

纠缠增强的纳米尺度单自旋传感

Xu Zhou^{1§}, Mengqi Wang^{1§}, Xiangyu Ye¹, Haoyu Sun¹, Yuhang Guo¹, Han Shuo¹, Zihua Chai¹, Wentao Ji¹, Kangwei Xia^{1,2}, Fazhan Shi^{1,2}, Ya Wang^{1,2}, and Jiangfeng Du^{1,2,3}

¹ Laboratory of Spin Magnetic Resonance, School of Physical Sciences,
Anhui Province Key Laboratory of Scientific Instrument Development and Application,
University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China

² Hefei National Laboratory, University of Science and Technology of China, Hefei 230088, China

³ Institute of Quantum Sensing and School of Physics,
Zhejiang University, Hangzhou 310027, China and

[§] These authors contributed equally to this work

(10Dated: 2025 年 5 月 2 日)

检测单个自旋——包括稳定和亚稳态——在量子传感中是一个基本挑战，具有广泛的应用于凝聚态物理、量子化学以及单分子磁共振成像等领域。虽然钻石中的氮-空位 (NV) 中心已经作为强大的纳米级传感器出现，但它们对单自旋检测的性能仍然受到显著环境噪声和受限感应体积的限制。在这里，我们提出并演示了一种通过策略性使用纠缠 NV 对来克服这些限制的纠缠增强传感协议。我们的方法在室温条件下实现了 3.4 倍灵敏度提升和 1.6 倍空间分辨率降低。该协议采用精心设计的纠缠态，通过量子干涉放大目标自旋信号同时抑制环境噪声。至关重要的是，我们扩展了这些能力以解析亚稳态单自旋动力学，直接观察不同自旋状态之间的随机跃迁，识别出依赖于状态的耦合强度。这种双重功能允许同时检测静态和动态自旋物种，用于研究复杂量子系统。所达到的性能确立了纠缠增强传感作为一种可行途径，朝着对量子材料和界面进行原子级特征描述的目标迈进。

量子传感技术，借助单个纳米级量子传感器，正成为一项变革性技术，提供无与伦比的精度来表征微观结构 [1–9] 并揭示基本的微观机制 [10–14]。推进这项技术的关键策略在于利用量子纠缠超越单个量子传感器的限制。尽管已经广泛研究了纠缠量子传感以接近由量子物理学规定的根本性精度极限 [15–18]，但将量子纠缠实际集成到具有优势的纳米级量子传感系统中仍然是一个重大且持续的挑战。这一挑战主要源于量子纠缠的内在脆弱性，特别是对于靠近界面或材料表面操作的量子传感器而言，这会导致严重的退相干 [19–22]。由此产生的极短纠缠相干时间可能导致性能甚至低于单个纳米级量子传感器，尤其是在考虑纠缠态制备和检测相关的开销 [23] 时。

这里我们提出了一种在保持对目标单自旋敏感性的同时抑制环境噪声的通用方法。关键思想是开发紧密耦合的量子传感器，使其彼此靠近排列，从而实现卓越纠缠纳米尺度量子传感 (图 1A 和 B)。通过准备具有平均零量子数子空间中的纠缠态 (例如, $\frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle)$), $\uparrow(\downarrow)$ 表示自旋-1/2 系统的 $m_s = +\frac{1}{2}(-\frac{1}{2})$), 传感器在大部分表面表现出耦合强度降低 (图 1B 的蓝色区域), 使它们有效地免受常见表面噪声的影响。重要的是, 传感系统还保留了对位于受限表面区域内单个自旋目标的敏感性 (图 1B 的红色区域), 从而实现了增强的空间分辨率。

这一纠缠传感方案的关键要求是, 必须精确控制量子

传感器的位置以确保它们的分离 (s) 相对于其与界面浴的距离 (d) 很小, 从而保留所有纠缠的优势。图 1C 和 D 展示了在不同间隔下的空间分辨率和自旋相干时间的表现。当间隔较大时, 每个量子传感器都与独立的自旋浴相互作用, 导致空间分辨率下降并增加纠缠态的去相干率。相比之下, 在相对较小的间隔下, 实现了 1.6 倍的空间分辨率提升 (图 1C)。结合增强的自旋相干时间, 纠缠纳米传感方案在密集自旋浴中检测单个自旋目标的相干单调振荡信号方面表现出色 (图 1B 右)。该方案可以轻松应用于各种纳米级传感器, 如硅碳中的自旋缺陷 [24, 25] 和单分子自旋探针 [26], 在广泛的应用中提供卓越性能。

我们通过氮-空位 (NV) 中心在钻石中的方案进行了演示, 这是一种领先的纳米级量子传感器, 广泛应用于生物学、凝聚态物理和材料科学 [27–36]。一对沿不同晶体轴取向的 NV 对被制造在可以作为扫描磁测量探针的纳米柱的最佳性能位置内 [37] (图 2A)。制造过程利用了同位素纯度为 99.999% ^{12}C [38] 的钻石, 并采用纳米精度自对准技术进行氮离子注入 [39]。这产生了平均深度为 20(7) 纳米的强耦合 NV 中心, 适用于纳米尺度传感。这一浅深度导致 NV1 和 NV2 的自旋相干时间 T_2 分别为 14.5 和 10.2 μ 秒, 主要受到金刚石表面噪声 [38] 的影响。在沿着 NV1 轴对齐的静态磁场 $B_0 = 89$ 高斯下, 双电子-电子共振 (DEER) 测量显示耦合强度为 414(3) 千赫兹, 对应两

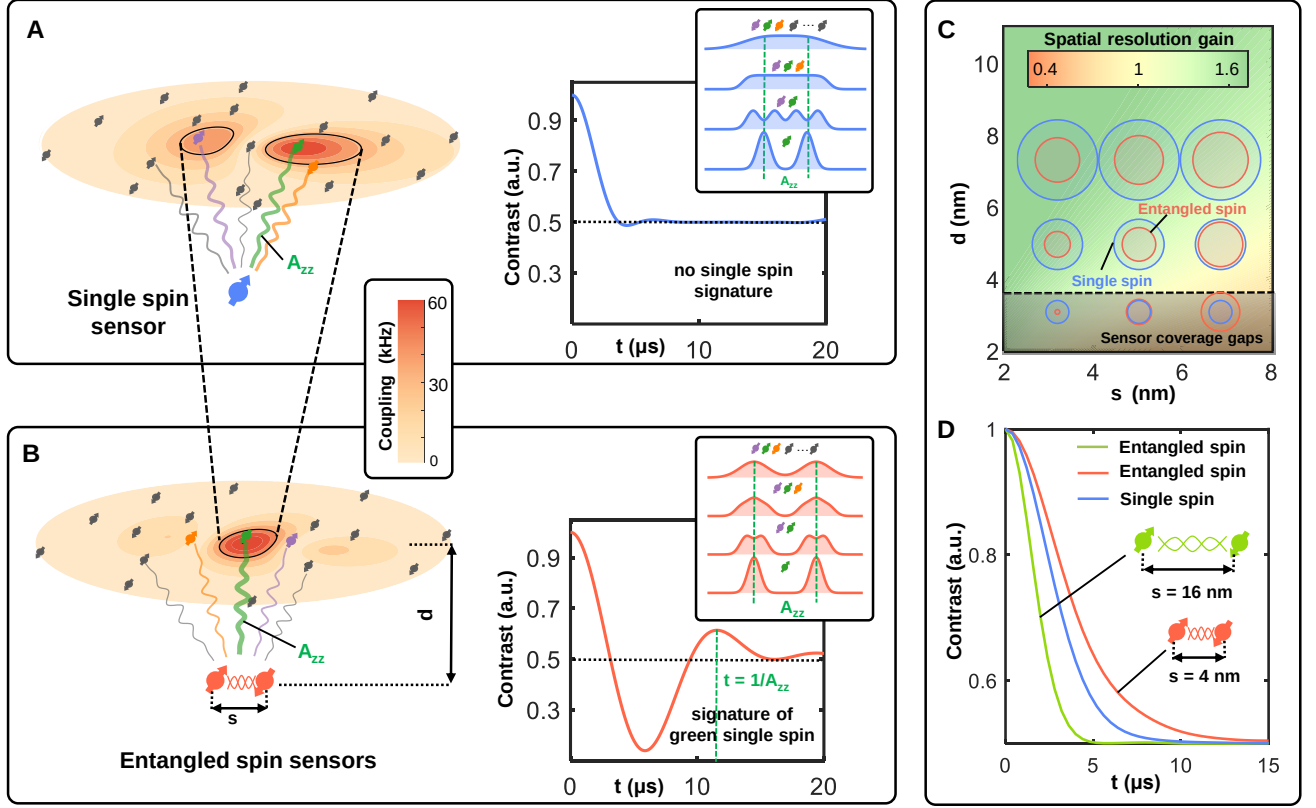


图 1. 纠缠纳米尺度传感的示意图与自旋传感器。**A.** 纳米尺度单个自旋传感在来自界面自旋浴的显著噪声中（左）。红色区域突出显示了单个自旋目标检测的最佳位置，在此位置耦合强度 A_{zz} 占主导地位，从而决定了空间分辨率（方法）。由于与多个自旋目标的耦合以及自旋传感器有限相干时间导致频谱拥挤，阻碍了对单个自旋信号的可靠区分（右）。**B.** 两个强烈耦合的自旋传感器通过水平距离 s 分开进行纠缠纳米尺度传感（左）。随着空间分辨率（红色区域）提高，并且耦合强度选择性放大，在纠缠传感器相干演化的过程中成功观测到单个自旋振荡特征（右）。**C.** 不同深度和间隔下的传感器配置的空间分辨率动态变化。蓝色圆圈的大小（单个自旋传感器）和红色圆圈的大小（纠缠传感器）表示对应的空间分辨率。红色（蓝色）区域标记了相对于单个自旋传感器具有增加（减少）空间分辨率的纠缠纳米尺度传感。**D.** 纠缠态 $\frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow\uparrow\rangle + |\downarrow\downarrow\rangle)$ 对于接近和较大的传感器间隔显示出不同的自由感应时间。结果是通过使用 $d = 9$ nm, $s = 4$ nm（红线）， $s = 16$ nm（绿线）和界面自旋密度为 0.01nm^{-2} ，通过对 1000 个随机生成的表面自旋分布进行平均计算得出的。

个 NV 中心之间的距离为 5.2(3) 纳米（图 2A, 扩展数据）。

这种简短的分离显著减少了纠缠态准备和检测相关的开销。在大约 $\tau_1 = 1/(8A_{\text{NV1,NV2}}) \sim 0.2 \mu$ 秒的主时间成本下，我们通过图 2B 中所示的序列制备了两种类型的纠缠态 $|\psi_1\rangle = (|\uparrow\uparrow\rangle + i|\downarrow\downarrow\rangle)/\sqrt{2}$, $|\psi_2\rangle = (|\uparrow\downarrow\rangle + i|\downarrow\uparrow\rangle)/\sqrt{2}$ ，其中 $\uparrow$ ($\downarrow$) 表示 spin-1 系统中的 $m_s = +1$ (-1)。这两种状态对表面电子自旋浴表现出互补的敏感性（图 2D）。因此，我们观察到状态 $|\psi_2\rangle$ 的相干时间增强为 21.9μ s，而状态 $|\psi_1\rangle$ 的相干时间减少为 4.8μ s。这些结果与之前纠缠的 NV 对形成鲜明对比，由于 25 纳米的大间距 [40]，它们表现出相同的相干时间。

我们采用基于 ψ_2 的 DEER 光谱学实现对暗自旋的

纠缠纳米尺度传感（图 2B）。当目标自旋的 π 翻转脉冲频率与其共振频率匹配时，目标自旋与 ψ_2 之间的相互作用保持耦合，在解缠过程中导致 ψ_2 中的可检测相移。频率扫描揭示了在 0.0854、0.2495 和 0.6940 GHz 处存在三个不同的共振峰（图 2E），对应于单个暗电子自旋。为了验证单一自旋的起源，我们测量每个由暗自旋引起的相位动力学作为演化时间 t 的函数。在所有共振频率下相干单调振荡的持续存在（图 3A）无歧义地确认了单个自旋特征，因为集合自旋会平均化振荡并产生类似于退相干的信号。振荡频率（图 3B）由暗自旋与两个 NV 中心之间的微分偶极-偶极耦合决定。

纳米尺度的自旋传感能够通过它们独特的磁指纹同

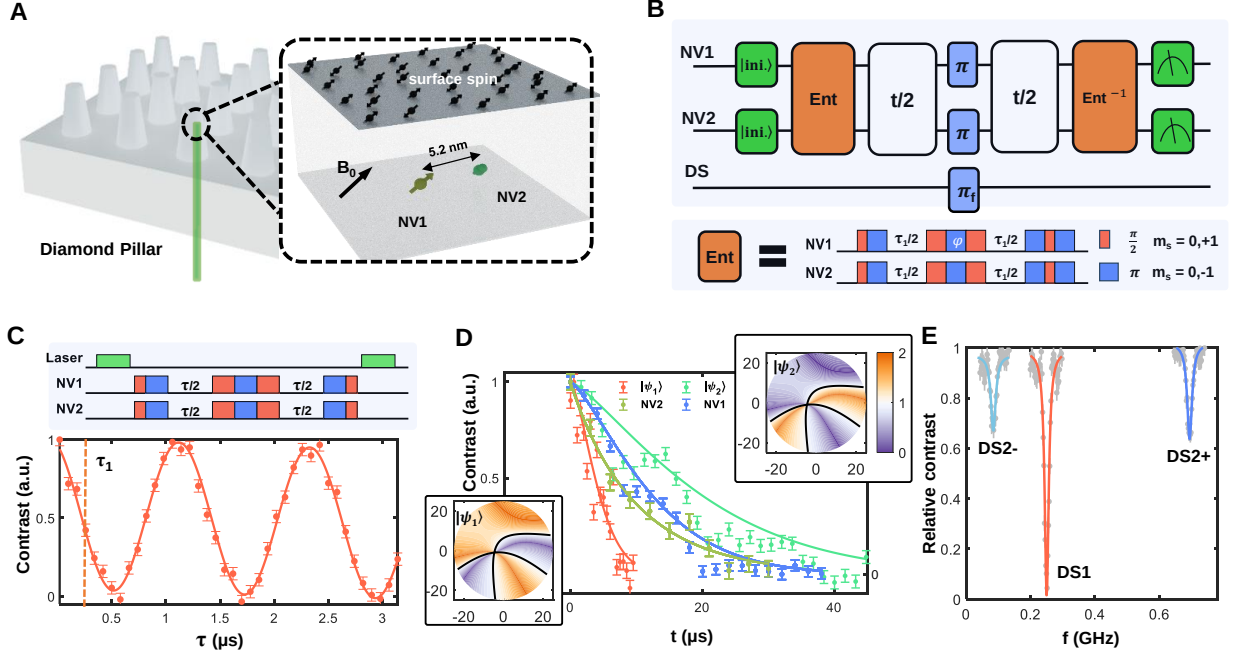


图 2. 基于纠缠态的单个暗自旋光谱学。**A.** 纳米柱结构示意图，其中心区域含有 NV 对。**B.** 利用 NV1-NV2 纠缠态进行暗自旋 (DS) 目标 DEER 光谱学。通过一个具有相应共振频率 f 的功能 π 脉冲 (DS)，实现了 DS 目标与 NV1-NV2 纠缠态的选择性耦合。Ent 表示用于制备纠缠态的标准脉冲序列。 $\varphi = 0$ 对于 $|\psi_1\rangle$ ，以及 $\varphi = \pi/2$ 对于 $|\psi_2\rangle$ 。**C.** 具有不同演化时间的 Ent 序列 τ 决定了 NV1 和 NV2 之间的耦合强度 $A_{\text{NV1,NV2}} = 414(3)\text{kHz}$ 以及制备纠缠态的最佳演化时间 $\tau_1 = 1/8A_{\text{NV1,NV2}}$ 。使用 Hahn 回波序列测量的两个分离态 (NV1 和 NV2) 和纠缠态 ($|\psi_1\rangle$ 和 $|\psi_2\rangle$) 的自旋相干衰减 **D.**。计算得到的 $|\psi_1\rangle$ 和 $|\psi_2\rangle$ 与表面自旋浴的耦合强度显示出明显的空间模式，相对于单个自旋耦合，存在增强 (红色) 和抑制 (蓝色) 区域，直接解释了依赖于状态的相干时间。使用 $|\psi_2\rangle$ 进行 **E.** DS 频率扫描揭示了在 $B_0 = 89$ 高斯下的暗自旋的不同谱峰。

时识别和空间映射暗自旋。通过对它们磁场依赖的能量分裂进行分析 (图 3C, 扩展数据)，我们确定了不同的自旋构型：DS1 表现出各向同性的塞曼分裂行为，其磁化率在不同方向上为 2.8MHz/高斯 ，而 DS2 则显示出三重态自旋特性，具有零场分裂轴项 $D = 0.2966\text{GHz}$ 和非轴项 $E = 0.3003\text{GHz}$ (补充信息)，表现为在零磁场下两个独立的峰值以及在有限磁场下的能量-场强依赖关系呈非线性。

利用偶极-偶极相互作用的各向异性性质，我们建立了一种用于暗自旋纳米级空间映射的协议。该方法利用相互作用的双重依赖性，即 (1) 自旋间距离 (r^{-3} 比例) 和 (2) 相对于外加矢量磁场的方向 $\mathbf{B}_0$ 。通过系统地改变 $\mathbf{B}_0$ 并测量由此产生的耦合强度，我们重建了具有 $\sim 0.3\text{nm}$ 位置不确定性的三维自旋分布 (扩展数据)。重建的图 (图 3D) 揭示了一种具有 $\sim 3.0\text{nm}$ 特征间距的聚集自旋排列，并且这两个暗自旋位于金刚石晶体内部。

纠缠传感器状态 ψ_2 对 DS1 和 DS2 表现出强烈的对比响应 (图 3E)，这源于它们相对于 NV 对的不同空间配置。这种空间选择性能够同时增强 DS2 的耦合强度并抑

制 DS1 信号。我们通过将偶极-偶极相互作用建模为有效磁场来量化灵敏度 (方法)。定量分析表明， ψ_2 相对于单个 NV 检测为 DS2 提供了最优的 5.28dB 灵敏度增强，并同时抑制不需要的 DS1 信号 -0.98dB 。这些结果确立了纠缠工程作为纳米尺度自旋区分的强大策略，特别是在传统检测方法可能失效的密集自旋环境中。

基于利用孤立暗自旋作为辅助传感器并具有扩展传感范围的现有技术 [41, 42]，我们将这种方法与我们的纠缠纳米尺度传感协议结合，以实现单自旋检测。探索了纠缠 NV1-DS1 传感器对用于检测界面上的自旋，因为它们靠近钻石-空气界面的位置。实验序列始于通过 SWAP 门介导的极化转移到 DS1，然后制备 NV1 ($m_s = 0, -1$) 和 DS1 之间的纠缠态 $|\phi\rangle_{\text{SQ}} = (|\downarrow, \uparrow\rangle - i|\uparrow, \downarrow\rangle)/\sqrt{2}$ ，最后进行面向界面敏感的 DEER 测量，针对主要自旋-1/2 物种 (图 4A)。测量结果揭示了一个亚稳态暗自旋，在自旋-1/2 和自旋-0 构型之间表现出随机切换。当处于自旋-1/2 状态时，我们观察到清晰的相干振荡，而在自旋-0 区间这些振荡完全消失。所测得的耦合强度为 $27(7)\text{kHz}$ (对应于对

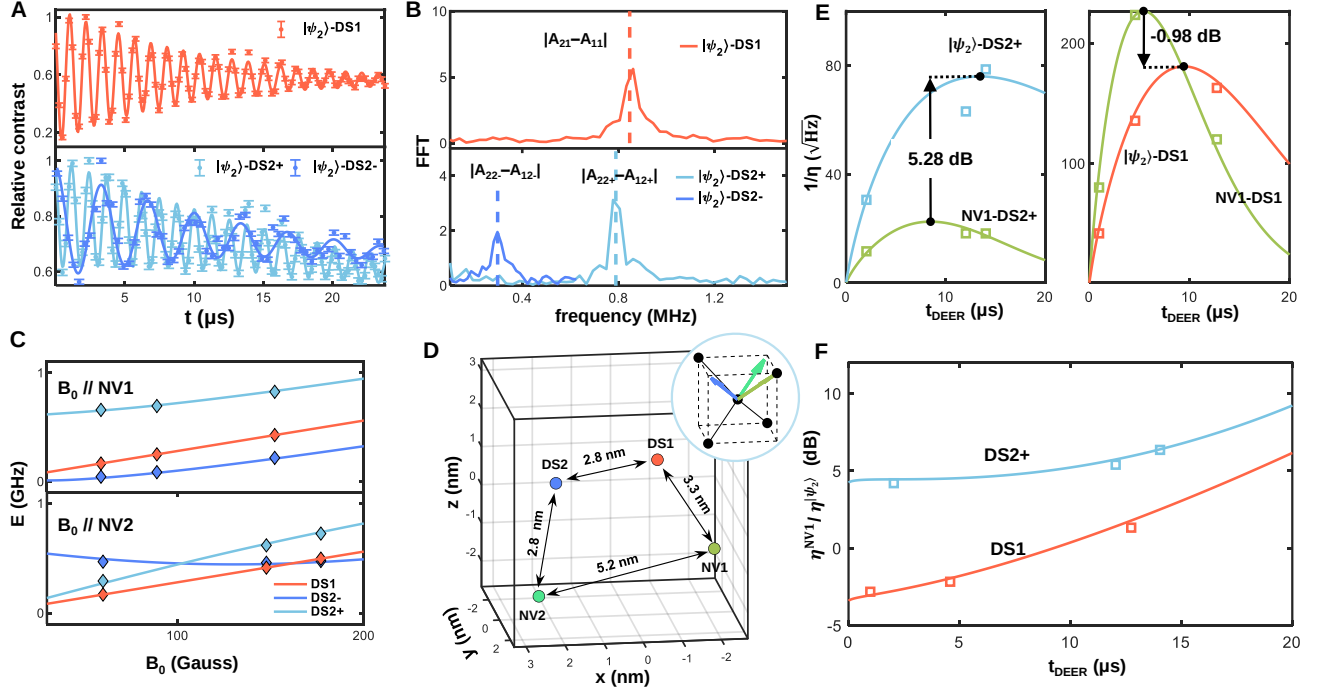


图 3. 稳定的暗自旋成像通过量子纠缠增强检测灵敏度。A. 相干相位演化在 $|\psi_2\rangle$ 中通过耦合到单个暗自旋。振荡频率取决于特定的耦合强度。较短的相关时间（顶部）比检测 DS2（底部）是因为同时反转钻石表面的自旋-1/2 浴中自旋，在检测 DS1 时。B. 对应于 A 中信号快速傅里叶变换 (FFT)。虚线表示根据 D 的空间映射结果计算的两个 NV 中心和目标自旋之间的耦合差异。 $|\psi_2\rangle$ 增强了 DS2 的耦合强度，同时减弱了 DS1 的耦合强度。C. 自旋数和哈密顿量通过在不同外部磁场下的基于 $|\psi_2\rangle$ 的暗自旋光谱学的识别。实线是计算得到的自旋-1/2（红色）和自旋-1（蓝色和浅蓝色）的共振频率（见补充信息）。D. 利用偶极-偶极相互作用对外部磁场的依赖性（扩展数据）进行暗自旋成像，如 B 所示，以及在 C 中的自旋特性。右上方的子图显示了 NV1、NV2 和 DS2 确定的主要轴方向。E. 通过 $|\psi_2\rangle$ 进行检测 DS1 和 DS2 的灵敏度分析。左侧和右侧的图描绘了暗自旋 DS2+ 和 DS1 的互易灵敏度 ($1/\eta$)（参见方法部分）。 $|\psi_2\rangle$ 达到了最优灵敏度，在检测 DS2+ 时比 NV1 单个自旋性能高出 5.28 dB，而在检测 DS1 时则显示出 -0.98 dB 的灵敏度下降。正方形（实线）代表实验结果（预测值）。F. 比较了纠缠态传感器与 NV1 在相同传感时间 t_{DEER} 下的灵敏度增益。

这对而言上方约 11 纳米处）和切换动力学表明此自旋位于界面电荷捕获层 [43] 内，其中局部电气环境可能驱动其亚稳态行为。

亚稳自旋在量子传感应用中扮演着双重角色，既作为敏感的纳米探针又可能成为噪声源。这些动态自旋系统促进了快速化学过程 [44, 45] 和界面电荷捕获动力学 [46] 的研究，在这里我们的纠缠协议可以增强耦合强度，从而减少对快速采样的检测时间。然而，它们同时也引入了显著的退相干通道（图 4B），这会降低检测稳定目标自旋的灵敏度。为了解决这个问题，我们设计了纠缠态 $|\phi\rangle_{\text{DQ}} = (|\downarrow, \uparrow\rangle - i|\uparrow, \downarrow\rangle)/\sqrt{2}$ ，通过将相干时间从单独使用 DS1 时的 $6\mu\text{s}$ 延长到 $15\mu\text{s}$ ，展示了出色的抗噪声能力。这种 2.5 倍的改进源于增强的耦合抵消，因为在 $|\phi\rangle_{\text{DQ}}$ 中 NV1-亚稳态自旋耦合翻倍，接近 DS1 与目标在相对较短距离下

的耦合强度（图 4A 插图）。这种双重功能为研究静态和动态自旋物种共存的复杂量子系统提供了新的途径。

讨论与展望

各种原子和分子系统作为纳米级量子传感器的出现，为结构分析和微观研究提供了前所未有的精度和空间分辨率的工具集。本工作展示了一种通用且可扩展的方法，通过利用现实噪声环境中的量子纠缠来增强纳米级传感能力。我们工作的核心成就在于开发了一个稳健的框架，在充分利用量子纠缠优势的同时有效应对了其基本挑战。通过对量子传感器阵列进行专门设计以形成大规模纠缠系统，并结合高保真度的量子控制和读取协议，我们的方法将纳米级量子传感推向了其物理极限。

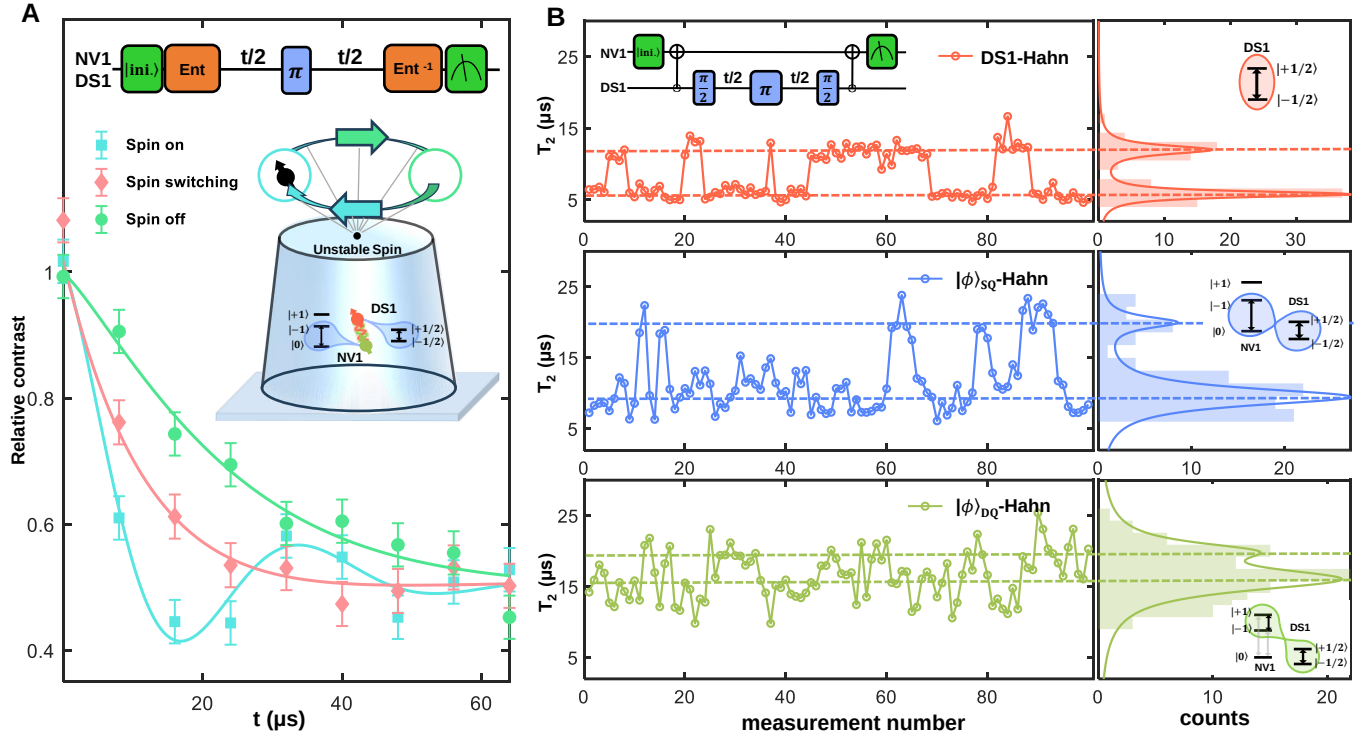


图 4. 不稳定暗自旋检测使用纠缠传感器。A. 使用 NV1-DS1-纠缠态在三种状态下检测不稳定暗自旋的三个典型结果 $|\phi\rangle_{\text{SQ}}$ 。状态-1 (自旋开启): 自旋在整个 DEER 测量过程中保持稳定, 并引起清晰的振荡特征 (方块)。状态-2 (自旋关闭): 自旋在测量过程中消失, 导致纯衰减 (圆形), 其退相干率与状态-1 相同。状态-3 (自旋切换): 自旋在测量期间在两种自旋态之间切换, 引起额外的退相干 (菱形)。每个实验点花费 180 秒的测量时间。实线代表拟合曲线。DS1 和界面暗自旋共享嵌入序列中的同一 π 脉冲。B. 实时 T_2 轨迹 (左) 及其统计 (右) 对应三种不同的自旋状态: $\frac{1}{\sqrt{2}}(|\downarrow\rangle + |\uparrow\rangle)_{\text{DS1}}$, $|\phi\rangle_{\text{SQ}}$ 和 $|\phi\rangle_{\text{DQ}}$ 。

这项技术的另一个直接应用是将纠缠量子传感器开发成功能性的扫描探针系统, 能够确定性地在优化位置定位样品。这一进步将显著提升各种纳米级量子传感应用中的测量精度和操作可靠性。

方法

金刚石样品制备

实验中使用的金刚石基底是一块厚度为 50 μm 的 (100) 取向金刚石, 其上生长着同位素富集 (99.999% ^{12}C) 的外延层。钻石柱中的 NV 对是通过自对准图案化技术制造的, 在 PMMA 层中半径为 15 纳米的掩模孔将 NVs 限制在靠近中心区域的钻石柱内。这些 NV 中心是由植入 15 千电子伏特 $^{15}\text{N}^+$ 离子产生的, 离子剂量被控制以确保每个掩模孔大约植入了 10 个离子。

空间分辨率

我们的基于 NV 中心的量子传感器的空间分辨率从根本上由其对面暗电子自旋的有效感应区域决定, 遵循已建立的有效感应体积方法 [30]。对于通过偶极耦合相互作用的密集表面自旋层 $A_{\text{eff},i}$, 我们首先按它们的耦合强度降序为所有自旋编号 $A_{\text{eff},1} \geq A_{\text{eff},2} \geq \dots$ 。累计信号贡献量化为 $S(N) = \sqrt{\sum_{i=1}^N A_{\text{eff},i}^2}$, 从中我们将有效传感区域定义为空间范围, 该范围内包含最少数量的自旋 (N_{eff}), 这些自旋贡献了总可检测信号 $S(N = N_{\text{eff}})/S(N = \text{inf}) = 70\%$ 的 70%。此区域内单个自旋可以有效地与其他自旋区分开。

自旋检测灵敏度

我们通过偶极-偶极相互作用量化目标自旋检测的灵敏度, 将这些相互作用视为一个有效的磁场。对于具有传

感时间 ($t = t_{\text{DEER}}$) 的 DEER 检测序列, 灵敏度可以表示为 [22]

$$\eta = \frac{1}{\pi A_{\text{eff}} \sqrt{\tau} e^{-(t_{\text{DEER}}/T_2)^p}} \sqrt{1 + \frac{1}{C^2 n_{\text{avg}}}} \sqrt{1 + \frac{t_{\text{ext}}}{t_{\text{DEER}}}}$$

, 其中 T_2 是相干时间和 p 是描述局部自旋环境的拉伸指数参数。 n_{avg} 表示每个读出的平均光子计数 (实验确定为单个 NV 中心的 $n_{\text{avg}} = 0.12$ 对于 $|\psi_2\rangle$ 和 $n_{\text{avg}} = 0.06$), C 是测量对比度。此外, 光学初始化时间、读出时间和其他外部时间由 $t_{\text{ext}} = t_I + t_R + t_{\text{other}}$ 表示。完整的实验参数和详细推导见补充信息。

自旋定位

目标自旋的空间定位是通过精确表征它们的磁偶极相互作用实现的。对于自旋-1/2 系统 (例如 DS1), 偶极矩直接与外部磁场 B_{ext} 对齐。然而, 对于自旋-1 系统 (NV1, NV2, DS2), 偶极方向由其内在各向异性轴与 B_{ext} 之间的相互作用决定。鉴于它们主轴取向的不同, 我们首先定义每个自旋主坐标系中的偶极矩 ($[D_i^x, D_i^y, D_i^z]$),

$$\Phi_j^i = \langle \phi_j^i | S_x | \phi_j^i \rangle D_i^x + \langle \phi_j^i | S_y | \phi_j^i \rangle D_i^y + \langle \phi_j^i | S_z | \phi_j^i \rangle D_i^z$$

, 其中 ϕ_j^i 表示在 B_{ext} 下自旋哈密顿量的第 j 个本征态。对于耦合自旋-1 对, 状态 $\Phi_{j_1}^i$ 和 $\Phi_{j_2}^i$ 之间的相互作用强度遵循偶极耦合公式

$$\nu_{j_1, j_2} \propto \frac{a}{r^3} \left[\Phi_{j_1}^i \Phi_{j_2}^i - 3 \frac{(\Phi_{j_1}^i \cdot \mathbf{r})(\Phi_{j_2}^i \cdot \mathbf{r})}{r^2} \right].$$

实验可测量的过渡 $\Phi_{j_1}^i \rightarrow \Phi_{j_1'}^i$ (传感器) 和 $\Phi_{j_2}^i \rightarrow \Phi_{j_2'}^i$ (目标) 的耦合强度是

$$A_{j_1 \rightarrow j_1', j_2 \rightarrow j_2'} = (\nu_{j_1, j_2} - \nu_{j_1, j_2'}) - (\nu_{j_1', j_2} - \nu_{j_1', j_2'}).$$

定位方法涉及: (1) 在不同的 B_{ext} 下测量耦合强度; (2) 数值搜索能最好再现所有观测到的耦合的位置向量 $\mathbf{r}$; (3) 确定来自多个场取向的解的交集。

致谢

资助: 本工作得到了国家自然科学基金 (批准号 T2325023, T2388102, 92265204, 12104446, 12104447 和 12261160569) 和量子科学与技术创新计划 (批准号 2021ZD0302200) 的支持。

作者贡献: Y.W. 提出了想法。Y.W.、M.W. 和 X.Z. 设计了实验。M.W. 和 X.Y. 准备了样品。X.Z.、Y.G.、H.S.、Z.C. 和 W.J. 进行了实验并分析了数据。Y.W.、X.Z.、M.W.、K.X.、F.S. 和 J.D. 撰写了论文。所有作者讨论了结果并对论文进行了评论。J.D. 和 Y.W. 监督了项目。

利益冲突: 作者声明他们没有利益冲突。

数据和材料可获得性: 评估论文结论所需的所有数据均包含在论文和/或补充材料中。

-
- [1] J. Du, F. Shi, X. Kong, F. Jelezko, and J. Wrachtrup, Single-molecule scale magnetic resonance spectroscopy using quantum diamond sensors, *Rev. Mod. Phys.* **96**, 025001 (2024).
 - [2] J. M. Boss, K. S. Cujia, J. Zopes, and C. L. Degen, Quantum sensing with arbitrary frequency resolution, *Science* **356**, 837 (2017).
 - [3] S. Schmitt, T. Gefen, F. M. Stürner, T. Uden, G. Wolff, C. Müller, J. Scheuer, B. Naydenov, M. Markham, S. Pezzagna, J. Meijer, I. Schwarz, M. Plenio, A. Retzker, L. P. McGuinness, and F. Jelezko, Submillihertz magnetic spectroscopy performed with a nanoscale quantum sensor, *Science* **356**, 832 (2017).
 - [4] N. Aslam, M. Pfender, P. Neumann, R. Reuter, A. Zappe, F. Fávoro de Oliveira, A. Denisenko, H. Sumiya, S. Onoda, J. Isoya, and J. Wrachtrup, Nanoscale nuclear magnetic resonance with chemical resolution, *Science* **357**, 67 (2017).
 - [5] F. Casola, T. van der Sar, and A. Yacoby, Probing condensed matter physics with magnetometry based on nitrogen-vacancy centres in diamond, *Nature Reviews Materials* **3**, 10.1038/natrevmats.2017.88 (2018).
 - [6] M. H. Abobeih, J. Randall, C. E. Bradley, H. P. Bartling, M. A. Bakker, M. J. Degen, M. Markham, D. J. Twitchen, and T. H. Taminiau, Atomic-scale imaging of a 27-nuclear-spin cluster using a quantum sensor, *Nature* **576**, 411 (2019).
 - [7] T. Song, Q. C. Sun, E. Anderson, C. Wang, J. Qian, T. Taniguchi, K. Watanabe, M. A. McGuire, R. Stohr, D. Xiao, T. Cao, J. Wrachtrup, and X. Xu, Direct visualization of magnetic domains and moiré magnetism in twisted 2d magnets, *Science* **374**, 1140 (2021).
 - [8] M. Borst, P. H. Vree, A. Lowther, A. Teepe, S. Kurdi, I. Bertelli, B. G. Simon, Y. M. Blanter, and T. van der Sar, Observation and control of hybrid spin-wave-meissner-current transport modes, *Science* **382**, 430 (2023).

- [9] W. T. Ji, Z. X. Liu, Y. H. Guo, Z. H. Hu, J. Y. Zhou, S. H. Dai, Y. Chen, P. Yu, M. Q. Wang, K. W. Xia, F. Z. Shi, Y. Wang, and J. F. Du, Correlated sensing with a solid-state quantum multisensor system for atomic-scale structural analysis, *Nature Photonics* **18**, [10.1038/s41566-023-01352-4](#) (2024).
- [10] J. Rovny, S. Gopalakrishnan, A. C. B. Jayich, P. Maletinsky, E. Demler, and N. P. de Leon, Nanoscale diamond quantum sensors for many-body physics, *Nature Reviews Physics* **6**, 753 (2024).
- [11] T. I. Andersen, B. L. Dwyer, J. D. Sanchez-Yamagishi, J. F. Rodriguez-Nieva, K. Agarwal, K. Watanabe, T. Taniguchi, E. A. Demler, P. Kim, H. Park, and M. D. Lukin, Electron-phonon instability in graphene revealed by global and local noise probes, *Science* **364**, 154 (2019).
- [12] C. Zu, F. Machado, B. Ye, S. Choi, B. Kobrin, T. Mittiga, S. Hsieh, P. Bhattacharyya, M. Markham, D. Twitchen, A. Jarmola, D. Budker, C. R. Laumann, J. E. Moore, and N. Y. Yao, Emergent hydrodynamics in a strongly interacting dipolar spin ensemble, *Nature* **597**, 45 (2021).
- [13] S. Kolkowitz, A. Safira, A. A. High, R. C. Devlin, S. Choi, Q. P. Unterreithmeier, D. Patterson, A. S. Zibrov, V. E. Manucharyan, H. Park, and M. D. Lukin, Quantum electronics. probing johnson noise and ballistic transport in normal metals with a single-spin qubit, *Science* **347**, 1129 (2015).
- [14] M. J. H. Ku, T. X. Zhou, Q. Li, Y. J. Shin, J. K. Shi, C. Burch, L. E. Anderson, A. T. Pierce, Y. Xie, A. Hamo, U. Vool, H. Zhang, F. Casola, T. Taniguchi, K. Watanabe, M. M. Fogler, P. Kim, A. Yacoby, and R. L. Walsworth, Imaging viscous flow of the dirac fluid in graphene, *Nature* **583**, 537 (2020).
- [15] J. A. Jones, S. D. Karlen, J. Fitzsimons, A. Ardavan, S. C. Benjamin, G. A. D. Briggs, and J. J. L. Morton, Magnetic field sensing beyond the standard quantum limit using 10-spin noon states, *Science* **324**, 1166 – 1168 (2009).
- [16] O. Hosten, N. J. Engelsens, R. Krishnakumar, and M. A. Kasevich, Measurement noise 100 times lower than the quantum-projection limit using entangled atoms, *Nature* **529**, 505 (2016).
- [17] T. Xie, Z. Zhao, X. Kong, W. Ma, M. Wang, X. Ye, P. Yu, Z. Yang, S. Xu, P. Wang, Y. Wang, F. Shi, and J. Du, Beating the standard quantum limit under ambient conditions with solid-state spins, *Science Advances* **7**, [10.1126/sciadv.abg9204](#) (2021).
- [18] C. D. Marciniak, T. Feldker, I. Pogorelov, R. Kaubruegger, D. V. Vasilyev, R. Van Bijnen, P. Schindler, P. Zoller, R. Blatt, and T. Monz, Optimal metrology with programmable quantum sensors, *Nature* **603**, 604 (2022).
- [19] Y. Romach, C. Muller, T. Uden, L. J. Rogers, T. Isoda, K. M. Itoh, M. Markham, A. Stacey, J. Meijer, S. Pezzagna, B. Naydenov, L. P. McGuinness, N. Bar-Gill, and F. Jelezko, Spectroscopy of surface-induced noise using shallow spins in diamond, *Phys Rev Lett* **114**, 017601 (2015).
- [20] T. Rosskopf, A. Dussaux, K. Ohashi, M. Loretz, R. Schirhagl, H. Watanabe, S. Shikata, K. M. Itoh, and C. L. Degen, Investigation of surface magnetic noise by shallow spins in diamond, *Phys Rev Lett* **112**, 147602 (2014).
- [21] B. A. Myers, A. Das, M. C. Dartiaillh, K. Ohno, D. D. Awschalom, and A. C. Bleszynski Jayich, Probing surface noise with depth-calibrated spins in diamond, *Phys Rev Lett* **113**, 027602 (2014).
- [22] J. F. Barry, J. M. Schloss, E. Bauch, M. J. Turner, C. A. Hart, L. M. Pham, and R. L. Walsworth, Sensitivity optimization for nv-diamond magnetometry, *Reviews of Modern Physics* **92**, [10.1103/revmodphys.92.015004](#) (2020).
- [23] A. Cooper, W. K. C. Sun, J.-C. Jaskula, and P. Cappellaro, Environment-assisted quantum-enhanced sensing with electronic spins in diamond, *Physical Review Applied* **12**, [10.1103/physrevapplied.12.044047](#) (2019).
- [24] W. F. Koehl, B. B. Buckley, F. J. Heremans, G. Calusine, and D. D. Awschalom, Room temperature coherent control of defect spin qubits in silicon carbide, *Nature* **479**, 84 (2011).
- [25] C. Babin, R. Stöhr, N. Morioka, T. Linkewitz, T. Steidl, R. Wörnle, D. Liu, E. Hesselmeier, V. Vorobyov, A. Denisenko, M. Hentschel, C. Gobert, P. Berwian, G. V. Astakhov, W. Knolle, S. Majety, P. Saha, M. Radulaski, N. T. Son, J. Ul-Hassan, F. Kaiser, and J. Wrachtrup, Fabrication and nanophotonic waveguide integration of silicon carbide colour centres with preserved spin-optical coherence, *Nature Materials* **21**, 67 (2022).
- [26] T. Esat, D. Borodin, J. Oh, A. J. Heinrich, F. S. Tautz, Y. Bae, and R. Temirov, A quantum sensor for atomic-scale electric and magnetic fields, *Nature Nanotechnology* **19**, 1466 (2024).
- [27] G. Balasubramanian, I. Y. Chan, R. Kolesov, M. Al-Hmoud, J. Tisler, C. Shin, C. Kim, A. Wojcik, P. R. Hemmer, A. Krueger, T. Hanke, A. Leitenstorfer, R. Bratschkitsch, F. Jelezko, and J. Wrachtrup, Nanoscale imaging magnetometry with diamond spins under ambient conditions, *Nature* **455**, 648 – 651 (2008).
- [28] J. R. Maze, P. L. Stanwix, J. S. Hodges, S. Hong, J. M.

- Taylor, P. Cappellaro, L. Jiang, M. V. G. Dutt, E. Togan, A. S. Zibrov, A. Yacoby, R. L. Walsworth, and M. D. Lukin, Nanoscale magnetic sensing with an individual electronic spin in diamond, *Nature* **455**, 644 – 647 (2008).
- [29] N. Zhao, J. Honert, B. Schmid, M. Klas, J. Isoya, M. Markham, D. Twitchen, F. Jelezko, R. B. Liu, H. Fedder, and J. Wrachtrup, Sensing single remote nuclear spins, *Nat Nanotechnol* **7**, 657 (2012).
- [30] T. Staudacher, F. Shi, S. Pezzagna, J. Meijer, J. Du, C. A. Meriles, F. Reinhard, and J. Wrachtrup, Nuclear magnetic resonance spectroscopy on a (5-nanometer) 3 sample volume, *Science* **339**, 561 – 563 (2013).
- [31] D. Rugar, H. J. Mamin, M. H. Sherwood, M. Kim, C. T. Rettner, K. Ohno, and D. D. Awschalom, Proton magnetic resonance imaging using a nitrogen – vacancy spin sensor, *Nature Nanotechnology* **10**, 120 – 124 (2014).
- [32] F. Shi, Q. Zhang, P. Wang, H. Sun, J. Wang, X. Rong, M. Chen, C. Ju, F. Reinhard, H. Chen, J. Wrachtrup, J. Wang, and J. Du, Single-protein spin resonance spectroscopy under ambient conditions, *Science* **347**, 1135 – 1138 (2015).
- [33] A. O. Sushkov, N. Chisholm, I. Lovchinsky, M. Kubo, P. K. Lo, S. D. Bennett, D. Hunger, A. Akimov, R. L. Walsworth, H. Park, and M. D. Lukin, All-optical sensing of a single-molecule electron spin, *Nano Letters* **14**, 6443 – 6448 (2014).
- [34] G. Kucsko, P. C. Maurer, N. Y. Yao, M. Kubo, H. J. Noh, P. K. Lo, H. Park, and M. D. Lukin, Nanometre-scale thermometry in a living cell, *Nature* **500**, 54 – 58 (2013).
- [35] C. L. Degen, F. Reinhard, and P. Cappellaro, Quantum sensing, *Reviews of Modern Physics* **89**, 10.1103/revmodphys.89.035002 (2017).
- [36] M. Wang, Y. Wang, Z. Liu, G. Xu, B. Yang, P. Yu, H. Sun, X. Ye, J. Zhou, A. F. Goncharov, Y. Wang, and J. Du, Imaging magnetic transition of magnetite to megabar pressures using quantum sensors in diamond anvil cell, *Nat Commun* **15**, 8843 (2024).
- [37] M. Guo, M. Wang, P. Wang, D. Wu, X. Ye, P. Yu, Y. Huang, F. Shi, Y. Wang, and J. Du, A flexible nitrogen-vacancy center probe for scanning magnetometry, *Review of Scientific Instruments* **92**, 055001 (2021).
- [38] S. Han, X. Ye, X. Zhou, Z. Liu, Y. Guo, M. Wang, W. Ji, Y. Wang, and J. Du, Solid-state spin coherence time approaching the physical limit, *Science Advances* **11**, 10.1126/sciadv.adr9298 (2025).
- [39] M. Wang, H. Sun, X. Ye, P. Yu, H. Liu, J. Zhou, P. Wang, F. Shi, Y. Wang, and J. Du, Self-aligned patterning technique for fabricating high-performance diamond sensor arrays with nanoscale precision, *Science Advances* **8**, 10.1126/sciadv.abn9573 (2022).
- [40] F. Dolde, I. Jakobi, B. Naydenov, N. Zhao, S. Pezzagna, C. Trautmann, J. Meijer, P. Neumann, F. Jelezko, and J. Wrachtrup, Room-temperature entanglement between single defect spins in diamond, *Nature Physics* **9**, 139 (2013).
- [41] A. O. Sushkov, I. Lovchinsky, N. Chisholm, R. L. Walsworth, H. Park, and M. D. Lukin, Magnetic resonance detection of individual proton spins using quantum reporters, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 197601 (2014).
- [42] A. Ungar, P. Cappellaro, A. Cooper, and W. K. C. Sun, Control of an environmental spin defect beyond the coherence limit of a central spin, *PRX Quantum* **5**, 10.1103/prxquantum.5.010321 (2024).
- [43] A. Stacey, N. Dontschuk, J. Chou, D. A. Broadway, A. K. Schenk, M. J. Sear, J. Tetienne, A. Hoffman, S. Prawer, C. I. Pakes, A. Tadich, N. P. De Leon, A. Gali, and L. C. L. Hollenberg, Evidence for primal sp^2 defects at the diamond surface: Candidates for electron trapping and noise sources, *Advanced Materials Interfaces* **6**, 1801449 (2019).
- [44] H. Murai, Spin-chemical approach to photochemistry: reaction control by spin quantum operation, *Journal of Photochemistry and Photobiology C: Photochemistry Reviews* **3**, 183 – 201 (2003).
- [45] Z. Huang, Z. Zhao, F. Kong, Z. Wang, P. Zhao, X. Gong, X. Ye, Y. Wang, F. Shi, and J. Du, Parallel accelerated electron paramagnetic resonance spectroscopy using diamond sensors, *Physical Review Letters* **134**, 10.1103/physrevlett.134.130801 (2025).
- [46] D. Bluvstein, Z. R. Zhang, and A. C. B. Jayich, Identifying and mitigating charge instabilities in shallow diamond nitrogen-vacancy centers, *Physical Review Letters* **122**, 10.1103/PhysRevLett.122.076101 (2019).