

# Kutatómunka beszámoló

Udvarhelyi Péter

2016-17/2

Témavezetők:

Gali Ádám, Kürti Jenő

## Bevezetés:

Előző félévben elkezdett kutatásom célja az  $N_2V$  nitrogén-vakancia típusú hiba ab initio karakterizálása volt kvantum memória alkalmazások szempontjából. Erre motivációt a hasonló gyémántbeli paramágneses, optikailag aktív ponthibák quantum bit alkalmazásokban való fontos szerepe adott. A hiba keletkezésekor két szomszédos nitrogénből álló A-aggregát csapdáz egy vakanciát és átrendeződik N-V-N szerkezetté,  $C_{2v}$  pontszimmetriával (Mainwood, 1994). A hiba semleges töltésállapotát vizsgáltam, amit H3 színcentrumnak neveznek a 2.463 eV-nál mért zérusfonon vonala (ZPL) alapján. Ezt az  $^1A_1$  alap és  $^1B_1$  gerjesztett állapot közötti átmenettel azonosítják (Davies & Nazare, 1976). A hiba paramágneses triplet állapotát elektronspin rezonanciával vizsgálták és W26 centrumként jelölték (Wyk & Woods, 1995). A ponthibát számos kísérletben vizsgálták korábban, viszont nem végeztek optikailag detektált mágneses rezonanciát, ami a nitrogén vakancia valamint ST1 hiba esetén az egyetlen magspin manipulálásának alapja. Motivációnkat utóbbi hiba sikere adta, melynél optikai pumpálással metastabil triplet állapotba kerül a rendszer majd spin polarizáció átvitelt (elektron és magspin között) a hiperfinom szint nem-kereszteződést (LAC) kihasználva érik el. A rendszer relaxációja szingulet alapállapotba jelentősen megnöveli a magspin koherenciaidejét (Lee, és mtsai., 2013). Ezért célunk az  $N_2V$  hiba gerjesztett állapotainak és mágneses tulajdonságainak vizsgálata magasabb szintű sűrűségfüggő elmélet (DFT) számításokkal. Ezen eredmények segítségével demonstráljuk a triplet állapot spin polarizálásának és a spin polarizáció magspinre való átvitelének elméleti lehetőségét.

## A félévben elvégzett kutatás:

Az alacsony energiás optikai átmenetek meghatározására HSE06 hibridfüggő elmélettel  $\Delta$ SCF DFT számításokat végeztem. Az elektronszerkezet meghatározását és geometria optimalizációt valamint a hiperfinom paraméterek számítását a Vienna Ab Initio Package (VASP) programmal végeztem. A modell 512 atomos egyszerű köbös szupercella volt  $\Gamma$ -pont közelítésben. Az eredmények az 1. ábra bal oldali oszlopában láthatók. A  $\Delta$ SCF számítások jelentős eltérést mutatnak a kísérletektől. Míg a negatívan töltött  $N_2V$  hiba kiváló eredményeket ad, a semleges töltésállapot már kihívást jelent a hagyományos Kohn-Sham DFT módszereknek az erősen korrelált nyílthéjú pályák miatt. Ezek helyes számításához egy új módszert fejlesztettünk ki, ami a von Barth elmélet (von Barth, 1979) és a Hubbard-modell (Hubbard, 1963) kombinációja. Ennek ismertetése előtt a hiba elektronszerkezetét mutatom

be. A vakancia-típusú hibák elektronszerkezete gyémántban általánosan a tetragonális szimmetria lecsökkenéséből adódó felhasadással és a lógókötéseknek megfelelő töltésállapottal írható le az aufbau-elvet követve (Lowther, 1984). Esetünkben  $C_{2v}$  szimmetriában a  $t_2$  szint felhasad  $b_2$ ,  $a_1$  és  $b_1$  Kohn-Sham szintekre a fenti energia sorrendben. Ez három állapotot hoz létre a tiltott sávban, amit a négy lógó kötésnek megfelelő elektron tölt be. Ez alapján a HOMO az  $a_1$  állapot lesz, ami egy C-C kötő állapotnak felel meg, míg a LUMO a  $b_1$  állapot C-C lazító. Az alacsony energiás gerjesztések leírásánál ezen két állapot kulcsfontosságú, a továbbiakban ezek alkotják az aktív terünket. Ez a két állapot felírható a két szomszédos szénatom lógókötéseivel a következőképp:

$$a = \frac{1}{\sqrt{2}}(A + B) \quad b = \frac{1}{\sqrt{2}}(A - B)$$

Ezekkel a szingulett determinánsok:

$$\begin{aligned} {}^1A_{1(g)} &= |a^\uparrow a^\downarrow\rangle \\ {}^1A_{1(e)} &= |b^\uparrow b^\downarrow\rangle \\ {}^1B_1 &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|a^\uparrow b^\downarrow\rangle - |a^\downarrow b^\uparrow\rangle) \end{aligned}$$

A triplett determinánsok:

$${}^3B_1 = \begin{pmatrix} |a^\uparrow b^\uparrow\rangle \\ \frac{1}{\sqrt{2}}(|a^\uparrow b^\downarrow\rangle + |a^\downarrow b^\uparrow\rangle) \\ |a^\downarrow b^\downarrow\rangle \end{pmatrix}$$

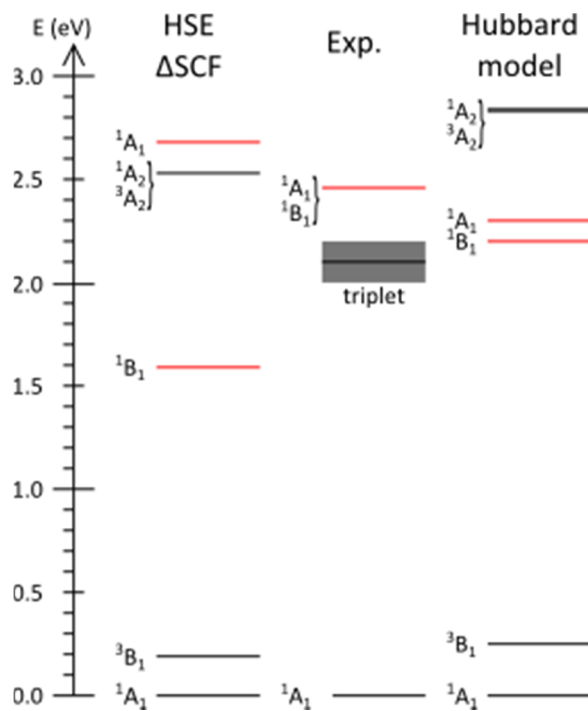
A semleges  $N_2V$  hibát leíró Hamilton-operátor configurational interaction ZDO közelítésben Heisenberg spin csatolással az alábbi alakú:

$$\begin{aligned} H = & U(n_{A^\uparrow}n_{A^\downarrow} + n_{B^\uparrow}n_{B^\downarrow}) - \frac{t}{4}(c_{A^\uparrow}^\dagger c_{B^\uparrow} + c_{A^\downarrow}^\dagger c_{B^\downarrow} + c_{B^\uparrow}^\dagger c_{A^\uparrow} + c_{B^\downarrow}^\dagger c_{A^\downarrow}) \\ & + C(n_{A^\uparrow}n_{B^\uparrow} + n_{A^\downarrow}n_{B^\downarrow} + n_{A^\uparrow}n_{B^\downarrow} + n_{A^\downarrow}n_{B^\uparrow}) - 2J(c_{A^\uparrow}^\dagger c_{A^\downarrow}^\dagger c_{B^\downarrow}^\dagger c_{B^\uparrow} + c_{A^\downarrow}^\dagger c_{A^\uparrow}^\dagger c_{B^\uparrow}^\dagger c_{B^\downarrow}) \\ & - J(n_{A^\uparrow}n_{B^\uparrow} + n_{A^\downarrow}n_{B^\downarrow} - n_{A^\downarrow}n_{B^\uparrow} - n_{A^\uparrow}n_{B^\downarrow}) \end{aligned}$$

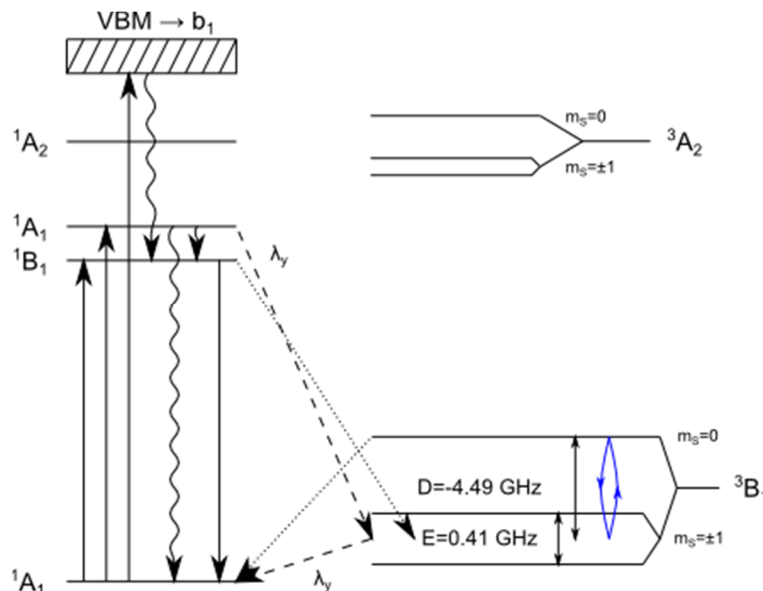
ahol az első tag az onsite tasztítás, a második a hopping, a harmadik a Coulomb-tasztítás és az utolsó két tag a Heisenberg kicserélődésből származik. A fenti paraméterek meghatározhatók kizárólag ab initio számolások használatával megfelelő, nem korrelált bázison. A Hubbard paraméterek ismeretében a fenti állapotok energiája analitikusan meghatározható. Nem korrelált bázisnak a kétszeresen negatív töltésállapot zárt héjú bázisfüggvényeit választottuk. A számítások végeredményét az 1. ábra jobboldali része szemlélteti. A Hubbard modell lényegesen jobb közelítést ad az alacsony energiás gerjesztésekre, ami az  ${}^1A_{1(e)}$  és  ${}^1B_1$  állapotokon jól megfigyelhető.

A bevezetőben említett kísérleti adatok és az ab initio számítási eredményeim alapján felvázolhatók az optikai ciklusok és spinpolarizációs folyamatok a rendszerben. Ezeket szemlélteti a 2. ábra. Két optikailag aktív ( ${}^1A_{1(e)}$  és  ${}^1B_1$ ) valamint egy sötét állapotot találtunk ( ${}^1A_2$ ). A kiválasztási szabályok alapján meghatározva a rendszerközi átmenetek rendjét spin szelektív átmentet találtunk a  ${}^1B_1$  és  ${}^3B_1$  állapotok között (a spin-pálya csatolás y-komponensével). ODMR kontraszt mikrohullámú gerjesztéssel érhető el, kihasználva a

triplet állapotok élettartam különbségét, ami az első és másodrendű rendszerközi átmenetek élettartam különbségéből ered.



1. ábra: A gyémántbeli semleges  $N_2V$  hiba gerjesztési energiái. Bal oldalon Kohn-Sham HSE06  $\Delta$ SCF eredmények, középen kísérleti eredmények, jobb oldalon Hubbard-modell számítási eredmények láthatók.



2. ábra: A semleges  $N_2V$  hiba ODMR kontraszt analízise. Folytonos vonalak sugárzásos átmenetet, szaggatott vonalak spin-pálya csatolásban elsőrendű rendszerközi átmenetet, pontozott vonalak másodrendű rendszerközi átmenetet jelölnek. Kékkel jelöltük a mikrohullámú átmeneteket. A metastabil triplet állapot számított ZFS paraméterei az ábrán láthatók.

**Publikációk:**

A fenti eredményekből írt publikáció jelenleg elbírálás alatt áll a Physical Review B (Rapid Communications) folyóiratnál. A kézirat megtekinthető online:

<https://arxiv.org/abs/1704.07289>

**Tanulmányi tevékenység:**

Az ELTE-n két kurzust végeztem el a félévben: Rácshibák II. és Lecture Series in English, utóbbi angol nyelvű kurzus címe Time-Dependent Quantum Dynamics.

A Wigner FK-ban Kriza György Csoportelmélet előadássorozatát hallgattam.

**Oktatási tevékenység:**

A Modern fizikai laboratóriumi gyakorlat keretében Molekulamodellzés gyakorlatot tartottam 32 óraszámban.

**Hivatkozások**

Davies, G., & Nazare, M. (1976). *Journal of Physics C: Solid State Physics*, 245.

Hubbard, J. (1963). *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 238.

Lee, S.-Y., Widmann, M., Rendler, T., Doherty, M. W., Babinec, T. M., Yang, S., et al. (2013). *Nat Nano*, 487.

Lowther, J. (1984). *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 127.

Mainwood, A. (1994). *Phys. Rev. B*, 7934.

von Barth, U. (1979). *Phys. Rev. A*, 1693.

Wyk, J. A., & Woods, G. S. (1995). *Journal of Physics: Condensed Matter*, 5901.