通过氮空位自旋噪声谱学揭示α–$RuCl_3$ 中的Kitaev量子自旋液体态特征

Jitender Kumar，[1*] Sehrish Iqbal，[1] Himani Saraswat，[1] Benjamin Hammons，[1] Tianlin Li，[2] Ariel Smooha，[5] Rupak Timalsina，[1] Arnab K. Pariari，[3,4] Sy-Hwang Liou，[2] Xia Hong，[2] Markus Hücker，[3]Amit Finkler，[5*] 和 Abdelghani Laraoui[1]，[2*l]内布拉斯加大学林肯分校机械与材料工程系，美国内布拉斯加州林肯市，邮编68588[2]内布拉斯加大学林肯分校物理与天文学系及内布拉斯加材料与纳米科学中心，美国内布拉斯加州林肯市，邮编68588[3]魏茨曼科学研究所凝聚态物理系，以色列雷霍沃特，邮编7610001[4]量子技术研究所（QuTI），SRM大学安得拉邦分校，印度安得拉邦阿马拉瓦蒂，邮编522240[5]魏茨曼科学研究所化学与生物物理系，以色列雷霍沃特，邮编7610001[*]通讯作者：jkumar5@unl.edu、amit.finkler@weizmann.ac.il、alaraoui2@unl.edu

摘要

键依赖磁相互作用、强自旋轨道耦合以及α–$RuCl_3$ 中的量子涨落，使其成为奇异Kitaev量子自旋液体（QSL）态的典型候选材料。尽管研究人员已利用电子输运、中子散射、光学和隧穿光谱学，在大尺度α–$RuCl_3$ 样品中探测全局量子自旋液体特征，但通过无创实验探针对局域量子自旋液体行为进行纳米尺度观测的证据仍然缺失。在此，我们利用金刚石氮空位（NV）自旋噪声光谱，探测厚度范围为8至150 nm、温度范围为4.3–250 K的 α–$RuCl_3$ 纳米片中的量子自旋液体态。我们的测量显示，在靠近α–$RuCl_3$ 薄片的位置，NV 自旋-晶格弛豫时间（T_1）在低于 ~100 K时显著缩短，表明GHz频率磁涨落增强。该温度尺度与Kitaev相互作用（~8 meV）及低能分数化激发出现所对应的能量尺度一致。在50 K以下，较厚的（> 90 nm）薄片表现出明显的双指数T_1 衰减，不同于在薄片外部和较薄（8 nm）薄片测量中观察到的单指数行为，这表明磁噪声环境日益呈现非均匀性。这些结果确立了NV自旋噪声光谱作为探测α–$RuCl_3$ 纳米片中低能自旋动力学的局域、无创探针，并为检验原子级薄量子自旋液体候选材料中分数化激发的理论预言噪声特征开辟了路径。

量子自旋液体（QSLs）是一种奇异的物质态，能够支持分数化激发，例如巡游马约拉纳费米子和静态 Z_2 （visons）规范通量[1,2]。分数化准粒子服从非平庸的统计性质，在实现抗噪量子比特方面具有巨大潜力，可用于未来的容错量子计算[3–5]。在已研究的各种 Kitaev 量子自旋液体候选材料中，莫特绝缘体 α–$RuCl_3$ 已成为一

个有前景的候选材料

^{6} α– $^{3+}$ ^{4} ^{5} ^{3}, $_{eff}$。在 RuCl 中, = 1 2 1 强自旋轨道耦合使 Ru 的电子态（*d*）形成有效的低能 *J*/ 赝自旋（见图 a），使其参数有利于形成依赖键的 Kitaev相互作用[7–9]。宏观磁性和热力学测量揭示了两个间隔很近的磁相变，分别发生在约 8 开尔文和 14 开尔文；低于这两个温度时，自旋在蜂窝平面内呈锯齿构型反铁磁排列[10–12]。除低温下的磁性转变外，研究还报道了发生在 ~160 开尔文和 ~60 开尔文附近的结构相变[13–15]。

除传统磁态之外，寻找与Kitaev相互作用相关的分数化激发，已成为α–$RuCl_3$[1,16,17]研究领域的重要焦点。多项理论和实验研究表明，与海森堡交换相互作用相比，传统Kitaev相互作用明显更强，其估计能量尺度为~5 至15 meV；马约拉纳费米子和Z_2 粘子的特征在远高于磁有序温度[1, 18–20]的温度范围内便已显现。例如，非弹性中子散射揭示了α–$RuCl_3$ 中宽广的磁激发连续谱，其能量延伸至~20 meV，并持续存在于约120 K的温度范围内，显著高于反铁磁有序温度，且处于与Kitaev相互作用相关的能量尺度之内[7, 21–23]。拉曼散射也是研究Kitaev相互作用的有力实验探针；预计宽广的散射连续谱将作为自旋分数化为马约拉纳费米子的特征信号。[24,25]事实上，对α–$RuCl_3$ 开展的温度依赖拉曼光谱显示，在低于~100 K时出现了宽广的连续背景，同时伴随Fano 共振，这表明磁连续谱与晶格动力学之间存在强耦合，从而支持α–$RuCl_3$[26,27]中Kitaev相互作用的存在。然而，迄今为止，还没有任何单一实验技术能够提供量子自旋液体中分数化激发的明确“定论性”信号；能够提供互补且高灵敏度证据的合适实验探针仍难以寻觅。

近年来，金刚石中的氮空位（NV）中心已成为用途广泛的量子传感器，可高灵敏度、高分辨率地测量温度、压力以及电场和磁场[28–36]。在量子传感领域，NV 中心凭借宽带频率响应、纳米尺度的样品与传感器间距，以及无需大尺寸样品等优势，远胜于广泛用于研究低维磁性系统的传统实验技术[28,35,37]。在低磁场范围内，分数化激发的特征能标远高于 NV 磁测量所能达到的微波（MW）共振频率，而基于 NV 中心的自旋噪声谱学或可提供一条突破这一限制的有效途径。具体而言，基于 NV 自旋-晶格弛豫时间（T_1）的弛豫测量学[38–43] 对 GHz 范围内的磁噪声敏感，可作为拉曼与中子散射技术在低能区的谱学延伸。鉴于 NV 中心对磁场和电场噪声具有出色的灵敏度，并受到近期关于使用 NV T_1 弛豫测量学探索量子自旋液体的理论提议[44–49] 启发，人们对利用自旋量子比特磁测量探测α–$RuCl_3$ 中的量子自旋液体产生了浓厚兴趣。

在此，我们利用 NV T_1 弛豫测量学，在 4.3 至 250 开尔文的温度范围及不同外部磁场下，探测 α–$RuCl_3$ 薄片（厚度为 8–150 nm）产生的量子噪声。我们的测量通过 T_1 中明显的异常，捕捉到了磁性转变的特征。更重要的是，温度依赖的 T_1 在低于 ~100 开尔文时呈现出急剧下降，其对应的温度尺度与 α–$RuCl_3$[7,18,21,21,27,50] 报道中估算的 Kitaev 相互作用能标大体一致。这一尺度也处于拉曼和中子散射测量所报道的宽广磁连续谱出现的温度范围内。此外，我们的测量揭示了厚度依赖异常：较厚的（> 90 nm）薄片表现出从单指数到双指数的交叉转变

弛豫衰减分量T_1，其特征是明显的快速和缓慢弛豫衰减分量。这种分化出现在接近 ~40 开尔文尺度的温度附近；据热力学和光学研究报道，该尺度对应磁熵释放，表明较厚的 α–$RuCl_3$ 薄片中的自旋动力学发生了显著变化。这些结果表明，NV量子传感器能够探测量子自旋液体中的低能磁动力学，并为其温度依赖的涨落提供局部洞见。

结果与讨论

最近，几项理论研究提出，可利用 NV自旋噪声光谱诊断磁性绝缘体中的磁基态，包括磁有序态中的磁振子、自旋液体中从$U(1)$到 Z_2 的自旋子配对相变，以及量子自旋液体中的分数化激发[44–47]。图 1b 展示了实验概念：将 NV 中心置于α–$RuCl_3$ 薄片附近，探测由底层Ru自旋产生的局域、随时间变化的磁场涨落。具有磁活性的 Ru 离子在*a*-*b*平面内形成蜂窝层，从而为键依赖的Kitaev相互作用提供载体。图 1a 所示的晶体结构由 VESTA 软件生成[51]。在自旋分数化图像中，巡游马约拉纳费米子与涌现的 Z_2 规范通量背景耦合，产生特征性的自旋动力学及相应的磁场涨落[7,23]。这些涨落会对邻近 NV 中心感测到的磁噪声产生贡献，并通过测量其T_1进行探测。

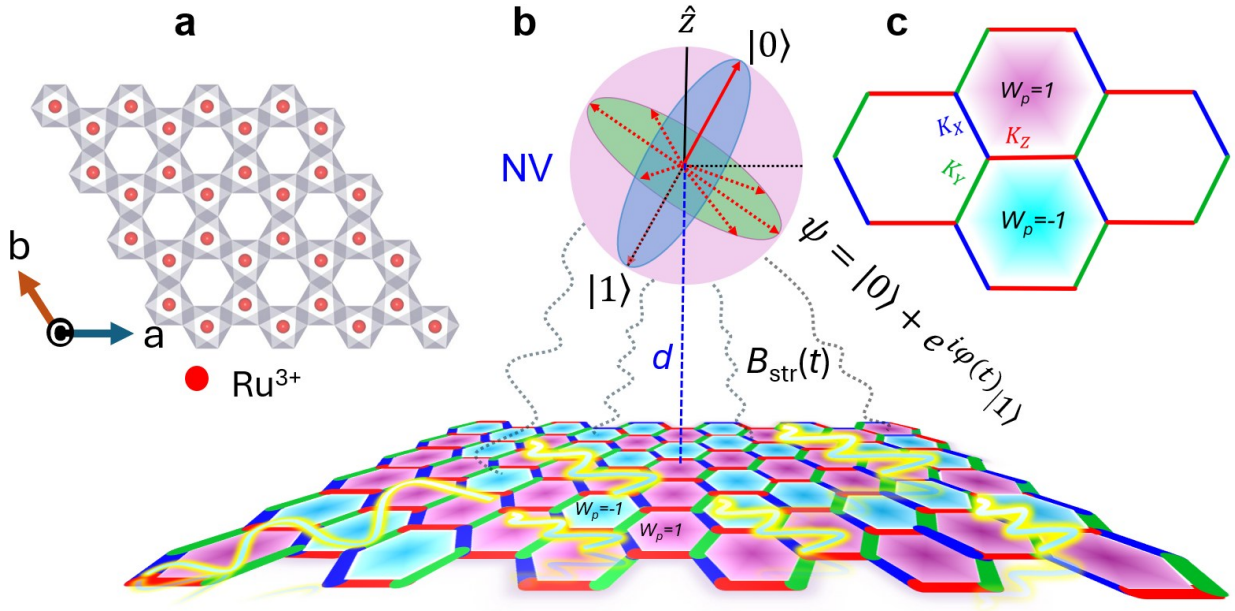


图1 氮空位自旋传感探测量子自旋液态的概念示意图，材料为α–$RuCl_3$。 **a**α–$RuCl_3$ 的晶体结构，其中 Ru^{3+} 离子在*a*-*b*平面内形成蜂窝晶格，使用VESTA软件绘制[51]。**b**具有键依赖伊辛型磁相互作用的蜂窝晶格示意图，Ru电子自旋之间的相互作用为K_X、K_Y和K_Z 。$W_p = \pm 1$ 表示与各六边形格面相关联的Z_2 规范磁通扇区，如**c**所示。在有限温度下，巡游马约拉纳激发在Z_2 规范场背景中传播。自旋涨落产生随时间变化的局域杂散磁场$B_{str}(t)$，其随机分量在距α–$RuCl_3$ 表面d处的NV间距产生磁噪声。

为研究α–$RuCl_3$纳米片在 4.3–250 K 温度范围内的自旋动力学，我们首先在两个磁场（9.59 和 27.86 毫特斯拉）下，对 8 nm 厚的薄片（薄片-1）进行了 T_1 弛豫测量学测量。关于α-$RuCl_3$单晶的合成，请参阅文献 43；有关薄片剥离、厚度测定以及转移至金刚石上的详细信息，请参阅方法部分。相应的 T_1 曲线和拟合结果见补充信息第 S2 节、图 S4 和图 S5。图 2a 展示了在 9.59 毫特斯拉下，沿 NV 中心量子化轴施加磁场时，在α–$RuCl_3$薄片-1上及其外测得的 T_1 温度依赖性。从 250 K 降至~160 K，在薄片上和薄片外测得的 T_1 呈现相似的温度依赖性。在这一温度范围内，T_1 随降温而增大，且两个测量位置的 T_1 时间相近。这种行为符合弛豫主要由金刚石环境中的背景或表面顺磁自旋噪声所主导的情形[52]。然而，在低于~160 K时，薄片上和薄片外的 T_1 曲线开始分化。薄片外的 T_1 随降温继续增大，而薄片上的 T_1 在 ~160 至 ~100 K之间基本保持不变（处于实验不确定性范围内），随后在低于~100 K时显著下降。薄片外测得的原始 T_1 曲线及其拟合见补充信息第 S2 节和图 S6。体磁化率偏离高温顺磁居里-外斯行为的温度也与下文讨论的这一温度相吻合（图 3b）。这种分化始于约~160 K，接近α–$RuCl_3$, 的结构相变温度，表明薄片中的结构变化可能导致薄片产生额外的磁噪声贡献[13,14]。在更低温度下，薄片上的 T_1 数据还呈现其他特征，包括在 ~14 K和 ~7 K附近出现明显的凹陷。这些温度对应于文献报道的α-$RuCl_3$ [10]中的反铁磁相变，此时磁噪声会增强[53]。

图 2a 中对 NV T_1 （薄片上和薄片外）的比较显示，在薄片上时，T_1 在低于 ~100 开尔文后急剧下降，表明源自 α- $RuCl_3$ 的磁噪声增强。有趣的是，这一温度范围与此前针对α–$RuCl_3$[7,22,27]的拉曼和中子光谱观测结果相吻合。例如，温度依赖的拉曼测量报告了异常的磁散射[27], , 其特征是在高于磁有序温度的宽广温度范围内（最高达 100 K）持续存在的宽连续谱。它对应于 Kitaev 交换相互作用的能量尺度 J_K ~8 meV，即J_K /k_B ~93 开尔文，其中k_B 为玻尔兹曼常数。声子模的不对称 Fano 线形在相同温度范围附近也表现出异常的温度行为[27]。通常，Fano 线形源于离散声子模与电子态之间的相互作用，表明相分离系统具有金属性[54–56]。α–$RuCl_3$ 的磁性热容贡献在 100 K 至 50 K 之间也呈现线性温度依赖性，这表明其具有类金属态密度，符合在 < 100 开尔文出现的巡游马约拉纳费米子的特征。由于偶极耦合与温度无关，NV中心的 T_1 的温度依赖性取决于 α–$RuCl_3$ 的噪声谱密度随温度的变化。拉曼光谱和中子散射观测到低于 100 K 时与磁散射连续谱相关的谱权重明显增加，因此，我们可以将 NV自旋噪声光谱结果归因于拉曼和中子散射研究中观测到的磁连续谱向 GHz 频率的延伸。

因此，T_1 在 100 K 以下降低，表明随着温度下降，GHz频率范围内的磁涨落变得更强。这也说明，低能磁涨落的变化发生在 Kitaev 相互作用的特征能标附近。这种行为可能与中温分数化区[57,58], 中低能磁激发的演化有关，其中热激发的Z_2 磁通会改变

t巡游马约拉纳谱并产生有限的低能谱权重 .

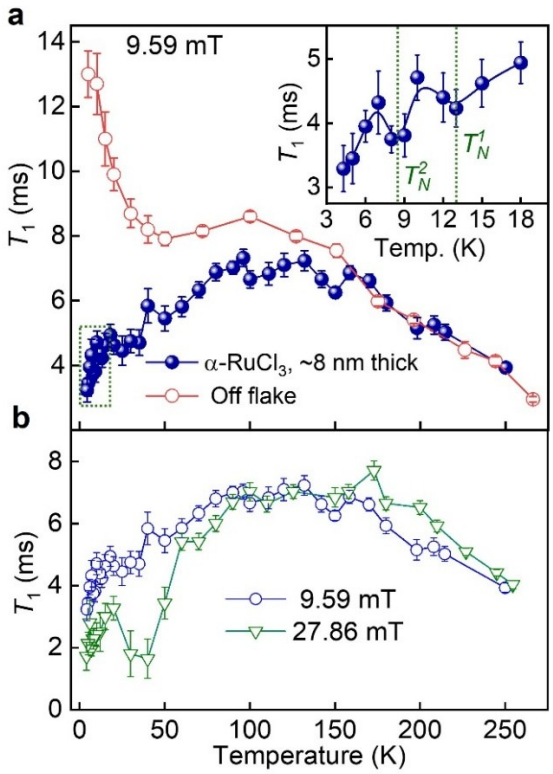


图 2 对α–$RuCl_3$ 纳米薄片a 磁场为 9.59 毫特斯拉时，薄片-1（厚度为 ~8 nm）α–$RuCl_3$ 薄片上及其外的温度依赖 NV T_1 。插图放大显示了薄片上的 T_1 数值，突出展示了 α–$RuCl_3$中的两个反铁磁相变。**b** 比较薄片-1在磁场为 9.59 毫特斯拉（空心圆）和 27.86 毫特斯拉（空心三角形）时温度依赖的 NV T_1 。

为进一步探究磁噪声的频率依赖性，我们改变外加磁场B ，并在磁场沿 NV 量子化轴施加时进行T_1 弛豫测量学。磁场会使 NV自旋能级发生塞曼劈裂，跃迁频率随磁场线性移动。在测量中，我们使用较低的 NV 频率（f_-）跃迁进行T_1 弛豫测量学。因此，增大外加磁场会使f_- 跃迁移至较低频率，从而能够探测不同频率下的磁噪声[59]。

图 2b 显示了在两个外加磁场（9.59 和 27.86 mT）下，于薄片-1 上测得的氮空位 T_1 随温度的变化。在高温（160 – 250 K）下，较高磁场对应的T_1 长于较低磁场下的值，这与我们先前对顺磁区[43]中 α–$RuCl_3$ 附近氮空位T_1 的磁场依赖性测量结果一致。低于 ~160 K 的结构相变温度后，在 160 – 100 K 的温度范围内，弛豫几乎不受磁场影响。有趣的是，低于 ~100 K 时，T_1 曲线出现分叉：冷却时，较高磁场下的T_1 下降得更快，且始终低于较低磁场下测得的值。由于较高磁场会以较低频率探测f_- 相变，这种行为表明，低温下 α–$RuCl_3$ 的磁噪声在较低频率处获得了增强的谱权重。在较高磁场下，低于 ~40 K 时T_1 出现上升（呈凹陷状），在接近 20 K 时达到最大值，随后随着进一步冷却再次下降。这种非单调行为可能反映了磁噪声的变化

spe谱，因为系统正趋近于长程反铁磁相变[53]。

接下来，我们考察了 α–$RuCl_3$ 薄片中磁噪声的厚度依赖性：薄片-2（厚度为 95 ± 1 nm）和薄片-3（厚度为 150 ± 1 nm）。图 3 总结了薄片-2（厚度为 ~95 nm）的 T_1 测量结果（光致发光 PL 随时间的变化）；其T_1 值低于薄片-1（厚度为 ~8 nm），这与顺磁区中较厚薄片的磁噪声贡献更大相符[43]。薄片-2 的T_1 数据以及相应的单指数和双指数衰减拟合结果见补充信息图 S7。不同厚度薄片的T_1 温度依赖性对比见补充信息第 S2 节和图 S8。图 3a 显示，氮空位 T_1 随温度变化，在较高温度下呈单指数衰减，而在低于 ~50 开尔文时转为双组分衰减。图 3b 对比了在 9.59 毫特斯拉下测得的 10 开尔文时薄片外区域、薄片-1、薄片-2 和薄片-3 的T_1 曲线（归一化 PL 随时间的变化），突显了较厚薄片的不同表现。在 50 开尔文以上，T_1 由单指数拟合得出；提取出的T_1 组分的温度依赖性如图 3c 所示，其变化趋势与薄片-1 相同，即随温度升高而上升，直至 ~160 开尔文，并在 100–160 开尔文区间内呈平台，低于 ~100 开尔文时则下降。

快速分量随降温而持续减小，而慢速分量则在反铁磁有序温度附近逐渐增大，随后在更低温度下减小。在线性—对数图中，这一趋势在温度依赖关系图（补充信息）Fig. S8 中更加清晰。低于 ~100 开尔文时，弛豫转变为双分量，并伴随着拉伸参数 η 急剧下降：在 50 K 时，该参数从 ~0.8 降至 ~0.37（图 3d）。这表明弛豫率分布逐渐变宽，最终无法用单一的拉伸指数衰减充分描述。

低于 ~50 开尔文时出现的双指数T_1 衰减（见方法）的起源尚不明确，尤其是在较厚（> 90 纳米）的薄片中。系综氮空位测量中的双指数弛豫可能源于各个 NV 中心之间弛豫率分布不均；相邻 NV 之间的交叉弛豫或表面相关氮空位也可能有所贡献[60–62]。考虑到我们的氮空位注入剂量为 10^{13} cm^{-2}，对应的平均 NV–NV 间距为 ~30 纳米，氮空位间弛豫不太可能是主导机制。双指数行为在低温下才开始出现，也使其由电荷态相关贡献导致的可能性降低。因此，我们将两个可分辨弛豫分量的出现归因于较厚的 α–$RuCl_3$ 薄片中磁噪声环境日益不均匀。这一解释与拉伸指数随降温逐渐减小的现象相符，表明弛豫率分布不断变宽，最终可分辨为双指数衰减。因此，双指数响应为低温磁动力学的不均匀性提供了证据。有趣的是，尽管具体的微观机制仍有待进一步研究，但对 α–$RuCl_3$ 晶体的比热测量显示，在 $T_N < T < 50$ 开尔文范围内出现一个宽峰，这被归因于局域马约拉纳费米子激发[23],，其温度与我们观察到的双指数特征起始温度非常接近。此外，低于 ~50 开尔文时出现的额外弛豫分量，处于低能磁关联日益重要的温度范围内；这与理论和实验研究报道的较高交换能标度 |开尔文|~ 8 毫电子伏特不同[23, 63–66]。

例如，T_1 低于 ~50 开尔文时出现的分岔，与 Kitaev交叉尺度温度T_H ~0.375|K| 相符（K是Kitaev能量尺度）。低于该温度时，光学光谱显示谱权重发生显著重新分布，这与键依赖的近邻自旋关联的形成有关[63]。这一能量尺度也标志着热分数化的

量子自旋转化为巡游马约拉纳费米子，表明系统进入了以Kitaev关联为主导的区域[65]。Kitaev模型的理论计算预测，随着Ru电子自旋逐渐形成关联[64]，，低于T_H 时，核磁共振（NMR）自旋-晶格弛豫率1/ T_1 会增强；而本文观测到的额外NV弛豫分量，可能反映了这一温度范围内电子自旋涨落的同样增长。因此，这一低温特征可能反映了磁涨落谱的变化，但其微观起源仍不明确。系统地开展逐层、依赖厚度的测量，将有助于阐明50开尔文以下这一弛豫通道的性质。

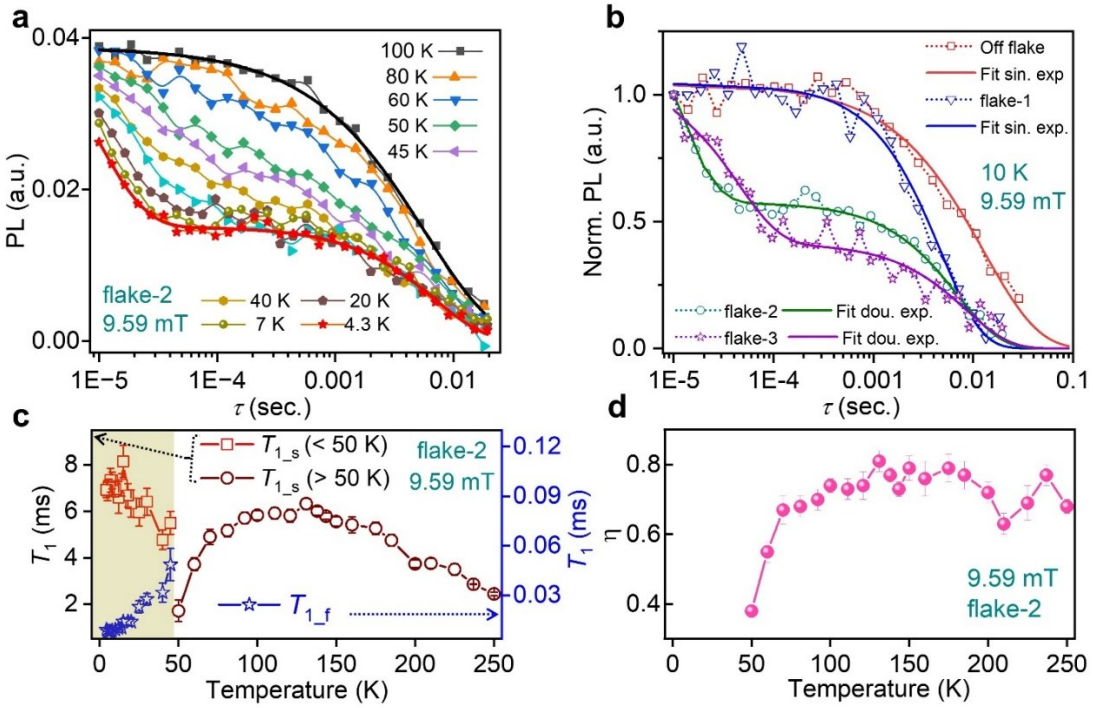


图 3 α–$RuCl_3$ 薄片的厚度对氮空位 -T_1的影响。 **a** 不同温度下的氮空位 T_1 曲线（光致发光强度随时间变化），显示了从高温下的单指数弛豫到低温下的双指数弛豫的演变。**b** 比较了在 10 开尔文、9.59 毫特斯拉下，离开薄片以及在薄片-1（~8 纳米）、薄片-2（~95 纳米）和薄片-3（~150 纳米）上测得的 T_1 曲线（归一化光致发光强度随时间变化）。离开薄片和较薄的薄片 1 数据采用单指数衰减函数拟合（方法中的公式（5），实线），而较厚的薄片-2 和薄片-3 数据则采用双指数衰减函数拟合（方法中的公式（6），实线）。 **c** 在薄片-2 上测得的温度依赖性 T_1 。快速和慢速衰减分量由双指数拟合得出，参见方法、补充信息 S2 节和图 S7。**d** 拉伸指数 η 的温度依赖性，该指数由对薄片上的 T_1 数据进行拉伸指数拟合得到。

为进一步考察由NV-T_1 弛豫测量学探测的局部磁涨落与体磁响应之间的对应关系，我们将厚度更大的薄片-3在27.66毫特斯拉磁场下获得的T_1 数据（图4a）与通过超导量子干涉器件（SQUID）磁力测量得到的体磁化率进行比较（图4b）。如图4a所示，T_1 的温度依赖性在约~160 开尔文附近表现出明显的行为变化。有趣的是，扣除居里–外斯贡献后的静态磁化率倒数也在相同温度范围内偏离顺磁行为，这表明

短程磁关联的发展[23]。如图4b插图所示，这些特征温标之间的密切对应关系表明，NV中心探测到的局部磁场涨落变化与α–$RuCl_3$中磁关联的演化有关。由于NV-T_1 弛豫测量学探测的是NV跃迁频率附近的磁涨落，因此，局部动力学弛豫与体磁化率之间的这种对应关系支持所观测到的T_1 异常具有内禀磁起源。在低温下，与薄片-1和薄片-2类似，薄片3在T_1 低于~100 开尔文[23], 时表现出显著下降，这与该温区增强的低能磁涨落一致[6]。在更低温度下，薄片-3与薄片-2一样，在低于~50 开尔文时出现双指数弛豫。在补充信息中，图S11展示了多个温度下原始T_1 数据及相应的快、慢T_1 分量 。薄片-3的拉伸指数η 也在低于 ~100 开尔文时明显下降，如图3a插图所示，这表明弛豫率分布日益变宽，并且向低于50 K时观察到的双指数弛豫持续演化。与在27.66毫特斯拉下采集的数据一致，在较低的9.59 毫特斯拉磁场下也观察到T1类似的温度依赖行为，如补充信息所示（图 S9和图S10）。

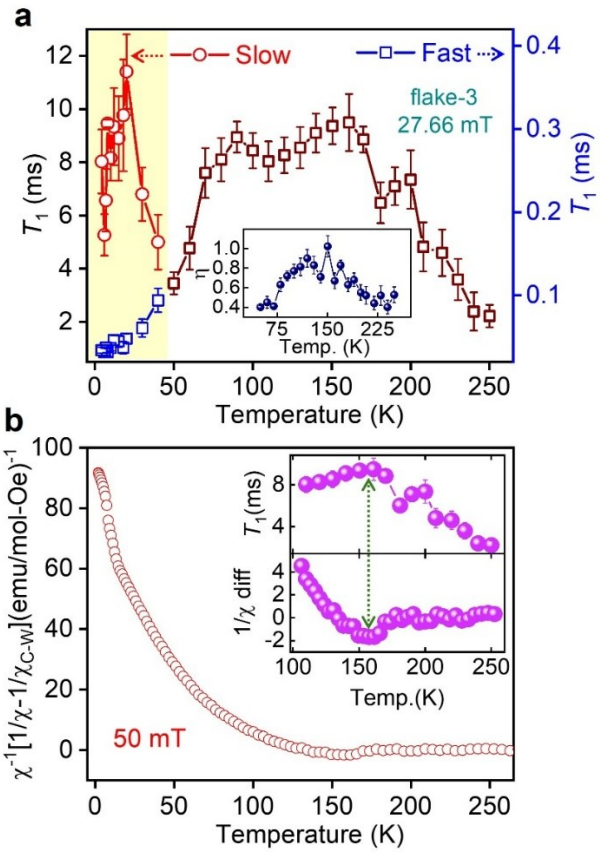


图4。 厚α–$RuCl_3$ 薄片上氮空位与SQUID测量的比较。 **a** 最厚的α-$RuCl_3$ 薄片（薄片-3）下方氮空位信号T_1 的温度依赖性。插图（**a**）展示了η 随温度的变化，突出显示了T_{1_s}在~150 开尔文处出现的峰值。**b** SQUID磁强计测量数据减去居里–外斯拟合后得到的磁化率倒数差。（**b**）中的插图突出显示，(T_1)和磁化率差都在大致相同的温度（~160 开尔文）发生转变。

总之，我们利用 NV T_1 弛豫测量学研究了纳米级厚度的 α–$RuCl_3$ 纳米片的自旋动力学。NV 弛豫在 ~160 开尔文附近表现出明显异常，与我们的块体磁化测量密切对应；随后在 ~ 100 至 160 开尔文之间出现宽广的平台，并且在低于 ~100 开尔文时 T_1 显著降低。这种行为表明，GHz 频率的磁噪声得到增强，其温度尺度与 Kitaev 交换能标度相当，即 $|K|$~8 meV。NV 中心测得的磁噪声谱密度增强，与巡游马约拉纳费米子和热激发的 Z_2 规范通量[6,7,23]相关的动态特征一致。在较厚的（> 90 nm）薄片中，低于 50 开尔文时出现 NV T_1 双指数弛豫，表明局域磁动力学发生了额外变化，并且与理论计算以及热力学和光学测量中观测到的自旋动力学状态变化密切相关。

总之，我们的结果表明，NV 自旋弛豫测量可作为一种局域、可选择频率的探针，用于探测 α–$RuCl_3$，中的低能磁涨落，并与拉曼和中子散射光谱技术互为补充 [6]。它为探索其他候选量子自旋液体材料[1,2,67,68]中的低频自旋动力学提供了一种灵敏的方法。未来在更高磁场下进行逐层噪声轮廓量子比特测量，或许能够进一步揭示量子自旋液体中的复杂动力学。

方法

样品制备与表征。为在纳米尺度研究 α–$RuCl_3$，我们使用了在（100）取向金刚石表面下方 ~6 nm 处通过氮离子注入制备的浅层 NV 中心[41]。通过机械剥离从块体晶体中获得 α-$RuCl_3$ 纳米片，随后借助显微操纵器转移台[36,42]，利用硅凝胶薄膜将其转移至金刚石芯片上。为与闭循环制冷机的冷头实现更好的热接触，金刚石安装在蓝宝石样品平台上；该平台上制作有用于微波传输和 NV 中心自旋态操控的金传输线，具体如我们此前的工作所述[42]。 α–$RuCl_3$ 晶体生长的详情见参考文献 43。NV 荧光测量使用自制的低温 NV 显微成像装置进行，具体如前所述[42]。薄片厚度通过原子力显微镜（AFM）测定。我们重点研究了三片具有代表性的薄片，其厚度分别为 $8 \pm 0\,5$ $1\ 95$ 。薄片 1 ± 1 2, 150 ± 1 3 为 nm，薄片 2 为 nm，薄片 3 为 nm。相应的 AFM 高度轮廓和光学图像见补充信息 S1 节（图 S1、图 S2 和图 S3）。

NV 磁测量。 将 NV中心视为自旋 1 基态中的有效二能级系统，其共振频率为 $\omega = ($ $D \pm \gamma B)$，其中 D = 2.87 GHz 为零场劈裂，γ 为 NV 旋磁比，B 是沿 NV 量子化轴施加的外加磁场。NV 自旋与由底层二维（2D）蜂窝晶格中的自旋涨落产生的时变磁杂散场 $B_{str}(t)$ 之间的相互作用由哈密顿量描述：[30]

$$H_{int}(t) = g\mu_B \boldsymbol{S} \cdot \boldsymbol{B}_{str}(t), \quad (1)$$

其中， g 为电子因子， μ_B 为玻尔磁子， $\boldsymbol{S} = (S_x, S_y, S_z)$表示NV电子自旋的无量纲自旋-1算符。磁噪声的关键信息编码在相关的磁噪声功率谱密度（PSD）中。NV中心的T_1 弛豫时间对垂直于量子化轴[41–43]的横向噪声分量更加敏感。在平衡温度下，自旋浴的PSD可表示为[38,48,69]:

$$S_{B\perp}(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i\omega t} \langle B_{str\perp}(t) B_{str.\perp}(0) \rangle, \quad (2)$$

相应地，根据费米黄金定则，在存在PSD的情况下，处于自旋态|0和| ± 1的NV自旋布居的跃迁率Γ = 1/T_1 可表示为[38,49]:

$$\frac{1}{T_1} = \left(\frac{1}{T_1}\right)_i + \int \gamma^2 \langle B_{str}^2 \rangle \, S(\omega, T, E_a) F(\omega) \, d\omega \,, \quad (3)$$

其中，$(\frac{1}{T_1})_i$表示本征弛豫机制，$\sqrt{\langle B_{str}^2 \rangle}$是 NV位置处有效磁场的均方根值，$E_a$是薄片的磁各向异性能。$S(\omega)$是自旋噪声随温度变化的谱密度，$F(\omega)$是滤波函数[60]:

$$F_1(\omega) = \sum_{i=\mp} \frac{4\pi/T_2^*}{(2\pi/T_2^*)^2 + (\omega - \omega_i)^2}, \quad (4)$$

其中，T_2^* 是 NV退相干时间，ω_i 是零磁场下的 NV共振频率（~2.87 GHz）。

氮空位 自旋噪声谱学测量首先使用 532 nm绿光激光器（功率为 ~38 mW，光束直径为 23 μm）对氮空位进行光学极化，使其处于 $m_s = |0$ 自旋态。随后施加一个 MW π 脉冲，其持续时间由拉比振荡确定，以将氮空位布居从 $m_s = |0$ 态转移到其中一个 $m_s = |\pm 1$ 态。经过可变的等待暗时间 τ 后，施加激光读出脉冲，通过收集红色（650 – 800 nm）荧光测量剩余的 $m_s = |0$ 自旋布居。随后，从测得的荧光中减去使用相同脉冲序列但不施加 MW π 脉冲[42,52]时获得的荧光。T_1 时间通过将荧光与 τ 曲线拟合至拉伸指数衰减函数来计算:

$$P(\tau) = \tau_0 e^{\left(-\frac{\tau}{T_1}\right)^\eta} + C, \quad (5)$$

其中，$P(\tau)$为NV荧光信号，τ_0 为前因子，T_1 为NV的自旋-晶格弛豫时间，η 为拉伸参数，C为偏置参数。

在低于50开尔文时，通过双指数拟合提取了较厚薄片（薄片-2和薄片-3）上T_1 的快、慢分量，如下所示[60–62]:

$$P(\tau) = \tau_{0F} e^{(-\tau/T_{1\_f})} + \tau_{0S} e^{(-\tau/T_{1\_s})}, \quad (6)$$

其中，$P(\tau)$为在不同时间τ 测得的NV荧光强度。τ_{0F} 和τ_{0S} 分别为与快速T_{1_f}和T_{1_s}衰减时间相关的前因子。

数据可用性声明

支持本研究结论的数据可在合理请求后向通讯作者获取。

致谢

A.L.和X.H.感谢美国国家科学基金会（NSF）奖项2025298以及内布拉斯加大学林肯分校（UNL）名为“应对全球威胁的量子方法”的重大挑战催化奖。S.-H.L.、X.H.和A.L.感谢NSF EPSCoR RII Track-1：新兴量子材料与技术奖2044049提供的额外支持。

在UNL开展的研究部分是在内布拉斯加纳米尺度设施（国家纳米技术协调基础设施）和内布拉斯加材料与纳米科学中心（和/或NERCF）完成的，并得到NSF奖项2025298的支持。M.H.感谢M.和Harry B. Helmsley慈善信托基金提供的资助，资助编号为2018PG-ISL006。A.F.担任Elaine Blond终身职业发展讲席，并感谢Minerva基金会在德国联邦教育与研究部资助下提供的支持。本研究的部分实现得益于Harold Perlman家族一贯慷慨的支持。

利益冲突

作者声明不存在利益冲突。

作者贡献

J.K.、A.F和A.L.提出了这一构想。J.K.和A.L设计了实验并监督了项目。J.K.在S.I.、B.H.和R.T.的协助下进行了氮空位测量。H.S.进行了额外的光学和AFM测量。T.L.和X.H.剥离了 α–$RuCl_3$ 薄片，并进行了光学和AFM成像。S.I.和S.-H. L制作了微波环路。A.S.、A.K.P.和M.H.合成了α– $RuCl_3$ 晶体。J.K.和A.L.撰写了论文，所有作者均提供了贡献和反馈。

关键词

α– $RuCl_3$, 氮空位，量子自旋液体，自旋噪声，T_1 弛豫测量 y.

补充信息

补充说明 S1. α–$RuCl_3$ 薄片的光学和形貌成像

图 S1a 和 S1b 分别展示了剥离后的 α–$RuCl_3$ 薄片转移至聚二甲基硅氧烷（PDMS）薄膜和金刚石衬底上的光学图像。为了确定正文中使用氮空位（NV）显微镜研究的最薄薄片（薄片-1）的厚度，我们进行了原子力显微镜（AFM）测量。将薄片转移至金刚石衬底后采集的相应 AFM 图像见图 S1c，相应的高度剖面见图 S14，表明薄片厚度约为 8 ± 0.5 nm。

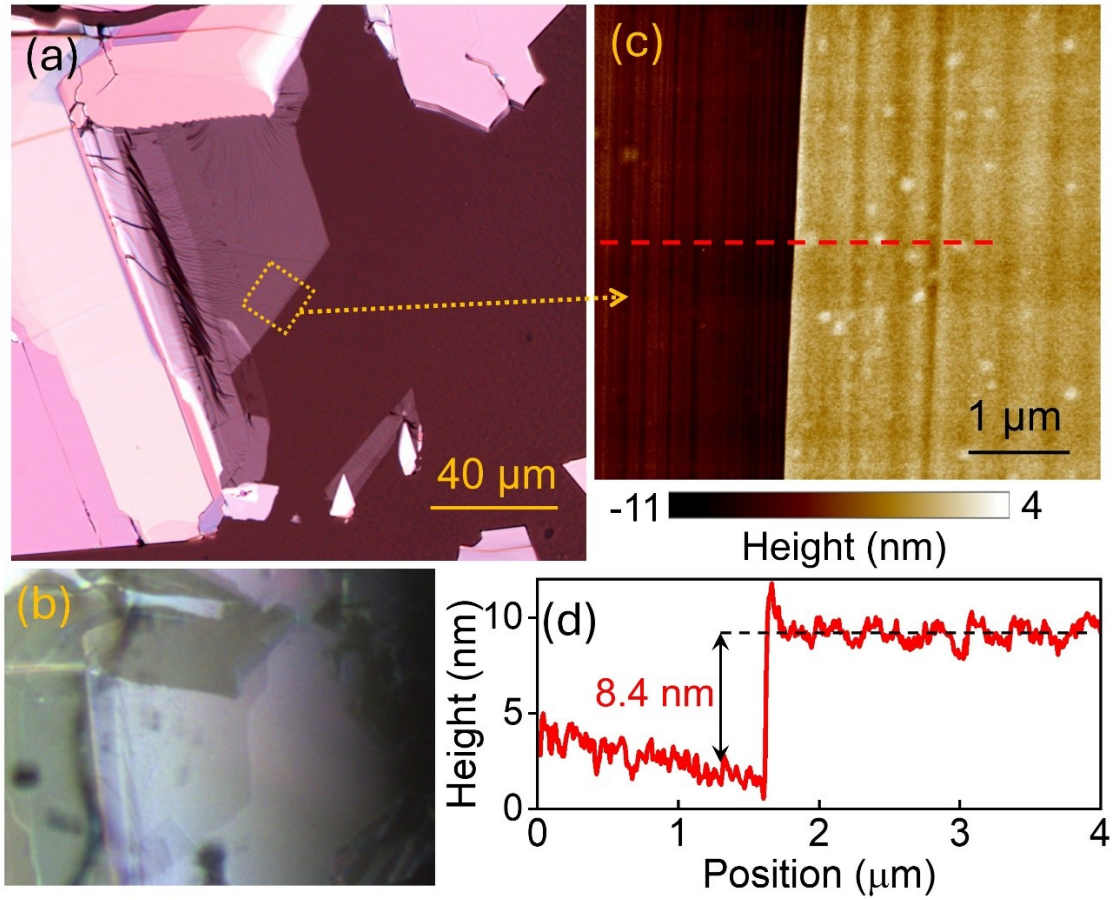


图 S1：正文中研究的 α–$RuCl_3$ 薄片-1。（a） 在 PDMS 上剥离的薄片的光学图像。**（b）** 金刚石表面上薄片的光学图像。**（c）** 转移到金刚石衬底上的薄片区域（虚线方框）的 AFM图像，该区域见 **（a）**。**（d）** 沿 AFM图像中 **（c）** 所示红色虚线标记的横截线测得的高度剖面，表明薄片-1的厚度为 8 ± 0.5 nm。

本研究通过 NV 磁测量考察的另外两片薄片（薄片-2 和薄片-3）的光学图像和 AFM图像分别见图 S2 和 S3。相应的 AFM 高度轮廓显示，薄片-2 的厚度约为 95 ± 1 nm，薄片-3 的厚度约为 150 ± 1 nm。

薄片-3。AFM图像中可见的点，是薄片在AFM测量前以及氮空位测量后受到污染所致，原因是残留了少量VGE清漆[42]。

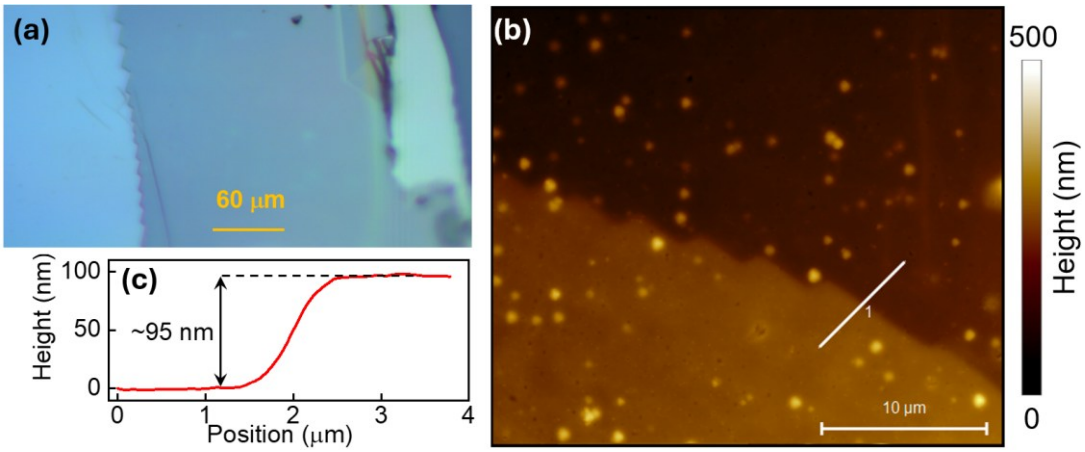


图 S2： 正文中研究的 α–$RuCl_3$ 薄片-2的光学显微镜图像和AFM图像。 **(a)** 转移至金刚石衬底上的α-$RuCl_3$ 薄片的光学图像。 **(b)** (a)中同一薄片选定区域的AFM图像。 **(c)** 沿(b)中AFM图像里白线标示的横截线绘制的高度剖面，显示薄片-2厚度为95 ± 1 nm。

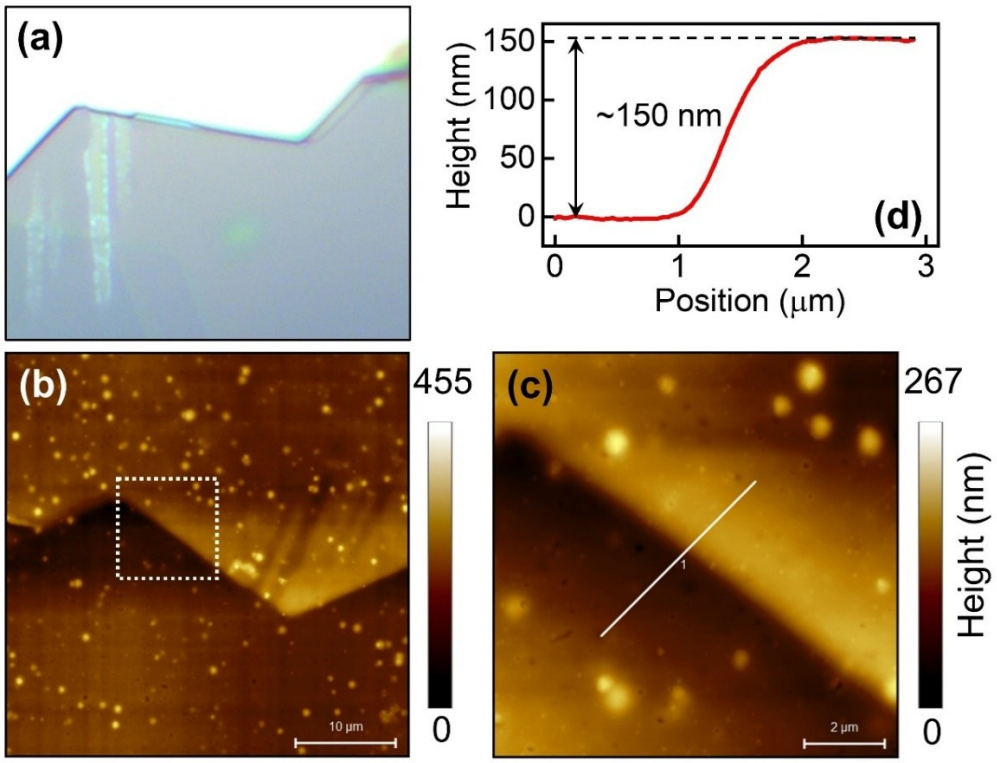


图 S3： 正文中研究的 α– $RuCl_3$ 薄片-3的AFM图像和光学显微镜图像。 **(a)** 转移至金刚石衬底上的部分薄片-3的光学图像。 **(b)** (a)中薄片的AFM图像**(a)**。 **(c)** (b)中薄片-3的放大AFM图像**(b)**，以虚线方框标出。 **(d)** 沿(c)中AFM图像里白线标示的横截线绘制的高度剖面**(c)**，显示薄片-3厚度为150 ± 1 nm。

补充说明 S2. 薄片上方和远离薄片时的氮空位自旋晶格弛豫时间（T_1），α–$RuCl_3$

***T_1* 薄片-1 下方在 9.59 毫特斯拉下的原始数据：**图 S4 展示了在 9.59 毫特斯拉的外加磁场下，于 4.3 至 250 开尔文的温度范围内在薄片-1 下方测得的 T_1 曲线。使用正文中公式（5）所述的拉伸指数衰减函数对测得的 T_1 曲线进行拟合，提取的 T_1 值见正文图 2。

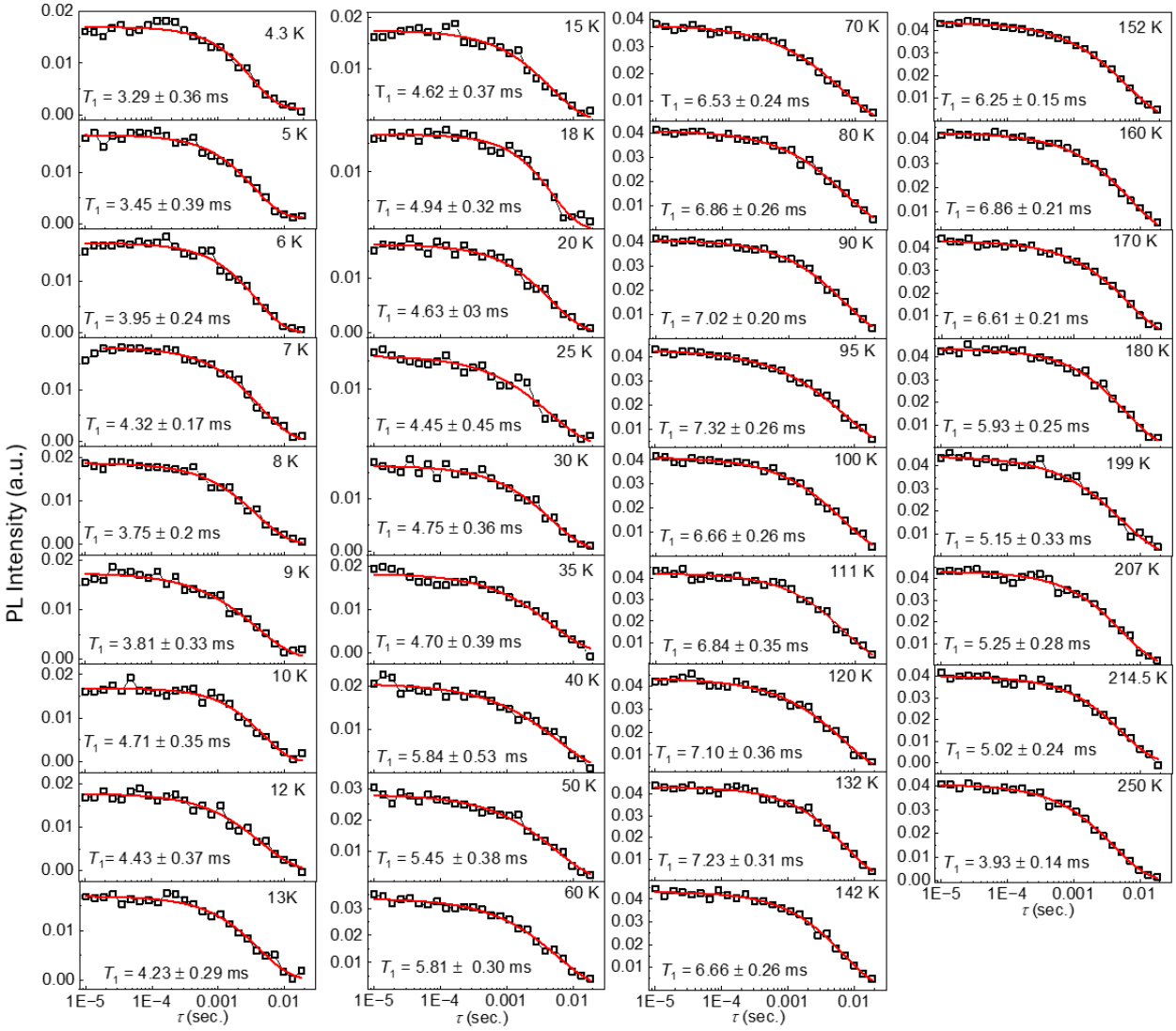


图 S4：T_1 在薄片-1下方不同温度下的测量。空心方块表示测量数据，红色实线为根据正文中的公式**(5)**拟合得到的曲线。

T_1 薄片-1 下方在 27.86 毫特斯拉下的数据：图 S5 展示了在 27.86 毫特斯拉的外加磁场下，于 4.3 至 250 开尔文的温度范围内在薄片-1 下方测得的 T_1 曲线。使用正文中公式（5）所述的拉伸指数衰减函数对测得的 T_1 曲线进行拟合，提取的 T_1 值见正文图 2。

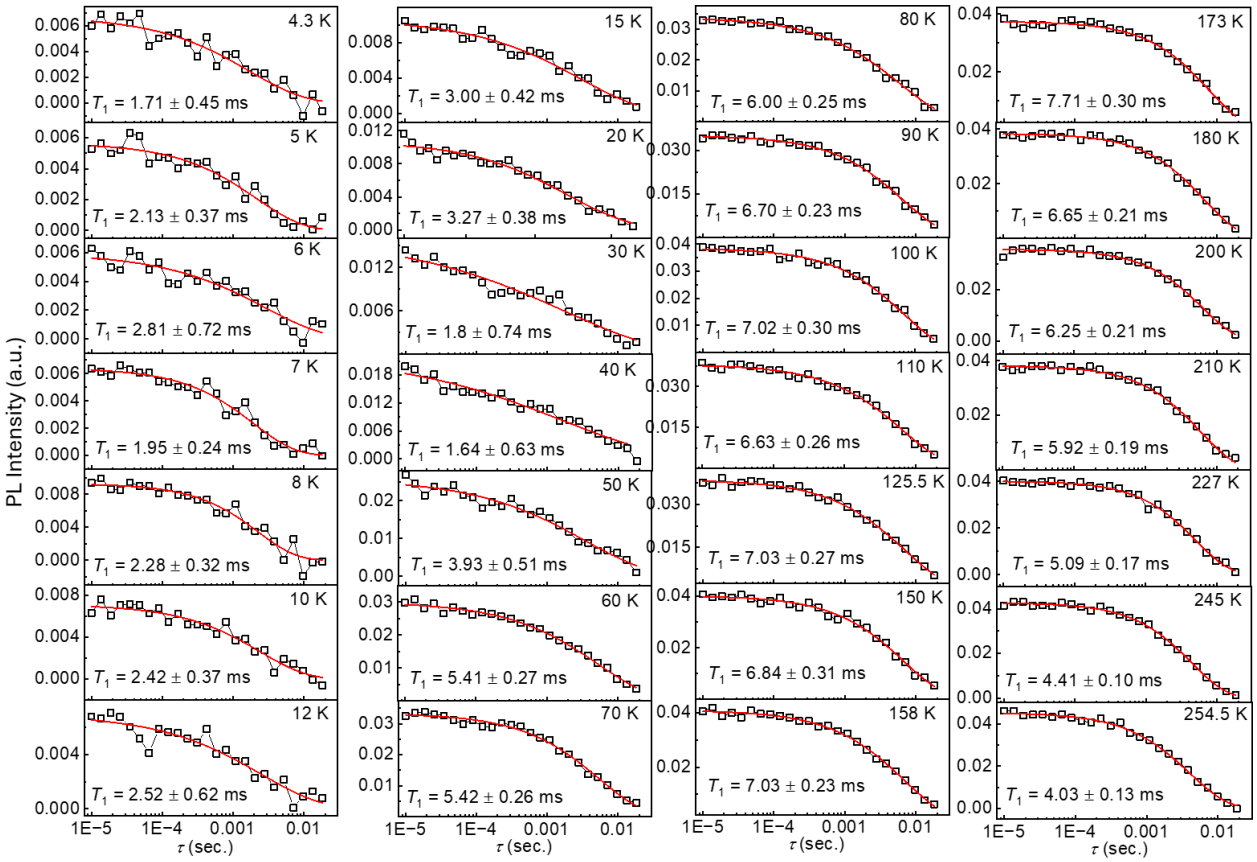


图 S5：在 27.86 mT 下，不同温度时于薄片-1 下方测得的（空心方块）T_1。红色实线表示使用正文中公式 **(5)** 所述的拉伸指数衰减函数对测量数据进行拟合的结果。

T_1 对照数据（无 α–$RuCl_3$），磁场为 9.59 毫特斯拉： 我们在距离 α–$RuCl_3$ 薄片足够远的位置，于不同温度（5–266 开尔文）下测量了 T_1，作为对照测量（见图 S6）。测量过程中，温度保持稳定，波动范围为 50–100 毫开尔文。通过将测得的弛豫曲线拟合到拉伸指数衰减函数，提取了相应的 T_1 值，方法如正文中的公式（5）所述。所得的温度依赖性 T_1 数据见图 2，并在正文中讨论。

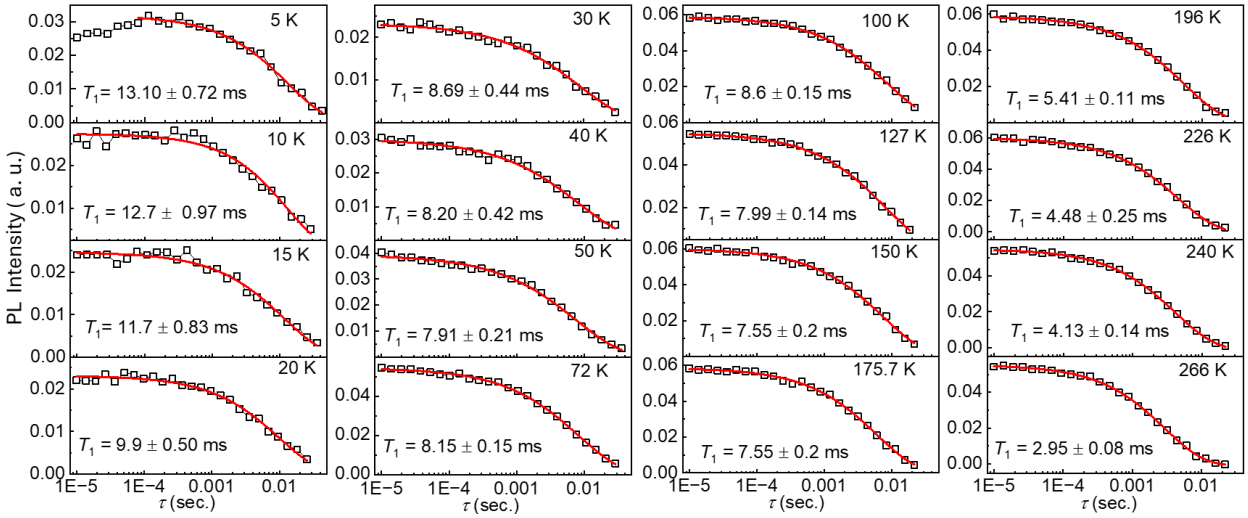
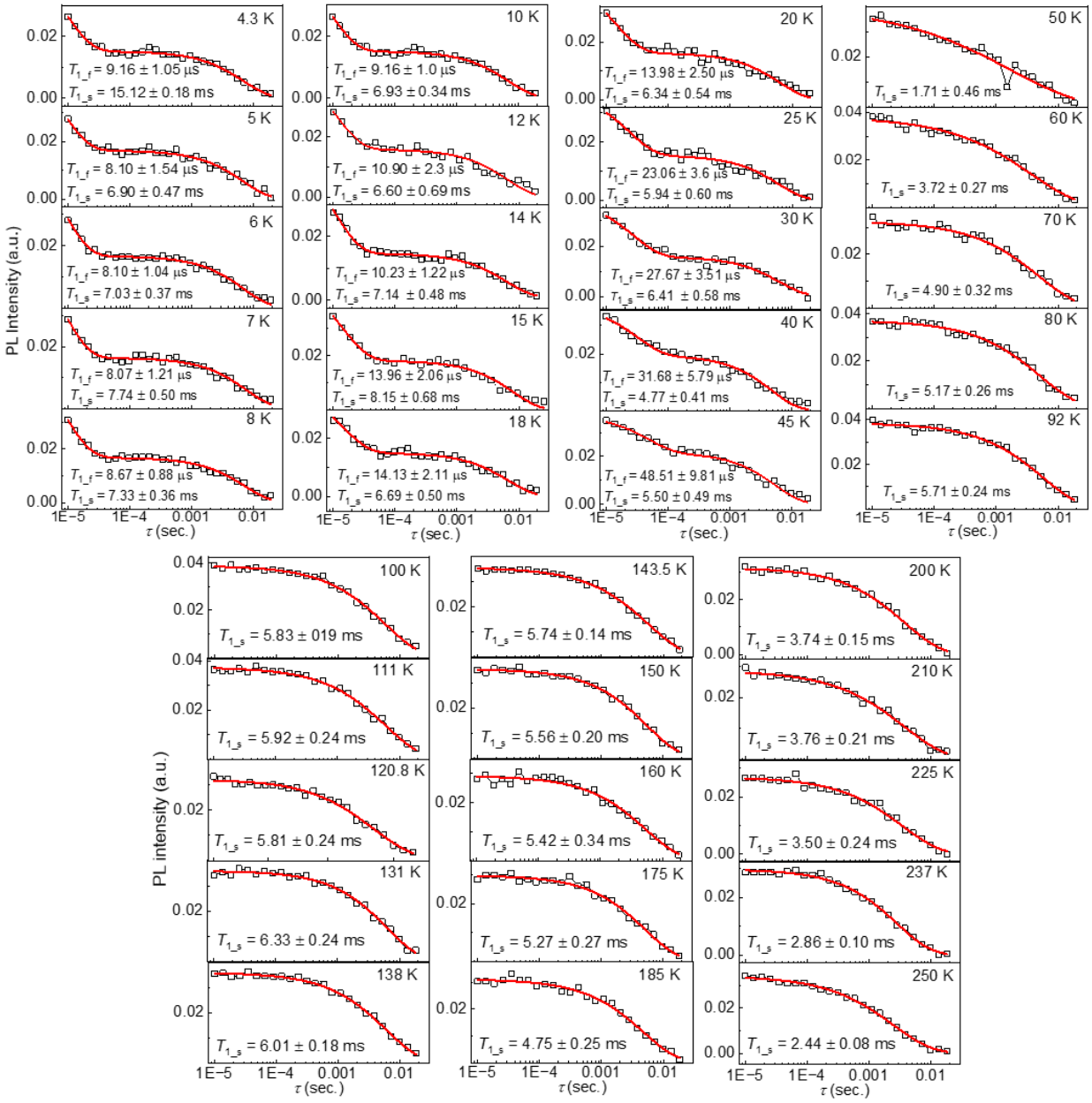


图 S6： 在距 α–$RuCl_3$ 薄片较远处测得的（空心方块）T_1，磁场为 9.59 毫特斯拉。红色实线表示使用正文中方程（**5**）所述的拉伸指数衰减函数对实验数据进行拟合的结果。

***T_1* 数据（α–$RuCl_3$ 薄片-2，磁场为 9.59 毫特斯拉）：** 我们在 9.59 毫特斯拉下，于 4.3–250 开尔文的温度范围内测量了薄片-2（~95 纳米）的氮空位 T_1 温度依赖性。在 4.3–45 开尔文的温度范围内，使用双指数衰减模型拟合测得的 T_1 数据；在更高温度下，则使用单指数衰减模型拟合，详见正文。提取的弛豫时间及相应的拟合结果见图 3，并在正文中讨论。



图S7： 在 9.59 毫特斯拉下，于薄片-2 下方测得的（空心方块）T_1，其对应不同温度。红色实线表示使用正文中讨论的式**(5)** 所述拉伸指数衰减函数，以及式 **(6)**所述双指数衰减函数，对测得的 T_1 曲线进行拟合的结果。

氮空位-T_1 位于 α–$RuCl_3$ 薄片、薄片-1 和薄片-2 下方： 为研究氮空位的T_1, 的厚度依赖性，我们比较了薄片-1（厚度为 ~8 纳米）和薄片-2（厚度为 ~95 纳米）下方测得的随温度变化的T_1 值，如图 S8 所示。根据正文中所述的拟合程序提取T_1 弛豫时间，并以对数刻度绘制，以便在整个温度范围内进行比较。

观察到明显的厚度依赖效应：与较薄的薄片-1相比，较厚的薄片- 2下方的T_1 时间更短。这一行为表明，在NV跃迁频率[43]处，较厚的α–RuCl3层产生的磁噪声贡献增强。两片薄片在冷却至低于~100 K后，T_1 均显著下降，表明在相应的温度范围内，NV 中心所经历的磁噪声增加。此外，薄片-2下方的弛豫在低于50 K时表现出两种明显不同的衰减速率（快、慢），突显了正文所讨论的这一温度范围内更为复杂的弛豫行为。

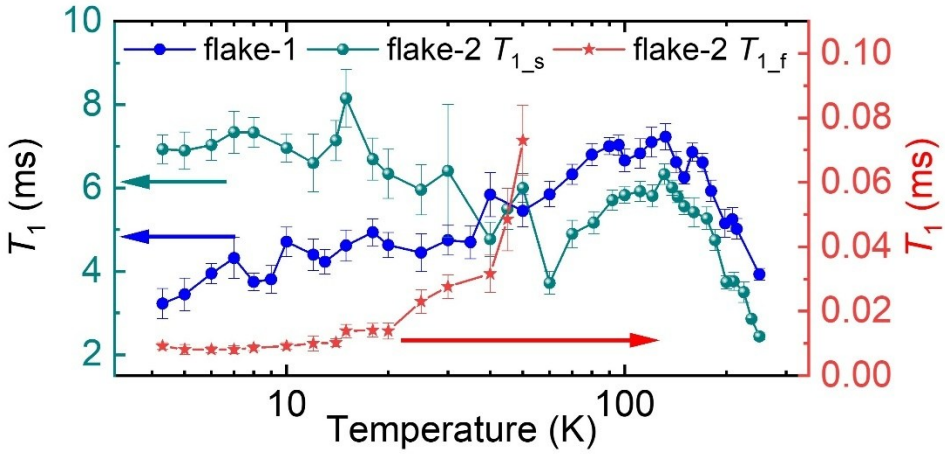


图 S8：在 9.59 毫特斯拉的外加磁场下，薄片-1（~8 纳米）和薄片-2（~95 纳米）下方测得的氮空位-T_1 弛豫时间随温度的变化。对于薄片-2，快速和慢速衰减分量分别绘制在右侧和左侧 y 轴上。图中的箭头标示了慢速和快速衰减对应的T_1 轴。

***T_1* data under α–$RuCl_3$ flake-3 at 9.59 mT:** 如图 S9所示，我们在9.59 毫特斯拉下测量了薄片-3的NV T_1 在4.3–250 K温度范围内的温度依赖性。在50–250 K的温度范围内，实验数据可以用单一的拉伸指数衰减函数很好地描述。然而，在低于50 K时，单指数衰减模型已不再适用；在4.3–45 K的温度范围内，采用双指数衰减函数可以更好地描述这些数据。提取出的T_1 时间如图 S10a所示，揭示了约100 K附近温度依赖的弛豫行为发生明显变化，随后在低于50 K时分裂为快、慢弛豫分量。这一行为与正文中所述薄片-2下方观察到的行为相似。

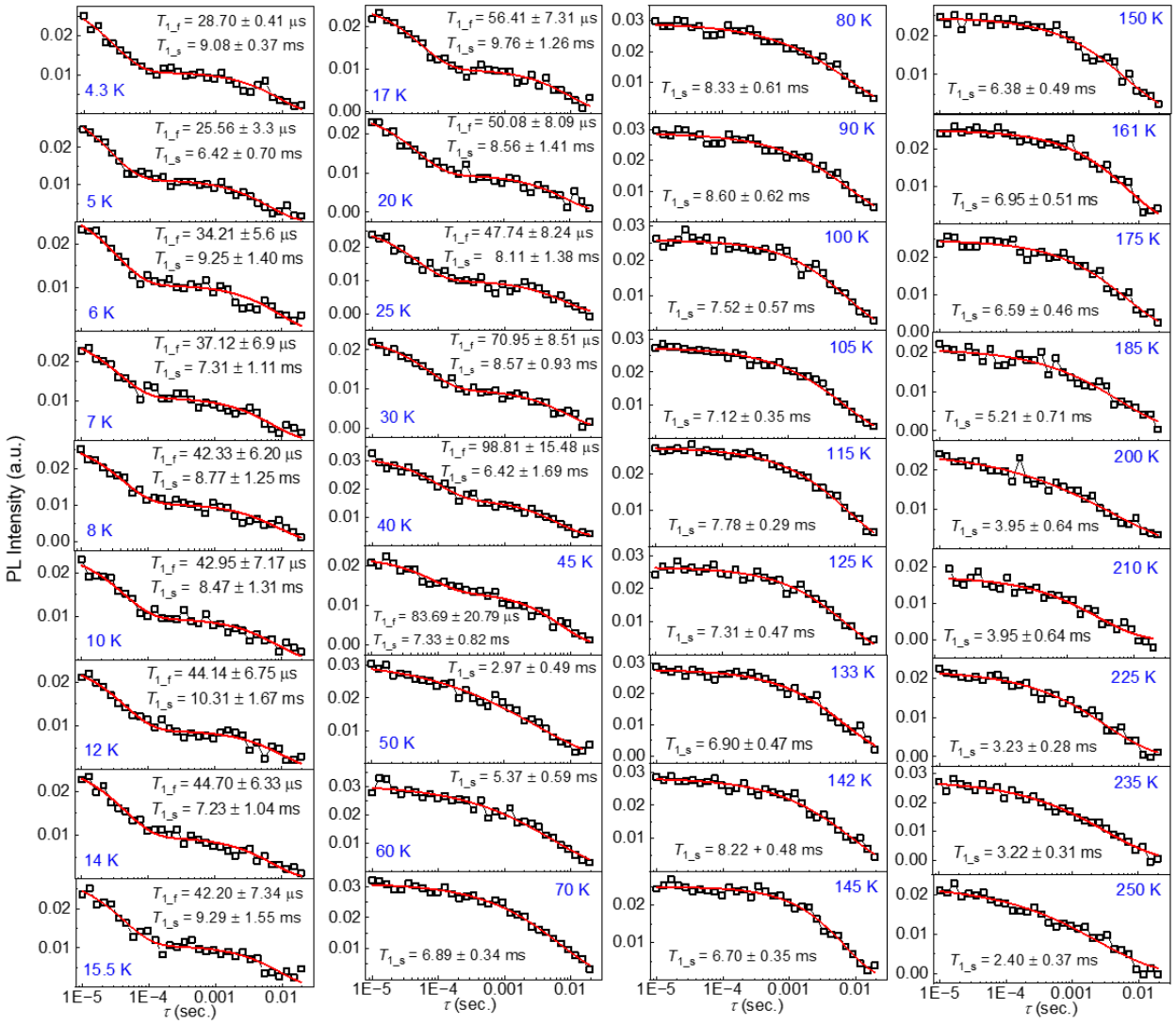


图 S9： 测得的（空心方块） T_1 是在不同温度下、9.59 毫特斯拉处于薄片-3下方采集的。红色实线表示对测得的 T_1 曲线进行拟合的结果，所用的指数衰减函数见正文中的方程 **(5)** 和（**6**）。

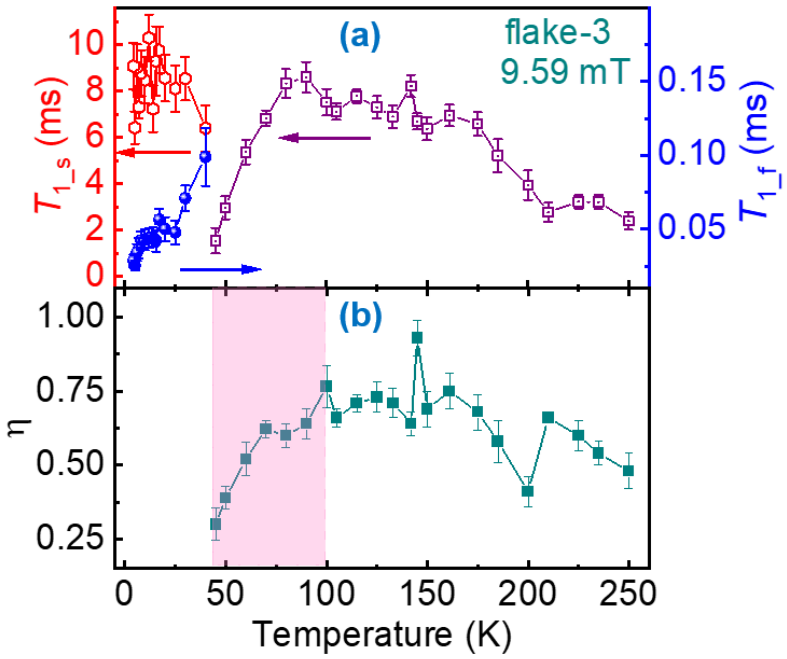


图 S10：（a）薄片-3 下方氮空位T_1 的温度依赖性。低于 45 K 时，快速和慢速衰减分量分别显示在右侧和左侧面板中。（b）拉伸指数参数 η 的温度依赖性。阴影区域显示 η 在 100 K 以下发生了急剧变化。（a）中的箭头标出了慢速和快速衰减对应的T_1 轴。

***T_1* 数据来自α–$RuCl_3$ 薄片-3，磁场为 22.66 mT：**如图 S11 所示，我们测量了薄片-3（~150 nm）的氮空位T_1 在 22.66 mT 下随温度的变化，温度范围为 4.3–250 K。在 50–250 K 的温度范围内，实验数据与单一拉伸指数衰减函数拟合良好；在 4.3–45 K 范围内，则与双指数衰减函数拟合良好。提取的T_1 及相应的拉伸参数见正文图 3。

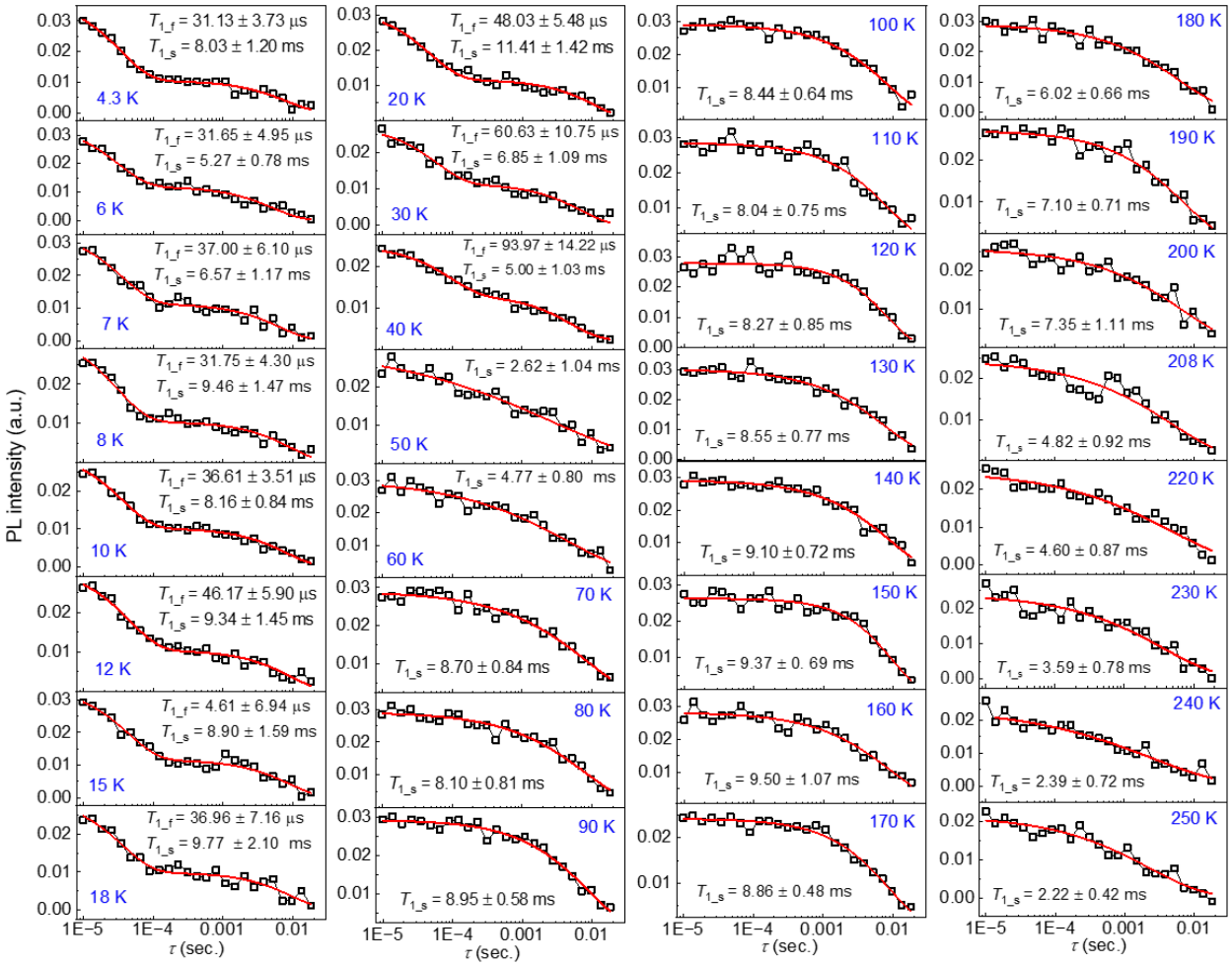


图 S11：在薄片-3下方、外加磁场为 22.66 mT 时，于 4.3–250 K 温度范围内采集的氮空位弛豫测量数据。红色实线表示对实验数据的拟合：在 50 至 250 K 范围内使用单一拉伸指数衰减函数，在 4.3 至 45 K 范围内使用双指数衰减函数，具体如正文中的公式（5）和公式（6）所述。

参考文献

(1) Matsuda, Y.; Shibauchi, T.; Kee, H.-Y. Kitaev量子自旋液体. Rev. Mod. Phys. 2025, 97 (4), 045003. https://doi.org/10.1103/3m4m-3v59 (2) Savary, L.; Balents, L. 量子自旋液体：综述. Rep. Prog. Phys. 2017, 80 (1), 016502. https://doi.org/10.1088/0034-4885/80/1/016502 (3) Kitaev, A. Yu. 基于任意子的容错量子计算. Annals of Physics 2003, 303 (1), 2–30. https://doi.org/10.1016/S0003-4916(02)00018-0 (4) Kitaev, A. 可精确求解模型及其他情形中的任意子. Annals of Physics 2006, 321 (1), 2–111. https://doi.org/10.1016/j.aop.2005.10.005 (5) Nayak, C.; Simon, S. H.; Stern, A.; Freedman, M.; Das Sarma, S. 非阿贝尔任意子与拓扑量子计算. Rev. Mod. Phys. 2008, 80 (3), 1083–1159. https://doi.org/10.1103/RevModPhys.80.1083 (6) Ojeda-Aristizabal, C.; Zheng, X.; Xu, C.; Nussinov, Z.; Motome, Y.; Banerjee, A.; Tsen, A. W.; Knap, M.; Du, R.-R.; Joshi, G.; Mounce, A.; Kim, Y.; Hunt, B. M.; Shcherbakov, D.; Zhou, B.; Jing, R.; Liu, M.; Zhao, H.; Claassen, M.; Erten, O.; Chen, Y. P.; Henriksen, E. A. 从α–$RuCl_3$ 中汲取经验，推动原子级薄层材料中的量子自旋液体物理研究. J. Phys.: Condens. Matter 2026, 38 (26), 263001. https://doi.org/10.1088/1361-648X/ae7cc8 (7) Banerjee, A.; Yan, J.; Knolle, J.; Bridges, C. A.; Stone, M. B.; Lumsden, M. D.; Mandrus, D. G.; Tennant, D. A.; Moessner, R.; Nagler, S. E. 邻近量子自旋液体α–$RuCl_3$中的中子散射. Science 2017, 356 (6342), 1055–1059. https://doi.org/10.1126/science.aah6015 (8) Plumb, K. W.; Clancy, J. P.; Sandilands, L. J.; Shankar, V. V.; Hu, Y. F.; Burch, K. S.; Kee, H.-Y.; Kim, Y.-J. α− $RuCl_3$：蜂窝晶格上的自旋轨道耦合辅助莫特绝缘体. Phys. Rev. B 2014, 90 (4), 041112. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.90.041112 (9) Kim, H.-S.; V., V. S.; Catuneanu, A.; Kee, H.-Y. 中等自旋轨道耦合下蜂窝状 $RuCl_3$ 中的 Kitaev 磁性. Phys. Rev. B 2015, 91 (24), 241110. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.91.241110 (10) Sears, J. A.; Songvilay, M.; Plumb, K. W.; Clancy, J. P.; Qiu, Y.; Zhao, Y.; Parshall, D.; Kim, Y.-J. α− $RuCl_3$中的磁有序：具有强自旋轨道耦合的蜂窝晶格量子磁体. Phys. Rev. B 2015, 91 (14), 144420. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.91.144420 (11) Majumder, M.; Schmidt, M.; Rosner, H.; Tsirlin, A. A.; Yasuoka, H.; Baenitz, M. RuCl 蜂窝体系中的各向异性 Ru^{3+} d 磁性：磁化率、^{4} ^{5} α− $_{3}$比热与零场核磁共振. Phys. Rev. B 2015, 91 (18), 180401. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.91.180401 (12) Cao, H. B.; Banerjee, A.; Yan, J.-Q.; Bridges, C. A.; Lumsden, M. D.; Mandrus, D. G.; Tennant, D. A.; Chakoumakos, B. C.; Nagler, S. E. α− $RuCl_3$的低温晶体结构与磁结构. Phys. Rev. B 2016, 93 (13), 134423. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.93.134423 (13) Kubota, Y.; Tanaka, H.; Ono, T.; Narumi, Y.; Kindo, K. α− $RuCl_3$中的连续磁相变：蜂窝晶格上的 XY 型受挫磁体. Phys. Rev. B 2015, 91 (9), 094422. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.91.094422 (14) Widmann, S.; Tsurkan, V.; Prishchenko, D. A.; Mazurenko, V. G.; Tsirlin, A. A.; Loidl, A. α− $RuCl_3$中分数化激发的热力学证据. Phys. Rev. B 2019, 99 (9), 094415. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.99.094415 (15) Park, S.-Y.; Do, S.-H.; Choi, K.-Y.; Jang, D.; Jang, T.-H.; Scheffer, J.; Wu, C.-M.; Gardner, J. S.; Park, J. M. S.; Park, J.-H.; Ji, S. 各向同性Kitaev蜂窝晶格α− $RuCl_3$ 的出现及其磁性质. J. Phys.: Condens. Matter 2024, 36 (21), 215803. https://doi.org/10.1088/1361-648X/ad294f (16) Motome, Y.; Nasu, J. 在Kitaev磁体中搜寻马约拉纳费米子. J. Phys. Soc. Jpn. 2020, 89 (1), 012002. https://doi.org/10.7566/JPSJ.89.012002 (17) Hauspurg, A.; Zherlitsyn, S.; Helm, T.; Felea, V.; Wosnitza, J.; Tsurkan, V.; Choi, K.-Y.; Do, S.-H.; Ye, M.; Brenig, W.; Perkins, N. B. 通过超声波探测分数化激发. Phys. Rev. B 2024, 109 (14), 144415. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.109.144415

(18) Kim, H.-S.; Kee, H.-Y. α− $RuCl_3$的晶体结构与磁性：第一性原理研究。《物理评论B》2016, 93 (15), 155143. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.93.155143 (19) Sears, J. A.; Chern, L. E.; Kim, S.; Bereciartua, P. J.; Francoual, S.; Kim, Y. B.; Kim, Y.-J. α–$RuCl_3$中的铁磁性 Kitaev 相互作用及大磁各向异性的起源。《自然物理》2020, 16 (8), 837–840. https://doi.org/10.1038/s41567-020-0874-0 (20) Suzuki, H.; Liu, H.; Bertinshaw, J.; Ueda, K.; Kim, H.; Laha, S.; Weber, D.; Yang, Z.; Wang, L.; Takahashi, H.; Fürsich, K.; Minola, M.; Lotsch, B. V.; Kim, B. J.; Yavaş, H.; Daghofer, M.; Chaloupka, J.; Khaliullin, G.; Gretarsson, H.; Keimer, B. Kitaev模型材料 α–$RuCl_3$中的邻近铁磁态。《自然通讯》2021, 12 (1), 4512. https://doi.org/10.1038/s41467-021- 24722-4 (21) Banerjee, A.; Lampen-Kelley, P.; Knolle, J.; Balz, C.; Aczel, A. A.; Winn, B.; Liu, Y.; Pajerowski, D.; Yan, J.; Bridges, C. A.; Savici, A. T.; Chakoumakos, B. C.; Lumsden, M. D.; Tennant, D. A.; Moessner, R.; Mandrus, D. G.; Nagler, S. E. α–$RuCl_3$中场诱导量子自旋液态的激发。《npj量子材料》2018, 3 (1), 8. https://doi.org/10.1038/s41535-018-0079-2 (22) Banerjee, A.; Bridges, C. A.; Yan, J.-Q.; Aczel, A. A.; Li, L.; Stone, M. B.; Granroth, G. E.; Lumsden, M. D.; Yiu, Y.; Knolle, J.; Bhattacharjee, S.; Kovrizhin, D. L.; Moessner, R.; Tennant, D. A.; Mandrus, D. G.; Nagler, S. E. 蜂窝磁体中的邻近 Kitaev 量子自旋液体行为。《自然材料》2016, 15 (7), 733–740. https://doi.org/10.1038/nmat4604 (23) Do, S.-H.; Park, S.-Y.; Yoshitake, J.; Nasu, J.; Motome, Y.; Kwon, Y. S.; Adroja, D. T.; Voneshen, D. J.; Kim, K.; Jang, T.-H.; Park, J.-H.; Choi, K.-Y.; Ji, S. Kitaev 量子自旋系统α-RuCl3中的马约拉纳费米子。《自然物理》2017, 13 (11), 1079–1084. https://doi.org/10.1038/nphys4264 (24) Glamazda, A.; Lemmens, P.; Do, S.-H.; Choi, Y. S.; Choi, K.-Y. 谐蜂窝铱酸盐 β– 和 γ–Li_2IrO_3中分数化激发的拉曼光谱特征。《自然通讯》2016, 7 (1), 12286. https://doi.org/10.1038/ncomms12286 (25) Knolle, J.; Chern, G.-W.; Kovrizhin, D. L.; Moessner, R.; Perkins, N. B. A_2IrO_3 铱酸盐（A = 为Na或Li）中 Kitaev 自旋液体的拉曼散射特征。《物理评论快报》2014, 113 (18), 187201. https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.113.187201 (26) Glamazda, A.; Lemmens, P.; Do, S.-H.; Kwon, Y. S.; Choi, K.-Y. α− $RuCl_3$中 Kitaev 磁性与结构之间的关系。《物理评论B》2017, 95 (17), 174429. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.95.174429 (27) Sandilands, L. J.; Tian, Y.; Plumb, K. W.; Kim, Y.-J.; Burch, K. S. α− $RuCl_3$中的散射连续谱与可能的分数化激发。《物理评论快报》2015, 114 (14), 147201. https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.114.147201 (28) Balasubramanian, G.; Chan, I. Y.; Kolesov, R.; Al-Hmoud, M.; Tisler, J.; Shin, C.; Kim, C.; Wojcik, A.; Hemmer, P. R.; Krueger, A.; Hanke, T.; Leitenstorfer, A.; Bratschitsch, R.; Jelezko, F.; Wrachtrup, J. 环境条件下利用金刚石自旋进行纳米尺度成像磁力测量。《自然》2008, 455 (7213), 648–651. https://doi.org/10.1038/nature07278 (29) Dolde, F.; Fedder, H.; Doherty, M. W.; Nöbauer, T.; Rempp, F.; Balasubramanian, G.; Wolf, T.; Reinhard, F.; Hollenberg, L. C. L.; Jelezko, F.; Wrachtrup, J. 利用单个金刚石自旋进行电场传感。《自然物理》2011, 7 (6), 459–463. https://doi.org/10.1038/nphys1969 (30) Doherty, M. W.; Manson, N. B.; Delaney, P.; Jelezko, F.; Wrachtrup, J.; Hollenberg, L. C. L. 金刚石中的氮-空位色心。《物理学报告》2013, 528 (1), 1–45. https://doi.org/10.1016/j.physrep.2013.02.001 (31) Neumann, P.; Jakobi, I.; Dolde, F.; Burk, C.; Reuter, R.; Waldherr, G.; Honert, J.; Wolf, T.; Brunner, A.; Shim, J. H.; Suter, D.; Sumiya, H.; Isoya, J.; Wrachtrup, J. 利用金刚石中的单个缺陷实现高精度纳米尺度温度传感。《纳米快报》2013, 13 (6), 2738–2742. https://doi.org/10.1021/nl401216y (32) Wolf, T.; Neumann, P.; Nakamura, K.; Sumiya, H.; Ohshima, T.; Isoya, J.; Wrachtrup, J. 亚皮特斯拉金刚石磁力测量。《物理评论X》2015, 5 (4), 041001. https://doi.org/10.1103/PhysRevX.5.041001

(33) Degen, C. L.; Reinhard, F.; Cappellaro, P. 量子传感。《现代物理评论》2017, 89 (3), 035002. https://doi.org/10.1103/RevModPhys.89.035002 (34) Casola, F.; Van Der Sar, T.; Yacoby, A. 利用基于金刚石中氮空位中心的磁力测量探测凝聚态物理。《自然综述：材料》2018, 3 (1), 17088. https://doi.org/10.1038/natrevmats.2017.88 (35) Laraoui, A.; Ambal, K. 利用氮空位辅助磁力测量研究二维范德华磁体磁性的机遇。《应用物理快报》2022, 121 (6), 060502. https://doi.org/10.1063/5.0091931 (36) Fescenko, I.; Kumar, R.; Gas-Osoth, T.; Wang, Y.; Lamichhane, S.; Li, T.; Erickson, A.; Raghavan, N.; Delord, T.; Cress, C. D.; Proscia, N.; LaGasse, S. W.; Liou, S.; Hong, X.; Fonesca, J. J.; An, T.; Meriles, C. A.; Laraoui, A. 利用氮空位进行磁力测量，研究 WS_2 薄片中的边缘磁性。《先进功能材料》2025, e12391. https://doi.org/10.1002/adfm.202512391 (37) Rondin, L.; Tetienne, J.-P.; Hingant, T.; Roch, J.-F.; Maletinsky, P.; Jacques, V. 利用金刚石中的氮空位缺陷进行磁力测量。《物理学进展报告》2014, 77 (5), 056503. https://doi.org/10.1088/0034-4885/77/5/056503 (38) Schäfer-Nolte, E.; Schlipf, L.; Ternes, M.; Reinhard, F.; Kern, K.; Wrachtrup, J. 利用宽带量子谱仪追踪铁蛋白纳米磁体的温度依赖弛豫时间。《物理评论快报》2014, 113 (21), 217204. https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.113.217204 (39) Wang, H.; Zhang, S.; McLaughlin, N. J.; Flebus, B.; Huang, M.; Xiao, Y.; Liu, C.; Wu, M.; Fullerton, E. E.; Tserkovnyak, Y.; Du, C. R. 对反铁磁绝缘体自旋输运性质的无创测量。《科学进展》2022, 8 (1), eabg8562. https://doi.org/10.1126/sciadv.abg8562 (40) Finco, A.; Haykal, A.; Tanos, R.; Fabre, F.; Chouaieb, S.; Akhtar, W.; Robert-Philip, I.; Legrand, W.; Ajejas, F.; Bouzehouane, K.; Reyren, N.; Devolder, T.; Adam, J.-P.; Kim, J.-V.; Cros, V.; Jacques, V. 利用单自旋弛豫测量成像非共线反铁磁织构。《自然通讯》2021, 12 (1), 767. https://doi.org/10.1038/s41467-021-20995-x (41) Lamichhane, S.; Timalsina, R.; Schultz, C.; Fescenko, I.; Ambal, K.; Liou, S.-H.; Lai, R. Y.; Laraoui, A. 氮空位磁弛豫测量纳米簇化细胞色素C蛋白。《纳米快报》2024, 24 (3), 873–880. https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.3c03843 (42) Hammons, B.; Kumar, J.; Iqbal, S.; Karki, P. B.; Prasad, K.; Li, T.; Pirali, A.; Aregbesola, A. E.; Timalsina, R.; Hong, X.; Wang, J.; Ambal, K.; Fescenko, I.; Laraoui, A. 利用氮空位显微术探测 $CrCl_3$ 纳米片在磁相变过程中的 GHz自旋动力学。《ACS纳米》2026, 20 (29), 20776–20786. https://doi.org/10.1021/acsnano.6c07232 (43) Kumar, J.; Yudilevich, D.; Smooha, A.; Zohar, I.; Pariari, A. K.; Stöhr, R.; Denisenko, A.; Hücker, M.; Finkler, A. 邻近α-$RuCl_3$ 纳米片的单氮空位中心室温弛豫测量。《纳米快报》2024, 24 (16), 4793–4800. https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.3c05090 (44) Chatterjee, S.; Rodriguez-Nieva, J. F.; Demler, E. 利用自旋量子比特噪声磁力测量诊断磁性绝缘体的相。《物理评论B》2019, 99 (10), 104425. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.99.104425 (45) Khoo, J. Y.; Pientka, F.; Lee, P. A.; Villadiego, I. S. 利用 NV 中心探测自旋子费米面的量子噪声。《物理评论B》2022, 106 (11), 115108. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.106.115108 (46) Lee, P. A.; Morampudi, S. 提出利用 NV 中心探测自旋液体中的涌现规范场及其迈斯纳效应。《物理评论B》2023, 107 (19), 195102. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.107.195102 (47) Xiao, X.; Takahashi, M. O.; Stevenson, P.; Fujimoto, S.; Bansil, A. 噪声磁力测量中的非阿贝尔基塔耶夫量子自旋液体特征。《物理评论B》2026, 113 (20), L201103. https://doi.org/10.1103/69gj-6wm8 (48) Schmid-Lorch, D.; Häberle, T.; Reinhard, F.; Zappe, A.; Slota, M.; Bogani, L.; Finkler, A.; Wrachtrup, J. 超顺磁性磁铁矿纳米颗粒的弛豫测量与退相干成像

使用单量子比特。Nano Lett. 2015, 15 (8), 4942–4947. https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.5b00679 (49) Smooha, A.; Kumar, J.; Yudilevich, D.; Rosenberg, J. W.; Bayer, V.; Stöhr, R.; Denisenko, A.; Bendikov, T.; Kossoy, A.; Pinkas, I.; Tan, H.; Yan, B.; Sarkar, B.; Van Slageren, J.; Finkler, A. 利用氮-空位中心传感单分子磁体。《纳米快报》2026, 26 (5), 1655–1661. https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.5c05066 (50) Sahasrabudhe, A.; Kaib, D. A. S.; Reschke, S.; German, R.; Koethe, T. C.; Buhot, J.; Kamenskyi, D.; Hickey, C.; Becker, P.; Tsurkan, V.; Loidl, A.; Do, S. H.; Choi, K. Y.; Grüninger, M.; Winter, S. M.; Wang, Z.; Valentí, R.; Van Loosdrecht, P. H. M. α− $RuCl_3$中的高场量子无序态：自旋翻转、束缚态与多粒子连续谱。《物理评论B》2020, 101 (14), 140410. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.101.140410 (51) Momma, K.; Izumi, F. VESTA 3：用于晶体、体积和形貌数据三维可视化。J Appl Crystallogr 2011, 44 (6), 1272–1276. https://doi.org/10.1107/S0021889811038970 (52) Jarmola, A.; Acosta, V. M.; Jensen, K.; Chemerisov, S.; Budker, D. 金刚石中氮-空位系综纵向自旋弛豫对温度和磁场的依赖。《物理评论快报》2012, 108 (19), 197601. https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.108.197601 (53) Wu, Y.-C.; Halász, G. B.; Damron, J. T.; Gai, Z.; Zhao, H.; Sun, Y.; Dahmen, K. A.; Sohn, C.; Carlson, E. W.; Hua, C.; Lin, S.; Song, J.; Lee, H. N.; Lawrie, B. J. 高居里温度铁磁体中的纳米尺度磁有序动力学。《纳米快报》2025, 25 (4), 1473–1479. https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.4c05401 (54) Baldini, M.; Struzhkin, V. V.; Goncharov, A. F.; Postorino, P.; Mao, W. L. $LaMnO_3$中Jahn-Teller畸变在绝缘体到金属转变过程中持续存在。《物理评论快报》2011, 106 (6), 066402. https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.106.066402 (55) Fano, U. 组态相互作用对强度和相移的影响。Phys. Rev. 1961, 124 (6), 1866–1878. https://doi.org/10.1103/PhysRev.124.1866 (56) Hartinger, Ch.; Mayr, F.; Loidl, A.; Kopp, T. 掺杂锰酸盐薄膜中的协同动力学：铁磁态中的声子反常。《物理评论B》2004, 70 (13), 134415. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.70.134415 (57) Yang, Z.; Wang, L.; Zhao, D.; Luo, M.; Laha, S.; Güth, A.; Taniguchi, T.; Watanabe, K.; Lotsch, B. V.; Smet, J. H.; Minola, M.; Gretarsson, H.; Keimer, B. 来自 α− $RuCl_3$ 纳米层中电子激发的共振非弹性X射线散射。《物理评论B》2023, 108 (4), L041406. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.108.L041406 (58) Koitzsch, A.; Klaproth, T.; Janson, O.; Popov, A. A.; Knupfer, M.; Büchner, B. 应变调控α–$RuCl_3$ 中的磁相互作用。npj Quantum Mater. 2026, 11 (1), 77. https://doi.org/10.1038/s41535-026-00939-8 (59) Hall, L. T.; Kehayias, P.; Simpson, D. A.; Jarmola, A.; Stacey, A.; Budker, D.; Hollenberg, L. C. L. 利用金刚石中的氮-空位中心探针演示纳米尺度电子自旋共振谱的检测。Nat Commun 2016, 7 (1), 10211. https://doi.org/10.1038/ncomms10211 (60) Steinert, S.; Ziem, F.; Hall, L. T.; Zappe, A.; Schweikert, M.; Götz, N.; Aird, A.; Balasubramanian, G.; Hollenberg, L.; Wrachtrup, J. 环境条件下具有亚细胞分辨率的磁自旋成像。Nat Commun 2013, 4 (1), 1607. https://doi.org/10.1038/ncomms2588 (61) Li, M.; Zhang, Q.; Kong, X.; Zhao, S.; Pan, B.-B.; Sun, Z.; Yu, P.; Wang, Z.; Wang, M.; Ji, W.; Kong, F.; Cheng, G.; Wu, S.; Wang, Y.; Chen, S.; Su, X.-C.; Shi, F. 利用量子弛豫测量检测单个NV中心中的生物分子相互作用。Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. 2025, 122 (35), e2509102122. https://doi.org/10.1073/pnas.2509102122 (62) Nie, L.; Nusantara, A. C.; Damle, V. G.; Sharmin, R.; Evans, E. P. P.; Hemelaar, S. R.; Van Der Laan, K. J.; Li, R.; Perona Martinez, F. P.; Vedelaar, T.; Chipaux, M.; Schirhagl, R. 在单个线粒体中以量子方法监测细胞代谢活动。Sci. Adv. 2021, 7 (21), eabf0573. https://doi.org/10.1126/sciadv.abf0573

(63) Sandilands, L. J.; Sohn, C. H.; Park, H. J.; Kim, S. Y.; Kim, K. W.; Sears, J. A.; Kim, Y.-J.; Noh, T. W. α− $RuCl_3$中海森堡–Kitaev磁性的光学探针。《物理评论*B*》 **2016**, *94* (19), 195156. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.94.195156 (64) Yoshitake, J.; Nasu, J.; Motome, Y. 分数化自旋涨落是量子自旋液体的前兆：Kitaev模型的马约拉纳动力学平均场研究。《物理评论快报》 **2016**, *117* (15), 157203. https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.117.157203 (65) Nasu, J.; Udagawa, M.; Motome, Y. Kitaev模型中量子自旋的热分数化：温度线性比热与马约拉纳费米子的相干输运。《物理评论*B*》 **2015**, *92* 11 115122 10 1103 92115122 ( ), . https://doi.org/ . /PhysRevB. . (66) Janša, N.; Zorko, A.; Gomilšek, M.; Pregelj, M.; Krämer, K. W.; Biner, D.; Biffin, A.; Rüegg, C.; Klanjšek, M. 在Kitaev蜂窝磁体中观测到两种分数化激发。*Nature Phys* **2018**, *14* (8), 786–790. https://doi.org/10.1038/s41567-018-0129-5 (67) Broholm, C.; Cava, R. J.; Kivelson, S. A.; Nocera, D. G.; Norman, M. R.; Senthil, T. 量子自旋液体。《科学》 **2020**, *367* (6475), eaay0668. https://doi.org/10.1126/science.aay0668 (68) Wen, J.; Yu, S.-L.; Li, S.; Yu, W.; Li, J.-X. 量子自旋液体的实验鉴定。*npj Quantum Mater.* **2019**, *4* (1), 12. https://doi.org/10.1038/s41535-019-0151-6 (69) Gong, R.; Melendez, A. L.; He, G.; Liu, Z.; Zu, C.; Zhao, H. 固态缺陷自旋弛豫测量：理论、平台与应用。arXiv 2026年7月14日。https://doi.org/10.48550/ARXIV.2602.01521