

A bór vakancia kvantumbit koherenciaidejének numerikus vizsgálata

TDK Dolgozat

Írta:

Tárkányi András

Fizikus BSc. 2. évfolyam

Témavezető:

Iványi Viktor

ELTE TTK, Komplex Rendszerek Fizikája Tanszék



Eötvös Loránd Tudományegyetem
2023. november 18.

Köszönetnyilvánítás

Köszönöm témavezetőmnek, Ivády Viktornak a kutatási lehetőséget, valamint a munka során nyújtott szakmai és mentori segítséget.

A kutatás a Kulturális és Innovációs Minisztérium Nemzeti Kutatási Fejlesztési és Innovációs Alapból nyújtott támogatásával, a 2022-2.1.1-NL-2022-00004 számú projekt finanszírozásában valósult meg.

Tartalomjegyzék

1. Bevezetés	3
2. Elméleti háttér	5
2.1. A matematikai keretrendszer	5
2.2. A spinfürdő modell	6
2.3. A rendszer Hamilton-operátora	7
2.3.1. A centrális spin Hamilton-operátora	7
2.3.2. A spinfürdő Hamilton-operátora	8
2.3.3. A kölcsönhatási Hamilton-operátor	9
2.4. A rendszer időfejlődése	10
2.5. Alacsony dimenziós kvantum rendszerek relaxációs folyamatai	10
2.5.1. A Hahn echo pulzusszekvencia	12
3. Módszerek	14
3.1. A klaszter-korrelációs sorfejtés	14
3.2. Az általánosított klaszter-korrelációs sorfejtés	16
3.3. Szekuláris és pszeudo-szekuláris közelítés	17
3.4. A harmadrendű gCCE módszer Wolfram Mathematica implementációja	18
4. A hexagonális bór-nitrid és a VB centrum jellemzői, paraméterei	19
4.1. A kristályrács rétegeinek szerkezete	19
4.2. A Hamilton-operátor paraméterei	21
5. Eredmények	24
5.1. A rendszer kiindulási állapotának meghatározása	24
5.2. A koherenciafüggvény illesztése	26
5.3. A konvergenciasugarak meghatározása	28
5.4. A dekoherenciaparaméterek a mágneses tér függvényében	30
5.5. A különböző rendek kontribúcióinak elemzése	32
5.5.1. Zérus külső mágneses tér és környéke	32
5.5.2. Közepes nagyságú mágneses terek	32
5.5.3. Az alapállapotú antikereszteződés	35
5.6. A három első-szomszéd nitrogén magspin polarizációjának hatása a dekoherenciára	37
5.7. A koherenciaidő változása a transzverzális zérus-tér-felhasadási paraméter függvényében	41
6. Diskusszió és kitekintés	44

1. fejezet

Bevezetés

Mint oly sok más fizikai diszciplína esetében, a kvantummechanika alaptörvényeinek lefektetése után a kutatói figyelem előterébe az új tudásanyag hasznosítása került, így ma a kvantumszámítógépek gyakorlati megvalósítása, valamint a minél szélesebb körben alkalmazható nanoméretű szenzorok kifejlesztése a kvantumtechnológiai kutatások vezető területei közé tartoznak [1][2].

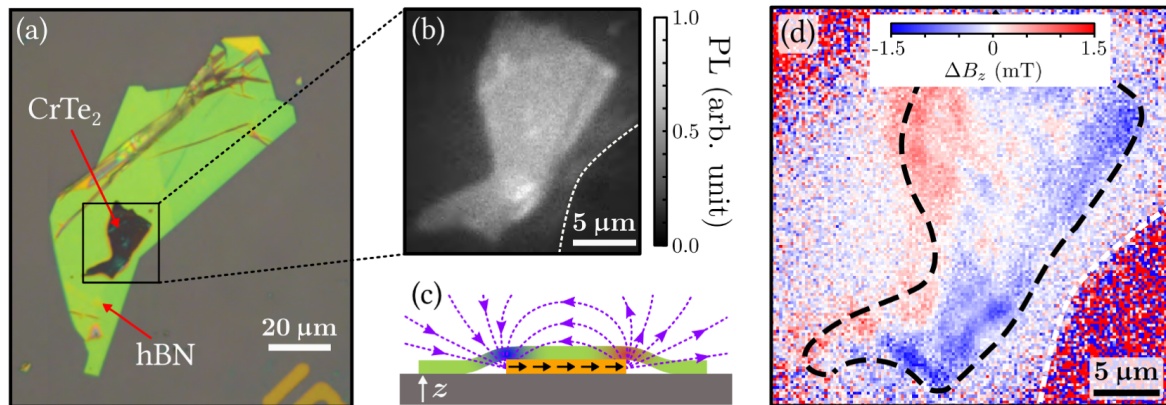
A kvantumszámítógépeket alkotó kubitok és kubit-operációk fizikai megvalósításának teljesítenie kell az öt DiVincenzo-kritériumot, melyek: 1. skálázhatóság, 2. inicializálhatóság, 3. megfelelő nagyságú koherenciaidő, 4. általános műveletek elvégzésére alkalmas kvantum-kapuk, 5. kubit-specifikus kiolvashatóság [3]. Több különböző, a legtöbb kritériumot teljesítő technológia került már kidolgozásra, különböző, inkohere ns fázisvesztést jellemző T_2 karakterisztikus időkkal. Kubitok megvalósítására alkalmaztak fotonokat (3 s), szupravezető áramköröket ($4\ \mu\text{s}$), csapdázott ionokat (15 s), különböző kvantumpöttyökben megkötött elektronok spinjeit ($3\ \mu\text{s}$), valamint félvezető anyagok speciális színcentrumait (2 ms) [1].

A nanotechnológiai gyártás, valamint különböző, elektromágneses hullámokat alkalmazó mérési technikák jelentős előrehaladása lehetővé tette a nanoméretű mintákban található szennyeződések és ponthibák átható vizsgálatát [4][5]. Ezek közül az optikailag aktív centrumok nanoszekundumos sebességgel inicializálhatóak és kiolvashatóak, valamint az őket körülvevő félvezetők atomi rácsát alkotó, közeli atommagok magspinjei erős csatolásuknak köszönhetően ígéretes eszközt kínálnak a kvantummemória és kvantum-hibakorrekció megvalósításához [6]. A legátfogóbban vizsgált, széles tiltott sávval rendelkező félvezetőben előforduló ponthibák a gyémántban létrehozható nitrogén-vakancia (NV) centrum, valamint a szilícium-karbidban (SiC) megfigyelhető szilícium-szén dupla vakancia (divakancia) [7][8].

A félvezetőkben megvalósított kubitok elsődleges alkalmazása jelenleg a kvantum-szenzorok fejlesztésének területén történik, mivel jelentős érzékenységük a környezet által keltett perturbációkra fejlett gyártási technológiával és tetszőleges rendszerbe való beépíthetőséggel párosul. Az NV centrumot és különböző SiC-ben található ponthibákat is használtak már szenzorként fizikai, biológiai és energetikai alkalmazásokban [9][10].

A van der Waals félvezető anyagokból, réteges szerkezetüknek köszönhetően, néhány atomnyi vastagságú nanofólia készíthető, amely tovább növeli a gyártás és alkalmazás során hasznosítható technológiai eljárások számát [11]. A legújabb globálisan kutatott félvezető van der Waals anyag a hexagonális bór-nitrid (hBN), melyben bór vakanciát lehet létrehozni elektron, illetve neutron besugárzás segítségével. Ez a centrum egy szobahőmérsékleten is koherens tulajdonságokat mutató optikailag manipulálható spin kvantumbitet valósít meg [12]. Az elmúlt évek fejlesztéseinek köszönhetően különböző kutatócsoportok bór vakanciákat tartalmazó hBN vékonyrétegeket hoztak létre, amelyeket érzékelő fóliaként használva nanoszerkezetek mágnesesterét sikerült letapogatni korábban nem látott térbeli felbontással [13][14] (ld. az 1.1. ábrát).

A kubit-alrendszert körülvevő atomi rács rezgései, illetve az atommagok spinjei jelentős zajt generálnak, amely a koherencia elvesztéséhez vezet. A szilárdtest alapú kubitok, valamint az abból felépülő kvantumrendszerek kutatásának jelenkori elsődleges feladata tehát a sokspin rend-



1.1. ábra. Hexagonális bór-nitridben létrehozott bór vakancia által megvalósított érzékelő fóliával elvégzett mérés. (a) Egy CrTe_2 -pehely optikai képe (sötét régió), amelyet lefed egy hBN pehely (zöld). (b) Fotolumineszcencia kép a CrTe_2 pehelyről. (c) Vázlat az CrTe_2 szórt mágneses térről (lila vonalak). A hBN-ben található kvantumérzékelők mérik az mágneses tér megfelelő vetületét, amint azt a piros és kék árnyékolás ábrázolja. (d) A CrTe_2 pehely mágneses tértérképe (ΔB_z). [14]

szerek dekoherenciamechanizmusainak megértése, valamint skálázható koherencia-védő módszerek kidolgozása. Ezek ismerete és alkalmazása mind a kvantum-komputáció, mind a kvantumszenzorok területén történő előrelépéshez elengedhetetlen, továbbá fontos alapot képezhet különböző koherens kubit-operációk atomi rácsban történő realizálásához.

TDK dolgozatomban a hexagonális bór-nitrid szerkezetében megtalálható magas spin állapotú ($S = 1$) bór vakancia (VB) centrum és a kristályrácsban jelenlévő egyéb, döntő többségben bór és nitrogén magspinek, által létrehozott csatolt spin rendszer koherenciaidejét tanulmányozom. Az általánosított klaszter-korrelációs sorfejtést alkalmazva többek között megvizsgálom a magspinek egyedi és soktest korrelációiból eredő effektusokat, a spinek között fellépő mágneses dipoláris csatolás különböző komponenseinek járulékát, valamint a vakancia centrumot alkotó elektron spinek között fellépő zérus-tér kölcsönhatási paraméter variálásának hatását. Eredményeim alapján meghatározom a dekoherencia fő forrásait és az alkalmazott külső mágneses tértől függően a koherenciaidő növekedését eredményező módszereket javaslom, melyek kísérleti implementációja jelentős eredmény lehet a VB centrum alapú mérés technológiai fejlesztések szempontjából.

2. fejezet

Elméleti háttér

Ebben a fejezetben a dolgozatban foglalt eredmények megértéséhez szükséges háttér anyagot ismertetek. Röviden áttekintem a kvantummechanika mátrix formalizmusát, a magspinek sokaságának, azaz a spinfürdő tulajdonságait, a csatolt rendszer dinamikáját meghatározó Hamilton-operátort, az időfejlődést leíró egyenleteket, valamint a dekoherencia megértéséhez szükséges fogalmakat. Ezen ismeretek az első három félév tananyagán kívül esnek, így a szükséges háttér nagy részét autodidakta módon sajátítottam el a témavezetőm segítségével.

2.1. A matematikai keretrendszer

A szimulált rendszer a spinállapotok kvantáltságából eredően véges dimenziós Hilbert-teret képez, emiatt a számolások során kézenfekvő a kvantummechanika mátrix formalizmusának alkalmazása. A formalizmusban a mérhető fizikai mennyiségek, például a különböző térszerű orientációval rendelkező spinkomponensek, valamint ezek négyzetösszege (rendre $\hat{S}_x, \hat{S}_y, \hat{S}_z$, $\hat{S}^2 = \sum \hat{S}_i^2$), véges dimenziós Hilbert-tereken (állapottereken) ható operátorok mátrixaiként fejezhetőek ki. Az effektív Hamilton-operátort meghatározó kölcsönhatási tenzorok, például a zérus-tér-felhasadás tenzor vagy a hiperfinom tenzor, pedig a $\hat{\mathbf{S}} = (\hat{S}_x, \hat{S}_y, \hat{S}_z)$ spin operátorvektorok lineáris terén hatnak.

Egy $S = 1/2$ spinű részecske állapotfüggvényének spinszerű része egy kétdimenziós $\mathcal{H}_1$ Hilbert-tér segítségével írható le, mivel a lehetséges sajátállapotok száma 2 ($m = +1/2, -1/2$). Két ilyen spinből álló rendszer Hilbert-tere a

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_1 \otimes \mathcal{H}_2 \quad (2.1)$$

tenzorszorzatként adható meg, melynek dimenziószáma $\dim \mathcal{H} = \dim \mathcal{H}_1 \cdot \dim \mathcal{H}_2 = 4$. Ennek következtében egy nagyszámú ($N \sim 10000$) spint magába foglaló rendszer egzakt leírása egy 2^N dimenziós Hilbert-téren történő számolást igényelne. Az ehhez szükséges számítási kapacitás egyenlőre nem elérhető, emiatt szükséges valamilyen közelítés bevezetése (ld. 3.2. *Az általánosított klaszter-korrelációs sorfejtés*).

Egy, a teljes, N dimenziós Hilbert-tér egy m dimenziós $\mathbb{M}$ alterén ható $\mathbf{A}_M$ operátor kiterjesztése felírható a

$$\mathbf{A} = \left(\bigotimes_{i=1}^k \mathbb{I} \right) \otimes \mathbf{A}_M \otimes \left(\bigotimes_{i=k+m}^N \mathbb{I} \right) \quad (2.2)$$

módon. A továbbiakban minden (külön nem jelzett) esetben az operátor- vagy mátrixreprezentációk alatt ez a forma értendő, amelyet azonban a jelölések érthetőségének érdekében elhagyok.

A spin operátorok $(2S + 1) \times (2S + 1)$ dimenziós mátrixokként reprezentálhatóak, amelyek

az alábbi módon definiáltak $(m', m = -S, -S + 1, \dots, S - 1, S)$;

$$\begin{aligned}\hat{S}_{m'm}^{(+)} &= \delta_{m',m+1} \sqrt{S(S+1) - m'm}, & \hat{S}_{m'm}^{(-)} &= \delta_{m'+1,m} \sqrt{S(S+1) - m'm}, \\ \hat{S}_{m'm}^{(z)} &= \delta_{m',m} m, & \hat{S}_{m'm}^{(x)} &= \frac{\delta_{m',m+1} + \delta_{m'+1,m}}{2} \sqrt{S(S+1) - m'm} \\ \hat{S}_{m'm}^{(y)} &= \frac{\delta_{m',m+1} - \delta_{m'+1,m}}{2i} \sqrt{S(S+1) - m'm}\end{aligned}\quad (2.3)$$

ahol $\hat{S}_+$ és $\hat{S}_-$ a növelő és csökkentő operátor, melyek az $|m\rangle$ sajátállapotot

$$\hat{S}_+ |m\rangle = \alpha |m+1\rangle, \quad \hat{S}_- |m\rangle = \beta |m-1\rangle \quad (2.4)$$

szerint transzformálják. A fenti képletekben S az $\hat{S}^2$ operátor által definiált kvantumszám, amely a spin nagyságát számszerűsíti.

2.2. A spinfürdő modell

Egy kristályrácsban található ponthiba elméleti és numerikus vizsgálatához jól bevált módszer a spinfürdő modell, amely a ponthiba és az atomi rács kvantummechanikai leírását egy lokalizált elemekből álló spinsokaság segítségével adja. A ponthiba megfelelője egy centrális spin, az azt körülvevő atommagoké pedig a valódi kristályrácsnak megfelelő struktúrában elhelyezkedő magspinek. A spinsokaság kölcsönhatásai és időfejlődése egy spin-Hamilton-operátor megadásával írhatóak le. Az atommagok helykoordinátái, valamint a ponthiba elektronállapotait megadó elektronfelhő hullámfüggvényének térszerű része az effektív spin-Hamilton-operátorban szereplő kölcsönhatási mátrixok meghatározásában játszanak szerepet. Így például a centrális spin és egy magspin között fellépő interakció a hiperfinom kölcsönhatás, melynek paramétereit megadó mátrix komponensei az elektronállapotokat adó elektronfelhő térszerű részének megfelelő integráljából adódik, a spinfürdő térbeli szerkezete pedig a magspinek között ható mágneses dipól-dipól kölcsönhatás távolságfüggésében jelenik meg (ld. 2.3. *A rendszer Hamilton-operátora*).

A rendszer kiindulási állapota a centrális spin, azaz az elektron spin inicializált kezdőállapotát és a spinfürdő állapotainak sokaságán elvégzett átlagot reprezentáló sűrűségmátrixok tenzorszorzataként adható meg

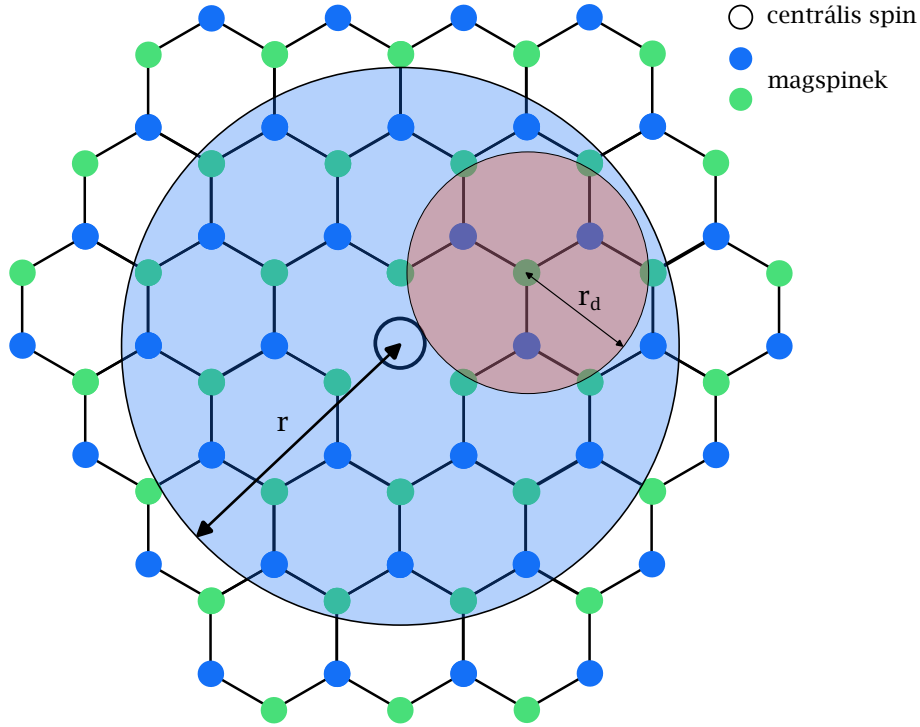
$$\rho(0) = \rho_v(0) \otimes \sum_i p_i |i\rangle \langle i|. \quad (2.5)$$

ahol $\rho_v(0)$ a centrális spin állapotát adja meg $t = 0$ -ban, $|i\rangle$ pedig az N magspint tartalmazó spinfürdő i -edik állapota p_i súllyal, $\sum_i p_i |i\rangle \langle i|$ tehát a spinfürdő lehetséges állapotait, mint sokaságot leíró sűrűségmátrix.

Az időfejlődés során a centrális spin összefonódhat a spinfürdővel, tehát a teljes rendszert leíró sűrűségmátrix már nem lesz a Hilbert-tér különböző altereit leíró sűrűségmátrixok tenzorszorzatára redukálható, ekkor a következő irreducibilis alakban adható meg

$$\rho(t) = \sum_{i,v} \rho_{v,i}(t) \otimes p_i |i(t)\rangle \langle i(t)|. \quad (2.6)$$

A modell fontos feltevése, hogy a centrális- és magspinek zárt rendszert alkotnak, tehát a centrális spin dekoherenciájának karakterisztikus idején belül a spinfürdő zárt rendszerként időfejlődik. E feltevés érvényességét bizonyítja, hogy a rendszert jellemző koherenciafüggvény a spinfürdőt képző gömb r sugarának függvényében konvergens (ld. 5.3. *A konvergenciasugarak meghatározása*), tehát definiálható egy véges határsugár, amelyen kívüli magspinek hatása a centrális spinre elhanyagolható nagyságú. A magspinek között fellépő mágneses dipól-dipól kölcsönhatás a magspinek távolságának harmadik hatványával arányos, ebből kifolyólag meghatározható egy r_d határsugár is, amelynél távolabb lévő magspinek interakciója elhanyagolható.



2.1. ábra. Illusztráció a spinfürdő határsugarairól. A centrális spintől r -nél távolabbi magspinek hiperfinom kölcsönhatási járuléka, valamint az adott magspin és a tőle r_d -nél nagyobb távolságra lévő magspinek közötti kölcsönhatás elhanyagolható.

2.3. A rendszer Hamilton-operátora

A teljes rendszer Hamilton-operátora felbontható három részre

$$\hat{H} = \hat{H}_e + \hat{H}_b + \hat{H}_{int}, \quad (2.7)$$

ahol $\hat{H}_e$ a centrális spin Hamilton-operátora, $\hat{H}_b$ a magspinek Hamilton-operátora, míg $\hat{H}_{int}$ a centrális spin és a magspinek közötti kölcsönhatást leíró Hamilton-operátor.

2.3.1. A centrális spin Hamilton-operátora

A centrális spin Hamilton-operátora a zérus-tér kölcsönhatást és az elektron Zeeman kölcsönhatást leíró tagok összegéből áll, általános formában pedig

$$\hat{H}_e = \hat{\mathbf{S}}^T \mathbf{D} \hat{\mathbf{S}} - \mu_B \mathbf{B}^T \mathbf{g} \hat{\mathbf{S}}, \quad (2.8)$$

ahol $\hat{\mathbf{S}}$ a centrális spin operátor-vektora, $\mathbf{D}$ a zérus-tér kölcsönhatást leíró tenzor, μ_B a Bohrmagneton, $\mathbf{B} = (B_x, B_y, B_z)^T$ a rendszerre ható külső mágneses tér, $\mathbf{g}$ pedig a $\mathbf{g}$ -tenzor.

A $S = 1/2$ elektron spin különböző spinállapotainak energiaszintjei alapvetően degeneráltak, amennyiben nincsen a rendszerre ható külső mágneses tér, nemnulla tér esetén pedig $\Delta E = |g\mu_B B(m_{S_1} - m_{S_2})|$ módon szétválnak, ahol m_{S_i} az i -edik spinállapot térrel párhuzamos komponensének spinkvantumszáma. Ha a vizsgált spinrendszer teljes spinje $S > 1/2$, azaz egynél több párosítatlan elektron spin alkotja az elektronállapotokat, a zérus-tér kölcsönhatás hatására az energiaszintek 0 külső mágneses tér mellett is szétválnak (ld. a 2.2. ábrát).

A $\mathbf{D}$, és a $\mathbf{g}$ tenzorok komponensei meghatározhatóak a

$$D_{ab} = \frac{\mu_0}{8\pi} g_e^2 \mu_B^2 \int \hat{\rho}_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \frac{r^2 \delta_{ab} - 3r_a r_b}{r^5} d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2, \quad (2.9)$$

$$g_{ab} = \frac{1}{\mu_B} \frac{\partial^2 E}{\partial B_a \partial S_b} \Big|_{B=0, S=0} \quad (2.10)$$

módokon, ahol μ_0 a vákuumpermeabilitás, $\hat{\rho}_2$ kétrészecske sűrűségmátrix, r_a és r_b az $\mathbf{r} = \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2$ különbségvektor koordinátái, E pedig a relativisztikus sokelektron rendszer energiája [15].

Mivel a $\hat{\rho}_2$ kétrészecske sűrűségmátrix szimmetrikus, mely tulajdonság az integrálás során megőrződik, a zérus-tér tenzor – és a Young-tétel érvényességéből kifolyólag a g -tenzor is – szimmetrikus, tehát diagonális alakba transzformálható. A főtengely-transzformációt meghatározó bázis z -komponense $\mathbf{D}$ és $\mathbf{g}$ esetén rendre a spin az atomrács háromfogású szimmetriatengelyével, valamint a külső mágneses tér irányával egybeeső orientációjú komponensét reprezentáló operátor, melyet alkalmazva a mátrixok

$$\mathbf{D} = \begin{pmatrix} -\frac{1}{3}D + E & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{1}{3}D + E & 0 \\ 0 & 0 & \frac{2}{3}D \end{pmatrix}, \quad \mathbf{g} = \begin{pmatrix} g_x & 0 & 0 \\ 0 & g_y & 0 \\ 0 & 0 & g_z \end{pmatrix}.$$

alakban adhatók meg. A D és E paraméterek jellemzik az energiszintek szétválasztásáért felelős zérus-tér kölcsönhatás axiális és transzverzális komponensét, és amelyek paramágneses elektron rezonancia (EPR) vagy optikailag detektált mágneses rezonancia (ODMR) mérésekkel megállapíthatóak [12][16]. A szimulációban alkalmazott $\mathbf{B}$ külső mágneses térnek csak a szimmetriatengellyel párhuzamos komponense nemnulla, így a Hamilton-operátor a következő alakra redukálható

$$\hat{H}_e = D \left(\hat{S}_z^2 - \frac{S(S+1)}{3} \mathbb{I} \right) + E \left(\hat{S}_x^2 - \hat{S}_y^2 \right) + \frac{\gamma_e}{2\pi} B_z \hat{S}_z, \quad (2.11)$$

ahol $\frac{\gamma_e}{2\pi} = |g_z \mu_B|$ az elektron giromágneses faktora, $\mathbb{I}$ az identitásmátrix és a Zeeman-tag előjelének változása az elektron negatív g -faktora miatt jön be. A centrális spin energia sajátértékeinek mágnesestér függését az a 2.2. ábra mutatja, amelyen megfigyelhetők a zérus-tér kölcsönhatás okozta felhasadások.

2.3.2. A spinfürdő Hamilton-operátora

A mag-Zeeman kölcsönhatás, a magok közt ható mágneses dipól-dipól kölcsönhatás és a mag-kvadrupól kölcsönhatás járulékaik adják a spinfürdő Hamilton-operátort

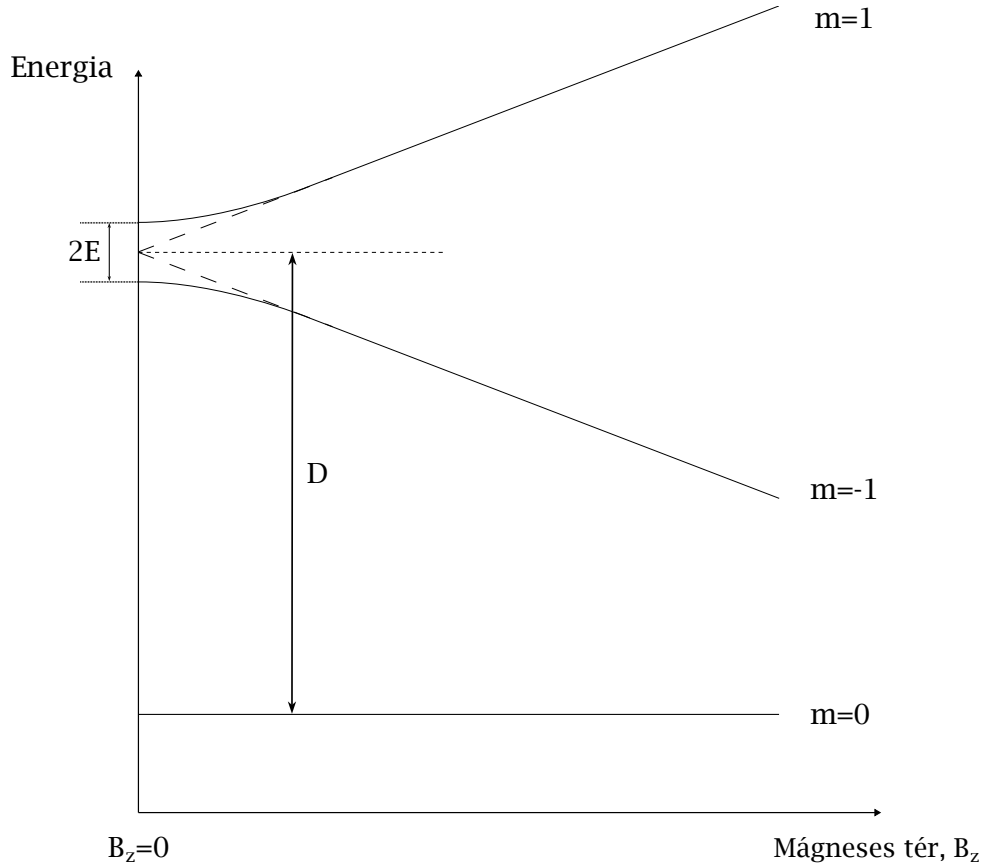
$$\hat{H}_b = - \sum_i \frac{\gamma_n}{2\pi} \mathbf{B}^T \hat{\mathbf{I}}_i + \sum_{i < j} \hat{\mathbf{I}}_i^T \mathbf{J}_{ij} \hat{\mathbf{I}}_j + \sum_i \hat{\mathbf{I}}_i^T \mathbf{Q}_i \hat{\mathbf{I}}_i, \quad (2.12)$$

ahol $\frac{\gamma_n}{2\pi} = |g_n \mu_N|$ a nukleáris giromágneses faktor (g_n és μ_n rendre a nukleáris g -faktor és a mag-magneton), $\hat{\mathbf{I}}_i = (\hat{I}_{x,i}, \hat{I}_{y,i}, \hat{I}_{z,i})^T$ jelöli az i -edik magspin operátor-vektort, $\mathbf{J}_{ij}$ és $\mathbf{Q}_i$ reprezentálja a dipól-dipól és kvadrupól kölcsönhatásokat, rendre. A $\sum_{i < j}$ jelölés az összes lehetséges párosítást egyszer véve történő összegzést jelzi.

$\mathbf{Q}$ formálisan a zérus-tér kölcsönhatás mátrixával azonos módon határozható meg, tehát azonosan diagonalizálható is [18]

$$\mathbf{Q} = \begin{pmatrix} Q_1 & 0 & 0 \\ 0 & Q_2 & 0 \\ 0 & 0 & Q_3 \end{pmatrix} = \frac{eQV_{zz}}{4I(2I-1)} \begin{pmatrix} -(1-\eta) & 0 & 0 \\ 0 & -(1+\eta) & 0 \\ 0 & 0 & 2 \end{pmatrix},$$

ahol e az elektron töltése, Q az atommag elektromos kvadrupól momentuma, $V_{zz} = \frac{\partial^2 V}{\partial z^2}$ az elektromos potenciál z (szimmetriatengely) szerinti második deriváltja a magspin helyén, I pedig az atommag spinje. $\eta = (Q_1 - Q_2)/Q_3$ paraméter, amely az atommagot körülvevő rács háromfogású szimmetriája esetén $\eta = 0$. A vakancia környékén ez a szimmetria sérül, így ekkor a közelítés érvényességének megállapítására további megfontolások szükségesek (ld. 4.1. *A kristályrács*



2.2. ábra. Illusztráció a D és E paraméterek energiaszintekre gyakorolt hatásáról egy $S = 1$ -es rendszerben. (Reprodukálva [17] alapján.)

rétegeinek szerkezete), azonban amennyiben $\eta \approx 0$ érvényes a spinfürdő Hamilton-operátora felírható a következő redukált alakban

$$\hat{H}_b = - \sum_i \gamma_N B_z \hat{I}_{z,i} + \sum_{i < j} \hat{\mathbf{I}}_i^T \mathbf{J}_{ij} \hat{\mathbf{I}}_j + \sum_i \frac{3eQV_{zz}}{4I(2I-1)} \left(\hat{I}_{z,i}^2 - \frac{I(I+1)}{3} \mathbb{I} \right). \quad (2.13)$$

A magspinek közötti dipól-dipól kölcsönhatást leíró mátrix az

$$\mathbf{J}_{ij} = \frac{\mu_0 \mu_N^2 g_i g_j}{4\pi r^3} \left(\mathbb{I} - \frac{3\mathbf{r} \otimes \mathbf{r}}{r^2} \right) \quad (2.14)$$

alakban adható meg, ahol $\mathbf{r} = \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j$, $\otimes$ pedig a diadikus szorzást jelöli.

2.3.3. A kölcsönhatási Hamilton-operátor

A centrális spin és a spinfürdő közötti hiperfinom kölcsönhatást leíró Hamilton-operátor

$$\hat{H}_{int} = \sum_i \hat{\mathbf{S}}^T \mathbf{A}_i \hat{\mathbf{I}}_i, \quad (2.15)$$

ahol $\mathbf{A}_i$ a hiperfinom kölcsönhatást leíró tenzor. Komponensihez az izotróp Fermi átfedési tag és az anizotróp mágneses dipól-dipól kölcsönhatási tag ad járulékot, amelyek rendre [15]

$$A_{ab} = \frac{2\mu_0}{3} \gamma_e \gamma_n \frac{\sigma(\mathbf{R})}{S} + \frac{\mu_0}{4\pi S} \gamma_e \gamma_n \int \frac{3r_a r_b - r^2 \delta_{ab}}{r^5} \sigma(\mathbf{r}) d\mathbf{r}, \quad (2.16)$$

$\mathbf{r}$ az elektron spin és az $\mathbf{R}$ -ben lévő magspin közötti vektor, $\sigma(\mathbf{r})$ pedig az elektron spinsűrűség $\mathbf{r}$ -ben.

2.4. A rendszer időfejlődése

Az időfüggő Schrödinger-egyenlet

$$\hat{H} |\Psi\rangle = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi\rangle \quad (2.17)$$

megoldása a Schrödinger-formalizmus alkalmazásával megadható az általános formában

$$\begin{aligned} |\Psi\rangle &= \hat{U}(t) |\Psi_0\rangle, \\ \hat{U}(t) &= \mathcal{T} \exp \left(-\frac{i}{\hbar} \int_0^t \hat{H}(\tau) d\tau \right), \end{aligned} \quad (2.18)$$

ahol $|\Psi_0\rangle$ a kezdeti állapot, $\hat{U}(t)$ a propagátor, amely unitér, $\mathcal{T}$ pedig az időrendező operátor. A sűrűségmátrix időfejlődése ekkor

$$\hat{\rho}(t) = \hat{U}(t) \hat{\rho}_0 \hat{U}^\dagger(t). \quad (2.19)$$

Amennyiben a Hamilton-operátor nem függ az időtől ($\hat{H} = \hat{H}(t)$, pl. statikus zaj Hamilton-operátora), az időfüggetlen Schrödinger-egyenlet

$$\hat{H} |\Psi\rangle = E |\Psi\rangle \quad (2.20)$$

megoldását meghatározó propagátor a

$$\hat{U}(t) = e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H} t} \quad (2.21)$$

alakra egyszerűsödik. Ekkor a $|\Psi\rangle$ állapot kétdimenziós Hilbert-tér esetén

$$|\Psi\rangle = a |\Psi_-\rangle + \sqrt{1 - a^2} e^{-\frac{i}{\hbar} (E_+ - E_-) t} |\Psi_+\rangle \quad (2.22)$$

alakú lesz, ahol $|\Psi_-\rangle$ és $|\Psi_+\rangle$ a Hamilton-operátor sajátállapotai, E_- és E_+ pedig a megfelelő sajátértékek.

2.5. Alacsony dimenziós kvantum rendszerek relaxációs folyamatai

Egy kétállapotú kvantumrendszer (kubit) Hilbert-terében az $\hat{\mathbf{S}}^2$ (és egyben $\hat{S}_z$) spinoperátor sajátállapotai bázist alkotnak. Ekkor például egy $S = 1/2$ spinű részecske $|0\rangle$ és $|1\rangle$ sajátállapotainak (vagy egy $S = 1$ spinnel rendelkező vakancia $|1\rangle$ sajátállapotáról lecsatolt $|0\rangle$ és $|-1\rangle$ sajátállapotainak) dekoherenciafolyamatait alapvetően két kategóriába lehet besorolni, attól függően, hogy a környezet (pl. a spinfürdő) a rendszerre nézve milyen orientációjú és karakterizikájú zajt kelt, vagyis a rendszer $\hat{\rho}$ sűrűségmátrixának mely komponenseiben és milyen időállandóval jelenik meg lecsengés. Tiszta állapotok esetén

$$\begin{aligned} \hat{\rho} &= |\Psi\rangle \langle \Psi| \\ |\Psi\rangle &= \cos \frac{\theta}{2} |0\rangle + \sin \frac{\theta}{2} e^{i\varphi} |1\rangle, \end{aligned} \quad (2.23)$$

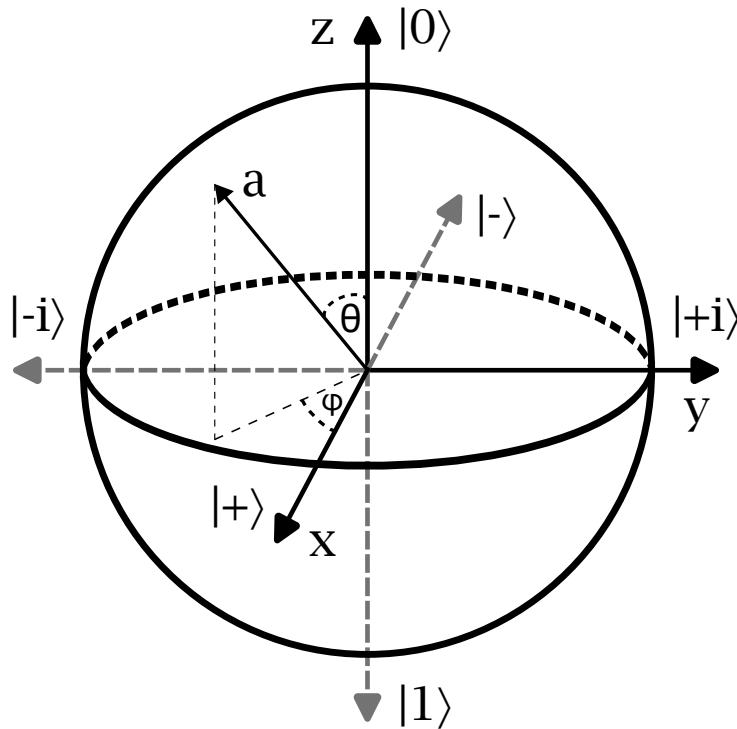
ahol θ a rendszer sajátállapotainak populációit, φ pedig a fáziseltérésüket meghatározó paraméter.

Longitudinális relaxáció esetén a sűrűségmátrix diagonális komponensei változnak, ezek $\rho_{00} - \rho_{11}$ különbsége jelenti a polarizáció mértékét. $\rho_{00} = \rho_{11}$ esetén a rendszeren végzett mérés

hatására a kubit azonos valószínűséggel kerül a két sajátállapotába, így a populációk nagyságában tárolt információ elveszett. Ez Bloch-reprezentációban ekvivalens a 2.24. egyenlet alapján definiált a Bloch-vektor longitudinális (a_z) komponensének lecsengésével (ld. a 2.3. ábrát).

$$\hat{\rho} = \frac{\mathbb{I}}{2} + \mathbf{a}\hat{\mathbf{S}}, \quad \hat{\mathbf{S}} = (\hat{S}_x, \hat{S}_y, \hat{S}_z)^T \quad (2.24)$$

A longitudinális relaxáció oka, hogy a külső zaj hatására véletlenszerűen megtörténik a sajátállapotok közti $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$ vagy $|1\rangle \rightarrow |0\rangle$ spin-flip átmenet, ekkor a populációk lecsengésének karakterisztikus ideje (relaxációs ideje) $T_1 = \frac{1}{(1+e^{\beta\omega_0})\gamma}$, ahol γ az $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$ átmenet előfordulásának frekvenciája, $\beta = \frac{1}{k_B T_{env}}$ (k_B Boltzmann-állandó, T_{env} a környezet hőmérséklete), ω_0 pedig a $|1\rangle \rightarrow |0\rangle$ átmenet esetén a környezetből a rendszerbe kerülő energikvantum [19].



2.3. ábra. Kétállapotú kvantumrendszer reprezentációja a Bloch-gömbön. A transzverzális komponensek pólusai az alábbiak szerint adódnak:

$$\begin{aligned} |+\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|0\rangle + |1\rangle) & |+i\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|0\rangle + i|1\rangle) \\ |-\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|0\rangle - |1\rangle) & |-i\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|0\rangle - i|1\rangle) \end{aligned}$$

Transzverzális relaxáció során a sűrűségmátrix offdiagonális komponensei csengenek le, melyek abszolút értéke a Bloch-reprezentációban a Bloch-vektor $\sqrt{a_x^2 + a_y^2}$ transzverzális komponenseinek a négyzetösszegéből képzett abszolút értéknek felel meg. Longitudinális relaxáció mellett mindig végbemegy transzverzális is, azonban dinamikus kvantumzaj, valamint statikus termikus zaj hatására tiszta transzverzális relaxáció megy végbe, mely során a zaj inkoherens módon változtatja a sajátállapotok közötti φ fáziseltolás nagyságát.

1. Dinamikus kvantumzaj hatására valódi dekoherencia történik, a környezet γ_φ frekvenciával okoz egy fázisugrást, ennek hatására pedig a sűrűségmátrix offdiagonális elemei $T_\varphi = \frac{1}{2\gamma_\varphi}$ koherenciaidővel exponenciálisan lecsengenek.

2. Statikus termikus zaj – amely az adott mérés során stacionárius, azonban különböző méréseket tekintve változó – hatására az adott sokaságon végzett mérésekre nézve inhomogén

fáziseltolások történnek, amelyeket a sűrűségmátrixban $\hat{\rho} = \sum_i p_i |\Psi_i\rangle \langle \Psi_i|$ módon összegezve az offdiagonális komponensek az idő függvényében lecsengenek. A koherenciafüggvény ekkor a zajt jellemző eloszlás paraméterének Fourier-transzformáltja, így például σ szélességű gaussi eloszlás esetén a sokaság koherenciaideje $T_2^* = \sqrt{\frac{2}{\sigma}}$ [19]. A zaj hatása, adott mérésre vonatkozó statikus volta miatt, különböző spinmanipulációs módszerekkel teljesen megszüntethető (ld. 2.5.1. *A Hahn echo pulzusszekvencia*).

A statikus termikus zaj hatását elnyomva és a különböző dekoherencia folyamatokat összegezve a sűrűségmátrixok dekoherenciájának karakterisztikus ideje

$$T_2 = \left(\frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T_\varphi} \right)^{-1} \leq 2T_1, \quad (2.25)$$

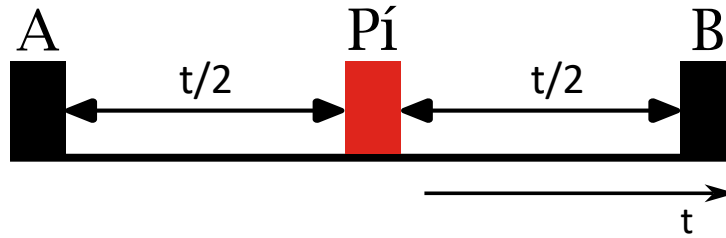
amely az általában teljesülő $T_1 \gg T_\varphi$ feltétel esetén $T_2 \approx T_\varphi$.

2.5.1. A Hahn echo pulzusszekvencia

A dinamikus kvantumzajok által okozott valódi dekoherencia $T_2 \approx T_\varphi$ karakterisztikus idejének meghatározásához a rendszer időfejlődése során szükséges a környezet által indukált statikus termikus zaj kiküszöbölése. A Hahn echo pulzusszekvencia lényege, hogy a polarizált kubitállapotot egy $\pi/2$ -pulzussal a teljesen kevert $|\Psi_0\rangle = |+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|0\rangle + |1\rangle)$ kezdőállapotba inicializálja, majd ennek időfejlődéséből az adott mérés során stacionárius, sokaságra vetítve inhomogén zajból fakadó dekoherenciát kitranszformálja [20][21]. A kiolvasás során az állapotra egy újabb $\pi/2$ -pulzus hat, mely a dekoherenciát a longitudinális komponensek relaxációjává transzformálja vissza, ez pedig mérhető mennyiség. A módszer a 2.4. ábrán látható spinmanipulációs szekvencia alkalmazásával valósítható meg, ahol a π -pulzus a rendszer állapotaira ható

$$\hat{U}_P = e^{-i\sigma_x\pi/2} \quad (2.26)$$

operátor hattatását jelenti (σ_x a megfelelő Pauli-mátrix). Ez Bloch-reprezentációban egy x tengely körüli, π szögű forgatással ekvivalens.



2.4. ábra. A Hahn echo pulzusszekvenciája. A: inicializáció ($\pi/2$ -pulzus), Pí: π -pulzus, B: kiolvasás ($\pi/2$ -pulzus).

Ekkor a rendszer propagátora a 2.21. egyenlet alapján

$$\hat{U}(t) = \hat{U}(t/2)\hat{U}_P\hat{U}(t/2) = e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}t/2}e^{-i\sigma_x\pi/2}e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}t/2} \quad (2.27)$$

szerint módosul. Legyen a Hamilton-operátor $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{\mathbf{b}}^T \hat{\mathbf{S}}$, amely a teljes rendszer Hamilton-operátorának és egy stacionárius zajt leíró operátor járulékanak összege, valamint tegyük fel, hogy $\hat{\mathbf{b}}^T \hat{\mathbf{S}}$ kifejezhető $\hat{S}_z$ sajátbázisán. Ekkor a Hamilton-tagjainak a

$$(\hat{H}_0 + \hat{\mathbf{b}}^T \hat{\mathbf{S}}) |\Psi\rangle = \hat{H}_0 |\Psi\rangle + \hat{\mathbf{b}}^T \hat{\mathbf{S}} |\Psi\rangle \longrightarrow \hat{U}_{bS}(t) = e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{\mathbf{b}}^T \hat{\mathbf{S}} t}, \quad (2.28)$$

egyenlet szerinti különválasztásával vizsgálható a zajoperátor hatása a sajátállapotok közötti fáziseltérés időfejlődésére, valamint, mivel $\hat{\mathbf{b}}^T \hat{\mathbf{S}}$ időfüggetlen, a zaj Hamilton-tag által generált

propagátor ($\hat{U}_{bS}$) megadható a 2.21. egyenlet alakjában, és kifejezhető a $\{|0\rangle, |1\rangle\}$ bázison

$$\begin{aligned} e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{\mathbf{b}}^T\hat{\mathbf{S}}t/2}|+\rangle &= e^{-\frac{i}{\hbar}b_+t/2}\frac{|0\rangle}{\sqrt{2}} + e^{-\frac{i}{\hbar}b_-t/2}\frac{|1\rangle}{\sqrt{2}} = \\ &= e^{-\frac{i}{\hbar}t/2}\left(\frac{e^{b_+} + e^{b_-}}{2}|+\rangle + \frac{e^{b_+} - e^{b_-}}{2}|-\rangle\right), \end{aligned} \quad (2.29)$$

ahol b_+ és b_- a $\hat{\mathbf{b}}^T\hat{\mathbf{S}}$ operátor sajátértékei. Ekkor az $\hat{U}_P$ pulzusoperátor $\{|+\rangle, |-\rangle\}$ sajátbázisán való kifejtésével meghatározható a zaj kontribúciója az állapot időfejlődéséhez

$$e^{-i\sigma_x\pi/2} = -i|+\rangle\langle+| + i|-\rangle\langle-|, \quad (2.30)$$

$$\hat{U}_{bS}(t/2)\hat{U}_P\hat{U}_{bS}(t/2)|\Psi_0\rangle = -ie^{-\frac{i}{\hbar}(b_++b_-)t}\frac{|0\rangle}{\sqrt{2}} - ie^{-\frac{i}{\hbar}(b_++b_-)t}\frac{|1\rangle}{\sqrt{2}}. \quad (2.31)$$

Látható, hogy az állapotok közötti fáziseltolás a π -pulzus alkalmazása esetén időben nem változik. Ez $\hat{\mathbf{b}}^T\hat{\mathbf{S}}$ tetszőleges $\{a|0\rangle + \sqrt{1-a^2}e^{i\varphi}|1\rangle, \sqrt{1-a^2}|0\rangle - ae^{i\varphi}|1\rangle\}$ bázisállapotokon történő kifejtése esetén teljesül, tehát a π -pulzus valóban alkalmas a statikus termikus zajok kiküszöbölésére.

3. fejezet

Módszerek

E fejezetben részletesen ismertetem a ponthibák elméleti modellezésére legszélesebb körben használt modell tradicionális, valamint jelen munkában is alkalmazott általánosított verzióját, mely lehetővé teszi a nagy számítási igényű szimulációk validálható pontosságú elvégzését. A fejezet végén bevezetek két közelítést, melyek segítségével a teljes modellen túl egyes hatások szeparáltan vizsgálhatóak, valamint röviden bemutatom a módszer Wolfram Mathematica implemetációját.

3.1. A klaszter-korrelációs sorfejtés

A klaszter-korrelációs sorfejtés (CCE) egy spinfürdő rendszer dekoherenciájának vizsgálatára kidolgozott módszer, melyet más ponthibák időfejlődésének szimulálására már sikerrel alkalmaztak [22][23]. Használatával szeparálható a kubit-magspin és kubit-több magspin alrendszerek hatása, tehát meghatározhatóak a spinfürdőt alkotó spinek összefonódásából eredő korrelációk domináns rendjei, valamint izolálhatóak a dekoherenciát jelentősen befolyásoló klaszterek. E lehetőségek fontos eszköztárat kínálnak a rendszer időfejlődésében jelentős szerepet játszó elemek identifikálására, valamint azok külső vagy belső kölcsönhatási paramétereiktől való függésének vizsgálatára. A módszer alapötlete, hogy egy sokspin rendszer korrelációinak hatása a koherenciára egyes alrendszerek hatására redukálható és nem redukálható tagokból tevődik össze. Amennyiben egy rendszer belső dinamikája egzaktul leírható két szeparált alrendszer belső dinamikájaként, a teljes rendszerben fellépő soktest korrelációk megadhatóak az alrendszerek korrelációinak produktumaként. Ennek következtében pedig az irreducibilis sokspin-fluktuációk dekoherencia-kontribúciója az alrendszerek hatásának kiredukálásával definiálható [24]. Mivel a módszer célja a dinamikus kvantumzaj hatására végbemenő valódi dekoherencia leírása, az alábbiakban spinfürdő-sokaság helyett egy spinfürdő-állapotot veszek.

Feltéve, hogy a spinfürdő által keltett zaj hatására dominánsan transzverzális relaxáció megy végbe – például a nagy B_z külső mágneses tér következtében létrejövő energiafelhasadás elnyomja a hiperfinom kölcsönhatás hatását a centrális spin longitudinális komponensére – a rendszer Hamilton-operátora az alábbi forma szerint szeparálható

$$\hat{H} = |0\rangle \hat{H}_0 \langle 0| + |1\rangle \hat{H}_1 \langle 1|, \quad (3.1)$$

ahol a spinfürdő időfejlődését a kubit-állapottól függően $\hat{H}_{0,1}$ határozza meg. Ekkor a kubitet egy $a_0 |0\rangle + a_1 |1\rangle$ koherens szuperpozícióba inicializálva a rendszer kezdőállapota a

$$|\Psi_0\rangle = (a_0 |0\rangle + a_1 |1\rangle) \otimes |I\rangle \quad (3.2)$$

szorzat lesz, melyben $|I\rangle = \bigotimes_i |i\rangle$ a spinfürdőt alkotó magspinek kezdőállapotainak tenzorszorzata. Az időfejlődés során a centrális spin és a spinfürdő összefonódik, aminek következtében az állapot

$$|\Psi\rangle = a_0 |0\rangle \otimes |I_0(t)\rangle + a_1 |1\rangle \otimes |I_1(t)\rangle \quad (3.3)$$

alakú lesz [24]. Itt $|I_{0,1}(t)\rangle = e^{-i\hat{H}_{0,1}t/\hbar} |I_{0,1}\rangle$ a spinfűrdő kubitállapotra kondicionált időfejlődése. Ekkor a kubit koherenciáját

$$L(t) = |\langle 0|\Psi\rangle \langle \Psi|1\rangle| \quad (3.4)$$

szerint definiálva $L(0) = a_0 a_1^\dagger$ és

$$L(t) = |a_0 a_1^\dagger \langle I_1(t)|I_0(t)\rangle| \quad (3.5)$$

adódik, tehát a kubit valódi, transzverzális dekoherenciáját a spinfűrdő időfejlődésekor fellépő soktest interakciók határozzák meg. A konstans faktor elhagyásával

$$L(t) = \left| \left\langle I \left| e^{i\hat{H}_1 t/\hbar} e^{-i\hat{H}_0 t/\hbar} \right| I \right\rangle \right|. \quad (3.6)$$

Egy π -pulzus hatására a propagátorok rendje felcserélődik, vagyis $\hat{U}_0 \leftrightarrow \hat{U}_1$, emiatt a koherenciafüggvény általános formája [19]

$$L(t) = \left| \left\langle I \left| \mathcal{T}_k e^{-i/\hbar \int_k \hat{H}(\tau) d\tau} \right| I \right\rangle \right| \quad (3.7)$$

lesz, ahol a $\mathcal{T}$ időrendező operátor a $0 \rightarrow t \rightarrow 0$ körvonal szerint rendezi a propagátorokat.

Amennyiben található két alrendszer, amelyek között egzaktul nincs interakció, a spinfűrdő Hamilton-operátora $\hat{H} = \hat{H}^{(1)} + \hat{H}^{(2)}$ szerint felbontható két, az alrendszereken ható operátor összegére. Ekkor a teljes rendszer propagátora felbontható az alrendszerek propagátorainak tenzorszorzatára

$$\begin{aligned} \mathcal{T}_k e^{-i/\hbar \int_k \hat{H}(\tau) d\tau} &= \mathcal{T}_k e^{-i/\hbar \int_k \hat{H}^{(1)}(\tau) d\tau} \otimes \mathbb{I} \cdot \mathbb{I} \otimes \mathcal{T}_k e^{-i/\hbar \int_k \hat{H}^{(2)}(\tau) d\tau} = \\ &= \mathcal{T}_k e^{-i/\hbar \int_k \hat{H}^{(1)}(\tau) d\tau} \otimes \mathcal{T}_k e^{-i/\hbar \int_k \hat{H}^{(2)}(\tau) d\tau}. \end{aligned} \quad (3.8)$$

$\langle \Psi|A \otimes B|\Psi\rangle = \langle \Psi_A|A|\Psi_A\rangle \langle \Psi_B|B|\Psi_B\rangle$ alapján ($|\Psi\rangle = |\Psi_A\rangle \otimes |\Psi_B\rangle$) a koherenciafüggvény ezen alrendszerek koherenciafüggvényeinek produktumára redukálható

$$L(t) = L^{(1)}(t) L^{(2)}(t). \quad (3.9)$$

Ez a tulajdonság motiválja különböző n -ed rendű klaszterek meghatározását, melyek n darab magspint tartalmaznak. Ekkor egy ilyen klaszter teljes koherenciafüggvénye

$$L_C(t) = \left\langle I_C \left| \mathcal{T}_k e^{-i/\hbar \int_k \hat{H}_C(\tau) d\tau} \right| I_C \right\rangle, \quad (3.10)$$

ahol H_C a klaszterben szereplő magspinek egzakt Hamilton-operátora, $|I_C\rangle$ pedig az adott klaszter kezdőállapota. A klaszter spinjeinek nem redukálható korrelációiból eredő dekoherenciát ekkor a teljes koherenciafüggvény alrendszer-kontribúciók szerint normált alakja határozza meg. Ez az alábbi rekurzív formula szerint definiálható [19]

$$\tilde{L}_C(t) = \frac{L_C(t)}{\prod_{C' \subset C} \tilde{L}_{C'}(t)}, \quad (3.11)$$

ahol $\prod'_C$ az összes lehetséges (al)klaszter kontribúciójának produktumát jelöli. Az üres klaszter a 3.5. egyenletben szereplő $a_0 a_1^\dagger$ konstans faktorként jelenik meg ($\hat{H}_C = 0$). A rendszer egzakt koherenciafüggvényét ekkor visszaadja a

$$L(t) = \left| \prod_C \tilde{L}_C(t) \right| \quad (3.12)$$

szorzat, amely a klaszterek alkotó magspinek $|C|$ száma szerint konvergens, tehát meghatározható egy k határszám (a sorfejtés rendje), amelyre teljesül, hogy

$$L(t) \approx \left| \prod_{|C| \leq k} \tilde{L}_C(t) \right|. \quad (3.13)$$

3.2. Az általánosított klaszter-korrelációs sorfejtés

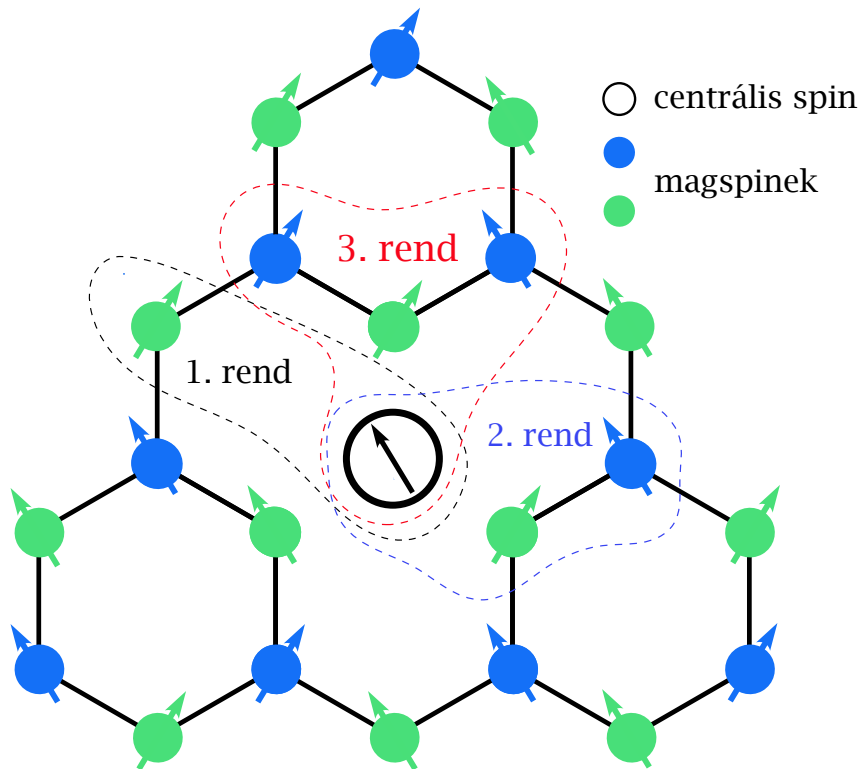
A CCE módszer általánosítását motiválja, hogy az nem alkalmas a kubit longitudinális relaxációjának hatására végbemenő dekoherencia leírására. A CCE módszer által definiált koherenciafüggvény származtatása során fontos lépés volt a rendszert leíró sűrűségmátrix offdiagonális komponensének vétele (ld. a 3.4 egyenletet), amely a következő alakban átírható [25]

$$L(t) = |\langle 0|\Psi\rangle\langle\Psi|1\rangle| = |\langle 0|\hat{\rho}(t)|1\rangle| = \left| \text{Tr}[\hat{\rho}(t)|0\rangle\langle 1|] \right| = \left| \text{Tr}[\hat{U}(t)\hat{\rho}_0\hat{U}^\dagger(t)\underbrace{|0\rangle\langle 1|}_{\hat{P}}] \right|. \quad (3.14)$$

Definiálható tehát egy tetszőleges $\hat{P} = |a\rangle\langle b|$ koherencia-projektor operátor, amely meghatározza, hogy a sűrűségmátrix mely komponense lesz a koherencia mértéke. Az általánosított klaszter korrelációs sorfejtés (gCCE) szerint a dekoherencia forrása a spinfürdő mellett a centrális spin populációinak változása is lehet. Ebből kifolyólag a 3.14. egyenletben szereplő koherenciafüggvény-definíció a teljes kubit-spinfürdő rendszert leíró sűrűségmátrixot tartalmazza.

Az előző szekció gondolatmenetéhez hasonlóan, amennyiben két alrendszer között az időfejlődés során nincs kölcsönhatás, a teljes rendszer sűrűségmátrixa az alrendszerek sűrűségmátrixainak tenzorszorzata lesz, tehát ekkor a koherenciafüggvény ugyanúgy felbontható az alrendszerek koherenciafüggvényeinek szorzatára

$$\text{Tr}[\hat{\rho}^{(1)}(t) \otimes \hat{\rho}^{(2)}(t) \hat{P}] = \text{Tr}[\hat{\rho}^{(1)}(t) \hat{P}_1] \text{Tr}[\hat{\rho}^{(2)}(t) \hat{P}_2] \longrightarrow L_1(t)L_2(t). \quad (3.15)$$



3.1. ábra. Illusztráció az általánosított klaszter-korrelációs sorfejtésben definiált $n = \{1, 2, 3\}$ rendű klaszterekről. A sorfejtés adott rendjének kontribúciója a zárt rendszerekként kezelt klaszterek egzaktul meghatározott koherenciafüggvényének produktuma. A nulladrendű klaszter csak a centrális spint tartalmazza.

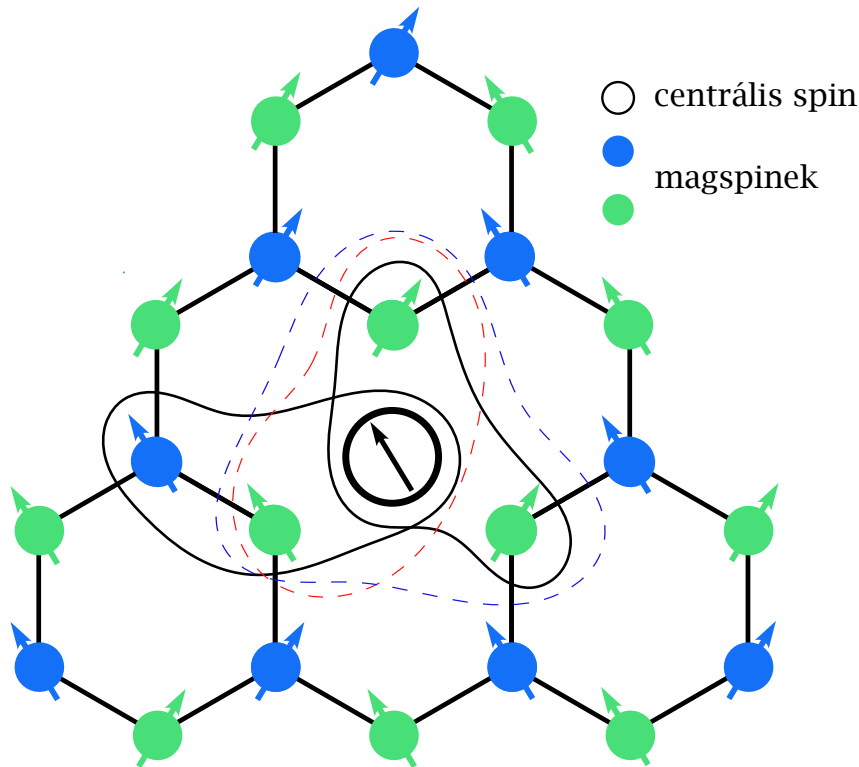
Fontos kiemelni, hogy bár a klaszterek definiálásának motivációja ugyanaz a tradicionális és az általánosított módszerben, utóbbi esetén a klaszterek n darab magspin mellett a centrális spint

is tartalmazzák (ld. a 3.1. ábrát), ilyen módon figyelembe véve a kubit-spinfűrdő interakciókból eredő dekoherenciát. A gCCE sorfejtés a CCE sorfejtésével analóg módon megadható a 3.12. egyenlet szerint, ahol az adott klaszter irreducibilis korrelációinak a járuléka [26]

$$\tilde{L}_C(t) = \frac{\text{Tr}[\hat{\rho}_C(t)\hat{P}]}{\prod_{C' \subset C} \text{Tr}[\hat{\rho}_{C'}(t)\hat{P}]} \quad (3.16)$$

$\hat{\rho}_C(t)$ az adott klaszter egzakt sűrűségmátrixa, melynek propagátorában a klaszter egzakt Hamilton-operátora szerepel.

A lehetséges klaszterek közötti kölcsönhatások a klaszterek átfedéséből eredően implicit módon szerepelnek a CCE és gCCE módszerekben, azonban az általánosított sorfejtés előnye, hogy használatával figyelembe vehetők a centrális spin által közvetített kölcsönhatásokból eredő sok-spin korrelációk is. Ekkor például két másodrendű klaszter kölcsönhatása az őket csatoló másodrendű és harmadrendű klaszterek kontribúciójaként jelenik meg, ennek szemléltetése a 3.2. ábrán látható.



3.2. ábra. Sematikus rajz két másodrendű klaszter (fekete folytonos vonal) kölcsönhatását implicit módon közvetítő másod- (piros szagatott vonal), és harmadrendű (sötétkék szagatott vonal) klaszterekről.

3.3. Szekuláris és pszeudo-szekuláris közelítés

A szekuláris közelítés alapfeltevése szerint a kubit-, illetve magspin-állapotok energiáinak felhasadása kellően nagy ahhoz, hogy a hiperfinom kölcsönhatás által indukált kubit- és magspin-flip átmenetek előfordulását elnyomja. A felhasadás oka lehet a zérus-tér kölcsönhatás vagy kelő erősségű külső mágneses tér. A közelítés alkalmazásakor tehát a spin-flipet előidéző $\hat{S}_x, \hat{S}_y$ és $\hat{I}_x, \hat{I}_y$ operátorokat tartalmazó tagok elhanyagolhatóak a Hamilton-operátorból, amely így

felírható a

$$\hat{H}_{int} = \sum_i A_{zz,i} \hat{S}_z \hat{I}_{z,i} \quad (3.17)$$

redukált alakban.

A közelítés érvényességi feltétele a felhasadás és a hiperfinom csatolási paraméterek viszonyának alapján a kubit és a magspinek esetén rendre

$$\begin{aligned} |D - \gamma_e B_z| &\gg \sum |A_{xx}| + 2|A_{xy}| + |A_{yy}|, \\ \gamma_n B_z &\gg \sum |A_{xx}| + 2|A_{xy}| + |A_{yy}|, \end{aligned} \quad (3.18)$$

melynek az összes hiperfinom mátrixra teljesülnie kell. A centrális spin jelentős D zérus-tér-felhasadása esetén (ld. 4.2. *A Hamilton-operátor paramétereit*), valamint az elektron- és mag giromágneses faktorok $\gamma_e \gg \gamma_n$ aránya miatt a kubitre vonatkozó feltétel a mágneses terek szélesebb tartományán teljesül. Ennek következtében indokolt bevezetni a pszeudo-szekuláris közelítést, amely az energiafelhasadásra vonatkozó megfontolásokat a kubit spinállapotaira korlátozza. Ekkor a kölcsönhatási Hamilton-operátor a következő alakban írható fel

$$\hat{H}_{int} = \sum_i A_{zz,i} \hat{S}_z \hat{I}_{z,i} + A_{zx,i} \hat{S}_z \hat{I}_{x,i} + A_{zy,i} \hat{S}_z \hat{I}_{y,i}. \quad (3.19)$$

3.4. A harmadrendű gCCE módszer Wolfram Mathematica implementációja

Az általánosított klaszter korrelációs sorfejtéssel végzett számolások elvégzéséhez Wolfram Mathematicát használtam. A módszer standard verzióját témavezetőm implementálta, ennek használatát munkám során elsajátítottam, majd azt a kutatás során felmerülő problémák megoldására továbbfejlesztettem.

A kód a spinoperátorok és Hamilton-tagok meghatározása után importálja a magspinek térbeli elhelyezkedését és hiperfinom mátrixaikat tartalmazó adatfájlt, majd ez alapján a határsugarak figyelembevételével meghatározza a különböző rendű klasztereket és a másod-, valamint harmadrendű klaszterek esetén kiszámolja a mag dipól-dipól kölcsönhatási mátrixokban szereplő értékeket. A különböző rendű koherenciafüggvények sorosan vannak meghatározva, a szükséges magspin-paraméterek beállítását követően a klaszter egzakt Hamilton-operátora alapján kiszámításra kerül a propagátor, mely segítségével a koherenciafüggvény értéke tetszőleges idő szerinti felbontással meghatározható.

A kezdőállapot, a π -pulzus és a koherencia-projektor operátor definiálása, saját fejlesztés alapján, az 5.1. (*A rendszer kiindulási állapotának meghatározása*) alfejezetben leírtak szerint történik. A koherenciafüggvény-illesztéseket külön, saját fejlesztésű és implementációjú kóddal végeztem, saját fejlesztés továbbá a spinfürdő tisztán nitrogénből és bórból álló alrendszerekre szeparálásának implementációja és a szekuláris, illetve pszeudo-szekuláris közelítések beépítése a szimulációba, valamint az első szomszéd nitrogén magspinek kezdőállapotainak polarizálhatóvá tétele (ld. 5.6. *A három első-szomszéd nitrogén magspin polarizációjának hatása a dekoherenciára*).

A szimulációban szereplő klaszterek Hilbert-terének legnagyobb lehetséges dimenziószáma egy csak bór magspinekből álló harmadrendű klaszter esetén $3 \cdot 4^3 = 192$, azonban már egy bórt és egy nitrogént tartalmazó klaszter is $3 \cdot 2 \cdot 4 = 24$ dimenziós, a szimuláció futtatása azonos méretű mátrixokkal történő számolást követel meg. A futtatásokat saját számítógépen végeztem, így a futási idők nagyságrendje az 5.3. (*A konvergenciasugarak meghatározása*) alfejezetben részletezett határsugarak mellett 1-2 óra.

4. fejezet

A hexagonális bór-nitrid és a VB centrum jellemzői, paramétere

Az alábbiakban bemutatom a vizsgált anyag atomi szerkezetét és a vakancia centrum elektronállapotaiból képződő kubit inicializálását és kiolvasását lehetővé tevő kísérleti metódusokat, valamint felsorolom kölcsönhatási paraméterek szimulációban felhasznált numerikus értékeit és részletezem azok meghatározásának módjait.

4.1. A kristályrács rétegeinek szerkezete

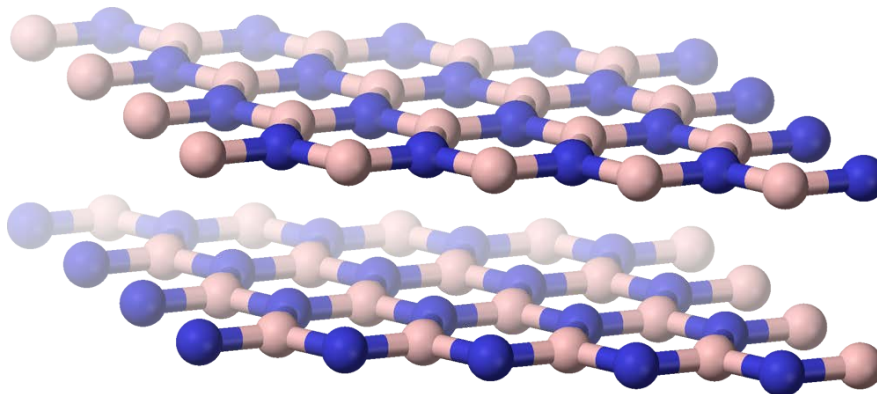
A hexagonális bór-nitrid kristályszerkezete a grafén szerkezetéhez hasonló hatszögrácsos rétegekből álló lamináris rács (ld. a 4.1. ábrát). A VB centrumot egy bór vakancia ponthiba és egy a környezetből lekötött elektron alkotja, melynek legmagasabb pontcsoport szimmetriája D_{3h} lehet, tehát egy háromfogású forgási szimmetriatengely és három ezzel párhuzamos tükörsík mellett a vakancia egy erre a tengelyre merőleges tükörsíkkal is rendelkezik. Az atomrács deformációja vagy elektromos tér hatására a szimmetria C_{3v} vagy C_{2v} (három- vagy kétfogású forgéstengely, erre merőleges tükörsík nélkül) szimmetriára redukálódhat [27].

A vakanciát körülvevő atomok felszabaduló kötéseiből eredő elektronfelhők az anyag tiltott sávján belül létrehozhatnak több degenerált és nem degenerált energiájú elektronállapotot, amelyek így jól lecsatolódnak a ponthibát magába foglaló bór-nitrid elektronállapotaikról. Ezek közül a gerjesztett vagy gerjesztetlen, nem betöltött állapotok hoznak létre 1-es spinű rendszereket. Optikai gerjesztés, illetve optikailag detektált mágneses rezonancia jelek mérése lehetővé teszi ezen állapotok polarizálását, illetve kiolvasását.

Az elektronállapotok között bonyolult struktúra szerint történhetnek spintartó és nem spintartó átmenetek, különböző valószínűségi rátákkal. Az optikai inicializáció az ezen ráták közötti spinfüggő különbséget használja ki, melynek során az alapállapotú elektron valamilyen optikai energiáimpulzus hatására egy gerjesztett állapotba kerül, majd onnan spinszelektív módon tér vissza az alapállapotba. Az ilyen energiáimpulzusokkal történő folyamatos optikai pumpálás hatására a spinállapot jelentős (95%) mértékben polarizálható.

A centrális spin polarizációja után – a Hamilton-operátor sajátállapotai szerint – a $|\pm 1\rangle$ és $|0\rangle$ vagy $|\pm\rangle$ és $|0\rangle$ állapotok közötti energiafelhasadás meghatározásával a VB centrum elektronspin állapotaira alkalmazható egy rezonáns rádióhullámú gerjesztés, amely ezt a különbséget kitranszformálja. Ennek következtében Rabi-oszcilláció valósul meg, vagyis az elektron spin a $|\pm 1\rangle$ (vagy $|\pm\rangle$) és $|0\rangle$ állapotok között precesszál. A Rabi-frekvencia ismeretében a precesszió idejének változtatásával az állapotok tetszőleges keveréke inicializálható.

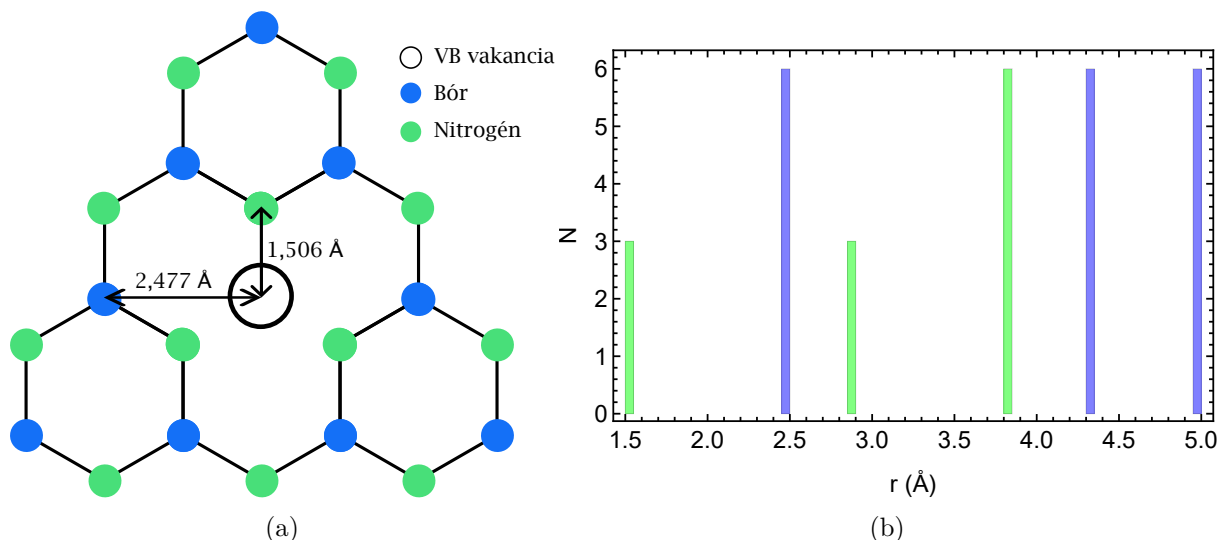
Az optikai kiolvasást a fotolumineszcencia jelensége teszi lehetővé, mely során a nagyobb energiájú állapotból alacsonyabb energiájú állapotba kerülő elektron fotont bocsát ki. Ez a folyamat a VB centrum esetén a hexagonális bór-nitridben szintén spinállapot függő, ami így lehetővé teszi a spinállapot optikai detektálását.



4.1. ábra. A hexagonális bór-nitrid grafénszerű réteges szerkezete.

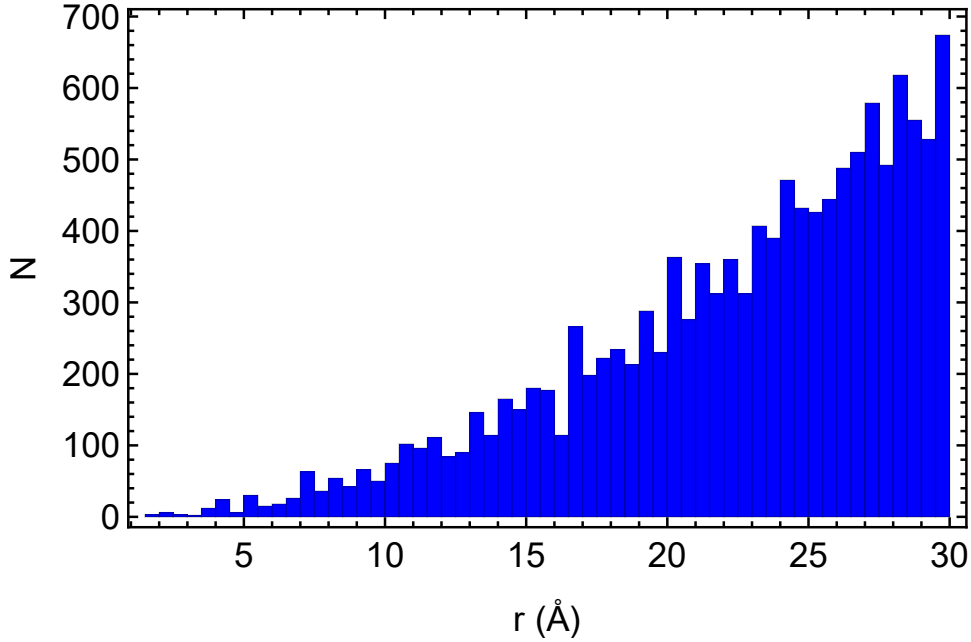
A VB centum spinfűrdő modellje egy vakancia spinből (centrális spin, $S = 1$), valamint az azt körülvevő, az anyag rétegeinek hatszögrácsos struktúrája szerint elhelyezkedő bór (^{11}B , $S = 3/2$) és nitrogén (^{15}N , $S = 1/2$) magspinekből áll (ld. a 4.2a ábrát). A szimulációban vizsgált ^{11}B és ^{15}N izotópok természetes előfordulása rendre 80,1% és 0,368%. Az irodalomban a hB^{15}N rendszert elméleti úton még nem vizsgálták, emellett a 15-ös nitrogén izotóp választását a magspinek nagysága indokolja, ugyanis a gyakrabban előforduló 14-es izotóp spinje 1-es, ami a számítási kapacitásigény jelentős növekedéséhez vezetett volna.

A legközelebbi szomszédos nitrogén és bór atommagok átlagos távolsága a vakanciától rendre 1,506 Å és 2,477 Å. A magspinek vakancia centrumtól vett távolságát ábrázoló hisztogram látható a 4.2b és a 4.3. ábrán.



4.2. ábra. (a) Sematikus ábra a hatszögletű bór-nitrid egy VB vakanciát tartalmazó rétegről. (b) Hisztogram a legközelebbi, azonos rétegben elhelyezkedő atomok vakanciától vett távolságáról. Az x-tengelyen szerepel a távolság, angströmben mérve, az y tengelyen pedig az atommagok száma az adott tartományban. A tartományok szélessége 0,1 Å.

A szimulációban használt mintában a magspinek egy $r = 30$ Å sugarú gömbön belül helyezkedtek el, amely a gCCE sorfejtés rendjeinek figyelembevételével elegendően nagy térfogatnak bizonyul. Két hatszögrácsos réteg távolsága $\approx 3,27$ Å, tehát a rétegek közötti kölcsönhatások hatása másodrendű a vakanciát tartalmazó réteg magspinjeinek hatásához képest.



4.3. ábra. Hisztogram a magspinek távolságáról, a vakancia centrumtól mérve. A tartományok szélessége 0,5 Å.

A hBN-t alkotó atomi rács minden pontján nemnulla spinű atommag található, így az ebből képzett spinfürdő igen sűrű. Összehasonlításképpen, nagyságrendekkel ritkább spinfürdő veszi körül a gyémántban előforduló nitrogén-vakancia (NV) centrumot. A gyémánt kristályrácsában a szomszédos atomok távolsága hasonló a bór-nitridéhez ($\sim 1,5$ Å), továbbá többnyire $S = 0$ spinű ^{12}C szén atommagok alkotják, a dekoherencia forrásai pedig a rácsban található ^{13}C izotópok ($S = 1/2$), melyek természetes előfordulása csupán 1,07%.

4.2. A Hamilton-operátor paraméterei

A számolások során a normált $\hat{H}/h$ Hamilton-operátort használom, amely így frekvencia mértékegységű; $[\hat{H}] = 1/s$. A spin-Hamilton-operátort meghatározó, rendszerre jellemző paramétereket ennek megfelelően h -val normált alakban, Hz, illetve MHz mértékegységben adom meg.

A zérus-tér kölcsönhatást meghatározó paraméterek értékei a kísérleti úton meghatározott értékek [12]:

$$D = 3470 \text{ MHz}, \quad E = 50 \text{ MHz}. \quad (4.1)$$

Az E paraméter értéke csak a vakancia szimmetriájának sérülése miatt lehet nemnulla, amely lehet a rácsszerkezet valamilyen térbeli- vagy az elektronfelhők külső elektromos tér hatására történő torzulása. A szerkezeti torzulás, illetve az elektromos tér hatását a Hamilton-operátor perturbációjaként kezelve megállapítható, hogy a V_{B}^- vakancia esetén az E paraméter értéke a vakancia szimmetriatengelyére merőleges elektromostér-fluktuációból ered [28].

A szimulációban a g -faktor mátrix megfelelő komponense $g_z \approx g_e$ szerint van közelítve, ahol g_e a szabad elektron g -faktora. Ekkor az elektron spin és a magspinek giromágneses faktora

$$\gamma_e = 2,802\,55 \frac{\text{MHz}}{\text{G}}, \quad \gamma_{^{15}\text{N}} = -0,000\,431\,736 \frac{\text{MHz}}{\text{G}}, \quad \gamma_{^{11}\text{B}} = 0,001\,366\,33 \frac{\text{MHz}}{\text{G}}. \quad (4.2)$$

A centrális spin és az egyes magspinek közötti hiperfinom kölcsönhatást jellemző tenzorok komponensei közelíthetők a széles körben használt VASP (Vienna ab-initio simulation package) programcsomaggal. Gyengén csatolt, távoli magspinek esetén ez a kísérletileg meghatározott adatokkal összevetve több, mint 100%-os relatív hibájú eredményt ad [29], így a jelen munkában

felhasznált értékek egy új, továbbfejlesztett szimulációval lettek meghatározva. A VASP pontosságának javítása a pszeudo-spinsűrűségek valós spinsűrűségekkel történő részleges helyettesítésén alapul, mellyel a hiperfinom paraméterek 10 – 20 kHz-es pontossággal megadhatóak [29]. Ezzel a módszerrel, a csatolási paraméterek a ^{14}N izotópra kiszámolt értékekből a $\mathbf{A}^{(15\text{N})} = \frac{\gamma_{15\text{N}}}{\gamma_{14\text{N}}} \mathbf{A}^{(14\text{N})}$ képlet alapján származtatva a három szomszédos nitrogénatom hiperfinom tenzora (MHz-ben megadva);

$$\begin{aligned}\mathbf{A}_{N_1} &= \begin{pmatrix} -111, 13(2) & -27, 28(1) & 0 \\ -27, 28(1) & -79, 68(3) & 0 \\ 0 & 0 & -66, 15(3) \end{pmatrix} \\ \mathbf{A}_{N_2} &= \begin{pmatrix} -63, 90(2) & 0 & 0 \\ 0 & -129, 85(2) & 0 \\ 0 & 0 & -66, 12(2) \end{pmatrix} \\ \mathbf{A}_{N_3} &= \begin{pmatrix} -111, 11(3) & 27, 29(1) & 0 \\ 27, 29(1) & -79, 65(3) & 0 \\ 0 & 0 & -66, 12(3) \end{pmatrix}\end{aligned}\tag{4.3}$$

A hiperfinom mátrixok A_{zz} diagonális kompoense pontosan megegyezik a kísérleti úton meghatározott értékből származtatott $\frac{\gamma_{15\text{N}}}{\gamma_{14\text{N}}} 47 \text{ MHz} = -66 \text{ Mhz}$ értékkel [12]. A mátrixokban szereplő értékek hibája onnan ered, hogy a szimulációban szereplő magspinek térbeli elhelyezkedése nem felelt meg tökéletesen a D_{3h} pontcsoport szimmetriának.

A különböző magspinekhez tartozó hiperfinom mátrixok

$$\|\mathbf{A}_i\|_F = \sqrt{\sum_i \sum_j A_{ij}^2}\tag{4.4}$$

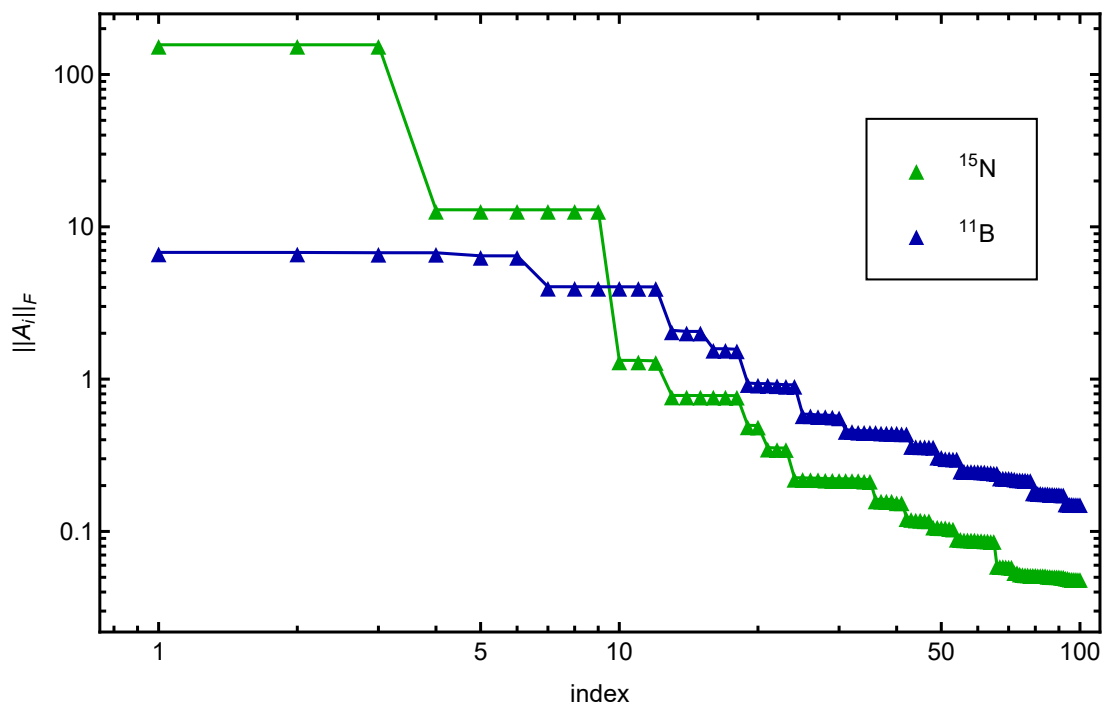
Frobenius-normáját véve megállapítható, hogy a három első-szomszéd nitrogénatom magspinjének csatolása a vakancia spinhez egy nagyságrenddel nagyobb a második- és két nagyságrenddel nagyobb a harmadik-szomszéd magspinek csatolásánál, ezek tehát erősen csatoltak. A jelentős különbség a vakanciát körülvevő spinsűrűség kiterjedésével magyarázható, melynek jelentős része az első-szomszédokon lokalizálódik.

A kvadrupól kölcsönhatási mátrixban szereplő $C_q = eQV_{zz}$ paraméter a VASP programcsomaggal – a POTCAR pszeudopotenciálokból számolt V_{zz} értékek alapján – lett meghatározva. Ez a bór atomagokra

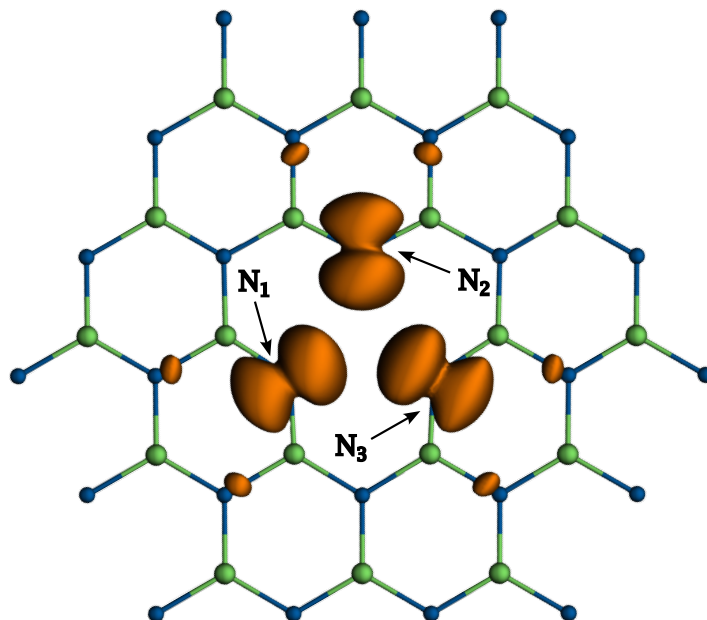
$$eQV_{zz} = 3,717 \text{ MHz}.\tag{4.5}$$

Az $S = 1/2$ -es spinű nitrogén atommagban nincsen kvadrupól kölcsönhatás.

A 4.5. ábra alapján megállapítható, hogy a bór magspinek helyén az elektromos potenciál szimmetriájának a vakancia által okozott sérülése elhanyagolható, mivel ezekben a rácspontokban a vakancia töltéssűrűsége közel 0. Így indokolt a spinfürdő Hamilton-operátorának a 2.13. egyenlet szerinti felírása.



4.4. ábra. A nitrogén és bór magspinekkel való kölcsönhatást jellemző hiperfinom mátrixok Frobenius-normája nagyság szerint sorba rendezve. Látható, hogy az azonos távolságra lévő atommagok esetén az értékek lényegében azonosak, valamint a távolság szerint drasztikusan csökkennek.



4.5. ábra. A VB centrum spinsűrűségének egy szintfelülete, melynek jelentős része az N_1, N_2, N_3 nitrogénatommagokra lokalizálódik.

5. fejezet

Eredmények

5.1. A rendszer kiindulási állapotának meghatározása

A VB negatív töltésű bór vakancia centrum egy $S = 1$ spinű rendszer, az $\hat{S}^2$ és $\hat{S}_z$ operátorok sajátállapotai az $\{|+1\rangle, |0\rangle, |-1\rangle\}$ állapotok. A dekoherencia vizsgálatát, valamint a π -pulzus alkalmazását alapvetően a $\{|0\rangle, |-1\rangle\}$ kubit állapotokra nézve végzem el, így a 2.5.1. (*A Hahn echo pulzusszekvencia*) alfejezettel összhangban a centrális-spin kezdőállapotát ezen állapotok azonos populációjú keverékeként határozom meg,

$$\hat{\rho}_0 = |\Psi_0\rangle\langle\Psi_0|, \quad |\Psi_0\rangle = \frac{|0\rangle + |-1\rangle}{\sqrt{2}}. \quad (5.1)$$

A spinfűrdő kezdőállapota a 2.5. egyenlet alapján a spinfűrdő különböző állapotain, mint sokaságon elvégzett átlag. A szimulációk során, tekintettel a vakancia szobahőmérsékleten is elvégezhető inicializálására és kiolvasására, ezt az átlagot a spinfűrdő termikus átlagaként határozom meg, amely

$$\sum_i p_i |i\rangle\langle i| = \frac{\mathbb{I}}{m}, \quad (5.2)$$

ahol $\mathbb{I}$ az m dimenziós Hilbert-téren ható egységoperátor.

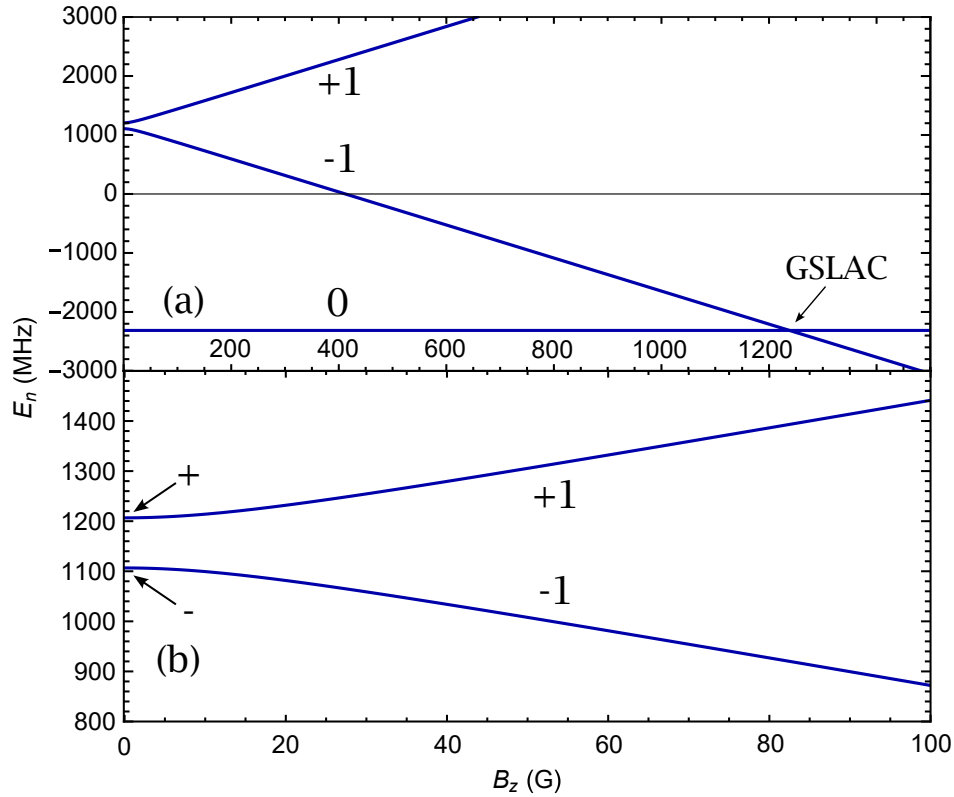
Amennyiben erős külső mágneses tér esetén a kubit elektronállapotainak energiaszintjei elégséges mértékben szétválnak, a centrális spin Hamilton-operátorának sajátállapotai közelítőleg megegyeznek az $\hat{S}_z$ operátor sajátállapotaival, vagyis kifejezhetőek közös bázison, aminek következtében $[\hat{S}_z, \hat{H}] \approx 0$ ($[A, B] = AB - BA$ a kommutátor). Ekkor a Heisenberg-formalizmus használatával levezethető, hogy $\frac{d\hat{S}_z}{dt} \approx 0$, tehát a spinállapot longitudinális relaxációjának karakterisztikus ideje jóval nagyobb a T_2 koherenciaidőnél, $T_1 \gg T_2 \approx T_\varphi$.

Abban az esetben, ha a kubit állapotok energiaszintjei nem válnak szét kellő mértékben, ezek elektronállapotai keverednek és a fenti megfontolások érvényüket veszítik. Az ilyenkor fellépő longitudinális relaxáció fontos limitáló tényezője a T_2 koherenciaidőnek, mivel $T_2 \leq 2T_1$ mindig teljesül. Ez a hatás jelenik meg az energiaszintek alapállapot-antikereszteződéshez (GSLAC, ground-state level anticrossing) tartozó mágneses térértéknél, amelynél ennek következtében a koherenciaidő jelentősen csökken (ld. az 5.1. ábrát).

Nemnulla E transzverzális zérus-tér-felhasadási paraméter esetén a VB vakancia Hamilton-operátorának sajátállapotai 0 G külső mágneses tér mellett a $|\pm 1\rangle$ állapotok helyett ezek lineáris kombinációi, a $|\pm\rangle$ állapotok lesznek. Nagy B_z tér mellett az E paraméter hatását a Zeeman-felhasadás elnyomja, így a sajátállapotok a tér növelésével az $\hat{S}_z$ spinoperátor sajátállapotaihoz konvergálnak. Így tehát az inicializálás módszerének alapján szükséges a $|-1\rangle$ kubitállapot újradefiniálása, ekkor a megvalósuló kezdőállapot a

$$|\Psi_0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \underbrace{|0\rangle}_{|\Psi_0\rangle} + \frac{1}{\sqrt{2}} \underbrace{(a|-1\rangle + \sqrt{1-a^2}|+1\rangle)}_{|\Psi_-\rangle} \quad (5.3)$$

összeg lesz, ahol $|\Psi_0\rangle$ és $|\Psi_-\rangle$ a Hamilton-operátor sajátállapotai. Fontos kiemelni, hogy mivel jelen esetben nem a kubit állapotok keveredéséről van szó, a longitudinális komponenszt reprezentáló $S_\uparrow$ spinoperátor tetszőleges, a transzformált kubitállapotnak megfelelő meghatározásával $\frac{d\hat{S}_\uparrow}{dt} \approx 0$ továbbra is érvényes.



5.1. ábra. A centrális spin Hamilton-operátorának E_n sajátértékei a mágneses tér függvényében 0-500 G (a) és 0-100 G (b) tartományon. Megfigyelhető a zéró-mező kölcsönhatás hatására történő energiafelhasadás $B_z = 0$ G mellett, valamint a sajátértékek mágneses tér szerinti lineáris változása. Az alapállapot-antikeresztesződés $B_z = \frac{D}{\gamma_e} = 1238,16$ G mágneses térnél található.

Bevezetve a sajátállapotok $\mathbb{C}^3$ reprezentációját

$$|+1\rangle \longleftrightarrow \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad |0\rangle \longleftrightarrow \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad |-1\rangle \longleftrightarrow \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}, \quad (5.4)$$

definiálható egy olyan $\hat{R}$ bázistranszformáció-operátor, amely a Hamilton-operátort a sajátvektorai által meghatározott sajátbázisába transzformálja

$$\hat{R}\hat{H}\hat{R}^{-1} = \begin{pmatrix} E_+ & 0 & 0 \\ 0 & E_0 & 0 \\ 0 & 0 & E_- \end{pmatrix}. \quad (5.5)$$

Így a fenti megfontolások alapján $\hat{R}|0\rangle = |0\rangle$ és $\hat{R}|-1\rangle = |\Psi_-\rangle$, tehát az 5.1. egyenletben szereplő kiindulási állapot

$$\hat{\rho}_0 \longrightarrow \hat{R}\hat{\rho}_0\hat{R}^{-1}, \quad |\Psi_0\rangle \longrightarrow \hat{R}|\Psi_0\rangle \quad (5.6)$$

szerint transzformálódik. Mivel a kubit állapotok transzformációja történik, szükséges az ezeken ható π -pulzusoperátor (ld. a 2.26. egyenletet) transzformálása is,

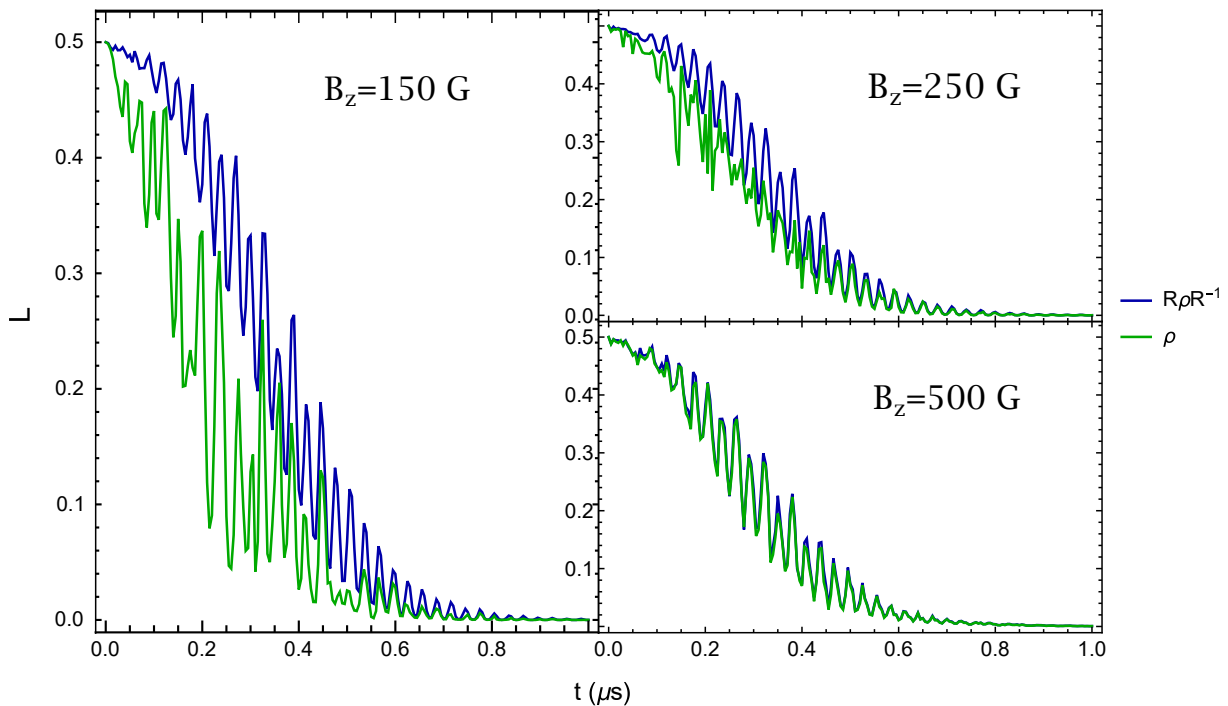
$$\hat{U}_P \longrightarrow \hat{R}\hat{U}_P\hat{R}^{-1}, \quad (5.7)$$

valamint az ezek szerinti projekciót végző $\hat{P}$ koherencia-projektor operátor is

$$\hat{P} \longrightarrow \hat{R}\hat{P}\hat{R}^{-1} \quad (5.8)$$

szerint transzformálható.

A megfelelő kezdeti állapotok, valamint az operátortranszformációk meghatározását követően a módszert a gCCE3 közelítést implementáló Wolfram Mathematica Notebook megfelelő részeit módosítva implementáltam. A transzformáció alkalmazásával, valamint anélkül adódó koherenciafüggvények (ld. az 5.2. ábrát) alapján megállapítható, hogy 500 G-nál kisebb külső mágneses tér esetén az elektronállapotok keveredésének hatása nem elhanyagolható, így a kubit állapotok, illetve a rendszer kezdőállapotának meghatározásakor szükséges az 5.5. egyenletben definiált $\hat{R}$ operátor hattatása.



5.2. ábra. Koherenciafüggvények az $\hat{R}$ operátor hattatásával (kék) és anélkül (zöld) különböző mágneses terek mellett. Látható, hogy a kubit állapotok különböző meghatározásából eredő különbség a külső mágneses tér növelésével csökken, és $B_z = 500$ G esetén már elhanyagolható nagyságú.

5.2. A koherenciafüggvény illesztése

Az időfejlődés során a kubit és a spinfürdő összefonódásának hatására a sűrűségmátrix olyan offdiagonális komponensei is nemnullák lesznek, amelyek a koherenciafüggvénybe nem adnak járulékot, ekkor pedig a koherencia-projektor operátor hattatásával kiredukált komponensek abszolútérték-összege a dekoherencia jelenségén túl is csökken. Mivel a propagátor unitér operátor, a klaszterek, mint zárt rendszerek, véges időn belül visszatérnek a kezdőállapotukba, amely ekkor az offdiagonális komponensek értékeiben pont ellentétes folyamatot eredményez. A klaszterek koherenciajárulékainak ilyen lecsökkenése és visszaépülése a teljes sorfejtés koherenciafüggvényben összetett oszcillációt eredményez, ekkor a valódi dekoherenciát a függvény burkológörbéje írja le.

A fentiekből kifolyólag a T_2 koherenciaidőt és a lecsengés karakterisztikáját jellemző n kitevőt

a koherenciafüggvény burkolójára illesztett

$$\tilde{L}(t) = 0,5 \cdot \exp\left(-\left(\frac{t}{T_2}\right)^n\right) \quad (5.9)$$

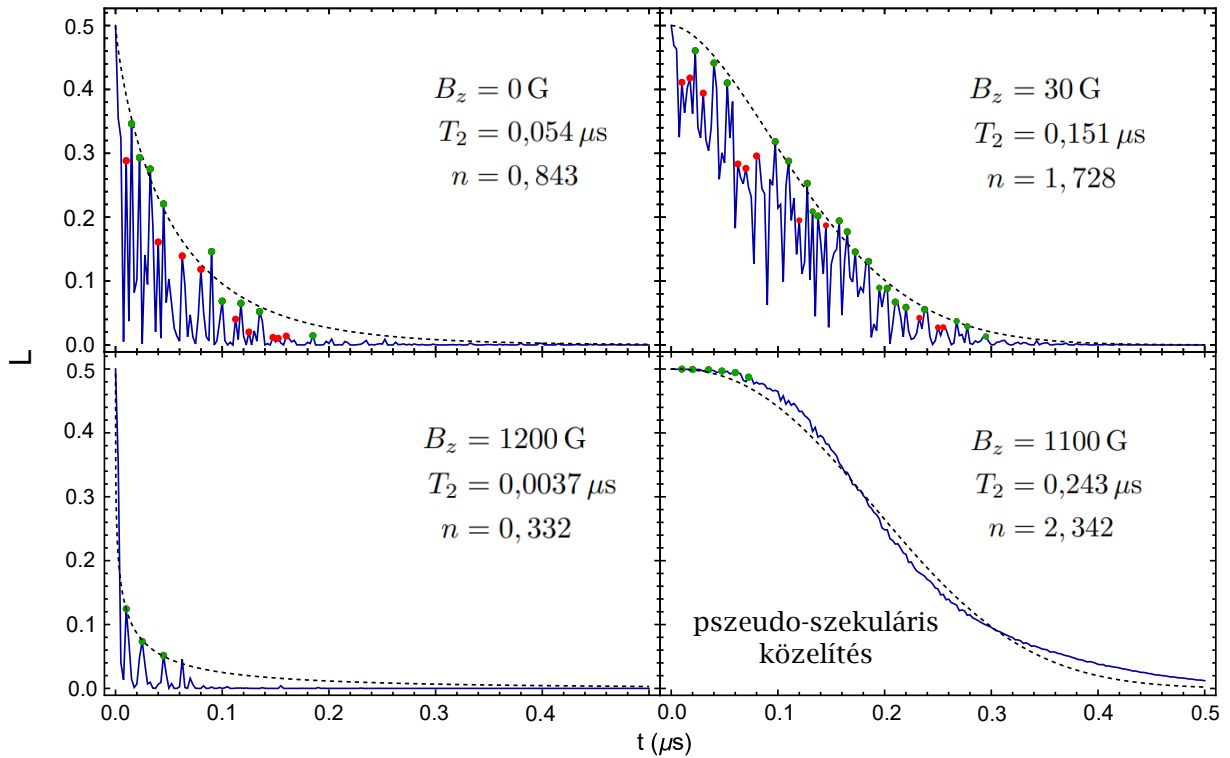
függvény alapján származtatom. A szimulációk eredményeként kapott koherenciafüggvények lecsengése és oszcillációjának mértéke különböző B_z mágneses terek mellett jelentősen változik (ld. az 5.3. ábrát), emiatt az illesztést végző algoritmus más paramétereket használ 500 G-nál kisebb vagy egyenlő, illetve nagyobb mágneses tér esetén.

500 G-nál kisebb vagy egyenlő terek esetén az adatpontok burkolójaként azokat a csúcsokat határozom meg, amelyek az adatsor $\sigma = 0,8$ szélességű gaussi simítása után lokális maximumok maradnak, valamint az illesztéshez nem használom fel azokat a csúcsokat melyek értéke $L_i \leq 0,01$, mivel ezek a dekoherencia karakterisztikájára vonatkozóan nem tartalmaznak plusz információt, ellenben az illesztés pontosságát rontják. 500 G-nál nagyobb terek esetén ezek az értékek $\sigma = 0.1$ és $L_i \leq 0,05$.

Ezután, mivel az illesztett függvény monoton csökkenő, a pontos illesztés érdekében csak azokat az L_i értékű csúcsokat használtam fel, amelyek ezt a tendenciát követik, tehát amelyek esetében teljesül az

$$L_i > L_j, \quad \forall j > i \quad (5.10)$$

feltétel.



5.3. ábra. Koherenciafüggvények (kék) illesztése (fekete, szaggatott). A gaussi simítás utáni lokális maximumok közül a monoton csökkenő pontokra (zöld) történik a függvényillesztés. Az illesztésből kihagyott pontok pirossal vannak jelölve. A jobb alsó ábrán lévő koherenciafüggvény a pseudo-szekuláris közelítésben lett meghatározva.

Az illesztés a nyers adatpontokra történik; ha a csúcsokat kereső algoritmus lefutása után csak kettő vagy kevesebb csúcsot határoz meg, valamint ha a talált csúcsok a 0-0,5 tartomány kevesebb, mint 35%-át fedik le és átlaguk nagyobb, mint 0,35. Az előbbi tipikusan gyors dekoherencia esetén fontos, amikor a koherenciafüggvény azonnal, vagy néhány, szabálytalan oszcilláció után

lecseng és egzaktul nulla lesz, az utóbbi pedig az alapvetően sima, azonban $0,1 \mu\text{s}$ -on belül kismértékben oszcilláló függvények esetén teszi pontosabbá az illesztést. Az átlagra vonatkozó plusz feltételre az 5.3. ábra bal alsó sarkában látható, néhányszor oszcilláló koherenciafüggvények illesztése miatt van szükség.

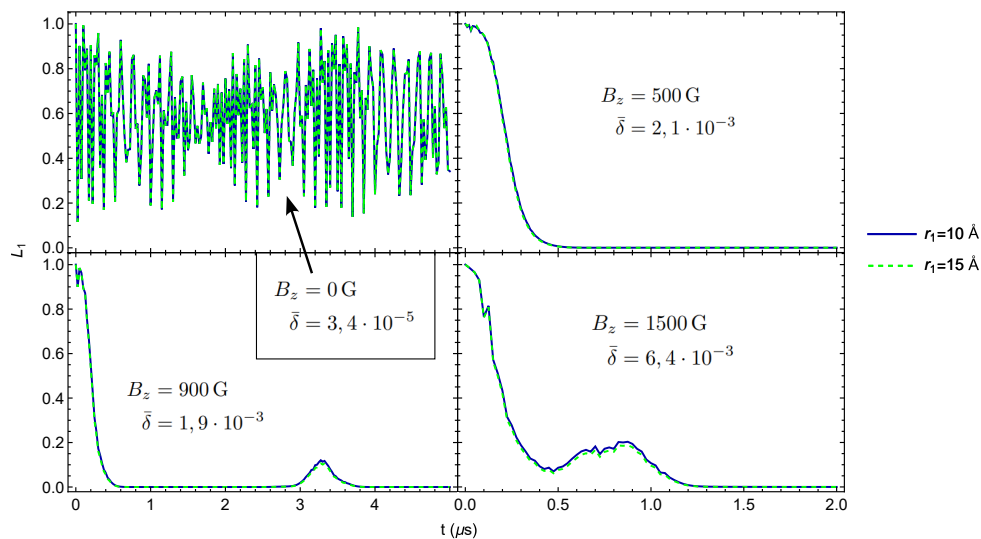
5.3. A konvergenciasugarak meghatározása

A szimulációban a gCCE sorfejtés rendje három (gCCE3), vagyis a figyelembe vett klaszterek 1, 2 vagy 3 magspint tartalmaznak. Ekkor mindhárom rendhez külön-külön meghatározhatóak a 2.1. ábrán illusztrált konvergenciasugarak, vagyis a spinfürdő határsugara és a magspin-magspin kölcsönhatás határsugara. Fontos, hogy a klaszterek csak a spinfürdő konvergenciasugaránál közelebb lévő magspinekből képződnek, tehát az ezen kívül eső magspinek a spinfürdő széléhez közeli magspinek dipól-dipól kölcsönhatási járulékaiban sem szerepelnek. A határsugár így valóban egy zárt rendszert határoz meg. A különböző sugarak mellett meghatározott koherenciafüggvények és koherenciaidők vizsgálatával megállapíthatóak konvergencia értékek, mely elemzést $B_z = \{0 \text{ G}, 500 \text{ G}, 900 \text{ G}, 1500 \text{ G}\}$ külső mágneses térértékek esetén végzek el, majd a köztes értékeket ezen adatok alapján interpolálva adom meg.

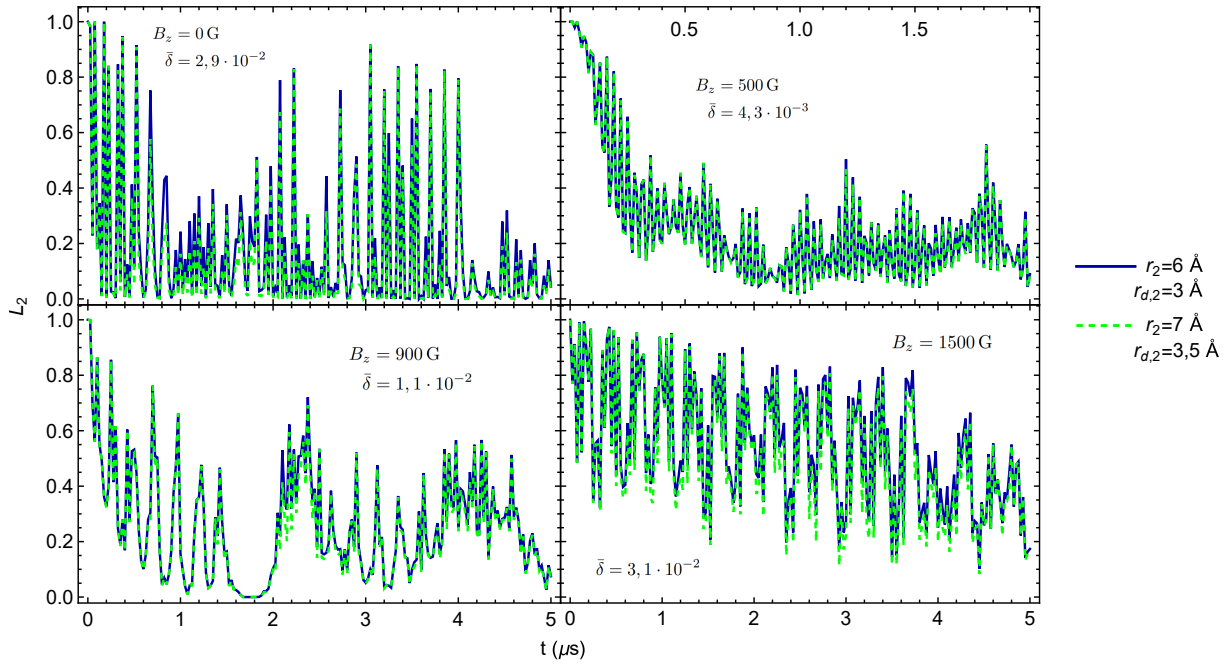
Az alábbiakban ábrázolom az első-, másod- és harmadrendű $L_i = \prod_{|C|=i} \tilde{L}_C$ koherenciafüggvényeket az 5.1. táblázatban szereplő határsugarak mellett (a határsugár alsó indexe a sorfejtés rendjének sorszámát jelöli). A függvényeket adó adatsorok (a, b) konvergenciájának megállapításához kiszámolom a $\bar{\delta} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N |a_i - b_i|$ átlagos abszolút eltérésüket, és $\bar{\delta} < 0,05$, azaz 5%-nál kisebb relatív eltérés esetén azokat konvergensenek veszem.

sorfejtés rendje	határsugarak	klasztetek száma
1. rend	(I) $r_1 = 10 \text{ \AA}$ (II) $r_1 = 15 \text{ \AA}$	456 1589
2. rend	(I) $r_2 = 6 \text{ \AA}, r_{d,2} = 3 \text{ \AA}$ (II) $r_2 = 7 \text{ \AA}, r_{d,2} = 3,5 \text{ \AA}$	432 722
3. rend	(I) $r_3 = 4 \text{ \AA}, r_{d,3} = 3 \text{ \AA}$ (II) $r_3 = 4,5 \text{ \AA}, r_{d,3} = 3,5 \text{ \AA}$	132 596

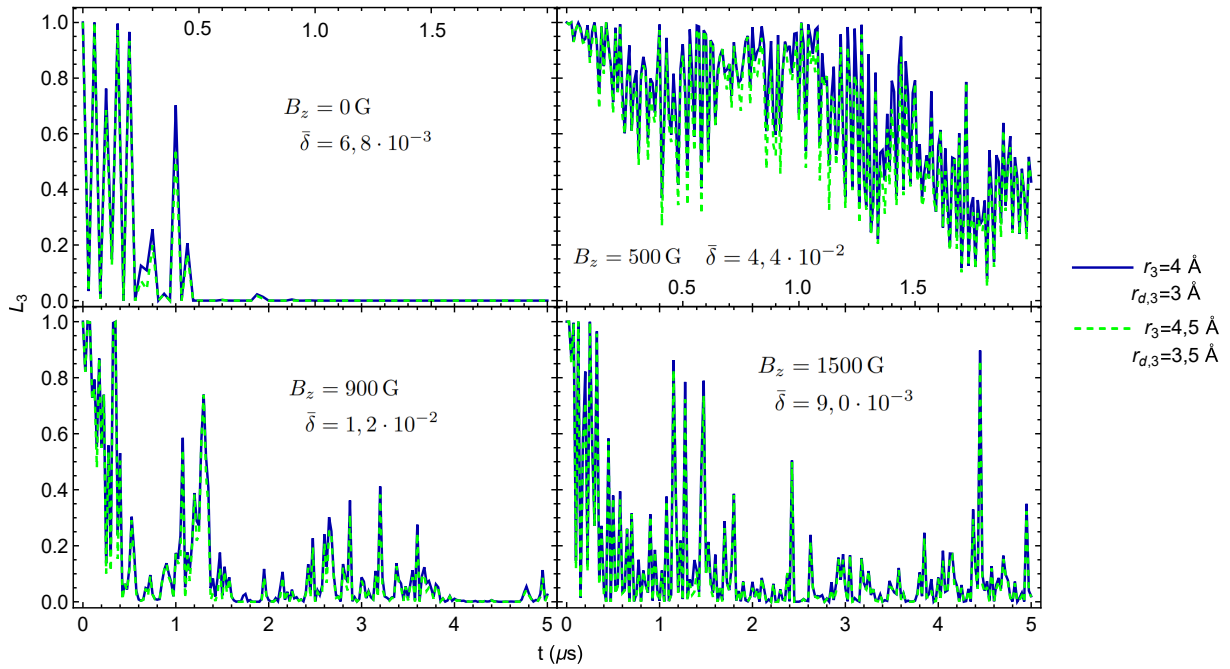
5.1. táblázat. A konvergencia elemzéséhez felhasznált spinfürdő és dipól-dipól kölcsönhatási határsugarak, illetve az így képzett klaszterek száma.



5.4. ábra. A gCCE első rendjének konvergenciája a feltüntetett határsugarak szerint.



5.5. ábra. A gCCE második rendjének konvergenciája

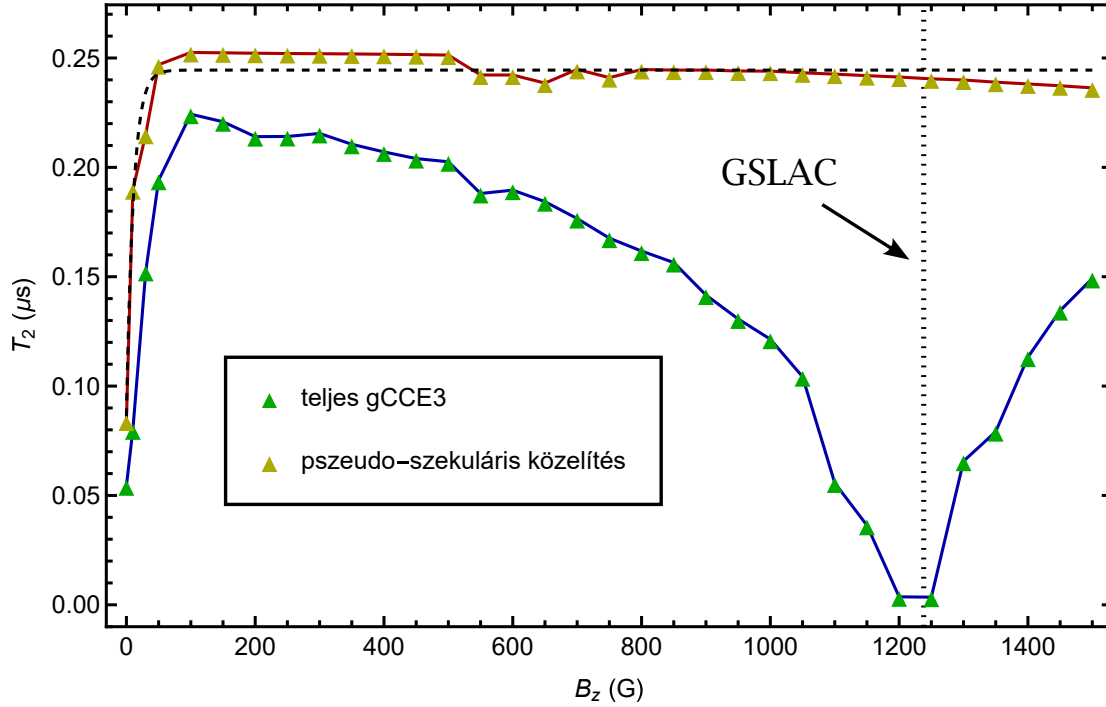


5.6. ábra. A gCCE harmadik rendjének konvergenciája

Az átlagos abszolút eltérések alapján megállapítható, hogy a vizsgált mágneses térértékek mellett az 5.1. táblázat (I) jelölésű paramétereik konvergens koherenciafüggvényt adnak. A konvergenciaparaméterek a mágneses tér függvényében folytonosan változnak, valamint az alapállapotú antikereszteződés környékén a jelentős longitudinális relaxáció miatt a koherenciaidő közel nulla csökken, tehát a rövid időfejlődés következtében az eredmények kisebb határsugarak esetén is konvergensnek. Így a különböző mágneses terek mellett adódó (I) jelölésű paraméterek a térértékek között, nem vizsgált tartományaiban is megfelelő konvergenciaparaméterek lesznek.

5.4. A dekoherenciaparaméterek a mágneses tér függvényében

Az imént meghatározott határsugarak mellett a gCCE szimulációval 0-1500 G között 50 G felbontással, valamint 10 G és 30 G mellett kiszámoltam a koherenciafüggvényt, majd illesztéssel származtattam a koherenciaidőt (T_2) és a lecsengés karakterisztáját jellemző kitevőt (n). A számolásokat elvégeztem a teljes harmadrendű gCCE3 sorfejtéssel, pszeudo-szekuláris és szekuláris közelítéssel is.



5.7. ábra. A koherenciaidők értékei a külső mágneses tér függvényében, valamint a pszeudo-szekuláris közelítéssel kapott értékekre illesztett függvény (szaggatott fekete vonal). Megfigyelhető, hogy az alapállapotú antikereszteződés környékén a teljes gCCE3-mal számolt koherenciaidők értéke jelentősen leesik.

A pszeudo-szekuláris közelítéssel számolt koherenciaidők egy kezdeti, 0-50 G közötti élesen növekvő tartomány után hirtelen bekonvergálnak egy értékhez, amelytől a mágneses tér növelése mellett jelentősen nem térnek el. Az értékek változásának jellemzésére azokra

$$f(x) = T - Ae^{-bx} \quad (5.11)$$

alakú függvényt illesztettem, melynek illesztési paraméterei a következők szerint adódtak,

$$T = 0,244 \mu\text{s}, \quad A = 0,164 \mu\text{s}, \quad b = 0,0965 \frac{1}{\text{G}}. \quad (5.12)$$

A nemszekuláris vakancia-spin tagok járulékának meghatározásához a pszeudo-szekuláris közelítés és teljes Hamilton-operátor mellett kiszámolt koherenciaidők különbségét vizsgáltam. A különbség az 50-800 G tartományon közel lineáris, az erre illesztett $g(x) = Ax + b$ alakú függvény paraméterei

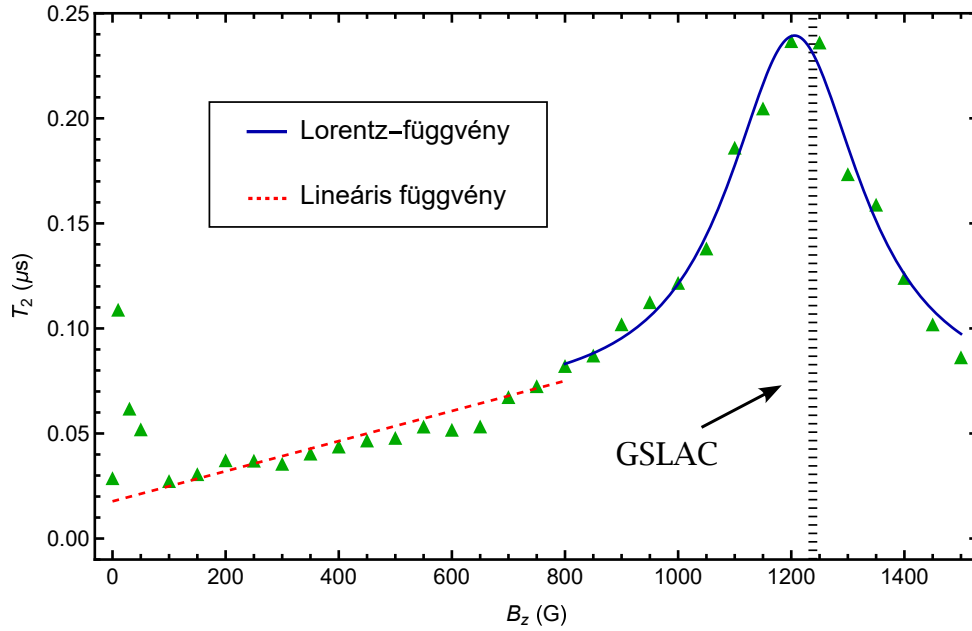
$$A = 7,17 \cdot 10^{-4} \frac{\mu\text{s}}{\text{G}}, \quad b = 0,0178 \text{ G}. \quad (5.13)$$

A GSLAC körülbelül 400 G terjedelmű környékén a lineáris tendencia átvált egy gyorsulva növekvő, majd gyorsan visszaeső görbébe, amely a

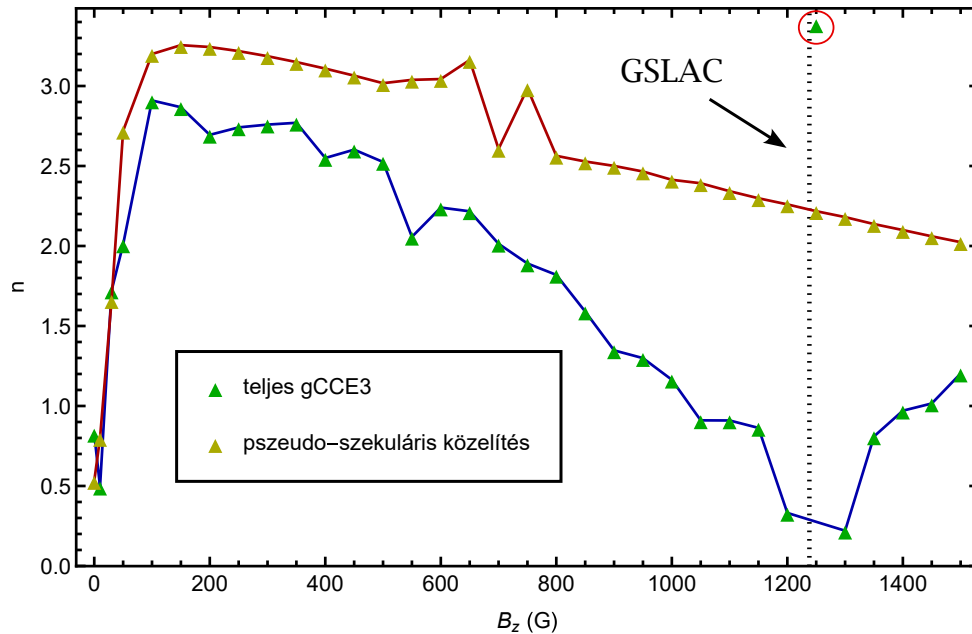
$$h(x) = \frac{A}{\pi} \left(\frac{\sigma}{(x - \mu)^2 + \sigma^2} + b \right) \quad (5.14)$$

alakú Lorentz-görbével jól illeszthető. Az illesztési paraméterek;

$$A = 80,09 \mu\text{sG}, \quad \sigma = 144,36 \text{ G}, \quad \mu = 1205,86 \text{ G}, \quad b = 0,0627 \frac{1}{\text{G}}. \quad (5.15)$$



5.8. ábra. A pseudo-szekuláris közelítéssel, valamint a teljes gCCE3-mal számolt koherenciaidők különbsége. Megfigyelhető a lineáris és a lorentzi tendencia közötti váltás 800 G környékén.



5.9. ábra. A lecsengést jellemző n paraméter értékei. A pirossal bekarikázott adatpont nem mérhető, ugyanis ekkor a koherenciaidő $T_2 \approx 0$, a koherenciafüggvény oszcillációk nélkül azonnal lecseng.

A lecsengés karakterisztikáját jellemző n kitevő értékei az 5.9. ábrán láthatóak. n változásának tendenciái hasonlóak a koherenciaidő értékeinek változásához, azonban fontos különbség, hogy

az n paraméter értéke a pseudo-szekuláris közelítés alkalmazása mellett nem állandósul egy mágneses térérték felett, hanem lineárisan csökken.

A szekuláris közelítés alapján származtatott koherenciaidő néhány mágneses tér mellett a következő;

$$T_2(B_z = 0) = 0,079 \mu\text{s}, \quad T_2(B_z = 18,3 \text{ G}) = 10 \mu\text{s}, \quad T_2(B_z = 750 \text{ G}) = 147,2 \mu\text{s}. \quad (5.16)$$

Leszűrhető, hogy e közelítés alkalmazásával már néhány Gauss külső mágneses tér mellett nagyságrendekkel nagyobb koherenciaidő adódik, mint a teljes gCCE3-t vagy a pseudo-szekuláris közelítést alkalmazva.

5.5. A különböző rendek kontribúcióinak elemzése

Az alábbiakban a vizsgált mágneses tér különböző tartományaiban elemzem a gCCE rendek kontribúcióit. Először a teljes sorfejtésben domináns rendek megkeresésével meghatározom a dekoherenciában jelentős kvalitatív eltérést mutató tartományokat, majd a pseudo-szekuláris közelítés segítségével vizsgálom a szekuláris és nemszekuláris tagok hatását.

A spinfürdőt egy tisztán bór vagy tisztán nitrogén spinfürdőként kezelve szeparáltan vizsgálom a bór és nitrogén magspinek járulékát, valamint az így kiszámolt L_B és L_N koherenciafüggvények szorzatát összehasonlítom a teljes spinfürdő vételével adódó koherenciafüggvénnyel. Ez a sorfejtés első rendjében triviális azonosságot ad, viszont a magasabb rendekben lehetővé teszi a bór-bór és nitrogén-nitrogén párkölcsönhatásokon túl a bór-nitrogén párok dekoherencia-kontribúciójának elemzését.

5.5.1. Zérus külső mágneses tér és környéke

A $B_z = 0 \text{ G}$ külső mágneses tér mellett, illetve környékén adódó koherenciafüggvények az 5.10. ábrán láthatóak. A sorfejtés első rendjében (gCCE1) nem jelenik meg dekoherencia, azonban mind a második- (gCCE2) mind a harmadik (gCCE3) rend jelentős járulékot ad. A tér növelésével megjelenik az elsőrendű koherenciafüggvény lecsengése, ami 30 G felett a teljes sorfejtésre nézve dominánssá válik.

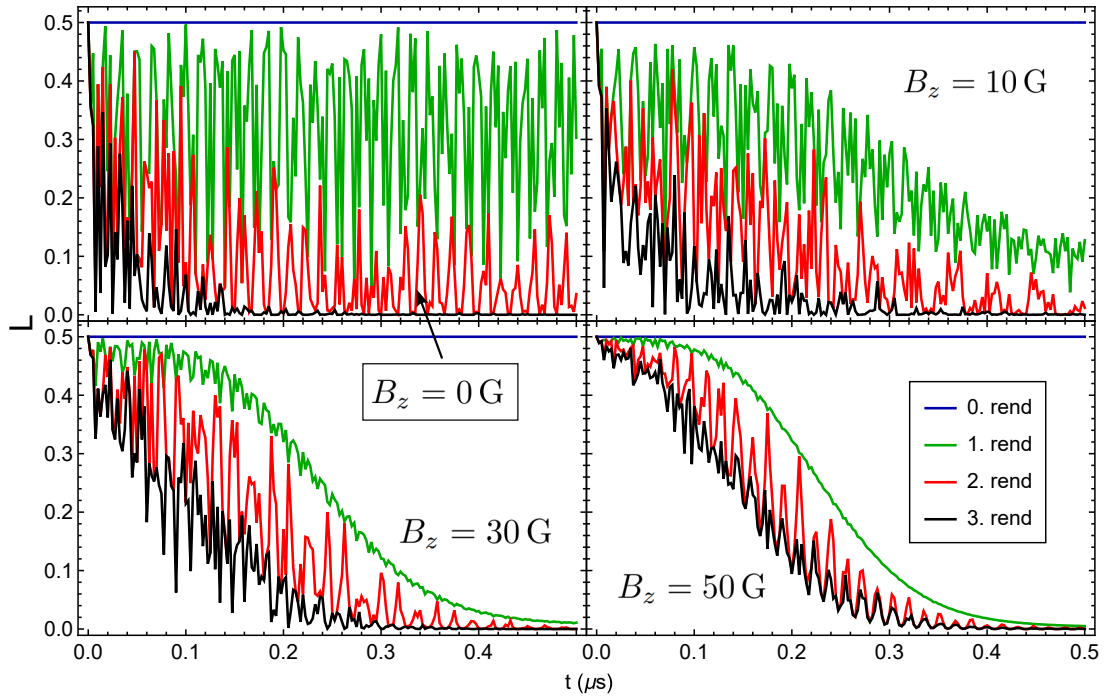
Megfigyelhető, hogy zérus térhez közel a koherenciafüggvények szabálytalan mintázatú oszcillációja mindhárom rendben nagymértékű és gyors. Az első rend oszcillációja a külső tér növelésével közel teljesen eltűnik, a magasabb rendeké pedig kismértékű, szabályos oszcillációvá alakul.

$B_z = 0 \text{ G}$ esetén pseudo-szekuláris közelítés alkalmazásával kapott koherenciafüggvény közelítőleg megegyezik a teljes Hamilton-operátor alapján meghatározott koherenciafüggvénnyel, egyedül a másodrendű függvény lecsengése lassabb (ld. az 5.11. ábrát). Közel azonos kép adódik egy csak nitrogénekből álló spinfürdő esetén, azonban ebben az esetben a gCCE3 koherenciaideje jelentősen hosszabb. A bór spinfürdő esetén egyik rendben sem jelenik meg dekoherencia.

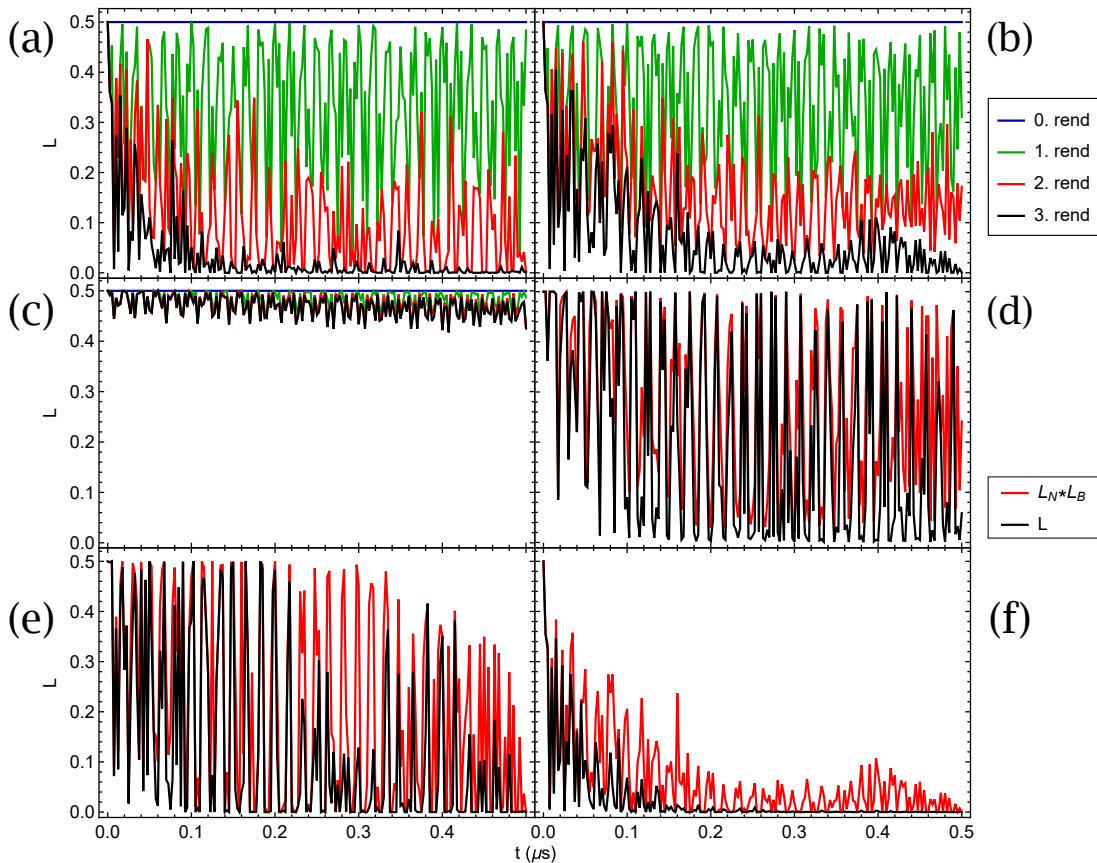
Az $L_N \cdot L_B$ szorzat mind a második, mind a harmadik rendben rövid időskálán jó egyezést mutat a teljes másod-, illetve harmadrendű kontribúcióval, azonban $\sim 0,1 \mu\text{s}$ után nagyobb eltérés jelenik meg. A teljes koherenciafüggvényeket vizsgálva látható, hogy a bór-nitrogén interakciók járuléka nem elhanyagolható.

5.5.2. Közepes nagyságú mágneses terek

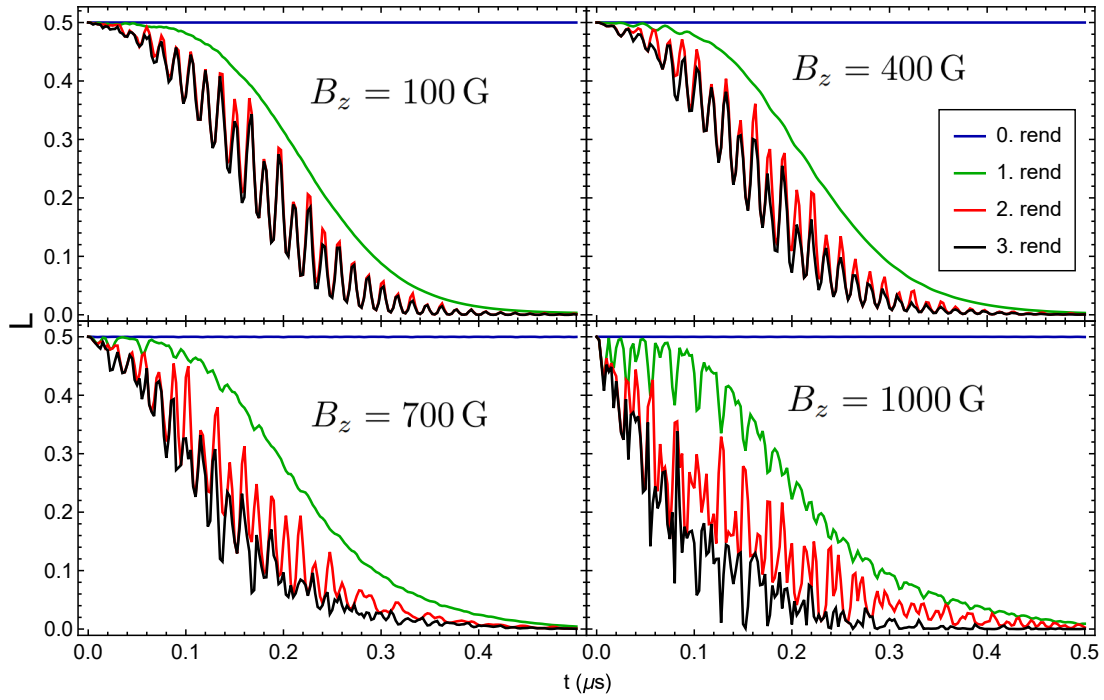
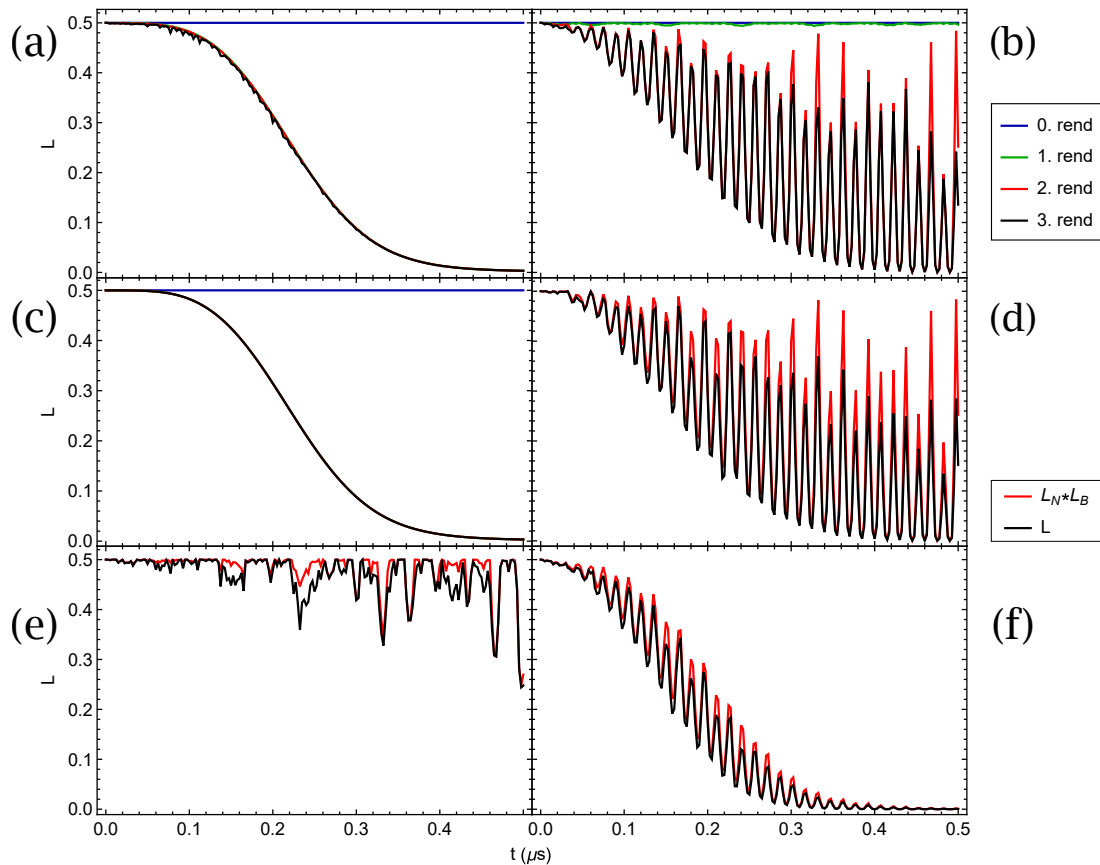
Az 50-700 G tartományon a domináns rend a gCCE1, melyhez kis járulékot ad a gCCE2 rend, így ezen a tartományon már a másodrendű sorfejtés is konvergens. A GSLAC-hoz tartozó mágneses tér értékéhez közeledve lassan növekszik a másodrendű dekoherencia-kontribúció, valamint 700 G fölött egyre jelentősebb a harmadrendű klaszterek korrelációiból eredő dekoherencia, és az első rendben is újra megjelennek a hirtelen lecsökkenések és visszaépülések (ld. az 5.12. ábrát).



5.10. ábra. A különböző rendek kontribúciói kis külső mágneses terek mellett.



5.11. ábra. A szekuláris és nemszekuláris tagok járulékának, valamint a bór és nitrogén spinfördők szeparált és interakciós kontribúciója 0 G külső mágneses tér mellett. (a) Pszeudo-szekuláris közelítés. (b) Csak nitrogén spinfördő. (c) Csak bór spinfördő. (d) Az $L_N \cdot L_B$ szorzat, valamint a teljes gCCE másodrendű járuléka. (e) Az $L_N \cdot L_B$ szorzat, valamint a teljes gCCE harmadrendű járuléka. (f) Az $L_N \cdot L_B$ szorzat, valamint a teljes gCCE teljes koherenciafüggvénye.

5.12. ábra. A különböző rendek kontribúciói ~ 100 G nagyságrendű külső mágneses terek mellett.

5.13. ábra. A járulékok elemzése 100 G mellett. Az ábra elemei azonosak az 5.11. ábra elemeivel.

$B_z = 100$ G mellett a pseudo-szekuláris közelítés lényegében azonos eredményt ad a teljes sorfejtés elsőrendű koherenciafüggvényével és a tisztán bór spinfürdő alapján számolt koherenciafüggvénnyel. A nitrogén spinfürdő járuléka hasonlóan pontosan megegyezik a gCCE2 és gCCE3

kontribúciókkal, így a szeparált spinfürdők dekoherenciájának produktuma megegyezik a teljes spinfürdő dekoherenciájával, ez figyelhető meg az 5.13. ábra (d, e, f) részén.

5.5.3. Az alapállapotú antikereszteződés

Az 5.14. ábrán szereplő koherenciafüggvények alapján leszűrhető, hogy az alapállapotú antikereszteződéstől körülbelül 150 G távolságra (1100 G, 1300 G) a rendek koherenciafüggvényei gyorsan oszcillálnak, illetve megfigyelhető harmadrendű járulék is.

A GSLAC közvetlen környezetében az oszcilláció szabálytalanabb és lassabb, illetve a lényegében azonnali dekoherencia már a gCCE2 koherenciafüggvényben is megjelenik. A külső tér magasabb értékeinél az oszcilláció lelassul, és újra az elsőrendű klaszterek hatásai válnak a dekoherencia domináns forrásaivá.

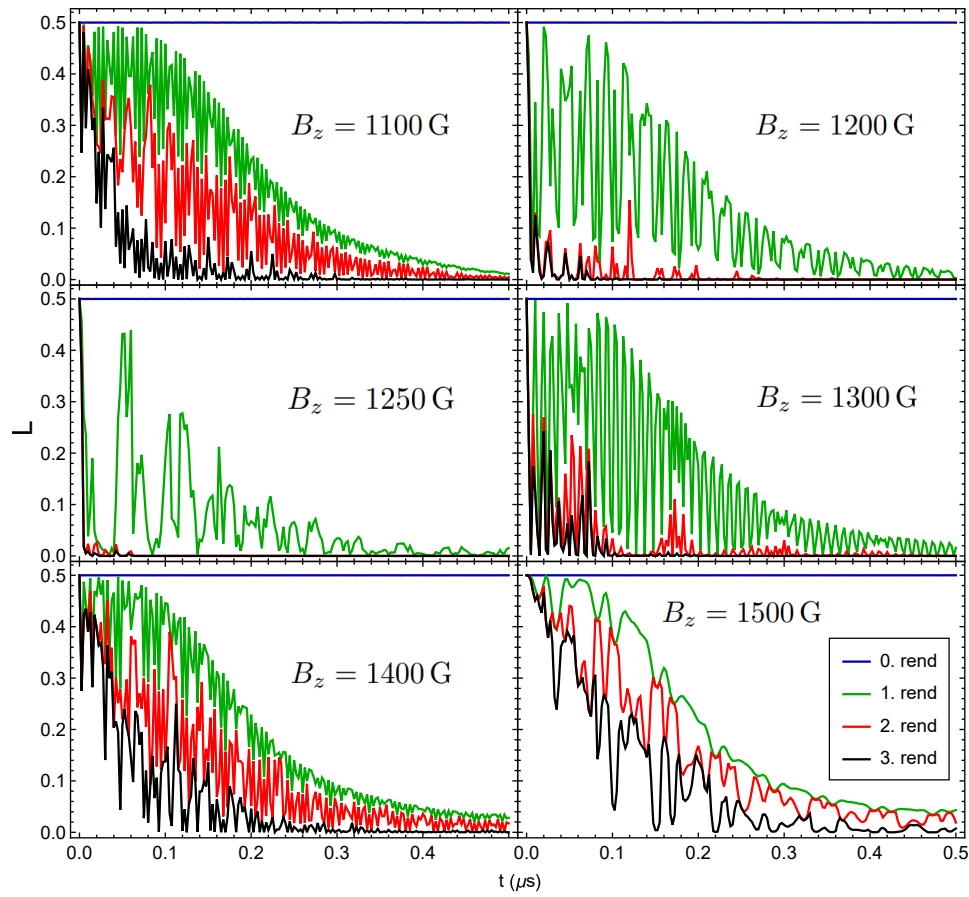
$B_z = 1100$ G mágneses tér hatására a pseudo-szekuláris közelítés alkalmazásával adódó és a tisztán bór spinfürdőre vonatkozó koherenciafüggvények a 100 G melletti esethez hasonlóan a teljes sorfejtés első rendjével azonosak, azonban ezekben a teljes általános sorfejtés első rendjével ellentétben nem jelenik meg oszcilláció (ld. az 5.15. ábra (a, c) részét). A spinfürdő nitrogénből álló alrendszerében az első rend dekoherenciája nem jelentős, megjelenik azonban hasonló mértékű másod- és harmadrendű járulék is.

Az 5.15. ábra (d, e) része alapján a bórból és nitrogénből álló alrendszerek koherenciafüggvényeinek szorzata másodrendben jelentős egyezést mutat a teljes spinfürdő függvényével, harmadrendben azonban utobbi lecsengése lényegesen kisebb időállandójú.

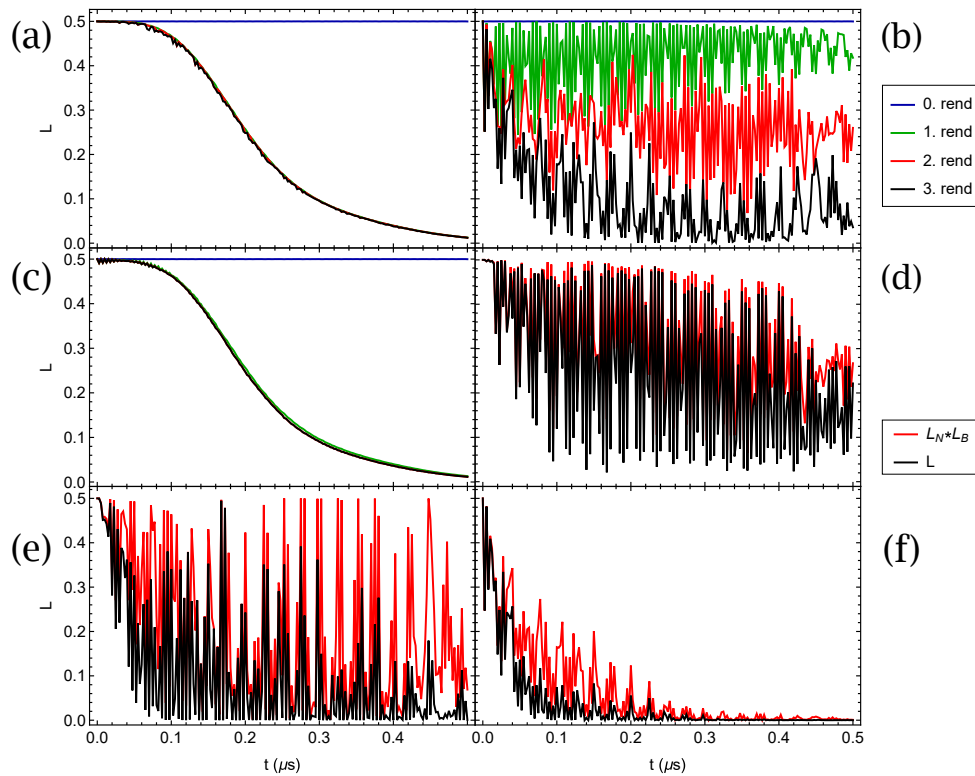
Az alapállapotú antikereszteződéshez tartozó mágneses térérték közvetlen közelében (1250 G) a pseudo-szekuláris közelítésben továbbra is csak elsőrendű, nem oszcilláló járulék jelenik meg, azonban a bór alrendszer koherenciafüggvényében mind lassú oszcilláció, mind másodrendű kontribúció is megjelenik.

A nitrogén alrendszerben a szabálytalan elsőrendű koherenciafüggvény mellett másod- és harmadrendben lényegében azonnali dekoherencia adódik. Ennek tudható be, hogy az alrendszerek teljes gCCE3 koherenciafüggvényeinek produktuma azonosnak látszik a teljes rendszerben adódó függvénnyel, azonban az 5.16. ábra (e) része alapján a bór-nitrogén párok jelentős harmadrendű járulékot adnak.

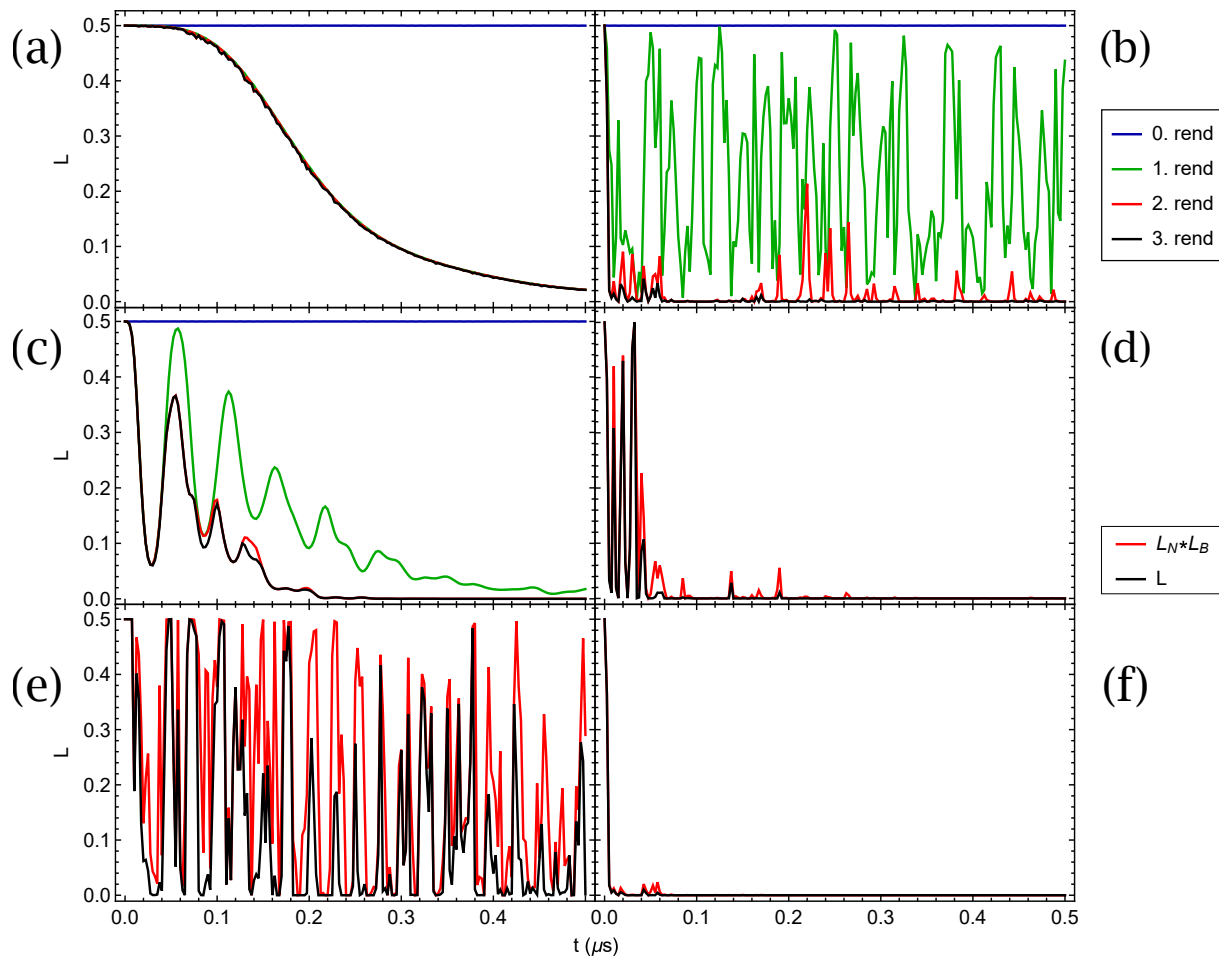
A GSLAC mágneses terénél nagyobb terek mellett az értékek különbsége szerint szimmetrikusan jelennek meg a különböző hatások, így a megfigyelhető tendenciák is azonosak.



5.14. ábra. A különböző rendek kontribúciói az GSLAC környékén.



5.15. ábra. A járulékok elemzése 1100 G mellett. Az ábra elemei azonosak az 5.11. ábra elemeivel.



5.16. ábra. A járulékok elemzése 1250 G mellett. Az ábra elemei azonosak az 5.11. ábra elemeivel.

5.6. A három első-szomszéd nitrogén magspin polarizációjának hatása a dekoherenciára

Egy alsó határ meghatározásával a vakancia centrum körül tetszőleges sugáron belül lévő magspinek kivehetők a spinfürdőből. Ezt a határt 1,6 Å-re állítva a dekoherenciát okozó, illetve a spinfürdőben fellépő mechanizmusok közül kiredukálhatóak a három első-szomszéd nitrogén magspin által okozott hatások.

Az így adódó koherenciaidők az 5.17. ábrán szerepelnek. Megfigyelhető, hogy kis, zérus külső mágneses tér esetén a koherenciaidő jelentősen megugrik, majd néhány Gauss nagyságrendű terek mellett élesen csökken és 50 G környékén a pszeudo-szekuláris közelítéssel kapott értékekkel lényegében azonos koherenciaidőhöz konvergál.

Ettől csak a GSLAC környékén tér el, ekkor a teljes spinfürdőben adódó tendenciához hasonlóan a T_2 idő lecsökken, majd visszatér a konvergens értékhez. T_2 minimális értéke ekkor 0,060 μ s, míg a teljes spinfürdőt véve 0,0035 μ s. Fontos különbség, hogy az első szomszéd magspinek kivételével ez a folyamat a mágneses tér függvényében sokkal élesebben játszódik le, a GSLAC-hoz tartozó térértéktől körülbelül 30-50 G távolságban már nem jelenik meg a koherenciaidő leesése.

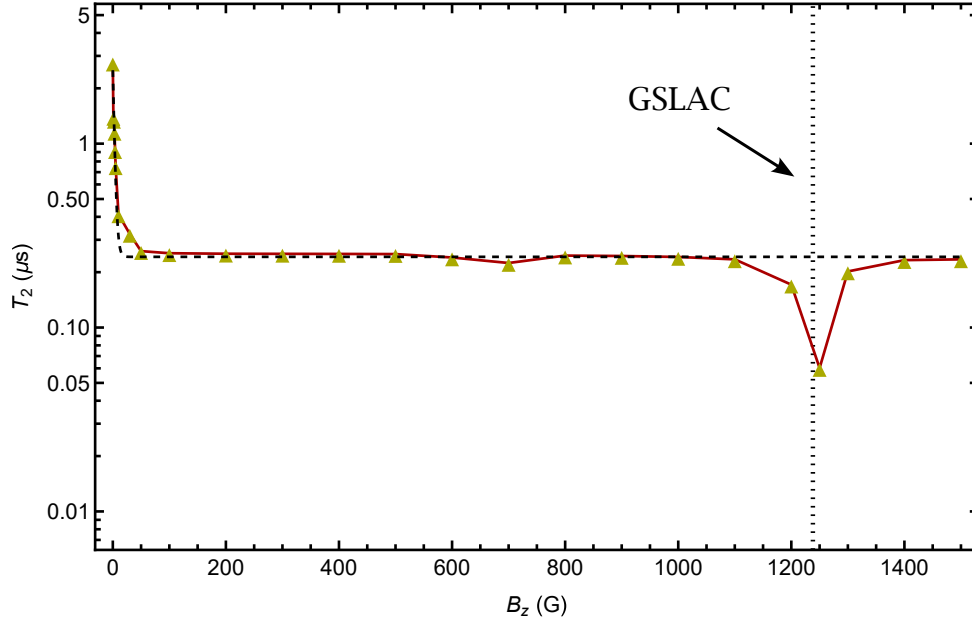
Az adatpontokra illesztett

$$f(x) = Ae^{-bx} + T \quad (5.17)$$

alakú függvény illesztési paraméterei a következőknek adódnak;

$$T = 0,242 \mu\text{s}, \quad A = 2,267 \mu\text{s}, \quad b = 0,345 \frac{1}{\text{G}}, \quad (5.18)$$

tehát a pszeudo-szekuláris közelítés és az első-szomszéd magspinek kivételével adódó, B_z szerint konvergens koherenciaidők közötti eltérés nagyságrendileg 1%.



5.17. ábra. A három első-szomszéd magspin kivételével adódó kohrenciaidők 100 G felbontásban, valamint 1-5 G, 10-50 G és 1250 G mellett, és az ezekre illesztett expoenciális függvény (fekete szaggatott vonal).

Az 5.18. ábrán az első-szomszéd magspinek elhagyásával adódó koherenciafüggvények különböző rendjei szerepelnek. Látható, hogy a várakozásoknak megfelelően, a koherenciafüggvények közel azonosak a tisztán bór spinfürdőben adódó függvényekkel. Nagyobb, leginkább a magasabb rendekben megjelenő eltérés 0 G és 1250 G esetén figyelhető meg.

A fentiek alapján egyértelmű, hogy a három első-szomszéd nitrogén magspin minden mágneses térérték mellett jelentős, erősítő hatást gyakorol a dekoherenciára. Ennek következtében indokolt vizsgálni, hogy ezen magspinek – kísérletileg is megvalósítható [30] – polarizációja milyen mértékben képes változtatni a koherenciaidőn.

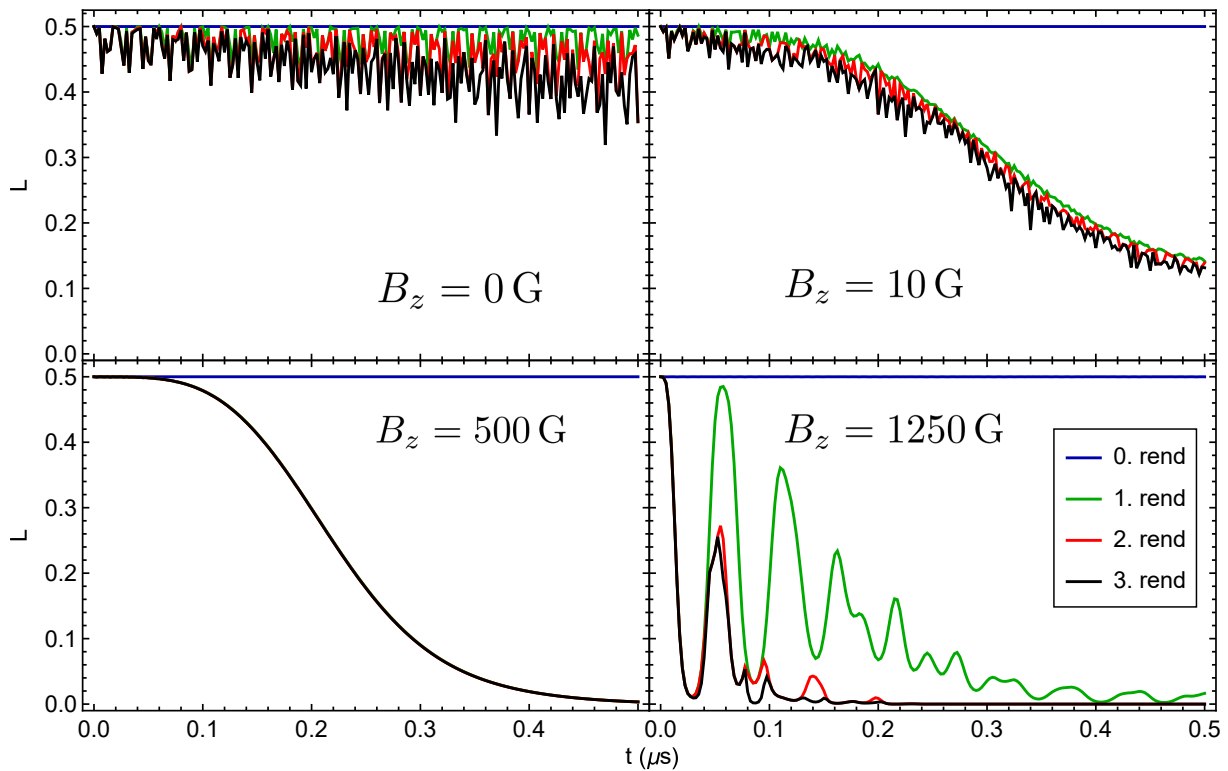
A szimulációban mindhárom magspin kezdőállapotát a

$$\rho_N(0) = \begin{pmatrix} P_{00} & 0 \\ 0 & 1 - P_{00} \end{pmatrix} \quad (5.19)$$

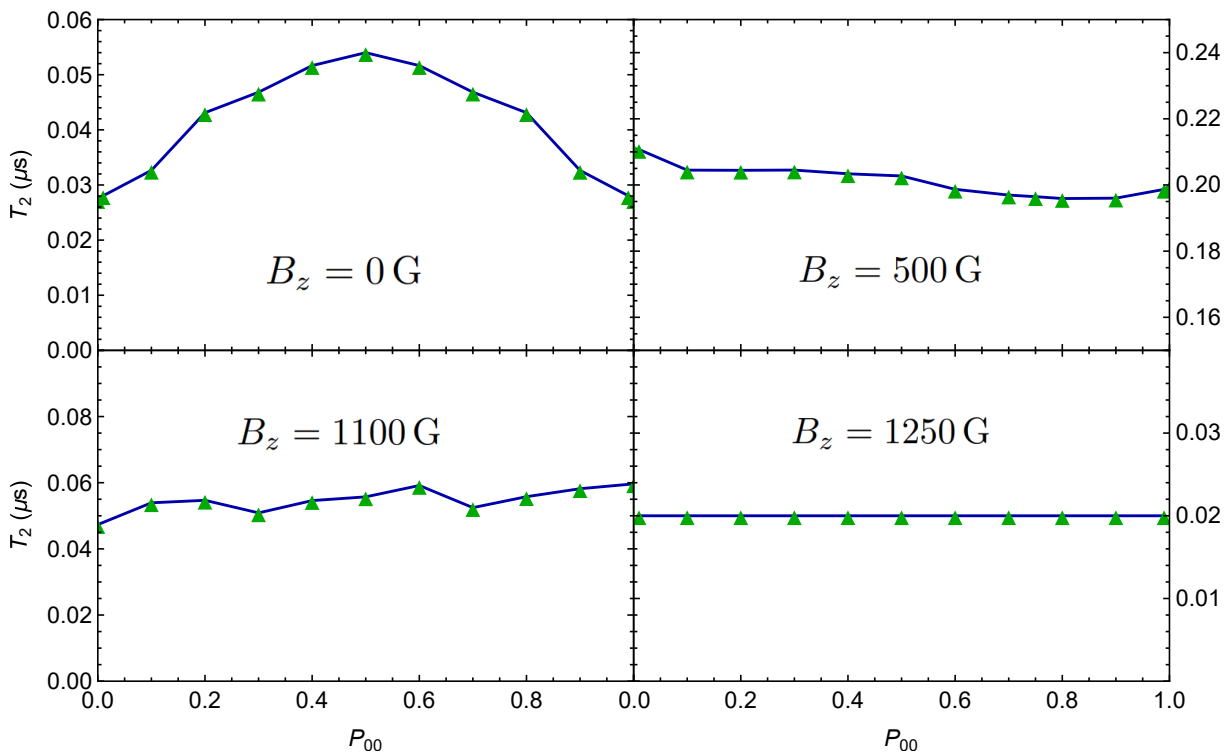
sűrűségmátrixszal definiálom, ahol P_{00} az $S = 1/2$ spinű magspin $|0\rangle$ sajátállapotának populációja. A spinfürdő kezdőállapota ekkor a termikus átlag helyett az alábbi alakban adódik

$$\rho_b(0) = \left(\bigotimes_{i=1}^3 \rho_N(0) \right) \otimes \frac{\mathbb{I}}{m}. \quad (5.20)$$

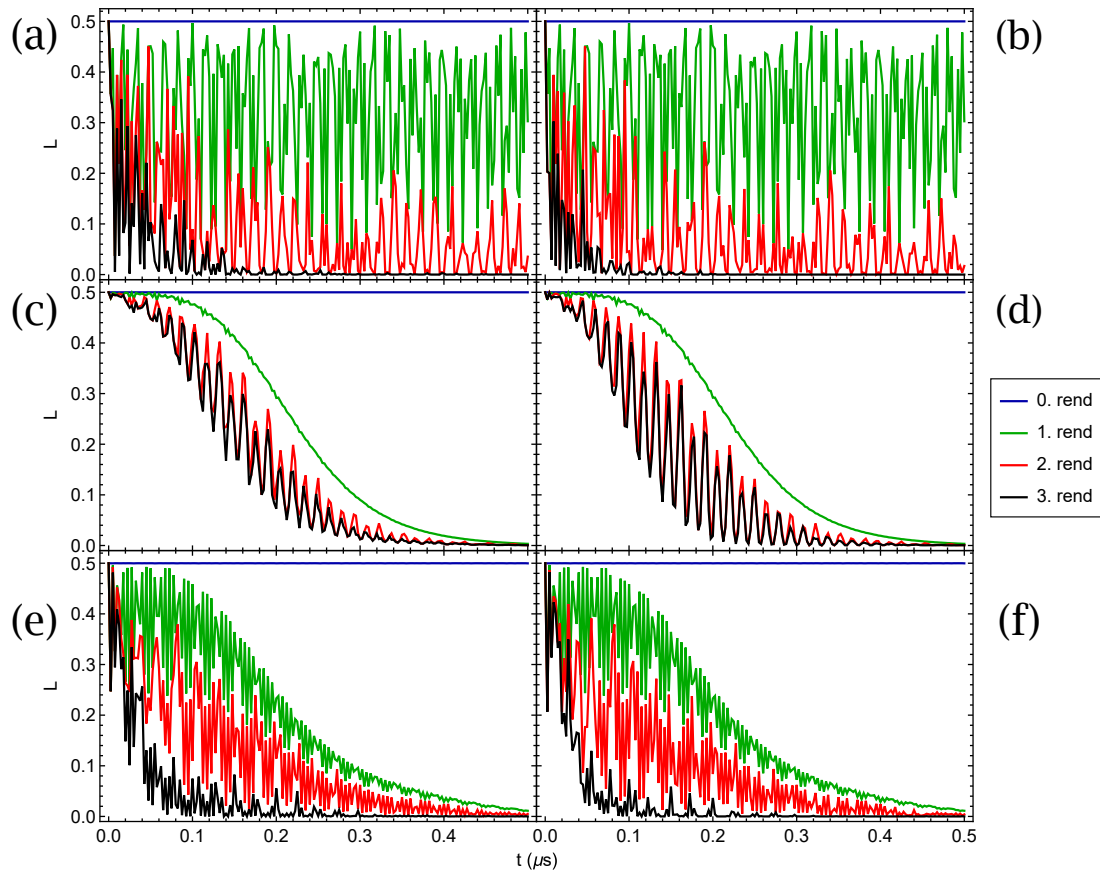
A szimuláció segítségével 0 G, 500 G és 1250 G mellett P_{00} populáció teljes $[0,1]$ tartományában vizsgáltam a koherenciaidőket, melyek eredménye az 5.19. ábrán látható. Nagyobb mágneses terek esetén a polarizációnak nincs, vagy csak gyenge hatása van a dekoherenciára, míg kis terek hatását véve a polarizáció növeli a dekoherencia sebességét. A $B_z = 0$ G-t véve számolt koherenciaidők az ábra bal felső részén találhatóak.



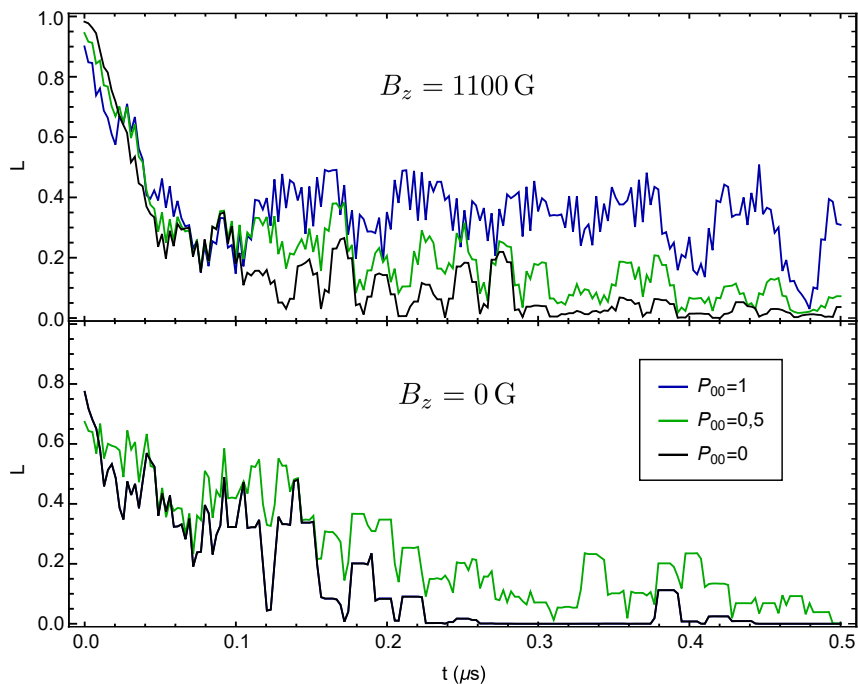
5.18. ábra. Az első szomszéd magspinek kivételével adódó koherenciafüggvények tipikus mágneses terek mellett.



5.19. ábra. A koherenciaidő függése az első-szomszéd nitrogén magspinek polarizációjától különböző mágneses terek mellett.



5.20. ábra. A koherenciafüggvények függése az első-szomszéd magspinek polarizációjától. A bal oldali oszlop a $P_{00} = 0,5$ termikus állapot, míg a jobb oldali oszlop a $P_{00} = 0$ teljes polarizáció esetén adódó függvényeket tartalmazza. (a, b) $B_z = 0$ G, (c, d) $B_z = 500$ G, (e, f) $B_z = 1100$ G.



5.21. ábra. A harmadrendű klaszterek irreducibilis korrelációit leíró függvények mozgóátlaga különböző polarizációk esetén, 1100 G és 0 G mellett.

Az 5.20. ábra (c, d) részén ábrázolt koherenciafüggvények alapján megállapítható, hogy 500 G mellett a polarizáció mértéke elsősorban a harmadrendű függvény oszcillációinak nagyságát befolyásolja. A harmadrendű kontribúció jelentősebb növekedése az 5.19. ábrán szereplő koherenciaidőkkel azonosan csak 0 G esetén jelenik meg.

Az 5.21. ábrán a harmadrendű kontribúciók mozgóatlaga látható a két teljesen polarizált és a termikus átlag kezdőállapot esetén, $B_z = 1100$ G és $B_z = 0$ G mellett. Látható, hogy a $t \lesssim T_2$ ideig a függvények közel azonosak, majd ennél nagyobb időkre a polarizáció szerint szétválnak. Kis mágneses tér esetén a szétválás mértéke P_{00} -val, míg a GSLAC környékén $|P_{00} - 0,5|$ -tel arányos.

5.7. A koherenciaidő változása a transzverzális zérus-tér-felhasadási paraméter függvényében

A VB centrum zérus-tér kölcsönhatásának transzverzális komponensét jellemző E paraméter kísérletileg meghatározott értéke 50 MHz, amely a Hamilton-operátor sajátállapotai által meghatározott kubitállapotok energiaszintjeire a 10 – 15 G-nál kisebb külső mágneses terek esetén jelentős hatást gyakorol. Mivel E értéke külső elektromos térrel, vagy a minta deformációjával megváltoztatható, kis B_z terek mellett indokolt variálásának dekoherenciára gyakorolt hatását vizsgálni.

$E = 0$ MHz esetén a centrális spin Hamilton-operátora diagonális, tehát sajátállapotai megegyeznek az $\hat{S}_z$ spinoperátor sajátállapotaival. Az 5.22. és az 5.23. ábráról leolvasható, hogy ekkor a standard E felhasadás mellett végzett számolásokhoz képest a T_2 koherenciaidő jóval nagyobb, egy kezdeti szakasz után 4 G környékén megközelíti a vizsgált tartományon adódó maximális értéket.

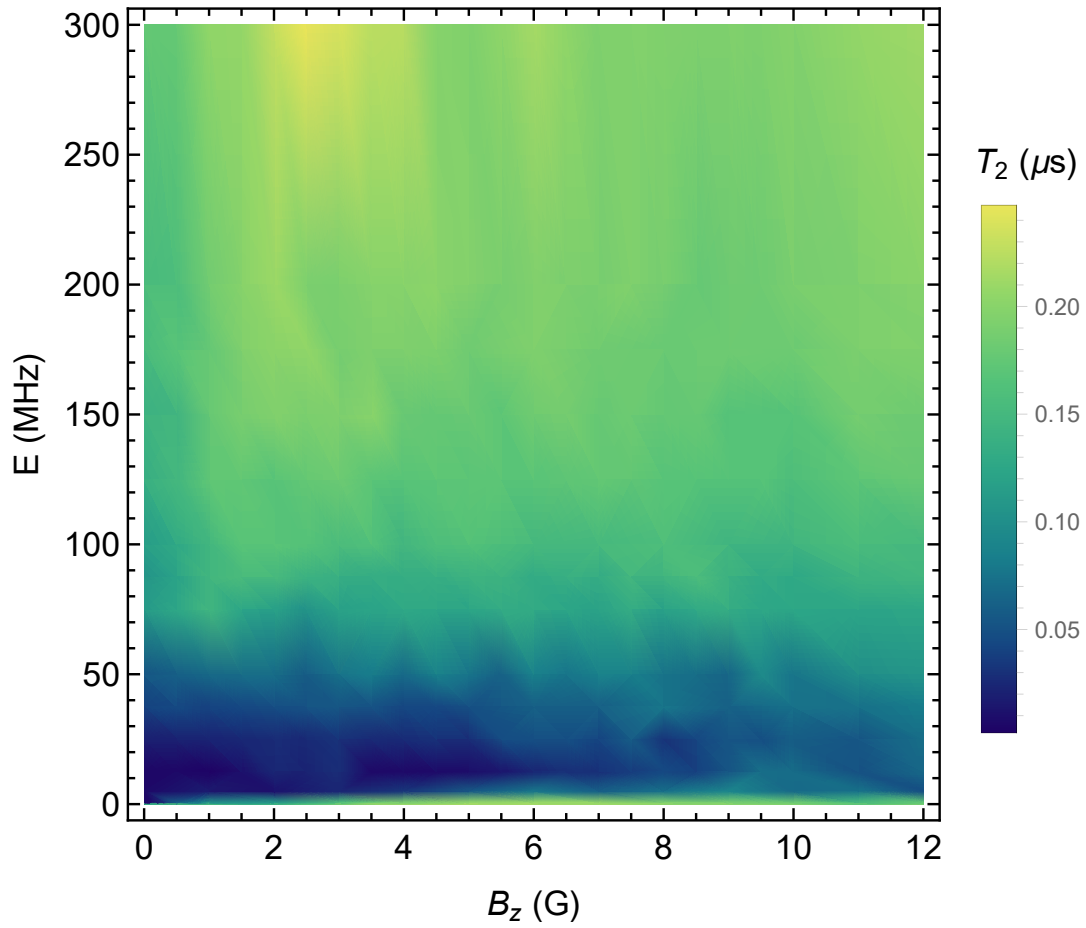
Kivétel ez alól a $B_z = 0$ G eset, ugyanis ekkor az E_+ , E_- energia-sajátértékek megegyeznek, tehát a hozzájuk tartozó sajátállapotok egy kétszeresen degenerált sajátalteret képeznek. Ennek következtében a $|\pm 1\rangle$ állapotok mellett a $|\pm\rangle$ állapotok is deifinálhatóak sajátállapotként, a gCCE módszer alapján adódó koherenciaidők azonban nem függetlenek ettől a választástól. A $|\Psi_- \rangle = |-\rangle$ állapotot választva a koherenciaidő $0,005 \mu s$, míg a $|-1\rangle$ állapotot választva $0,13 \mu s$, az 5.23. ábrán $E = B_z = 0$ környékén látható ugrás ennek következtében jelenik meg.

E (0,5-25 MHz) és B_z kis értékeivel a koherencia jelentősen lecsökken, majd a mágneses tér függvényében lassan növekszik. E további növelésével a koherenciaidők ~ 125 MHz-ig élesen, majd lassuló tendencia szerint növekszenek, végül nagy zérus-tér-felhasadás mellett a $T_2 \approx 0,2 \mu s$ értékhez konvergálnak. Megfigyelhető, hogy $E > 100$ MHz és $B_z > 1$ G esetén a koherenciaidők mágneses tér függvényében közel állandónak adódnak.

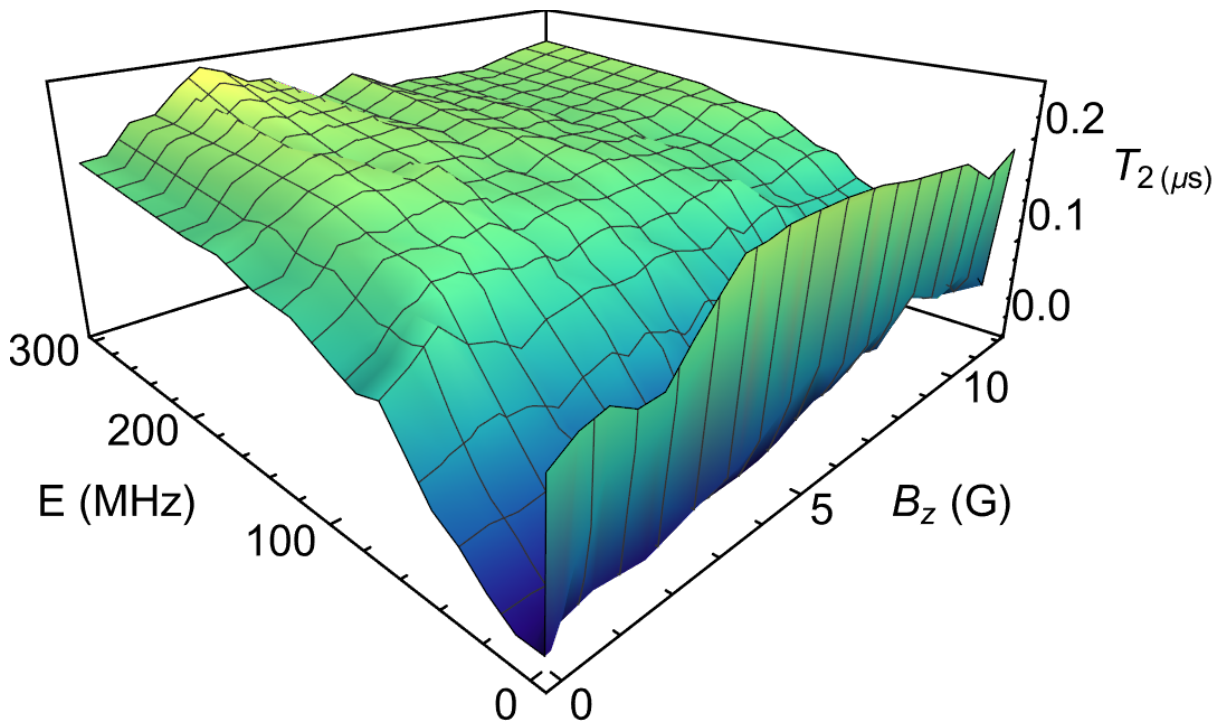
Az 5.24. ábra (a, b) része alapján megállapítható, hogy $E = 0$ MHz mellett az első- és másodrendű klaszterek adnak jelentős dekoherenciajárulékot. Az elsőrendű függvény a külső mágneses tér hatására nem változik, míg a másodrendű járulék mértéke csökken.

$E = 12,5$ MHz esetén külső mágneses tér nélkül az első rend dekoherenciája lassú, függvénye a transzverzális zérus-tér-felhasadás nélküli függvénnyel szemben nagy mértékben oszcillál, azonban másod- és harmadrendben azonnali lecsengés jelenik meg. A külső tér növelésével az elsőrendű kontribúció nő, míg a magasabb rendek hatása csökken (ld. az 5.24. ábra (d) részét).

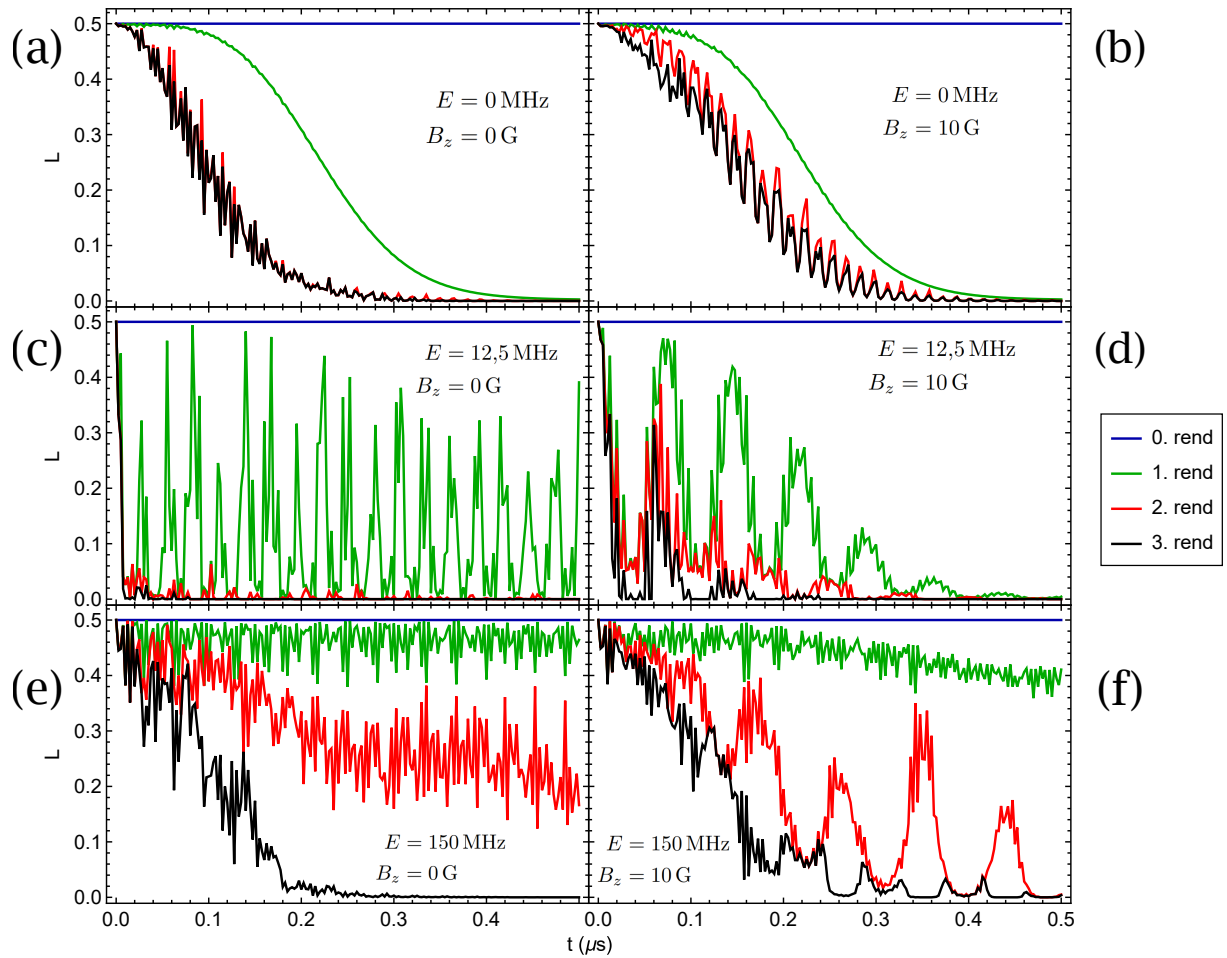
Nagy E hatására $B_z = 0$ G tér mellett az első rendben lényegében nem jelenik meg dekoherencia, míg másod- és harmadrendben is nagy járulék adódik. A teljes koherenciafüggvény a koherenciaidő időskáláján a mágneses tér szerint gyakorlatilag nem változik, azonban $t > T_2$ időkre mind az első-, mind a másodrendű klaszterek hatása megnő.



5.22. ábra. A koherenciaidők értéke a transzverzális zérus-tér-felhasadás függvényében kis külső mágneses terek mellett.



5.23. ábra. Három dimenziós ábra a koherenciaidők értékeiből képzett felületről.



5.24. ábra. A különböző rendekben adódó koherenciafüggvények néhány tipikus zérus-tér-felhasadás és külső mágneses tér mellett. Az (a) részen szereplő koherenciafüggvények a $|-1\rangle$ kubitállapot választásával adódtak, $E = 0,5$ MHz esetén a (c, d) részekhez hasonló függvények adódnak.

6. fejezet

Diszkusszió és kitekintés

A teljes gCCE, valamint a pseudo-szekuláris közelítés vételével meghatározott koherenciaidők összehasonlításából lesűrhető, hogy kis, 0 körüli mágneses terek mellett a hiperfinom kölcsönhatás A_{zi} pseudo-szekuláris tagjainak hatása domináns a nemszekuláris tagokkal szemben, melyek csak kismértékben csökkentik a koherenciaidőt, tehát a $|D - \gamma_e B_z| \gg \sum_i A_{zi}$ feltétel teljesül. A különböző magspinek és rendek járulékának elemzésével megállapítható, hogy ezen a tartományon a dekoherencia elsődleges forrásai a három első-szomszéd nitrogén magspineket tartalmazó másod- és harmadrendű klaszterek nem redukálható korrelációi. Ezt alátámasztja, hogy ezek spinfürdőből való kivételével a koherenciaidő egy nagyságrenddel növekszik, valamint a tény, hogy az elsőrendű, illetve a tisztán bór spinfürdő mellett számolt koherenciafüggvényben sem jelenik meg lecsengés.

Az első-szomszéd magspinek polarizációja az őket tartalmazó klaszterek domináns másod- és harmadrendű mechanizmusai által okozott dekoherenciát növeli, melynek oka a Hamilton-operátorban szerplő $\hat{I}_x$, $\hat{I}_y$ magspin-flip operátorok által előidézett spinfürdő perturbációk mértékének növekedése. A fenti megfontolások alapján tehát a spinfürdő dinamikájának leírása során szükséges mind a magspinek között ható dipól-dipól kölcsönhatás, mind a harmadrendű klaszterek irreducibilis korrelációinak figyelembe vétele.

A külső mágneses tér növelésével egy átmeneti szakasz után, körülbelül 50 G felett, a dekoherencia fő forrása a bór magspinek és a centrális spin szekuláris tagja közötti hiperfinom kölcsönhatás lesz, melyet bizonyít, hogy a pseudo-szekuláris és a tisztán bór, valamint az első-szomszédok nélküli spinfürdő mellett adódó koherenciaidők lényegében azonosak. Ez az egyezés rámutat továbbá arra is, hogy a második-szomszéd és távolabbi magspinek csak kismértékű szekuláris hatást gyakorolnak a vakanciára.

Tisztán nitrogén spinfürdő esetén nem jelenik meg elsőrendű dekoherencia, tehát a gCCE1 sorfejtésben továbbra is érvényes a pseudo-szekuláris közelítés. Ekkor a dekoherenciához az első-szomszéd nitrogén magspineket tartalmazó másod- és harmadrendű klaszterek nemszekuláris tagokra gyakorolt, B_z szerint közel lineárisan növekvő járuléka adódik. A koherenciafüggvények oszcillációjának változásából látható, hogy a polarizáció elsősorban a centrális spin – időfejlődése során bekövetkező – spinfürdővel való (nagy részt koherens) összefonódását befolyásolja, azonban a bór magspinek domináns hatása miatt ez a koherenciadőket érdemben nem befolyásolja. A tisztán bór és tisztán nitrogén spinfürdő mellett adódó koherenciafüggvények szorzatának és a teljes spinfürdő koherenciafüggvényének egyezése alapján megállapítható, hogy a mágneses tér által okozott nukleáris Zeeman-felhasadás elnyomja a bór-nitrogén párkölcsönhatásokat.

Az alapállapotú antikereszteződéshez tartozó térérték körül nagyjából 50-300 G távolságra lévő sávban a pseudo-szekuláris és a teljes sorfejtés koherenciaidejei között megjelenő különbség változása lineárisból áttér egy Lorentz-függvénnyel közelíthető tendenciára. Ennek oka, hogy ekkor már az erősen csatolt nitrogének esetén első rendben sem érvényes a közelítés, aminek következtében a nitrogén magspinek elsőrendű kontribúciójában is megjelenik oszcilláció és kismértékű lecsengés.

A közelítés alkalmazásával számolt koherenciafüggvény ezen a tartományon is megegyezik a tisztán bór spinfűrdő függvényeivel, valamint az első-szomszéd magspinek kivételével vett dekoherencia sem változik, tehát a koherenciaidő csökkenésének oka az első-szomszéd magspinek és a vakancia között fellépő hiperfinom kölcsönhatás, valamint az ezekből képezhető másod- és harmadrendű klaszterek irreducibilis fluktuációi. A polarizáció hatása csak a harmadrendű függvényekben, a dekoherencia karakterisztikus idejénél nagyobb időkre jelenik meg, ahol a koherenciaidő enyhe függése a teljes Hamilton-operátor energia-sajátátállapotaihoz tartozó sajátértékek felhasadását figyelembe véve magyarázható. A két ellentétes állapotba ($P_{00} = 1,0$ és $P_{00} = 0,0$) történő polarizáció esetén ezek energiaszintjeinek különbsége ~ 300 MHz, így az utóbbi esetben a kubitállapotok energia-sajátértékeinek eltérése jóval kisebb, tehát a GSLAC közelében megjelenő effektusok következtében nagyobb dekoherenciajárulék jelenik meg.

A GSLAC közvetlen közelében $|D - \gamma_e B_z| \approx 0$, melyből kifolyólag már a gyengén csatolt magspinekre sem teljesülhet a pseudo-szekuláris közelítés, ennek megfelelően a tisztán bór spinfűrdő koherenciafüggvényeiben is megjelennek ettől eltérő járulékok. Elsősorban a nitrogén, másodsorban a bór spinfűrdő jelentős másodrendű járuléka, valamint az első-szomszéd magspinek elhagyásával vett koherenciaidő lecsökkenése is bizonyítja, hogy a vakancia spin rendkívül érzékeny a környezeti zajokra, spinállapotai között már gyenge effektusok hatására is jelentős longitudinális relaxáció, tehát dekoherencia megy végbe. A nitrogén magspinek polarizációjának hatását ez a relaxáció teljesen elnyomja, emiatt nem figyelhető meg változás a koherenciaidőkben.

A teljes mágneses tértartományon megjelenő effektusokat összegezve tehát kijelenthető, hogy kis mágneses terek esetén az első-szomszéd magspinek nemszekuláris sokspin korrelációi által generált kvantumzajok dominánsak. A bór magspinek hatása csak a mágneses tér növelésével jelenik meg, melynek oka, hogy 0 G környékén az energia-sajátértékek elsőrendben nem függenek a mágneses tér perturbációitól (clock transition), így azok hatása nem képez dekoherenciamechanizmust. A nagy mágneses terek mellett gaussi tendenciát mutató koherenciafüggvények alapján a zajok a kubit állapotok fázisainak egy időben egyenletesen változó eltolásaként jelennek meg, ezt a spinfűrdő gyengén csatolt magspinjeinek lassú, közel homogén időfejlődése okozhatja. Az alapállapotú antikereszteződés környékén a vakancia rendkívül érzékennyé válik a spinfűrdőben fellépő szekuláris fluktuációkra, így ekkor újra a dinamikus kvantumzajok válnak a dekoherencia elsődleges forrásává. A lecsengéseket jellemző kitevők vizsgálatával megállapítható, hogy 0 G és a GSLAC környékén a dekoherencia exponenciális vagy gyorsabb, míg köztes tereken gaussi vagy lassabb, ezek alapján tehát azonos kép adódik a spinfűrdő domináns mechanizmusait illetően.

A VB vakanciából és az azt körülvevő magspinekből álló csatolt spin rendszerben fellépő domináns dekoherenciamechanizmusok elemzésével és megértésével különböző koherencia-védő módszerek fejleszthetők ki, melyek alkalmazásával a hexagonális bór-nitrid használatára épülő technológiák rövid koherenciaidőből adódó limitációi leküzdhetők.

Kutatásom eredményeként megállapítottam, hogy a külső mágneses tér vizsgált tartományán a spinfűrdő effektusainak együttes hatása 100 G környékén optimális. Így amennyiben a külső tér nem befolyásolja a pontos működést, a hosszabb koherenciaidőt igénylő alkalmazásokat célszerű ezen a tértartományon végezni.

A diszkusszióban részletezett következtetések alapján abban az esetben ha a külső tér hatatása nem megoldható, például ha az a kvantumszenzorral mérni kívánt rendszert jelentősen megváltoztatná, a koherenciaidő érdemi növeléséhez az első-szomszéd nitrogén magspinek által okozott zajok kiküszöbölésére lenne szükség. E nitrogénatomokat $S = 0$ spinű ^{12}C szénizotópokkal helyettesítve az erős hiperfinom csatolásból eredő hatások megszüntethetők, mely módszer kísérleti kivitelezése további kutatások tárgyát képezheti.

Az szimulációk alapján meghatározott koherenciaidők tendenciái rámutatnak, hogy a zérus-

tér kölcsönhatás transzverzális komponensének változtatásával is jelentős koherenciaidő növekedés érhető el. Ez kísérletileg a bór-nitrid rétegeinek nyújtásával, vagy külső elektromos tér alkalmazásával megvalósítható, így e koherencia-védő technikák alkalmazhatóságának tekintében további számolások és mérések elvégzése szükséges.

Eredményeim közül további elemzésre szorul a koherenciaidő – a zérus-tér-felhasadás E paraméterének kis értékeinél megjelenő – jelentős függése a kezdőállapot meghatározásától, valamint a gCCE módszer pontossága az alapállapotú antikereszteződés környékén, mely a mérésekhez képest kisebb koherenciaidőt ad, tehát a GSLAC hatását túlbecsüli. Feltehetőleg ennek következtében jelenik meg nagy mágneses tér mellett is érdemi különbség a szeparált spinfürdők és a teljes spinfürdő harmadrendű járulékában. A VB vakanciával foglalkozó további kutatásom során vizsgálni fogom a gCCE negyedik rendjének kontribúcióját, valamint különböző pulzus-szekvenciák és izotópkoncentrációk koherenciaidőkre gyakorolt hatását is.

Irodalomjegyzék

- [1] T Ladd, F Jelezko, R Laflamme, Y Nakamura, C Monroe, and Jeremy O’Brien. Quantum computers. *Nature*, 464:45–53, 2010.
- [2] C. L. Degen, F. Reinhard, and P. Cappellaro. Quantum sensing. *Rev. Mod. Phys.*, 89:035002, 2017.
- [3] David P. DiVincenzo. The physical implementation of quantum computation. *Fortschritte der Physik*, 48:771–783, 2000.
- [4] Po-Hsiu Chien, Kent J. Griffith, Haoyu Liu, Zhehong Gan, and Yan-Yan Hu. Recent advances in solid-state nuclear magnetic resonance techniques for materials research. *Annual Review of Materials Research*, 50:493–520, 2020.
- [5] Hossein Babashah, Hoda Shirzad, Elena Losero, Valentin Goblot, Christophe Galland, and Mayeul Chipaux. Optically detected magnetic resonance with an open source platform. *arXiv:2205.00005 [quant-ph]*, 2022.
- [6] David D. Awschalom, Ronald Hanson, Jörg Wrachtrup, and Brian B. Zhou. Quantum technologies with optically interfaced solid-state spins. *Nature Photonics*, 12:516–527, 2018.
- [7] Marcus W. Doherty, Neil B. Manson, Paul Delaney, Fedor Jelezko, Jörg Wrachtrup, and Lloyd C. L. Hollenberg. The nitrogen-vacancy colour centre in diamond. *Physics Reports*, 528:1–45, 2013.
- [8] David J. Christle, Abram L. Falk, Paolo Andrich, Paul V. Klimov, Jawad Ul Hassan, Nguyen T. Son, Erik Janzén, Takeshi Ohshima, and David D. Awschalom. Isolated electron spins in silicon carbide with millisecond coherence times. *Nature Materials*, 14:160–163, 2015.
- [9] Romana Schirhagl, Kevin Chang, Michael Loretz, and Christian L. Degen. Nitrogen-vacancy centers in diamond: Nanoscale sensors for physics and biology. *Annual Review of Physical Chemistry*, 65:83–105, 2014.
- [10] Scott E. Crawford, Roman A. Shugayev, Hari P. Paudel, Ping Lu, Madhava Syamlal, Paul R. Ohodnicki, Benjamin Chorpening, Randall Gentry, and Yuhua Duan. Quantum sensing for energy applications: Review and perspective. *Advanced Quantum Technologies*, 4:2100049, 2021.
- [11] Pawan Kumar, Florentin Fabre, Alrik Durand, T. Clua-Provost, J. Li, J.H. Edgar, Nicolas Rougemaille, J. Coraux, Xavier Marie, P. Renucci, C. Robert, Isabelle Robert-Philip, Bernard Gil, Guillaume Cassabois, Aurore Finco, and Vincent Jacques. Magnetic imaging with spin defects in hexagonal boron nitride. *Physical Review Applied*, 18, 12 2022.
- [12] Andreas Gottscholl et al. Initialization and read-out of intrinsic spin defects in a van der waals crystal at room temperature. *Nat. Mater.*, 19:540–545, 2020.

- [13] J.-P. Tetienne. Quantum sensors go flat. *Nature Physics*, pages 1–2, 2021.
- [14] A. J. Healey, S. C. Scholten, T. Yang, J. A. Scott, G. J. Abrahams, I. O. Robertson, X. F. Hou, Y. F. Guo, S. Rahman, Y. Lu, M. Kianinia, I. Aharonovich, and J.-P. Tetienne. Quantum microscopy with van der Waals heterostructures. *Nature Physics*, pages 1–5, 2022.
- [15] Viktor Ivády, Igor A. Abrikosov, and Ádám Gali. First principles calculation of spin-related quantities for point defect qubit research. *Npj Computational Materials*, 4:1–13, 2018.
- [16] Jian Lu, I. Ozge Ozel, Carina A. Belvin, Xian Li, Grigorii Skorupskii, Lei Sun, Benjamin K. Ofori-Okai, Mircea Dincă, Nuh Gedik, and Keith A. Nelson. Rapid and precise determination of zero-field splittings by terahertz time-domain electron paramagnetic resonance spectroscopy. *Chem. Sci.*, 8:7312–7323, 2017.
- [17] Wooi Yee Chuah. *Spectroscopic and Computational Studies on the Water Oxidising Complex and Redox-Active Tyrosines of Photosystem II*. PhD thesis, 07 2015.
- [18] Mohammad Mostafanejad. Basics of the spin hamiltonian formalism. *International Journal of Quantum Chemistry*, 114:1495–1512, 2014.
- [19] Wen Yang, Wen-Long Ma, and Ren-Bao Liu. Quantum many-body theory for electron spin decoherence in nanoscale nuclear spin baths. *Rep. Prog. Phys.*, 80:016001, 2016.
- [20] Erwin L. Hahn. Spin echoes. *Phys. Rev.*, 80:580–594, 1950.
- [21] Herman Y. Carr and Edward M. Purcell. Effects of diffusion on free precession in nuclear magnetic resonance experiments. *Phys. Rev.*, 94:630–638, 1954.
- [22] A. Haykal, R. Tanos, N. Minotto, A. Durand, F. Fabre, J. Li, J. H. Edgar, V. Ivády, A. Gali, T. Michel, A. Dréau, B. Gil, G. Cassaboies, and V. Jacques. Decoherence of V_B^- spin defects in monoisotopic hexagonal boron nitride. *Nature Communications*, 13:4347, 2022.
- [23] Hosung Seo, Abram Falk, Paul Klimov, Kevin Miao, Giulia Galli, and David Awschalom. Quantum decoherence dynamics of divacancy spins in silicon carbide. *Nature Communications*, 7, 2016.
- [24] Wen Yang and Ren-Bao Liu. Quantum many-body theory of qubit decoherence in a finite-size spin bath. *Phys. Rev. B*, 78:085315, 2008.
- [25] Zhi-Sheng Yang, Yan-Xiang Wang, Ming-Jie Tao, Wen Yang, Mei Zhang, Qing Ai, and Fu-Guo Deng. Longitudinal relaxation of a nitrogen-vacancy center in a spin bath by generalized cluster-correlation expansion method. *Annals of Physics*, 413:168063, 2020.
- [26] Mykyta Onizhuk, Kevin C. Miao, Joseph P. Blanton, He Ma, Christopher P. Anderson, Alexandre Bourassa, David D. Awschalom, and Giulia Galli. Probing the coherence of solid-state qubits at avoided crossings. *PRX Quantum*, 2:010311, 2021.
- [27] Viktor Ivády, Gergely Barcza, Gergő Thiering, Song Li, Hanen Hamdi, Jyh-Pin Chou, Örs Legeza, and Ádám Gali. Ab initio theory of the negatively charged boron vacancy qubit in hexagonal boron nitride. *npj Computational Materials*, 6:41, 2020.
- [28] Péter Udvarhelyi, Tristan Clua-Provost, and Alrik et al. Durand. A planar defect spin sensor in a two-dimensional material susceptible to strain and electric fields. *npj Comput Mater*, 9:150, 2023.
- [29] István Takács and Viktor Ivády. Accurate hyperfine tensors for solid state quantum applications: Case of the nv center in diamond. *arXiv:2309.03983 [quant-ph]*, 2023.

- [30] Xingyu Gao, Sumukh Vaidya, Kejun Li, Peng Ju, Boyang Jiang, Zhujing Xu, Andres E. Llacahuanga Alcca, Kunhong Shen, Takashi Taniguchi, Kenji Watanabe, Sunil A. Bhave, Yong P. Chen, Yuan Ping, and Tongcang Li. Nuclear spin polarization and control in hexagonal boron nitride. *Nature Materials*, 21:1024–1028, 2022.