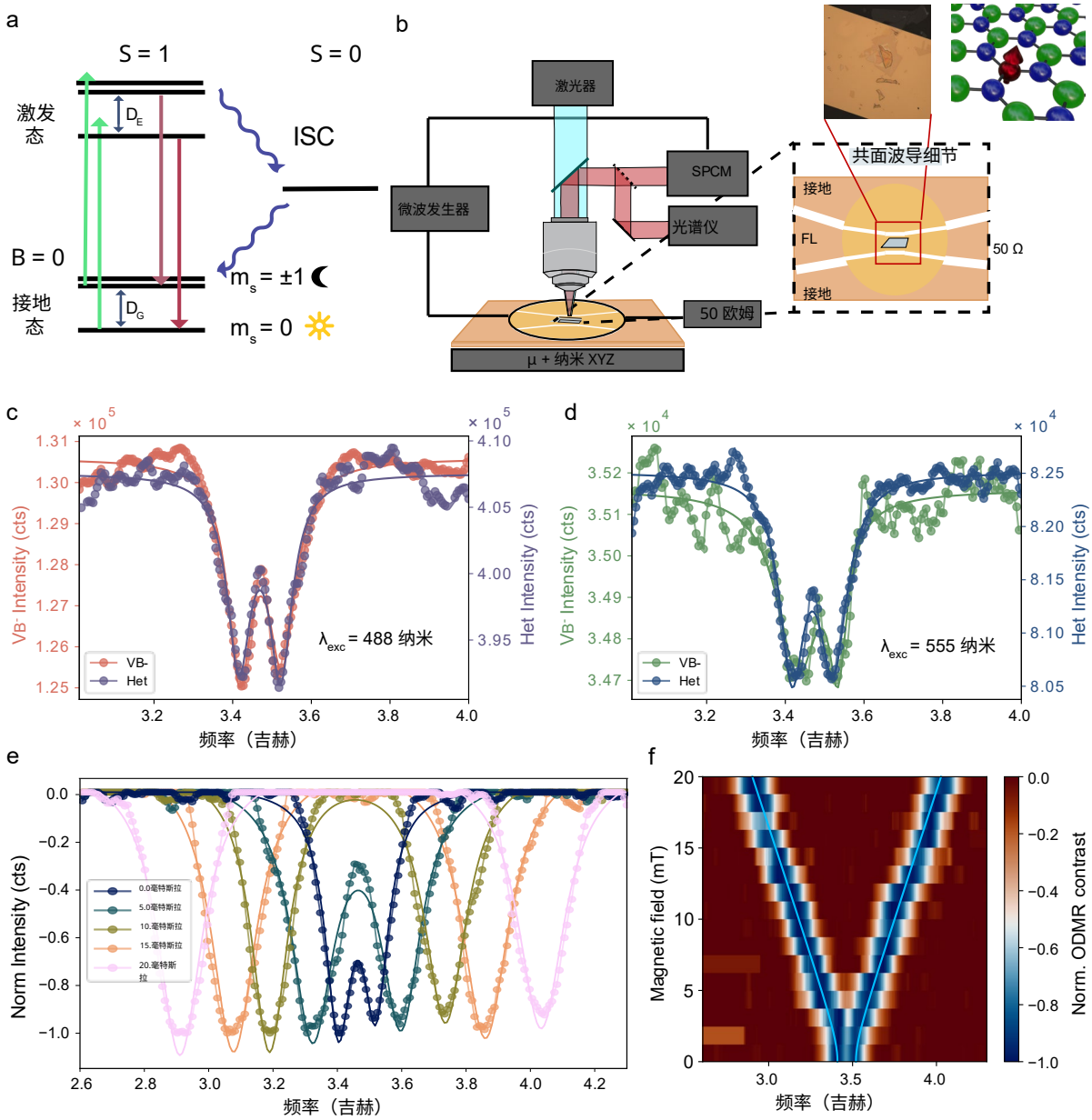


图5 光探测磁共振 与磁场传感：a) V_{B^-} 的能级图以及通过光探测磁共振读出的示意图。系统通过激光器（绿色箭头）进行非共振激发。光探测磁共振对比度取决于辐射衰减（红色箭头）与通过系间窜越（ISC，紫色箭头）从激发态到基态的亚稳态（MS）单重态的非辐射衰减速率之差。在对应于 $m_s = 0$ 与 $m_s=\pm1$ 能量差（D_{gs}）的频率处可观察到光致发光的凹陷。**b)** 光探测磁共振装置示意图。共面波导（CPW）置于光路中央，异质结构放置在馈线（天线）上。该共面波导通过引线键合连接到印刷电路板（PCB），后者与信号发生器（SG）和 50 欧姆阻抗终端相连。用激光器激发样品，并通过雪崩光电二极管（APD）检测发射；APD由信号发生器频率变化触发。**c)** 用488纳米激光器激发 V_{B^-}（左，粉色）与异质结构（右，紫色）时的光探测磁共振谱。**d)** 用555纳米激光器激发 V_{B^-}（左，绿色）与异质结构（右，蓝色）时的光探测磁共振谱。**e)** 异质结构在不同磁场下的归一化光探测磁共振信号。 **f)**将 e 中的数据点及其他数据点绘制为磁场与共振频率的关系图。

为了探测该缺陷的传感能力，我们施加了外部磁场，并测量了共振光探测磁共振峰的相应位移。所选数据点绘制在一个

图5e中的归一化刻度，呈现出预期特征：随着磁场增强，共振峰之间的间距增大。补充信息图9以完整对比度（非0–1刻度）显示了各峰。随后将不同磁场下的共振频率绘制成热图（图5f），展示了利用光探测磁共振峰的位置感测磁场的能力。浅蓝色曲线绘出了理论共振频率（公式3）随磁场的变化，结果与实验数据明显吻合。

$$\eta_{CW} = \frac{4}{3 * \sqrt{3}} \frac{h}{g_e \mu_B} \frac{\Delta \nu}{\gamma_e C_{CW} \sqrt{R}} \quad 4)$$

为量化碘化铅棘轮层对V_{B^-}效用的影响，我们评估了连续波光学探测磁共振（cw-ODMR）的灵敏度。如公式4所定义，灵敏度取决于ODMR线宽（$\Delta\nu$）、对比度（C_{CW}）和光致发光计数率（R）。γ_e 为电子的旋磁比。所有测量均在室温下进行；为尽量减弱PbI_2自陷激子发射，使用了775 nm长通滤光片。由于相当一部分V_{B^-}发射位于该截止波长以下（补充图8），因此报告的增强幅度是保守的下限。在488纳米激发下，异质结构的光致发光计数增加了4×，同时共振位置保持不变（图5c）；在555纳米激发下，计数增加了3×（图5d）。这一光子收集增益虽伴随对比度的适度变化，但使灵敏度在488纳米下提升了190%，在555纳米下提升了325%（补充表1–2）。性能最佳的异质结构灵敏度达到76 μT $Hz^{-1/2}$，激发功率为160 μW；与此前报道的相近功率下经优化的V_{B^-}灵敏度相比，约提升了三倍。[65] 值得注意的是，较低激发功率下的灵敏度优势更为显著，在488纳米激发、功率为16 μW时，提升幅度达到~350 μT $Hz^{-1/2}$（补充图10）。鉴于供体–缺陷光子与能量转移的短程特性（~10 纳米），以及低温下辐射效率的提高，预计在更薄的中子辐照薄片和低温运行条件下还可进一步提升性能，这些方向值得未来研究探索。

2 结论

通过在范德华异质结构中采用敏化供体层，本研究证明，量子缺陷传感器（此处为六方氮化硼中的 V_{B^-}）的光致发光量子产率和传感性能均可得到显著提升。除提高发射量子产率外，本研究还验证了通过范德华异质结构中的层间耦合增强缺陷发射的可行性，为进一步优化并应用于其他体系的方法开辟了道路。光子棘轮机制使 4 开尔文下的缺陷发射增强两个数量级，且在室温下仍保持一个数量级的增强；互易光致发光映射显示，PbI2 自由激子发射受到抑制的同时，V_{B^-} 缺陷发光得到增强，从而证实了能量转移。结合吸收和光致发光光谱的密度泛函理论计算表明，耦合异质结构中的光吸收和发射均得到增强，这与高效的供体到缺陷的能量转移相符。最后，连续波ODMR测量表明，在室温下使用多种激发波长均可显著提高灵敏度，凸显了该平台在可扩展的外部磁场量子传感方面的应用前景。

3 方法

3.1 异质结构制备

此前已有报道[32]：商用六方氮化硼块体晶体（HQ Graphene）在俄亥俄州立大学（OSU）的设施中接受中子辐照，以生成 V_{B^-} 缺陷。异质结构采用聚碳酸酯（PC）薄膜，通过干法转移技术制备。将单独的薄片机械剥离至氧化层厚度为 270 的 SiO_2/Si 衬底上，所用解理法由最初用于制备石墨烯的方法改进而来[66]。对未接受中子辐照的碘化铅和六方氮化硼也采用了相同的机械剥离技术。 通过聚碳酸酯印章依次拾取薄片，随后将其释放到光学探测磁共振天线上，释放时将温度升至 150 °C 以上[67]。

3.2 共聚焦显微镜

光致发光特性采用自制扫描共聚焦显微镜在环境条件下进行分析。405纳米、488纳米或555纳米的激光激发（Omicron BrixXHub-6）通过安装在三轴MCL Nanodrive压电扫描仪（MCLC02485）和MCL Microdrive（MCL-microD2035）上的高数值孔径显微物镜（NA = 0.95）聚焦到样品上。在通过适当的长通二向色镜将激发光导向样品之前，采用了4f成像配置。光致发光信号由同一物镜收集，经波长取决于具体应用的长通滤波器滤波后，聚焦到直径为50-μm的针孔上，最终导向光谱仪（Ocean Optics QEPro高性能光谱仪）或工作于单光子计数模式的硅雪崩光电二极管（PerkinElmer Optoelectronics光子计数模块，型号：SPCM-AQR-14-FC）。进行了单点光谱、光学探测磁共振或x-y光致发光扫描。显微镜的横向空间分辨率约为1微米。

3.3 光学探测磁共振

通过监测光致发光信号，同时扫描施加于金共面波导（天线）的微波场频率，记录光探测磁共振（ODMR）光谱。该异质结构被转移至金天线上。天线采用光刻工艺，并通过电子束蒸发沉积5纳米钛和50纳米金，在盖玻片上制备而成。随后，天线通过引线键合连接至铜共面波导印刷电路板（PCB），该电路板与信号发生器（Siglent SSG5060X-V）相连，并通过铜波导PCB连接至样品表面。当微波频率扫过一个跃迁频率，且该跃迁能量与基态电子自旋子能级之间的能量差相等时，光致发光信号会下降，表明发生了磁共振。在零外部磁场下，共振频率为 $\nu_{\pm} = D \pm E$，其中D和E分别表示纵向和横向零场劈裂参数。外部磁场由钕铁硼磁体（N35）产生，该磁体置于样品台上方，可通过Z轴定位器升降。

3.4 开尔文探针力显微镜

在扫描电子显微镜（SEM）内部，使用针尖扫描原子力显微镜（AFM）对二维异质结构进行了开尔文探针力显微镜[68] （KPFM）测量。[69] 为消除光学激光束对表面电势的诱导效应，并实现紧凑真空环境中的测量，使用了自感知压阻式聚合物原子力显微镜悬臂梁[70] 。悬臂梁偏转通过集成的压阻电桥电路读出

并用于调幅原子力显微镜模式下的形貌反馈。KPFM采用外差配置：[71] 在探针针尖与样品之间施加交流偏压V_{ac}，其频率 f $f_2 = f_1 + f_{el}$ f_1 经过选择，使产生的静电力检测对应于第二本征模态；该模态为悬臂梁的第一本征模态和机械载波频率。KPFM反馈回路通过调节直流偏压V_{dc}使静电相互作用归零，直至静电响应达到最小值；随后将所得补偿偏压记录为接触电势差（CPD）图，并在单次扫描中同步记录形貌。

为避免电子束诱导污染和功函数漂移，在所有开尔文探针力显微镜采集完成之前，样品未暴露于扫描电子显微镜电子束；之后仅进行扫描电子显微成像以供导航。为对功函数进行基准校准，二维材料薄片制备在蒸镀金膜上，该金膜在每次扫描中均作为内部参考区域。大面积接触电势差图通过采集平铺数据集生成（10张部分重叠的20 μm x 20 μm图像），采集时采用相同的开尔文探针力显微镜参数；随后利用基于重叠区域的平移进行对齐，并拼接成单张镶嵌图。通过在重叠区域的金参考区域内强制采用一致的接触电势差值，校正各图块间的残余偏移。利用接触电势差值计算费米能级值：$CPD = \left|\phi_{tip} - \phi_{sample}\right| / e$，其中$\phi$ 为功函数，e 为元电荷。将每次扫描中经金参考校准的探针针尖功函数用于计算参考电势偏移：$\Delta V(x,y) = V_{CPD}(x,y) - \langle V_{CPD} \rangle_{Au}$，其中$\langle V_{CPD} \rangle_{Au}$ 为测得的金的平均接触电势差。随后，假设$\phi_{Au} = 5.1$并采用等价关系$1V = 1\ eV/e$，即可得到样品局部功函数：$\phi_{sample}(x,y) = \phi_{Au} - \Delta V\ (x,y)$。相对于真空能级的费米能级报告为$E_F\ (x,y) = -\phi_{sample}\ (x,y)$。

4 致谢

E.M.和A.R.感谢Arianna Marchioro博士（LBP和EPFL）就光化学机制进行讨论并提供实验建议，也感谢David Reyes博士（CIME EPFL）在TEM成像、分析以及PbI_2等难处理样品的样品制备方面提供的专业帮助。E.M.和A.R.还感谢CMI EPFL提供技术支持和设施。E.M.和A.R.感谢欧洲研究理事会的资助（项目编号101020445—2D-LIQUID）。Y.Z.和O. V. Y.感谢瑞士国家科学基金会的资助（项目编号224624）。

5 参考文献

1. Vaidya, S., Gao, X., Dikshit, S., Aharonovich, I. & Li, T. 六方氮化硼中自旋缺陷的量子传感与成像。*Adv. Phys. X* **8**, 2206049 (2023). 2. Togan, E. 等 光学光子与固态自旋量子比特之间的量子纠缠。《自然》 466, 730–734 (2010). 3. Pla, J. J. 等 硅中核自旋量子比特的高保真读出与控制。《自然》 496, 334–338 (2013). 4. Awschalom, D. D., Hanson, R., Wrachtrup, J. & Zhou, B. B. 具有光学接口的固态自旋量子技术。*Nat. Photonics* **12**, 516–527 (2018). 5. Wolfowicz, G. 等 固态自旋缺陷的量子指南。*Nat. Rev. Mater.* 6, 906–925 (2021). 6. Balasubramanian, G. 等 环境条件下基于金刚石自旋的纳米尺度成像磁力测量。《自然》 455, 648–651 (2008). 7. Kucsko, G. 等 活细胞中的纳米尺度测温。《自然》 **500**, 54–58 (2013). 8. Gao, X. 等 范德华材料中单核自旋的探测与控制。《自然》 643, 943–949 (2025). 9. Pollok, S. 等 用于电池动态原位成像的磁显微镜。*Nat. Commun.*16, 1–15 (2025). 10. Christle, D. J. 等 碳化硅中的孤立电子自旋及其毫秒级相干时间。*Nat. Mater.* 14, 160–163 (2015). 11. Son, N. T. 等 面向量子自旋电子学的碳化硅开发。*Appl. Phys. Lett.* 116, 190501 (2020).

12. Castelletto, S. & Boretti, A. 面向量子应用的碳化硅色心。*J. Phys.Photonics* **2**, 022001 (2020). 13. Robledo, L., Bernien, H., van Weperen, I. & Hanson, R. 金刚石中单个氮空位中心光学跃迁的控制与相干性。*Phys. Rev. Lett.* **105**, 177403 (2010)

.

14. Maurer, P. C. 等 室温下超过一秒的量子比特存储。*Science* **336**, 1283–1286 (2012)。15. Zvi, U. 等 在核壳金刚石纳米晶体中实现自旋相干性工程。*Proc. Natl. Acad.Sci.* **122**, e2422542122 (2025)。16. Kim, D. 等 基于氮空位中心的 CMOS 集成量子传感器。*Nat.Electron.* **2**, 284–289 (2019)。17. Tisler, J. 等 单颗粒纳米金刚石中缺陷的荧光和自旋性质。*ACSNano* **3**, 1959–1965 (2009)。18. Gardill, A., Cambria, M. C. & Kolkowitz, S. 纳米金刚石中氮空位中心量子三能级跃迁的快速弛豫。*Phys. Rev. Appl.* **13**, 034010 (2020)。19. Turunen, M. 等 层状二维材料的量子光子学。*Nat. Rev. Phys.* **4**, 219–236 (2022)。20. Montblanch, A. R.-P., Barbone, M., Aharonovich, I., Atatüre, M. & Ferrari, A. C. 层状材料作为量子技术平台。*Nat. Nanotechnol.* **18**, 555–571 (2023)。21. Dean, C. R. 等 用于高品质石墨烯电子学的氮化硼衬底。*Nat.Nanotechnol.* **5**, 722–726 (2010)。22. Dean, C. R. 等 用于高品质石墨烯电子学的氮化硼衬底。*Nat.Nanotechnol.* **5**, 722–726 (2010)。23. Jiang, S., Shan, J. & Mak, K. F. 二维范德华磁体的电场切换。*Nat. Mater.* **17**, 406–410 (2018)。24. Ciarrocchi, A. 等 二维范德华异质结构中层间激子的极化切换与电控。*Nat. Photonics* **13**, 131–136 (2019)。25. Cao, G. 等 用于神经形态计算的二维材料基突触器件。*Adv. Funct.Mater.* **31**

, 2005443。(2021)

26. Huang, M. 等 利用六方氮化硼中的自旋缺陷对范德华铁磁体 Fe3GeTe2 进行大视场成像。《Nat. Commun.》 **13**, 5369 (2022). 27. Geim, A. K. & Grigorieva, I. V. 范德华异质结构。《自然》 **499**, 419–425 (2013). 28. Mounet, N. 等 通过对实验已知化合物进行高通量计算剥离，获得二维材料。《Nat. Nanotechnol.》 **13**, 246–252 (2018). 29. Chaves, A. 等 二维半导体材料的带隙工程。《Npj 2D Mater. Appl.》 **4**, 29 (2020). 30. Ivády, V. 等 六方氮化硼中带负电硼空位量子比特的第一性原理理论。《npj《计算材料》》 **6**, 41 (2020). 31. Gottscholl, A. 等 hBN 中的自旋缺陷：有望用于温度、压力和磁场测量的量子传感器。《Nat. Commun.》 **12**, 4480 (2021). 32. Haykal, A. 等 单同位素六方氮化硼中 V $${}_{{{{{{{{{\rm{B}}}}}}}}}}^{-}$$ 自旋缺陷的退相干。《Nat. Commun.》 **13**, 4347 (2022). 33. Baber, S. 等 利用时间分辨光学探测磁共振对六方氮化硼中的硼空位缺陷进行激发态光谱学研究。《纳米快报》 **22**, 461–467 (2022). 34. Ru, S. 范德华材料中自旋缺陷的室温电学读出。《Phys. Rev. Lett.》 **135**, (2025). 35. Whitefield, B., Toth, M., Aharonovich, I., Tetienne, J.-P. & Kianinia, M. hBN 中带负电硼空位缺陷的磁场灵敏度优化。《Adv. Quantum Technol.》 **8**, 2300118 (2025). 36. Mendelson, N. 等 确认碳是六方氮化硼可见单光子发射的来源。《Nat. Mater.》 **20**, 321–328 (2021). 37. Stern, H. L. 等 六方氮化硼中单个缺陷的室温光学探测磁共振。《Nat. Commun.》 **13**, 618 (2022). 38. Whitefield, B. 等 六方氮化硼中具有可光学寻址自旋的窄带量子发射体。《 Nat. Mater. 》 1–8 (2026) doi:10.1038/s41563-025-02458-6。

39. Udvarhelyi, P. 等 一种易受应变和电场影响的二维材料平面缺陷自旋传感器。*npj*《计算材料》 **9**, 150（2023年）。40. Gong, R. 等 六方氮化硼中强相互作用电子自旋缺陷的相干动力学。*Nat. Commun.* **14**, 3299（2023年）。41. Tárkányi, A. & Ivády, V. 理解六方氮化硼中硼空位中心的退相干。*Adv. Funct. Mater.* **n/a**, e11300。42. Reimers, J. R. 等 六方氮化硼中 ${{\mathrm{V}}_{\mathrm{B}}}^{\ensuremath{-}}$ 缺陷的光致发光、光物理学和光化学。《物理评论*B*》 **102**, 144105（2020年）。43. Steiner, C. 等 电流诱导六方氮化硼中空位相关发射体增亮。《物理评论研究》 **7**, L032037（2025年）。44. Rizzato, R. 等 延长六方氮化硼中自旋缺陷的相干性，实现先进的量子比特控制与量子传感。*Nat. Commun.* **14**, 5089（2023年）。45. Qian, P. 等 研究通过离子注入生成的六方氮化硼自旋缺陷。《光学快报》 **32**, 46489–46499（2024年）。46. Zhou, H.-J. 等 检测并操控六方氮化硼表面电场噪声。预印本，网址：https://doi.org/10.48550/arXiv.2506.07734（2025年）。47. Carbone, A. 定量研究He离子辐照六方氮化硼中带负电的硼空位的形成。《物理评论材料》 **9**, （2025年）。48. Qian, C. 等 通过腔增强发射揭示硼空位中心的零声子线。《纳米快报》 **22**, 5137–5142（2022年）。49. Xu, X. 等 低损耗等离激元纳米腔使六方氮化硼中自旋缺陷的发射大幅增强。《纳米快报》 **23**, 25–33（2023年）。50. Sakib, M. A. 等 珀塞尔效应增强的六方氮化硼明亮单光子发射体。《纳米快报》 **24**, 12390–12397（2024年）。51. Raja, A. 等 二维材料中带隙与激子的库仑工程。*Nat. Commun.* **8**, 15251（2017年）。

52. Itzhak, R. 等 通过介电环境工程操控二维半导体中的激子。*ACS Appl. Opt. Mater.* **3**, 1330–1338（2025年）。53. Wangyang, P., Sun, H., Zhu, X., Yang, D. & Gao, X. 超薄碘化铅单晶的机械剥离与拉曼光谱。*Mater. Lett.* **168**, 68–71（2016年）。54. Sinha, S. 等 外延取向排列于石墨烯上的单层碘化铅纳米盘的原子结构与缺陷动力学。*Nat. Commun.* **11**, 823（2020年）。55. Dugan, A. E. & Henisch, H. K. PbI2单晶中的基本光吸收与光电导。*J. Phys. Chem. Solids* **28**, 1885–1890（1967年）。56. Bordas, J. & Davis, E. A. PbI2带边处的激子。*Solid State Commun.* **12**, 717– 720（1973年）。57. Ambardar, S., Yang, X. & Gao, J. 揭示层状PbI2在室温以上的上转换光致发光。*Sci. Rep.* **14**, 26900（2024年）。58. Fan, Q. 等 用于超快光子学的二维碘化铅纳米片液相剥离。*ACS Photonics* **6**, 1051–1057（2019年）。59. Wickramaratne, D., Weston, L. & Van de Walle, C. G. 六方氮化硼从单层到块体的性质。*J. Phys. Chem. C* **122**, 25524–25529（2018年）。60. Abdi, M., Chou, J.-P., Gali, A. & Plenio, M. B. 六方氮化硼单层中的色心：群论与第一性原理分析。*ACS Photonics* **5**, 1967–1976（2018年）。61. Kahn, A. 费米能级、功函数与真空能级。*Mater. Horiz.* **3**, 7–10（2016年）。62. Li, D. 等 操控碘化铅/六方氮化硼范德华异质结构中的自陷激子。*Laser Photonics Rev.* **17**, 2300309（2023年）。63. Lifshitz, E., Bykov, L. & Yassen, M. 对激光烧蚀生长的碘化铅外延薄膜进行光学探测磁共振研究。*J. Phys. Chem.* **99**, 15262–15268（1995年）。64. Gottscholl, A. 等 室温下范德华晶体中本征自旋缺陷的初始化与读出。*Nat. Mater.* **19**, 540–545（2020年）。65. Whitefield, B., Toth, M., Aharonovich, I., Tetienne, J.-P. & Kianinia, M. 优化六方氮化硼中带负电的硼空位缺陷的磁场灵敏度。https://doi.org/10.1002/qute.202300118 doi:10.1002/qute.202300118。

66. Novoselov, K. S. 等 原子级薄碳膜中的电场效应。*Science* **306**, 666 –

669（2004）。67. Purdie, D. G. 等 层状材料异质结构中的界面清洁。*Nat. Commun.* **9**, 5387（2018年）。68. Nonnenmacher, M., O'Boyle, M. P. & Wickramasinghe, H. K. 开尔文探针力显微镜。*Appl. Phys. Lett.* **58**, 2921–2923（1991）。69. Andany, S. H. 等 一种与氦离子显微镜集成、用于相关纳米尺度表征的原子力显微镜。*Beilstein J. Nanotechnol.* **11**, 1272–1279（2020年）。70. Hosseini, N. 等 一种用于高灵敏度流体兼容微机电系统的聚合物–半导体–陶瓷悬臂梁。*Nat. Electron.* **7**, 567–575（2024）。71. Sugawara, Y. 等 外差调幅开尔文探针力显微镜具有高电势灵敏度。*Appl. Phys. Lett.* **100**, 223104（2012）。