

Kutatási beszámoló

Szilárdtest kvantumbitek ab initio vizsgálata kvantum eszközök és érzékelés szempontjából

Udvarhelyi Péter

Témavezetők: Dr. Gali Ádám, Dr. Kürti Jenő

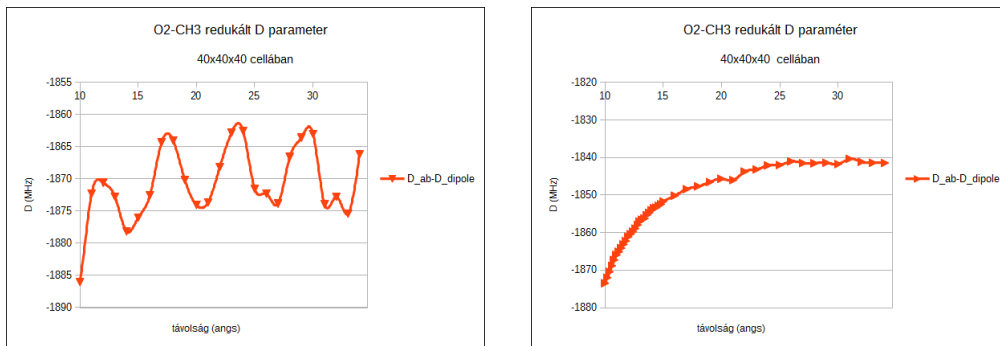
2016/17-1

Kutatómunkám során ebben a félévben feldolgozott szakirodalomból három könyvet emelnék ki. Dr. Máthé János Molekulaspektroszkópiái és kvantumkémiai számítások, Roderick K. Watts Point defects in crystals és Roman Boca Theoretical Foundations of Molecular Magnetism című könyvéből tanultam meg a szükséges elméletet.

Kutatómunkám céljai között szerepel szilárdtest kvantumbitek környező spinekkel való kölcsönhatásának ab initio vizsgálata. Ez az olyan nanoskálájú méréstechnikai alkalmazások szempontjából fontos, mint az optikailag detektált mágneses rezonancia spektroszkópia (ODMR). Mind a kísérleti és számítási eredmények nagy pontosságú feldolgozásához elengedhetetlen a kölcsönható spinek távolságának pontos ismerete. Kísérletek kiértékelésénél elterjedt gyakorlat az elektronspin csatolást pontdipól közelítésben meghatározni a ponthibák távolságának becslésére. A ponthibák fenti helymeghatározási módszerének pontosságát ab initio számításokkal vizsgáltam a kísérletekben is gyakran használt gyémántban lévő nitrogén vakancia (NV^-) és szubsztitúciós nitrogén (Ns) rendszerre. Az alapállapot meghatározását DFT módszerrel, PBE funkcionállal végeztem a síkhullám bázisú VASP csomagot használva, 370 eV-os síkhullám levágási értékkel, PAW módszer használatával, gamma-pont közelítéssel. A számításokban supercella módszert használtam, ahol a köbös supercella oldalhossza az optimált gyémánt Bravais-rácsparaméter hatszorosa volt. A számításokban meghatároztam mindkét izolált ponthiba alapállapotú elektronsűrűségét valamint spinsűrűségét. Ezen adatok felbontását az FFT-nél használt valós térrács határozza meg, ez számításaimban $200 \times 200 \times 200$ -as volt, ami 0,11 Å felbontásnak felel meg. A

VASP elektron- és spinsűrűség kimenetek (CHGCAR) feldolgozására FORTRAN programkódot írtam. Ezzel kiszámítható a spinsűrűség tömegközéppontja, valamint adott térrészekben az integrálja, utóbbi több ponthibát tartalmazó szupercellák vizsgálatánál hasznos a partícionálás szempontjából. Az eredményeket a gyémánt Bravais-rácsparaméter egységeiben adom meg olyan koordináta rendszerben, ahol az NV hiba vakanciájának és nitrogénjének koordinátája a tökéletes kristályban $[0\ 0\ 0]$ és $[0,25\ 0,25\ 0,25]$. Az NV spinsűrűség tömegközéppontja: $[-0,092\ -0,092\ -0,092]$. Hasonló konvenciót követve az Ns szén- és nitrogén atomjára, a spinsűrűség tömegközéppontja: $[0,013\ 0,013\ 0,013]$. Az eredmények pontosítják az elterjedt közelítést, ahol az NV spinsűrűség tömegközéppontját a vakancia pozíciójával azonosítják. Ez az atomi felbontású nanoskálájú helymeghatározáshoz elengedhetetlen. A szubsztitúciós nitrogének pozícióinak detektálásakor pedig valójában, a spintávolság megadásakor, a relaxációs tengelyen található szomszédos szénatom pozícióját határozzák meg a kísérletekben. Ez megnehezíti a kísérletek kiértékelését a szubsztitúciós nitrogének relaxációs irányának ismerete nélkül, ha a detektálás felbontása nem teszi lehetővé a relaxációs szénatom és a spinsűrűség tömegközéppont szeparációját. Ezen kutatásom jelentősége tehát, hogy atomi pontosságú nanoskálájú helymeghatározáshoz fontos a spinsűrűség tömegközéppontok ab initio meghatározása a vizsgált paramágneses ponthibák esetére.

További célok között szerepel a spin-spin kölcsönhatás jellemzése ab initio számításokkal. Ehhez a zérustér felhasadást jellemző D-tenzor, vagy speciális esetben D paraméter, klasszikus pont-pont rendű dipól kölcsönhatástól való eltérését vizsgáltam. Ennek aszimptotikus viselkedését, valamint szupercella-méret függését kellett meghatároznom a további vizsgálatokhoz. Erre a feladatra tömbi rendszerek nem alkalmasak, ezért spinnel rendelkező molekulák csatolását vizsgáltam: az $S = 1$ -es O_2 valamint az $S = 1/2$ -es CH_3 gyököt. Az alapállapot relaxációját PBE funkcionállal, 400 eV levágással, 10^{-4} eV SCF konvergencia kritériummal végeztem. A molekulák szimmetriatengelyei az egyszerűség kedvéért egybeestek, amit $[111]$ irányúnak választottam. A molekulák távolságát az $[111]$ irány mentén 1 angström lépésenként növelve kiszámoltam a D-tenzor távolságfüggését. A teljes rendszer D-tenzorát particionáltam (R. Boca fent említett elmélete alapján) majd levontam a klasszikus pontdipól kölcsönhatásnak megfelelő csatolási paramétert. Az eredményeket a 40 angström oldalhosszúságú cellában a 1a. ábra szemlélteti. A fenti elektronszerkezet konvergenciához használt kritériumok mellett láthatóan zajjal terheltek a D-tenzor eredmények, ezért konvergencia vizsgálatot kellett végezni. A zaj okai lehetnek a Kohn-Sham (KS) állapotok túl alacsony száma, a síkhullám levágás, valamint az SCF kritérium alacsony értéke. Előbbi kettő növelése a 40 angström oldalhosszú cellában



(a) 400 eV levágás, 10^{-4} konvergencia (b) 800 eV levágás, 10^{-8} konvergencia

1. ábra. Kölcsönhatási D paraméter és pontdipól D paraméter különbségének távolságfüggése O_2 és CH_3 molekulák kölcsönhatásában, 40 angström oldalhosszúságú supercellában. A D paraméter konvergencia vizsgálata.

jelentős javulást eredményez: a véletlenszerű hiba MHz alatti értékre csökken 128 KS állapot és 800 eV levágás esetében. A megnövelt állapotszám nagyobb stabilitást eredményez, míg a nagyobb levágás a nagyobb pontossággal meghatározott spinsűrűség eloszlás miatt ad pontosabb D paramétert. Nagyobb supercellákban ezen felül az SCF konvergencia kritériumot is jelentősen növelni kell, 10^{-8} eV értékre, a D paraméter távolságfüggésének MHz pontosságú meghatározása érdekében. A megfelelő konvergenciájú eredmény 40 angström oldalhosszú cellában a 1b. ábrán látható. A pontdipól közelítéstől való eltérést egy konstans eltolódás dominálja, mintegy 1800 MHz-el, cellamérettől függetlenül. Kutatómunkám további céljai ezen eltolódás eredetének meghatározása valamint kiküszöbölése.

Kutatási tervemben szerepelt további szilárdtest kvantumbitek karakterizálása. Egy kvantumbit alkalmazás szempontjából ígéretes NV típusú hiba, a gyémántbeli N_2V gerjesztett állapotainak valamint fotolumineszcencia spektrumának ab initio számításokkal való meghatározását szeretnénk következő félévben publikálni. A publikációra való előkészületként constrained DFT számításokat végeztem HSE06 hibridfunkcionállal a lehetséges gerjesztések meghatározására, 512 atomos supercellában. A ponthiba C_{2v} szimmetriájú. A kísérleti ZPL 2,463 eV, amit az $^1A_1 \rightarrow ^1B_1$ átmenetnek tulajdonítottak (Davies *et al.*, 1976). Ezzel szemben számításaimban ez a 2,677 eV-os $^1A_1 \rightarrow 2(C)^1A_1$ átmenet. Alacsonyabb energiájú vertikális gerjesztések között szerepel egy tiltott átmenet 1A_2 -be 2,534 eV-tal, valamint egy köztes 1B_1 állapot 1,156 eV-os gerjesztéssel. A szimulált fotolumineszcencia spektrumok értelmezése és a publikáció befejezése a következő félév tervei között szerepel.