

纳米钻石量子热学辅助机器学习

Kouki Yamamoto,^{1, a)} Kensuke Ogawa,¹ Moeta Tsukamoto,¹ Yuto Ashida,^{1, 2} Kento Sasaki,¹ and Kensuke Kobayashi^{1, 2, 3}

¹⁾Department of Physics, The University of Tokyo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0033, Japan

²⁾Institute for Physics of Intelligence, The University of Tokyo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0033, Japan

³⁾Trans-Scale Quantum Science Institute, The University of Tokyo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0033, Japan

(10Dated: 2025 年 4 月 14 日)

纳米钻石 (NDs) 是量子传感器, 能够进行局部温度测量, 利用了其小巧的尺寸。虽然基于模型的分析方法已被用于 ND 量子热计量学, 但它们的准确性尚未得到彻底研究。在这里, 我们应用无模型机器学习和高斯过程回归 (GPR) 到 ND 量子热计量学, 并将其能力与现有方法进行比较。我们证明 GPR 即使在数据点数量较少且不论数据采集方法如何的情况下, 也能提供比它们更稳健的结果。这项研究扩展了带有机器学习的 ND 量子热计量学的应用范围。

这是发表在应用物理速报的接受稿件版本。IOP Publishing Ltd 对此稿件版本或从其衍生的任何版本中的任何错误或遗漏不承担责任。这份接受稿件是在 CC BY 许可证下发布的。记录版本在线可用地址为 <https://doi.org/10.35848/1882-0786/adac2a>。

金刚石氮-空位 (NV) 中心是由一个氮原子和相邻的空位组成的一个点缺陷, 带有电子自旋 $S = 1$ 。NV 中心是一种原子尺寸的传感器, 可以测量诸如温度¹⁻¹¹、磁场¹²⁻¹⁶、电场¹⁷和压力¹⁸⁻²⁰等局部物理量。特别是, 使用 NV 中心进行测温预计在从生命科学到凝聚态物理学的各种领域中具有价值。例如, 通过将纳米金刚石 (NDs) 注入细胞或微生物内部, 观察到了其内部的温度变化^{3,7-9}, 并且通过将 NDs 散布于目标材料上检测到了热源的热扩散^{4,10,11}。因此, NV 中心进行局部测温为纳米科学和纳米技术提供了一个独特的机遇。

电子自旋共振可以通过测量在激光和微波照射下的光致发光 (PL) 强度来检测, 即所谓的光学检测磁共振 (ODMR)¹³。我们可以通过从 ODMR 谱估计 NV 中心的温度依赖零场分裂 (ZFS)²¹ 来测量温度。使用 NV 中心进行温度测量时需要格外小心。由于金刚石具有较高的热导率, 体金刚石在测量温度分布时具有侵入性²²。相比之下, NDs 的集合体, 即 5–200 nm 尺寸的金金刚石晶体²³, 其热导率低于体金刚石²²。因此, NDs 更适合局部温度测量。

ND 量子热测量分析的准确性需要明确。由于 NDs

的晶体取向分布在各个方向²⁴, 因此难以准确分析 NDs 的 ODMR 光谱。仅测量 ODMR 光谱中四个频率的 4 点法^{3,6}已成功应用于快速热测量。然而, 在这种情况下必须仔细考虑准确性。此外, 拟合方法被广泛使用, 该方法通过双洛伦兹函数拟合 ODMR 光谱, 但这些拟合需要更加一致^{6,25}。另外, 在磁场中, 光谱以复杂的方式扩散, 使得用这些方法进行分析更具挑战性²⁴。

在本研究中, 我们探讨了高斯过程回归 (GPR)^{26,27}, 一种机器学习方法, 在 ND 量子温度计中的适用性。我们将传统的 4 点法和拟合方法以及 GPR 方法应用于光谱分析。为了检验数据分析的稳健性, 我们调查了每种方法对 ODMR 光谱中分析数据点数量和选择的依赖性。我们展示了 GPR 方法比现有方法提供了更稳健准确的温度测量。

我们首先在一个精确控温的设置中获取了完整的 ODMR 光谱数据集, 然后使用三种方法分析结果, 即 4 点法、拟合法和 GPR 方法。图 1(a) 显示了我们的设置。NDs 的颗粒尺寸为 100 nm。NDs 被薄薄地铺在一块 100 μm 厚的铜板上¹¹。铜板放置在一个低温恒温器中的样品台上, 温度稳定性优于 10 mK[图 1(b)]。铜板和 NDs 与样品台之间使用导热膏保持足够的热接触。我们假设 NDs 的温度与嵌入样品台内的校准温度计读数相同。我们将这个值定义为“真实”温度 T_{true} 。

^{a)}Electronic mail: kouki.yamamoto@phys.s.u-tokyo.ac.jp

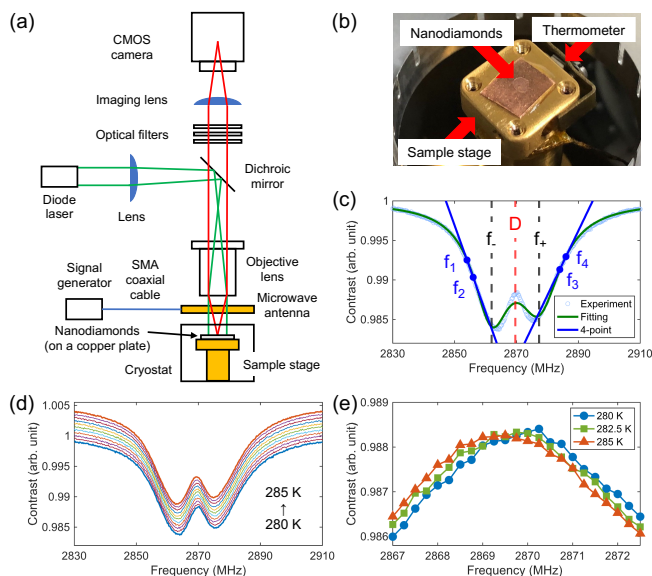


图 1. (a) 实验装置的概述。(b) 样品台的视图。NDs 分布在铜板上。(c) 4 点法和拟合方法的概述。浅蓝色开放圆圈表示实验数据。绿色线条是使用双洛伦兹函数拟合的结果。四个填充的蓝圆和蓝色线代表 4 点法。黑色和红色虚线分别代表通过用双洛伦兹拟合 ODMR 光谱获得的共振频率 $f_{\pm}$ 和 ZFS 值 D 。(d) 从 280 K 到 285 K 以 0.5 K 为增量的 ODMR 光谱。最下面和最上面的线条分别代表在 280 K 和 285 K 时的光谱。为了便于观察，每个光谱都进行了垂直增量移动。(e) 图 1(d) 中 280 K、282.5 K 和 285 K 时 ODMR 光谱中心 (2870 MHz) 附近的放大图。

一个光学窗口安装在低温恒温器顶部，直接位于样品台上部，通过该窗口测量来自 NDs 的发射光。一个谐振器微波天线²⁸直接放置在光学窗口上方，对 NDs 进行磁共振²⁹。

我们获得了从 280 K 到 285 K 共 11 个不同温度下的 NDs 的 ODMR 光谱 (即温度点 $N = 11$)。在获取 ODMR 光谱时，微波频率以 321 个等间距点从 2830 MHz 扫描至 2910 MHz。我们随机选择每个扫描的频率点以抑制由于微波天线特性引起的频率相关加热²⁹。我们将 100 次扫描中 PL 强度积分的结果作为单个 ODMR 光谱数据。一个典型的单个 ODMR 光谱结果如图 1(c) 所示。每个温度下的两个 ODMR 光谱数据被获取。接下来，第一个数据将被称为数据#1，第二个称为数据#2。这些数据集将在稍后的精度评估中使用。

图 1(d) 显示了所有温度条件下的 ODMR 光谱，而图 1(e) 是 280 K、282.5 K 和 285 K 下数据的放大视

图。ODMR 光谱的中心随温度升高向较低频率偏移。

该偏移对应于 ZFS 随温度的变化^{1,2}。四点和拟合方法使用 ZFS 和温度之间的线性关系。例如，在室温附近，ZFS 值 D 与温度 T 线性相关，比例系数为 $\alpha \equiv dD/dT \sim -74 \text{ kHz/K}^1$ 。一旦在单一参考温度 T_0 和系数 α 校准后，特定温度 T 的 ZFS 可以表示如下：

$$D(T) = \alpha(T - T_0) + D(T_0). \quad (1)$$

温度可以直接根据方程 (1) 从 ZFS 得出。请注意，系数 α 随着温度区域²的不同而变化。因此，为了避免传统方法假设线性所带来的缺点，在一个狭窄的温度范围内 (从 280 K 到 285 K) 进行了实验。

另一方面，GPR 方法通过学习 ODMR 光谱与温度之间的关系来估计温度，包括 ZFS 信息 (详见“补充材料”中的“高斯过程回归 (GPR)”部分)。在先前的研究中，我们使用 GPR 方法从显示复杂形状的磁场²⁵的 ODMR 光谱中准确地估计了磁场所值。本研究旨在验证利用 GPR 进行磁场估计的想法对于温度估计的帮助程度。

我们依赖于给定的 T_{true} 处获取的数据#1，并从数据#2 中估计每个温度下的温度 T_{est} 。我们采用上述三

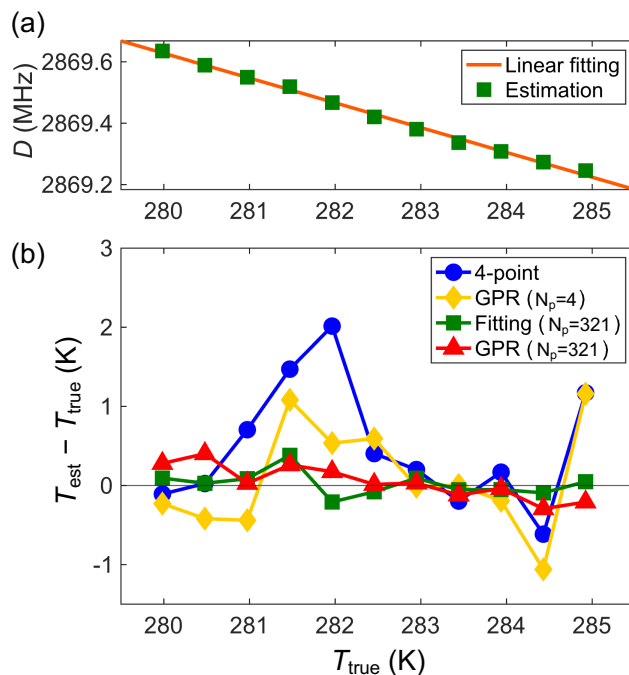


图 2. (a) 观测到的 ZFS 值 D 作为“真实”温度 T_{true} 的函数。(b) 比较了四点法、拟合方法 ($N_p = 321$) 和 GPR 方法 ($N_p = 4$ 和 $N_p = 321$) 对温度的估计。

种方法来获得 T_{est} 并比较它们的估算精度。我们使用以下均方根误差 (RMSE) 计算 11 个测量温度点 ($N = 11$) 来衡量估计的适当性:

$$\text{RMSE} = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (T_{\text{est}}^i - T_{\text{true}}^i)^2}, \quad (2)$$

其中, T_{est}^i 和 T_{true}^i 分别是第 i 组设定温度 ($i \in \{1, 2, \dots, 11\}$) 下的估算温度和真实温度。我们将数据 #1 用作四点法和拟合法的校准数据以及 GPR 方法的训练数据。数据 #2 作为测试数据以获得 RMSE (详见“补充材料”中的“估计精度评估”)。

ZFS 通过将双洛伦兹线拟合到图 1(d) 中的所有 ODMR 光谱来估计, 并显示在图 2(a) 中。ZFS 的线性在整个本研究测试的温度范围内得到了很好的保持。线性拟合提供了系数 $\alpha = -80.8 \pm 1.8 \text{ kHz/K}$ (误差是拟合误差, 误差范围设置为 1σ)。这与文献值^{1,6,24}一致。

实现准确性以适应少量实验数据点对于实际应用至关重要。为此, 我们通过改变分析数据点的数量 N_p 来检验每种方法的准确性。在更改 N_p 时, 除了 $N_p = 4$ 外, 我们从整个测量频率范围内采用等间隔的频率点。仅对于 $N_p = 4$, 采用与 4 点法相同的四个点, 并且除非另有说明, 它们的频率为 2854 MHz、2856 MHz、2884 MHz 和 2886 MHz。

图 2 (b) 显示了 T_{est} 和 T_{true} 之间的差异。使用四点法中的数据 #2 推导 T_{est} 的参考温度是 279.89 K。四点法的结果在温度变化时显示出急剧的波动。GPR ($N_p = 4$) 结果也显示了波动, 但程度小于四点法。另一方面, 拟合 ($N_p = 321$) 和 GPR ($N_p = 321$) 方法提供的温度估计结果一致, 与 T_{true} 相符。关于鲁棒性, 拟合 ($N_p = 321$) 和 GPR ($N_p = 321$) 方法优于四点法, 这是意料之中的, 因为 N_p 较大。然而, 目前的结果表明, 即使对于 $N_p = 4$, GPR 也有优势。我们将在后面证明这不是巧合。

更具体地说, 图 3(a) 比较了在变化 N_p 时每种方法的均方根误差。拟合方法对于 $N_p = 4$ 和 $N_p = 11$ 并不适用, 因此这里没有展示它们。结果表明, GPR 方法可以从较小的 N_p 到较大的 N_p 稳健地估计温度。 N_p 越大, 均方根误差越小。GPR 方法允许即使在小 N_p 情况下进行分析, 并且在有大量 N_p 的情况下, 高效利用数据以提高准确性。这一事实符合我们对稳健分析

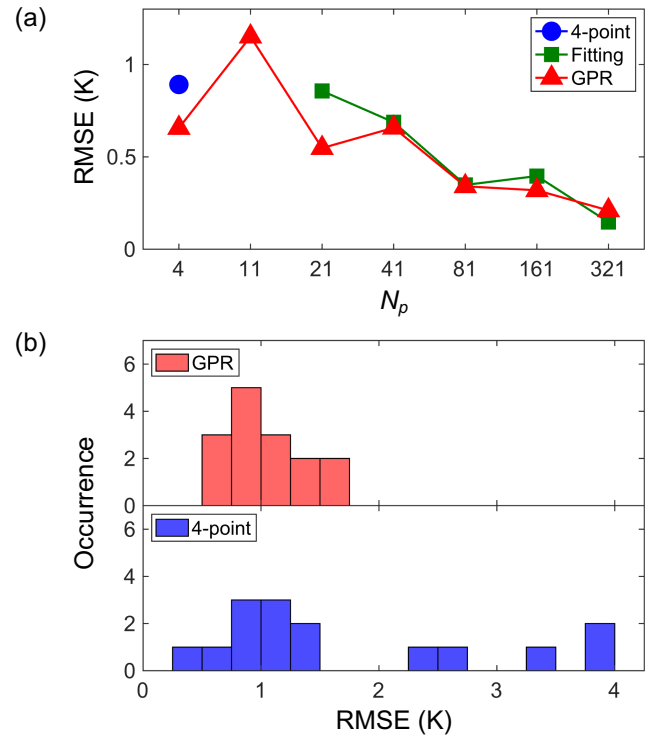


图 3. (a) 当 N_p 变化时, 每种方法的 RMSE 对比。(b) 上下两个面板分别计算了 GPR 和 4 点法结果的 RMSE 直方图。

方法的朴素需求。另一方面, 拟合方法需要足够的 N_p 用于估计。此外, 在分析过程中已经明显地发现, 拟合方法的 RMSE 对拟合参数的初始值非常敏感。

比较 4 点法和 GPR 方法的细节是很有趣的。使用较少数据点的分析方法在实验上更有优势。然而, 4 点法在选取四个点的方式上是任意的, 其准确性可能取决于选择方式。对于 4 点法, 需要谱线斜率区域中的四个特定点, 这些点的选择有很多选项。因此, 我们选择了四个点 (高频和低频侧各两个点), 位于距离 2870 MHz 左右 10 MHz 到 20 MHz 斜率区间的区域内。将频率分辨率设置为 2 MHz 时, 可选的四个点被限制在了 15 种模式中, 如表 I 所示。计算这 15 种模式下的 RMSE (参见表 I)。在 4 点法中, 方程 (1) 中的比例系数 α 从数据 #1 计算得出, 并用于确定每个不同的四个点的 RMSE。

图 3(b) 展示了 4 点法和 GPR 方法计算的 15 个 RMSE 值的直方图。GPR 方法的 RMSE 值分布在较窄的范围内, 而 4 点法的 RMSE 值则分布在一个较宽的范围。这表明 4 点法的准确性对所选四个点的选择非常敏感。相比之下, GPR 方法更为稳健且较少依

Index	Frequencies -2870 (MHz)	RMSE (K)	
		GPR	4-point
1	$-20, -18, 18, 20$	1.5960	3.8031
2	$-20, -16, 16, 20$	1.2137	3.4996
3	$-20, -14, 14, 20$	1.0409	2.3711
4	$-20, -12, 12, 20$	0.8251	2.5814
5	$-20, -10, 10, 20$	1.3989	3.8989
6	$-18, -16, 16, 18$	1.5120	1.0629
7	$-18, -14, 14, 18$	0.8915	0.3540
8	$-18, -12, 12, 18$	0.8109	0.6848
9	$-18, -10, 10, 18$	1.3751	1.3421
10	$-16, -14, 14, 16$	0.6561	0.8920
11	$-16, -12, 12, 16$	0.7113	0.9174
12	$-16, -10, 10, 16$	1.2496	1.3424
13	$-14, -12, 12, 14$	0.7879	0.9265
14	$-14, -10, 10, 14$	0.9715	1.0014
15	$-12, -10, 10, 12$	0.7055	1.1040

表 I. 用于图 3(b) 分析的四个频率点的十五种模式。频率表示与 2870 兆赫兹的差异。索引 10 (以粗体书写) 用于表所示的 4 点方法结果 Figs. 2(b) 和 3(a)。

赖于数据点的选择。因此，即使当 $N_p = 4$ ，总体而言 GPR 方法比 4 点法更准确且更稳健。

4 点方法在表 I 的指标 7 中的 RMSE 值最小。值得注意的是，如果我们能够阐明如何选择这四个点以提高其准确性，那么 4 点方法的价值将会增加。然而，目前还没有找到这样的方法。

请注意，数据 #1 和 #2 是在相同条件下获取的。先前的研究²⁵ 对磁场测量显示了 GPR 的有效性，即使对于在不同条件下获取的数据也是如此。然而，需要进一步研究以确定基于 GPR 的 ND 量子温度计在不同条件下的有效性。

总之，我们已经建立了使用 GPR 的 ND 量子热测量方法，并表明现有的 GPR 方法与现有方法相比是一种具有优越准确性和鲁棒性的优秀分析方法。

开发一种多输出 GPR 方法²⁷，将之前研究中展示的精确磁场估计²⁵ 与当前研究中的精确测温相结合，使局部温度和磁场的同时准确测量成为可能。例如，这样的方法在调查各种相变 (包括电流引起的相变) 方面颇具前景³⁰。结合 ND 量子测温 and 磁计量将扩展纳米尺度物理性质的测量范围。

本工作部分得到了以下资助：日本科学技术振

兴机构 (JST)CREST 拨款号 JPMJCR23I2, 日本；科学研究补助金 (编号 JP22K03524, JP23H01103, JP22KJ1058 和 JP22KJ1059)；三井基金 (拨款号 202310021)；近藤纪念基金会；大金工业有限公司；东北大学 RIEC 合作研究项目；“日本先进材料与纳米技术研究基础设施 (ARIM)” (编号 JPMXP1222UT1131)，文部科学省 (MEXT)。Y.A. 感谢日本学术振兴会 (JSPS) 通过拨款号 JP19K23424 和 JST FOREST 项目 (拨款号 JPMJFR222U, 日本) 的支持。K.O. 和 M.T. 感谢东京大学 FoPM、WINGS 项目的资助。K.Y. 感谢日本科学技术振兴机构 (JST)SPRING 项目拨款号 JPMJSP2108 以及东京大学 MERIT-WINGS 的资助。

- ¹V. M. Acosta, E. Bauch, M. P. Ledbetter, A. Waxman, L.-S. Bouchard, and D. Budker, *Physical Review Letters* **104**, 070801 (2010).
- ²X.-D. Chen, C.-H. Dong, F.-W. Sun, C.-L. Zou, J.-M. Cui, Z.-F. Han, and G.-C. Guo, *Applied Physics Letters* **99** (2011), 10.1063/1.3652910.
- ³G. Kucsko, P. C. Maurer, N. Y. Yao, M. Kubo, H. J. Noh, P. K. Lo, H. Park, and M. D. Lukin, *Nature* **500**, 54 (2013).
- ⁴P. Neumann, I. Jakobi, F. Dolde, C. Burk, R. Reuter, G. Waldherr, J. Honert, T. Wolf, A. Brunner, J. H. Shim, D. Suter, H. Sumiya, J. Isoya, and J. Wrachtrup, *Nano Letters* **13**, 2738 (2013).
- ⁵M. W. Doherty, V. M. Acosta, A. Jarmola, M. S. Barson, N. B. Manson, D. Budker, and L. C. Hollenberg, *Physical Review B* **90**, 041201 (2014).
- ⁶M. Fujiwara, A. Dohms, K. Suto, Y. Nishimura, K. Oshimi, Y. Teki, K. Cai, O. Benson, and Y. Shikano, *Physical Review Research* **2**, 043415 (2020).
- ⁷M. Fujiwara, S. Sun, A. Dohms, Y. Nishimura, K. Suto, Y. Takezawa, K. Oshimi, L. Zhao, N. Sadzak, Y. Umehara, Y. Teki, N. Komatsu, O. Benson, Y. Shikano, and E. Kage-Nakadai, *Science Advances* **6**, eaba9636 (2020).
- ⁸G. Petrini, G. Tomagra, E. Bernardi, E. Moreva, P. Traina, A. Marcantoni, F. Picollo, K. Kvaková, P. Cígler, I. P. Degiovanni, V. Carabelli, and M. Genovese, *Advanced Science* **9**, 2202014 (2022).
- ⁹K. Okabe, R. Sakaguchi, B. Shi, and S. Kiyonaka, *Pflügers Archiv - European Journal of Physiology* **470**, 717 (2018).
- ¹⁰G.-Q. Liu, X. Feng, N. Wang, Q. Li, and R.-B. Liu, *Nature Communications* **10**, 1344 (2019).
- ¹¹K. Ogawa, M. Tsukamoto, K. Sasaki, and K. Kobayashi, *Journal of the Physical Society of Japan* **92**, 014002 (2023).
- ¹²S. Hong, M. S. Grinolds, L. M. Pham, D. Le Sage, L. Luan, R. L. Walsworth, and A. Yacoby, *MRS Bulletin* **38**, 155 (2013).
- ¹³J. F. Barry, J. M. Schloss, E. Bauch, M. J. Turner, C. A. Hart, L. M. Pham, and R. L. Walsworth, *Reviews of Modern Physics* **92**, 015004 (2020).
- ¹⁴H. Mamin, M. Kim, M. Sherwood, C. Rettner, K. Ohno, D. Awschalom, and D. Rugar, *Science* **339**, 557 (2013).

- ¹⁵M. S. Grinolds, S. Hong, P. Maletinsky, L. Luan, M. D. Lukin, R. L. Walsworth, and A. Yacoby, *Nature Physics* **9**, 215 (2013).
- ¹⁶L. P. McGuinness, Y. Yan, A. Stacey, D. A. Simpson, L. T. Hall, D. Maclaurin, S. Praver, P. Mulvaney, J. Wrachtrup, F. Caruso, R. E. Scholten, and L. C. L. Hollenberg, *Nature Nanotechnology* **6**, 358 (2011).
- ¹⁷F. Dolde, H. Fedder, M. W. Doherty, T. Nöbauer, F. Rempp, G. Balasubramanian, T. Wolf, F. Reinhard, L. C. Hollenberg, F. Jelezko, and J. Wrachtrup, *Nature Physics* **7**, 459 (2011).
- ¹⁸M. W. Doherty, V. V. Struzhkin, D. A. Simpson, L. P. McGuinness, Y. Meng, A. Stacey, T. J. Karle, R. J. Hemley, N. B. Manson, L. C. L. Hollenberg, and S. Praver, *Physical Review Letters* **112**, 047601 (2014).
- ¹⁹V. Ivády, T. Simon, J. R. Maze, I. Abrikosov, and A. Gali, *Physical Review B* **90**, 235205 (2014).
- ²⁰S. Hsieh, P. Bhattacharyya, C. Zu, T. Mittiga, T. J. Smart, F. Machado, B. Kobrin, T. O. Höhn, N. Z. Rui, M. Kamrani, S. Chatterjee, S. Choi, M. Zaletel, V. V. Struzhkin, J. E. Moore, V. I. Levitas, R. Jeanloz, and N. Y. Yao, *Science* **366**, 1349 (2019).
- ²¹M. C. Cambria, G. Thiering, A. Norambuena, H. T. Dinani, A. Gardill, I. Kemeny, V. Lordi, Á. Gali, J. R. Maze, and S. Kolkowitz, *Physical Review B* **108**, L180102 (2023).
- ²²R. Tanos, W. Akhtar, S. Monneret, F. Favaro de Oliveira, G. Seniutinas, M. Munsch, P. Maletinsky, L. le Gratiet, I. Sagnes, A. Dréau, C. Gergely, V. Jacques, G. Baffou, and I. Robert-Philip, *AIP Advances* **10**, 025027 (2020).
- ²³R. Schirhagl, K. Chang, M. Loretz, and C. L. Degen, *Annual Review of Physical Chemistry* **65**, 83 (2014).
- ²⁴C. Foy, L. Zhang, M. E. Trusheim, K. R. Bagnall, M. Walsh, E. N. Wang, and D. R. Englund, *ACS applied materials & interfaces* **12**, 26525 (2020).
- ²⁵M. Tsukamoto, S. Ito, K. Ogawa, Y. Ashida, K. Sasaki, and K. Kobayashi, *Scientific Reports* **12**, 13942 (2022).
- ²⁶D. J. MacKay, *NATO ASI Series F Computer and Systems Sciences* **168**, 133 (1998).
- ²⁷C. E. Rasmussen and C. K. I. Williams, *Gaussian processes for machine learning*, Vol. 2 (MIT press Cambridge, MA, 2006).
- ²⁸K. Sasaki, Y. Monnai, S. Saijo, R. Fujita, H. Watanabe, J. Ishi-Hayase, K. M. Itoh, and E. Abe, *Review of Scientific Instruments* **87**, 053904 (2016).
- ²⁹S. Nishimura, T. Kobayashi, D. Sasaki, T. Tsuji, T. Iwasaki, M. Hatano, K. Sasaki, and K. Kobayashi, *Applied Physics Letters* **123**, 112603 (2023).
- ³⁰A. Healey, S. Scholten, T. Yang, J. Scott, G. Abrahams, I. Robertson, X. Hou, Y. Guo, S. Rahman, Y. Lu, M. Kianinia, I. Aharonovich, and J.-P. Tetienne, *Nature Physics* **19**, 87 (2023).