

Ponthiba kvantumbitek dekoherenciája félvezető nanostruktúrákban

TDK Dolgozat

Írta:

Tárkányi András

Fizikus BSc. 3. évfolyam

Témavezető:

Iványi Viktor

ELTE TTK, Komplex Rendszerek Fizikája Tanszék



Eötvös Loránd Tudományegyetem

2025. január 8.

Tartalomjegyzék

1. Bevezetés	3
2. Vizsgált rendszerek	6
2.1. Az NV^- centrum gyémántban	6
2.2. A VB^- vakancia hexagonális bór-nitridben	8
3. Módszerek	11
3.1. Spinfürdő modell és Hamilton-operátor	11
3.2. Dekoherenciafolyamatok és mérési protokolljaik	14
3.3. Általánosított klaszter-korrelációs sorfejtés	16
3.3.1. A gCCE módszer fizikai tartalma	17
3.3.2. Memóriahatékony implementáció	18
3.4. Szekuláris és pszeudo-szekuláris közelítés	19
4. Felületközei NV^- centrumok koherenciaideje gyémántban	20
4.1. A szabad indukciós lecsengés kontrollparaméter függése	20
4.1.1. Modell rendszerek energiaszint szerkezete	21
4.1.2. gCCE1 szimulációk bővített centrális maggal	22
4.1.3. Szabad indukciós lecsengés kísérletileg realizálható kontrollparamé- terek mellett	23
4.1.4. Transzverzális zérus-tér felhasadás által indukált zajszupresszió	24
4.2. Szekuláris és pszeudo-szekuláris közelítések a spinfürdőn	26
4.2.1. Az $E \sim A^{(C)}$ tartomány	26
4.2.2. Az $E \gg A^{(C)}$ tartomány	27
4.3. A szabad indukciós lecsengés függése a szekuláris hiperfinom komponensek eloszlásától	30
4.4. Diszkusszió	32
5. VB^- vakancia hexagonális bór-nitridben	35
5.1. Széleskörű konvergenciaszámolások	35
5.2. A Hahn echo koherenciaidő mágneses tér függése	37
5.3. Az elektron spin által közvetített magspin flip-flip és flip-flop	39
5.4. A nagy tér határeset	44

5.5.	A spinfürdő térbeli szeparációja	46
5.6.	További szimulációs eredmények	47
5.6.1.	Az elsőrendű beating frekvenciája	47
5.6.2.	Zérus mágneses tér környéke	48
5.6.3.	A transzverzális zérus-tér felhasadás hatása	50
5.7.	Diszkusszió és kitekintés	51
6.	A TDK dolgozat összegzése és a kutatómunka folytatása	53
A.	Saját kontribúciók	54

Köszönetnyilvánítás

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.

1. fejezet

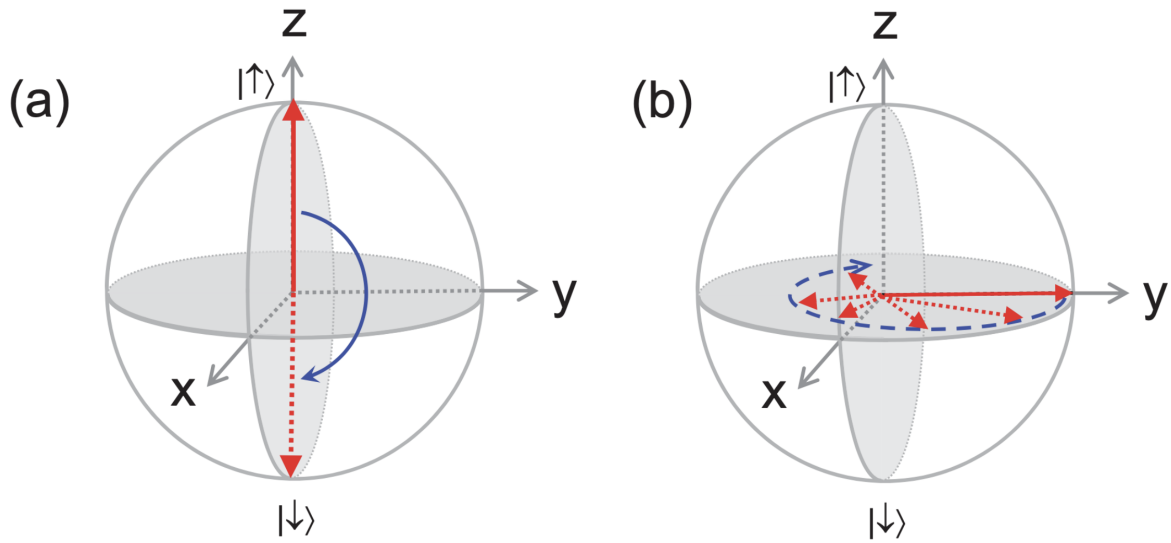
Bevezetés

A kvantummechanika törvényeit követő klasszikus eszközök és a kvantumos viselkedést mutató objektumok új szabadsági fokainak kihasználása az utóbbi évtizedekben rendkívüli technológiai fejlődést tett lehetővé. Ezen túlmenően ma a kvantummechanikából leszármazó, rendkívül aktívan és gyorsan fejlődő tudományterületek elsődleges célja a kvantumos viselkedést mutató objektumokat alkalmazó technológiák a klasszikus fizikán alapuló eszközökkel szembeni lehetséges előnyeinek felismerése és valódi fizikai rendszerekben történő realizálása. A kvantumszámítástechnika és a kvantuminformáció-technológia esetében a kvantumelőnyt (quantum advantage) eddig főként egyedi, specifikus problémák megoldásában és bizonyítottan működő koncepciók alkalmazásában sikerült demonstrálni. Ezzel szemben a kvantumos méréstechnológia és a kvantumérzékelés területén alkalmazott kontrollált kvantumrendszerek mára a piacon is kapható nagy pontosságú és felbontóképességű eszközök építőelemeit képezik [1].

A legegyszerűbb kontrollált kvantumrendszer a kubit. Fontos megkülönböztetni logikai kubitet, mely idealizált, hiba nélküli rendszer, illetve a kubit fizikai realizációját. Utóbbi pontos elméleti modellezését és alkalmazását különböző hibaforrások; például elhanyagolt szabadsági fokok vagy a környezettel való kölcsönhatások limitálják.

A mag mágneses- (nuclear magnetic resonance, NMR) és az elektron paramágneses rezonancia (electron paramagnetic resonance, EPR) területén használt terminológiát alkalmazva, a kubit koherens időfejlődését befolyásoló környezeti hatások két fő kategóriába sorolhatóak (ld. 1.1 ábra); 1) a relaxációs folyamatok a mérési bázisban értelmezett valószínűségi együtthatók változását, termalizációját okozzák, illetve 2) a dekoherenciafolyamatok a kubitállapot fázisinformációjának elvesztéséhez vezetnek. Előbbi karakterisztikus idejét T_1 , utóbbiét kvázisztatikus zajok esetén T_2^* , illetve dinamikus zajok esetén T_2 értékekkel lehet jellemezni.

A kvantumtechnológiai alkalmazások mindegyikénél esszenciális a kellő hosszúságú koherenciaidő, pl. a kvantumérzékelés területén a szenzitivitás a koherenciaidőtől $\eta \sim 1/\sqrt{T_C}$ szerint függ [1]. Emiatt világszerte aktívan kutatott terület a koherens dinamika kísérleti és elméleti vizsgálata. A megfelelő koherenciaidő mellett a kvantumszenzorok



1.1. ábra. (a) A kubit relaxációja és (b) dekoherenciája. Átvéve [2]-ből.

praktikus alkalmazhatóságának további szükséges feltétele a szenzor elegendően kis mérete (footprint), valamint a szenzor és a minta távolságának minimalizálása. Mindkettő jelentősen befolyásolja az érzékenységet és a térbeli felbontóképességet, mely szükségessé teszi az alkalmazásnak megfelelő nanostruktúra gyártását.

A kvantumérzékelés szempontjából kifejezetten fontosak a szilárdtestbeli kubit realizációk. A szilárdtestek robusztus, rendkívül fejlett ipari gyártástechnológiával rendelkező, a környezet kvantummechanikai értelemben extrém állapotai mellett is stabil platformot képeznek a különböző kvantumrendszerek számára.

Az utóbbi években exponenciálisan növekvő kísérleti és elméleti kutatási terület a különböző félvezetők rácsában előforduló egyedi vakanciákból és szubsztitúciós atomokból álló ponthibák fizikája és alkalmazása. A ponthibát alkotó elektronszerkezet spinállapotait (a továbbiakban elektron spin), mint diszkrét kvantumállapotokat kihasználó kvantumbitek az ilyen kvantumtechnológiák egyedülálló alcsoportját alkotják, amelyek akár a szobahőmérsékletet jóval meghaladó hőmérsékleten (1400 K) is megőrzik koherens állapotukat [3, 4, 5]. Általánosságban elmondható, hogy a kvantumtechnológiai alkalmazások szempontjából releváns, magas szimmetriájú kristályráccsal és széles tiltott sávval rendelkező félvezető anyagokban, pl. gyémánt, szilícium-karbid, hexagonális bór-nitrid, képződő ponthibák elektronsűrűsége az első szomszéd rácspontokon lokalizálódik, elektronszerkezetének diszkrét energiaszintjei pedig az anyag széles tiltott sávjában helyezkednek el, melyek így energetikailag jól elszeparáltak [6, 7, 8].

A ponthiba elektronszerkezetének alapállapota általában $S > 1/2$ spinkvantumszámmal jellemezhető. A további gerjesztett és metastabil állapotok között megjelenő optikai és spinszelektív átmenetek lehetővé teszik a kubitok optikai gerjesztéssel történő inicializá-

lását, valamint kiolvasását [9]. A megfelelő spinállapotok közötti energiafelhasadásokkal azonos frekvenciára kalibrált elektromágneses gerjesztéssel minden egykubites kvantumkapu (quantum gate) implementálható.

A ponthiba kubiteket képező elektron spinállapotok dekoherenciáját okozó elsődleges zajforrás a környező rácspontokban található nemnulla spinnel rendelkező atommagok mágneses momentumaiból eredő zaj, kvantummechanikai effektusokat tekintve pedig ezek hiperfinom csatolása és dipól-dipól kölcsönhatása. A pontos koherenciadinamika kísérleti vizsgálata a legkorszerűbb módszerekkel is csak korlátozottan lehetséges, így a rendszert meghatározó folyamatok megértéséhez elengedhetetlen a rendszer spindinamikai szimulációja, illetve elméleti vizsgálata. A dekoherencia jelenségére fókuszálva, a sokspines rendszerek időfejlődése legkorszerűbben az általánosított klaszter-korrelációs sorfejtés (generalized cluster-correlation expansion, gCCE) segítségével szimulálható [10].

Elméleti kutatásom során a tudományterület mai állása szerinti két legfontosabb ponthiba koherenciadinamikáját vizsgáltam. A gyémántban található felületközeli nitrogén-vakancia centrum (NV^-) szabad dekoherencia idejét (T_2^*) néhány Gauss nagyságú és tetőleges irányú mágneses tér mellett elemeztem. A kutatás célja a környező magspinekkel való hiperfinom csatolás által meghatározott mágneses tér tartományokban megjelenő koherenciavédő effektusok hatásának megértése. A kutatás hipotézise szerint e tartományokban a koherencia jelentős növekedése várható. Eredményeim ezt bizonyítják, továbbá pontos képet szolgáltatnak más kölcsönhatási paraméterek megfelelő kalibrációjához. Emellett metódust javaslok a mágneses indukcióvektor mindhárom komponensének T_2^* mérésen keresztül történő egyidejű meghatározására.

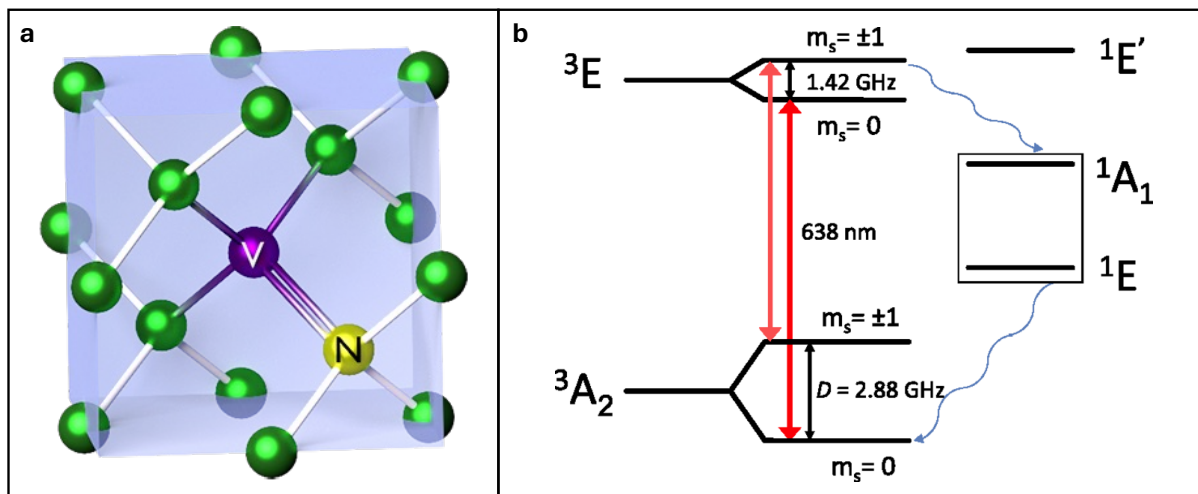
A grafénszerű, kétdimenziós ráccsal rendelkező hexagonális bór-nitridben található bór vakancia (VB^-) dinamikus zaj hatására történő koherenciaidejét (T_2) nulla külső mágneses tértől a nagy-tér határesetig ($0 - 3$ T) vizsgáltam. A célkitűzés a nagy mágneses tér határesetben és a kisebb tereknek megfelelő tartományokban végbemenő dinamika megértése. Eredményeim bizonyítják a koherenciaidő jelentős növelésének lehetőségét, valamint széleskörű leírást adnak a dekoherencia domináns forrásait jelentő effektusokról a teljes mágneses tér tartományban.

2. fejezet

Vizsgált rendszerek

Ebben a fejezetben röviden ismertetem a kutatómunkám során vizsgált fizikai rendszereket. Bemutatom a gyémánt és a monoizotópos hexagonális bór-nitrid kristályszerkezetét, a rácspontokat elfoglaló nemnulla spinű atommagok jellemzőit, valamint a negatív töltésű nitrogén-vakancia centrum (gyémánt) és a negatív töltésű bór vakancia (bór-nitrid) elektronszerkezetét, alapállapotú finomszerkezetét és a jellemző kölcsönhatási paramétereiket. Ismertetem továbbá a két rendszer esetén különböző típusú koherenciaidő vizsgálatának elsődleges motivációit.

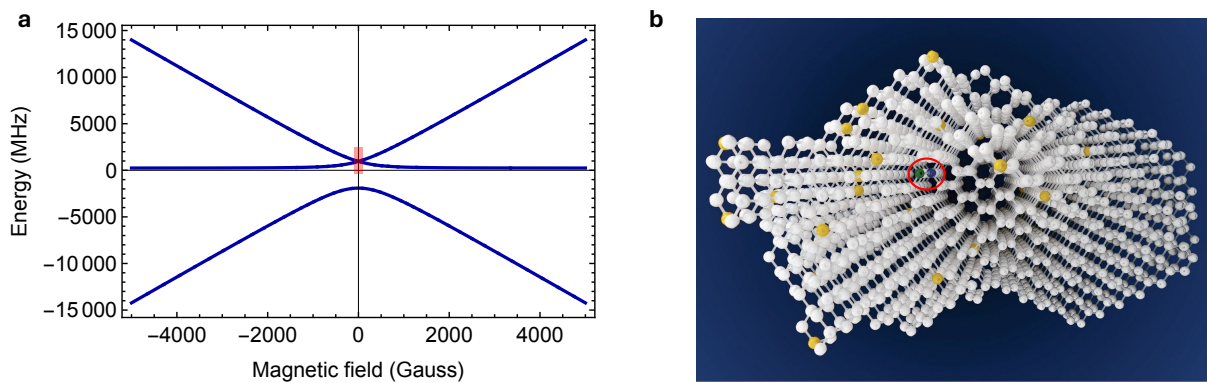
2.1. Az NV^- centrum gyémántban



2.1. ábra. (a) NV centrum gyémántban. (b) Az NV^- ponthiba energiaszint szerkezete szobahőmérsékleten (átvéve [11] cikkből).

A gyémánt széles tiltott sávú (5.5 eV) félvezető, melyben ion-implantációval az $[111]$ kristályorientáció mentén C_{3v} szimmetriájú nitrogén szubsztitúciós atom – vakancia párok (NV) kreálhatóak [6], ld. 2.1a ábra. A ponthiba elektromosan semleges (NV^0) és – egy további elektron lekötésével – egyszeres negatív töltésű (NV^-) formában jöhet létre.

Az alkalmazások szempontjából az NV⁻ triplett ($S = 1$) elektron spinjének tulajdonságai előnyösek, melynek kvantálási tengelye egybeesik a ponthiba szimmetriatengelyével (c-tengely, z-tengely). Az NV⁻ centrum szobahőmérsékletű energiaszint szerkezete a 2.1b ábrán látható [11]. A ponthiba állapotainak energiája a félvezető tiltott sávján belül helyezkedik el, emiatt ezek kristály kötéseit alkotó környező elektronoktól energetikailag jól szeparált kvantumállapotok. A triplett alap- és gerjesztett állapot mellett metastabil szingulett állapotok is megjelennek. Az elektronállapotok közötti spinszelektív átmenetek optikai gerjesztés útján a $|0\rangle$ állapotba történő inicializációt, valamint fotolumineszcencia-intenzitás mérésével optikai kiolvasást tesznek lehetővé [12]. Az alapállapot $|0\rangle$ és $|\pm 1\rangle$ állapotok zérus-tér felhasadása $D \approx 2.88$ GHz [13], az állapotokat keverő $\pi/2$ pulzus ezzel rezonáns mikrohullámú gerjesztéssel implementálható. Az alapállapot spin finomszerkezete a c-tengellyel $\theta = 60^\circ$ szöget bezáró külső mágneses tér függvényében a 2.2a ábrán látható. Megfigyelhető az energiaszintek Zeeman-felhasadása, valamint a transzverzális mágneses tér által generált állapotkeveredés hatására megjelenő elkerült kereszteződés (avoided crossing).



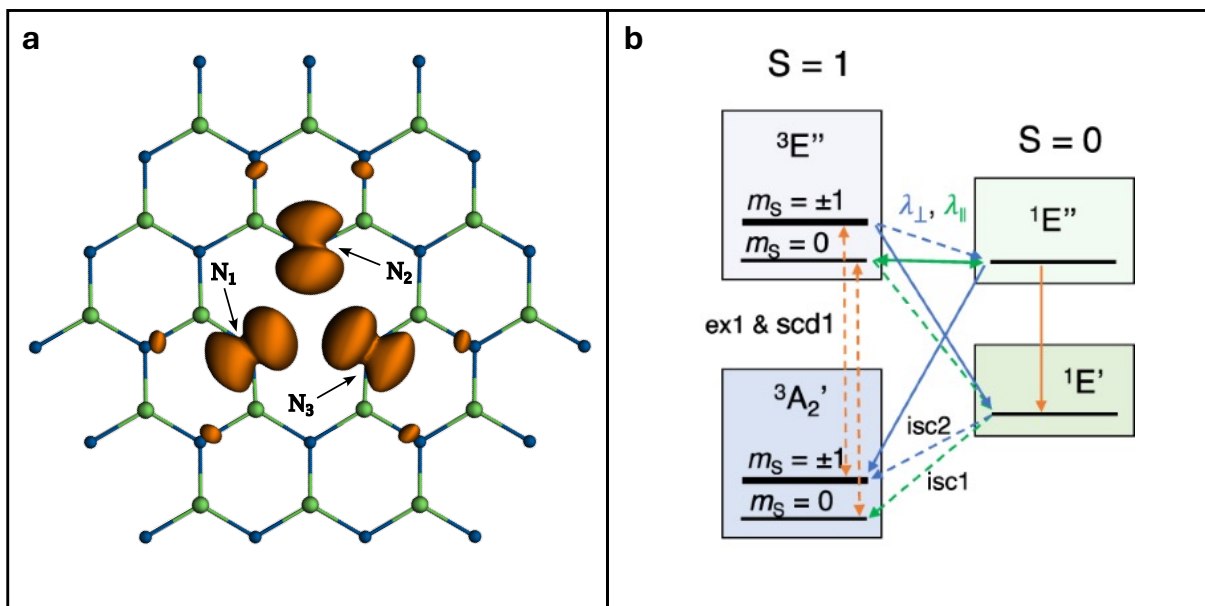
2.2. ábra. (a) Az NV centrum elektron spinjének alapállapotú finomszerkezete a c-tengellyel (kvantálási tengellyel) $\theta = 60^\circ$ szöget bezáró külső mágneses tér függvényében. A kutatás során vizsgált tartomány pirossal jelölve. (b) Illusztráció egy NV centrumot (pirossal bekarikázva) és természetes koncentrációban ^{13}C magspineket tartalmazó gyémánt rácstről. [14] cikkhez gyártott illusztráció.

A természetben fellelhető gyémánt rácscsa $c = 1.07\%$ arányban tartalmaz ^{13}C szénizotópot, mely $I = 1/2$ magspinnel rendelkezik (ld. 2.2b ábra). A leggyakoribb ^{12}C izotópnak nincs mágneses momentuma, így természetes előfordulás esetén átlagosan körülbelül minden századik rácsponton található magspin. A ponthiba elektronsűrűsége elsősorban a vakanciával szomszédos szénatomokra lokalizálódik, így, amennyiben a rácspontban ^{13}C izotóp található, ezek hiperfinom csatolása $A_{zz} \sim 100$ MHz nagyságrendű [11]. A spinek csatolásának erőssége gyorsan csökken a távolság növekedésével. Ennek következtében igen kicsi valószínűséggel található olyan NV centrum, amely esetén a legerősebben csatolt ^{13}C magspin hiperfinom normája meghaladja a ~ 10 MHz értéket.

A nukleáris mágneses rezonancia jelerőssége az NV centrum és a mérendő spinek tá-

volságától $\sim d^{-3}$ szerint függ [15], tehát a kvantumos érzékelés realizálásához szükséges jel-zaj arány (signal-to-noise ratio) szempontjából létfontosságú a ponthiba és a mérni kívánt objektum kis távolsága. A felületközeli NV centrumok kvázisztatikus és dinamikus zajokat jellemző koherenciaideje (T_2^* , T_2) lényegesen kisebb, mint a gyémántban mélyen elhelyezkedő centrumoké, melynek oka a különböző felületi effektusokból eredő töltésállapot-instabilitás, valamint elektromos és mágneses zaj [16]. Kontrollált felületi sávtorzítással a NV^- töltése stabilizálható és az elektromos zajok csillapíthatóak [17]. A magnetometria szempontjából releváns kis külső mágneses terek mellett a ponthiba-spin koherenciájának mágneses zajoktól való védésére korszerű javaslat az óráátmenetek (clock transition, avoided crossing) alkalmazása, mely olyan mágneses tér tartományt jelent, ahol az elektron spin nem érzékeny az elsőrendű mágneses tér fluktuációkra [18] (ld. 4.1 ábra). Ez a hatás a kvázisztatikus zajok dominanciája esetén jelentősebb mértékben érvényesül, így munkámban az inhomogén fázisvesztést jellemző T_2^* koherenciaidőt vizsgálom az óráátmeneteknek megfelelő paramétertartományban. Az FID vizsgálatát tovább motiválja, hogy DC (direct current) magnetometria esetén a szenzitivitás T_2^* -tól függ, valamint az előzetes szimulációk alapján a T_2^* koherenciaidő mágneses tér függése rendkívül komplex, amely a fellépő effektusok alkalmazásorientált kihasználására adhat lehetőséget.

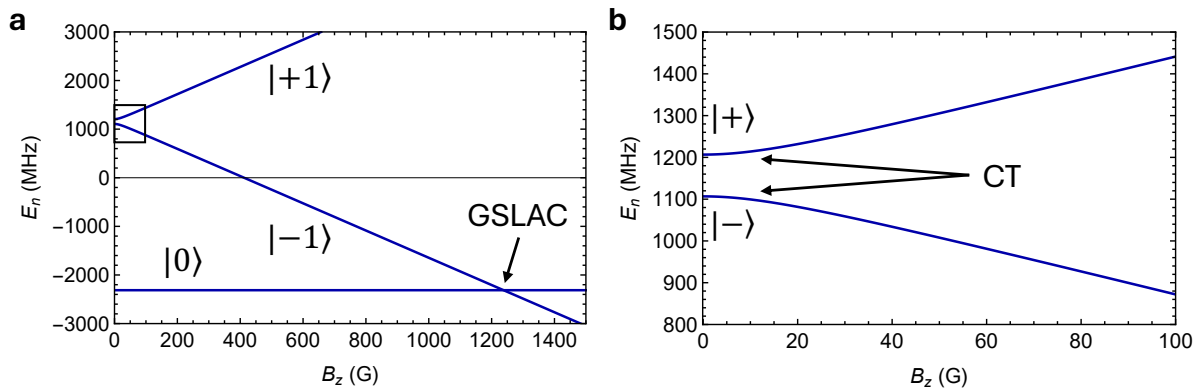
2.2. A VB^- vakancia hexagonális bór-nitridben



2.3. ábra. (a) A VB^- vakancia szerkezete és az elektronsűrűség egy potenciálfelülete. (b) A VB^- vakancia egyszerűsített elektronszerkezete és spinszelektív átmenetei. Átvéve [19] cikkből.

A hexagonális bór-nitrid szintén egy széles tiltott sávú (5.95 eV) félvezető. A van der Waals (2D) anyag szerkezete a grafén szerkezetéhez hasonló egyszerű hatszöges pakolású

rétegekből áll. Ion-implantáció vagy neutron besugárzás alkalmazásával egy bór atom kiüthető a rácsból, így – egy további elektron megkötésével – létrejön egy negatív töltésű VB^- centrumot, ld. 2.3a ábra [20]. A ponthiba legmagasabb pontcsoport szimmetriája D_{3h} , tehát egy háromfogású forgási szimmetriatengely mellett a vakancia egy erre a tengelyre merőleges tükörsíkkal is rendelkezik. A rács deformációja vagy elektromos tér hatására a szimmetria C_{3v} vagy C_{2v} (három- vagy kétfogású forgástengely, erre merőleges tükörsík nélkül) szimmetriára redukálódhat. A ponthiba szobahőmérsékletű elektronszerkezete a 2.3b ábrán látható. A spinszelektív átmenetek alkalmazásával a vakancia tripllett spinállapota az NV^- centrummal analóg módon optikailag inicializálható, valamint kiolvasható. A vakancia nagy axiális $D \approx 3470$ MHz zérus-tér felhasadása következtében az elektron spin kvantálási tengelye a 2D rétegekre merőleges. Az elektronsűrűség jelentős része a vakanciával első szomszéd, erősen csatolt nitrogének lokalizálódik, ezek szekuláris hiperfinom csatolása ^{15}N izotóp esetén $A_{zz} \approx 66$ MHz. A vakanciával azonos rétegben elhelyezkedő magspinek hiperfinom mátrixának A_{zx} és A_{zy} komponense szimmetriamegfontolások alapján 0 [19, 21, 22]. A vakancia szimmetriájának sérülése miatt egy $E \approx 50$ MHz nagyságú transzverzális zérus-tér felhasadás mérhető [21], melynek fő oka a ponthiba helyén fellépő elektromos tér fluktuáció [23] vagy a bór-nitrid réteg kismértékű görbületéből eredő mechanikai feszültség (a [21] cikk utolsó szerzőjével, Vladimir Dyakonovval való diszkusszió alapján).



2.4. ábra. A VB^- vakancia tripllett elektron spinjének energiaszint szerkezete a c-tengellyel (kvantálási tengellyel) párhuzamosan irányú mágneses tér függvényében. (b) az (a) ábrán bekeretezett tartományt mutatja. Megfigyelhető a transzverzális zérus-tér felhasadás hatására létrejött óráátmenet és állapotkeveredés $B_z = 0$ G-nál, a $|\pm 1\rangle$ állapotok Zeeman-effektus okozta szétválása, valamint az alapállapoti antikereszteződés.

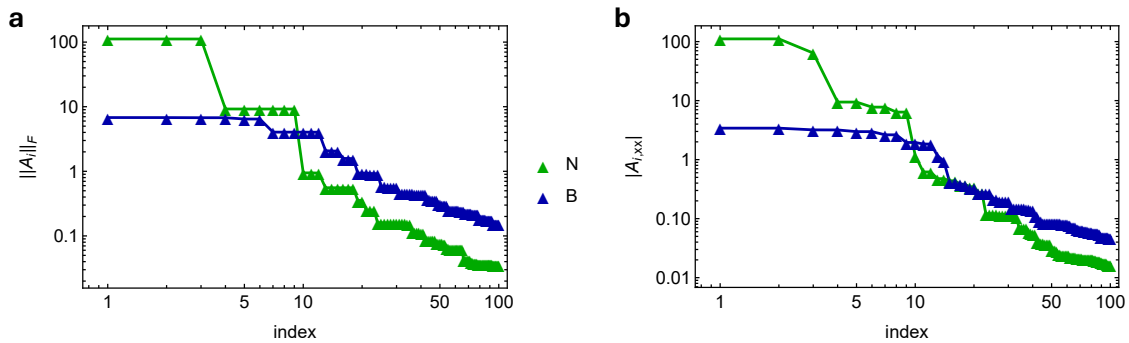
A VB^- vakanciát alkotó elektronok tripllett spinjének alapállapoti finomszerkezete a 2.4 ábrán látható. Megfigyelhető a $|\pm 1\rangle$ és $|0\rangle$ állapotok D nagyságú felhasadása, valamint a zérus-tér felhasadás transzverzális komponense által indukált óráátmenet $B_z = 0$ G-nál. Az elektron Zeeman-effektus hatására a $|-1\rangle$ és $|0\rangle$ állapotok $B_{GSLAC} \approx 1238$ G mellett kereszteződnek, ez az alapállapoti antikereszteződés (ground state level anticrossing, GSLAC). $B_z \neq 0$ G esetén az elektron spin az időfejlődés kezdetén ezen állapotok

koherens szuperpozíciójába van inicializálva, ezért a GSLAC környékén a rendszer az elektron spin-flipet és ezáltal a populációk relaxációját okozó kis zajokra is érzékeny.

A kristályt alkotó nitrogén és bór atomok természetben előforduló összes izotópjának magja nem nulla spinű, emiatt a vakanciát körülvevő spinfürdő sűrű, minden rácsponton található magspin. A 2.5 ábrán a hiperfinom mátrixok Frobenius-normája (a komponensek négyzetösszegének gyöke), valamint a példaként vett A_{xx} komponens abszolút értéke látható. Megfigyelhető, hogy magspinek hiperfinom csatolásának erőssége a ponthibától vett r távolság szerint gyorsan csökken és a magspinek a ponthibától vett első, második, stb. szomszédsági távolság szerint azonos nagyságrendű csatolási állandóval rendelkező héjakat alkotnak.

Kutatásomban a monoizotópos $^{11}\text{B}^{15}\text{N}$ bór-nitridben létrehozott VB^- vakancia T_2 koherenciaidejét vizsgálom széles ($0 - 3$ T), a kvantálási tengellyel párhuzamos külső mágneses tér tartományban. A sűrű, erősen csatolt spinfürdő miatt a bór vakancia T_2^* koherenciaideje mágneses tértől függetlenül rendkívül rövid. A ^{15}N izotóp ($S = 1/2$) koherenciadinamikáját közelmúltbeli kísérleti eredmények előnyösnek találták [24], a ^{11}B izotóp természetes előfordulási aránya magas ($c = 80.1\%$), spinkvantumszáma ($S = 3/2$) pedig fele a ^{10}B izotópénak, amely jelentősen limitálja a dekoherenciát okozó átmenetek számát.

A bór magspinek $|\pm 1/2\rangle$ és $|\pm 3/2\rangle$ sajátállapotai a $S > 1/2$ spin miatt a nukleáris kvadrupólus kölcsönhatás következtében felhasadnak. A felhasadást jellemző, D -vel analóg kölcsönhatási konstans a VASP programcsomaggal POTCAR pseudopotenciálokból számolt elektromos tér gradiens alapján $Q = 0.93$ MHz.



2.5. ábra. A hiperfinom mátrixok csökkenő sorrendbe rendezett (a) Frobenius-normája és (b) az A_{xx} komponens abszolút értéke. Megfigyelhetők a vakancia körüli héjak.

3. fejezet

Módszerek

Ebben a fejezetben bemutatom a ponthibákat tartalmazó kristályok spinrendszerének leírására használt spinfürdő modellt és az időfejlődést leíró Hamilton-operátort. Ismertetem továbbá a ponthiba-spinek lényeges dekoherenciafolyamatait, az ezek mérésére alkalmazott kísérleti protokollokat, valamint a spindinamika szimulálására használt legkorszerűbb módszert. Bemutatok továbbá két hasznos közelítést, melyek alkalmazása fontos kvalitatív és kvantitatív betekintést nyújt a rendszer releváns folyamataiba.

A dolgozatban a kölcsönhatási paraméterek numerikus értékét mindig $\hat{H}/h$ szerint származtatott frekvencia alakban adom meg.

3.1. Spinfürdő modell és Hamilton-operátor

Az egyedi, különböző vakanciákból vagy szubsztitúciós atomokból álló ponthibák modellezése alapvetően visszavezethető egy jól mérhető és kontrollálható centrális kvantumobjektum és az ezt körülvevő, vele kölcsönható környezet dinamikájára. Az így alkotott fizikai kép a spinfürdő (spin bath) modell [2], mely a szilárdtest rácsának spinjeit a ponthiba helyén lokalizált elektron spin és a kristályszerkezet rácspontjaiban elhelyezkedő atommag-spinek (spinfürdő) alrendszerre, valamint ezek kölcsönhatására képezi le. Az applikációk szempontjából releváns centrális elektron spin állapotát a környezettel való interakcióból eredő kvázisztatikus és dinamikus zajok folyamatosan perturbálják, amely dekoherenciához vezet. A szobahőmérsékletű rendszer kezdőállapota

$$\hat{\rho}(t=0) = \hat{\rho}_e(0) \otimes \left(\bigotimes_i \frac{1}{2} \mathbf{1} \right), \quad (3.1)$$

ahol $\rho_e(0)$ az elektron spin koherens állapota, az $I = 1/2$ -es spinekből álló spinfürdő pedig a termikus állapotban van [2].

A spinfürdő modell térben véges, zárt rendszert feltételez. A közelítést motiválja, hogy a spin-spin kölcsönhatások a két spin r távolságától $\sim r^{-3}$ szerint függenek. Numerikus

konvergenciaszámolásokkal meghatározhatóak az adott kölcsönhatásra jellemző határsugarak, melyeknél nagyobb távolságban a két spin csatolásából eredő dinamika hatása a centrális spinre elhanyagolható. Megjegyzem, hogy a környezettel kölcsönható spinrács leírására alkalmaztak már disszipatív folyamatokat is kódoló spinfürdő modellt [25].

Amennyiben a ponthiba spinjét több, a lógókötések pályáit betöltő elektron adja, a centrális spin energiailag kedvező állapotának S kvantumszámát az elektronok Coulomb-csatolásából eredő kicserélődési kölcsönhatásra izotróp komponensét jellemző J konstans határozza meg [26]. Két elektronra $J = (E_{S=0} - E_{S=1})/2$, mely az általam vizsgált ponthibák esetén

$$J \approx J_D = \langle \phi_A(1)\phi_B(2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{12}} | \phi_B(1)\phi_A(2) \rangle > 0, \quad (3.2)$$

ahol $\phi_{A,B}$ a hibaállapotokat leíró hullámfüggvényeket jelöli. J értéke általában sokkal nagyobb, mint a spin rendszer más kölcsönhatásainak energiaskálája, tehát a ponthibák $S = 1$ tripllett alapállapottal rendelkeznek. Ennek szemléletes magyarázata, hogy a kicserélődési kölcsönhatás a különböző pályákon, egymástól távolabb elhelyezkedő párosítatlan elektronokat preferálja.

A rendszer időfejlődését leíró Hamilton-operátor a centrális elektron spinre ($\hat{H}_e$) és a spinfürdőre ($\hat{H}_b$) kondicionált operátorok, valamint az ezek csatolását leíró $\hat{H}_{e-b}$ Hamiltoni összege [26, 27]

$$\hat{H} = \hat{H}_e + \hat{H}_b + \hat{H}_{e-b}. \quad (3.3)$$

Az elektron spin Hamiltoni az elektron Zeeman-kölcsönhatásból és többelektronos centrum ($S \geq 1$) esetén a mágneses dipól-dipól kölcsönhatás anizotróp komponenséből származtatható zérus-tér kölcsönhatásból áll;

$$\hat{H}_e = \mu_B \mathbf{B}^T \mathbf{g} \hat{\mathbf{S}} + \hat{\mathbf{S}}^T \mathbf{D} \hat{\mathbf{S}}. \quad (3.4)$$

A továbbiakban izotróp Zeeman-kölcsönhatást feltételezek, tehát a $\mathbf{g} \rightarrow g_e$ közelítést alkalmazom. Ekkor kellően nagy mágneses tér mellett az m_S spinkvantumszámmal jellemzett állapotok sajátenergiája $\Delta E_{m_S} = g_e \mu_B B_z m_S$ szerint változik. A $\mathbf{D}$ szimmetrikus tenzort az

$$D_{ab} = \frac{\mu_0}{8\pi} g_e^2 \mu_B^2 \int \rho_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \frac{r^2 \delta_{ab} - 3r_a r_b}{r^5} d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \quad (3.5)$$

integrál adja meg, ahol ρ_2 a kétrészecske sűrűség-mátrix és $\mathbf{r} = \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2$ [8]. Mivel sok esetben a zérus tér kölcsönhatás a legerősebb a spin Hamiltoniban szereplő tagok közt, a kvantálási tengelyt célszerű a $\mathbf{D}$ tenzor diagonalizálása során a legnagyobb sajátértékhez tartozó sajátvektorral párhuzamosan definiálni, amely a kristálysírk háromforgású szimmetriája (C_{3v}) esetén a szimmetriatengellyel esik egybe. Emellett $\text{Tr} \mathbf{D} = 0$, emiatt a zérus-tér Hamiltoni a D longitudinális és E transzverzális felhasadási paraméterek szerint

az alábbi alakban kifejezhető,

$$\hat{\mathbf{S}}^T \mathbf{D} \hat{\mathbf{S}} = D \left(\hat{S}_z^2 - \frac{S(S+1)}{3} \mathbb{I} \right) + \frac{E}{2} (\hat{S}_+^2 + \hat{S}_-^2). \quad (3.6)$$

$B_z = 0$ mellett D megadja a triplett spin $|\pm 1\rangle$ és $|0\rangle$ állapotai közötti energiafelhasadást, az $\hat{S}_+^2$, $\hat{S}_-^2$ operátorok pedig $\Delta m_S = \pm 2$ átmeneteket gerjesztenek, így ez a tag összekeveri a $|\pm 1\rangle$ állapotokat. A ponthiba és a rácsszerkezet C_{3v} szimmetriája esetén $E = 0$, azonban külső elektromos tér vagy a kristály deformációjának hatására a szimmetria sérülhet, lásd 2.4 ábrát a VB^- centrum esetén.

A spinfűrdő Hamilton-operátora rendre a nukleáris Zeeman-kölcsönhatást, a magspinnek mágneses dipól-dipól kölcsönhatását és $I \geq 1$ spinű atommag esetén a mag helyén fellépő elektromos tér gradiens által indukált nukleáris kvadrupólus kölcsönhatást tartalmazza,

$$\hat{H}_b = - \sum_i g_N^{(i)} \mu_N \mathbf{B}^T \hat{\mathbf{I}}^{(i)} + \sum_{i < j} \hat{\mathbf{I}}^{(i)T} \mathbf{J}^{(ij)} \hat{\mathbf{I}}^{(j)} + \sum_i \hat{\mathbf{I}}^{(i)T} \mathbf{Q}^{(i)} \hat{\mathbf{I}}^{(i)}. \quad (3.7)$$

$\mathbf{r} = \mathbf{r}^{(i)} - \mathbf{r}^{(j)}$, továbbá $\mathbf{Q}$ formálisan $\mathbf{D}$ -vel azonosan kezelhető. A magspin-magspin kölcsönhatási erőssége az alábbiak szerint számolható,

$$\mathbf{J}^{(ij)} = \frac{\mu_0 \mu_N^2 g_N^{(i)} g_N^{(j)}}{4\pi r^3} \left(\mathbb{I} - \frac{3\mathbf{r} \otimes \mathbf{r}}{r^2} \right). \quad (3.8)$$

A centrális elektron spin és a spinfűrdő csatolását leíró Hamilton-operátor a hiperfinom kölcsönhatást kódolja, az alábbiak szerint

$$\hat{H}_{int} = \sum_i \hat{\mathbf{S}}^T \mathbf{A}^{(i)} \hat{\mathbf{I}}^{(i)}. \quad (3.9)$$

Az $\mathbf{A}$ szimmetrikus tenzorhoz általánosan a – magspin helyén nem nulla $\sigma(\mathbf{r})$ elektronsűrűségből adódó – izotróp Fermi átfedési tag és az anizotróp mágneses dipól-dipól kölcsönhatás ad járulékot [8],

$$A_{ab} = \frac{\mu_0 \mu_B \mu_N g_e g_N}{S} \left(\frac{2}{3} \sigma(\mathbf{R}) + \frac{1}{4\pi} \int \frac{3r_a r_b - r^2 \delta_{ab}}{r^5} \sigma(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \right). \quad (3.10)$$

A ponthibára lokalizált elektronsűrűség esetén a távoli magspinek Fermi átfedési járuléka elhanyagolható.

Különböző spektroszkópai módszerekkel (EPR, NMR) tipikusan csak a centrális spinhez közeli, erősen csatolt magspinek hiperfinom tenzorának bizonyos komponensei (tipikusan a kvantálási tengellyel párhuzamos effektív teret kódoló A_{zz}) mérhetőek. A spinfűrdő összes spinjének pontos $\mathbf{A}$ tenzora a sűrűségfunkcionál-elméletet alkalmazó VASP programcsomaggal végzett számolások utófeldolgozásával határozható meg [28]. Numerikus szimulációim során ezzel a módszerrel korábban kiszámolt $\mathbf{A}$ tenzorokat használtam [28].

3.2. Dekoherenciafolyamatok és mérési protokolljaik

Egy kubit állapota általánosan a

$$\hat{\rho}_e(t) = \frac{\mathbb{I}}{2} + \langle \hat{\mathbf{S}}(t) \rangle \hat{\sigma} \quad (3.11)$$

sűrűségmátrixszal adható meg. Ekkor $\langle \hat{S}_z(t) \rangle$ a különböző sajátállapotok populációit, lecsengése pedig az ezeket keverő, spin-flipet gerjesztő zajok által indukált relaxáció T_1 időskáláját adja meg. $\langle \hat{\mathbf{S}}(t) \rangle = 0$ esetén a kubit termikus állapotban van. A sajátenergiák felhasadása miatt ezt a folyamatot csak kellő erősségű, a Hamilton-operátorban $\hat{S}_+$, $\hat{S}_-$ operátorokat tartalmazó tagokkal megjelenő zajforrások tudják előidézni. Ponthiba kvantumbitek esetén a spinállapotok jelentős felhasadása miatt a T_1 idő tipikusan jóval hosszabb, mint a fázisvesztést jellemző koherenciaidők.

A kubit állapotának koherencia függvénye $L(t) = \sqrt{\langle \hat{S}_x(t) \rangle^2 + \langle \hat{S}_y(t) \rangle^2}$, mely az $\hat{S}_z$ által generált bázis választásával a sűrűségmátrix offdiagonális komponensének abszolút értéke. Dekoherenciát alapvetően két különböző folyamat okoz [2]. Az inhomogén fázisvesztés (szabad indukciós lecsengés, free induction decay, FID) sokaságok különböző elemeiben eltérő kvázisztatikus zajok hatására jön létre, karakterisztikus ideje T_2^* . Ilyen sokaság lehet térbeli vagy időbeli, amennyiben az adott mérést egyszerre több azonos mintán vagy ugyanazon a mintán egymásután többször végzik, ld. 3.1d ábra. A spinfürdő modell is értelmezhető a centrális spinből és egy magspinből álló klaszterek sokaságaként, ahol az elektron minden klaszterben más, az adott hiperfinom tenzor A_{zz} komponensének megfelelő effektív mágneses teret érzékel.

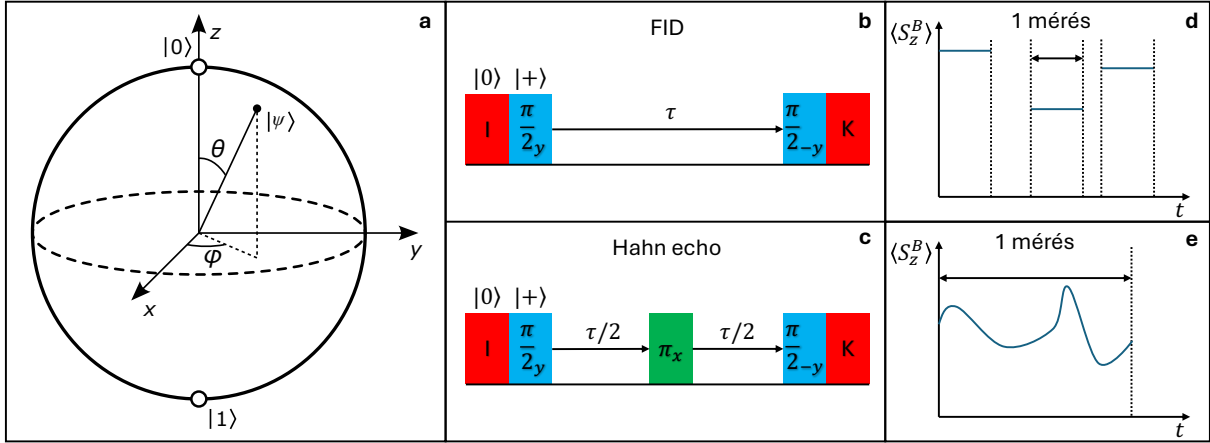
Szemiklasszikus közelítésben a spinfürdőből eredő zajt klasszikusan modellezve és feltevé, hogy a kvázisztatikus zaj által okozott relaxáció elhanyagolható, a sokaság elemeinek Hamilton-operátora $\hat{H} = \hat{H}_0 + b\hat{S}_z$ alakú, b eloszlása a sokaságon pedig $P(b)$. Ekkor a sűrűségmátrix, valamint a koherenciafüggvény

$$\hat{\rho} = \int \hat{\rho}_b(t) P(b) db, \quad (3.12)$$

$$L(t) = \langle e^{-i\omega t} \rangle = \int e^{-ibt} P(b) db. \quad (3.13)$$

Az inhomogén fázisvesztés mérési protokollja a 3.1b ábrán látható. A kubitet polarizált állapotba inicializálják, majd ezt egy $\pi/2$ pulzussal a Bloch-gömb egyenlítőjén elhelyezkedő koherens állapotba forgatják, ld. 3.1a ábra. A rendszer τ idejű szabad időfejlődése után a koherencia mérését egy $-\pi/2$ pulzussal populációmérésre vezetik vissza.

A kvázisztatikus zajok a Hahn echo pulzusszekvencia alkalmazásával kitranszformálhatók a kubit időfejlődéséből, ld. 3.1c ábra. A fentivel analóg protokoll során $\tau/2$ idő után egy π pulzust alkalmaznak, mely a kubitállapotok az időfejlődés során összeszedett fázisát $\delta\varphi(t = \tau/2) \rightarrow -\delta\varphi(t = \tau/2)$ szerint transzformálja. Ekkor a sztatikus zaj következtében



3.1. ábra. (a) A Bloch-gömb. (b, c) A szabad indukciós lecsengés és a Hahn echo mérési protokolljai a Bloch-gömb tengelyei mentén történő forgatásokkal. I inicializációt, K kiolvasást jelöl. A jelölt állapotok az inicializációt és a $|+\rangle = (|1\rangle + |0\rangle)/\sqrt{2}$ koherens kezdőállapotot jelölik. (d) Kvázisztatikus és (e) dinamikus zajok illusztrációja.

τ időpillanatban $\delta\varphi(t = \tau) = 0$ és az állapot koherens.

A T_2 Hahn echo koherenciaidőt ebből következően a dinamikus, időfüggő zajok (ld. 3.1e ábra) által okozott dekoherencia jellemzésére használják. A szemiklasszikus modellben maradva $\hat{H}(t) = \hat{H}_0 + b(t)\hat{S}_z$, amiből Gaussi zajeloszlást feltételezve

$$L(t) = \langle e^{-i\omega(t)t} \rangle = e^{-\langle \varphi^2(t) \rangle / 2}, \quad (3.14)$$

$$\langle \varphi^2(t) \rangle = \int_0^t dt_1 \int_0^t dt_2 \langle b(t_1)b(t_2) \rangle. \quad (3.15)$$

$1/b_{rms} \ll T_2$ esetén ($rms \rightarrow$ négyzetes közép) $\langle \varphi^2(t) \rangle \sim t$, amely a koherenciafüggvény exponenciális lecsengéséhez vezet [2]. Innen a koherenciaidő $\langle \varphi^2(T_2) \rangle = 2$ alapján becsülhető.

Amennyiben a tiszta fázisvesztést kódoló $\hat{H} = \hat{b}\hat{S}_z + \hat{H}_b$ Hamiltoniban $[\hat{H}_b, \hat{b}] \neq 0$, a dekoherencia leírásához teljes kvantummechanikai kép szükséges. Ekkor a koherenciafüggvény a Hahn echo protokoll alkalmazásával

$$L(t) = \langle J_1(t) | J_0(t) \rangle = \langle J | e^{i\hat{H}_1 t / (2\hbar)} e^{i\hat{H}_0 t / (2\hbar)} e^{-i\hat{H}_1 t / (2\hbar)} e^{-i\hat{H}_0 t / (2\hbar)} | J \rangle, \quad (3.16)$$

ahol $\hat{H}_{0,1}$ a különböző kubit állapotokra kondicionált Hamilton-operátort jelöli. Az időfejlesztő operátorok sorrendje a kubitállapotok fázisának π pulzus hatására történő felcserélődését kódolja.

A nagyfrekvenciás dinamikus zajok kitranszformálására és ezáltal a koherencia megvédésére több dinamikus lecsatolási pulzusszekvenciát is alkalmaznak, pl. CPMG–N, XY–N [29]. Az elméleti leírás egy, a pulzusszekvenciát jellemző $s(t)$ modulációs függvény és a $b(t) \rightarrow s(t)b(t)$ helyettesítés bevezetése után analóg. Teljes kvantummechanikai kép esetén a 3.16 egyenletben kell az időfejlesztő operátorok sorrendjét megfelelően módosí-

tani.

3.3. Általánosított klaszter-korrelációs sorfejtés

Az általánosított klaszter-korrelációs sorfejtés (gCCE) a legkorszerűbb iteratív szimulációs módszer a spinfürdő modellel leírható spinrendszerek dinamikájának vizsgálatára [10]. A $|0\rangle$ és $|1\rangle$ kubitállapotok közötti koherenciát adó függvény általánosan

$$L(t) = |\langle 0|\hat{\rho}(t)|1\rangle| = |\text{Tr}[\hat{\rho}(t)|0\rangle\langle 1|]| = |\text{Tr}[\hat{U}(t)\hat{\rho}_0\hat{U}^\dagger(t)|0\rangle\langle 1|]|, \quad (3.17)$$

ahol az időfejllesztő operátor rendre a szabad indukciós lecsengés és a Hahn echo szekvencia esetében

$$\hat{U}_{\text{FID}}(t) = e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}t}, \quad \hat{U}_{\text{HE}}(t) = e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}t/2}e^{-i\frac{\pi}{2}\sigma_x}e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}t/2}. \quad (3.18)$$

A klaszter-korrelációs sorfejtésben a spinrendszert $n \in \{1, 2, \dots, N\}$ rendű alrendszerekre, klaszterekre bontva $L(t)$ megadható a klaszterek koherenciafüggvényeinek iteratív produktumaként. Egy n rendű C klaszter a centrális spint és a spinfürdőből n darab spint tartalmaz, ld. 3.2a ábra.

$$L(t) = \left| \prod_C \tilde{L}_C(t) \right|, \quad \tilde{L}_C(t) = \frac{L_C(t)}{\prod_{C' \subset C} \tilde{L}_{C'}(t)}, \quad L_C(t) = \text{Tr}[\hat{\rho}_C(t)|0\rangle\langle 1|], \quad (3.19)$$

ahol C' a C klaszter lehetséges alklasztereinek halmazát jelöli, $\tilde{L}_C(t)$ a C klaszter irreducibilis dekoherencia-kontribúcióját adja meg. N spint tartalmazó spinfürdő esetén az összes rendet tartalmazó $L(t)$ szorzat egzaktul visszaadja a teljes rendszer koherenciafüggvényét. Numerikus konvergenciaszámolásokkal ellenőrizhető, hogy a sorfejtés a klaszterek $|C|$ rendje szerint konvergens, tehát megadható egy k , mellyel

$$L(t) \approx \left| \prod_{|C| \leq k} \tilde{L}_C(t) \right|. \quad (3.20)$$

Szabad indukciós lecsengés esetén a dekoherencia domináns forrása a szekuláris hiperfinom kölcsönhatás, így $k = 1$ elegendő. Hahn echo koherenciaidő esetén tipikusan $k = 2$ vagy $k = 3$ szükséges. A továbbiakban a sorfejtés konvergens rendjét gCCE k módon jelölöm. A gCCE módszer további részleteit a [10] cikk tárgyalja, míg a klaszterkorrelációs sorfejtés bevezetését a [30, 31] hivatkozásban található cikkek tartalmazzák.

A koherenciaidő, vagyis a koherenciafüggvény lecsengésének τ karakterisztikus idejét és n kitevőjét a fenti módon meghatározott $L(t)$ burkolójára illesztett

$$L(t) = 0.5 \cdot \exp\left(-\left(\frac{t}{\tau}\right)^n\right) \quad (3.21)$$

függvény alapján határozom meg.

3.3.1. A gCCE módszer fizikai tartalma

A módszer fizikai motivációja az, hogy a vizsgált koherenciaidőnek megfelelő időskálán a $n > k$ rendű klaszterek időfejlődésében nem jelenik meg n -magspin korreláció. Más-képp értelmezve, ezekben a rendekben nem lép fel n -magspin vagy a centrális spin által közvetített $(n + 1)$ -spin effektív kölcsönhatás.

A koherenciafüggvény szorzatalakjának értelmezését az alábbiak szerint szemléltetem. A sorfejtés valamely rendjében az n rendű klaszterek sokaságához rendelhető Hilbert-tér $\mathcal{H} = \bigotimes_{|C|=n} \mathcal{H}_C$ alakban írható fel, ld. 3.2b,c ábra. Amennyiben a Hamilton-operátor felbontható a különböző $\mathcal{H}_C$ Hilbert-tereken ható, egymással kommutáló operátorok $\hat{H} = \sum_C \hat{H}_C$ összegeként, a klaszterek szeparáltan időfejlődnek és a koherenciafüggvényeik szorzata jelenik meg.

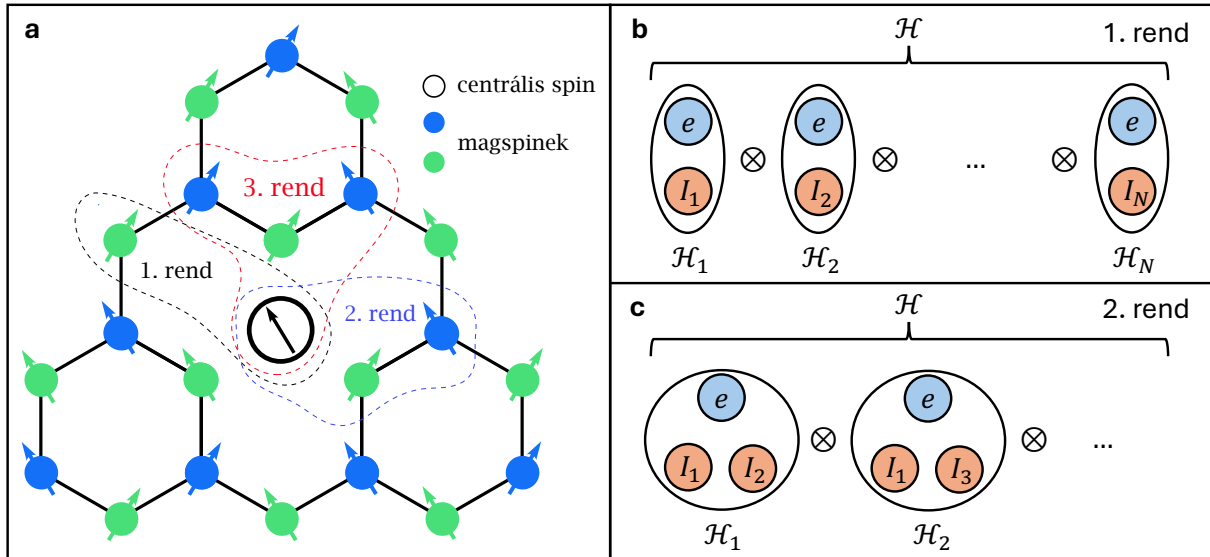
$$\begin{aligned}
L_n(t) &= \text{Tr} \left[e^{-\frac{i}{\hbar} \sum_{|C|=n} \hat{H}_C t} \left(\bigotimes_{|C|=n} \rho_C(0) \right) e^{\frac{i}{\hbar} \sum_{|C|=n} \hat{H}_C t} \left(\bigotimes_{|C|=n} \hat{P}_C \right) \right] \\
&= \text{Tr} \left[\bigotimes_{|C|=n} e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_C t} \left(\bigotimes_{|C|=n} \rho_C(0) \right) \bigotimes_{|C|=n} e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H}_C t} \left(\bigotimes_{|C|=n} \hat{P}_C \right) \right] \\
&= \text{Tr} \left[\bigotimes_{|C|=n} \rho_C(t) \bigotimes_{|C|=n} \hat{P}_C \right] = \text{Tr} \left[\bigotimes_{|C|=n} \rho_C(t) \hat{P}_C \right] = \prod_{|C|=n} L_C(t)
\end{aligned} \tag{3.22}$$

$\hat{P}_C$ a C klaszterbe beágyazott centrális spinre vetítő koherencia-projektor operátor. A Hilbert-tér fenti leírása kódolja a gCCE módszer azon feltételezését, hogy a centrális spin adott klaszterre kondicionált időfejlődése más klaszterektől független. A környező klaszterek mágneses dipólusainak hatása szemiklasszikusan egy $\hat{H}_{mf}$ átlagtér Hamiltoni taggal kezelhető [10].

A szorzatalak konvergenciájának fontos feltétele, hogy ha egy C klaszterben nem jelenik meg C -magspin korreláció, akkor $\tilde{L}_C = 1$, mely teljesülését az alábbi egyszerű esetben demonstrálok. A magspinek dipól-dipól kölcsönhatását elhanyagolva és feltéve, hogy a különböző magspinek hiperfinom csatolása egymástól függetlenül hat a centrális spinre, egy kétszines spinfürdőt leíró Hamilton-operátor

$$\hat{H} = \hat{H}_e + \hat{\mathbf{S}}^{(1)} \mathbf{A}^{(1)} \hat{\mathbf{I}}^{(1)} + \hat{\mathbf{S}}^{(2)} \mathbf{A}^{(2)} \hat{\mathbf{I}}^{(2)}, \tag{3.23}$$

ahol $\hat{\mathbf{S}}^{(i)}$ a i -edik elsőrendű alklaszterbe ágyazott centrális spint reprezentáló operátor vektor. A centrális spin elsőrendű alklaszterek szerinti független időfejlődésének modellezésére a másodrendű C klaszter Hilbert-terét $\mathcal{H} = \mathcal{H}_C \otimes \mathcal{H}_C$ módon kiterjesztem. Ekkor



3.2. ábra. (a) Különböző rendű klaszterek illusztrációja. (b, c) Az első- és másodrendű klaszterek sokasága által generált Hilbert-tér.

a 3.22 egyenlet alapján

$$\begin{aligned}
 L_{12}(t) &= \text{Tr} \left[e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H} t} \bigotimes_{j=1}^2 \left(\rho_e^{(j)}(0) \otimes \frac{\mathbb{I}}{2} \otimes \frac{\mathbb{I}}{2} \right) e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H} t} \bigotimes_{j=1}^2 \hat{P}_2^{(j)} \right] \\
 &= \prod_{j=1}^2 \text{Tr} \left[e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_j t} \left(\rho_e^{(j)}(0) \otimes \frac{\mathbb{I}}{2} \right) e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H}_j t} \hat{P}_1^{(j)} \otimes \frac{\mathbb{I}}{2} \right] \\
 &= L_1(t) L_2(t) \implies \tilde{L}_{12}(t) = \frac{L_{12}(t)}{L_1(t) L_2(t)} = 1.
 \end{aligned} \tag{3.24}$$

A fenti elemzés alapján a sorfejtés n rendjének kontribúciója a n magspint tartalmazó klaszterek irreducibilis sokspin-korrelációinak a koherenciára gyakorolt hatását kvantifikálja. A gCCE módszer rendkívüli pontossága mellett két fontos előnye, hogy izolálhatóak a jelentős dekoherenciát okozó egyedi klaszterek, valamint a sorfejtés konvergens rendjének ismeretében meghatározhatóak a dinamikát befolyásoló magasabb rendű effektív kölcsönhatások. Ilyen effektív kölcsönhatás például a másodrendben megjelenő, centrális spin által közvetített magspin flip-flop vagy a harmadrendben megjelenő 3-magspin kölcsönhatások.

3.3.2. Memóriahatékony implementáció

Jelen dolgozatban bemutatott munkám első fázisában a gCCE módszer implementációjának fejlesztésén dolgoztam. A Wolfram Mathematica kód szerkezetének optimalizációja után integráltam azt a Komondor nagy számítási teljesítményű klaszterszámítógépre (HPC). A HPC-n elérhető számítási kapacitás kihasználására párhuzamosítást implementáltam.

A gCCE módszer során a magasabb rendű klaszterek dekoherencia-kontribúcióját megadó formulában az alklaszterek koherenciafüggvényei iteratíván jelennek meg, amely további teljesítménynövelésre adott lehetőséget. A HPC-n rendelkezésre álló tárhelyen koherenciafüggvény-adatbázist hoztam létre, amely a megfelelő azonosítóval ellátott klaszterek koherenciafüggvényeit tárolja bináris formátumban. A bináris fájlok mérete a legnagyobb hatékonyságnövelés érdekében a kiírás és beolvasás sebessége szerint van optimalizálva.

A fejlesztésen átesett implementációval a konvergenciaszámolásaimat $\sim 50 - 60$ ezer másod- és harmadrendű klaszterrel tudom futtatni, amely az irodalomban fellelhető értékekkel összevetve egyedülálló.

3.4. Szekuláris és pszeudo-szekuláris közelítés

A szimulációkban megfigyelt jelenségek értelmezése és analitikus leírása során gyakran alkalmaztam a tenzoriális kölcsönhatások szekuláris és pszeudo-szekuláris közelítését. Hamiltoni szekuláris alakja egy tiszta fázisvesztést kódoló operátor, benne csak az $\hat{S}_z$ és $\hat{I}_z$ operátorok kombinációi szerepelnek. Az ilyen Hamilton-operátorral leírt rendszerekben m_S jó kvantumszám, az $\hat{S}_z$ operátor által generált sajátrendszer $\hat{H}$ sajátrendszere is, vagyis az $\hat{S}_x = \frac{1}{2}(\hat{S}_+ + \hat{S}_-)$, $\hat{S}_y = \frac{1}{2i}(\hat{S}_+ - \hat{S}_-)$ operátorok nem keverik $\hat{S}_z$ sajátállapotait.

A fenti gondolatmenet alapján a spinrendszer dinamikájának elemzésére hasznos módszer a hiperfinom kölcsönhatást leíró Hamiltoni szekuláris közelítése.

$$\hat{H}_{int} = \sum_i A_{zz}^{(i)} \hat{S}_z \hat{I}_z^{(i)} \quad (3.25)$$

A közelítés érvényességének feltétele, hogy az elektron és magspinek sajátállapotainak energiaszeperációja sokkal nagyobb a hiperfinom kölcsönhatás spin-flip operátorokat tartalmazó tagjainak erősségénél. Ez $S = 1$ elektron spin és tetszőleges magspin esetén

$$\begin{aligned} |D - g_e \mu_B B_z| &\gg \{A_{xx}, A_{xy}, A_{yy}, A_{zx}, A_{zy}\}, \\ g_N \mu_N B_z &\gg \{A_{xx}, A_{xy}, A_{yy}, A_{xz}, A_{yz}\}. \end{aligned} \quad (3.26)$$

Mivel $D \gg g_e \mu_B B_z$ és $|g_e \mu_B| \gg |g_N \mu_N|$, széles B_z tartományban csak az első feltétel teljesül, így célszerű bevezetni az elektron spinre szűkített pszeudo-szekuláris közelítést. Ekkor a csatolási Hamilton-operátor magspin-flip operátorokat is tartalmaz.

$$\begin{aligned} \hat{H}_{int} &= \sum_i A_{zz}^{(i)} \hat{S}_z \hat{I}_z^{(i)} + A_{zx}^{(i)} \hat{S}_z \hat{I}_x^{(i)} + A_{zy}^{(i)} \hat{S}_z \hat{I}_y^{(i)} = \\ &= \sum_i A_{zz}^{(i)} \hat{S}_z \hat{I}_z^{(i)} + \frac{1}{2} \left((A_{zx}^{(i)} - iA_{zy}^{(i)}) \hat{S}_z \hat{I}_+^{(i)} + (A_{zx}^{(i)} + iA_{zy}^{(i)}) \hat{S}_z \hat{I}_-^{(i)} \right) \end{aligned} \quad (3.27)$$

4. fejezet

Felületközeli NV^- centrumok koherenciaideje gyémántban

Ebben a fejezetben röviden ismertetem az NV^- centrummal kapcsolatos kutatásom során alkalmazott, a klasszikus általánosított klaszter-korrelációs sorfejtésen túlmenő módszert, majd átfogóan vizsgálom a szabad indukciós lecsengés függését (T_2^*) a külső mágneses tér nagyságától és orientációjától, a transzverzális zérus-tér felhasadás értékétől, valamint a szekuláris hiperfinom komponensek eloszlásától. A szekuláris és pszeudo-szekuláris köze-lítések alkalmazásával kvalitatív és kvantitatív módon leírom a domináns spindinamikai folyamatokat.

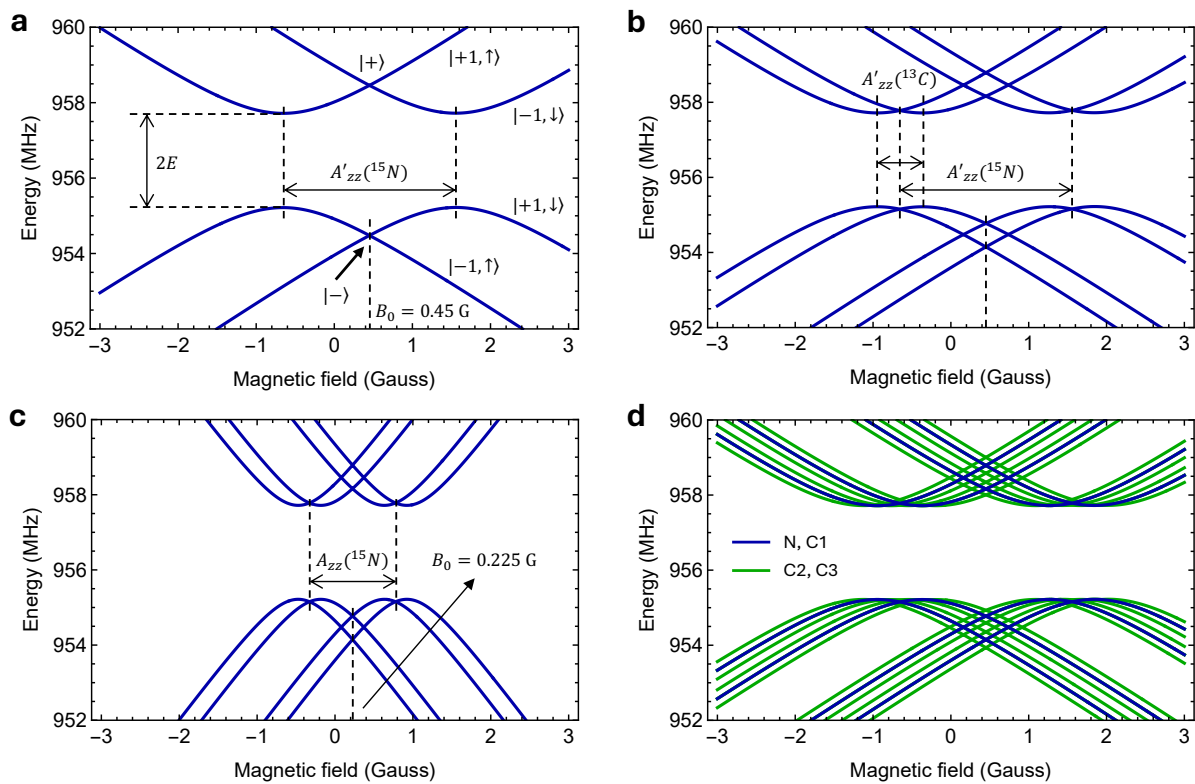
A NV^- centrum kutatását elsősorban a Wigner Fizikai Kutatóközpont Szilárdtestfizi-kai és Optikai Intézetében működő Félvezető Nanoszerkezetek kísérleti kutatócsoporttal való együttműködés motiválta. A kutatás során feladatom a piacon beszerezhető gyémánt nanooszlopokban létrehozott felületközeli NV centrumok ($NV1$ és $NV2$ egyedi ponthibák) $T_2^*(B_0)$ kísérleti koherenciaidő-görbéjének megértése volt. A közös munka eredményeként egy kézirat született [32], amelynek szakértői bírálata folyamatban van. Az eredménye-imet jelen dolgozatban önálló elméleti eredményekként közlöm, a szerzőtársak kísérleti eredményeit nem részletezem.

4.1. A szabad indukciós lecsengés kontrollparaméter függése

A centrális elektron spinből és a spinfürdőből álló rendszer leírására alkalmazott Hamiltoni alapvetően két, kísérletileg könnyen befolyásolható kölcsönhatási paramétert tartalmaz. A felületközeli NV centrumok C_{3v} szimmetriája a felület egyenetlensége és más töltött ponthibák közelsége által előidézett mechanikai feszültség vagy elektromos tér hatására sérül, így a hiperfinom csatolással összemérhető vagy nagyobb transzverzális zérus-tér fel-hasadás alakul ki. A hatás modellezése érdekében a T_2^* koherenciaidőt $E = 0 - 32$ MHz

mellett vizsgálom, mely tartományt elméleti számolások alapján meghatározott értékek motiválják [32]. A T_2^* tetszőleges orientációjú külső mágneses tértől (B_0) való függésének tanulmányozásához az NV-tengellyel (c-tengely, z-tengely) $\theta_0 = 60^\circ$ -t bezáró teret alkalmazok (ld. 4.4a ábra). Emellett figyelembe veszem a Föld kis $B_r = 0.45$ G mágneses terét, melynek $\theta_r = 120^\circ$ polárszöge a kísérletileg vizsgált rendszerek esetén meghatározható [32]. A Föld mágneses tere, illetve egyéb mágneses zajok kísérletileg leárnyékolhatóak vagy kompenzálhatóak, azonban a Félvezető Nanoszerkezetek kutatócsoport által végzett mérések során ezt nem végezték el.

4.1.1. Modell rendszerek energiaszint szerkezete



4.1. ábra. A szomszédos nitrogénnel és egy vagy több szén magspinnel kölcsönható NV^- centrum hiperfinom energiaszint szerkezete (a, b és d), valamint (c) esetén rendre $\theta_0 = 60^\circ$ és $\theta_0 = 0^\circ$ mellett. Az ábrák x-tengelye a B_0 külső mágneses teret jelöli. A görbék szimetriavonalának $B_0 = 0$ G-től való eltolódása B_r az NV-tengelyre való nem nulla vetületének következménye. A felület hatásának modellezéséhez a transzverzális zérus-tér felhasadás értékét $E = 1.25$ MHz-nek vettem. (a) és (b, c) rendre 0 és 1 csatolt ^{13}C magspin esetét mutatja, (d)-ben pedig 2 további gyengén csatolt szén hatására több közeli felhasadás jelenik meg.

A ^{15}N és egy vagy három ^{13}C magspinnel kölcsönható NV^- centrum $m_S = \pm 1$ al-térhez tartozó energiaszint szerkezete kis, ~ 0 G mágneses terek mellett a 4.1 ábrán látható. A nitrogénnel való hiperfinom kölcsönhatás miatt nulla mágneses tér mellett a

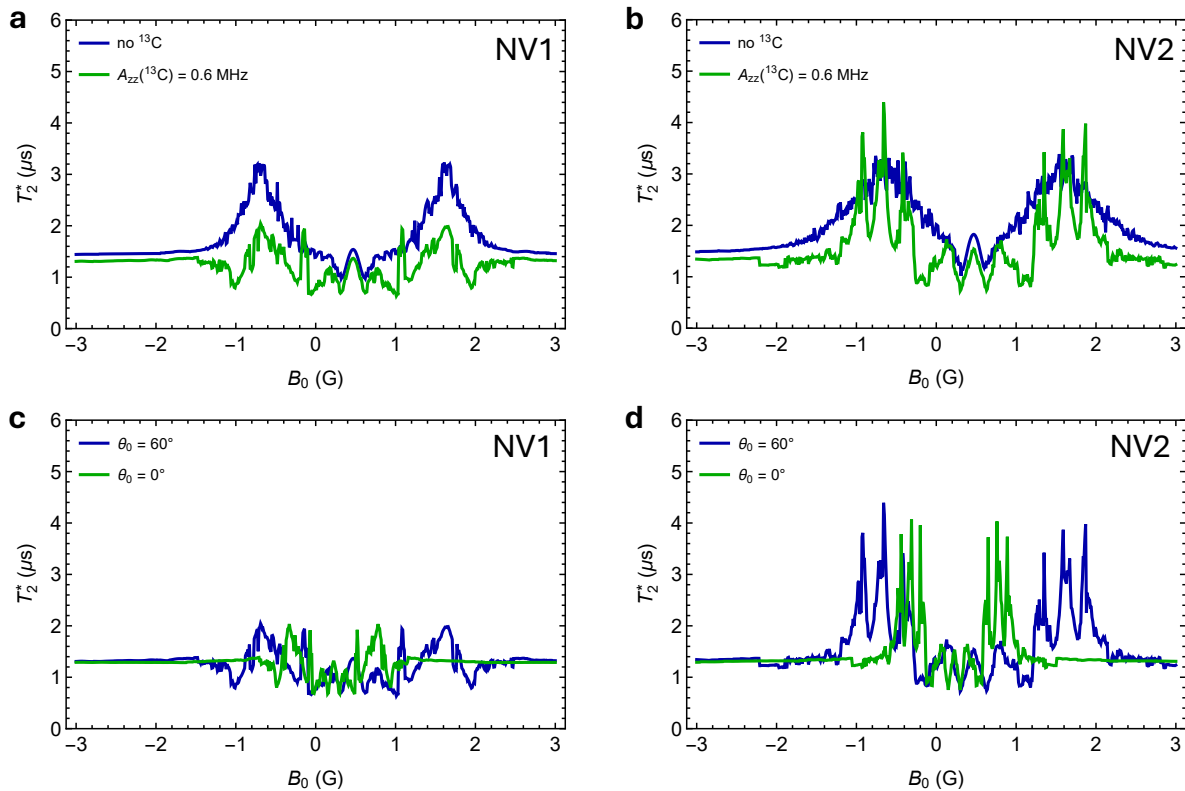
$\{|+1, \uparrow\rangle, |-1, \downarrow\rangle\}$ és $\{|+1, \downarrow\rangle, |-1, \uparrow\rangle\}$ állapotpárok rendre megnövelt és csökkentett energiával felhasadnak. Külső mágneses tér (B_0) hatására az elektron spin sajátállapotai a longitudinális (c-tengely irányú) komponens szerint $g_e\mu_B B_z = g_e\mu_B \cos\theta_0 B_0$ mértékben felhasadnak. A Föld konstans mágneses terének az NV-tengelyre vett vetületét figyelembe véve az effektív zérus-tér és ezáltal az energiagörbék szimmetriavonala eltolódik $B_0 = 0$ G-hoz képest. A fentiekhez hasonlóan, a szénnel való csatolás hatására a felhasadt állapotpárok energia szerint csökkenő sorrendben; $\{|+1, \uparrow, \uparrow\rangle, |-1, \downarrow, \downarrow\rangle\}$, $\{|+1, \uparrow, \downarrow\rangle, |-1, \downarrow, \uparrow\rangle\}$, $\{|+1, \downarrow, \uparrow\rangle, |-1, \uparrow, \downarrow\rangle\}$, $\{|+1, \downarrow, \downarrow\rangle, |-1, \uparrow, \uparrow\rangle\}$. A nem nulla transzverzális zérus-tér felhasadás összekeveri az elektron spin $|+1\rangle$ és $|-1\rangle$ állapotait, aminek következtében az energiaszintek több elkerült kereszteződése (avoided crossing, óráátmenet) jelenik meg a fent leírt felhasadásokat jellemző A_{zz} hiperfinom komponensek $A_{zz}/\cos\theta_0$ szerint átskálázott alakja által meghatározott mágneses terek mellett. Az óráátmenetek koherenciavédett paraméter-altereket hoznak létre, melyekben a rendszer nem érzékeny az elsőrendű mágneses tér fluktuációkra az ε energiaszintek eltűnő $d\varepsilon(B)/dB$ gradiensei miatt. Ahogy egyre több ^{13}C spin kerül a rendszerbe, több egymáshoz közeli felhasadás és óráátmenet jelenik meg. Az így létrejött energiaszint szerkezet magába foglalja minden egyes a centrális spinnel kölcsönható magspin egyedi ujjlenyomatát.

4.1.2. gCCE1 szimulációk bővített centrális maggal

A különböző rendszerek vizsgálatára elsőrendű gCCE1 szabad indukciós lecsengés szimulációkat végeztem (i) az alkalmazott mágneses tér és az NV-tengely által bezárt szög, (ii) a Föld mágneses terének, és (iii) a transzverzális zérus-tér felhasadás jelenlétének figyelembevételével. Az óráátmenetek hiperfinom eltolódásának és felhasadásának pontos modellezéséhez a standard gCCE1 módszeren túllépve a rendszer központi magját kettő (vagy három) spin; az elektron spin, valamint az erősen csatolt ^{15}N (és egy ^{13}C) magspin alkotja, erre a továbbiakban NV (és NV-C) magként hivatkozom. A három (vagy négy) spint tartalmazó elsőrendű klaszterek energiaszint szerkezete így kettő (vagy négy) elkülönülő óráátmenetet tartalmaz (ld. 4.1 ábra). A gyengébben csatolt spinfürdőt a természetes előfordulási gyakoriságnak ($c = 1.07\%$) megfelelő arányban további ^{13}C magspinek alkotják, melyek hiperfinom konstansának felső határát $A_{zz}^{(b)} < A_{zz}^{(c)}$ szerint határoztam meg. A fürdő határsugara $r_{bath} = 30 \text{ \AA}$, melynek érvényessége a T_2 koherenciaidőre végzett konvergenciaszámolásokkal alátámasztott [32]. Az egyedi spinfürdő konfigurációkra jellemző koherenciadinamikai tulajdonságok feltárása érdekében nem átlagolok különböző véletlenszerű mintavételezésekre, ehelyett néhány konkrét hiperfinom csatolás-eloszlást és a koherenciaidő ezektől való függését vizsgálok, ld. a 4.3 szekciót.

4.1.3. Szabad indukciós lecsengés kísérletileg realizálható kontrollparaméterek mellett

Az NV magot alkotó nitrogén mindig erősen csatolt az elektron spinhez ($A_{zz}^{(N)} = 3.1$ MHz). Az NV-C magban egy nitrogénnel szomszédos ^{13}C magspint vettem figyelembe ($A_{zz}^{(C)} = 0.6$ MHz), így nyerve betekintést a vakanciához közeli, hasonló nagyságrendű csatolással rendelkező magspinek hatásába. A két magra vonatkozó koherenciaidő-görbék két különböző E felhasadással rendelkező NV1 és NV2 centrumok esetén a 4.2a,b ábrán láthatók.



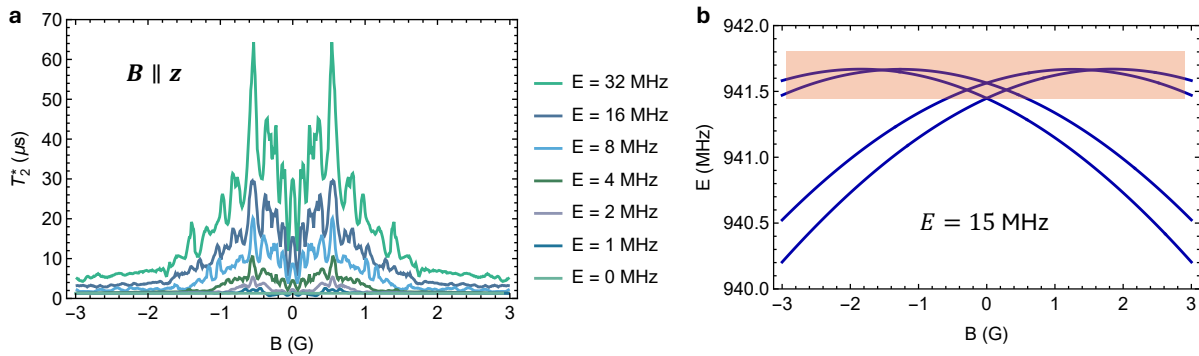
4.2. ábra. (a, b) Az NV és NV-C maggal kapott szabad indukciós lecsengési idők összehasonlítása. (c, d) Az NV1 és NV2 magok szabad indukciós lecsengési idejének összehasonlítása a mágneses tér és a c-tengely 0° vagy 60° poláris szöge esetén.

Az egyszerű NV mag esetében két széles csúcs jelenik meg az eltolt óráátmenetek helyén, ami koherenciavédett mágneses tértartományokat jelöl. A mágneses tér közelében, melytől mérve a görbe szimmetrikus, keskeny mélyedések jelennek meg, ami arra utal, hogy ezekben a régiókban a számos energiaszint kereszteződés következtében engedélyezett spin-flip folyamatok képeznek jelentős zajforrást, ld. 4.1d ábra. A szén spin hozzáadása az erősen kölcsönható maghoz jelentősen eltérő hatással van az NV1 és az NV2 esetében; az előbbinél felére csökkenti a koherenciaidőt a releváns régiókban, az utóbbinál pedig három éles csúcsot eredményez az óráátmenetek pontos pozícióiban. Az NV1 transzverzális zérus-tér felhasadása $E = 0.65$ MHz $\approx A_{zz}^{(C)}$, ami $\mathbf{A}^{(C)}$ összes elemével

összehasonlítható nagyságú. Ezzel szemben az NV²-re $E = 1.25 \text{ MHz} \approx 2A_{zz}^{(C)}$, ami arra utal, hogy a hiperfinom kölcsönhatás és a zérus-tér felhasadás által gyakorolt hatások között kapcsolat áll fenn, ld. a 4.2.1 szekciót.

A rendszer c-tengelyével párhuzamos B_0 mágneses indukcióvektor mellett kiszámított koherenciaidőkkel megvizsgáltam a c-tengelyre merőleges mágneses térkomponensek hatását is (ld. 4.2 ábra). Az óráátmenetnek megfelelő csúcsok helyének megváltozásán kívül (ld. 4.1c ábra) a görbén nem következik be szerkezeti változás, ezért megállapítható, hogy hasonló transzverzális zérus-tér felhasadási és szén hiperfinom csatolási paraméterek esetén ($E \sim A_{zz}^{(C)}$) a Zeeman-kölcsönhatás Hamiltonijának transzverzális komponensei nem befolyásolják a rendszer megfigyelhető dinamikáját.

4.1.4. Transzverzális zérus-tér felhasadás által indukált zajszuppresszió

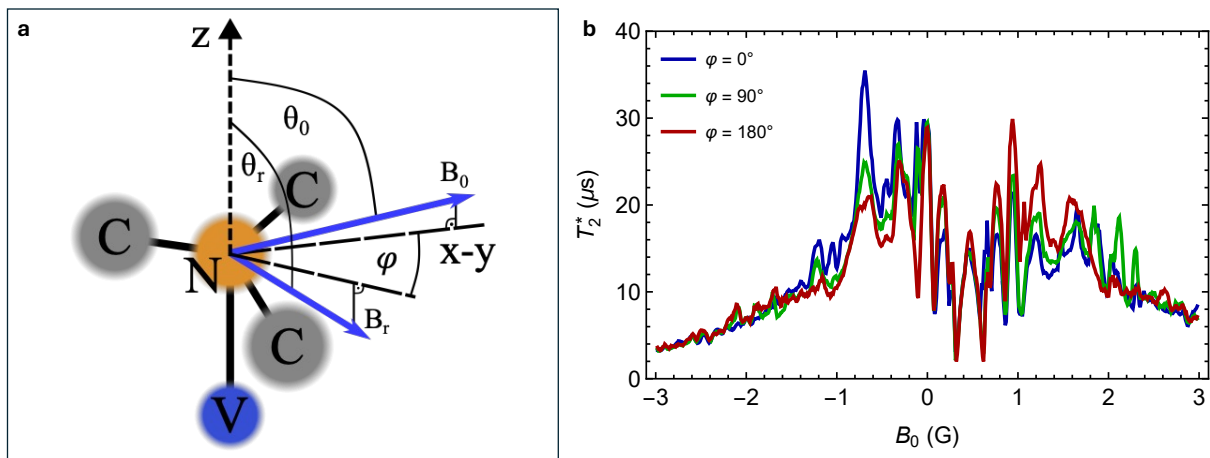


4.3. ábra. (a) Az NV⁻ centrum szabad indukciós lecsengési idejének számított görbéi kis mágneses terek függvényében különböző E felhasadások és a Föld mágneses terének elhanyagolása esetén. Az x-tengelyen az NV-tengely mentén alkalmazott mágneses tér nagysága szerepel. A spinfürdő által indukált egyedi energiaszint szerkezet összetett alakú szimmetrikus görbéket eredményez. (b) A kiszélesedő óráátmeneti tartományok (piros) szemléltetése $E = 15 \text{ MHz}$ esetén.

A szabad indukciós lecsengési idő görbéinek függése a transzverzális zérus-tér felhasadás nagyságától az NV⁻ centrum c-tengelye mentén alkalmazott külső mágneses tér és a Föld mágneses terének elhagyása esetén a 4.3a ábrán látható. Ahogy E eléri azt a tartományt, ahol $E \gg A_{zz}^{(C)}$ érvényesül, a koherenciaidő a külső mágneses tér teljes tartományán egy nagyságrenddel, az óráátmenetek körül pedig még ennél is jelentősebben növekszik. Ennek magyarázatához három, egymást erősítő hatást tekintek. A különböző Hamiltoni sajátállapotok koherenciavédett paraméter-altéri E növekedésével kiszélesednek és átfednek (ld. 4.3b ábra), így lehetővé válik erősebb elsőrendű mágneses zajok kioltása is. A $\{|\Phi \uparrow\rangle, |\Phi \downarrow\rangle\}$ alakú sajátállapotok közötti hiperfinom felhasadás E növekedésével az óráátmenetek környékén csökken, ahol $|\Phi\rangle$ az elektronspin és más magspinnek tetszőleges sajátállapotát jelöli. Ennek eredményeképpen az ezeket az állapotokat keverő

magspin-flip kölcsönhatások a kubitállapotok relatív fázisának kisebb változását okozzák, ami javítja a koherenciavédelmet ezekben a régiókban. Az elektronspin sajátállapotok nagyobb felhasadása elnyomja az elektron spin-flip kölcsönhatásokat is, ami csökkenti a lehetséges koherenciavesztési csatornák számát.

A T_2^* görbék sok éles csúcsot és mélyedést tartalmaznak. Az összetett struktúrát az egyedi energiaszint szerkezettel lehet magyarázni, amely számos szorosan elhelyezkedő óráátmenetet és a fürdőben lévő különböző magspinek által indukált energiaszintkereszteződést tartalmaz (ld. 4.1d ábra). Ahogy a mágneses tér változik, a rendszer gyorsan alternál a magspinek hiperfinom és mágneses dipól-dipól csatolásából eredő különböző állapotkeverési és spin flip-flop folyamatok elnyomása vagy engedélyezése között, így védve vagy tönkretéve a központi elektron spin koherenciáját.



4.4. ábra. (a) A külső mágneses terek az NV^- centrumhoz és a szomszédos szénatomokhoz viszonyított orientációjának illusztrációja. A z-tengely a rendszer szimmetriatengelyének felel meg, B_0 és B_r az alkalmazott, illetve a Föld mágneses terét jelöli. A szaggatott vonalak a z-tengelyre merőleges síkban húzódnak. (b) A szabad indukciós lecsengési idejének görbéi kis alkalmazott mágneses terek függvényében az $E = 15$ MHz esetre. φ az alkalmazott és a Föld mágneses tere közötti relatív azimutális szöget jelöli.

Az alkalmazott külső mágneses tér transzverzális komponenseinek és a Föld mágneses terének figyelembevételével az óráátmenetek helyén megjelenő csúcsok aszimmetriája jelenik meg, ld. 4.4 ábra. E hatás elsődleges oka a transzverzális mágneses tér komponensek nagysága ($|B_\perp|$) közötti különbség a különböző óráátmeneti régiókban. Ezek a komponensek az elektron és a nitrogén spinje közötti $A_{xx}\hat{S}_x\hat{I}_x$ és $A_{yy}\hat{S}_y\hat{I}_y$ hiperfinom spin-flip tagokkal kombinálva keveredést okoznak az NV mag $|1 \downarrow\rangle \longleftrightarrow |-1 \uparrow\rangle$ sajátállapotai között, analitikus levezetést lásd a 4.2.2 szekcióban. Azáltal, hogy az elkerült kereszteződésekhez tartozó koherens spinállapotot a mágneses tér c-tengely irányú ingadozásaira érzékeny állapotba transzformálja, ez a hatás elkeni az óráátmenetek koherenciavédett régióit. A keveredés frekvenciája lineárisan függ $|B_\perp|$ -től (ld. 4.2.2 szekció), így ha az alkalmazott mágneses tér és a Föld mágneses tér közötti relatív azimutális szög (φ a 4.4 ábrán) 180° , a vektorok kollineárisak és $|B_\perp|$ mindkét óráátmeneti régióra azonos, ezért a

görbe szimmetrikus. $|B_\perp|$ különbsége a különböző óráátmeneti régiókban és következésképpen az aszimmetria is a $\varphi = 0^\circ$ esetben maximális.

4.2. Szekuláris és pszeudo-szekuláris közelítések a spin-fürdőn

A transzverzális zérus-tér felhasadás hatásának tanulmányozása után a centrális spin és a környezet csatolását kódoló hiperfinom kölcsönhatást vizsgálom. Az elektron ($\hat{\mathbf{S}}$) és a magspin ($\hat{\mathbf{I}}$) közötti kölcsönhatást leíró Hamilton-tagok $\sum_{j,k=1}^3 A_{jk}^{(i)} \hat{\mathbf{S}}_j \hat{\mathbf{I}}_k^{(i)}$ alakúak. A dekoherencia fő forrásaként ható hiperfinom komponensek azonosításához a fürdőben lévő különböző magspinek hiperfinom csatolására szekuláris és pszeudo-szekuláris közelítést alkalmazok.

4.2.1. Az $E \sim A^{(C)}$ tartomány

A pszeudo-szekuláris közelítés alkalmazása minden ^{13}C magspinre a spinfürdőben az eredetiekkel azonos görbéket eredményez, azonban a szekuláris közelítésben T_2^* az óráátmeneteknek megfelelő csúcsoknál $\sim 1,5$ -szeresére növekszik, ld. 4.5 ábra. Ez arra enged következtetni, hogy a Hamilton-operátor $A_{zx}^{(C)} \hat{S}_z \hat{I}_x$ és $A_{zy}^{(C)} \hat{S}_z \hat{I}_y$ magspin-flip tagjai fontos dekoherenciaforrások ezekben a mágneses tértartományokban. Ezek a tagok az NV⁻ elektron spinje által érzékelt, c-tengely mentén fluktuáló effektív mágneses teret kódolnak. Ez a dekoherencia fontos forrása abban az esetben is, ha a kvázisztatikus zajok elnyomását célzó protokollokat alkalmaznak [33].

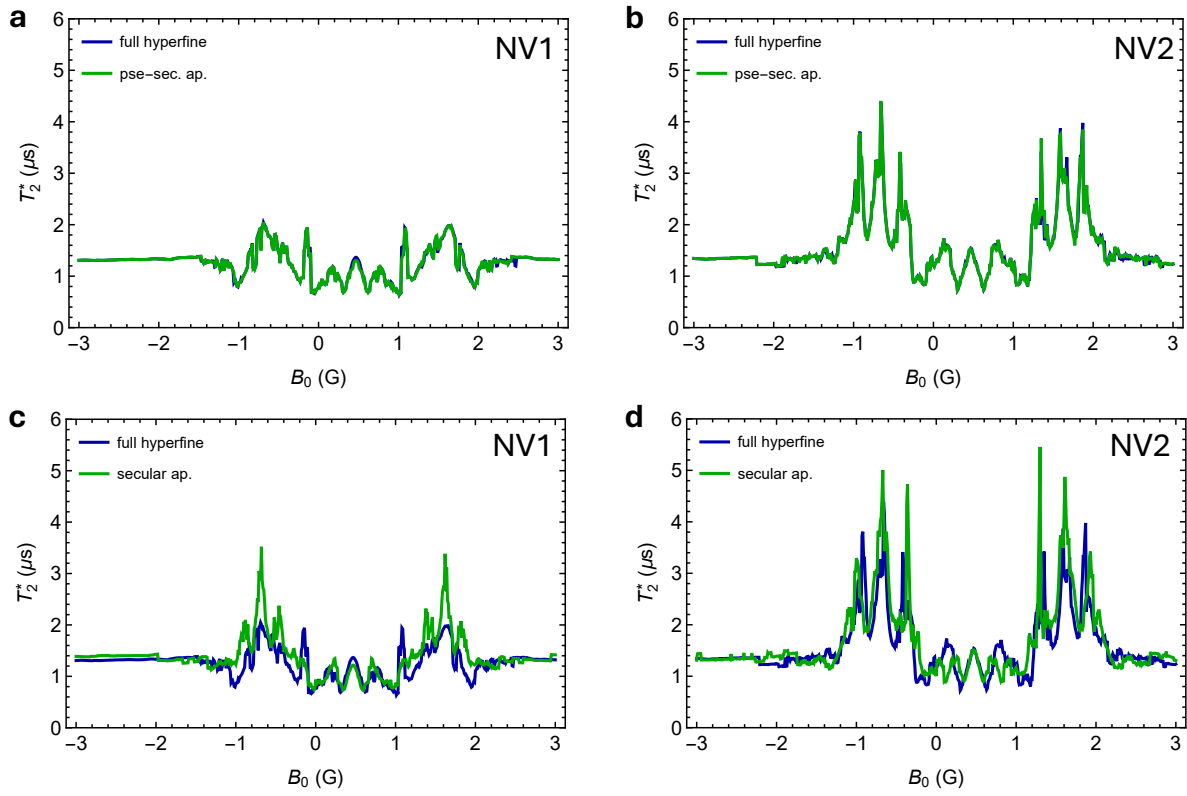
A transzverzális zérus-tér felhasadás és a pszeudo-szekuláris tagok kifejezhetőek a következő formában;

$$\hat{H}_{ZFS}^T = E(\hat{S}_x^2 - \hat{S}_y^2) = \frac{1}{2}E(\hat{S}_+^2 + \hat{S}_-^2), \quad (4.1)$$

$$\hat{H}_{hyp}^{PS} = A_{zz}\hat{S}_z\hat{I}_z + A_{zx}\hat{S}_z\hat{I}_x + A_{zy}\hat{S}_z\hat{I}_y = A_{zz}\hat{S}_z\hat{I}_z + \frac{1}{2}\left((A_{zx} - iA_{zy})\hat{S}_z\hat{I}_+ + (A_{zx} + iA_{zy})\hat{S}_z\hat{I}_-\right), \quad (4.2)$$

ahol a csatolási erősségek abszolút értékei fontos jellemzői a dinamikának. Valóban, $A_{z\perp} = \sqrt{(A_{zx}^{(C)})^2 + (A_{zy}^{(C)})^2} \approx 0.53$ MHz a nitrogénnel szomszédos szén spinre, ami – az óráátmenetek régióin belül és $E > 0.1$ MHz esetén – nagyobb, mint a $\{|\Phi \uparrow\rangle, |\Phi \downarrow\rangle\}$ sajátállapotok közötti $\Delta E_{\uparrow\downarrow}^{CT} = \sqrt{E^2 + (A_{zz}^{(C)})^2} - E$ energiakülönbség. Ennek két fontos következménye van; a tárgyalt pszeudo-szekuláris kölcsönhatás erőssége elég nagy ahhoz, hogy T_2^* időskálán magspin-flip átmeneteket okozzon, így az óráátmeneti régiók hatása sérül. Emellett $\Delta E_{\uparrow\downarrow}^{CT}$ gyorsan csökken E növelésével, tehát ekkor a kubitállapotok relatív fázisának a fenti folyamatok által indukált változása elhanyagolható. Emiatt a kubitállapotok stabilak az elkerült kereszteződéseknél, ami lehetővé teszi éles T_2^* csúcsok

megjelenését, ld. 4.5b ábra. Ez összhangban van az NV1 szekuláris közelítésében megfigyelt markáns csúcsokkal, ld. a 4.5c ábra.



4.5. ábra. Az NV1 és NV2 centrumok szabad indukciós lecsengési idejének összehasonlítása pszeudo-szekuláris (a és b) és szekuláris (c és d) közelítéssel.

4.2.2. Az $E \gg A^{(C)}$ tartomány

Abban az esetben, ha $E > 2$ MHz és a Föld maradék mágneses terének jelenlétében az óraátmeneteknek megfelelő koherenciaidő maximumok pozitív és negatív B_0 értékeknél aszimmetrikusak, ld. 4.6 ábra. Annak bizonyítására, hogy az elektron és a nitrogén spin közötti hiperfinom csatolás $A_{xx}^{(N)}\hat{S}_x\hat{I}_x$ és $A_{yy}^{(N)}\hat{S}_y\hat{I}_y$ tagjai valóban az $E \gg A_{zz}^{(C)}$ tartományban megjelenő aszimmetria fő okai, a mágneses tér függvényében kiszámítottam a szabad indukciós lecsengés idejét néhány különböző E értékre a nitrogén hiperfinom mátrixának szekuláris közelítése nélkül és azzal együtt, ld. 4.6a,b ábra. A közelítés alkalmazása mellett az aszimmetria eltűnik. Megjegyzem, hogy a nitrogén hiperfinom mátrixa diagonális, így ebben az esetben a szekuláris és pszeudo-szekuláris közelítések egyenértékűek. Továbbá, mivel $A_{xx}^{(N)} = A_{yy}^{(N)}$, a fenti tagok átírhatók a következő, elektron- és magspin léptetőoperátorokat tartalmazó formába;

$$\hat{H}_{hyp}^{\perp} = A_{xx}^{(N)}\hat{S}_x\hat{I}_x + A_{yy}^{(N)}\hat{S}_y\hat{I}_y = \frac{A_{xx}^{(N)} + A_{yy}^{(N)}}{4} (\hat{S}_+\hat{I}_- + \hat{S}_-\hat{I}_+). \quad (4.3)$$

A zérus-tér kölcsönhatás nagy D axiális összetevője miatt az elektron $|0\rangle$ és $|\pm 1\rangle$ állapotai energiában szeparáltak. Következésképpen a $\Delta m_S = \pm 2$ átmenetek gerjesztéséhez a transzverzális mágneses tér által gerjesztett elektron spin-flip tagoknak is részt kell vennie a vizsgált folyamatban, melyek

$$\hat{H}_{Zee}^\perp = g_e \mu_B (B_x \hat{S}_x + B_y \hat{S}_y) = \frac{g_e \mu_B}{2} ((B_x - iB_y) \hat{S}_+ + (B_x + iB_y) \hat{S}_-). \quad (4.4)$$

A $|B_\perp| = \sqrt{B_x^2 + B_y^2}$ fontosságát megerősíti az aszimmetria hiánya longitudinális külső mágneses tér esetén (ld. 4.3 ábra) és az aszimmetria függése a teljes transzverzális mágneses tértől (ld. 4.4 ábra).

Az 4.3 és 4.4 egyenletekben meghatározott kifejezések együttes fontossága a $|1 \downarrow\rangle \longleftrightarrow |-1 \uparrow\rangle$ NV centrum sajátállapotok között fellépő állapotkeveredésre utal. Az ilyen átmeneteket kiváltó effektív Hamilton-tagok meghatározásához a [34] cikket követve kanonikusan átalakítom a Hamiltonit egy – a $|\pm 1\rangle$ és $|0\rangle$ elektron spin sajátállapotok által kifeszített A , B alterekre nézve – tiszta fázisvesztést leíró, blokkdiagonális formába. Először az elektron és nitrogén spint tartalmazó rendszer Hamilton-operátorát három részre bontom,

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_1 + \hat{H}_2, \quad (4.5)$$

ahol $\hat{H}_0 = D (\hat{S}_z^2 - S(S+1)/3)$ és $D \gg \Delta E_{A,B}$ ($\Delta E_{A,B}$ az A és B altéren belüli állapotok közötti energiakülönbségeket jelöli). $\hat{H}_1$ sajátállapotai az alterekben belül vannak, $\hat{H}_2$ pedig az A és B altereket keverő tagokat tartalmazza. Jelen esetben

$$\hat{H}_1 = g_e \mu_B B_z \hat{S}_z + A_{zz} \hat{S}_z \hat{I}_z + \frac{E}{2} (\hat{S}_+^2 + \hat{S}_-^2), \quad (4.6)$$

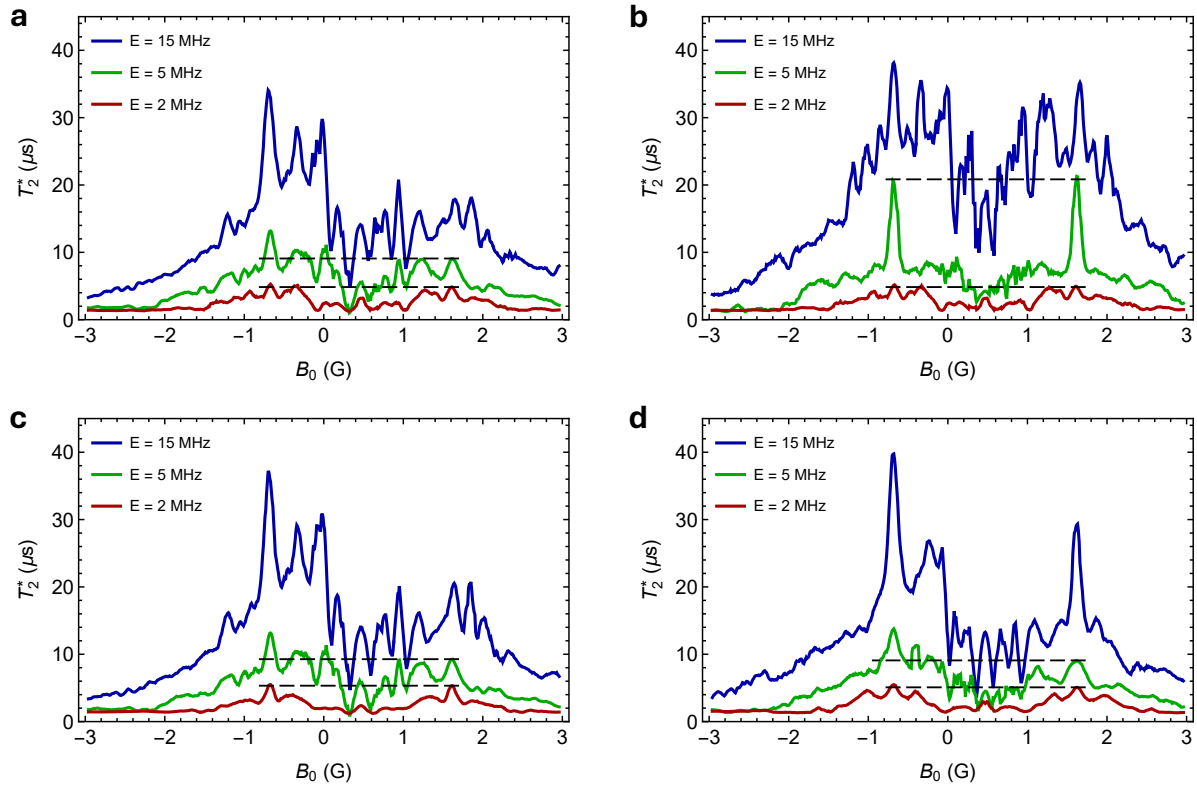
$$\hat{H}_2 = g_e \mu_B (B_\perp \hat{S}_+ + \bar{B}_\perp \hat{S}_-) + A' (\hat{S}_+ \hat{I}_- + \hat{S}_- \hat{I}_+), \quad (4.7)$$

ahol elhanyagoltam a nukleáris Zeeman-kölcsönhatást. A $\tilde{H} = e^{-\hat{S}} \hat{H} e^{\hat{S}}$ kanonikus transzformáció alkalmazása után (ahol $\hat{S}$ egy antihermitikus blokk-offdiagonális operátor) a másodrendű effektív Hamiltoni alakja a következő;

$$\begin{aligned} \tilde{H}^{(2)} = \frac{1}{D} \hat{H}_2^2 \hat{\Delta} = \frac{1}{D} & \left(g_e^2 \mu_B^2 (B_\perp^2 \hat{S}_+^2 + \bar{B}_\perp^2 \hat{S}_-^2) + 2g_e \mu_B A' (B_\perp \hat{S}_+^2 \hat{I}_- + \bar{B}_\perp \hat{S}_-^2 \hat{I}_+) + \right. \\ & + \left[g_e^2 \mu_B^2 |B_\perp|^2 (\hat{S}_+ \hat{S}_- + \hat{S}_- \hat{S}_+) + A'^2 (\hat{S}_+ \hat{S}_- \hat{I}_- \hat{I}_+ + \hat{S}_- \hat{S}_+ \hat{I}_+ \hat{I}_-) + \right. \\ & \left. \left. + 2g_e \mu_B A' (B_\perp \hat{S}_- \hat{S}_+ \hat{I}_+ + \bar{B}_\perp \hat{S}_+ \hat{S}_- \hat{I}_-) \right] \hat{\Delta} \right), \end{aligned} \quad (4.8)$$

ahol $\hat{\Delta} = \hat{P}_A - \hat{P}_B = 2\hat{S}_z^2 - \mathbb{I}$, az i altérre vett $\hat{P}_i$ projekciókkal [34]. Az első, valamint utolsó három tag rendre a transzverzális zérus-tér felhasadás, a sajátenergiák és a magspin-flip

tagok kis korrekcióit írja le.



4.6. ábra. Az NV^- centrum szabad indukciós lecsengési idejének görbéi kis alkalmazott mágneses terek függvényében a nitrogénen alkalmazott (a) szekuláris közelítés nélkül és (b) szekuláris közelítéssel. (c) és (d) rendre a szénszpinekre alkalmazott pszeudo-szekuláris és szekuláris közelítéssel kapott eredményeket mutatja. A szaggatott vonalak segítenek szemléltetni a fő csúcsok közötti különbséget.

A második tag az $|1 \downarrow\rangle \longleftrightarrow |-1 \uparrow\rangle$ állapotok közötti átmenetet generálja $\omega = 2g_e\mu_B A' |B_\perp|/D$ frekvenciával, amely lineárisan függ a c-tengelyre merőleges külső mágneses tér nagyságától. Ennek a folyamatnak az időskálája $\sim 100 \mu\text{s}$ nagyságrendű, így, figyelembe véve a $E \gg A^{(C)}$ tartományban adódó hosszú koherenciaidőt, az állapotok jelentős mértékben keverednek T_2^* időskáláján. Ez alátámasztja, hogy a vizsgált effektus valóban fontos dekoherenciaforrás.

A szén spinek hiperfinom csatolásának pszeudo-szekuláris (szekuláris) közelítésével kapott koherenciagörbék a 4.6c(d) ábrákon láthatóak. A csúcsok aszimmetriája mindkét esetben megfigyelhető. A pszeudo-szekuláris közelítésben a T_2^* értékek kis mértékben növekednek, ami az elektron-szén párok állapotainak fent leírt módon történő keveredésére utal, bár a kisebb hiperfinom komponensek miatt legalább egy nagyságrenddel nagyobb időskálán, mint a nitrogén esetében. Ha az pszeudo-szekuláris tagokat is elhanyagolom, markáns csúcsok jelennek meg, ami alátámasztja a 4.2.1 szekcióban tárgyalt eredményeket.

4.3. A szabad indukciós lecsengés függése a szekuláris hiperfinom komponensek eloszlásától

A koherenciaidő a fürdőben lévő spinek A_{zz} hiperfinom komponenseinek eloszlásától való függésének elméleti modellezéséhez az NV-C magot és egy $\tilde{A}_{zz}$ csatolási állandóval rendelkező gyengén kapcsolt szénszpin tartalmazó rendszer szekuláris Hamilton-operátorát tekintem,

$$\hat{H} = D \left(\hat{S}_z^2 - S(S+1)/3 \right) + \frac{E}{2} \left(\hat{S}_+^2 + \hat{S}_-^2 \right) + g_e \mu_B B_z \hat{S}_z + \sum_{i=N,C,\tilde{C}} A_{zz}^{(i)} \hat{S}_z^{(i)} \hat{I}_z^{(i)}, \quad (4.9)$$

ahol elhanyagolom az elektron Zeeman-kölcsönhatás transzverzális komponenseit, valamint a mag Zeeman- és a mágneses dipólus-dipólus kölcsönhatást. Miután kiszámítottam az ω sajátenergia-különbséget a $\{|1n\rangle, |0n\rangle\}$ alakú állapotpárok között, ahol $|n\rangle$ a magspinek $|\uparrow\rangle$ és $|\downarrow\rangle$ állapotainak tetszőleges konfigurációját jelöli, ω elsőrendű sorfejtését veszem $\tilde{A}_{zz}$ szerint; $\omega \approx C + \alpha \tilde{A}_{zz}$. A koherenciafüggvény levezetéséhez félklasszikus zajmodellt veszek alapul; az ω által meghatározott fázisfejlődést integrálok a $\tilde{A}_{zz}$ Gauss-eloszlására σ szórással [2].

$$L(t) = \langle e^{-i\omega t} \rangle = \int d\tilde{A}_{zz} e^{-i\alpha \tilde{A}_{zz} t} \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} e^{-\tilde{A}_{zz}^2/(2\sigma^2)} = e^{-\frac{1}{2}\alpha^2\sigma^2 t^2} \quad (4.10)$$

Feltételezve az $L(t)$ koherenciafüggvény Gauss-féle lecsengését, a koherenciaidő a $T_2^* = \sqrt{2}/(\alpha\sigma)$ képlettel adható meg. Az erősen kapcsolt nitrogén- és szénszpinnek négy lehetséges konfigurációjára vonatkozó eredmények a 4.11 egyenletben láthatóak. Megjegyzem, hogy a koherenciaidő nem függ a gyengén csatolt szénszpin állapotától.

$$\begin{aligned} T_2^*(\uparrow\uparrow) &= \frac{2\sqrt{2}}{\sigma} \sqrt{\frac{\left(A_{zz}^{(C)} + A_{zz}^{(N)}\right)^2 + 4g_e\mu_B B_z \left(g_e\mu_B B_z - A_{zz}^{(C)} - A_{zz}^{(N)}\right) + 4E^2}{\left(2g_e\mu_B B_z - A_{zz}^{(C)} - A_{zz}^{(N)}\right)^2}} \\ T_2^*(\uparrow\downarrow) &= \frac{2\sqrt{2}}{\sigma} \sqrt{\frac{\left(A_{zz}^{(C)} - A_{zz}^{(N)}\right)^2 + 4g_e\mu_B B_z \left(g_e\mu_B B_z + A_{zz}^{(C)} - A_{zz}^{(N)}\right) + 4E^2}{\left(2g_e\mu_B B_z + A_{zz}^{(C)} - A_{zz}^{(N)}\right)^2}} \\ T_2^*(\downarrow\uparrow) &= \frac{2\sqrt{2}}{\sigma} \sqrt{\frac{\left(A_{zz}^{(C)} - A_{zz}^{(N)}\right)^2 + 4g_e\mu_B B_z \left(g_e\mu_B B_z - A_{zz}^{(C)} + A_{zz}^{(N)}\right) + 4E^2}{\left(2g_e\mu_B B_z - A_{zz}^{(C)} + A_{zz}^{(N)}\right)^2}} \\ T_2^*(\downarrow\downarrow) &= \frac{2\sqrt{2}}{\sigma} \sqrt{\frac{\left(A_{zz}^{(C)} + A_{zz}^{(N)}\right)^2 + 4g_e\mu_B B_z \left(g_e\mu_B B_z + A_{zz}^{(C)} + A_{zz}^{(N)}\right) + 4E^2}{\left(2g_e\mu_B B_z + A_{zz}^{(C)} + A_{zz}^{(N)}\right)^2}} \end{aligned} \quad (4.11)$$

Feltételezve, hogy a különböző nukleáris spinállapotoktól függő zajfolyamatok függetlenek;

$$T_2^* = \left(\frac{2}{T_2^*(\uparrow\uparrow)} + \frac{2}{T_2^*(\uparrow\downarrow)} + \frac{2}{T_2^*(\downarrow\uparrow)} + \frac{2}{T_2^*(\downarrow\downarrow)} \right)^{-1}, \quad (4.12)$$

ami a $g_e\mu_B B_z \gg E$, $A_{zz}^{(N)}$, $A_{zz}^{(C)}$ esetben $T_2^* = \sqrt{2}/(4\sigma)$ -ra redukálódik, így meghatározva a koherenciaidő alapvonalát. A nevezőben szereplő 2-es szorzófaktor a gyengén csatolt szén magspin állapotának megfelelő, azonos esetek miatt jelenik meg.

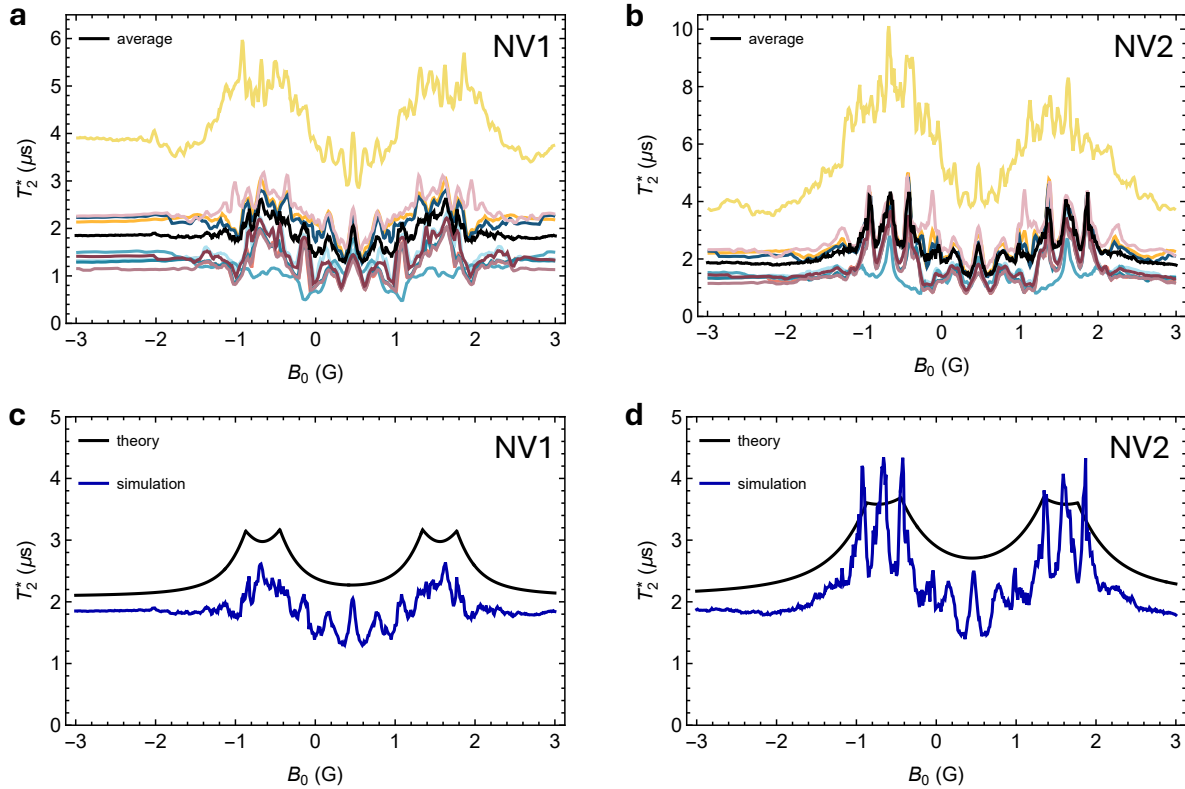
Az alábbiakban a sűrűségfüggvény-számításokból származó pontos hiperfinom-tenzorok statisztikáját vizsgálom [28]. A gyengén csatolt spinfürdő szekuláris komponenseinek ($A_{zz}^{(b)} < A_{zz}^{(C)}$) eloszlása, amelyekből a véletlenszerű fürdőkonfigurációkat mintavételezem, közelíthető egy 0 átlagú és $\sigma = \text{RMS} \approx 0.17$ MHz Gauss-eloszlással, ahol az RMS a diszkrét eloszlás négyzetes közepét jelöli. Fontos, hogy a spinfürdőben található szén magspinnek természetes előfordulásnál ($c = 1.07$ %) nagyobb koncentrációja esetén a $A_{zz}^{(b)} < A_{zz}^{(C)}$ feltétel nem teljesül, így σ lényegesen nagyobb is lehet.

Hogy elkerüljem az adott randomizált konfigurációra jellemző hatáshoz való viszonyítást, 10 különböző randomizált spinfürdő konfigurációra szimuláltam a koherenciaidőt, majd kiszámítottam ezek átlagát mindkét modell rendszerre, ld. 4.7a,b ábra. A 4.12 egyenletbe $\sigma = \text{RMS}$ behelyettesítéssel, illetve a szimulációkból kapott görbék összehasonlítása a 4.7c,d ábrán látható. A kvázisztatikus zajok által okozott inhomogén fázisvesztést leíró elméleti modell jól reprodukálja a szimulált görbék általános alakját, a négy óraátmenetnek megfelelő négy csúcs is megjelenik, ld. 4.1b ábra. A szimulált görbék további struktúrájának eredete a 4.2.1 szekcióban tárgyalt magspin-flip tagok hatása. Ez a folyamat az NV-C magban lévő erősen csatolt szén esetén is végbemegy, így érvényteleníti a 4.12 egyenletben használt, a magspinállapotoktól független zajforrásokra vonatkozó közelítést.

A koherenciagörbék egyedi, összetett alakja megfeleltethető az egyes randomizált spinfürdő konfigurációk energiaszint szerkezetének, ld. 4.1d ábra. B_0 különböző értékeinél a rendszer felváltva engedélyezi vagy elnyomja a hiperfinom-indukált magspin-flipekből származó különböző zajforrásokat, ezért egy váltakozó csúcsokból és mélyedésekből álló szimmetrikus struktúra alakul ki.

A véletlenszerű konfigurációkra adódó görbék két csoportja azonosítható az átlag (fekete vonal, 4.7a,b ábra) feletti (A) és alatti (B) alapvonal szerint. Ennek magyarázatára megvizsgáltam az eloszlások konkrét A_{zz} értékeit. Ökölszabályként azt kaptam, hogy a B csoport esetében legalább egy spin $A_{zz} \gtrsim 0.2$ MHz vagy több spin $A_{zz} \sim 0.1$ MHz értékkel csatolt, ami növeli az eloszlás szórását. Az A csoport esetében csak egy vagy két spinnek van $A_{zz} \sim 0.1$ MHz-es csatolása.

Különösen érdekes a 4.7a,b ábrán sárga vonallal jelölt fürdőkonfiguráció. Itt a legnagyobb és a második legnagyobb szekuláris hiperfinom állandó rendre 0,045 MHz és 0,018 MHz, így az NV-C mag és a spinfürdő gyakorlatilag lecsatolódik egymásról. Követ-



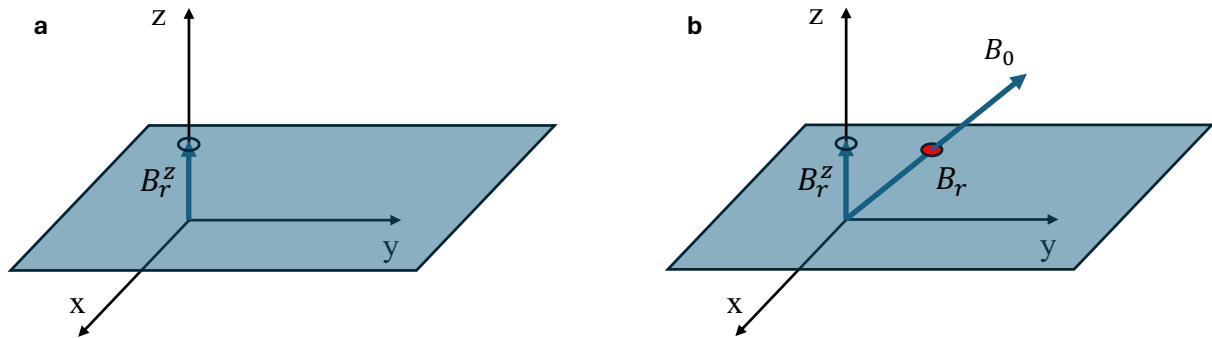
4.7. ábra. (a, b) Az NV1 és NV2 centrumok szabad indukciós lecsengési ideje 10 különböző randomizált spinfördő konfiguráció esetén. A fekete vonalak az átlagolt görbék mutatják. (c, d) A szimulált értékek átlagolásával (kék), valamint a szekuláris Hamiltonin és a félklasszikus zajmodellen alapuló elméletből (fekete) kapott koherenciaidők összehasonlítása.

kezésképpen a mag belső dinamikája válik a fontos koherenciakorlátozó hatássá (ld. 4.2.2 szekciót), ami kellően nagy zérus-tér felhasadás esetén lehetővé teszi a $|B_{\perp}|$ tér hatására létrejövő aszimmetria megjelenését.

4.4. Diszkusszió

A felületközeli NV centrumokat használó, kis mágneses terek melletti alkalmazásokra tervezett szenzoros technológiák tekintetében kulcsfontosságú koherenciadinamikai elemzésem során átfogóan leírtam a rendszert döntően befolyásoló kölcsönhatások kontroll- és kölcsönhatási paraméterfüggését. Az inhomogén fázisvesztést jellemző T_2^* koherenciaidő transzverzális zérus-tér felhasadástól való függésének vizsgálatával megmutattam, hogy az óráátmeneteknek köszönhetően megfelelően kezelt felülettel, valamint optimális mélységben létrehozott NV centrumok használatával a zajokra rendkívül érzékeny szabad indukciós lecsengési idő is közel két nagyságrenddel megnövelhető. Az NV centrum szimmetriatengelyével párhuzamos külső mágneses tér esetén a maximális koherenciaidő az óráátmeneti tartományokban elérhető $T_2^* \sim 70 \mu s$, amely optimális spinfördő konfi-

guráció esetén tovább növelhető. A koherenciaidő ilyen nagyságrendje már lehetővé teszi a gyakorlatban alkalmazható kvantumos érzékeléshez szükséges szenzitivitás elérését. A legfontosabb koherenciaforrást, tehát a szekuláris hiperfinom komponensek által keltett effektív mágneses terek kiterjesztett magra gyakorolt hatását általánosan alkalmazható, a szimulációs eredményekkel jól egyező elméleti modellel elemeztem. A modell segítségével a T_2^* koherenciaidő jósolható más kiterjesztett mag, transzverzális zérus-tér felhasadás vagy szekuláris hiperfinom csatolás eloszlások esetére. További munkám során általános modellt tervezek készíteni, melyet alkalmazva a koherenciaidő-görbék ismeretében pontosan leképezhető az adott spinfűrdő magspinjeihez rendelt hiperfinom konstansok eloszlása.



4.8. ábra. A vektormagnetometriai protokoll illusztrációja. (a) Az energiaszint szerkezet szimmetriavonalának $B_0 = 0$ G-tól vett eltolódását és az alkalmazott mágneses tér θ_0 polárszögét ismerve B_r^z meghatározható. (b) A maximális aszimmetriának megfelelő B_0 orientáció kollineáris B_r orientációjával. Ekkor B_r egyértelműen rekonstruálható.

Egy konstans és egy tetszőleges orientációjú külső mágneses tér hatásának általános modellezése során kísérletileg releváns E értékek mellett is megfigyelhető aszimmetriát fedeztem fel, melynek elméletét, az aszimmetriát okozó effektív kölcsönhatást és az effektus erősségének kölcsönhatási- és kontrollparaméter függését, egzaktul leírtam. Az aszimmetria új magnetometriai protokoll megadására ad lehetőséget, mellyel a mérendő, konstans mágneses indukcióvektor mindhárom komponense egyidejűleg meghatározható, ld. a 4.8 ábrát. Jelenleg a korszerű protokollok csak az NV-tengely irányú vetület mérését teszik lehetővé [35]. Kollineáris alkalmazott és mérendő mágneses tér esetén a megfigyelhető aszimmetria maximális, tehát az óraátmenetek helyén a maximálisan mérhető T_2^* megkeresésével az alkalmazott tér polár- és azimutuszögének, valamint a mérendő tér NV-tengelyre (z-tengely) vett vetületének ismeretében (B_r^x , B_r^y , B_r^z) egyértelműen meghatározható. B_r^z az energiaszint szerkezet szimmetriavonalának $B_0 = 0$ G-tól vett B_0^s eltolódását és az alkalmazott mágneses tér θ_0 polárszögét ismerve határozható meg; $B_r^z = -B_0^s/\cos\theta_0$.

Fontos kiemelni, hogy a vektormagnetometriai alkalmazás szempontjából lényeges a ^{15}N izotópot tartalmazó NV centrum használata, mivel az aszimmetriát okozó effektív kölcsönhatás által okozott átmenet $\Delta m_I = \pm 1$ magspin-flipet tartalmaz. Az átmenet

által okozott keveredés időskálája jelentősen függ az állapotok energiájának felhasadásától, amely a ^{15}N izotóp $I = 1/2$ magspinje esetén lényegében nulla (az igen kicsi mag Zeeman-felhasadást elhanyagolva). Ezzel szemben a ^{14}N izotóp spinje $I = 1$, melynek következtében MHz nagyságrendű nukleáris kvadrupól felhasadás jelenik meg a $|0\rangle$ és $|\pm 1\rangle$ spinállapotok között. A felhasadás a vizsgált effektus hatását jelentősen csökkenti, $\Delta m_I = \pm 2$ átmeneteket gerjesztő effektív kölcsönhatások pedig csak a kanonikus transzformáció magasabb rendjeiben, több nagyságrenddel kisebb átmeneti rátával jelennek meg.

5. fejezet

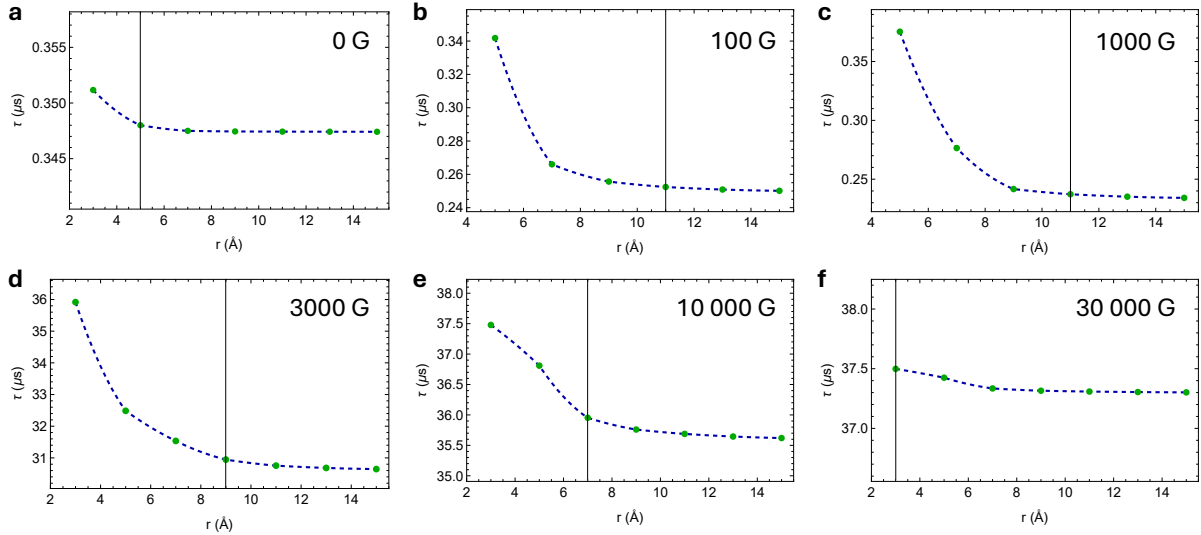
VB⁻ vakancia hexagonális bór-nitridben

Ebben a fejezetben széleskörű konvergenciaszámolások bemutatása után ismertetem a vakancia Hahn echo koherenciaidejének kvantálási tengely mentén hattatott külső mágneses tértől való függését. Meghatározom a lényegesen különböző koherenciadinamikát mutató mágneses tér tartományokat, majd egzakt elméleti leírást adok a $\sim 100 - 1000$ G tartományban megfigyelhető első és másodrendű kontribúciókra. Szemléletes modellt alkotok a nagy tér határesetben és az átmeneti tartományban megfigyelhető koherenciadinamika leírására, valamint bemutatom és elemzem további szimulációs eredményeimet, különös tekintettel a zérus külső mágneses tér mellett megfigyelhető jelenségekre. A kutatómunkám eredményeit összegző kétszerzős kézirat írása folyamatban van [36].

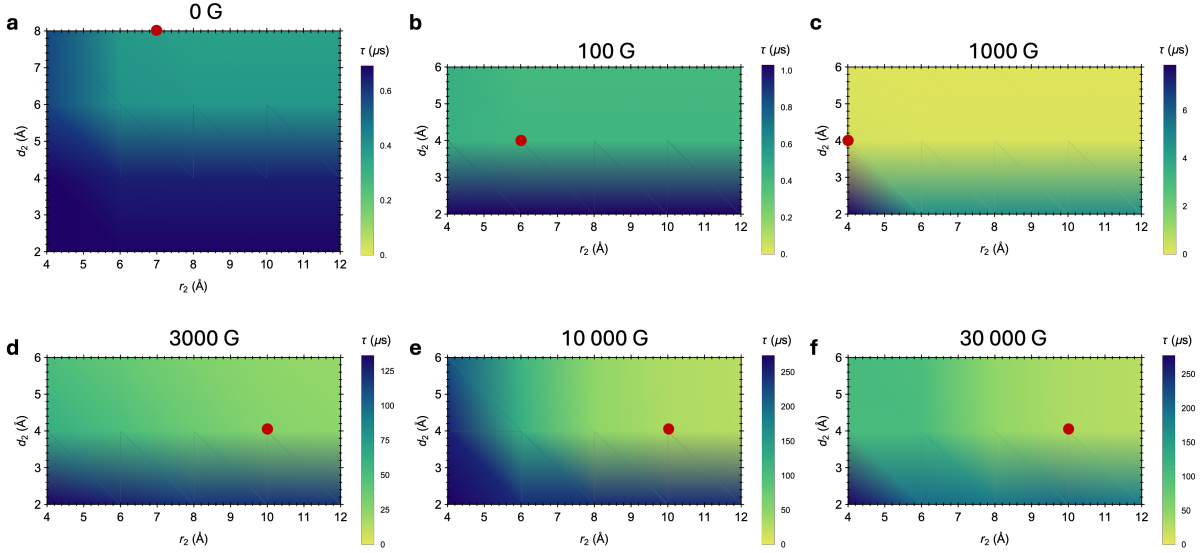
5.1. Széleskörű konvergenciaszámolások

A koherenciafüggvények numerikusan konvergens alakjainak meghatározásához az általánosított klaszter-korrelációs sorfejtés 1-4. rendjeiben, a $0 - 3$ T tartományt jól lefedő reprezentatív mágneses térértékek mellett végeztem konvergenciaszámolásokat, ld. 5.1, 5.2, 5.3, 5.4 ábrák. A számolások során a rendek kontribúcióinak lecsengését jellemző τ karakterisztikus idő konvergenciáját vizsgáltam. Abban az esetben, ha az adott rend T_2 időskáláján közel teljesen koherens ($L(t) \cong 1$), a koherenciafüggvényt egy elnyújtott exponenciális függvénnyel moduláltam, így lehetővé téve a konvergencia vizsgálatát. A moduláló függvény szükségessége alapján megállapítható, hogy 100 G, 10000 G és 30000 G mellett már a gCCE2 rend, míg 0 G, 1000 G és 3000 G esetén gCCE3 konvergens.

A centrális spinnel történő hiperfinom csatoláshoz (r), valamint a spinfürdőben található magspinek közötti mágneses dipól-dipól kölcsönhatáshoz (d) hozzárendelhető konvergens határsugarak az 5.1 táblázatban láthatóak. Köztes mágneses tér tartományokban a határsugarakat lineáris interpolációval határoztam meg.



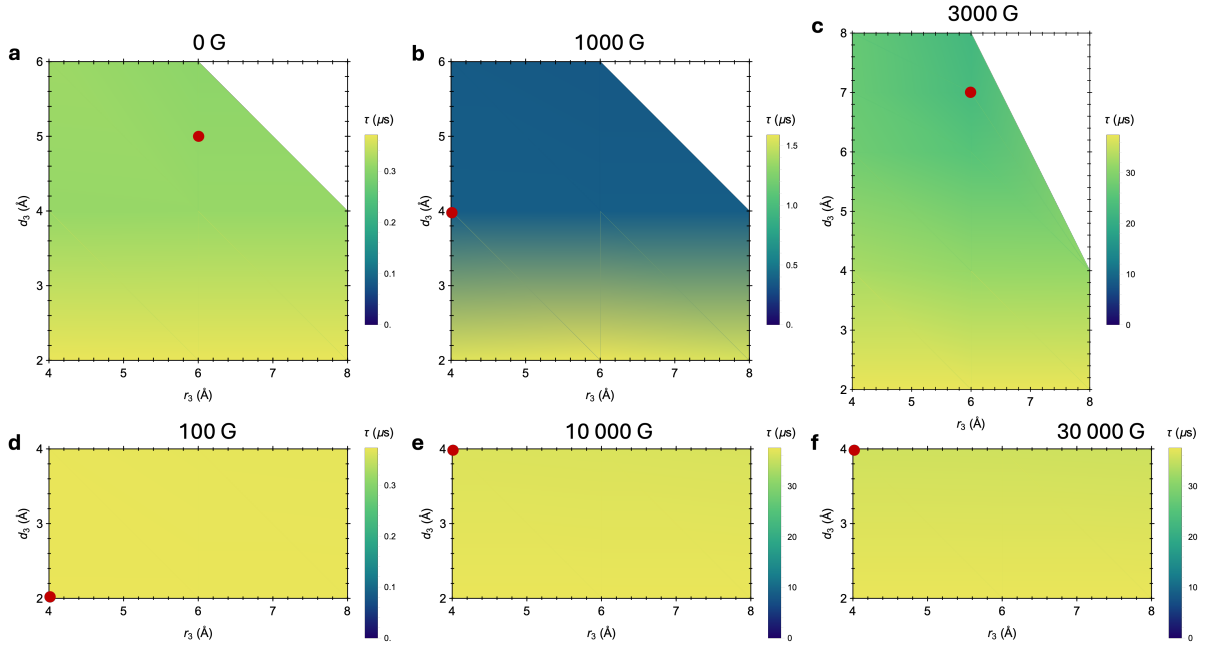
5.1. ábra. Konvergenciaszámolások a gCCE1 rendben. A fekete vonalak a hiperfinom csatolás konvergens határsugarait jelölik.



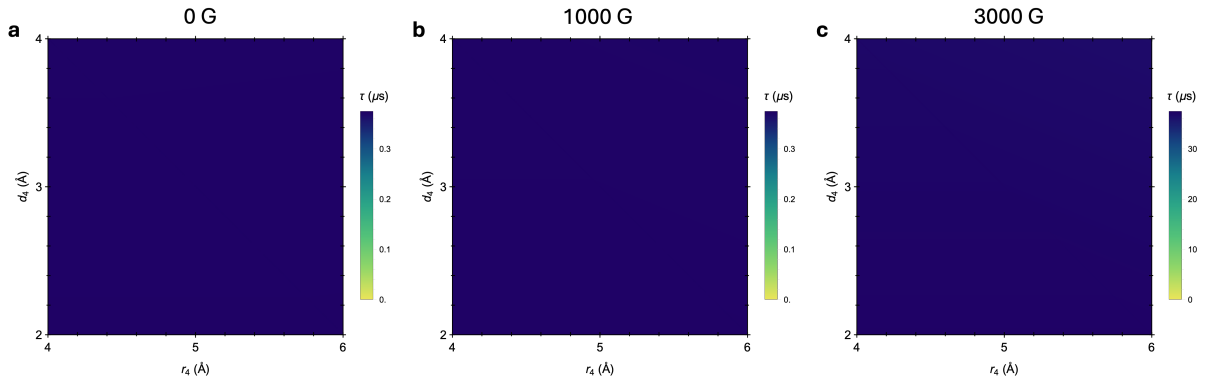
5.2. ábra. Konvergenciaszámolások a gCCE2 rendben. A piros pontok a hiperfinom csatolásnak és a dipól-dipól kölcsönhatásnak megfelelő konvergens határsugarakat jelölik.

B_z (G)	r_1 (Å)	r_2 (Å)	d_2 (Å)	r_3 (Å)	d_3 (Å)
0.	5.	7.	8.	6.	5
100.	11.	6.	4.	4.	2.
1000.	11.	4.	4.	4.	4.
3000.	9.	10.	4.	6.	7.
10000.	7.	10.	4.	4.	4.
30000.	3.	10.	4.	4.	4.

5.1. táblázat. A kétszín kölcsönhatások konvergens határsugarai különböző gCCE rendekben és mágneses terek mellett. r_i a hiperfinom kölcsönhatás, d_i a dipól-dipól kölcsönhatás sugarát jelöli i -ik rendben.



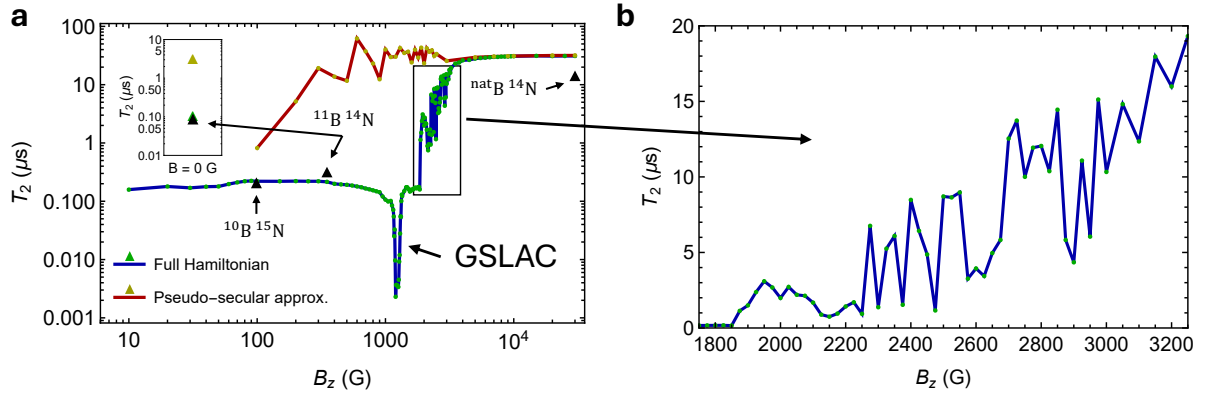
5.3. ábra. Konvergenciaszámolások a gCCE3 rendben. A piros pontok a hiperfinom csatolásnak és a dipól-dipól kölcsönhatásnak megfelelő konvergens határsugarakat jelölik.



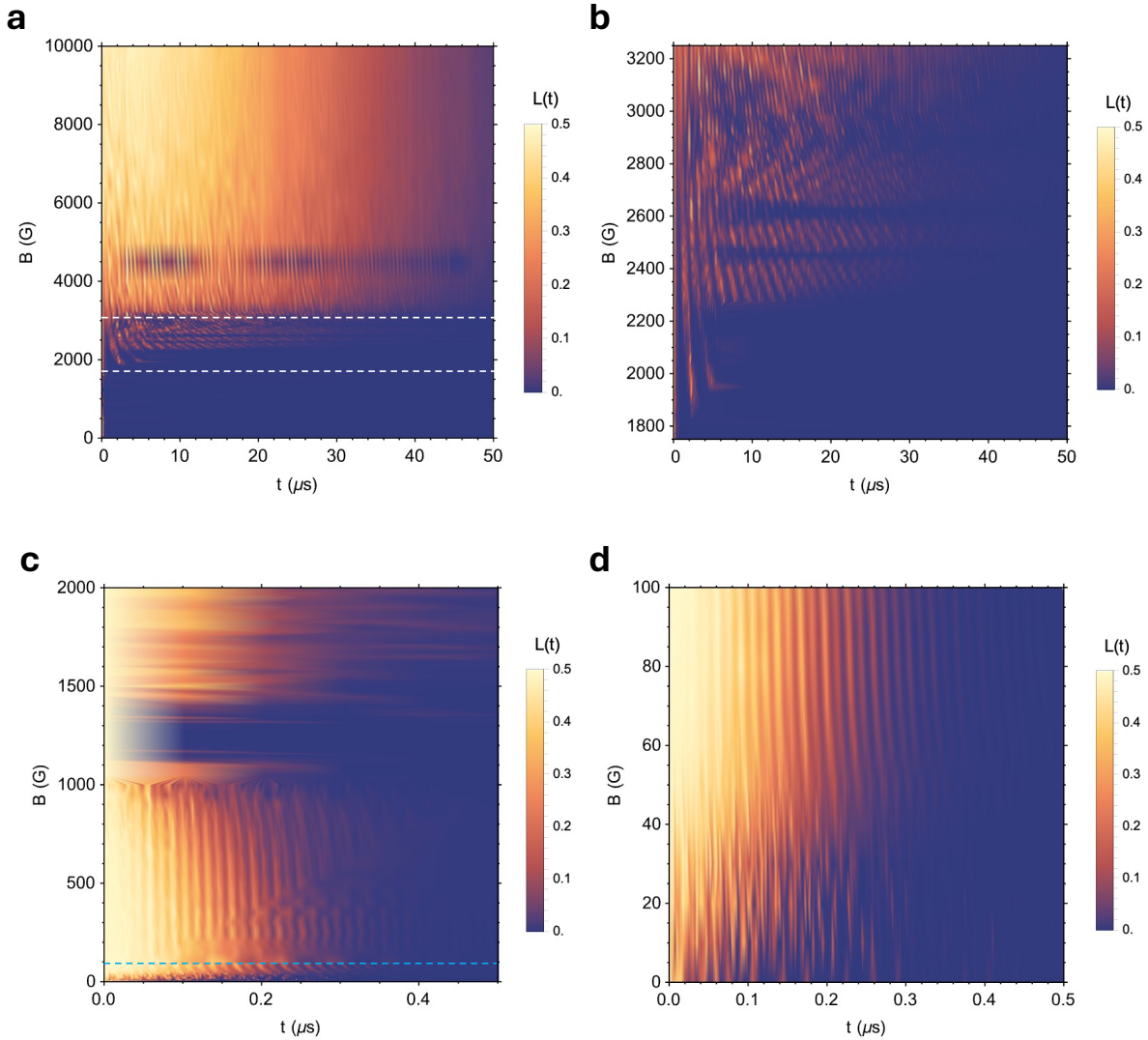
5.4. ábra. Konvergenciaszámolások a gCCE4 rendben.

5.2. A Hahn echo koherenciaidő mágneses tér függése

A T_2 koherenciaidő a kvantálási tengely mentén alkalmazott külső mágneses tér függvényében az 5.5a,b ábrán látható. A szimulált értékek jól egyeznek a közelmúltban publikált, néhány mágneses tér érték esetére adódó értékekkel [24, 37, 38] és elméleti eredményekkel [39, 40]. $B_z < B_{GSLAC}$ terek esetén az általam vizsgált rendszertől ($^{11}\text{B}^{15}\text{N}$) eltérő izotópösszetételek ($^{10}\text{B}^{15}\text{N}$, $^{11}\text{B}^{14}\text{N}$) ellenére a mért és szimulált értékek közel azonosak, tehát ezen a tartományon az izotóp konkrét típusának hatása nem jelentős. Ezzel szemben a 3 Teslán, $^{\text{nat}}\text{B}^{14}\text{N}$ mintán végzett mérés eredménye körülbelül fele a szimulált értéknek. Ennek oka a ^{10}B és ^{14}N izotópok nagyobb spinkvantumszáma következtében megnövekedő koherenciavesztési csatornák száma, ld. az 5.4 szekciót.



5.5. ábra. (a) A T_2 koherenciaidő a kvantálási tengely mentén alkalmazott külső mágneses tér függvényében a teljes Hamiltoni és a pszeudo-szekuláris közelítés alkalmazásával. A fekete háromszögek kísérleti méréseket eredményeiket jelölik [24, 37, 38]. (b) Nagy felbontású ábra a koherenciaidők átmeneti tartományáról.



5.6. ábra. A Hahn echo koherenciafüggvény idő- és mágneses tér függése. (a) Nagy mágneses tér tartomány. A fehér szaggatott vonalak a kvalitatívan különböző koherenciadinamikájú tartományokat jelölik. (b) Átmeneti régió. (c) Kis mágneses tért tartomány. A kék szaggatott vonal a (d) ábra tartományát jelöli.

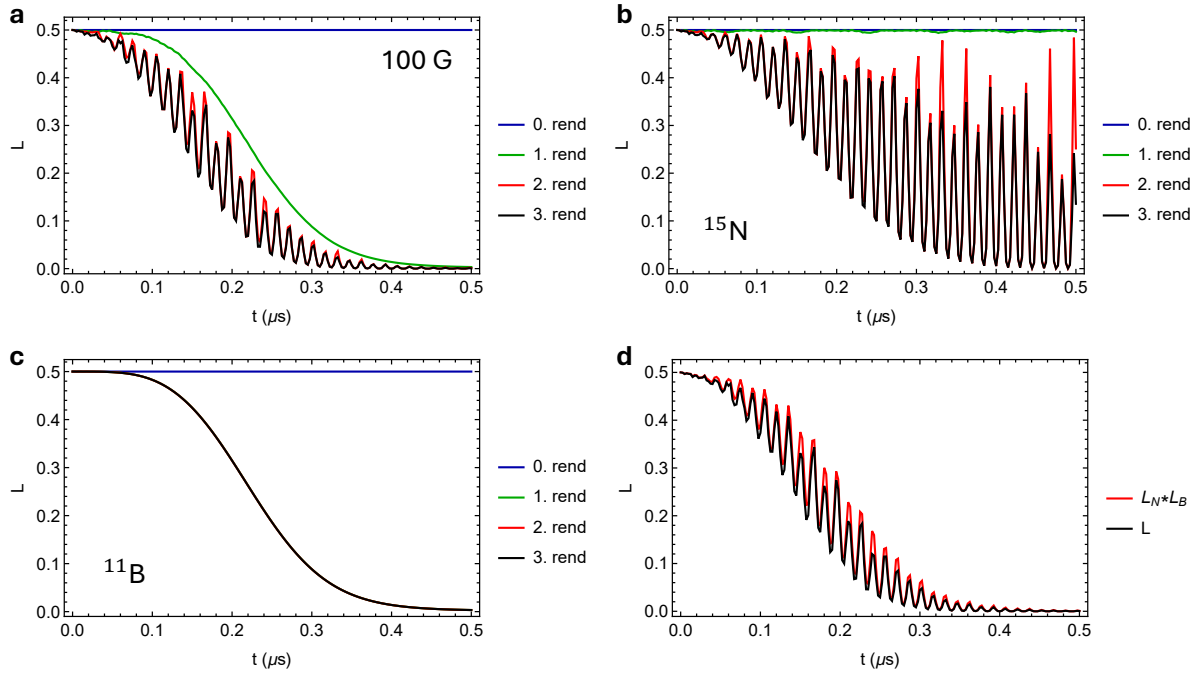
A GSLAC környékén a koherenciaidő több, mint egy nagyságrenddel lecsökken, ami a fentiek alapján a kubitállapotok gyors keveredésének és relaxációjának, mint koherenciaidő limitáló tényezőnek a következménye. Ezt alátámasztja, hogy a hiperfinom kölcsönhatás elektron spin-flip tagjainak elhanyagolásával a GSLAC hatása nem figyelhető meg.

A Hahn echo koherenciafüggvény idő- és mágneses tér függése az 5.6 ábrán látható. A szilícium-karbidban található szilícium vakanciához hasonlóan három kvalitatívan különböző tartomány határozható meg [41]. $B_z \lesssim 1800$ G esetén T_2 nagyságrendje $0.2 \mu\text{s}$, a koherenciafüggvény pedig monoton Gaussi alakban cseng le. Ebben a tartományban a koherenciafüggvény mágneses tértől független ~ 70 MHz-es oszcillációja figyelhető meg. Az $1800 \text{ MHz} \lesssim B_z \lesssim 3200 \text{ MHz}$ átmeneti régióban a koherenciaidő szabálytalan, nem egyenletes módon két nagyságrenddel növekszik, ld. 5.5b ábra. E régióban $L(t)$ gyors Gaussi dekoherenciája, majd hosszabb időskálán a koherencia részleges visszaépülése és lassú lecsengése figyelhető meg. $B_z \gtrsim 3200$ G felett a koherenciafüggvény lecsengése újra Gaussi alakú, T_2 nagyságrendje $\sim 30 \mu\text{s}$. A továbbiakban ezen tartományok domináns spindinamikai effektusait elemzem.

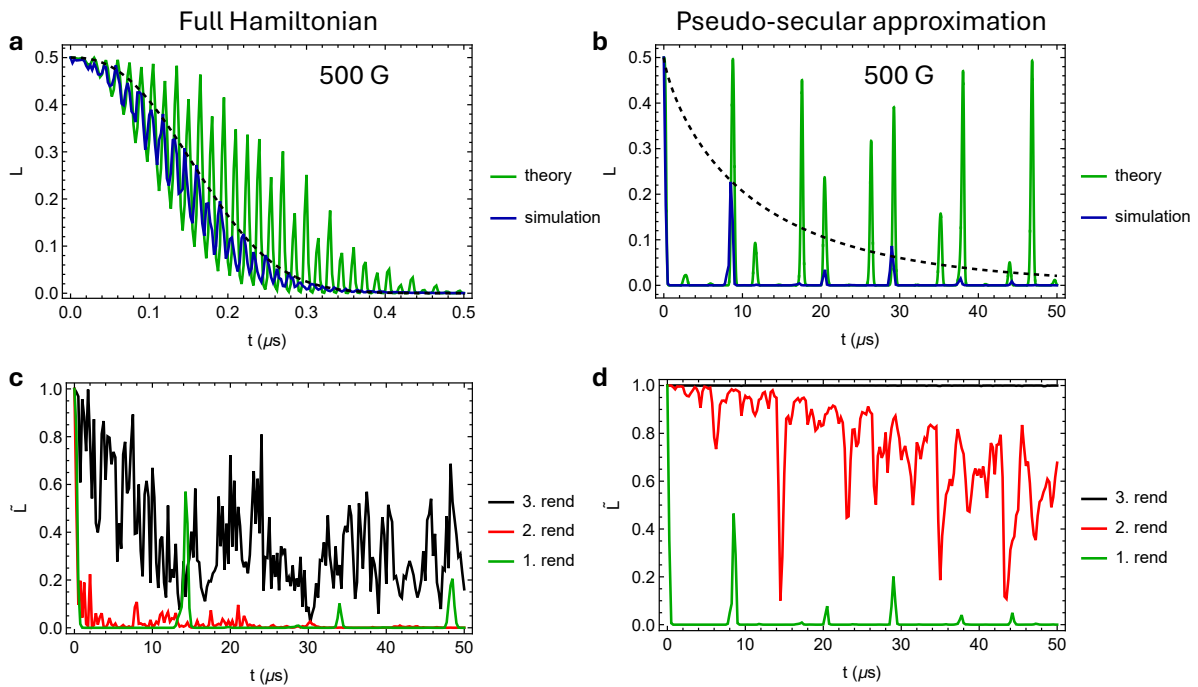
5.3. Az elektron spin által közvetített magspin flip-flip és flip-flop

A $B_z \sim 100 - 1000$ G mágneses tértartományra jellemző koherenciafüggvények az 5.7a és az 5.8a ábrákon láthatóak (rendre $B_z = 100$ G és $B_z = 500$ G). Az elsőrendű Gaussi lecsengés a sorfejtés második rendjében megjelenő oszcillációval modulált, melynek frekvenciája ~ 70 MHz, mágneses tértől független, ld. 5.6c ábra. A bór (nitrogén) magspinek hatásának elhanyagolásával adódó $L_N(t)$ ($L_B(t)$) koherenciafüggvények az 5.7b(c) ábrán szerepelnek, az $L_N(t) \cdot L_B(t)$ szorzat és a teljes spinfürdő figyelembevételével adódó $L(t)$ összehasonlítása pedig az 5.7d ábrán szerepel. Az elsőrendű lecsengés tisztán a bór magspinek hatása, a koherenciafüggvény oszcillációja pedig a két nitrogént tartalmazó klaszterekben jelenik meg. $L_N(t) \cdot L_B(t) \equiv L(t)$, tehát a két különböző magspin által okozott dekoherencia szeparálható, a bór-nitrogén spinek közötti kölcsönhatások T_2 időskáláján elnyomottak, nem okoznak dekoherenciát. Ez a két magspin különböző giromágneses faktorának következménye (ld. 5.1 egyenlet); a mag Zeeman-kölcsönhatás hatására a különböző magok sajátenergiái különböző mértékben hasadnak fel, így az energiában szeparált állapotok T_2 időskáláján nem keverednek.

$$\gamma_{^{15}\text{N}} = -0,000\,431\,736 \frac{\text{MHz}}{\text{G}}, \quad \gamma_{^{11}\text{B}} = 0,001\,366\,33 \frac{\text{MHz}}{\text{G}} \quad (5.1)$$



5.7. ábra. (a) A sorfejtés különböző rendjeiben adódó koherenciafüggvények $B_z = 100$ G mellett. (b, c) Tisztán nitrogén és tisztán bór spinfürdő figyelembevételével adódó koherenciafüggvények. (d) A szeparált spinfürdők függvényeinek szorzata és a teljes spinfürdő függvénye.



5.8. ábra. (a, b) A teljes Hamilton-operátor és a pszeudo-szekuláris közelítés alkalmazásával kapott szimulált és elméleti koherenciafüggvények $B_z = 500$ G mellett. A szaggatott vonalak az burkolóra illesztett görbét jelölik. (c, d) A gCCE rendek a teljes Hamilton-operátor és a pszeudo-szekuláris közelítés alkalmazásával adódó kontribúciói hosszú időskálán.

A különböző gCCE rendek hosszú ($50 \mu\text{s}$) időskálán vizsgált kontribúciói $B_z = 500$ G mellett az 5.8c ábrán láthatóak. A harmadik rend lassú, oszcilláló lecsengése mellett az elsőrendű függvény koherens beatingje figyelhető meg, valamint a dekoherenciát ezen az időskálán a másodrendű kontribúció dominálja. Az elsőrendű beating oka a különböző magspinek precessziójából eredő koherenciafüggvény-modulációk szuperponált hatása. $I = 1/2$ magspinekből álló spinfürdő és tiszta fázisvesztést kódoló (pseudo-szekuláris) Hamiltoni esetén az elektron spin echo burkológörbe moduláció (electron spin-echo envelope modulation, ESEEM) módszerével $L(t)$ analitikusan megadható. A Hahn echo pulzusszekvencia esetére;

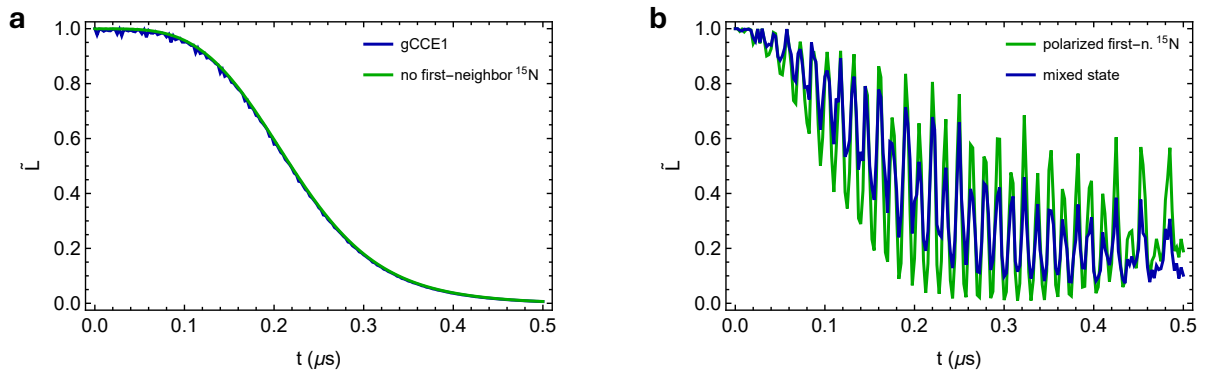
$$L(t) = \prod_i \left(1 - 2k_i^2 \sin^2 \left(\sqrt{(\omega_i + A_i)^2 + B_i^2} \frac{t}{4} \right) \sin^2 \left(\omega_i \frac{t}{4} \right) \right), \quad (5.2)$$

ahol $A = A_{zz}$, $B = \sqrt{A_{zx}^2 + A_{zy}^2}$ és $k_i^2 = \frac{B_i^2}{(\omega_i + A_i)^2 + B_i^2}$, valamint $\omega_i = \gamma_i B_z$ az i -edik magspin Larmor-frekvenciája [27]. A vakanciával azonos rétegben elhelyezkedő magspinekre $B = 0$, tehát ezek a fenti formula alapján nem modulálják a koherenciafüggvényt.

$I > 1/2$ magpsinek esetén a

$$L_1(t) = \prod_i \left(1 - \frac{8}{3} I_i(I_i + 1) k_i^2 \sin^2 \left(\sqrt{(\omega_i + A_i)^2 + B_i^2} \frac{t}{4} \right) \sin^2 \left(\omega_i \frac{t}{4} \right) \right) \quad (5.3)$$

közelítő formula alkalmazható [42]. A pseudo-szekuláris közelítésben adódó beating és az 5.3 egyenlet alapján számolt elméleti görbe $B_z = 500$ G melletti összehasonlítása az 5.8b ábrán látható. A szimulációban megjelenő és korábbi szimulációs munkákban is megfigyelt ([43]) csúcsok helyzete, valamint a rövid időskálán történő Gaussi lecsengés tökéletesen reprodukálva van az elméletben. A csúcsok magasságának helyes leírásához szükséges az $I \geq 1$ spinek kvadrupól felhasadásának figyelembevétele is, azonban az irodalomban erre az esetre csak a $\omega \gg A, B$ – jelen munkában nem teljesülő – közelítésben érvényes formula található [42].



5.9. ábra. (a) Az első-szomszéd nitrogén magspinek elhanyagolásával adódó koherenciafüggvény, valamint a teljes spinfürdő adódó gCCE1 kontribúció összehasonlítása. (b) gCCE2 kontribúció az első-szomszéd nitrogén spinek polarizált és kevert kezdőállapotával.

A rendek pszeudo-szekuláris közelítésben kapott kontribúciói az 5.8d ábrán láthatóak. A közelítés alkalmazásával a harmadik rend teljesen, a második rend pedig közel teljesen koherens. Ez alapján megállapítom, hogy a koherencia fő forrása ebben a tartományban a hiperfinom kölcsönhatás nem pszeudo-szekuláris tagjai által közvetített magspin flip-flip és flip-flop. A fenti eredmények alapján ez a kölcsönhatás nitrogénekből álló homonukleáris párok között megy végbe. Az első szomszéd nitrogén magspinek elhanyagolásával adódó koherenciafüggvény, valamint a teljes spinfürdővel adódó gCCE1 kontribúció azonos alakja alapján (ld. 5.9a ábra) a flip-flip és flip-flop csak az egyik első szomszéd nitrogént tartalmazó párok esetén megy végbe.

A 5.9a ábra alapján az erősen csatolt első-szomszéd nitrogének gyors precessziója az elsőrendű kontribúció nagyfrekvenciás, kis amplitúdójú koherens modulációját okozza. A 5.9b ábrán a polarizált és termikus kezdőállapotú első szomszéd nitrogén spinek esetén adódó másodrendű kontribúciók láthatóak. A ~ 70 MHz-es oszcilláció polarizált esetben ~ 2 -szeres amplitúdóval jelenik meg, amely alátámasztja a flip-flip átmenetek jelentőségét.

A hiperfinom csatolás által közvetített magspin flip-flip és flip-flop kölcsönhatást leíró effektív Hamiltoni levezetéséhez a 4.2.2 szekcióban is alkalmazott kanonikus transzformációt alkalmazom [34]. Az első szomszéd nitrogének esetében $A_{zx} = A_{zy} = 0$, $A_{xy} \neq 0$ és lehet $A_{xx} \neq A_{yy}$. Ekkor hiperfinom kölcsönhatás nem pszeudo-szekuláris tagjai az alábbiak szerint kifejezhetők;

$$\begin{aligned}\hat{H}_{Hyp}^\perp &= A_{xx}\hat{S}_x\hat{I}_x + A_{yy}\hat{S}_y\hat{I}_y + A_{xy}(\hat{S}_x\hat{I}_y + \hat{S}_y\hat{I}_x) = \\ &= \frac{A_{xx} - A_{yy} - iA_{xy}}{4}\hat{S}_+\hat{I}_+ + \frac{A_{xx} - A_{yy} + iA_{xy}}{4}\hat{S}_-\hat{I}_- + \frac{A_{xx} + A_{yy}}{4}(\hat{S}_+\hat{I}_- + \hat{S}_-\hat{I}_+) \quad (5.4) \\ &= A_+\hat{S}_+\hat{I}_+ + A_-\hat{S}_-\hat{I}_- + A_\pm(\hat{S}_+\hat{I}_- + \hat{S}_-\hat{I}_+).\end{aligned}$$

Az inicializációs protokoll és így a dekoherencia szempontjából releváns $|0\rangle$ és $|-1\rangle$ állapotok felhasadását a zérus-tér és a Zeeman-felhasadás határozza meg, ezért

$$\hat{H}_0 = D(\hat{S}_z^2 - S(S+1)/3) + g_e\mu_B B_z \hat{S}_z. \quad (5.5)$$

Az $|D - g_e\mu_B B_z|$ energiafelhasadás a vizsgált tartományban ~ 1000 MHz nagyságrendű, ezért az $\hat{S}_+^2$, $\hat{S}_-^2$ operátorokat tartalmazó tagokat a továbbiakban elhanyagolom. A mágneses dipól-dipól kölcsönhatás és a mag Zeeman-kölcsönhatás hatása $\sim 0.1 \mu s$ időskálán szintén elhanyagolható. Ekkor

$$\hat{H}_1 = \sum_{i=1}^2 A_{zz}^{(i)} \hat{S}_z^{(i)} \hat{I}_z^{(i)}, \quad \hat{H}_2 = \sum_{i=1}^2 A_+^{(i)} \hat{S}_+ \hat{I}_+^{(i)} + A_-^{(i)} \hat{S}_- \hat{I}_-^{(i)} + A_\pm^{(i)} (\hat{S}_+ \hat{I}_-^{(i)} + \hat{S}_- \hat{I}_+^{(i)}). \quad (5.6)$$

A másodrendű effektív Hamiltoni az alábbi; ($\hat{\Delta} = \hat{P}_{-1} - \hat{P}_0$)

$$\begin{aligned} \tilde{H}^{(2)} = & \frac{1}{|D - g_e \mu_B B_z|} \hat{H}_2^2 \hat{\Delta} = \frac{1}{|D - g_e \mu_B B_z|} \\ & \left((2\hat{P}_{-1} + 4\hat{P}_0) \left[(A_+^{(1)} A_-^{(2)} + A_{\pm}^{(1)} A_{\pm}^{(2)}) \hat{I}_+^{(1)} \hat{I}_-^{(2)} + (A_-^{(1)} A_+^{(2)} + A_{\pm}^{(1)} A_{\pm}^{(2)}) \hat{I}_-^{(1)} \hat{I}_+^{(2)} + \right. \right. \\ & + (A_+^{(1)} A_{\pm}^{(2)} + A_{\pm}^{(1)} A_+^{(2)}) \hat{I}_+^{(1)} \hat{I}_+^{(2)} + (A_-^{(1)} A_{\pm}^{(2)} + A_{\pm}^{(1)} A_-^{(2)}) \hat{I}_-^{(1)} \hat{I}_-^{(2)} \Big] + \\ & + \left[(A_{\pm}^{(1)})^2 (\hat{S}_+ \hat{S}_- \hat{I}_-^{(1)} \hat{I}_+^{(1)} + \hat{S}_- \hat{S}_+ \hat{I}_+^{(1)} \hat{I}_-^{(1)}) + (A_{\pm}^{(2)})^2 (\hat{S}_+ \hat{S}_- \hat{I}_+^{(2)} \hat{I}_-^{(2)} + \hat{S}_- \hat{S}_+ \hat{I}_-^{(2)} \hat{I}_+^{(2)}) + \right. \\ & \left. \left. + A_+^{(1)} A_-^{(1)} (\hat{S}_+ \hat{S}_- \hat{I}_+^{(1)} \hat{I}_-^{(1)} + \hat{S}_- \hat{S}_+ \hat{I}_-^{(1)} \hat{I}_+^{(1)}) + A_+^{(2)} A_-^{(2)} (\hat{S}_+ \hat{S}_- \hat{I}_-^{(2)} \hat{I}_+^{(2)} + \hat{S}_- \hat{S}_+ \hat{I}_+^{(2)} \hat{I}_-^{(2)}) \right] \hat{\Delta} \right), \end{aligned} \quad (5.7)$$

ahol kihasználtam, hogy $\hat{S}_+ \hat{S}_- + \hat{S}_- \hat{S}_+ = 2\hat{P}_{-1} - 4\hat{P}_0$. Az utolsó négy tag energiaszint korrekciókat kódol, az első (második) kettő tag pedig a $|0\rangle$ és $|-1\rangle$ elektron spin állapotokra kondicionált magspin flip-flop (flip-flip) átmeneteket gerjesztik.

A flip-flip és flip-flop tagok által okozott állapotkeveredés következtében megjelenő időfüggő fázismoduláció és dekoherencia elméleti leírásához a pszeudo-spin modellt alkalmazom [27, 31]. A $|\uparrow\uparrow\rangle$ és $|\downarrow\downarrow\rangle$, valamint a $|\uparrow\downarrow\rangle$ és $|\downarrow\uparrow\rangle$ magspin állapotokat a $|\uparrow\uparrow\rangle$ és $|\downarrow\downarrow\rangle$ pszeudo-spin állapotokhoz rendelem. Ekkor az $\{i, j\}$ magspin-párból képzett pszeudo-spin állapotok Hilbert-terén ható Hamilton-operátor

$$\hat{H}_{ij}^{ms} = \Omega_{ij}^{ms} \hat{J}_z + D_{ij}^{ms} \hat{J}_x \quad (5.8)$$

alakú, ahol $\hat{J}_{x,z}$ fiktív spin-1/2 operátorokat jelöl, Ω_{ij}^{ms} és D_{ij}^{ms} pedig rendre a pszeudo-spin állapotok a központi spin m_S alterében érvényes energiafelhasadása, illetve keveredési rátája.

A $|\uparrow\downarrow\rangle \leftrightarrow |\downarrow\uparrow\rangle$ flip-flop átmenetekre (A eset);

$$\begin{aligned} \Omega_{ij}^0 &= 0 & \Omega_{ij}^{-1} &= |A_{zz}^{(i)} - A_{zz}^{(j)}| \\ D_{ij}^0 &= \frac{4 |A_+^{(i)} A_-^{(j)} + A_{\pm}^{(i)} A_{\pm}^{(j)}|}{|D - g_e \mu_B B_z|} & D_{ij}^{-1} &= \frac{2 |A_+^{(i)} A_-^{(j)} + A_{\pm}^{(i)} A_{\pm}^{(j)}|}{|D - g_e \mu_B B_z|}, \end{aligned} \quad (5.9)$$

a $|\uparrow\uparrow\rangle \leftrightarrow |\downarrow\downarrow\rangle$ flip-flip átmenetekre (B eset);

$$\begin{aligned} \Omega_{ij}^0 &= 2g_N \mu_N B_z & \Omega_{ij}^{-1} &= |A_{zz}^{(i)} + A_{zz}^{(j)}| + 2g_N \mu_N B_z \\ D_{ij}^0 &= \frac{4 |A_+^{(i)} A_{\pm}^{(j)} + A_{\pm}^{(i)} A_+^{(j)}|}{|D - g_e \mu_B B_z|} & D_{ij}^{-1} &= \frac{2 |A_+^{(i)} A_{\pm}^{(j)} + A_{\pm}^{(i)} A_+^{(j)}|}{|D - g_e \mu_B B_z|}. \end{aligned} \quad (5.10)$$

Innen a másodrendű kontribúció a Hahn echo pulzusszekvencia ESEEM modulációjával

analóg módon [27];

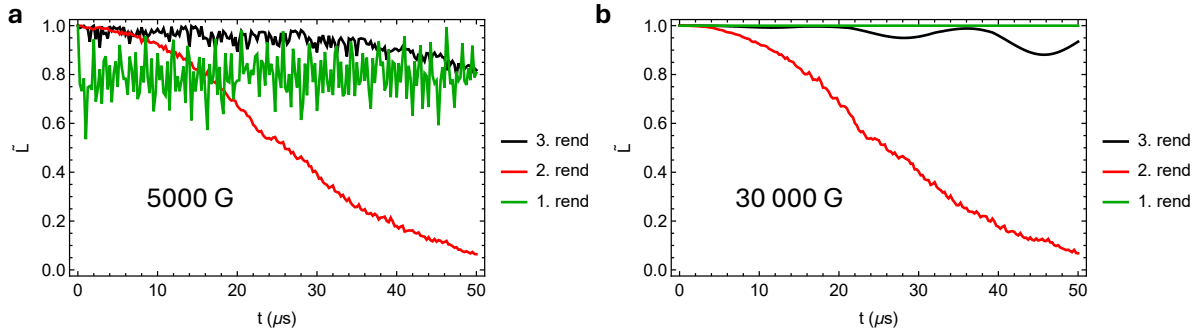
$$L_2(t) = \prod_{k \in \{A,B\}} \prod_{i \in \{1,2,3\}} \prod_{j \neq i} \left(1 - \frac{(\Omega_{ij}^0 D_{ij}^{-1} - \Omega_{ij}^{-1} D_{ij}^0)^2}{\left((\Omega_{ij}^0)^2 + (D_{ij}^0)^2\right) \left((\Omega_{ij}^{-1})^2 + (D_{ij}^{-1})^2\right)} \times \right. \\ \left. \times \sin^2 \left(\sqrt{(\Omega_{ij}^0)^2 + (D_{ij}^0)^2} \frac{t}{4} \right) \sin^2 \left(\sqrt{(\Omega_{ij}^{-1})^2 + (D_{ij}^{-1})^2} \frac{t}{4} \right) \right), \quad (5.11)$$

ahol k a különböző átmeneteken, i az első-szomszéd nitrogén magspineken, j pedig az adott első-szomszéd nitrogéntől különböző, a vakanciától $r < 6$ Å távolságra lévő nitrogén spineken fut végig.

Az elméleti úton származtatott $L_1(t) \cdot L_2(t)$ koherenciafüggvény és a szimulált görbe összehasonlítása az 5.8a ábrán látható. A koherenciafüggvény gyors oszcillációját, a csúcsenként alternáló amplitúdót és az amplitúdó haranggörbe alakú változását tökéletesen reprodukálja az elmélet. A gyors oszcilláció a két első szomszéd nitrogént tartalmazó klaszterekben a $|-1\rangle$ elektron spinállapotra kondicionált $|\uparrow\uparrow\rangle \leftrightarrow |\downarrow\downarrow\rangle$ flip-flip átmenetek hatására létrejövő modulációban megjelenő $\nu_1 = \frac{1}{4} \sqrt{(\Omega_{12}^{-1})^2 + (D_{12}^{-1})^2} \approx 33.4167$ MHz és $\nu_2 = \frac{1}{4} \sqrt{(\Omega_{13}^{-1})^2 + (D_{13}^{-1})^2} \approx 33.417$ MHz frekvenciájú oszcillációk lebegéséből ered; $\nu = \nu_1 + \nu_2 \approx 67$ MHz. A burkológörbe lecsengését $L_1(t)$ határozza meg, a szimulációval való pontos egyezéshez a kvadrupólus felhasadás pontos kezelése lenne szükséges.

5.4. A nagy tér határeset

A 5.5 és 5.6a ábrák alapján a koherenciaidő $B_z \approx 3500$ G körül eléri a nagy tér határesetet, amikor a $T_2 \approx 31$ μ s koherenciaidő egyetlen limitáló tényezője a mágneses tértől független, dipól-dipól kölcsönhatás által indukált magspin flip-flop. Ebben a tartományban a Hamilton-operátor pszeudo-szekuláris közelítése érvényes, mivel a $|0\rangle$ és $|-1\rangle$ állapotok nagy Zeeman-felhasadása elnyomja a másod- és harmadrendű effektív hiperfinom tagok által gerjesztett magspin flip vagy flip-flip átmeneteket. A pszeudo-szekuláris közelítés a vakanciával azonos rétegben elhelyezkedő magspinekre ekvivalens a szekuláris-közelítéssel. Emellett az 5.10 ábrán látható, hogy a nagy tér határesetben az elsőrendű moduláció nagy frekvenciájú, kis amplitúdójú koherens oszcillációvá alakul. Ennek oka, hogy a mag Zeeman-felhasadása a pszeudo-szekuláris tagok által okozott magspin-flipet is elnyomja és így az 5.3 egyenletben szereplő modulációs mélység (modulation depth) paraméter $k_i \rightarrow 0$. Emellett érdemes megjegyezni, hogy a dipól-dipól kölcsönhatás indukálta magspin flip-flop elsősorban az azonos (két dimenziós) rétegben elhelyezkedő spinek között megy végbe, mivel 2D van der Waals anyagok esetén a rétegek közötti távolság tipikusan 2-3-szor nagyobb mint a rácspontok távolsága [22], a kölcsönhatás erőssége pedig a távolság $\sim d^{-3}$ hatványa szerint csökken.



5.10. ábra. A gCCE rendek kontribúciói nagy mágneses terek mellett.

A mágneses dipól-dipól kölcsönhatás Hamilton-operátora az alábbi alakba kifejezhető, ahol a fentiek alapján csak a szekuláris (A) és a flip-flop (B) tag nem elhanyagolható [44];

$$\hat{H}_{ij}^{dip} = \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{\gamma_i \gamma_j \hbar^2}{r_{ij}^3} (A + B + C + D + E + F), \quad (5.12)$$

ahol az $\mathbf{r}_{ij}$ vektor által meghatározott θ és ϕ szögekkel

$$\begin{aligned} A &= \hat{I}_z^{(i)} \hat{I}_z^{(j)} (1 - 3\cos^2\theta), \\ B &= -\frac{1}{4} (\hat{I}_+^{(i)} \hat{I}_-^{(j)} + \hat{I}_-^{(i)} \hat{I}_+^{(j)}) (1 - 3\cos^2\theta), \\ C &= -\frac{3}{2} (\hat{I}_+^{(i)} \hat{I}_z^{(j)} + \hat{I}_z^{(i)} \hat{I}_+^{(j)}) \sin\theta \cos\theta e^{-i\phi}, \\ D &= -\frac{3}{2} (\hat{I}_-^{(i)} \hat{I}_z^{(j)} + \hat{I}_z^{(i)} \hat{I}_-^{(j)}) \sin\theta \cos\theta e^{i\phi}, \\ E &= -\frac{3}{4} \hat{I}_+^{(i)} \hat{I}_+^{(j)} \sin^2\theta e^{-2i\phi}, \\ F &= -\frac{3}{4} \hat{I}_-^{(i)} \hat{I}_-^{(j)} \sin^2\theta e^{2i\phi}. \end{aligned} \quad (5.13)$$

A fentiek alapján az $I = 1/2$ nitrogén párok $|\uparrow\uparrow\rangle$ és $|\downarrow\downarrow\rangle$ állapotai energiában kellően szeparáltak, így ezek a nagy tér határesetben nem keverednek. A $|\uparrow\downarrow\rangle$ és $|\downarrow\uparrow\rangle$ pseudo-spinállapotok energiafelhasadása az 5.3 egyenlet alapján $\Omega_{ij}^{-1} = |A_{zz}^{(i)} - A_{zz}^{(j)}|$.

Az $I = 3/2$ bór-párok esetén a szekuláris dipól-dipól felhasadás

$$J = (1 - 3\cos^2\theta) \mu_0 \gamma_i \gamma_j \hbar^2 / (4\pi r_{ij}^3),$$

valamint a nem nulla kvadrupól felhasadás (Q) miatt több flip-flop csatorna jön létre. A lehetséges átmeneteket és a nekik megfelelő energiafelhasadás (Ω) alakját az 5.2 táblázat tartalmazza. A pseudo-spin állapotok keveredési rátája mindig

$$D_{ij}^{-1} = D_{ij}^0 = \frac{1}{4} \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{\gamma_i \gamma_j \hbar^2}{r_{ij}^3} (3\cos^2\theta - 1). \quad (5.14)$$

	$ 0\rangle$	$ -1\rangle$
$ 3/2, -1/2\rangle \leftrightarrow 1/2, 1/2\rangle$	$\Omega_{ij}^0 = J_{ij} - 2Q $	$\Omega_{ij}^{-1} = J_{ij} - 2Q + A_{zz}^{(i)} - A_{zz}^{(j)} $
$ -1/2, 3/2\rangle \leftrightarrow 1/2, 1/2\rangle$	$\Omega_{ij}^0 = J_{ij} - 2Q $	$\Omega_{ij}^{-1} = J_{ij} - 2Q - A_{zz}^{(i)} + A_{zz}^{(j)} $
$ 1/2, -3/2\rangle \leftrightarrow -1/2, -1/2\rangle$	$\Omega_{ij}^0 = J_{ij} - 2Q $	$\Omega_{ij}^{-1} = J_{ij} - 2Q + A_{zz}^{(i)} - A_{zz}^{(j)} $
$ -3/2, 1/2\rangle \leftrightarrow -1/2, -1/2\rangle$	$\Omega_{ij}^0 = J_{ij} - 2Q $	$\Omega_{ij}^{-1} = J_{ij} - 2Q - A_{zz}^{(i)} + A_{zz}^{(j)} $
$ -1/2, 1/2\rangle \leftrightarrow -3/2, 3/2\rangle$	$\Omega_{ij}^0 = 2 J_{ij} - 2Q $	$\Omega_{ij}^{-1} = 2J_{ij} - 4Q - A_{zz}^{(i)} + A_{zz}^{(j)} $
$ 3/2, -3/2\rangle \leftrightarrow 1/2, -1/2\rangle$	$\Omega_{ij}^0 = 2 J_{ij} - 2Q $	$\Omega_{ij}^{-1} = 2J_{ij} - 4Q + A_{zz}^{(i)} - A_{zz}^{(j)} $

5.2. táblázat. A bór magspin-párok flip-flop átmeneteinek megfelelő energiefelhasadások az elektron spin $|0\rangle$ és $|-1\rangle$ alterében.

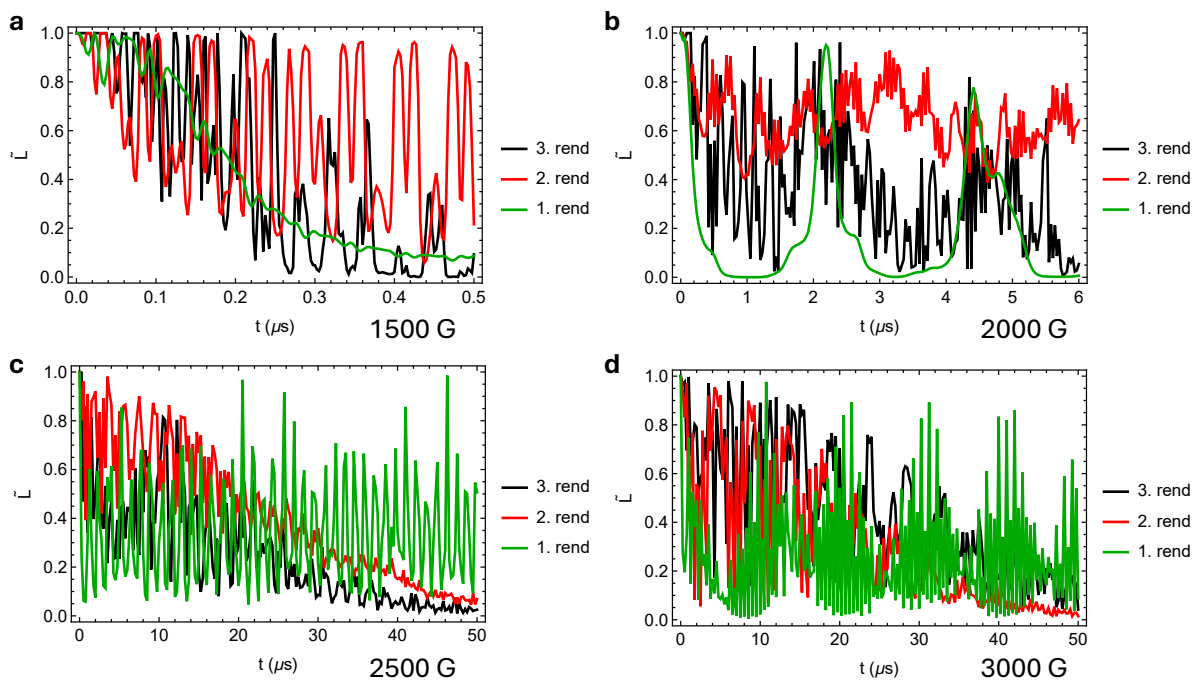
A táblázat alsó két sorában található átmenetek egymástól függetlenek, azonban látható, hogy a $|1/2, 1/2\rangle$ és $|-1/2, -1/2\rangle$ állapotok több átmenetben is szerepelnek, mely effektusok ezáltal csatoltak lesznek, nem kezelhetők független folyamatokként. Emiatt az $S = 1/2$ pszeudo-spinre érvényes ESEEM modell itt nem alkalmazható, valamint a 5.3 egyenletben alkalmazott közelítő formula sem elégséges a másodrendű kontribúció leírásához.

A különböző magspinállapotok közötti lehetséges átmenetek vizsgálata rávilágít arra, hogy a nagy tér határesetben a koherenciaidő a lehető legkisebb spinkvantumszámú izotópok alkalmazásával maximalizálható, mivel a dekoherenciát okozó átmenetek száma ekkor minimális. Tehát ekkor az általam vizsgált $^{11}\text{B}^{15}\text{N}$ monoizotópos összetétel optimális.

5.5. A spinfürdő térbeli szeparációja

Az átmeneti tartományra jellemző koherenciafüggvények és a különböző rendek kontribúciói az 5.11 ábrán láthatóak. A másodrendben domináns effektív kölcsönhatás frekvenciája a GSLAC-hoz közeledve jelentősen megnő, a modulációs mélységet meghatározó paraméter pedig lecsökken, így ebben a tartományban a másodrendű oszcilláció szaturálódik, koherens lesz. 1500 G felett az effektív kölcsönhatás által okozott spin flip-flip átmeneti rátája kisebb, mint a $|\uparrow\uparrow\rangle$, $|\downarrow\downarrow\rangle$ állapotok energiszintjeinek Zeeman-felhasadása, így a folyamat a koherenciaidő időskáláján elnyomódik. Ehelyett a GSLAC környékén és az átmeneti tartományban a harmadrendű kontribúció oszcilláló exponenciális lecsengése dominálja a dekoherenciát. A harmadrendű dinamika pontos leírásához a Hamiltoni kanonikus sorfejtésének harmadik rendjében megjelenő effektív kölcsönhatási operátorokat kell megvizsgálni. Az alábbiakban egy egyszerű szemléletes képet tekintek az átmeneti tartomány leírására.

A 5.5a ábrán látható, hogy a pszeudo-szekuláris közelítésben nem figyelhető meg a koherenciaidő átmeneti tartománya, a sorfejtés harmadik rendje ekkor teljesen koherens. Ez alapján a vakancia körüli, a 2.5 ábrán jól megfigyelhető héjakra jellemző nem pszeudo-szekuláris hiperfinom tagok és a mag Zeeman-felhasadás nagyságának összehasonlításával kvalitatív magyarázat adható a megfigyelt átmeneti tartományra. Az átmeneti régióban a



5.11. ábra. A gCCE rendek kontribúciói az átmeneti tartományból vett mágneses terek mellett.

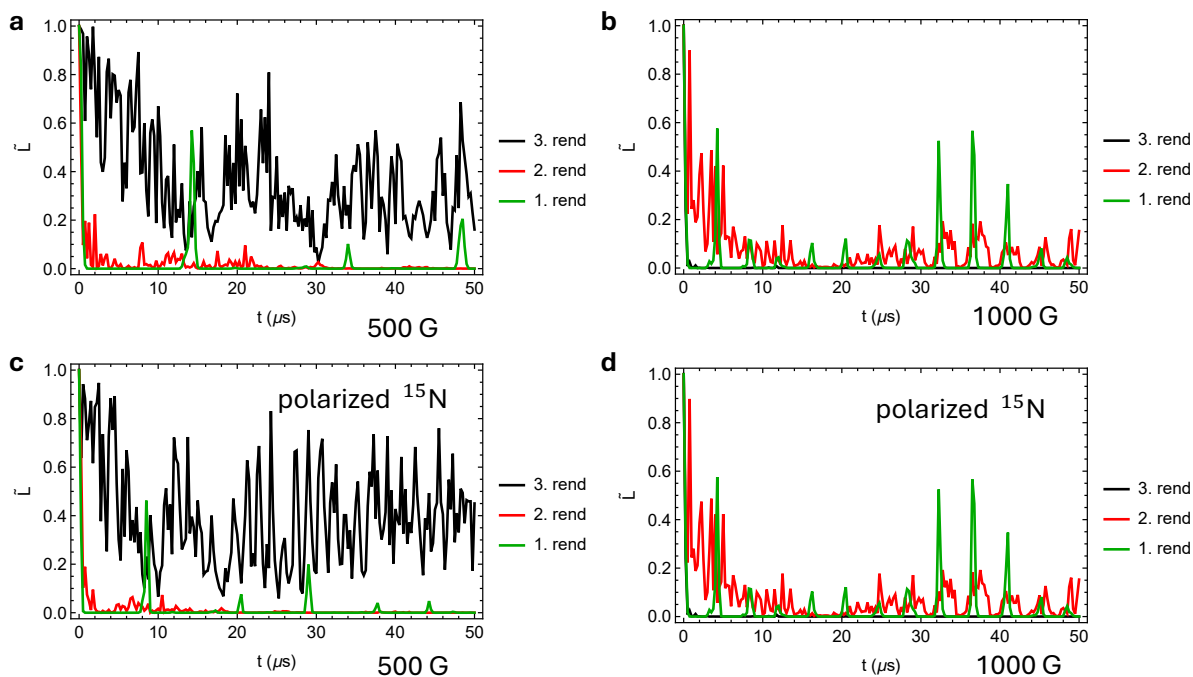
mag Zeeman-felhasadás sorra haladja meg a vakanciához egyre közelebbi héjakban található spinek nem pseudo-szekuláris hiperfinom konstansait, így elnyomva az ezen tagok által generált magspin-flip folyamatokat. A jelenség következtében az átmeneti tartományban a spinfürdő térben szeparálódik; a belső, erősen kölcsönható koherens magot alkotó néhány héjban néhány jól meghatározott frekvencián végbemennek spin-flip folyamatok, míg a külső, lecsatolódtott környezetben ezek elnyomottak. A külső magból eredő zaj az előző szekcióban tárgyalt dipól-dipól kölcsönhatás által indukált homonukleáris magspin flip-flop. Az átmeneti tartomány $B_z \approx 3500$ G felső határának magyarázata, hogy a bór magspin $|1/2\rangle$ és $|-1/2\rangle$ állapotainak Zeeman-felhasadása ekkor $3500 \text{ G} \cdot 0.0014 \frac{\text{MHz}}{\text{G}} \approx 3.5$ MHz, amely már meghaladja a vakanciához legközelebbi héjban lévő bór magspinek nem pseudo-szekuláris csatolásának erősségét is.

5.6. További szimulációs eredmények

5.6.1. Az elsőrendű beating frekvenciája

A 5.8 ábrán látható, hogy a teljes Hamilton-operátor figyelembe vételével adódó elsőrendű beating frekvenciája különbözik a pseudo-szekuláris közelítésben megfigyelhetőtől. Abban az esetben, ha az első-szomszéd nitrogén magspinek kezdőállapota polarizált, a pseudo-szekuláris közelítésben láthatóval azonos frekvencia jelenik meg, ld. 5.12c ábra. Az effektus nagyobb, ~ 1000 G mágneses terek mellett már eltűnik, amely a hiperfinom

kölcsönhatás által modulált effektív mag giromágneses faktorra utal [24].

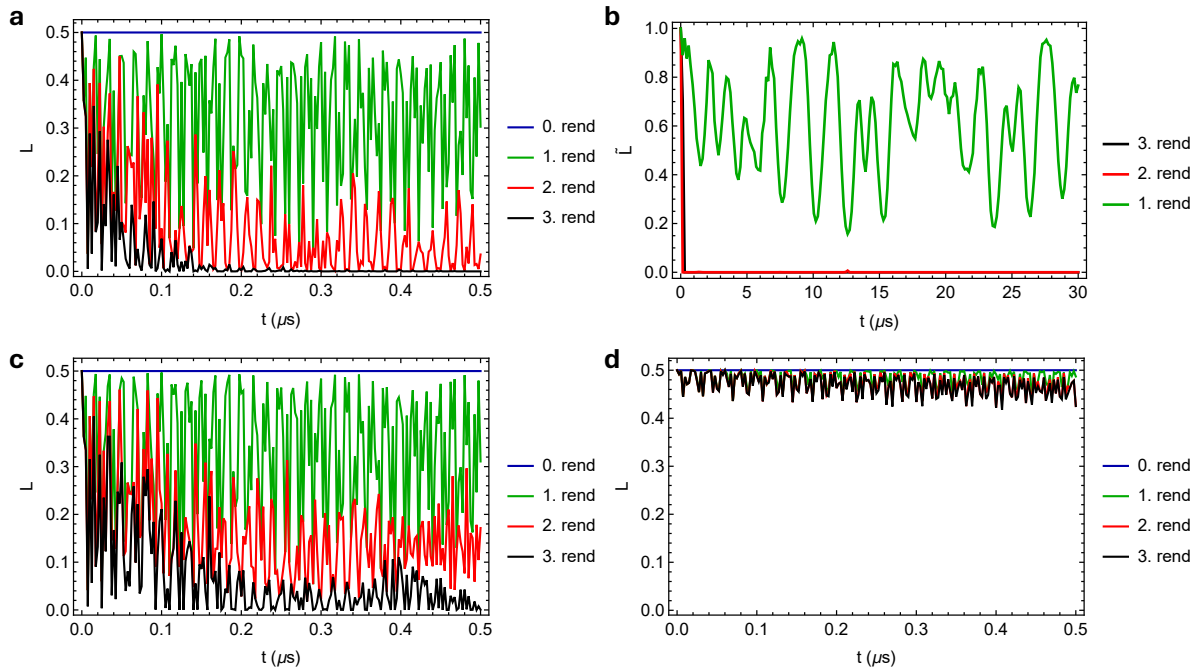


5.12. ábra. Az elsőrendű beating kevert és polarizált kezdőállapotú első-szomszéd nitrogének esetén.

5.6.2. Zérus mágneses tér környéke

A $B_z = 0$ G mellett adódó koherenciafüggvények és a különböző gCCE rendek kontribúciói az 5.13 ábrán láthatóak. Az első rend koherens oszcillációja mellett a jelentős másod- és harmadrendű, alternálva oszcilláló kontribúció hatására T_2 körülbelül negyedére esik a közepes mágneses tér tartományokban adódó koherenciaidőkhöz képest. A bór és a nitrogén magspinek elhanyagolásával adódó kontribúciók alapján leszűrhető, hogy a dekoherencia elsődleges forrásai a tisztán nitrogéneket tartalmazó másod- és harmadrendű klaszterek, másodlagos forrás pedig a bór-nitrogén magspineket csatoló effektív kölcsönhatásokból eredő dinamikus zaj. A tisztán bórt tartalmazó klaszterek dekoherencia-kontribúciója T_2 időskáláján nulla.

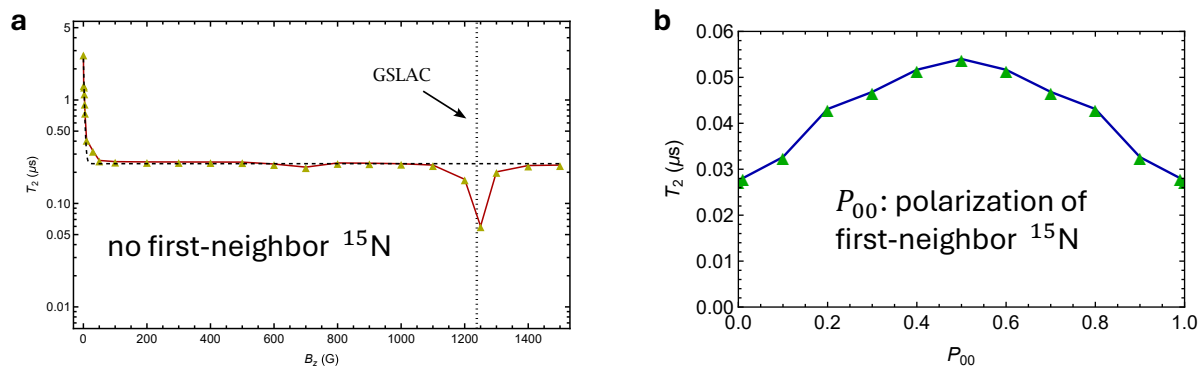
A 5.5 és 5.13 ábrákon megfigyelhető, hogy a $B_z = 0$ G mágneses térnél megjelenő órátmélet által létrehozott koherenciavédett tértartomány hatása nem érvényesül. A 5.14a ábrán az első szomszéd nitrogének elhanyagolásával adódó koherenciaidők láthatóak. T_2 ekkor $B_z = 0$ G körül jelentősen megnő, tehát érvényesül az elsőrendű mágneses zajokkal szembeni érzékenység kiküszöbölésének koherencianövelő hatása. Az így kapott koherenciaidő jól egyezik a pseudo-szekuláris közelítésben adódóval, ld. 5.5 ábra betétábráját. Ez alapján megállapítható, hogy ebben a tartományban a dekoherencia fő forrása a két vagy három első szomszéd nitrogén magspin nem pseudo-szekuláris hiperfinom csatolása



5.13. ábra. A gCCE rendek kontribúciói $B_z = 0$ G mellett (a) rövid és (b) hosszú időskálán. A (c) bór és (d) nitrogén magspinek elhanyagolásával adódó kontribúciók.

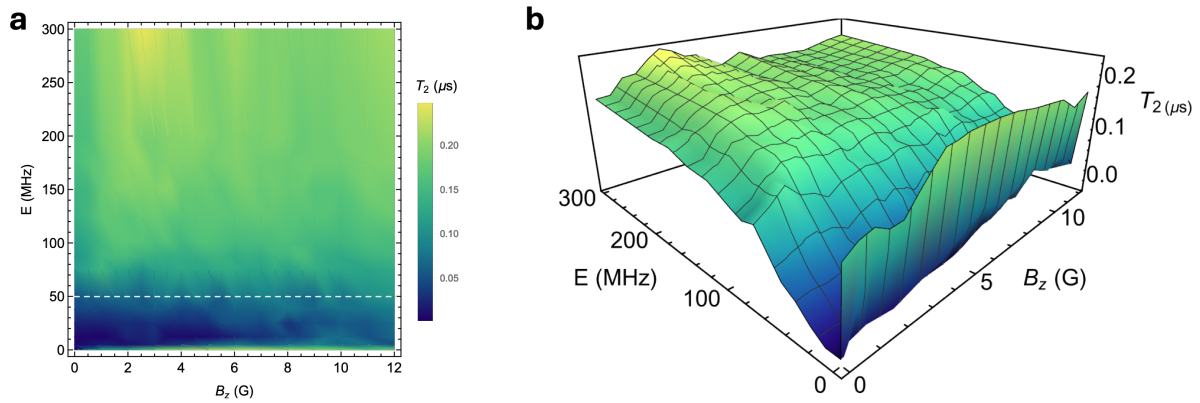
által okozott korrelált zaj.

A 5.14b ábrán T_2 az első szomszéd nitrogének kezdőállapotú polarizációjától való függése látható. A teljesen polarizált állapot esetén a koherenciaidő felére csökken. Ez alátámasztja a magspin-flip folyamatok dekoherenciában játszott szerepét, mivel ekkor a nagyobb kezdőállapotú populáció hatására a kubitállapotok keveredésekor végbemenő energiaszint-fluktuáció és ezáltal a kubit időfejlődés során összeszedett fázisfaktor is nagyobb.

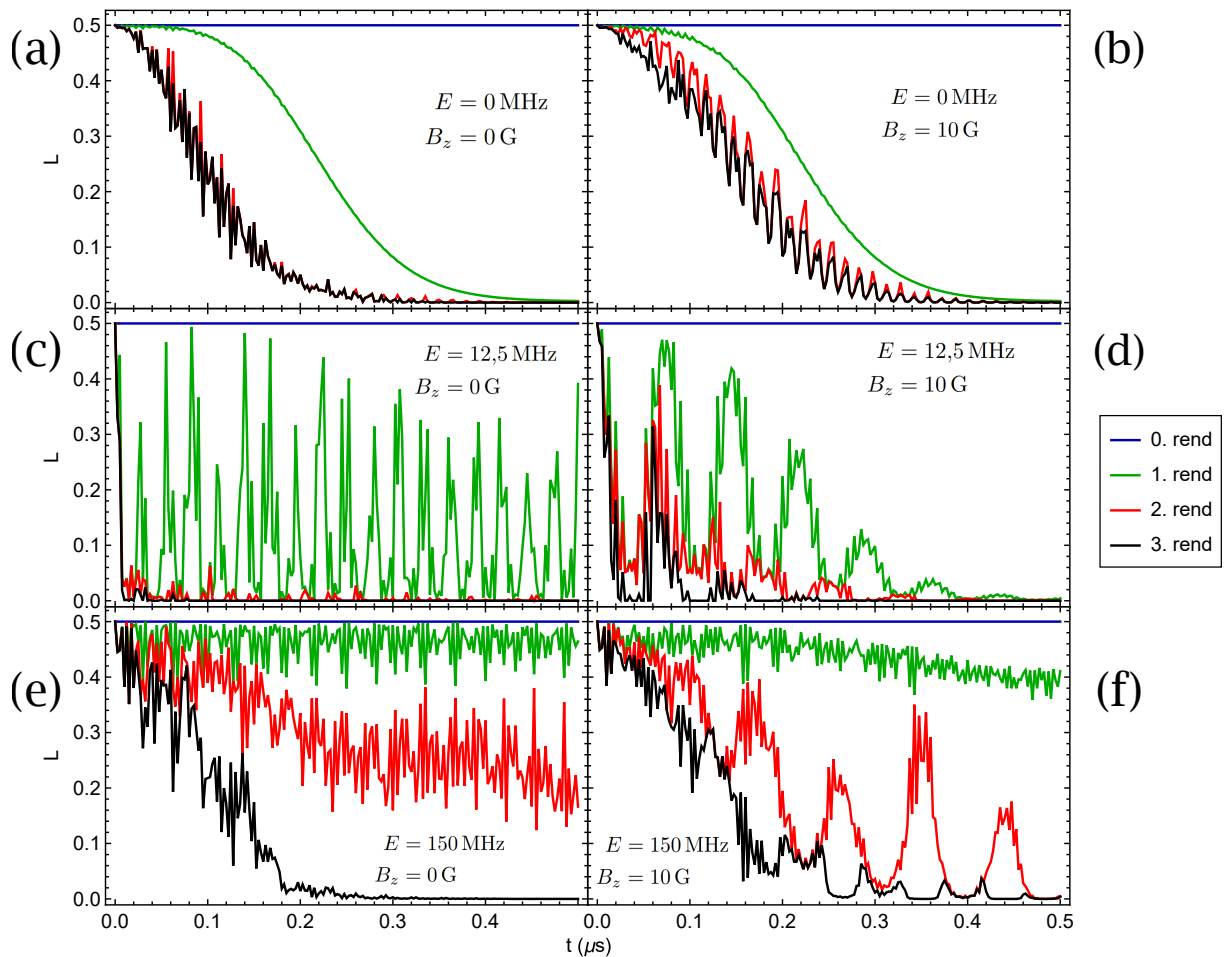


5.14. ábra. (a) Az első szomszéd nitrogén magspinek elhanyagolásával adódó T_2 koherenciaidők kis és közepes mágneses terek mellett. (b) T_2 függése az első-szomszéd magspinek kezdőállapotú polarizációjától.

5.6.3. A transzverzális zérus-tér felhasadás hatása



5.15. ábra. A T_2 koherenciaidő a transzverzális zérus-tér felhasadás függvényében kis mágneses terek mellett. A korábbi számolások során figyelembe vett értéket a fehér szaggatott vonal jelöli.



5.16. ábra. A gCCE rendek koherenciafüggvényei különböző E és kis B_z értékek mellett.

A 5.15 ábrán a Hahn echo koherenciaidő E transzverzális zérus-tér felhasadástól való függése látható kis mágneses terek mellett. Ahogy E nagysága meghaladja az első

szomszéd nitrogének nem pszeudo-szekuláris hiperfinom csatolásának ~ 100 MHz nagyságrendjét, a koherenciaidő $\sim 0.2 \mu\text{s}$ értéken szaturálódik. Ez alapján megállapítható, hogy kis mágneses terek mellett a $\hat{S}_+^2$, $\hat{S}_-^2$ operátorok által gerjesztett $|-1\rangle \leftrightarrow | +1\rangle$ dupla elektron spin-flip folyamatok is fontos szerepet játszanak. E növelésével az átmenetek a releváns időskálán szupresszálódnak. Egzakt $E = 0$ MHz esetén ezek a tagok nem szerepelnek a Hamilton-operátorban, tehát a $\Delta m_S = \pm 2$ átmenetek első rendben tiltottak. A dupla spin-flipek szerepét alátámasztja, hogy az 5.3 szekcióban alkalmazott kanonikus Hamiltoni sorfejtésben, amennyiben ezek nem elhanyagolhatóak, megjelenik az $\hat{S}_\pm^2 \hat{I}_\pm^{(1)} \hat{I}_\pm^{(2)}$ alakú operátorok összes lehetséges kombinációja. Az egzakt átmeneti ráta és az energiaszintek felhasadása közötti reláció pontos elemzéséhez és a különböző E értékek mellett adódó koherenciafüggvények alakjának megértéséhez (ld. 5.16 ábra) a Hamiltoni harmadrendű sorfejtésére is szükség van.

5.7. Diszkusszió és kitekintés

Kvalitatív és kvantitatív modelljeim részletes és szemléletes képet nyújtanak a hexagonális bór-nitrid sűrű spinfürdőjében fellépő komplex folyamatokról. A különböző paramétertartományokhoz hozzárendelhető domináns effektusok, kölcsönhatások ismerete, valamint az ezek erősségét és időfejlődését meghatározó relációk, egyenletek levezetése és megértése fontos alapot képezhet további elmélet- vagy alkalmazásorientált kutatások számára. Emellett a munkám során leírt effektív kölcsönhatásokra épülő modellek általánosan alkalmazhatóak tetszőleges ponthiba és spinfürdő esetére. A kvalitatívan más dinamikát mutató kontrollparaméter tartományok meghatározása, illetve az ezek közötti átmenetek leírása lehetővé teszi a VB^- vakancia tetszőleges alkalmazására optimalizált kontrollparaméter csoportok meghatározását. Annak megértése, hogy a különböző kölcsönhatási paraméterek értéke, valamint a spinfürdő pontos összetétele mely tartományokban játszik fontos szerepet, szintén létfontosságú lehet az ipari alkalmazásra gyártott, VB^- vakancián alapuló technológiák tervezésénél.

Munkám során számos lényeges elméleti kérdés felmerült, melyek megválaszolásához eredményeim jó alapot adnak. A kanonikus Hamiltoni sorfejtés harmadik rendjében megjelenő effektív kölcsönhatások leírásával lehetséges lesz a kísérleti szempontból igen releváns, kis mágneses tér tartományban és nagyobb transzverzális zérus-tér felhasadás értékek mellett megjelenő koherenciadinamika teljeskörű megértése. Az erős hiperfinom csatolás mag giromágneses faktorra gyakorolt hatásának leírásával lehetséges lesz az elsőrendű beating frekvenciájának pontos rekonstrukciója. Emellett a VB^- vakancia koherenciájának egzakt elméleti leírása modellalkotást is igényel; az általánosított klaszterkorrelációs sorfejtésben alkalmazott szorzatalak elsőelvű levezetése fontos a szimulációs

eredmények hitelesítéséhez az olyan rendkívül szenzitív tartományokban, mint például az alapállapotú antikereszteződés és környéke. Az általános I spinkvantumszámú és kvadrupól felhasadású magspinre alkalmazható és a hexagonális bór-nitrid esetében is érvényes közelítéseket alkalmazó ESEEM modulációs képlet levezetésével pontosan modellezhetővé válik a szimulált és mért koherenciaidő. Egy ilyen képlet a koherenciaidőt tetszőleges fürdőkompozíciók vagy más hexagonális bór-nitridben előforduló ponthibák esetében is jósolhatóvá tenné.

6. fejezet

A TDK dolgozat összegzése és a kutatómunka folytatása

TDK munkám során először megértettem, elsajátítottam a ponthibák és az ezeket befogadó anyagok lényeges tulajdonságait meghatározó fizikát, a spin-spin kölcsönhatásokat leíró Hamilton-operátor elméletét, a koherencia fogalmát és a dekoherencia folyamatát, valamint a komplex spinrendszerek numerikus szimulációját lehetővé tevő gCCE módszert. Ezután a módszert implementáló kód fejlesztésével a szimulációk futási idejének jelentős csökkenését értem el, amely a jelenségek gyors és sokoldalú, részletes vizsgálatát tette lehetővé. Ennek kihasználásával a két legkutatottabb ponthibán végeztem átfogó és részletes koherenciadinamikai elemzést, melynek eredményeképp széles paramétertartományokra érvényes, a megfigyelhető, jelentős effektusokat jól magyarázó, önkonzisztens koherenciadinamikai modelleket alkottam.

A jelen eredményeket meghaladó közvetlen célkitűzéseken túl a dolgozatban részletezett módszereket általánosítva és más rendszerekre alkalmazva a legújabb, a kvantumtelekommunikáció vagy a kvantum rezervoár számítás (quantum reservoir computing, QRC) területén áttörő jelentőségűnek ígérkező komplex szerkezetű ponthibák koherenciadinamikai elemzését is el fogom végezni. Emellett később a Hamilton-operátor és a koherenciaidő általánosításával egyéb bonyolultabb rendszerek, például más ponthibákat, elektron spinet tartalmazó spinfürdő vagy a rácsban mozgó elektron koherenciájának vizsgálatát is tervezem. Az itt gyűjtött eredmények később új, feltörekvő tudományterületek olyan egzotikus problémáinak vizsgálatát is lehetővé teszik, mint például a természetben is megfigyelhető koherens kvantumbiológiai effektusok. Ma a leginkább kutatott ilyen jelenség a vörösbegy tájékozódását lehetővé tevő, annak szemében található dőlésszög iránytű (inclination compass), mely a madár szemében fény hatására lejátszódó kémiai reakcióban keletkező szabad gyök spinjének koherens dinamikáján alapul [45].

A. függelék

Saját kontribúciók

A 3.3.1 szekcióban a problémakör legkorszerűbb szimulációs módszerének fizikai értelmezésével kapcsolatos saját gondolataimat részletezem; a különböző klaszterek Hilbert-tereibe ágyazott elektron spin objektumok modelljéből levezetem az általánosított klaszterkorrelációs sorfejtés szorzatalakját, valamint a modell alapján meghatározom a sorfejtés adott rendjében megjelenő lehetséges sokspin korrelációkat.

A 3.3.2 szekcióban módszerfejlesztési és programozási kontribúciómát mutatom be, amely kiterjedt a futási idő és a tárhely felhasználás optimalizálására.

A 4 és 5 fejezetekben tisztán a kutatómunkám eredményeit közlöm.

A 4 fejezetben felületközei NV^- centrumok kis mágneses terek mellett adódó T_2^* koherenciaidejének témakörében elért elméleti és numerikus eredményeimet ismertetem. A rendszer, különböző paraméterek mellett megfigyelhető, koherenciadinamikájával kapcsolatos állítások kizárólag saját ötletek alapján futtatott szimulációk, illetve ezek elemzése alapján készített elméleti modellek eredményei. A Hamiltoni kanonikus transzformációjának módszerét szintén önálló irodalomkutatás során fedeztem fel, majd kismértékű módosítást bevezetve alkalmaztam a kérdéses rendszerre. A 4 fejezetben ismertetett tanulmány a HUN-REN Wigner Fizikai Kutatóintézetben működő, Gali Ádám által vezetett Félvezető Nanoszerkezetek kutatócsoporttal történő együttműködés keretében valósult meg. A számolásaimhoz használt Hamilton-operátorban szereplő, valós fizikai rendszereket leíró kölcsönhatási paramétereket a kutatócsoport kísérleti és elméleti kutatóinak eredményei alapján határoztam meg.

A 5 fejezetben a VB^- vakancia széles mágneses tér tartományon megfigyelhető T_2 koherenciaidejéhez kapcsolódó eredményeimet mutatom be. A dekoherencia domináns forrásaként azonosított folyamatok elméleti modellezése, leírása szintén tisztán saját eredményem, valamint az ESEEM moduláció megfelelő egyenleteit, illetve a pseudo-spin modellt is önálló irodalomkutatás során sajátítottam el.

Irodalomjegyzék

- [1] C.L. Degen, F. Reinhard, and P. Cappellaro. Quantum sensing. *Reviews of Modern Physics*, 89(3):035002, July 2017. Publisher: American Physical Society.
- [2] 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.
- [3] David D. Awschalom, Ronald Hanson, Jörg Wrachtrup, and Brian B. Zhou. Quantum technologies with optically interfaced solid-state spins. *Nature Photonics*, 12(9):516–527, September 2018. Number: 9 Publisher: Nature Publishing Group.
- [4] Gang-Qin Liu, Xi Feng, Ning Wang, Quan Li, and Ren-Bao Liu. Coherent quantum control of nitrogen-vacancy center spins near 1000 kelvin. *Nature Communications*, 10(1):1–8, March 2019. Number: 1 Publisher: Nature Publishing Group.
- [5] Jing-Wei Fan, Shuai-Wei Guo, Chao Lin, Ning Wang, Gang-Qin Liu, Quan Li, and Ren-Bao Liu. Quantum Coherence Control at Temperatures up to 1400 K. *Nano Letters*, November 2024. Publisher: American Chemical Society.
- [6] 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):1–45, 2013. The nitrogen-vacancy colour centre in diamond.
- [7] D. Simin, V.A. Soltamov, A.V. Poshakinskiy, A.N. Anisimov, R.A. Babunts, D.O. Tolmachev, E.N. Mokhov, M. Trupke, S.A. Tarasenko, A. Sperlich, P.G. Baranov, V. Dyakonov, and G.V. Astakhov. All-Optical dc Nanotesla Magnetometry Using Silicon Vacancy Fine Structure in Isotopically Purified Silicon Carbide. *Physical Review X*, 6(3):031014, July 2016.
- [8] 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.

- [9] J. R. Maze, A. Gali, E. Togan, Y. Chu, A. Trifonov, E. Kaxiras, and M. D. Lukin. Group theory of defects: nitrogen-vacancy center in diamond. *e-print arXiv*., quant-ph/1010.1338, 2010.
- [10] 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.
- [11] Viktor Ivády, Tamás Simon, Jeronimo R. Maze, I. A. Abrikosov, and Adam Gali. Pressure and temperature dependence of the zero-field splitting in the ground state of nv centers in diamond: A first-principles study. *Phys. Rev. B*, 90:235205, Dec 2014.
- [12] David M. Irber, Filippo Poggiali, Feiyang Kong, Matthew Pelliccione, Scott O'Donnell, David Hopper, Amit Finkler, Andrea Bondi, Mathias Chipaux, and Patrick Maletinsky. Robust all-optical single-shot readout of nitrogen-vacancy centers in diamond. *Nature Communications*, 12:532, 2021.
- [13] J H N Loubser and J A van Wyk. Electron spin resonance in the study of diamond. *Reports on Progress in Physics*, 41(8):1201, aug 1978.
- [14] M.H. Abobeih, J. Randall, C.E. Bradley, H.P. Bartling, M.A. Bakker, M.J. Degen, M. Markham, D.J. Twitchen, and T.H. Taminiau. Atomic-scale imaging of a 27-nuclear-spin cluster using a quantum sensor. *Nature*, 576:411–415, 2019.
- [15] 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.
- [16] Erika Janitz, Konstantin Herb, Laura A. Völker, William S. Huxter, Christian L. Degen, and John M. Abendroth. Diamond surface engineering for molecular sensing with nitrogen—vacancy centers. *J. Mater. Chem. C*, 10:13533–13569, 2022.
- [17] Jeffrey Neethirajan, Toni Hache, Domenico Paone, Dinesh Pinto, Andrej Denisenko, Rainer Stöhr, Péter Udvarhelyi, Anton Pershin, Adam Gali, Klaus Kern, and Aparajita Singha. Controlled surface modification to revive shallow nv – centers. *Nano Letters*, 23, 03 2023.
- [18] Ning Wang, Chu-Feng Liu, Jing-Wei Fan, Xi Feng, Weng-Hang Leong, Amit Finkler, Andrej Denisenko, Jörg Wrachtrup, Quan Li, and Ren-Bao Liu. Zero-field magnetometry using hyperfine-biased nitrogen-vacancy centers near diamond surfaces. *Phys. Rev. Res.*, 4:013098, Feb 2022.

- [19] 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.
- [20] 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.
- [21] A. Gottscholl, M. Kianinia, V. Soltamov, S. Orlinski, D. J. Christle, C. Kasper, A. Sperlich, M. Toth, I. Aharonovich, and V. Dyakonov. Initialization and read-out of intrinsic spin defects in a van der waals crystal at room temperature. *Nature Materials*, 19:540–545, 2020.
- [22] Hosung Seo, Viktor Ivády, and Yuan Ping. First-principles computational methods for quantum defects in two-dimensional materials: A perspective. *Applied Physics Letters*, 125(14):140501, 2024.
- [23] 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.
- [24] R. Gong, X. Du, E. Janzen, et al. Isotope engineering for spin defects in van der waals materials. *Nature Communications*, 15:104, 2024.
- [25] Mykyta Onizhuk, Yu-Xin Wang, Jonah Nagura, Aashish A. Clerk, and Giulia Galli. Understanding central spin decoherence due to interacting dissipative spin baths. *Phys. Rev. Lett.*, 132:250401, Jun 2024.
- [26] Mohammad Mostafanejad. Basics of the spin hamiltonian formalism. *International Journal of Quantum Chemistry*, 114:1495–1512, 2014.
- [27] 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.
- [28] István Takács and Viktor Ivády. Accurate hyperfine tensors for solid state quantum applications: case of the nv center in diamond. *Communications Physics*, 7:178, 2024.
- [29] Zhi-Hui Wang, G. de Lange, D. Ristè, R. Hanson, and V. V. Dobrovitski. Comparison of dynamical decoupling protocols for a nitrogen-vacancy center in diamond. *Phys. Rev. B*, 85:155204, Apr 2012.

- [30] Wen Yang and Ren-Bao Liu. Quantum many-body theory of qubit decoherence in a finite-size spin bath. *Physical Review B*, 78(8):085315, August 2008. Publisher: American Physical Society.
- [31] Nan Zhao, Sai-Wah Ho, and Ren-Bao Liu. Decoherence and dynamical decoupling control of nitrogen vacancy center electron spins in nuclear spin baths. *Phys. Rev. B*, 85:115303, Mar 2012.
- [32] Anton Pershin, András Tárkányi, Vladimir Verkhovlyuk, Viktor Ivády, and Adam Gali. A Coherence-Protection Scheme for Quantum Sensors Based on Ultra-Shallow Single Nitrogen-Vacancy Centers in Diamond. *arXiv:2501.00180*, 2025.
- [33] S. G. Carter, Ö. O. Soykal, Pratibha Dev, Sophia E. Economou, and E. R. Glaser. Spin coherence and echo modulation of the silicon vacancy in $4h$ – SiC at room temperature. *Phys. Rev. B*, 92:161202, Oct 2015.
- [34] Łukasz Cywiński, Wayne M. Witzel, and S. Das Sarma. Pure quantum dephasing of a solid-state electron spin qubit in a large nuclear spin bath coupled by long-range hyperfine-mediated interactions. *Phys. Rev. B*, 79:245314, Jun 2009.
- [35] Francesco Casola, Toeno van der Sar, and Amir Yacoby. Probing condensed matter physics with magnetometry based on nitrogen-vacancy centres in diamond. *Nature Reviews Materials*, 3:17088, 2018.
- [36] András Tárkányi and Viktor Ivády. Decoherence of the VB^- center in monoisotopic hexagonal boron nitride at zero to large magnetic fields. *In preparation*, 2025.
- [37] W. Liu, V. Ivády, Z. P. Li, et al. Coherent dynamics of multi-spin v center in hexagonal boron nitride. *Nature Communications*, 13:5713, 2022.
- [38] Fadis F. Murzakhanov, Georgy Vladimirovich Mamin, Sergei Borisovich Orlinskii, Uwe Gerstmann, Wolf Gero Schmidt, Timur Biktagirov, Igor Aharonovich, Andreas Gottscholl, Andreas Sperlich, Vladimir Dyakonov, and Victor A. Soltamov. Electron–nuclear coherent coupling and nuclear spin readout through optically polarized vb^- spin states in hbn. *Nano Letters*, 22(7):2718–2724, 2022. PMID: 35357842.
- [39] A. Haykal, R. Tanos, N. Minotto, et al. Decoherence of v_B spin defects in monoisotopic hexagonal boron nitride. *Nature Communications*, 13:4347, 2022.
- [40] J. Lee, H. Park, and H. Seo. First-principles theory of extending the spin qubit coherence time in hexagonal boron nitride. *npj 2D Materials and Applications*, 6:60, 2022.

- [41] Li-Ping Yang, Christian Burk, Matthias Widmann, Sang-Yun Lee, Jörg Wrachtrup, and Nan Zhao. Electron spin decoherence in silicon carbide nuclear spin bath. *Phys. Rev. B*, 90:241203, Dec 2014.
- [42] A.A Shubin and S.A Dikanov. The influence of nuclear quadrupole interactions upon electron spin-echo modulation induced by weak hyperfine interactions. *Journal of Magnetic Resonance (1969)*, 52(1):1–12, 1983.
- [43] M. Ye, H. Seo, and G. Galli. Spin coherence in two-dimensional materials. *npj Computational Materials*, 5:44, 2019.
- [44] C. P. Slichter. *Principles of Magnetic Resonance*, volume 1 of *Springer Series in Solid-State Sciences*. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 3rd edition, 1996.
- [45] Wolfgang Wiltschko and Roswitha Wiltschko. Magnetic compass of european robins. *Science*, 176(4030):62–64, 1972.