

A VB(-) spinkvantumbit elektron- és magspinállapotainak gerjesztései

TDK Dolgozat

Írta:

Adalbert István Tibiássy

Fizikus MSc. 2. évfolyam

Témavezető:

Iványi Viktor

ELTE TTK, Komplex Rendszerek Fizikája Tanszék



Eötvös Loránd Tudományegyetem

2025. január 8.

Kivonat

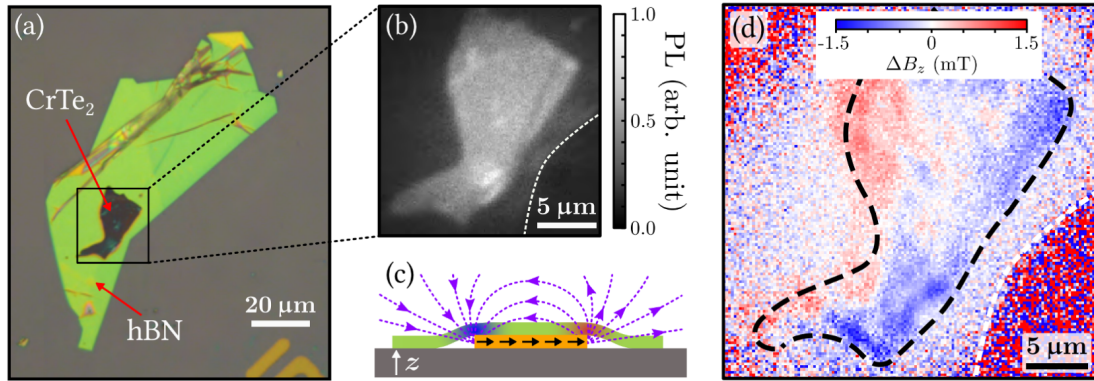
Az elmúlt években egyre világosabbá vált, hogy a kvantumszámítástechnika és a kvantumos érzékelés jelentős szerepet fog játszani a jövő tudományos fejlődésében. Kutatásomban a félvezetőkben megvalósuló ponthibákon alapuló kvantumbitek egyikét vizsgáltam. A rendszer a hexagonális szerkezetű bór-nitridben található negatív töltésű bór-vakancia centrum volt. A bór-vakancia az öt körülvevő nitrogén magspinekkal erősen csatolt spinrendszert alkot, amely különösen érzékeny a mikrohullámú gerjesztésre. Erős mikrohullámú tér hatására számos jelenség figyelhető meg, amelyek közül dolgozatomban a többfotonos elnyeléseket és a magspinek rezonanciáját vizsgálom részletesebben. Mivel a gerjesztés időfüggő térként jelenik meg, az időfejlődés egyenletei analitikusan nem oldhatók meg; ezért N-edrendű perturbációszámítást és numerikus szimulációkat alkalmaztam a jelenségek leírására. A magspinek rezonáns gerjesztésével kapcsolatban megjegyzendő, hogy azok is csatolódnak a mágneses térhez, így magspin-állapotok közötti átmenetek is megfigyelhetők. Kiderül, hogy a magspin-állapotok között több átmenet valósul meg, amelyeket a hiperfinom kölcsönhatás erőteljesen befolyásol a keveredésen keresztül. Dolgozatomban arra kerestem választ, hogy a magspinek jelenléte és gerjesztése milyen módon hat az elektronspin átmeneteire és esetleges többfotonos elnyeléseire. Eredményeimet az angliai Exeteri Egyetem kísérleti adataival is összevetettem, és jóslatokat fogalmaztam meg további mérések várható kimeneteleire.

Tartalomjegyzék

1. Bevezetés	3
2. A fizikai rendszer	5
2.1. Szerkezet	5
2.2. Optikai kiolvasás és ODMR spektrum	8
2.3. Támogató kísérleti eredmények	8
2.4. A rendszer Hamilton-operátora	8
3. A VB(-) centrum spin energia szintjeinek meghatározása	14
3.1. A statikus mágneses tér hatása az energiaszintek felhasadására	14
3.2. A magspinek hatása az energiaszintek felhasadására	14
4. Szimulációs és analitikus eredmények a ^{15}N esetén	18
4.1. Keveredés hatása az energiakülönbségekre	18
4.2. Változó mágneses térből származó szimulációs eredmények	23
5. Szimulációs és analitikus eredmények a ^{14}N esetében	28
5.1. Szimulációs eredmények	28
5.2. Nem degenerált, időfüggő perturbációs számítás	28
5.2.1. Elsőrendű átmenet	31
5.2.2. Másodrendű átmenet	32
5.2.3. Harmadrendű átmenet	34
5.2.4. n -ed rendű átmenet	34
5.3. Elsőrendű átmenet ω frekvenciájú gerjesztés jelenlétében	34
5.3.1. Többrendű átmenetek ω frekvenciájú gerjesztés jelenlétében	35
5.4. Mátrixelem számítás <i>Mathematica</i> -val	35
5.5. A hiperfinom állandóktól való függés	38
5.5.1. A sajátértékek változása a hiperfinom kölcsönhatás következtében	38
5.5.2. Hiperfinom okozta keveredése az állapotoknak	39
5.5.3. Rezonanciagörbék reprodukálása	43
5.5.4. Magasabb rendű görbék	49
6. Összefoglalás	53
7. Saját eredmények	54
A. Nem degenerált, időfüggetlen perturbációs számítás	56

1. Bevezetés

Az alacsony dimenziós kondenzált anyagok fizikája egy gyorsan bővülő kutatási terület, amely napjainkban különösen nagy figyelmet kap. Ezen a területen kiemelkedő szerepük van az úgynevezett van der Waals heterostrukturáknak,[1] amelyek különféle tulajdonságú alacsony dimenziós anyagok rétegeiből épülnek fel. A nanométeres méretű struktúrák tanulmányozása és az ezekben tapasztalható jelenségek vizsgálata új mérőeszközök fejlesztését kívánja meg, amelyek nagy térbeli felbontással rendelkeznek.[2] A kvantumbitek, amelyeket például a félvezetők szerkezeti hibái - mint az NV centrumok a gyémántban[3] - valósítanak meg, kiemelkedő lehetőségeket mutatnak a nagy felbontású kvantumérzékelésben.[4] A legújabb kutatások fókuszában azonban a rétegelt van der Waals félvezetőkben létrehozott ponthiba kvantumbitek-re helyeződött.[2] A hexagonális bór-nitridben (hBN) megvalósítható negatív töltésű bór-vakancia ponthiba (VB(-) centrum) jelenleg az egyetlen ismert atomi struktúra, amely spin kvantumbitként működik kétdimenziós anyagban.[5, 6, 7] A VB(-) centrumokat tartalmazó bór-nitrid anyag lehetőséget nyújt vékony érzékelő fóliák készítésére, amelyek akár van der Waals heterostrukturákban is integrálhatók. Egy ilyen alkalmazást szemléltet az 1.1 ábra, ahol egy ferromágneses CrTe_2 vékonyréteg mágneses terét mérték meg a ráterített hBN vékonyréteg és a benne található VB(-) centrumok segítségével.[8]



1.1. ábra. Hexagonális bór-nitridben létrehozott bór-vakancia által megvalósított érzékelőfóliás mérés. (a) Egy CrTe_2 -pehely optikai képe (sötét régió), amelyet lefed egy hBN pehely (zöld). (b) Fotolumineszcencia kép a CrTe_2 pehelyről. (c) Vázlat az CrTe_2 szórt mágneses térről (lila vonalak). A hBN-ben található kvantumérzékelők mérik az mágneses tér vetületét, amint azt a piros és kék árnyékolás ábrázolja. (d) A CrTe_2 pehely mágneses tértérképe (ΔB_z).[8]

A kvantumos jelenségeken alapuló érzékelésnél kiemelt jelentőséggel bír a hasznosított kvantumrendszer koherens viselkedése. Esetünkben a bór-vakancia elektronspinje adja a kvantumbitek állapotát, amely érzékenyen reagál a mágneses tér változásaira. Azonban az elektronspint nemcsak a mérendő tér befolyásolja, hanem számos egyéb hatás is, például a rácsszerkezet magspinjei, amelyek a spin-spin hiperfinom kölcsönhatás révén csökkentik az elektronspin koherenciaidejét. Az elmúlt években több mérés is készült a VB(-) centrum koherenciaidejéről, melyek ellentmondó eredményeket hoztak. Bizonyos elméleti számítások és kísérletek arra utalnak, hogy a koherencia idő (T_2) legfeljebb 80 ns lehet[9], ugyanakkor más fontos mérések akár 10 μ s-t meghaladó koherenciaidőt is mutattak[5]. Mivel a VB(-) centrum koherencia jellemzői közvetlen hatással vannak a leírt alkalmazásokra, az irodalomban tapasztalt ellentmondások feloldása és a valós koherencia idő meghatározása fontos, megoldatlan kérdés ezen a kutatási területen. Ez idáig a magspinek szerepe a koherens folyamatokban nem megértett.

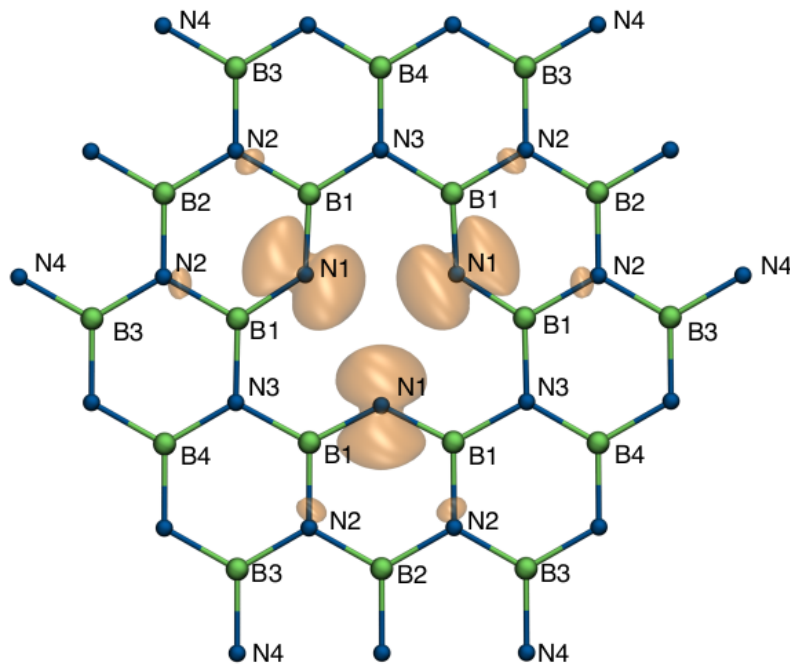
A tudományos diákköri munkám egy különösen fontos tudományos kérdés megválaszolására koncentrált, hogy vajon felléphetnek-e többspines jelenségek a VB(-) centrum koherens gerjesztésekor? Ahhoz, hogy ezt meg tudjam válaszolni, a VB(-) centrum két típusán végeztem kutatásokat. Az első esetben a vizsgált rendszerben a triplett elektronspin körül elhelyezkedő három atommag ^{15}N izotóp volt, amelyek spinje $S = \frac{1}{2}$, így az általuk alkotott Hilbert tér 24 dimenziós. A második esetben a szomszédos izotópok 14-es nitrogének voltak, amelyek spinje $S=1$, tehát a létrejött Hilbert-tér 81 dimenziós. A rendszernek mind a két típusa esetében különböző frekvenciájú és amplitúdójú mikrohullámú gerjesztés hatására megfigyelhető jelenségeket vizsgáltam.

Az elméleti munkámat kísérleti eredmények támasztják alá, amelyeket a ^{15}N esetében az Exeteri Egyetem kutatói, míg a ^{14}N esetében pedig a Montpellier-i Egyetem kísérleti kutatócsoport munkatársai mértek ki.

2. A fizikai rendszer

2.1. Szerkezet

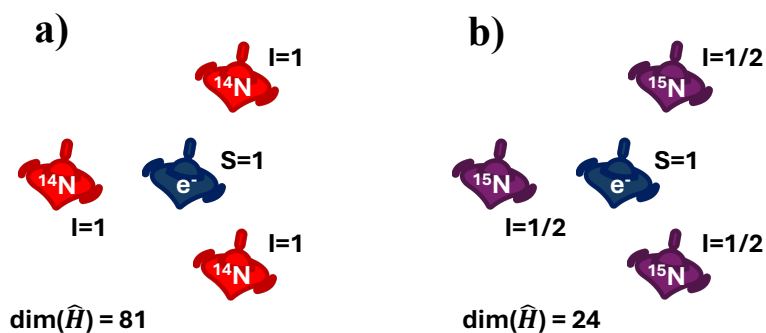
A grafit atomi szerkezetének feltárása után jelentős érdeklődés irányult a réteges kristályok kutatására. A hexagonális bór-nitrid (hBN) [10], mint egy lamináris van der Waals-anyag, a rétegek szétválasztásával (angolul exfoliation) lehetővé teszi az alacsony dimenziós félvezető jelenségek megfigyelését. Az utóbbi években azonosított negatív töltésű bór-vakancia centrum különleges rendszert alkot, amely szobahőmérsékleten spinkvantumbitként is használható hBN-ben. A VB(-) centrum egyik különlegessége, hogy a rácsot alkotó bór- és nitrogénatomok mindegyikének $S=0$ -tól különböző spinje van, ami jelentősen hat a bór-vakancia energiaszintjeinek finom és hiperfinom szerkezetére. A 2.1. ábrán látható a rendszer szerkezetének se-



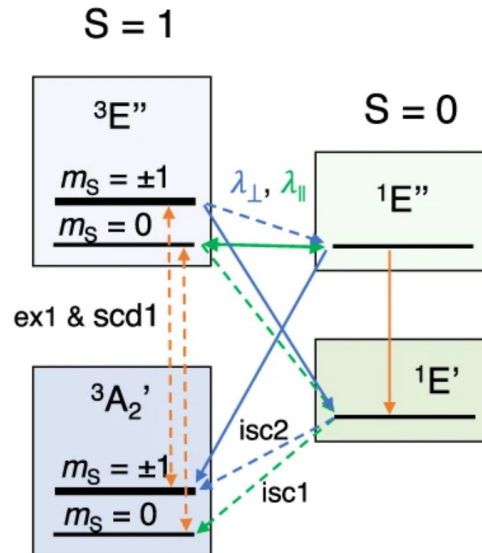
2.1. ábra. A vizsgált VB(-) centrum spinsűrűsége. A kutatás során az N1-gyel jelölt első szomszéd nitrogén magspineket vettük figyelembe (amely lehet $S = 1$ spinű triplet ^{14}N és $S = 1/2$ ^{15}N magspin is). Az első szomszédokon túli szekunder magspinek járulékát nem vettük figyelembe, azonban természetesen további effektusok léphetnek fel, ha a további atommagokat nem hanyagoljuk el. Az átlátszó narancs-sárga elektronfelhő a bór-vakancia spinsűrűségét ábrázolja [6].

matikus vázlata. Egy bór atom eltávolítását követően három nitrogén lógó kötés marad hátra, amelyek új elektron állapotokat hoznak létre a hexagonális bór-nitrid

tiltott sávjában. A magas D_{3h} szimmetria miatt degenerált elektron állapotok is kialakulnak, amelyek a rendszer negatív töltésű állapotában épp úgy töltődnek be, hogy két elektron lesz majd azonos spinnel. A VB(-) centrum alapállapota tehát spin tripllett ($S = 1$). Az ehhez az állapothoz tartozó spinsűrűség (a részlegesen betöltött elektron állapotok hullámfüggvényeinek négyzetösszege) látható a 2.1. ábrán. Megfigyelhető, hogy a spinsűrűség a vakancia-centrumhoz legközelebb lévő három nitrogén atommagon lokalizálódik (N1 magok a 2.1. ábrán) [6]. Az alkalmazott modellben ezeknek a magspineknek az elektronspinnel vett interakciójára szorítjuk le a megfigyelt kölcsönhatásokat. Alapvetően a nitrogén 14-es izotópjának természetes előfordulási aránya 99,63%, ami azt jelenti, hogy a rácspontokban is ugyanilyen valószínűséggel jelenik meg. Ugyanakkor a kutatásaim során a vizsgált rendszer egyik típusában a környező magspinek mindegyike nitrogén-15 volt, amely a szimulációk számára nem jelent nehézséget, viszont a kísérleti mérések szempontjából jelentős nehézséget okoz tiszta nitrogén-15 bór-nitridet létrehozni [11] [12]. Az eljárás alapvetően ^{15}N -gel dúsított ammónium-kloriddal való kémiai reakció felhasználásával történik. A reagensek nátrium-borohidrid és a különleges ammónium-klorid. A reakció magas nyomáson megy végbe, és kb. 30 óra után közel tiszta hB^{15}N jön létre. Ugyan ez az eljárás hosszadalmas, az egyik együttműködő csoportunk hB^{15}N -nel végzett méréseket.



2.2. ábra. A vizsgált rendszer két különböző típusa. Az a) képen látható, az az eset, amikor a bór-vakanciát a három ^{14}N izotóp veszi körbe - amelyek spinje $I = 1$, míg a b) képen pedig az látható, amikor ^{15}N atommagok vannak a centrum körül - $I = 1/2$ magpsinnel. A Hilbert-terek dimenziói tehát az a) képen feltüntetett rendszer esetében nyolcvanegy, illetve a b) ábrán meg huszonnégy.



2.3. ábra. A bór-vakanciacentrumban kialakult állapotok [6] [9]. Alapvetően a bór atom eltávolításának következtében visszamaradó elektronokból kialakul egy szingulett és egy triplett altér (megemlítendő, hogy a magspinek által okozott felhasadást ekkor még nem vesszük figyelembe), és a tripletten belül az $^3E''$ kétszeresen degenerált. Az ex1 és az scd1 átmenetek a gerjesztési és spin-megtartó lecsengést jelölik. Tekintve, hogy az $^3E''$ és $^3A_2'$ állapotoknak az l kvantumszáma különböző, ezért a perdületmegmaradás láthatóan teljesül, ha az elnyelt (ex1 során), avagy kibocsájtott (scd1 során) fotont is figyelembe vesszük. Látható, hogy azonos m_S értékekhez között valósul meg az átmenet, tehát a spinben nem történik változás. Ugyanakkor megjelenik a szingulett és triplett állapotok közötti átmenet is, isc1-gyel és isc2-vel jelölve. Ezek igen fontosak abból a szempontból, hogy a spineket hogyan lehet polarizálni, illetve hogy a kiolvasás hogyan működik. Alapvetően ha az MW gerjesztés olyan frekvencián történik, amely eltalálja a spinállapotok közötti átmenetet, tehát más m_S állapotban lesz a rendszer, és így a spin szelektív átmeneteket meg tudjuk egymástól különböztetni, mivel azoknak egymáshoz képest más az intenzitásuk. Tehát végsősoron a megfigyelhető intenzitás változik az MW hatására.

2.2. Optikai kiolvásás és ODMR spektrum

Az optikai gerjesztés már több évtizede használt módszer a félvezető szerkezetek ponthibáinak tanulmányozása során. Alapja ezen eljárásoknak, hogy impulzus momentum és energia transzfer történik két ponthiba elektronszint között egy cirkulárisan polarizált foton által (a lineárisan polarizált fotonok is felírhatók cirkuláris fotonok lineárkombinációjaként, ebből következően lineárisan poláros fénnnyel is működik a modell), amely átadja a perdületét és energiáját a félvezető rendszernek [13] [14] [15].

Félvezető spin kvantumbitek kiolvása alapvetően úgy valósul meg, hogy az optikai gerjesztés mellett egy mikrohullámú gerjesztést is rákapcsolunk a rendszerre, mivel ezen energiaskálán mozognak a spinállapotok közötti felhasadások. A mikrohullámú gerjesztés rezonáns esetben átmenetet okoz a különböző m_S számokhoz tartozó állapotok között. Spinfüggő legerjesztődési folyamatoknak köszönhetően a különböző m_S értékekhez tartozóan az intenzitás változik, emiatt a ponthiba detektált intenzitásán keresztül meg tudjuk határozni, hogy mely spinállapotban volt a rendszer. Ezt az effektust hívják optikailag detektált mágneses rezonanciának (*optically detected magnetic resonance, ODMR*). Az általam megfigyelt optikailag kiolvott rendszer sematikus ábrája a 2.3. ábrán látható. Mivel az ilyen jelenségek során az mikrohullámú elektromágneses tér a spinekkel hat kölcsön, emiatt a rendszer viselkedésének leírásakor a spin Hamilton-operátort kell megvizsgálnunk.

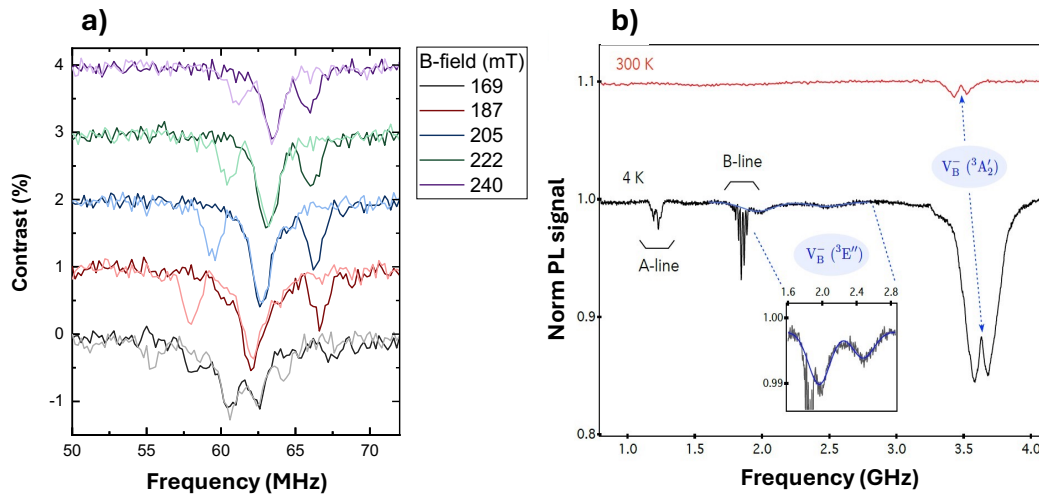
2.3. Támogató kísérleti eredmények

A kutatásaim során két kísérleti csoporttal is felvettük a kapcsolatot. A ^{15}N -nel körülvett vakanciacentrumokkal végzett mérésekhez az Exeteri Egyetem szilárdtest kvantumfotonikai területén kutató prof. Isaac Luxmoore volt az együttműködőnk, míg a tizennégyes nitrogénizotópokkal körülvett bór vakanciacentrumok mérési eredményeit a Montpellier-i Egyetemen dolgozó prof. Vincent Jacques biztosította, lásd 2.4 ábra.

2.4. A rendszer Hamilton-operátora

A TDK munkám során a VB(-) centrum spin szabadsági fokaival dolgoztam. Elsőként vegyük az elektronra a Schrödinger-egyenlet megoldását, amely felírható szorzat formában abban az esetben, ha a spin-orbit kölcsönhatástól eltekintünk. Ez esetben az elektron állapota megkapható a tér- és spinfüggő részek tenzorszorzataként

$$|\psi\rangle = |\vec{r}\rangle \otimes |\sigma\rangle. \quad (2.1)$$



2.4. ábra. Az együttműködésben résztvevő kísérleti csoportok mérési eredményeinek rövid bemutatása. Az a) ábrán láthatók az exeteri eredmények, amelyeket $hB^{15}\text{N}$ -nel végeztek. A mérés során különböző külső statikus mágneses tér értékek mellett vizsgálták a magspinek átmeneteit. Az ilyen típusú méréseket *ENDOR* (*electron-nuclear double resonance*) méréseknek hívják [16], amelyekkel az elektronspinhez csatolt magspinek energiafelhasadását és átmeneteit lehet vizsgálni. A b) ábrán a $hB^{14}\text{N}$ -en végzett mérések egyike látható, ahol a gerjesztő frekvenciát változtatták, aminek hatására több elnyelési csúcs jelent meg. Ezen csúcsok magyarázata a dolgozat későbbi részében kerül tárgyalásra.

Amennyiben a hullámfüggvényt szét tudjuk bontani spin- és helyfüggő részekre, akkor a Hamilton-operátor is szeparálható az egyes változók szerint. Tegyük fel, hogy a térszerű rész függése ismert, ekkor a teljes rendszert leíró Hamilton-operátorból megkapható a tisztán spinfüggő rész a következő módon

$$\hat{H}(\vec{r}; \sigma) \longrightarrow \int (\dots) d^3r \longrightarrow \hat{H}_{\text{spin}} \quad (2.2a)$$

$$\hat{H}_{\text{spin}} = \langle \vec{r} | \hat{H}(\vec{r}; \sigma) | \vec{r} \rangle. \quad (2.2b)$$

A dolgozatban vizsgált modellben összesen négy spin szerepel; a VB(-) centrum tripllett elektronspinje, illetve a három első szomszéd ^{15}N vagy ^{14}N magspin - mivel ezek a magspinek sokkal erősebben csatoltak, mint a többi -, amelyek dublett vagy pedig tripllett spinállapottal rendelkeznek. A Hilbert-tér, melyen a spinoperátorok hatnak $3 \cdot 2^3 = 24$, illetve $3^4 = 81$ dimenziós 2.2. A térszerű részt sűrűségoperátoros számolásokból emeltem át [9] [6].

A rendszer teljes *időfüggő* spin Hamilton-operátorát össze tudjuk állítani a fenti eljárást alkalmazva az alábbi kölcsönhatási tagok segítségével

$$\hat{H}(t) = \hat{H}_{\text{ZFS}}^{(e^-)} + \hat{H}_{\text{Zeeman}}^{(e^-)}(t) + \sum_i^3 \left(\hat{H}_{\text{Zeeman}}^{(\text{nuc}, i)}(t) + \hat{H}_{\text{QS}}^{(\text{nuc}, i)} + \hat{H}_{\text{hyperfine}}^{(e^- - \text{nuc}, i)} \right), \quad (2.3)$$

ahol $\hat{H}_{\text{ZFS}}^{(e^-)}$ a zérus-tér felhasadáshoz tartozó Hamilton-operátor, $\hat{H}_{\text{Zeeman}}^{(e^-)}(t)$, illetve a $\hat{H}_{\text{Zeeman}}^{(\text{nuc}, i)}(t)$ az elektron, valamint az i -edik magspin Zeeman-kölcsönhatása. $\hat{H}_{\text{QP}}^{(\text{nuc}, i)}$ írja le a i -ik magspin kvadrupólus felhasadását (csak a ^{14}N esetben), és a $\hat{H}_{\text{HFS}}^{(e^- - \text{nuc}, i)}$ operátor tartalmazza a hiperfinom kölcsönhatást a vakanciacentrum és az i -edik magspin között. A teljes Hamilton-operátor egyes tagjait alább részletezem.

Zérus-tér felhasadás

A zérus-tér felhasadás (angolul *Zero-field splitting*) akkor jelenik meg, ha a rendszerben kettő vagy több párosítatlan elektron van, tehát $S \geq 1$. A zérus-tér felhasadás Hamilton-operátora felírható az

$$\hat{H}_{\text{ZFS}} = \vec{\hat{S}} \hat{D} \vec{\hat{S}} = D_x \hat{S}_x^2 + D_y \hat{S}_y^2 + D_z \hat{S}_z^2 \quad (2.4a)$$

alakban, amelyben megjelentek a diagonalizált $\hat{D}$ tenzor D_x , D_y , és D_z elemei. Új jelöléseket bevezetve a $D = 3D_x/2$ és $E = (D_x - D_y)/2$ konstansokra megkapjuk

zérus-tér felhasadás Hamilton-operátorát, mint

$$\hat{H}_{\text{ZFS}} = D \left(\hat{S}_z^2 - \frac{S(S+1)}{3} \mathbb{1}_3 \right) + E \left(\hat{S}_x^2 - \hat{S}_y^2 \right). \quad (2.4b)$$

A vizsgált rendszerünk, a bór-nitridbeli VB(-) centrum esetén $D = 3479$ MHz, illetve $E = 50$ MHz. Az E paraméter alapvetően ha a rendszer teljesen szimmetrikus, akkor nem jelenik meg. Ugyanakkor a számolásaimban azért jelenik meg ez a tag, mert a valóságban tökéletesen szimmetrikus kristály nem létezik, emiatt a valósághűbb szimulációk érdekében érdemes az E paraméter járulékait is figyelembe venni. Abból az okból is fontos tekintettel lenni az E paraméterre, mivel kísérleti mérések során látszik az általa okozott felhasadás [17] [6]. A D és az E paraméter a rendszer belső szabadsági fokai, ezeket ab initio számolásokból illesztettem be a szimulációmba [6].

Zeeman-tagok

A Zeeman effektus akkor figyelhető meg, ha a külső mágneses térbe helyezzük a rendszert, amely újabb energiaszint felhasadásokat okozhat. Jelen esetben a külső mágneses térnek két komponense van, a) egy statikus B_0 tag a kvantálási tengellyel párhuzamos irányban, illetve b) egy a statikus mágneses tér irányával θ szöget bezáró időfüggő tag $B(t)$. A kvantálási tengely konvenció szerint a z tengely, amely párhuzamos a szimmetria tengellyel. Az elektronspinhez tartozó Zeeman-kölcsönhatási tag az felírható, mint

$$\hat{H}_{\text{Zeeman}}^{(e^-)}(t) = g_e \mu_B \hat{S}_z B_0 + g_e \mu_B \left(\sin \theta \hat{S}_x + \cos \theta \hat{S}_z \right) B_A \cos(\omega t), \quad (2.5)$$

ahol g_e az elektron Landé g-factora, μ_B a Bohr magneton, ω és B_A az oszcilláló mágneses tér frekvenciája és amplitúdója. A nitrogén magspinekre (izotóptól függetlenül) ható Zeeman-tagok nagyon hasonlítanak az elektronoknál megjelenő Zeeman Hamiltoni tagra. Az egyetlen különbség az, hogy a szorzó tényezőt az atommag μ_N mag magnetonja, illetve a nitrogén 14-es, vagy pedig 15-ös izotópjának g^{14N} és g^{15N} Landé g-faktora adja. A nukleáris Zeeman-ból származó Hamilton-operátor az adott magspinekre

$$\hat{H}_{\text{Zeeman}}^{(\text{nuc},1)}(t) = g_N \mu_N B_0 \hat{I}_z + g_N \mu_N \left(\sin \theta \hat{I}_x + \cos \theta \hat{I}_z \right) B_A \cos(\omega t), \quad (2.6a)$$

ahol I_z és I_x a magspin z és x operátora, természetesen az adott spintől függően különböző dimenziós téren hatva (a tripllett magspinoperátorok három dimenzió, míg az $S = 1/2$ magspinek pedig egy két dimenziós Hilbert-téren). A mag magneton

értéke $7,6228 \cdot 10^{-4} \text{ Am}^2$, valamint a ^{14}N -es atommag giromágneses faktora $g_{^{14}\text{N}} = 0,40376$, és a ^{15}N -é pedig $g_{^{15}\text{N}} = -0.56638$.

Kvadrupól felhasadás

A magok kvadrupól felhasadása a zérus-tér felhasadáshoz nagyon hasonló jelenség, amely ugyanúgy csak akkor jelenik meg, ha magok egynél nagyobb spinnel rendelkeznek, emiatt a ^{15}N izotópok esetében ezek a tagok nem fognak közrejátszani az energiaszintek kialakításában. A tripllett magspinek esetében megjelenik a kvadrupól momentumok hatása is, amelyekhez tartozó Hamilton-operátor a következő formában írható fel

$$\hat{H}_{\text{QS}}^{(\text{nuc},1)} = Q_{^{14}\text{N}} \cdot \left(\hat{I}_z^2 - \frac{2}{3} \mathbb{1}_3 \right), \quad (2.7)$$

ahol $Q_{^{14}\text{N}}$ -vel jelöltük a nitrogén atommagok kvadrupól-momentumát.

Hiperfinom felhasadás

A hiperfinom felhasadás Hamilton-operátorát a mágneses dipól kölcsönhatás,

$$\hat{H}_{\text{dip}} = g_e \mu_B g_N \mu_N \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3} \left(\frac{\vec{S}_1(\vec{r} - \vec{r}') \cdot \vec{S}_2(\vec{r} - \vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} - \vec{S}_1 \vec{S}_2 \right), \quad (2.8)$$

térszerű változóinak kiintegrálásával az alábbi alakban tudjuk felírni

$$H_{\text{hyperfine}}^{(\text{nuc},i)} = \langle \vec{r} | \hat{H}_{\text{dip}} | \vec{r} \rangle = \dots = \vec{S}_{el} \hat{A}^{(i)} \vec{I}_i = \quad (2.9a)$$

$$= \begin{pmatrix} \hat{S}_x^{(el)} & \hat{S}_y^{(el)} & \hat{S}_z^{(el)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_{xx}^{(i)} & A_{xy}^{(i)} & A_{xz}^{(i)} \\ A_{xy}^{(i)} & A_{yy}^{(i)} & A_{yz}^{(i)} \\ A_{xz}^{(i)} & A_{yz}^{(i)} & A_{zz}^{(i)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \hat{I}_x^{(i)} \\ \hat{I}_y^{(i)} \\ \hat{I}_z^{(i)} \end{pmatrix}. \quad (2.9b)$$

A (2.9a) egyenletben szereplő $\hat{A}^{(i)}$ mátrixot nevezzük hiperfinom tenzornak.

A számításokhoz felhasznált hiperfinom tenzorok paramétereit az irodalomból vettük át [6]. A forrásunk ugyan a tizennégyes tömegszámú nitrogénre adta meg a hiperfinom csatolást, de a giromágneses faktorok hányadosával átskálázhatók az értékek, hogy a ^{15}N magokkal körülvett vakancia centrumra is lehessen számolást végezni.

A korábban definiált időfüggő spin Hamilton-operátor félklasszikus közelítést ad a vizsgált rendszerre, mivel az elektromágneses tér kvantálását nem vettük figyelembe. Ezt "erős tér" közelítésnek nevezzük, mivel feltételezzük, hogy a kölcsönhatás

során a VB(-) rendszer által elnyelt néhány foton, illetve az esetlegesen emittált fotonok nem változtatják meg jelentősen a tér tulajdonságait.

A kutatásom során feltérképeztem, hogy milyen hatással van a rendszerre, ha külső ω körfrekvenciájú gerjesztő elektromágneses teret kapcsolunk rá. Ezzel szerettem volna képet kapni arról, hogy hogyan befolyásolja a gerjesztő tér iránya, és amplitúdója az átmeneti rátákat, illetve valószínűségeket.

A kvantálási tengelynek a z irányt választottuk és ehhez képest mérjük a gerjesztő térnek a rendszerrel bezárt szögét. A külső elektromágneses tér lineárisan poláros fotonokat tartalmaz. A z tengellyel párhuzamosan polarizált fotonokat π fotonoknak nevezzük a merőlegeseket σ fotonoknak. A nem tisztán merőlegesen vagy párhuzamosan polarizált fotonok kikeverhetők a két bázisirány lineárkombinációjaként. Azért fontos a megkülönböztetésük, mert majd látni fogjuk, hogy az egyes átmenetek valószínűsége igen jelentősen változik a perturbáló tér következtében.

3. A VB(-) centrum spin energia szintjeinek meghatározása

Első lépésben a statikus esetet vizsgáltam, ahol az oszcilláló mágneses tér amplitúdóját nullának vettem. Ebben az esetben a Hamilton-operátor diagonalizálható, így meghatározhatók a rendszer sajátértékei és sajátállapotai, amelyekből lényeges információkat nyerhetünk a várható spinátmenetekről. Ebben a szakaszban tehát a Hamilton-operátor sajátértékeit elemzem, illetve azt, hogyan változnak ezek a spin Hamilton különböző paramétereinek függvényében.

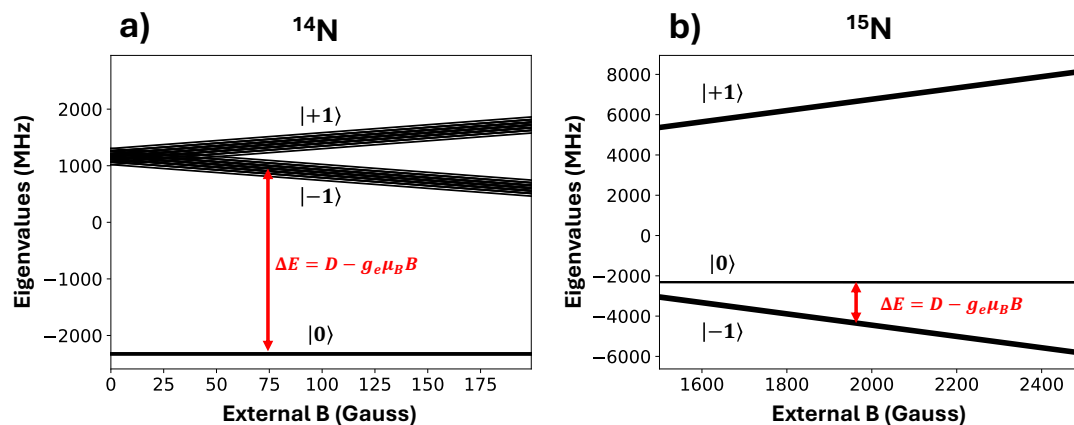
3.1. A statikus mágneses tér hatása az energiaszintek felhasadására

A statikus mágneses tér jelentős szerepet játszik az energiaszintek meghatározásában, hiszen mind az elektron, mind pedig a vakanciacentrumot körülvevő atommagok a Zeeman-kölcsönhatáson keresztül interaktálnak a mágneses térrel.

A (3.1.) ábrán látható, hogy ha a statikus mágneses tér értéke nulla, akkor kizárólag a ZFS által létrehozott felhasadás jelenik meg, viszont a B -t növelve szétválnak az elektron különböző m_S kvantumszámaihoz tartozó ágak. A $|-1\rangle$ ág negatív meredekségű, tehát a vízszintes $|0\rangle$ ággal valamikor találkozni fog. A két ág metszéspontját hívják *Ground state level anticrossing*-nak (GSLAC) [17], amely kb 1280 Gauss mágneses tér értéknél lép fel. Ekkor a hiperfinom kölcsönhatás és az elektronspin állapotok közötti felhasadás egy nagyságrendbe esik, így az állapotok között keveredés lép fel. A keveredéssel a dolgot később bővebben is foglalkozik. Ezen mágneses térnél nem alkalmazhatók azok a közelítő módszerek, amelyek kisebb mágneses terekre megfelelőek voltak, ugyanakkor számunkra a GSLAC-on túli régió is fontos, mivel a legalacsonyabb B , aminél méréseket végeztek a hB^{15} N esetében $169mT = 1690$ Gauss volt, amely túl van a GSLAC-on (lásd 3.1. ábra).

3.2. A magspinek hatása az energiaszintek felhasadására

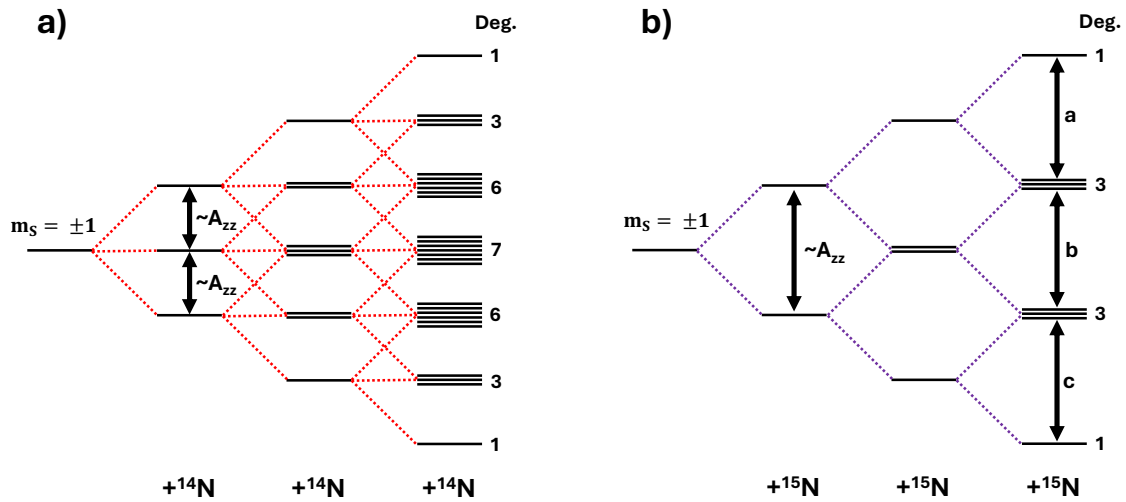
A rendszerben az magspinek hatását figyelmen kívül hagyva csak a tripllett elektronspinre ható kölcsönhatások maradnak, amely $B = 0$ estén a ZFS kölcsönhatás. $B \neq 0$ esetre a Zeeman effektus további felhasadást hoz létre, és a mágneses mező nagyságának függvényében két energiaágra hasítja a $|-1\rangle$ és a $|+1\rangle$ állapotokat. Számunkra a $|0\rangle \rightarrow |-1\rangle$ átmenet lesz a fontos. Ha azonban a magspinek kölcsönhatását is számításba vesszük a $m_S = \pm 1$ ágakban, akkor egy finomabb szerkezet



3.1. ábra. A sajátértékek mágneses tér függése. Az a) képen láthatók a nitrogén-14 izotópokkal körülvelt rendszer energiasajátértékei. A vizsgálati tartomány, amelyet megfigyeltem a nulla mágneses térnél is. Fontos kiemelni, hogy a kezdeti felhasadást a ZFS okozza, amely a $m_S = 0$ és $m_S = \pm 1$ ágak között jelenik meg. Tekintve, hogy szimulációk során ezen két ág között megvalósuló átmenetet figyeltem, így azt is érdemes megemlíteni, hogy a külső, statikus mágneses tér növelése a szükséges gerjesztő frekvencia növekedését jelenti, hiszen az energiakülönbség növekedik. Ez amiatt van, mert a mágneses tér hatására lineárisan lefelé tolódik a $|-1\rangle$ állapotok energiája (ugyanígy a $|+1\rangle$ energiája felfelé). A hiperfinom kölcsönhatás fontossága is látható a képen, hiszen hét darab kisebb ág figyelhető meg a $|\pm 1\rangle$ ágakon, ezek magyarázata később olvasható. A b) kép mutatja be a $hB^{15}\text{N}$ sajátértékeinek függését mágneses tértől a vizsgált tartományon. Látható, hogy a vizsgált tartományon a $|-1\rangle$ -hez tartozó értékek már a $|0\rangle$ energiái alatt vannak, tehát azon a mágneses téren túl vagyunk, amelyen a *GSLAC* megfigyelhető.

alakul ki. Minden hozzáadott magspin az állapotokat az $m_S = \pm 1$ ágakban további állapotokra bontja fel. Mivel a rendszer mind a két esetben magas, D_{3h} szimmetriával rendelkezik és a három első magspin-elektron hiperfinom kölcsönhatás erőssége megegyezik, ezért az összes felhasadás azonos energiakülönbséggel jár, ebből következően - mind a három környező magspin kölcsönhatását számításba véve - degenerált állapotok jönnek létre. A felhasadást alapvetően szekuláris közelítésben csak a hiperfinom tenzor $\hat{A}_{zz}$ tagjai okozzák, amely minden magspinre ugyanaz. A 3.2. ábrán látható, hogy milyen módon hasadtak fel a hiperfinom kölcsönhatás miatt az állapotok, és hogy hány-szoros degenerációk jönnek létre.

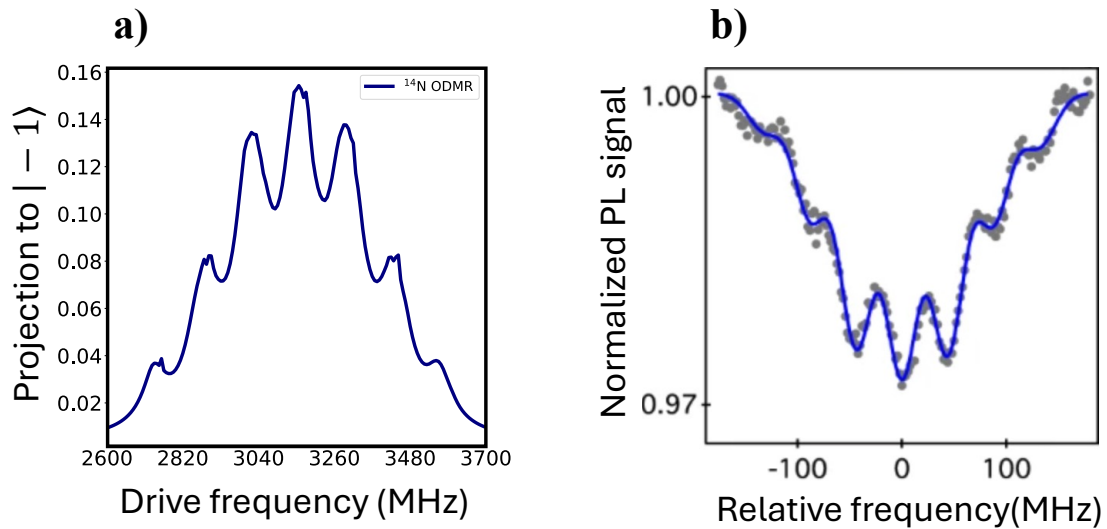
A 3.3 látható a $hB^{14}\text{N}$ -nel végzett vizsgálataim és egy kísérleti eredmény. A szimulációk során optikai pulzussal gerjesztettem a rendszert. A görbén (mind a szimulációson, mind a kísérletin) jól kirajzolódik összesen hét csúcs, mely a 3.2.



3.2. ábra. Bármely $m_S = \pm 1$ állapothoz tartozó felhasadások és az így kialakuló degenerációk az egyes magspinek hozzáadásával jönnek létre. Észrevehető, hogy a két különböző környező izotóphoz jelentősen eltérő felhasadási minta tartozik, és a b) képen a degeneráció is jóval alacsonyabb, mint az a) képen látható rendszernél. Ha az a) képen a kiinduló állapotnak az $m_S = -1$ állapotot vesszük, akkor az első atommag hozzáadásával három új állapot jön létre: $|-1; -1\rangle$, $|-1; 0\rangle$ és $|-1; +1\rangle$. A második atommag hozzáadását követően például a $|-1; 0\rangle$ felhasad a $|-1; 0; 1\rangle$, $|-1; 0; 0\rangle$ és $|-1; 0; -1\rangle$ állapotokra. Azonban a $|-1; 0; -1\rangle$ állapot energiája megegyezik a $|-1; -1; 0\rangle$ állapot energiájával, így az energiaszintjük kétszeresen degenerált lesz. Hasonlóan, ha a vakanciát ^{15}N -nel vesszük körbe, tehát a b) képen látható szituáció áll fenn, akkor az $m_S = -1$ állapot két állapotra esik szét: $|-1; \uparrow\rangle$ és $|-1; \downarrow\rangle$. Az a) ábrához hasonlóan a további magspinek újabb felhasadásokat okoznak, így végül összesen négy állapot alakul ki, ahol a két szélső energiaszint egyszeresen, a két belső pedig háromszorosan degenerált. Észrevehető, hogy a degenerációk számának alakulása mindkét esetben a Pascal-háromszög mintázatára emlékeztet. Az a) képen minden tag három újabb ágra esik szét, míg a b) ábrán a Pascal-háromszöget kapjuk vissza egy az egyben. A b) ábrán definiáltam az egyes átmeneteket is, a -val, b -vel és c -vel jelölve.

ábrán az a) képpel magyarázható. Mivel mindegyik magspin felhasította az elektronnak a spektrumát, ezért hét különböző energiájú állapot jelent meg, amelyek viszont degeneráltak. A középső energiaszint hétszeresen degenerált, míg a legszélső energiákhoz csak egy-egy állapot tartozik. Látható a csúcsok magasságán is, hogy a különböző degenerációval rendelkező ágak különböző magasságú csúcsok tartoznak.

Fontos megemlíteni, hogy a fentebb említett degeneráció feloldható alapvetően



3.3. ábra. A 14-es nitrogénizotóppal körülvett vakanciacentrum szimulált és mért ODMR spektruma. Az a) képen látható, hogy a $|0\rangle$ és a $| -1 \rangle$ állapotok közötti átmenetet rezonánsan gerjesztettük. A 3.2. képen látható, hogy a magspinek milyen felhasadásokat, milyen szerkezetet okoznak az elektron spektrumában, amely az ODMR jelben is látszik, hiszen észrevehetjük a hét ágat. A b) képen látható egy kísérleti eredmény [9], melyet ugyanazzal az anyaggal végeztek, mint amin én is végeztem a szimulációs vizsgálataimat. Észrevehető, hogy az a) és b) képen látható két görbe gyakorlatilag ugyanaz. Tekintettel arra, hogy a szimulációkban valószínűségekkel dolgoztam, a kísérletek során meg az elektromágneses térben észlelhető csökkenést mérték ki, ezért vízszintes tükrözöttje egymásnak a két görbe.

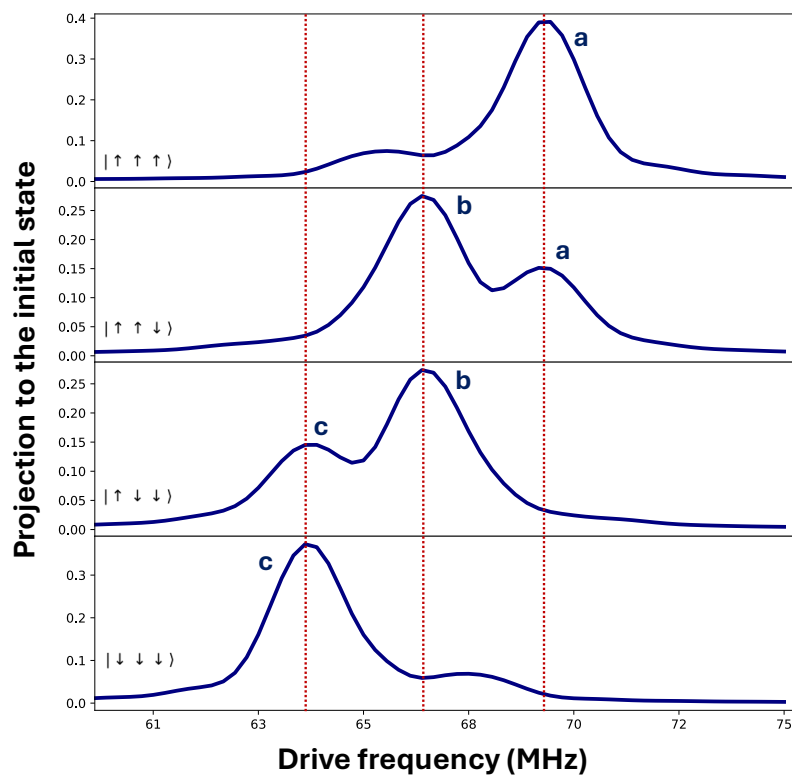
ha még kisebb energiaskálájú kölcsönhatásokat is figyelembe veszünk, ilyen a kvadrupólus felhasadás, illetve nukleáris Zeeman-felhasadás. Ezek miatt az energiaszintek még tovább hasadnak és a hiperfinom szerkezetnél is finomabb szerkezet valósul meg.

4. Szimulációs és analitikus eredmények a ^{15}N esetén

4.1. Keveredés hatása az energiakülönbségekre

A szimulációk egzakt időfejlődéssel dolgoztak, az integrálást egy negyedrendű Runge-Kutta algoritmus végezte el, valamint az időlépés nagysága pedig $0.00025 \mu\text{s}$ volt. A szimulációk során az elektron, illetve a magspin állapotok bizonyos operátorok, tipikusan S_z , néha S_x , sajátállapotaira vett vetületét írtam ki, majd ezeket időátlagoltam. A kutatás során a időátlagok változását vizsgáltam a gerjesztő frekvencia és külső mágneses tér függvényében.

A 2.4 ábra a) képén láthatók azok a kísérleti eredmények, melyeket meg akartam magyarázni, illetve reprodukálni szerettem volna. Ismert volt, hogy a méréseket különböző mágneses tér értékeknél végezték, amelyek úgy voltak beállítva, hogy a GSLAC-on túl legyen a rendszer, tehát a vakanciacentrum $m_S = -1$ ágához alacsonyabb energiák tartozzanak, mint az $m_S = 0$. Az általam végzett első szimulációk során a rendszert egy adott mágneses térnél vizsgáltam meg, mégpedig $B = 2500$ Gaussnál, mivel ez az érték közel van a kísérletekben használt mágneses térhez, valamint már egészen messze van a GSLAC-tól, hogy az abban a régióban kialakuló effektusok hatása kisebb legyen. Ekkor négy különböző szimulációt indítottam, amelyek során a statikus mágneses tér mellett a gerjesztő rádiófrekvenciát változtattam a kísérletben látott értékek között. A négy különböző szimuláció négy különböző kezdeti állapothoz tartozik, mivel nem elhanyagolható, hogy a kezdeti állapot energiája függ attól, hogy milyen a magspinek konfigurációja, ezért külön megvizsgáltam azokat az eseteket, amikor mind a három spin $|\uparrow\rangle$ vagy $|\downarrow\rangle$ állapotban van, illetve, amikor különböznek egymástól. Az utóbbiból két eset alakulhat ki, egyrészt amikor a kettő spin van a $|\uparrow\rangle$ állapotban, másrészt, amikor csak egy, míg a maradék pedig a $|\downarrow\rangle$ állapotban van. Ezek az állapotok természetesen három különböző formában fordulhatnak elő, hiszen a három magspin között három különböző módon lehet kiosztani ezen konfigurációkat - tehát hogy éppen melyik magspin van a másik kettőtől különböző állapotban -, ebből következően ezeknek az azonos súllyal vett kevert állapotát vettem kiindulásnak, tehát a $(|\uparrow; \uparrow; \downarrow\rangle + |\uparrow; \downarrow; \uparrow\rangle + |\downarrow; \uparrow; \uparrow\rangle)/3$ illetve a $(|\uparrow; \downarrow; \downarrow\rangle + |\downarrow; \uparrow; \downarrow\rangle + |\downarrow; \downarrow; \uparrow\rangle)/3$ állapotkombinációkat. A szimulációk eredményei a 4.1. ábrán láthatóak.



4.1. ábra. Az ábrán látható a négy különböző kezdeti állapotra vett vetülete ábrázolva a gerjesztő frekvencia függvényében. A 3.2. ábra b) képén olvasható az egyes magspin állapotok közötti átmenetek, melyeket jelöltem ezen az ábrán is. Érthető módon az egyes átmenetekhez tartozó csúcsok minden esetben ugyanazon a gerjesztő frekvenciánál jelentek meg.

Mindegyik kezdeti állapothoz tartozik egy görbe. Az egyes görbéken azonosíthatók a 3.2. b) ábráján látható a , b és c átmenetek. A kiindulási állapot függvényében az egyes átmenetekhez tartozó csúcsok ugyanakkora gerjesztő frekvenciánál jelentek meg, hiszen az átmenethez szükséges energia nem szabad, hogy attól függjön, hogy milyen a kezdeti állapot. Ugyanakkor láthatjuk, hogy az a , b és c átmenetek nem ugyanakkora frekvenciánál jelennek meg, illetve, hogy az a mellett a c nem tűnik fel az egyik metszeten sem. Az, hogy az a, b, c nem egy energián jelenik meg, azt implikálja, hogy a 3.2. ábrán a három magspin jelenlétében lévő állapotok közötti energiakülönbségek mégsem azonosak. Még egy probléma lépne fel abban az esetben, ha mind a három felhasadás mértéke azonos volna, mégpedig az, hogy ha eltalálnánk az ehhez szükséges frekvenciát, akkor a legalacsonyabb energiájú állapotból azonnal a maximálisba tudnánk gerjeszteni a rendszert. Ám ez láthatóan nem történik meg, hiszen több csúcs jelent meg, és nem egy darab, adott energiával. Az energiák eltolódása után úgy módosultak az energiakülönbségek, hogy az a átmenethez tartozó energiakülönbség a legnagyobb, és a c pedig a legkisebb.

Az energiakülönbségekben való eltolódást az ún. keveredés okozza, amely összekeveri az Hamilton-operátor sajátállapotait. Alapvetően a keveredés abból ered, hogy a Hamilton-operátorban egy off-diagonális tag is megjelenik. Alább egy két állapotú rendszerre mutatom meg, hogy hogyan alakul ki, és milyen hatása van a keveredésnek. Jelölje $\hat{H}_0$ a perturbálatlan Hamilton-operátort, és $\hat{H}_p$ a perturbáló tagot. A perturbáció jelenlétében a tisztán diagonális Hamilton-operátor off-diagonális elemei is nem nulla értéket vesznek majd fel, amely így változást okoz a sajátértékekben, illetve össze fogja keverni a sajátállapotokat.

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_p = \begin{pmatrix} E_a & 0 \\ 0 & E_b \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 & \varepsilon \\ \varepsilon^* & 0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_a & \varepsilon \\ \varepsilon^* & E_b \end{pmatrix} \quad (4.1)$$

Míg az eredeti operátor sajátértékei E_a és E_b voltak, addig a megváltoztatott operátoré módosulnak a következőkre,

$$E_{\pm} = \frac{1}{2} \left(E_a + E_b \pm \sqrt{(E_a - E_b)^2 + 4|\varepsilon|^2} \right). \quad (4.2)$$

Ekkor $(E_a + E_b)$ -t kiemelve, és sorbafejtve $\frac{4|\varepsilon|^2}{(E_a - E_b)^2}$ szerint a következőre jutunk,

$$E_{\pm} = \frac{1}{2} \left(E_a + E_b \pm E_a \mp E_b \pm \frac{2|\varepsilon|^2}{(E_a - E_b)^2} \right). \quad (4.3)$$

A fenti egyenletnek így két módosított sajátértéke van,

$$E_+ = E_a + \frac{|\varepsilon|^2}{E_a - E_b}, \quad (4.4a)$$

$$E_- = E_b - \frac{|\varepsilon|^2}{E_a - E_b}. \quad (4.4b)$$

Látható a (4.4a) és a (4.4b) egyenletben, hogy a magasabb energiaszint még magasabbra tolódik a perturbáló operátor jelenlétében, valamint az alacsonyabb még kisebb értéket vesz fel. Hasonló metódus mentén levezethető, hogy az új, alsóbb energiaszinthez tartozó sajátállapot a következőképpen néz ki,

$$|-\rangle = |b\rangle + \frac{\sqrt{2}\varepsilon}{E_a - E_b} |a\rangle \quad (4.5)$$

Esetünkben a perturbálatlan operátornak vettem a tisztán diagonális elemeket tartalmazó Hamilton-operátort, tehát a ZFS-t, a Zeeman-tagokat, és a hiperfinom kölcsönhatásnak az $A_{zz}\hat{S}_z \cdot \sum_{i=1}^3 \hat{I}_z$ tagját, illetve a perturbáló operátornak tekintettem azon operátort, amely a teljes Hamilton diagonálison kívül eső tagjait tartalmazza, így a $\hat{H}_p$ felírható mint,

$$\hat{H}_p = E \left(\hat{S}_x^2 + \hat{S}_y^2 \right) + \hat{S}_x \sum_{i=1}^3 \left[A_{xy}^{(i)} \hat{I}_y^{(i)} + A_{xx}^{(i)} \hat{I}_x^{(i)} \right] + \hat{S}_y \sum_{i=1}^3 \left[A_{xy}^{(i)} \hat{I}_x^{(i)} + A_{yy}^{(i)} \hat{I}_y^{(i)} \right]. \quad (4.6)$$

Ugyanakkor a ZFS-ből származó E paraméteres tagtól eltekinthetünk, mivel ezt a számolást már a $B = 0$ esetnél jóval nagyobb mágneses tér mellett figyeljük meg, így nem okoz számottevő különbséget ezen tagok elhanyagolása. Tehát a végső perturbáció a

$$\hat{H}_p = \hat{S}_x \sum_{i=1}^3 \left[A_{xy}^{(i)} \hat{I}_y^{(i)} + A_{xx}^{(i)} \hat{I}_x^{(i)} \right] + \hat{S}_y \sum_{i=1}^3 \left[A_{xy}^{(i)} \hat{I}_x^{(i)} + A_{yy}^{(i)} \hat{I}_y^{(i)} \right] \quad (4.7)$$

kifejezésként írható fel. Vegyük észre, hogy a 4.7. egyenletben $\hat{S}_x$, $\hat{S}_y$ - valamint ugyanezen operátorok a magspineken hatva - szerepelnek, amelyek felírhatók, mint a megfelelő léptető operátorok lineárkombinációja.

Ahogy a 4.4a és 4.4b egyenletek kapcsán említettem, a keveredés következtében az alacsonyabban elhelyezkedő energiaszint még lejjebb tolódik, és magasabb pedig még magasabb lesz. Ez figyelhető meg a 4.1. ábrán látható a , b és c átmeneteknél is, hiszen a távolságok nagyobb mértékben nőttek meg a $|\uparrow; \uparrow; \uparrow\rangle$ állapot energiájára, mint a $|\downarrow; \downarrow; \downarrow\rangle$ -ra, vagy bármelyik vegyesen fel és le állapotokat tartalmazó magspin-

konfigurációkra. Továbbá akár intuitíve is érezhető, hogy a keveredés mértéke függ a külső statikus mágneses tértől, mivel egyre közelebb kerülve a GSLAC-hoz a $|-1\rangle$ és a $|0\rangle$ ágak közötti energiakülönbség egyre kisebb.

Ekkor az energiákra az időfüggetlen perturbációs számítást felhasználva ki tudjuk számolni a korrekciókat (bővebben lásd a A).

$$E_n = E_n^{(0)} + \langle n | \hat{H}_p | n \rangle + \sum_{k \neq n} \frac{|\langle n | \hat{H}_p | k \rangle|^2}{E_n^{(0)} - E_k^{(0)}} + \dots \quad (4.8)$$

A fentebbi egyenletet jobban megnézve észrevehetjük, hogy az elsőrendű korrekcióban az egyes perturbálatlan állapotokkal kell venni a várható értékét a perturbáló operátornak, azonban ez minden kombinációra nullát fog adni. Mivel a $\hat{H}_p$ csak léptető operátorokat tartalmaz - amelyek a $|n\rangle$ állapotokat fel-, illetve lefelé lépteti, és mind a magspinekben, mind pedig az elektronspinben lineáris, és nem tartalmaz $\hat{S}_\pm$ -ban vagy $\hat{I}_\pm$ -ban négyzetes, és annál magasabb rendű tagokat -, ezért a $\hat{H}_p$ -t haddatva bármely $|N\rangle$ állapotra bizonyosan $|n\rangle$ -től különböző eredményt kapunk. És ekkor az ortogonalitás miatt a skalárszorzat nullát ad eredményül. Mivel az első rendű korrekció nem adott járulékot, a másodrendet kell megvizsgálni bővebben.

A másodrendű korrekció kapcsán fontos megemlíteni, hogy a kiszámítása abból ered, hogy nem csak az energiákra van korrekció, hanem a sajátállapotokra is

$$|n\rangle = |n^{(0)}\rangle + \sum_{k \neq n} \frac{\langle k | \hat{H}_p | k \rangle}{E_n^{(0)} - E_k^{(0)}} |k^{(0)}\rangle + \dots \quad (4.9)$$

Az összegzést olyan állapotokra végezzük, amelyek nem azonosak az $|n\rangle$ -nel, tehát csak olyan más állapotok fognak nullától különböző értéket adni, amelyek két kvantumszámban különböznek $|n\rangle$ -től (csak ennyiben különbözhetnek, és maximálisan egy léptetéssel kell, hogy elérhetők legyenek). Ennek oka a szummában megjelenő szendvics, mivel nem azonos állapotpárokkal kell keresztbe szorozni a perturbáló Hamilton-operátort. Tehát a perturbált operátor sajátállapotai az eredeti operátor állapotaival egészülnek ki, azaz valamilyen kicsiny szorzófaktor erejéig megjelennek más állapotok is az $|n\rangle$ -ben, amely gyakorlatilag teljesíti a keveredés definícióját. Ezért az mondható, hogy a keveredés okozza a másodrendű perturbációban a korrekció létrejöttét.

Vegyünk példaként a $|-1; \uparrow; \uparrow; \uparrow\rangle$ állapotot. Ha haddatjuk a perturbáló operátort a Hilbert-tér összes $|k\rangle$ vektorára, akkor kiderül, hogy három olyan $|k\rangle$ jelenik meg, amelyekre a skalárszorzat nem nullát ad eredményül, ezek a $|0; \downarrow; \uparrow; \uparrow\rangle$, $|0; \uparrow; \downarrow; \uparrow\rangle$ és a $|0; \uparrow; \uparrow; \downarrow\rangle$. Az összegzést elvégezve a másodrendű energiakorrekcióra megkaphatjuk,

hogy a

$$E_{|-1;\uparrow;\uparrow;\uparrow\rangle}^{(2)} = \frac{3}{8} \cdot \frac{(A_{xx} - A_{yy})^2 + 4A_{xy}^2}{D - g_e\mu_B B + g_N\mu_N B - \frac{3}{2}A_{zz}} \quad (4.10)$$

kifejezéssel egyenlő. Majdnem ugyanilyen kifejezést kapunk a $|-1;\downarrow;\downarrow;\downarrow\rangle$ állapot-ra is, az egyetlen különbség, amely megjelenik az a nevezőben található A_{zz} tag együtthatója,

$$E_{|-1;\downarrow;\downarrow;\downarrow\rangle}^{(2)} = \frac{3}{8} \cdot \frac{(A_{xx} - A_{yy})^2 + 4A_{xy}^2}{D - g_e\mu_B B + g_N\mu_N B + \frac{3}{2}A_{zz}}. \quad (4.11)$$

Hasonló, ám mégis különböző a korrekció a vegyes magpsinnel rendelkező állapotok-ra:

$$E_{|-1;\downarrow;\uparrow;\uparrow\rangle}^{(2)} = \frac{1}{8} \cdot \frac{(A_{xx} + A_{yy})^2}{D - (g_e\mu_B - g_N\mu_N)B - \frac{1}{2}A_{zz}} + \frac{2}{8} \cdot \frac{(A_{xx} - A_{yy})^2 + 4A_{xy}^2}{D - g_e\mu_B B + g_N\mu_N B - \frac{1}{2}A_{zz}} \quad (4.12a)$$

$$E_{|-1;\downarrow;\downarrow;\uparrow\rangle}^{(2)} = \frac{2}{8} \cdot \frac{(A_{xx} + A_{yy})^2}{D - (g_e\mu_B + g_N\mu_N)B - \frac{1}{2}A_{zz}} + \frac{1}{8} \cdot \frac{(A_{xx} - A_{yy})^2 + 4A_{xy}^2}{D - (g_e\mu_B - g_N\mu_N)B - \frac{1}{2}A_{zz}} \quad (4.12b)$$

A 4.12a és 4.12b egyenletek természetesen mindegyik olyan magspinkiosztásra érvényesek, amelyekben a $|\uparrow\rangle$ és $|\downarrow\rangle$ száma megfelelő.

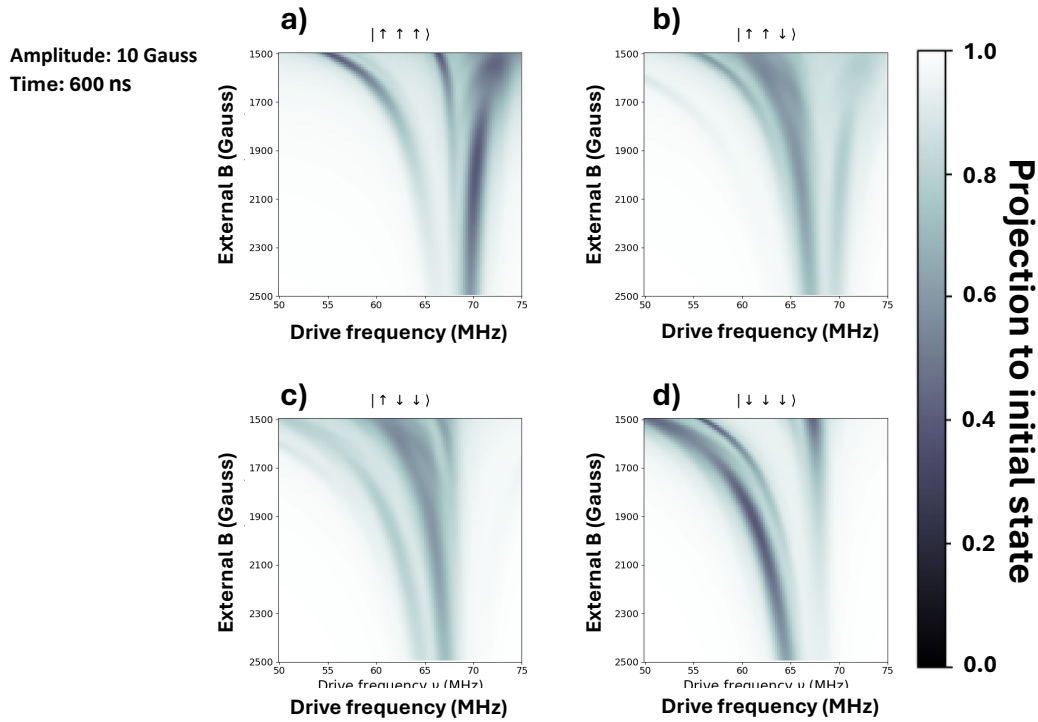
Megemlítendő, hogy mindegyik energiakorrekció függ a mágneses tértől, ezért felmerülhet a kérdés, hogy milyen változást tudunk észlelni akkor, ha különböző mágneses tér értékeknél vizsgálódunk. Ennek a kiderítését mutatom be a következő alfejezetben.

4.2. Változó mágneses térből származó szimulációs eredmények

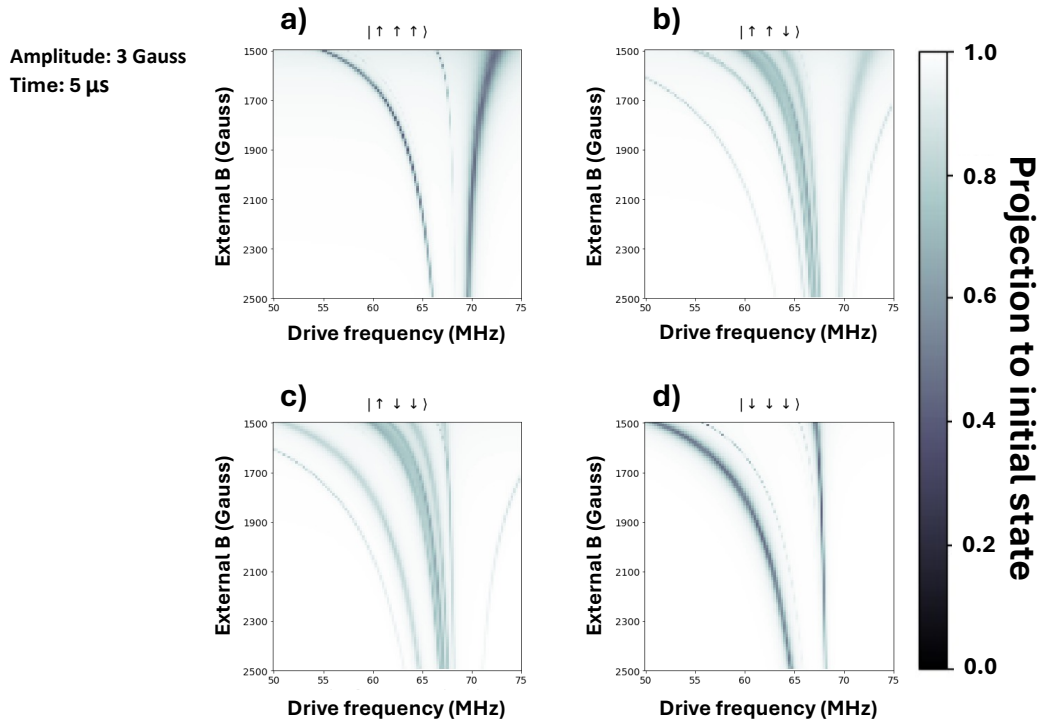
A keveredés mágneses tértől függő energiakorrekciókat adott, emiatt a 4.1. ábrán látható metszeteket több B-re is megnéztem, amelyeket végül egy három dimenziós ábrán összegeztem. A vizualizáláshoz *heat map*-eket használtam, ahol mindegy egyes pixel megfelel egy adott mágneses térnél, adott gerjesztő frekvencia mellett történő szimulációnak.

A szimulációból származó eredmények a 4.2. és a 4.3. ábrákon láthatók. Jelen esetben is négy különböző kiindulási állapottal figyeltem meg a rendszert. Ismét a kezdeti állapotra vett vetületet ábrázoltam minden egyes esetben, hogy látszódjon, mely paramétereknél lépett fel rezonancia.

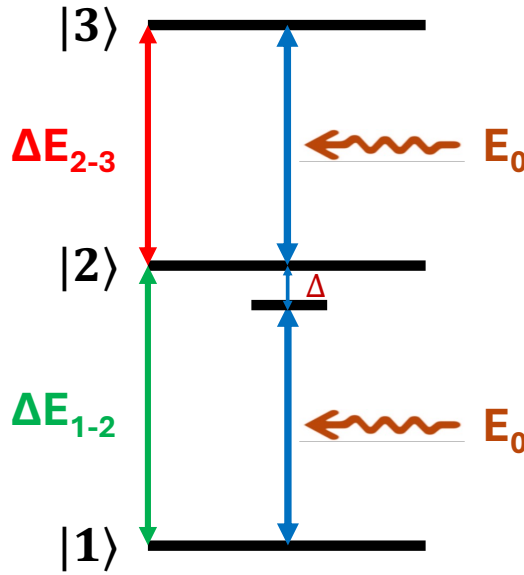
A 4.2. ábrán a gerjesztési amplitúdóját az MW térnek 10 Gaussra állítottam, valamint a pulzus hossza, amely alatt történt az időfejlesztés 600 ns volt. Látható,



4.2. ábra. A képen a rövid idejű futásból származó eredmények láthatók, ahogy a különböző kiindulási állapotokra vett projekciókat vettem. A külső statikus mágneses tér értéke 1500 Gausstól 2500 Gaussig növekedett, illetve az mikrohullámú gerjesztés frekvenciája 50 MHz-től egészen 75 MHz-ig változott minden szimuláció esetében. A színekombináció kódolja azt, hogy a kezdeti állapottól mennyire tér el az adott mágneses tér és frekvenciaértékre az egész időre átlagolva a kezdeti állapotra (ρ_0) vett projekcióknak. Tehát ahol a kép sötétebb árnyaltot ölt, ott a rendszer kevésbé tartózkodott a ρ_0 -ban, tehát nagyobb valószínűséggel történt átmenet. Az a) képen látható az az eset, amikor a magspin állapotoknak a $|\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle$ konfigurációjára vettem a vetületet. Észrevehető két vastagabb, élesebben kivehető vonal, valamint egy keskenyebb görbe is. Ezzel szemben a b) és c) ábrán két kevert állapotra történt a vetítés, amelyek az egyes magspinek között a $|\uparrow\rangle$ és a $|\downarrow\rangle$ állapotok lineáris kombinációja. A b) képen a $(|\uparrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle + |\uparrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle + |\downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle)/3$ illetve a c) képen pedig a $(|\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle)/3$ állapotkombinációra vett vetület látható. A d) kép pedig az a) képpel hasonlatosan azt látjuk, amikor a három magspin ugyanabban az állapotban van, viszont éppen ellentétesen az a) képen láthatóval. A szimulációk jóval több vonalat - tehát átmenetet - mutatnak, mint amire alapvetően számítottunk volna a kísérleti eredményekből, amelyek a 2.4. ábra a) képen láthatók.



4.3. ábra. A képen a hosszú idejű futásból származó eredmények láthatók, ahogy a különböző kiindulási állapotokra vett projekciókat vettem, a 4.2. ábrához hasonlóan. A külső statikus mágneses tér értéke 1500 Gauss-tól 2500 Gauss-ig növekedett, illetve az mikrohullámú gerjesztés frekvenciája 50 MHz-től egészen 75 MHz-ig változott minden szimuláció esetében. Észrevehető, hogy a görbék jóval elmosottabbak, mint amikor hosszabb időfejlődést vizsgáltam.



4.4. ábra. A három állapotú rendszer és gerjesztése. Látható, hogy az $|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle$ közötti energiák nem azonosak, mivel van egy Δ elhangolódás. Ebből következően az $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ átmenet nem valósul meg, csak a $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$. Ugyanakkor, ha az $|1\rangle$ állapot valójában kevert, akkor nem nulla szorzófaktorral tartalmaz $|2\rangle$ állapotot is magában, amelyet viszont már tudunk gerjeszteni, tehát mégis történik átmenet.

hogy nem nagyon éles görbék jelentek meg, viszont több átmenetet láthatunk az alacsony mágneses terekre, mint amire alapvetően számítanánk. A 4.1. ábrán - ahol $B = 2500$ Gauss - a $|\uparrow; \uparrow; \uparrow\rangle$ állapotra vett vetület esetében nem jelent meg egynél több csúcs, viszont amikor $B = 1500$ Gauss volt a mágneses tér, már három átmenethez tartozó görbe is megjelent. Ezen jelenségeket is a keveredés okozza.

Ha a legegyszerűbb esetet, a kétállapotú rendszert nézzük meg, akkor azt találjuk, hogy ha eltaláljuk a két állapot közötti energiakülönbséget a gerjesztő fotonok energiájával, akkor átmenet történik, ha pedig nem biztosít elegendő, vagy éppen túl sok energiát adna a foton, akkor nem történik átmenet. Nézzük meg viszont, mi történik, hogy ha három állapotunk van. Jelölje ezeket $|1\rangle, |2\rangle$ és $|3\rangle$. Alapvetően tegyük fel, hogy a három állapot között ugyanakkora energiakülönbség van, ami legyen E_0 . Tehát ekkor ha eltalálja gerjesztés az E_0 energiát, akkor megtörténik a $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ és $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$ átmenet, tehát az $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ is. Viszont tegyük bele a rendszerbe egy Δ elhangolást, tehát növeljük meg az $|1\rangle$ és $|2\rangle$ közötti energia gap-et. Ekkor csak a $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$ átmenet valósul meg E_0 gerjesztés hatására. Ezért azt várhatjuk, hogy ha a rendszert az $|1\rangle$ -be inicializáljuk, akkor nem történik semmi. Azonban ha az $|1\rangle$ valójában egy kevert állapot, tehát perturbálatlan Hamilton-operátor sajátállapotainak lineárkombinációja, akkor kezdetben mégis van egy nem nulla populáció a

$|2\rangle$ állapotban. Ezen esetben tehát ha eltaláljuk a E_0 energiát, akkor mégis megtörténhet a $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$ átmenet. Ennek a folyamatnak a sematikus ábrája látszik a 4.4. ábrán. a $hB^{15}\text{N}$ esetében ezek az átmenetek a 3.2. b) képen jelölt a, b és c átmenetek, ami tehát azt jelenti, hogy a magspinállapotokban is megjelenik a keveredés, emiatt jelent meg több görbe a *heatmap*-eken.

Ha összehasonlítjuk a 4.2. és a 4.3. ábrán látható eredményeket, akkor észrevehetjük, hogy a 4.3. ábrán jóval élesebben kivehetők a vonalak. Ennek az az oka, hogy az időfejlesztés hossza abban az esetben $5\ \mu\text{s}$ volt, míg a másik esetben pedig csak $600\ \text{ns}$, tehát majdnem tízszer több. Rezonáns gerjesztéskor fellép a Rabi-oszcilláció a két állapot között, amelyeket hajtunk. A Rabi-oszcilláció tehát meghatároz egy időtartamot, amely alatt az alapállapotból a gerjesztett állapotba átmegy a rendszer, és ez az időtartam a rövid időfejlesztés esetében rövidebb, mint a $600\ \text{ns}$, míg az $5\ \mu\text{s}$ -ba több Rabi-periódus is belefér, így sokkal pontosabb átlagot tudunk kapni, akkor amikor hosszabb időre nézzük meg a rendszer viselkedését. Természetesen a Rabi-frekvencia függ a gerjesztő amplitúdótól ($\Omega = g_N\mu_N|B|/\hbar$). Tehát az amplitúdó növelésével a karakterisztikus idő növekszik, tehát a görbék vastagsága csökken.

5. Szimulációs és analitikus eredmények a ^{14}N esetében

A hB^{15}N eredményeit látva merült fel a gondolat, hogy a természetes előfordulási valószínűséget használva vajon milyen jelenségek kerülnek elő. Mivel a 81 dimenziós Hilbert-tér jóval számolásigényesebb, emiatt a korábban használatos *heatmap*-eket nem tudtam használni, csak az egyes metszeteket. Illetve *Mathematica* programnyelvvel is dolgoztam, hogy ki tudjam számítani, hogy milyen átmeneti valószínűségek tartoznak az egyes állapotpárokhoz, első és többedrendben egyaránt.

5.1. Szimulációs eredmények

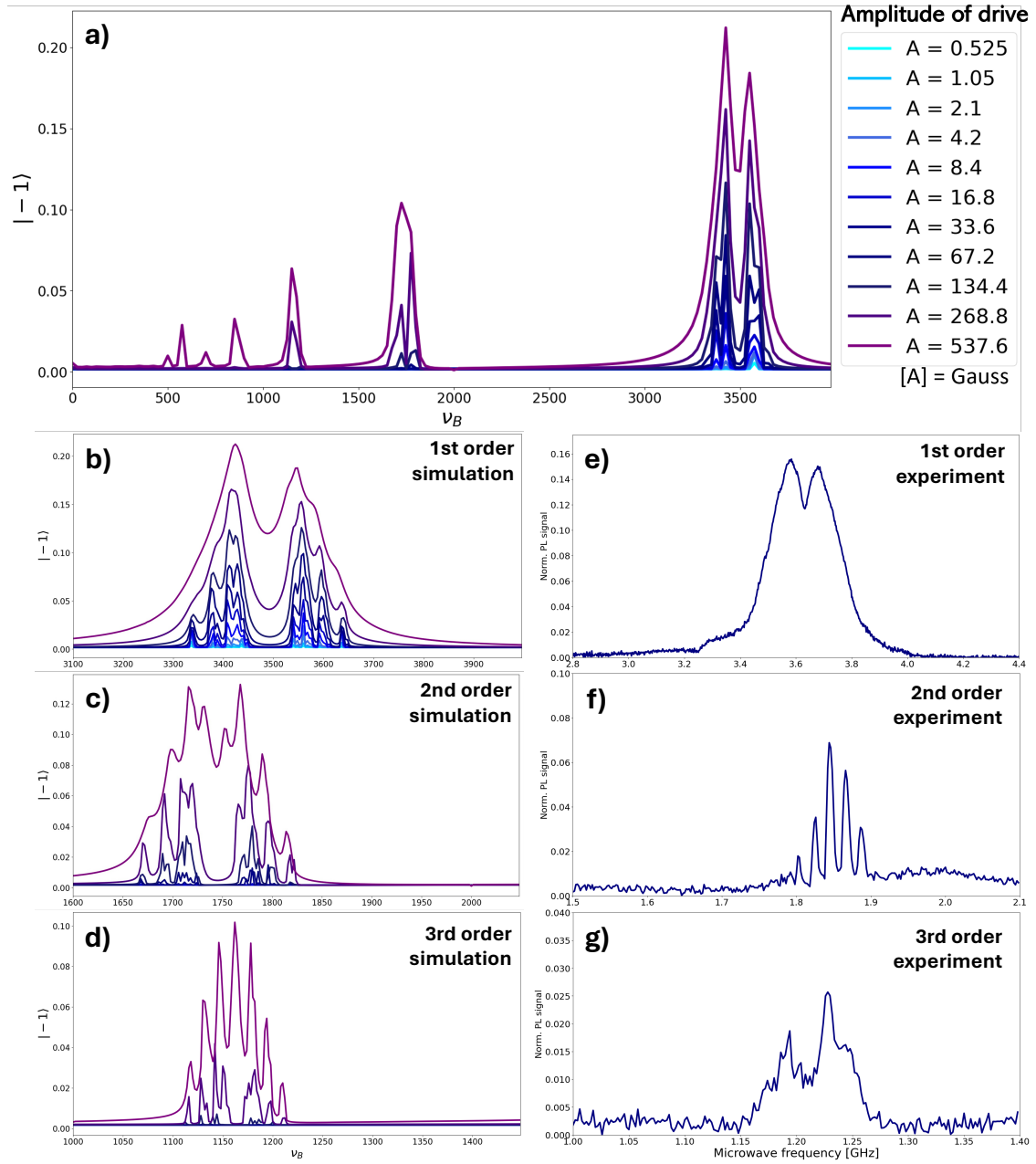
A hB^{14}N esetében is végeztem szimulációkat, melyek a tizenötös nitrogénizotóphoz hasonlóan egzakt időfejlődéssel dolgoztak. A szimulációkat $B = 0$ térnél végeztem, amit tehát azt okozza, hogy a zérus tér felhasadás miatt két ág jön létre az energiákon, egy az $m_S = 0$ kvantumszámhoz tartozóan, míg a másik pedig az $m_s = \pm 1$ -nek felel meg, amely tehát degenerált. A vizsgálataim során a többfotonos elnyelésekre fókuszáltam. A szimulációs eredmények a kísérlettel összehasonlítva a 5.1. ábrán látható.

A $|-1\rangle$ állapotra vett vetületet szintén időátlagoltam a futásokra, jelen esetben $5\ \mu\text{s}$ volt az időfejlesztés, valamint a gerjesztő tér párhuzamos a kvantálási tengellyel. A csúcsokba belenagyítva észrevehetjük a finomszerkezetet, illetve elsőrendben (5.1.a) és 5.1.e) ábrák) a két ágra való szétválás is megjelenik a szimulációkon. Ezt a kettős csúcsot a ZFS E paramétere okozza, amely abból származik, hogy a szimmetriája a rendszernek valamilyen módon torzul. A Hamilton-operátorban emiatt megjelenik egy keveredési tag (2.4b. egyenlet).

Magasabb rendekbe - amelyek több foton elnyelését jelentik - szintén jól kirajzódik a finomszerkezet, viszont csak nagyon magas gerjesztési amplitúdókra, amely nem túl reális. Ezen téma további feltérképezése még további vizsgálatokat igényel. Ugyanakkor a magasabb rendű átmeneteket meg lehet vizsgálni abból a szempontból, hogy mely állapotpárok között történik meg nagyobb eséllyel, amelynek a felderítésére időfüggő perturbációszámítást alkalmaztam, ezt tárgyalom a következő fejezetben.

5.2. Nem degenerált, időfüggő perturbációszámítás

A kutatásaim szempontjából elengedhetetlen az időfüggetlen perturbáció használata, hiszen a gerjesztő elektromágneses tér időben változó perturbációként jelenik



5.1. ábra. A $hB^{14}N$ -nel végzett szimulációk összehasonlítva a kísérleti eredményekkel. A $|-1\rangle$ -es állapotra vett projekciót ábrázoltam a gerjesztő frekvencia függvényében, nulla külső mágneses tér mellett. Az a) ábrán látható a teljes vizsgálati frekvenciatartományra futtatott szimuláció, ahol észrevehető, hogy több csúcs jelent meg. A b)-c)-d) láthatók a szimulációkból származó eredmények ránagyítva a görbékre, míg az e)-f)-g) ábrákon láthatók az ugyanezen átmenetekhez tartozó kísérleti görbék.

meg.

Az időfüggő perturbáció kezeléséhez az időfüggő Schrödinger-egyenletet fogjuk tárgyalni a következőkben. Ekkor a perturbálatlan rendszer felírható, mint

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi_t^n\rangle = \hat{H}_0 |\Psi_t^n\rangle, \quad (5.1)$$

ahol t alsó index jelöli a időfüggést. Amennyiben a H_0 időfüggetlen, a fenti egyenlet megoldása felírható mint egy időfüggő és egy időfüggetlen rész szorzata

$$|\Psi_t^n\rangle = \exp\left(-\frac{i}{\hbar} E_n(t - t_0)\right) |\Psi_{t_0}^n\rangle. \quad (5.2)$$

Észrevehetjük, hogy a $\langle \Psi_t^n | \Psi_t^n \rangle$ skalárszorzat megegyezik a $\langle \Psi_{t_0}^n | \Psi_{t_0}^n \rangle$ skalárszorzattal, hiszen az időfejlődnek megfelelő exponenciális tagok kiejtik egymást. Ezeket az állapotokat stacionáriusnak nevezzük, tekintettel arra, hogy a belső szorzatuk időben állandó. Ekkor ha hattatunk egy $\hat{V}_t$ időfüggő perturbációt a rendszerre, akkor a Schrödinger-egyenlet a következőképp módosul

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi_t^n\rangle = (\hat{H}_0 + \hat{V}_t) |\Psi_t^n\rangle \quad (5.3)$$

Az ilyen alakú egyenletek a legegyszerűbb esetben is gyakorlatilag megoldhatatlanok. A sajátállapotok a perturbáció hiányában is időben változók voltak, a (5.2) egyenletben látható $\omega_n = \frac{E_n}{\hbar}$ frekvenciával forogtak a Hilbert-téren. Annak érdekében, hogy időben változatlan állapotokkal kelljen dolgozni, végrehajtjuk az alábbi transzformációt,

$$|\Psi_t^n\rangle = \exp\left(-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 t\right) |\Psi^n(t)\rangle. \quad (5.4)$$

Ha így behelyettesítjük a $|\Psi_t^n\rangle$ -t a (5.3) egyenletbe, akkor eredményül kapjuk a következőt,

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi^n(t)\rangle = \exp\left(+\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 t\right) \hat{V}_t \exp\left(-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 t\right) |\Psi^n(t)\rangle = \hat{V}(t) |\Psi^n(t)\rangle \quad (5.5)$$

A fentebbi kifejezést nevezzük *kölcsönhatási képnek*. Észrevehetjük, ha a perturbáló operátor nulla, akkor

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi^n(t)\rangle = 0 \quad (5.6)$$

egyenlőségre redukálódik a kifejezés, amelynek a megoldásai időben állandó állapotok, tehát $|\Psi^n(t)\rangle = |\Psi^n(t_0)\rangle$.

A $\hat{V}_t \neq 0$ esetet jobban megvizsgálva, a (5.5) egyenletet integrálva megkapjuk a

következőt a $|\Psi^n(t)\rangle$ állapotra,

$$|\Psi^n(t)\rangle = |\Psi^n(t_0)\rangle + \frac{1}{i\hbar} \int_{t_0}^t dt_1 \hat{V}(t_1) |\Psi^n(t_0)\rangle. \quad (5.7)$$

Láthatjuk, hogy az ismeretlen $|\Psi^n(t)\rangle$ állapot megjelenik az integrálban, tehát egy rekurzív egyenletet kaptunk. Ha beírjuk a $|\Psi^n(t)\rangle$ helyére az előbb kapott eredményt, akkor iteratív módon tudunk közelíteni a $|\Psi^n(t)\rangle$ hullámfüggvényt,

$$|\Psi^n(t)\rangle = |\Psi^n(t_0)\rangle + \frac{1}{i\hbar} \int_{t_0}^t dt_1 \hat{V}(t_1) |\Psi^n(t_0)\rangle + \frac{1}{(i\hbar)^2} \int_{t_0}^t dt_1 \hat{V}(t_1) \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \hat{V}(t_2) |\Psi^n(t_0)\rangle + \dots \quad (5.8)$$

Annak a valószínűsége, hogy a rendszer az $|\Psi^f\rangle$ állapotba ugrik a mérés során, meg egyezik a c_f együttható négyzetével, amely kiszámítható a $|\Psi^f\rangle$ és a $|\Psi^n(t)\rangle$ skaláris szorzataként,

$$c_f = \langle \Psi^f | \Psi^n(t) \rangle. \quad (5.9)$$

A továbbiakban a kezdeti állapotot, tehát $|\Psi^n(t_0)\rangle$ -t $|s\rangle$ -sel jelölöm, illetve a végállaptra pedig, mint $|f\rangle$ fogok hivatkozni.

Ekkor tehát beszorozva balról skalárisan az $\langle f|$ vektorral a (5.8) egyenletet a következőt kapjuk

$$c_f = \langle f | \Psi^n(t) \rangle = \underbrace{\langle f | s \rangle}_{=0} + \underbrace{\frac{1}{i\hbar} \int_{t_0}^t dt_1 \langle f | \hat{V}(t_1) | s \rangle}_{\text{Első rend}} + \underbrace{\frac{1}{(i\hbar)^2} \int_{t_0}^t dt_1 \langle f | \hat{V}(t_1) \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \hat{V}(t_2) | s \rangle}_{\text{Másodrend}} + \dots \quad (5.10a)$$

$$c_f = \frac{1}{i\hbar} \int_{t_0}^t dt_1 \langle f | \hat{V}(t_1) | s \rangle + \frac{1}{\hbar^2} \int_{t_0}^t dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \langle f | \hat{V}(t_1) \hat{V}(t_2) | s \rangle + \dots \quad (5.10b)$$

Általános rendű járulék a következőképpen írható fel

$$c_f^{(n)} = \int_{t_0}^t dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \cdots \int_{t_0}^{t_{n-1}} dt_n \langle f | \prod_{k=1}^n \hat{V}(t_k) | s \rangle. \quad (5.10c)$$

5.2.1. Elsőrendű átmenet

Visszatérve a kölcsönhatási képből a Schrödinger-képbe, a $\hat{V}(t_n)$ operátorok helyébe $\exp\left(+ (i/\hbar) \hat{H}_0 t\right) \hat{V}_t \exp\left(- (i/\hbar) \hat{H}_0 t\right)$ -t kell beírni. Mivel a $\hat{H}_0$ -nak, mind $|s\rangle$, mind pedig $|f\rangle$ a sajátvektora, ezért az exponencializált Hamilton-operátornak is, amely így a sajátértékek exponenciálisát adja. Emiatt az első rend az alábbiak szerint

írható,

$$c_f^{(1)} = \frac{1}{i\hbar} \int_{t_0}^t dt_1 \langle f | \hat{V}(t_1) | s \rangle = \frac{1}{i\hbar} \int_{t_0}^t dt_1 \langle f | \exp\left(+i/\hbar \hat{H}_0 t\right) \hat{V}_t \exp\left(-i/\hbar \hat{H}_0 t\right) | s \rangle \quad (5.11a)$$

$$c_f^{(1)} = \frac{1}{i\hbar} \int_{t_0}^t dt_1 \langle f | \hat{V}_t | s \rangle e^{(i/\hbar)E_f t} e^{-(i/\hbar)E_s t}. \quad (5.11b)$$

Első körben a perturbáló operátort úgy tekintjük, mintha egy bekapcsolási felfutást írna le, tehát $\hat{V}_t = \hat{V}e^{\eta t}$, ahol $\eta \ll 1$. Ezt a típusú időfüggést behelyettesítve, illetve az integrál elvégzése után azt feltételeve, hogy a kezdeti időpillanat $t_0 = -\infty$, az alábbi kifejezést kapjuk eredményül

$$\langle f | \Psi^n(t) \rangle = \langle f | \hat{V} | s \rangle \frac{\exp\left(\frac{i}{\hbar}(E_f - E_s)t + \eta t\right)}{(E_f - E_s) + i\hbar\eta}. \quad (5.11c)$$

Ahhoz, hogy átmeneti valószínűségeket kapjunk a(5.11c) egyenlet abszolútérték négyzetét kell venni

$$|c_f^{(1)}|^2 = |\langle f | \hat{V} | s \rangle|^2 \frac{e^{2\eta t}}{(E_f - E_s)^2 + (\hbar\eta)^2}. \quad (5.12a)$$

Az $|s\rangle$ és a $|f\rangle$ állapotok közötti átmeneti rátát úgy kapjuk meg, mint a skalárszorzat időderiváltját

$$\Gamma_{|s\rangle \rightarrow |f\rangle} = \frac{d}{dt} |c_f^{(1)}|^2 = |\langle f | \hat{V} | s \rangle|^2 \left(\frac{2\eta}{(E_f - E_s)^2 + (\hbar\eta)^2} \right) e^{2\eta t}. \quad (5.13)$$

Ha az η -nak, mint a perturbáló potenciál "bekapcsolási" paraméternek vesszük a határértékét, $\eta \rightarrow 0^+$, akkor végeredményül megkapjuk a Fermi-féle aranyszabályt,

$$\Gamma_{|s\rangle \rightarrow |f\rangle} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle f | \hat{V} | s \rangle|^2 \delta(E_f - E_s). \quad (5.14)$$

5.2.2. Másodrendű átmenet

A magasabb rendekhez tartozó képletek levezetése a TDK munkám részét képezték. Az alábbiakban a levezetések legfontosabb lépéseit, illetve a végeredményeket írom le. Az utóbbiakat a TDK munkám második felében, a numerikus számolások során használtam.

A (5.10a) egyenlet másodrendjébe beírva a Schrödinger-képbe való áttéréshez szükséges exponenciális tagokat, az alábbi fomulát kapjuk

$$c_f^{(2)} = \frac{1}{\hbar^2} \int_{t_0}^t dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \langle f | \hat{V}(t_1) \hat{V}(t_2) | s \rangle = \quad (5.15a)$$

$$= \frac{1}{\hbar^2} \int_{t_0}^t dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \langle f | e^{+\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 t_1} \hat{V}_t e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 t_1} e^{+\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 t_2} \hat{V}_t e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 t_2} | s \rangle$$

Az egyenletbe be tudunk szűrni egy identitás operátort, mint a Hilbert-tér bázis állapotainak önmagukkal vett diadikus szorzatainak összege ($\hat{I} = \sum_m |m\rangle \langle m|$),

$$c_f^{(2)} = \frac{1}{\hbar^2} \int_{t_0}^t dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \langle f | e^{+\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 t_1} \hat{V}_t e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 t_1} \underbrace{\sum_m |m\rangle \langle m|}_{\hat{I}} e^{+\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 t_2} \hat{V}_t e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 t_2} | s \rangle. \quad (5.15b)$$

Az összegzést ki lehet vinni az integrál elé, illetve az exponencializált Hamilton-operátorok hatását beírva a következő egyenletre jutunk,

$$c_f^{(2)} = \frac{1}{\hbar^2} \sum_m \int_{t_0}^t dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \langle f | \hat{V}_t | m \rangle \langle m | \hat{V}_t | s \rangle \exp\left(\frac{i}{\hbar} (E_f - E_m) t_1\right) \exp\left(\frac{i}{\hbar} (E_m - E_s) t_2\right). \quad (5.15c)$$

A perturbáló operátor továbbra is csak $e^{\eta t}$ alakban függ az időtől, amelyet szintén ki lehet vinni a mátrixelemen kívülre,

$$\frac{1}{\hbar^2} \sum_m \int_{t_0}^t dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \langle f | \hat{V}_t | m \rangle \langle m | \hat{V}_t | s \rangle \exp\left(\frac{i}{\hbar} ((E_f - E_m) t_1 + (E_m - E_s) t_2)\right) e^{\eta(t_1+t_2)}. \quad (5.15d)$$

Az integrálokat elvégezve és újfent azt feltételezve, hogy $t_0 \rightarrow -\infty$, az alábbi kifejezést kapjuk eredményként,

$$c_f^{(2)} = \sum_m \left[\langle f | \hat{V} | m \rangle \langle m | \hat{V} | s \rangle \frac{\exp\left[\left(\frac{i}{\hbar} (E_f - E_s) + 2\eta\right) t\right]}{\left(\frac{i}{\hbar} (E_f - E_s) + 2\eta\right) \left(\frac{i}{\hbar} (E_m - E_s) + \eta\right)} \right]. \quad (5.15e)$$

Majd ha vesszük ennek az abszolútérték négyzetét, illetve az időderiváltat, majd elvégezzük az η -ra vonatkozó határérték kiszámítását, akkor a következő egyenletre jutunk,

$$\Gamma_{|s\rangle \rightarrow |f\rangle}^{(2)} = \left| \sum_m \frac{\langle f | \hat{V} | m \rangle \langle m | \hat{V} | s \rangle}{(E_m - E_s)} \right|^2 \frac{2\pi}{\hbar} \delta(E_f - E_s). \quad (5.15f)$$

5.2.3. Harmadrendű átmenet

Ha harmadrendű közelítésben felírjuk a kifejtési együtthatót, akkor már három integrált kell elvégezni,

$$c_f^{(3)} = \frac{1}{(i\hbar)^3} \int_{t_0}^t dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \int_{t_0}^{t_2} dt_3 \langle f | \hat{V}(t_1) \hat{V}(t_2) \hat{V}(t_3) | s \rangle. \quad (5.16)$$

A fentiekhez hasonlóan elvégezve a levezetést az átmeneti rátára az alábbi eredményt kapjuk,

$$\Gamma_{|s\rangle \rightarrow |f\rangle}^{(3)} = \left| \sum_m \sum_l \frac{\langle f | \hat{V} | m \rangle \langle m | \hat{V} | l \rangle \langle l | \hat{V} | s \rangle}{(E_l - E_s)(E_m - E_s)} \right|^2 \frac{2\pi}{\hbar} \delta(E_f - E_s). \quad (5.17)$$

5.2.4. n -ed rendű átmenet

Általános n -ed rendre is levezethető az átmeneti ráta. Ehhez át kell térnünk a kicsit más jelölésekre, mely szerint a kiindulási állapot legyen $|0\rangle := |s\rangle$, valamint a végállapot pedig legyen $|f\rangle := |m_n\rangle$

$$\Gamma_{|s\rangle \rightarrow |f\rangle}^{(n)} = \left| \sum_{\{m_1; m_2; \dots; m_{k-1}\}} \langle m_n | \hat{V} | m_{k-1} \rangle \prod_{j=0}^{k-1} \frac{\langle m_{j+1} | \hat{V} | m_j \rangle}{E_{m_{j+1}} - E_0} \right|^2 \frac{2\pi}{\hbar} \delta(E_n - E_0). \quad (5.18)$$

5.3. Elsőrendű átmenet ω frekvenciájú gerjesztés jelenlétében

Ha a rendszerre hattatunk egy külső ω frekvenciájú gerjesztést, akkor a perturbáló operátorban a következő tag is megjelenik,

$$\hat{V}_t = \hat{V} e^{\eta t} \cos(\omega t). \quad (5.19)$$

Ekkor az integrálok is kiegészülnek a (5.19) egyenletben szereplő időfüggő taggal, amelyeknek így az eredménye sokkal bonyolultabb lesz. Az elsőrendű kifejtési együtthatóra a következő egyenletet kapjuk,

$$c_f^{(1)} = \langle f | \hat{V} | s \rangle \left(\frac{\exp\left(\frac{i}{\hbar}(E_f - E_s + \hbar\omega)\right) e^{\eta t}}{i/\hbar(E_f - E_s + \hbar\omega) + \eta} + \frac{\exp\left(\frac{i}{\hbar}(E_f - E_s - \hbar\omega)\right) e^{\eta t}}{i/\hbar(E_f - E_s - \hbar\omega) + \eta} \right). \quad (5.20)$$

A fentebbi eljárást követve az átmeneti rátára megkapjuk a következőt,

$$\Gamma_{|s\rangle \rightarrow |f\rangle}^{(1)} = \frac{2\pi}{\hbar} \left| \langle f | \hat{V} | s \rangle \right|^2 (\delta(E_f - E_s + \hbar\omega) + \delta(E_f - E_s - \hbar\omega)). \quad (5.21)$$

Ekkor abszorpciót ír le a $-\hbar\omega$ tagot tartalmazó Dirac- δ , illetve emissziót a $+\hbar\omega$ tagot tartalmazó.

5.3.1. Többrendű átmenetek ω frekvenciájú gerjesztés jelenlétében

A másodrendre is levezethető az átmeneti ráta,

$$\Gamma_{|s\rangle \rightarrow |f\rangle}^{(2)} = \left| \sum_m \frac{\langle f|\hat{V}|m\rangle \langle m|\hat{V}|s\rangle}{(E_m - E_s)} \right|^2 \frac{2\pi}{\hbar} \left[\delta\left(\frac{E_f - E_s}{2} \pm \hbar\omega\right) + \delta(E_m - E_s \pm \hbar\omega) \right]. \quad (5.22)$$

A fentebbiekhez hasonlóan a harmadrendű átmeneti rátája

$$\Gamma_{|s\rangle \rightarrow |f\rangle}^{(3)} = \left| \sum_m \sum_l \frac{\langle f|\hat{V}|m\rangle \langle m|\hat{V}|l\rangle \langle l|\hat{V}|s\rangle}{(E_l - E_s)(E_m - E_s)} \right|^2 \times \left[\delta\left(\frac{E_f - E_s}{3} \pm \hbar\omega\right) + \delta\left(\frac{E_l - E_s}{2} \pm \hbar\omega\right) + \delta(E_m - E_s \pm \hbar\omega) + \delta(E_l - E_m \pm \hbar\omega) \right]. \quad (5.23)$$

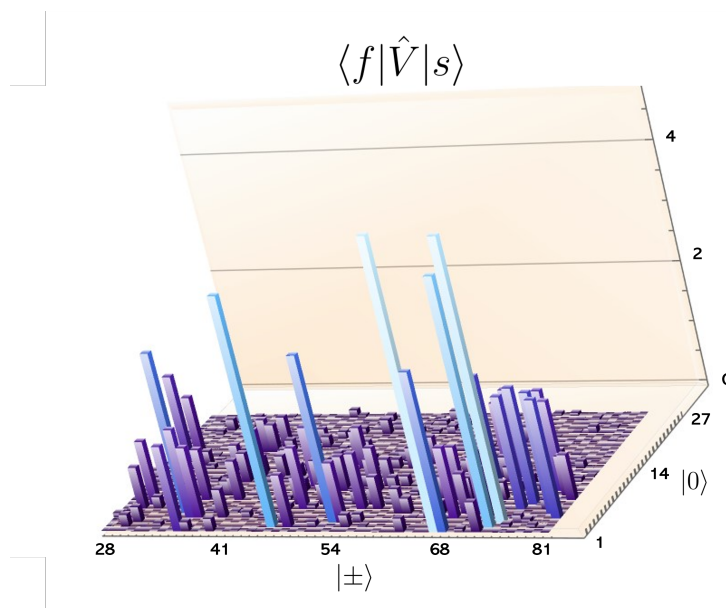
Láthatjuk, hogy megjelentek az energiakülönbségek egész számú hányadosa, tehát olyan energiájú fotonokat fog elnyelni a rendszer, amelyek a teljes átmenethez szükséges energiának a fele, harmada vagy általánosságban az n -ed része.

5.4. Mátrixelem számítás *Mathematica*-val

A kutatás során vizsgált fizikai modellt a *Mathematica* programnyelvben implementáltam és a numerikus számításokat is ott végeztem el. A programmal a (5.21), (5.22), illetve a (5.23) egyenletben olvasható mátrixelemeket számítottam ki az összes lehetséges kiindulási és végállapot párra. Jelen esetben olyan Hamilton-operátort építettem fel, amely $B = 0$ mágneses térnél, és a ZFS-ben található E paraméter jelenléte mellett írja le a rendszert. Ez azért fontos, mivel így két ágra hasad szét a spektrum.

Ezen Hamilton-operátornak a sajátértékegyenletének megoldásakor a programnyelv az energiák abszolútértéke szerint, csökkenő sorrendben rendezi a sajátvektorokat, és a hozzájuk tartozó energiákat, éppen ezért az $m_s = 0$ állapotok - amelyeknek az energiájuk abszolútértékben a legmagasabb - lesznek az első 27 indexhez tartozó állapotok (a huszonhét-szeres degeneráció miatt az energiák nem nagyon különböznek egymástól). Illetve a 28 – 81 indexű állapotok pedig a $|\pm\rangle$ -nak felel meg. Minden egyes olyan állapotpárhoz, ahol $|s\rangle$ valamelyik $m_s = 0$ -hoz tartozó vektor, illetve $|f\rangle$ pedig $m_s \neq 0$ kvantumszámú állapot, tartozó mátrixelemek láthatók oszlopdi-

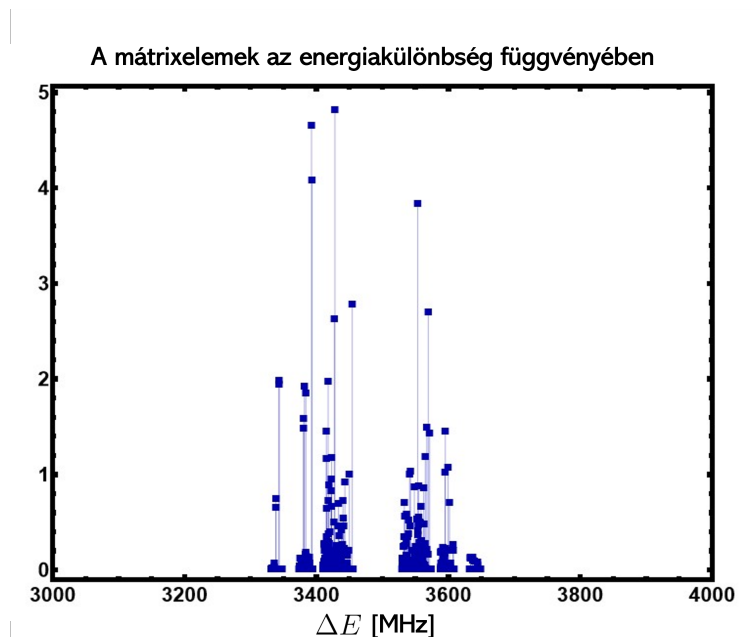
agramként a (5.2) ábrán. Ezeket a mátrixelemeket ugyanakkor lehet ábrázolni az



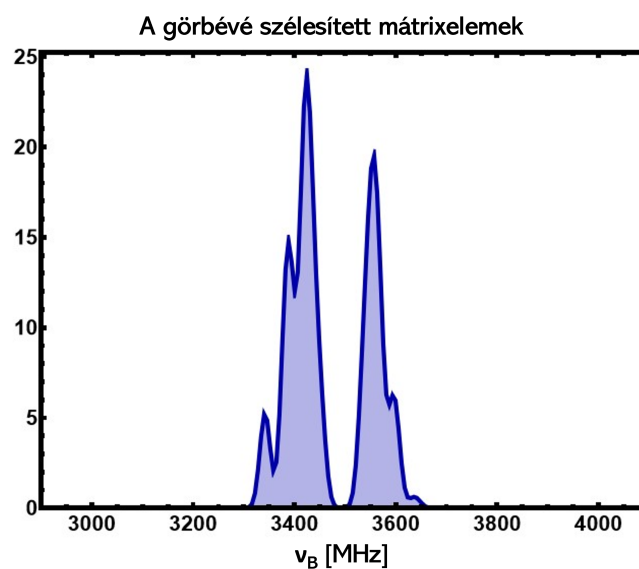
5.2. ábra. A képen az átmeneti mátrixelemek láthatók az indexek függvényében. A *Mathematica* nyelv úgy rendezte sorba az állapotokat, hogy a $|0\rangle$ állapotok találhatóak az 1 – 27 indexű helyeken, a $|\pm\rangle$ állapotok pedig a 28 – 81 indexszel ellátott helyeken.

átmenetekhez tartozó energiakülönbségek függvényében is, amely a (5.3) ábrán látható. Mivel jelen esetben csak bizonyos értékeket ábrázolunk, ezért diszkrét vonalak jelennek meg az egyes energiakülönbségeknél. Tekintettel arra, hogy a kísérletekben a mikrohullámú gerjesztés hatására az átmenetek nem egy végtelen keskeny csúcsként jelennek meg, hanem kiszélesednek, ezért én is lecseréltem minden egyes elemet egy azonos magasságú és $\sigma = 5$ MHz szórású Gauss-görbével. Ezek a kiszélesedett görbék, amelyre egy példa látható a (5.4) ábrán, jól közelítik a kísérletekben megjelenő elektronspin spektrumokat. A kísérleti mérésekből származó görbe a 5.5. ábrán látható. Az ábrázolt görbének az integrálja arányos az átmeneti valószínűséggel.

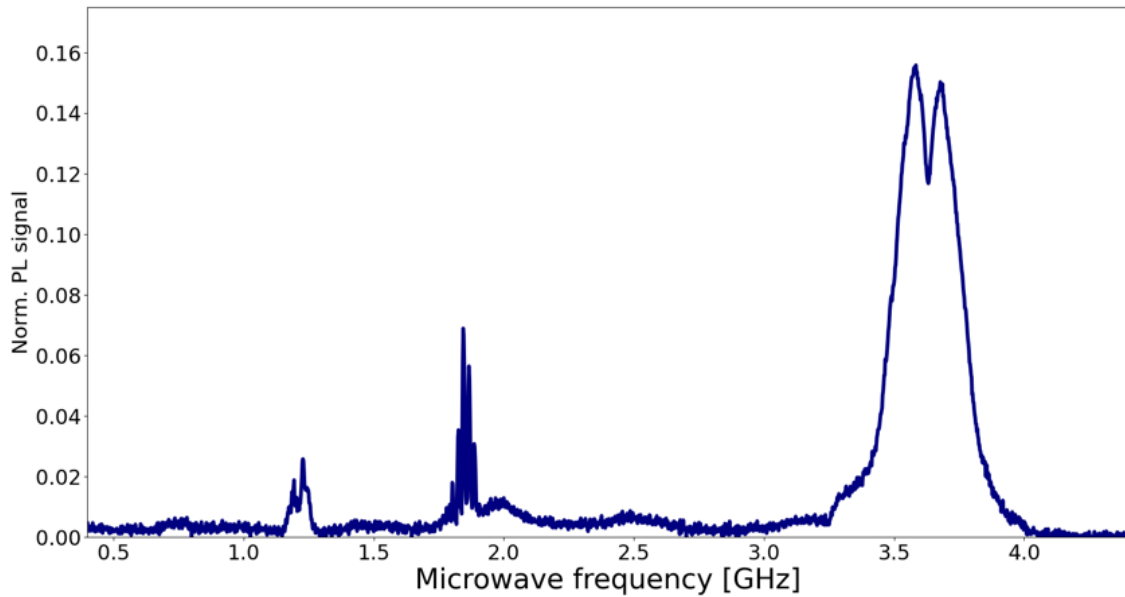
A dolgozatomban feltérképezem, hogy a mátrixelemekre, illetve az átmenetekre milyen hatással van a hiperfinom kölcsönhatás nagysága. Továbbá azt is igyekeztem feltárni, hogy milyen módon befolyásolja a kvantálási tengely és a külső mágneses gerjesztésnek a bezárt szöge a rendszerben történő átmenetek valószínűségét. Ezt azért fontos felderíteni, mert alapvetően a várakozás az, hogy amikor az MW párhuzamos a kvantálási tengellyel, akkor nem tud átmenetet gerjeszteni, mivel a perdületmegmaradás nem teljesülne, ugyanakkor meg fogjuk látni, hogy mégis valamilyen módon megengedetté válnak ilyen szögű gerjesztő tér esetében is az átmenetek. Ezek felderítésére skáláztam a hiperfinom tenzornak mind a transzverzális, mind a pár-



5.3. ábra. A mátrixelemek az energiakülönbség szerint ábrázolva. Látható, hogy bizonyos energiáknál sűrűsödnek be az átmeneti mátrixelemek.



5.4. ábra. Ahhoz hogy megkapjuk a spektrumot, kiszélesítjük a mátrixelemeket. Minden egyes mátrixelemet beszoroztam egy Gauss-eloszlással, és minden egyes pontban az adott értékeket összeadtam, így jöttek létre a mátrixelemekből a spektrumok



5.5. ábra. A Montpellier-i Egyetem kutatói által készített mérési eredmények, amely reprodukálásán dolgoztam. A fő elnyeléshez tartozó csúcs láthatóan jóval nagyobb intenzitásbeli esést okozott, mint a többi megjelenő jel, valamint két alcsúcsra is szétválík, amely a ZFS kölcsönhatásban fellelhető E paraméter, a szimmetriának a torzításából következik.

huzamos komponenseit, valamint különböző gerjesztési szögekre is megvizsgáltam a spektrumokat, és a spektrumok alatti területeket.

5.5. A hiperfinom állandóktól való függés

5.5.1. A sajátértékek változása a hiperfinom kölcsönhatás következtében

A kutatásom egyik célja volt, hogy feltérképezzem, hogy a hiperfinom kölcsönhatás milyen mértékben, és milyen módon befolyásolja az átmeneteket.

Tekintettel arra, hogy a hiperfinom kölcsönhatás két részre bontható, egy a kvantálási tengelyre merőleges és azzal párhuzamos részre, az átmenetek ezen hiperfinom kölcsönhatásoktól való függését jártam kicsit körül. A (2.9b) egyenletben látható a hiperfinom tenzor felírva. A célom az volt, hogy az egyes részekhez tartozó komponensek növelésével illetve csökkentésével változtassam a kölcsönhatás erősségét. Erre bevezettem az α_{para} és az α_{perp} együtthatókat. Az $\hat{A}$ tenzor zz komponense a szekuláris tagja, avagy a párhuzamos tag, illetve az összes többi komponens pedig a nem-szekuláris tag, vagy a merőleges rész. Az együtthatók bevezetését követően a

hiperfinom tenzor az alábbi módon nézni ki,

$$\hat{A} = \begin{pmatrix} \alpha_{perp}A_{xx} & \alpha_{perp}A_{xy} & \alpha_{perp}A_{xz} \\ \alpha_{perp}A_{yx} & \alpha_{perp}A_{yy} & \alpha_{perp}A_{yz} \\ \alpha_{perp}A_{zx} & \alpha_{perp}A_{zy} & \alpha_{para}A_{zz} \end{pmatrix}. \quad (5.24)$$

Ezekkel az újonnan bevezetett együtthatókkal jól nyomon lehet követni a rendszer viselkedésének változását. Elsőként az α_{para} komponenst változtattam.

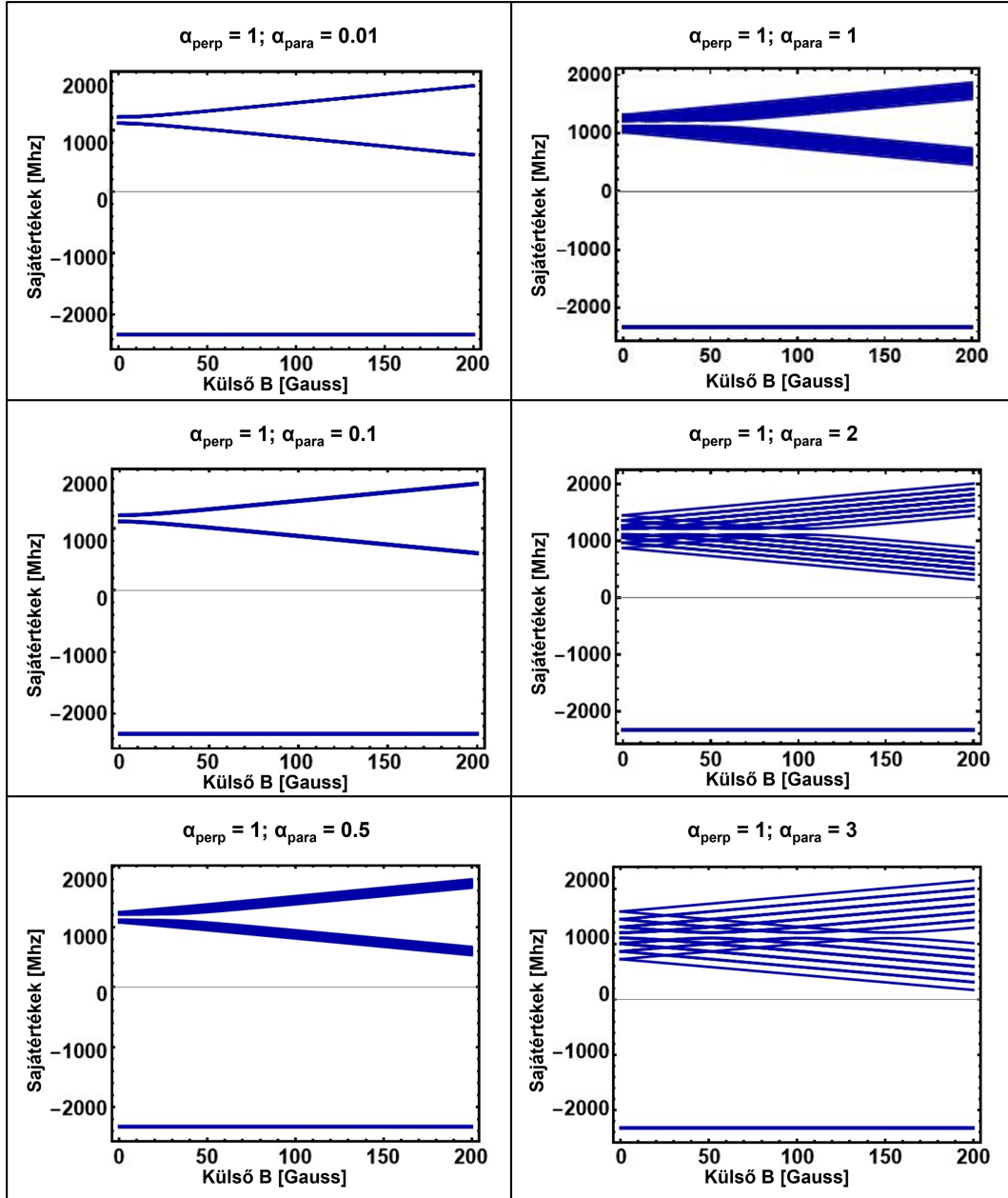
Az α_{para} az $\hat{I}_z$ operátor által, a magspinek állapotai közt megjelenő felhasadás nagyságát változtatja. Látható a (5.6) ábrán, hogy különböző α_{para} értékekre milyen módon változnak meg az energiaszintek. Fontos megemlíteni, hogy a $m_s = \pm 1$ mágneses kvantumszámokhoz tartozó ágak "taszítják" egymás, amikor összeértek volna, ezt nevezik *avoided-crossing*-nak, vagy pedig *anticrossing*-nak. Ez a ZFS E paraméterének a hatása.

5.5.2. Hiperfinom okozta keveredése az állapotoknak

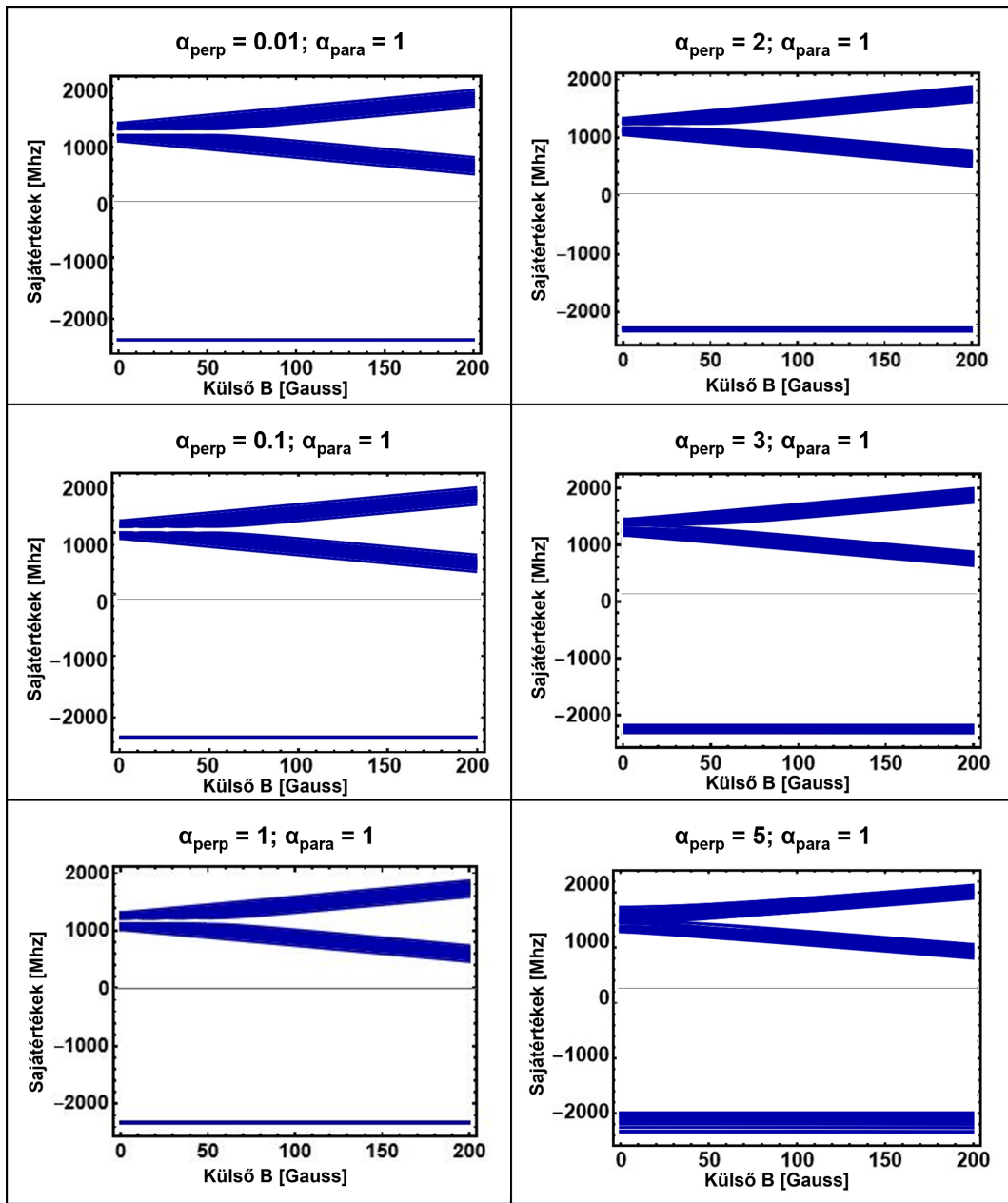
A 4. fejezetben olvasható keveredést jelen esetben is megvizsgáltam. Nevezzük át a 4.4a és 4.4b egyenletekből levezetett $|-\rangle$ vektort $|0\rangle$ állapotra. Ez az állapot felel meg az $m_s = 0$ -nak. Illetve a további két sajátállapotot fogom jelölni $|\pm\rangle$ -szal.

Fontos megemlíteni, hogy alapvetően az m_s kvantumszámokhoz tartozó állapotok (a $|\pm 1\rangle$ állapotok) külső statikus mágneses tér hiányában összekeverednek, mivel a zérus tér felhasadásban az E paraméter nem nulla, így létrejön a $|\pm\rangle = \frac{|-1\rangle \pm |+1\rangle}{\sqrt{2}}$ állapotok. Ugyanakkor nem csak ezek az $m_s \neq 0$ állapotok keverednek egymással, hanem a hiperfinom kölcsönhatás következtében a $|0\rangle$ és a $|\pm\rangle$ állapotok (lásd 5.6. ábra.) Tehát, esetünkben a hiperfinom kölcsönhatás jelenik meg mint perturbáció, így az új Hamilton-operátor $m_s = 0$ sajátállapotaiban megjelennek a $|\pm\rangle$ állapotok valamekkora keveredési együtthatóval. Ezen együtthatókat olyan módon lehet kiszámolni, hogy a perturbált Hamilton-operátor sajátértékproblémáját megoldva a sajátvektorokból megalkotjuk az egyes állapotokhoz tartozó sűrűségoperátorokat, úgymint $\hat{\rho}_k = |\psi_k\rangle \langle \psi_k|$. Mivel a $|\psi_k\rangle$ vektorok az $m_s = 0$ kvázi-degenerált altéren nem tiszták, hanem $\sqrt{1-|\gamma|^2}|0\rangle + \gamma(|+1\rangle + |-1\rangle)/\sqrt{2}$ formájúak - ahol $\gamma \in \mathbb{C}$ -, ezért lesz egy nem nulla mértékű projekciójuk a perturbálatlan Hamilton-operátor $|+1\rangle |-1\rangle$ sajátállapotaira.. A projekciókat az alábbi módon tudjuk kiszámítani,

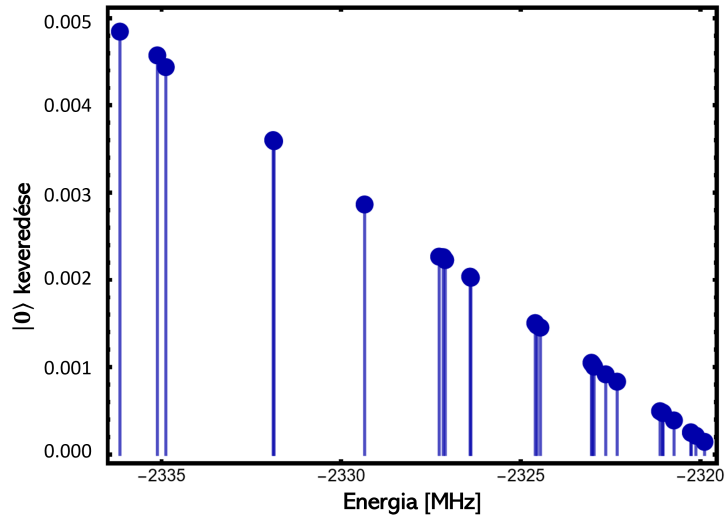
$$\hat{P}_{\pm} = \frac{1}{2}(|+1\rangle \langle +1| + |-1\rangle \langle -1|) \longrightarrow \delta_{\pm}^{(i)} = Tr \left(\hat{P}_{\pm} \hat{\rho}_i \right). \quad (5.25)$$



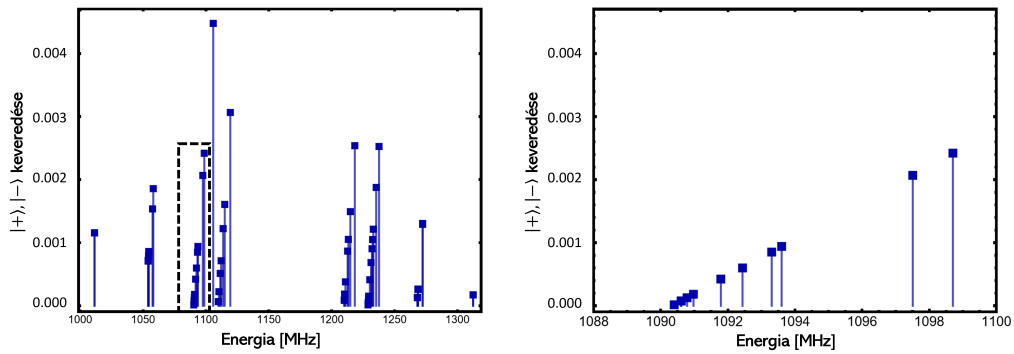
5.6. ábra. Az energiasajátértékek mágneses tér függésének változása az α_{para} együtt-ható függvényében. A hiperfinom tenzor szekuláris tagjának a változtatásával észrevehető, hogy változnak az energiaszinten felhasadása az $m_s = \pm 1$ állapotokban.



5.7. ábra. Az energiasajátértékek mágneses tér függésének változása az α_{perp} együtt-ható függvényében. A hiperfinom tenzor merőleges komponenseinek változtatásával is módosultak a sajátértékek. Ugyan a $|\pm\rangle$ ágakhoz tartozó energiákat az α_{perp} nem befolyásolta nagy mértékben, addig az $m_s = 0$ állapothoz tartozó energiákat széthasított. Ugyanakkor, az $\alpha_{\text{perp}} = 3$ és az $\alpha_{\text{perp}} = 5$ esetben észrevehető, hogy a kettős ágban megjelent *anticrossing* összemosódott, mivel az együtt-hatóval való szorzás eredményeképpen a hiperfinom tenzorban fellelhető tagok már egy nagyságrenddel nagyobb értékűek lesznek, mint az *zero field splitting* E tagja által okozott felhasadás.



5.8. ábra. A képen a $|0\rangle$ állapot keveredése a $|\pm\rangle$ állapotokkal ($\delta_{\pm}^{(i)}$) látható az egyes állapotokhoz tartozó energiaszintek függvényében ábrázolva. Észrevehető, hogy lineárisan változik az energiaszint növekedésével a keveredés mértéke.



5.9. ábra. Az ábrán a $|\pm\rangle$ állapotoknak a $|0\rangle$ -val vett keveredése látható ($\delta_0^{(j)}$). Az egyes kvázi-degenerált alterekhez (szaggatott vonallal kijelölt tartomány a bal oldali ábrán) tartozó érték észrevehetően jelen esetben is egy lineáris függvényt követnek (jobb oldali ábra).

A fenti egyenletben $\hat{\rho}_i$ jelöli az $m_s = 0$ kvázi-degenerált altérbeli sajátállapotok sűrűségoperátorait. Ugyanilyen módon levezethető, hogy a $|+\rangle$ és a $|-\rangle$ állapotok $|0\rangle$ tartalma a következőképpen megkapható,

$$\hat{P}_0 = |0\rangle \langle 0| \longrightarrow \delta_0^{(j)} = \text{Tr} \left(\hat{P}_0 \hat{\rho}_j \right). \quad (5.26)$$

A számolt keveredési együtthatókat ábrázolhatjuk az adott állapothoz tartozó energia sajátértékek függvényében. A $|0\rangle$ állapotok keveredése a (5.8) ábrán látható, illetve a $|\pm\rangle$ vektorok $|0\rangle$ -val való keveredése szintén az energiák függvényében ábrázolva a (5.9) képen található.

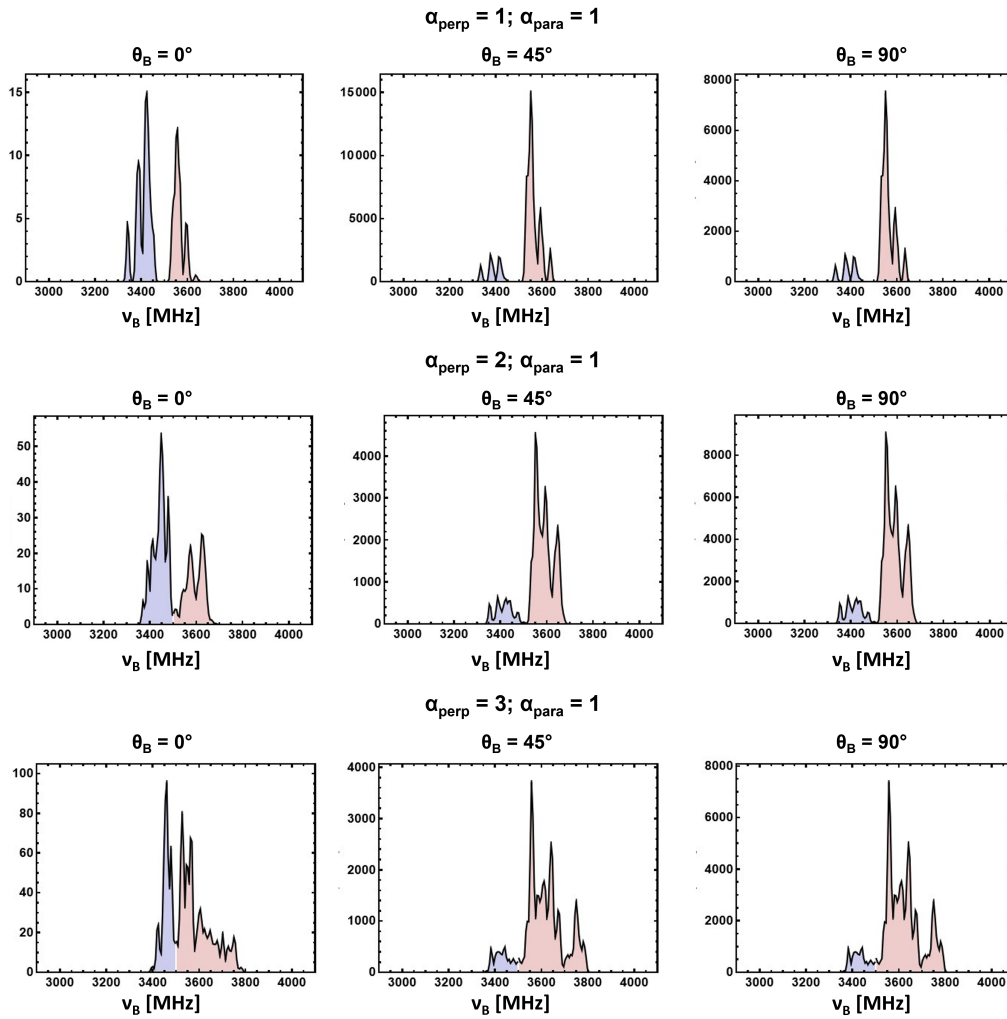
Észrevehetjük, hogy az energia függvényében a $|0\rangle$ keveredése lineárisan változik. Ez azzal magyarázható, hogy az energiák eltolódásában az off-diagonális perturbáció hatására egy $\frac{|\varepsilon|^2}{(E_a - E_b)^2}$ jelenik meg, ahogy ezt a (4.4) egyenleteknél is láthattunk. Az energia eltolódások ε abszolútérték négyzetével voltak arányosak, és ha vesszük az egyes állapotokhoz tartozó sűrűségoperátorokat, akkor a keveredés mértéke szintén a négyzetre kerül, amelyet a projekciók kihoznak. A (4.5) egyenletben láthatjuk, hogy a vektorok keveredése ε -nal arányos, így a projekciók eredményeként megjelenő értékek is ε abszolútérték négyzetével arányosak. Abból következően, hogy mind az energiák, mind pedig a projekciók értékei az $|\varepsilon|^2$ -tel arányosak, a linearitása a görbének érthető.

A $|\pm\rangle$ állapotok keveredésénél megjelennek kvázi-degenerált alterek a $\sum_{i=1}^3 I_{z,i}$ operátor várható értékei szerint (lásd (5.9) ábra), ahol a pontok felsűrűsödnek, viszont ha belenagyítunk az egyes alterekbe, ugyanolyan lineáris függést találunk, mint a $|0\rangle$ esetben.

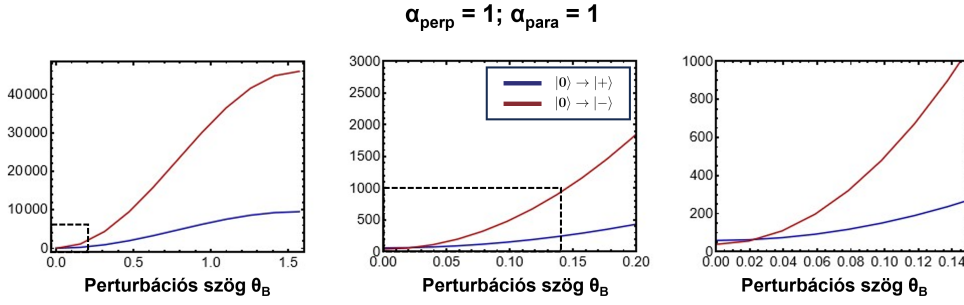
5.5.3. Rezonanciagörbék reprodukálása

A (5.21) egyenletben látható mátrixelemeket ki lehet számítani a perturbáló operátor ismeretében. Mivel a rendszer erősen függ a külső mágneses tértől, így a perturbáló operátor is erős fog függeni tőle. A perturbáló operátor a következő alakot fogja ölteni

$$\hat{V}(\theta_B) = \hat{H}_{Zeeman}^{(e^-)} + \sum_{k=1}^3 \hat{H}_{Zeeman}^{nuc,k}. \quad (5.27)$$



5.10. ábra. Az ábrán 0° , 45° , és 90° gerjesztő tér szögeknél, illetve $\alpha_{\text{perp}} = 1, 2$, és 3 skálafaktoroknál kirajzolódó spektrumok láthatók, amelyeknek a görbe alatti területével jellemezzük az átmeneti valószínűségeket.



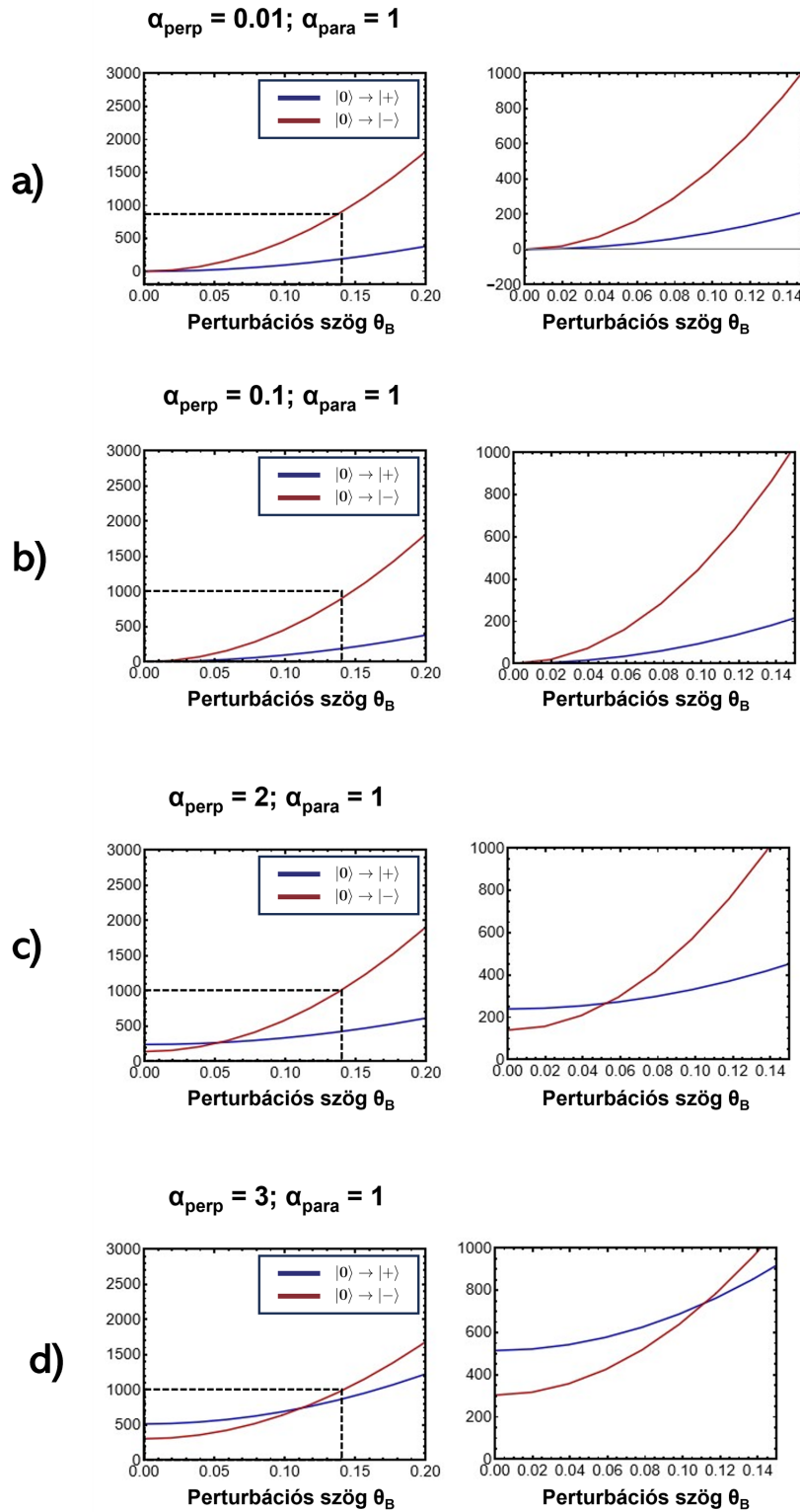
5.11. ábra. Az átmenetek valószínűségét olyan módon tudjuk mérni, hogy a spektrum görbe alatti területét kiszámítjuk. A hiperfinom állandókat az eredeti értékeiken hagyva láthatjuk, hogy a gerjesztő tér szögét növelve az átmenetek valószínűsége egyre nő.

Amelyet jobban kifejtve az alábbi egyenletet kapjuk

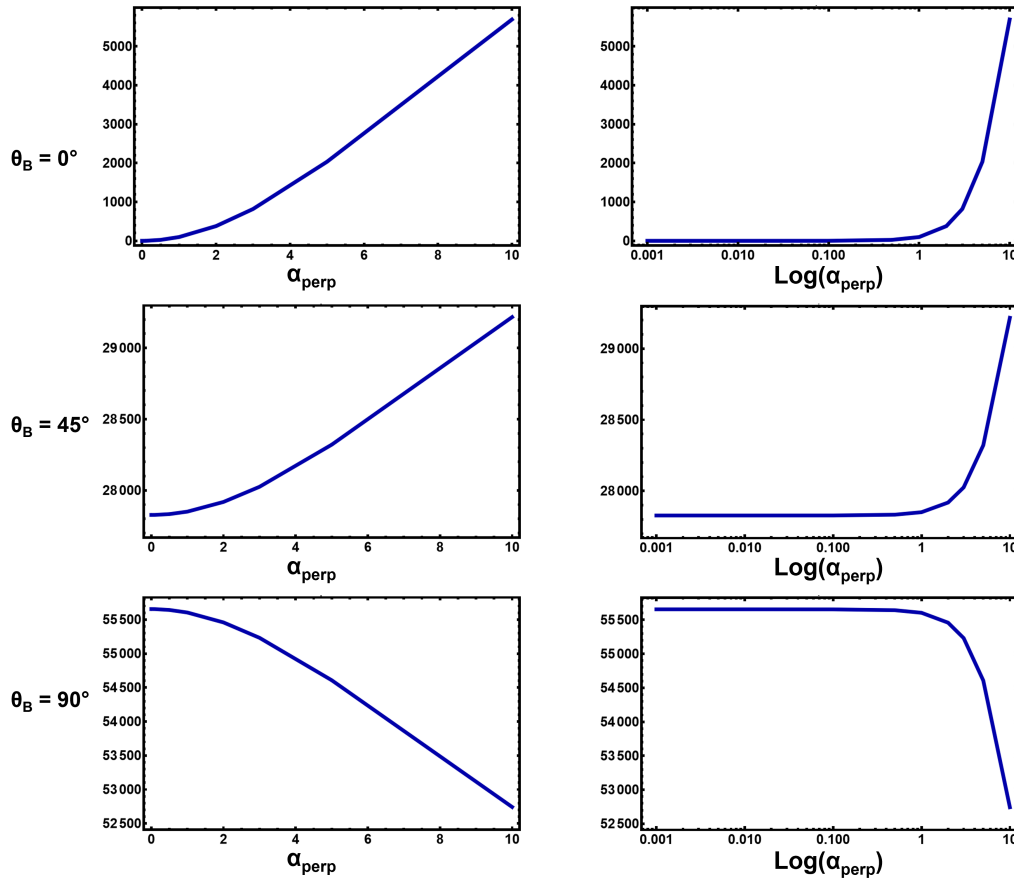
$$\begin{aligned} \hat{V}(\theta_B) = g_e \mu_B B_z \left(\cos \theta_B \hat{S}_z + \frac{1}{2} \sin \theta_B (\hat{S}_+ + \hat{S}_-) \right) + \\ \sum_{k=1}^3 g_N \mu_N B_z \left(\cos \theta_B \hat{I}_z^{(k)} + \frac{1}{2} \sin \theta_B (\hat{I}_+^{(k)} + \hat{I}_-^{(k)}) \right), \end{aligned} \quad (5.28)$$

ahol természetesen minden egyes magspin-operátor a saját alterén hat, ugyanúgy ahogy az elektronspin operátorok. Ahhoz, hogy meg tudjuk állapítani, hogy mely állapotok közötti átmenetek mekkora valószínűséggel történnek meg, ki kell számolnunk a mátrixelemeket. Esetünkben nincs szükség az összes mátrixelem meghatározására, kizárólag csak az $m_s = 0$ altér és az $m_s = \pm 1$ alterek közötti átmenetek érdekesek, mivel nem veszem figyelembe a degenerált altéren belül történő átmeneteket, illetve az $m_s = \pm 1$ altérhez tartozó $|+\rangle$ és $|-\rangle$ állapotvektorok közötti átmeneteket is figyelmen kívül hagytam. Az $m_s = 0$ altéren 27-szeres degeneráció van (a hiperfinom kölcsönhatástól eltekintve), tehát 27 kiindulási állapotunk van. A végállapotok a másik két altéren belüli állapotok, tehát belőlük 54 lehetőség van. Ennek a kiszámítását követően ábrázolhatjuk őket a hozzájuk tartozó energiakülönbségek függvényében. A spektrumok a (5.10) ábrán láthatók. Különböző szögek esetén látható, hogyan változnak a görbék alakjai, viszont egy kettéosztottság majdnem minden esetben utolérhető, amely a két különböző altérbe való gerjesztést jelenti.

egvizsgáltam különböző α_{perp} értékekre a spektrumot, mivel azt vártam, hogy a transzverzális hiperfinom kölcsönhatás növeli az átmenetek valószínűségét. Tekintettel arra, hogy a görbékből alapvetően nehéz kiolvasni az információt, ezért a probléma számszerűsítésére egy másik eljárást használtam. Kiszámolva a görbék



5.12. ábra. A hiperfinom állandók transzverzális komponenseinek együtthatóit változtatva látható, hogy változik a görbék alatti terület, tehát az átmeneti valószínűség. A $\theta_B = 0$ körüli eseteket vizsgáltuk pontosabban, ahol látható, hogy az α_{perp} növelésével az átmeneti valószínűségek növekednek, valamint az $\alpha_{\text{perp}} \rightarrow 0$ esetben pedig a görbe alatti területek a nullába tartanak, tehát nincs átmenet.



5.13. ábra. Három gerjesztési szögnél részletesebben megvizsgáltam az α_{perp} -től való függését a görbealakoknak. Az integrálok elvégzését követően a látható, hogy az α_{perp} növelésével a görbék alatti terület elszáll. A jobb oldali képeken ugyanaz látható, mint a bal oldaliakon, viszont az is észrevehető, hogy magasabb α_{perp} értékekhez 90° -nál csökkent az integrálok értéke.

alatti területet, amely az átmeneti valószínűséggel arányos számot ad. Tehát egy konstans szorzótól eltekintve a görbék alatti területekkel lehet jellemezni az átmeneti valószínűségeket. Látható, hogy a szögek növelésével a vörössel színezett csúcsok növekedtek meg, amely a $|+\rangle$ -os állapotba történő átmenetet jelenti. Fontos megemlíteni, hogy az $\alpha_{\text{perp}} = 1$ esetben könnyen kivehető 7 csúcs, viszont a bezárt szög növelésével szétválnak kisebb, sokkal vékonyabb csúcsokká, amely azzal magyarázható, hogy ezzel a háromfogású szimmetriája elromlik a rendszernek, és a (??) ábrán látható hiperfinom kölcsönhatáson keresetül történő felhasítás nem lesz igaz.

Érdemes megfigyelni, hogy milyen szögfüggése van az átmeneteknek. Ez látszik a (5.11) illetve a (5.12) ábrákon. A (5.11) ábrán látható, amikor a hiperfinom kölcsönhatást az eredeti értékeken hagytam. Minden egyes pontja a görbének az adott szöghöz tartozó spektrum görbe alatti területének felel meg, külön-külön figyelve a $|+\rangle$ és a $|-\rangle$ állapotok közötti átmenetet. Észrevehető, hogy alapvetően a $\theta_B = 0$ közelében az átmeneti valószínűségek nulla körüli értéket vesznek fel, azonban ha belenagyítunk a görbe azon részére, akkor látható, hogy nem nullák a görbe alatti területek. Ez az eredmény igen fontos, hiszen alapvetően a $\theta_B = 0$ azt jelenti, hogy a gerjesztő teret felépítő fotonok impulzus-momentuma párhuzamos a kvantálási tengellyel, tehát nem tudnak perdületet átadni az elektronnak, így nem okozhatnak az m_s kvantumszámban változást. Ez látható is a $\hat{V}(\theta_B)$ perturbáló operátor alakjából. A $\sin(\theta_B = 0)$ esetben a léptető operátorok együtthatója nulla, tehát nem tudnak léptetni a sajátállapotok között, így nem történhet átmenet. Viszont azzal, hogy a rendszer nem kizárólag egy elektronspint tartalmaz, hanem a környező nitrogén magoknak is van spinje, így azok is részt vesznek gerjesztési folyamatban, és átmenetek tudnak megvalósulni. Ha megnézzük a (5.12) ábrát, akkor látszik, hogy az $\alpha_{\text{perp}} = 0.01$ esetben - amikor majdnem nullának vehető a hiperfinom kölcsönhatás transzverzális komponense - a $\theta_B = 0$ esetben nullából indulnak a görbék, tehát nem indukálódtak átmenetek. Viszont az α_{perp} -et növelve a görbék kiindulási pontjai egyre magasabban helyezkedtek el.

Ugyanakkor azt is láthatjuk, hogy ha történik átmenet $\theta_B = 0$ közelében, akkor a kék görbék magasabban vannak, amelyek a $|0\rangle \rightarrow |+\rangle$ állapotváltásoknak felelnek meg, ugyanakkor a perturbáló szög növelésével lesz egy metszéspontja a $|+\rangle$ és a $|-\rangle$ állapotvektorokhoz tartozó görbéknek, tehát megváltozik az arány, és nagyobb eséllyel fog a rendszer beugrani $|0\rangle$ -ból a $|-\rangle$ -ba, mint a $|+\rangle$ -ba.

Azt is megfigyelhetjük, hogy milyen valószínűséggel történik átmenet, ha az egész spektrumra integrálunk. Az erről kapott eredmények a (5.13) ábrán láthatók. Három különböző gerjesztési szögnél figyeltem meg, hogy az egyes α_{perp} értékekhez mekkora görbe alatti terület tartozik, és ezeket ábrázoltam az adott α_{perp} -ek

függvényében. Az első oszlopban az eredeti α_{perp} látható az x tengelyen, a második oszlopban pedig az α_{perp} tízes alapú logaritmusa. Észrevehető, hogy az első két esetben, tehát $\theta_B = 0^\circ$, és $\theta_B = 45^\circ$ szögeknél a görbe monoton növekvő, tehát a hiperfinom kölcsönhatás nagysága monoton növeli az átmenetek valószínűségét, viszont $\theta_B = 90^\circ$ esetben a görbe csökkenő tendenciát mutat. Ennek a magyarázata az, hogy ugyan eredetileg, a hiperfinom kölcsönhatás figyelembevétele nélkül a $\theta_B = 90^\circ$ perturbáló szögnél az átmenet teljesen megengedett, és a $\theta_B = 0^\circ$ eset a tiltott, viszont a hiperfinom interakció következtében az állapotok keveredése lehetővé teszi a párhuzamos gerjesztés esetén az állapotok közti ugrást, azonban negatív hatással lesz az eredetileg megengedett átmenetre. Ugyanakkor ennek a hatása nem lényeges, hiszen látható, hogy míg a $\theta_B = 0$ közeli perturbáló szögnél az átmeneti valószínűség több nagyságrenddel növekszik, addig görbéknek $\theta_B = 90^\circ$ -nél még egy nagyságrendet sem csökkentek.

5.5.4. Magasabb rendű görbék

Mindeddig az első rendű elnyeléseket tanulmányoztam, azonban nem csak elsőrendű átmeneteket lehet megfigyelni, hanem nagyobb rendben is történtek fotonelnyelések. A másod- és harmadrendet vizsgáltam meg ezek közül.

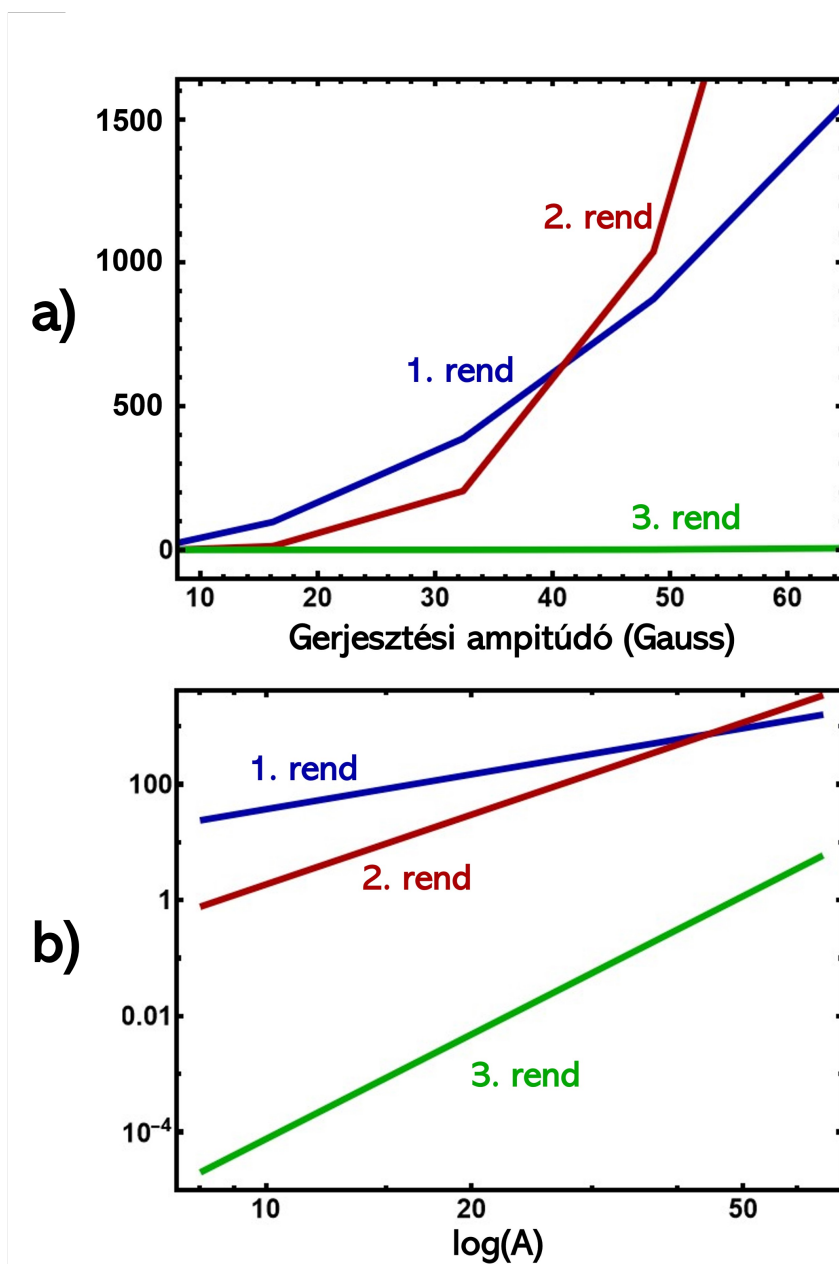
A másodrendnél kiszámítandó mátrixelem a következőképp írható fel,

$$\left| \frac{\sum_m \langle f | \hat{V} | m \rangle \langle m | \hat{V} | s \rangle}{E_m - E_s} \right|^2, \quad (5.29)$$

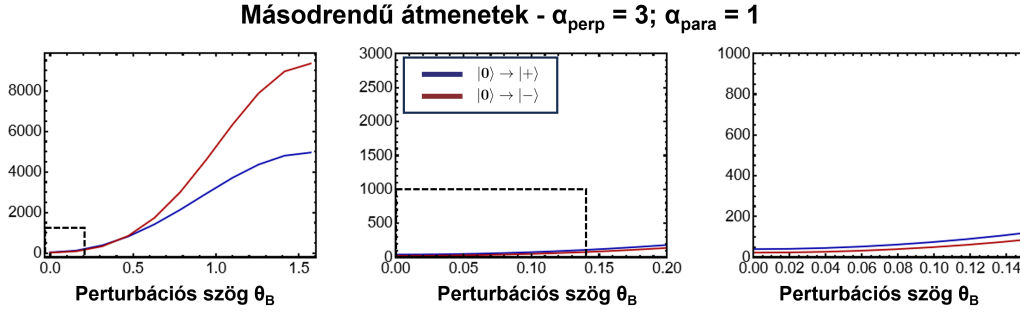
míg a harmadrendű mátrix elem a következőképp,

$$\left| \sum_m \sum_l \frac{\langle f | \hat{V} | m \rangle \langle m | \hat{V} | l \rangle \langle l | \hat{V} | s \rangle}{(E_l - E_s)(E_m - E_s)} \right|^2. \quad (5.30)$$

Jelen esetben az m és l indexek végigfutnak az egész Hilbert-téren, és minden állapotra összegzünk, és így kapunk mindegy egyes $s - f$ párra egy elemet. Alapvetően a másodrendű átmenet tiltott, ennek oka, hogy az elsőrendű $|0\rangle \rightarrow |\pm\rangle$ átmenetek esetében mind a két alkalommal $\Delta m_s = \pm 1$ kvantumszám váltás történik, amelyhez egy $\sigma_\pm$ foton szükséges, mivel a perdületük ± 1 . Viszont, a másodrendű átmenetkor a rendszer a $|0\rangle$ -ból egy virtuális állapoton keresztül megy a $|\pm\rangle$ -be, ezt jelöltem a (5.29) kifejezésben $|m\rangle$ vektorral. Viszont ahhoz, hogy így a végére $\Delta m_s = \pm 1$ legyen az összperdület megváltozás nem egész számú $\sigma_\pm$ fotonokra lenne szükség, amely viszont nem lehetséges. Ám ha a hiperfinom kölcsönhatást is figyelembe vesszük, akkor kiderül, hogy már nem kizárólagosan az elektron vehet részt az össz-



5.14. ábra. Mind az a) és mind a b) képen az átmenteket valószínűségének vizsgálata látható a gerjesztési amplitúdó függvényében. Már az a) képen is látszik, hogy az első- és másodrend igen gyorsan változik az amplitúdó növelésével, azonban a harmadrend gyakorlatilag elhanyagolható mértékben változik. A b) ábrán log-log skálán láthatjuk, hogy sok nagyságrenddel van a harmadrend lemaradva a magasabb rendekhez képest, ám a változása során szintén több nagyságrendet lép át.

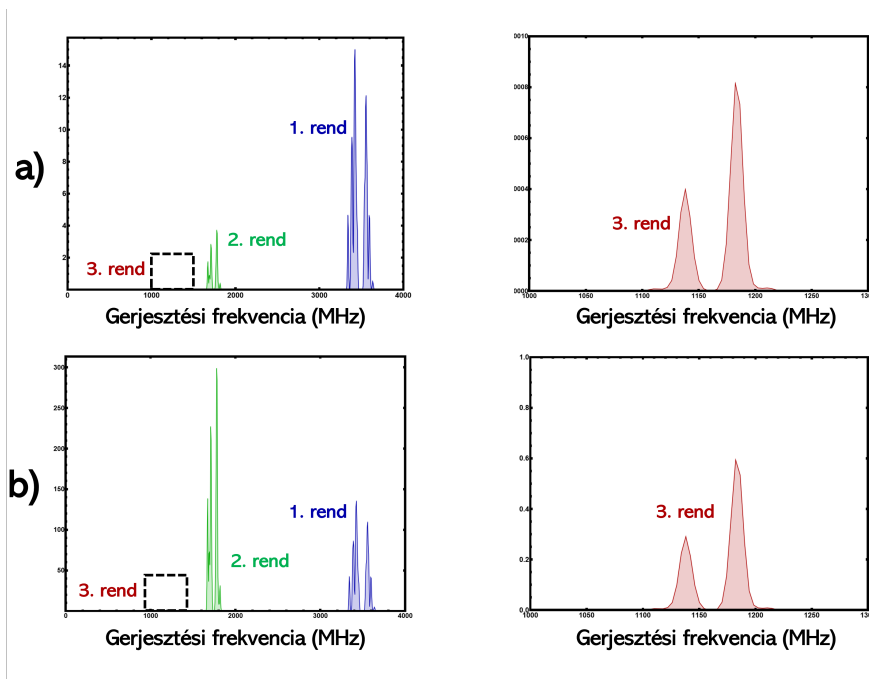


5.15. ábra. Az átmenetek gerjesztő tér szögétől való függése. Az első rendhez hasonlóan itt is megfigyelhető, hogy $\theta_B = 0$ környékén nulla közelében van a görbe alatti terület, azonban nem nulla. Tehát az átmenet sem nulla valószínűséggel történik meg. Jelen esetben a hiperfinom együttthatók közül a transzverzálisnak az értéke $\alpha_{\text{perp}} = 3$ -ra volt állítva, mivel ekkor jobban látható az effektus.

perdület megváltozásban, hanem a magspineknek is van járuléka. Így ha figyelembe vesszük a magspinek váltását, már kikeverehető egész számú foton elnyelésből az elektron perdület megváltozására $\Delta m_s = \pm 1$, amely mellett természetesen meg fog jelenni valamely magspin $\Delta m_I = \pm 1$ váltása is. Az előbbi gondolatmenet bármilyen páros számú foton elnyelésre igaz.

Ugyanakkor a fentebbi indoklásban is csak $\sigma_{\pm}$ fotonok elnyelését említettem, viszont kiderül, hogy π fotonok elnyelésekor, tehát $\theta_B = 0$ esetben is van egy nem nulla valószínűsége, hogy megtörténjen egy átmenet. Ez jól utolérhető a (5.15) ábrán. Láthatjuk, hogy a θ_B -t növelve egyre növekedik az átmeneti valószínűség is. A görbét $\alpha_{\text{perp}} = 3$ esetben ábrázoltam, mivel így jobban látszik, hogy milyen változása van a spektrumok görbe alatti területének.

Ha kiszélesítjük a másodrendű, illetve a harmadrendű görbéket - ugyanolyan módon, mint ahogy az első rend esetében tettünk, tehát egy $\sigma = 5$ MHz félértékszélességű Gauss-görbével -, akkor reprodukálni lehet a magasabb rendű átmeneteket is tartalmazó spektrumot. Ekkor megjelennek a többfotonos elnyelések is az elsőrendűeken kívül. Ezek a görbék láthatók a (5.16) ábrán. Az a) képen a gerjesztési amplitúdó $A = 16,2$ Gauss, míg a b) ábránál pedig $A = 48,6$ Gauss volt. A két ábrát összehasonlítva láthatjuk, hogy a másodrend megnőtt az elsőrendhez képest, ahogy ezt a (5.14) képen is látható volt, hogy bizonyos amplitúdó után a másodrend megelőzi az elsőrendet. A harmadrend is növekedett, viszont a másik két rendhez képest még mindig elhanyagolható mértékben jelent meg.



5.16. ábra. Két különböző gerjesztési amplitúdónál megfigyelhető spektrumok. Az a) ábrán $B_A = 16,6$ Gauss, a b) ábrán $B_A = 48,6$ Gauss a gerjesztési amplitúdó. A harmadrendű görbék nagyon kis mértékben növekedtek az amplitúdó hatására, viszont a másodrend láthatóan leelőzte az elsőrendet a második amplitúdó eseténél.

6. Összefoglalás

A kutatásaim során magyarázatot adtam a VB(-) spinkvantumbit esetén megfigyelhető kvantumátmenetekre. A vizsgálataimat számítógépes szimulációk és perturbációszámítás segítségével végeztem el. A munkámhoz több kísérleti együttműködés is kapcsolódik, amelyekben sikeresen alátámasztottam és magyaráztam az megfigyeléseket elméleti eredményeim segítségével.

A kutatásaim során igyekeztem feltérképezni, hogy milyen hatással van a hiperfinom kölcsönhatás a VB(-) kvantumbit átmeneteire. Ehhez meg kellett ismernem az időfüggő perturbációszámítást, mivel a rendszerre egy időben változó gerjesztést hatattunk, amely így egy időfüggő perturbációként jelent meg a Hamilton-operátorban. Ezen perturbációnak a rendszeren való hatását több rendben ki lehetett számítani, hogy az egyes átmeneti rátákat hogyan befolyásolja, ha több rendet veszünk figyelembe. Kiderült, hogy a kezdeti és végső állapotokból, valamint a perturbáló operátorból alkotott mátrixelemek határozzák meg az átmeneti valószínűségeket. Ezek kiszámítására első-, másod-, illetve harmadrendben a *Mathematica* programnyelvet használtam.

A dolgozat során megvizsgáltam, hogy ha a hiperfinom kölcsönhatást felskálázom, az milyen módon befolyásolja az átmeneteket. Kiderült, hogy ezen interakció összekeveri az $m_S = 0$ és az $m_S = \pm$ állapotokat, és ezáltal olyan átmenetek is megengedetté válnak, amelyek a magspinek jelenléte nélkül tiltottak voltak. Láthattuk, hogy a keveredés mértéke hogyan befolyásolja az energiák eltolódását, valamint hogy a keveredéssel, tehát a hiperfinom kölcsönhatás növelésével, az átmeneti valószínűségek növekednek. Ezt úgy térképeztem fel, hogy a perturbáló operátorban változtattam a gerjesztő elektromágneses tér és a kvantálási tengely egymással bezárt szögét, és a spektrumok görbe alatti területét kiszámítottam. Alapvetően, a hiperfinom kölcsönhatás jelenlétének hiányában – a hiperfinom kölcsönhatás transzverzális komponensei nélkül –, ha a gerjesztési szög (θ_B) nulla, akkor az átmenetek tiltottak, és $\theta_B = \frac{\pi}{2}$ esetben pedig megengedettek. A hiperfinom kölcsönhatás bekapcsolásával azt vehettük észre, hogy $\theta_B = 0$ esetben is történtek átmenetek, mivel a spektrumoknak nem nulla volt a görbék alatti területe.

Megfigyeltem továbbá magasabb rendű átmeneteket is. Ekkor különböző amplitúdójú gerjesztésekre számítottam ki a mátrixelemeket és a görbéket, így láthatóvá vált, hogy bizonyos amplitúdó után a másodrend megelőzi az elsőrendet. A harmadrendű átmenet is növekedett az amplitúdók növelésére, viszont még így is több nagyságrenddel kisebb volt, mint az első két rend.

7. Saját eredmények

A TDK dolgozatomban a VB(-) vakanciacentrumot – amely egy tripllett elektron-spinből és három nitrogén magspinből áll – vizsgáltam numerikus és analitikus módszerekkel. A vakanciacentrumot két típusú izotóppal; ^{15}N -nel és ^{14}N -nel körülvéve figyeltem meg. Az első esetben 1500-2500 Gauss közötti erősségű külső statikus mágneses teret alkalmaztam, míg a másodikban pedig statikus mágneses tér jelenléte nélkül folytattam a kutatásaimat. A rendszerre további gerjesztést kapcsoltam rádiófrekvenciás (a magspinek közti átmenetet gerjesztve), illetve mikrohullámú (elektronhoz tartozó átmeneteket gerjesztve) gerjesztés formájában. A gerjesztés hatásait megvizsgáltam különböző frekvenciákon és eltérő nagyságú amplitúdókkal is. Illetve az átmenetek pontos leírásához N-ed rendű perturbációs számítással meghatároztam az átmeneti mátrixelemeket.

A dolgozatban bemutatott minden numerikus és elméleti eredmény saját eredmény. Röviden összegezve ezek kiterjednek az alábbiakra.

Saját szimulációs eredmények:

- Kísérletekben kirajzolódott hiperfinom felhasadás következtében létrejött energiaszintek numerikus úton, szimulációval való igazolása.
- Rezonanciagörbékkel degeneráltsági fokok felderítése.
- Páratlan számú fotonelnyelések megjelenésének bemutatása.
- Páros számú fotonelnyelések megjelenésének bemutatása és magyarázata.
- ENDOR szimulációk változó mágneses tér értékeknél.
- Keveredés hatásának és mágneses tértől való függésének kimutatása szimulációkkal.

Perturbációs számítással elért eredményeim:

- N-ed rendű mátrixelemek levezetése.
- Átmeneti mátrixelemek implementálása.
- Hiperfinom-tenzor szekuláris és offdiagonális tagjainak az átmenetekre való hatásának felderítése.
- A zeros tér felhasadás E paraméterének az átmenetekre való hatásának felderítése.

Hivatkozások

- [1] A. K. Geim és I. V. Grigorieva. “Van der Waals heterostructures”. *Nature* 499.7459 (2013. júl.). Number: 7459 Publisher: Nature Publishing Group, 419–425. old. ISSN: 1476-4687. (Elérés dátuma 2021. 05. 10.).
- [2] J.-P. Tetienne. “Quantum sensors go flat”. *Nature Physics* (2021. aug. 9.). Bandiera_abtest: a Cg_type: Nature Research Journals Primary_atype: News & Views Publisher: Nature Publishing Group Subject_term: Qubits;Two-dimensional materials Subject_term_id: qubits;two-dimensional-materials, 1–2. old. ISSN: 1745-2481. (Elérés dátuma 2021. 08. 14.).
- [3] Marcus W. Doherty és tsai. “The nitrogen-vacancy colour centre in diamond”. *Physics Reports*. The nitrogen-vacancy colour centre in diamond 528.1 (2013. júl. 1.), 1–45. old. ISSN: 0370-1573. (Elérés dátuma 2020. 03. 25.).
- [4] Romana Schirhagl és tsai. “Nitrogen-Vacancy Centers in Diamond: Nanoscale Sensors for Physics and Biology”. *Annual Review of Physical Chemistry* 65.1 (2014). _eprint: <https://doi.org/10.1146/annurev-physchem-040513-103659>, 83–105. old. (Elérés dátuma 2021. 01. 14.).
- [5] Andreas Gottscholl és tsai. “Initialization and read-out of intrinsic spin defects in a van der Waals crystal at room temperature”. *Nature Materials* 19.5 (2020. máj.). Number: 5 Publisher: Nature Publishing Group, 540–545. old. ISSN: 1476-4660. (Elérés dátuma 2021. 05. 03.).
- [6] Viktor Ivády és tsai. “Ab initio theory of the negatively charged boron vacancy qubit in hexagonal boron nitride”. *npj Computational Materials* 6.1 (2020. ápr. 24.). Number: 1 Publisher: Nature Publishing Group, 1–6. old. ISSN: 2057-3960. (Elérés dátuma 2021. 02. 26.).
- [7] Andreas Gottscholl és tsai. “Spin defects in hBN as promising temperature, pressure and magnetic field quantum sensors”. *Nature Communications* 12.1 (2021. júl. 22.). Bandiera_abtest: a Cc_license_type: cc_by Cg_type: Nature Research Journals Number: 1 Primary_atype: Research Publisher: Nature Publishing Group Subject_term: Electronic properties and materials;Qubits Subject_term_id: electronic-properties-and-materials;qubits, 4480. old. ISSN: 2041-1723. (Elérés dátuma 2021. 07. 27.).
- [8] A. J. Healey és tsai. “Quantum microscopy with van der Waals heterostructures”. *arXiv:2112.03488 [cond-mat]* (2021. dec. 6.). arXiv: 2112.03488. (Elérés dátuma 2022. 01. 03.).

- [9] A. Haykal és tsai. “Decoherence of VB(-) spin defects in monoisotopic hexagonal boron nitride”. *Nature Communications* 13.1 (2022. júl. 27.). Number: 1 Publisher: Nature Publishing Group, 4347. old. ISSN: 2041-1723. (Elérés dátuma 2022. 09. 29.).
- [10] Toan Trong Tran és tsai. “Quantum emission from hexagonal boron nitride monolayers”. *Nature Nanotechnology* 11.1 (2015. okt.), 37–41. old. DOI: 10.1038/nnano.2015.242.
- [11] Kensuke Kobayashi Kento Sasaki Takashi Taniguchi. “Nitrogen isotope effects on boron vacancy quantum sensors in hexagonal boron nitride”. (2023). [Accessed 29-10-2024].
- [12] Eli Janzen és tsai. “Boron and Nitrogen Isotope Effects on Hexagonal Boron Nitride Properties”. *Advanced Materials* 36.2 (2023. nov.). ISSN: 1521-4095. DOI: 10.1002/adma.202306033. URL: <http://dx.doi.org/10.1002/adma.202306033>.
- [13] AA Fomin és tsai. “Optically driven spin-alignment precession”. *Physical Review A* 108.4 (2023), 43109. old.
- [14] Prince Khatri és tsai. “Optical gating of photoluminescence from color centers in hexagonal boron nitride”. *Nano letters* 20.6 (2020), 4256–4263. old.
- [15] Ivan Gnusov és tsai. “Optically driven spin precession in polariton condensates”. *arXiv preprint arXiv:2305.03782* (2023).
- [16] Larisa Latypova és tsai. “Nitrogen-Related High-Spin Vacancy Defects in Bulk (SiC) and 2D (hBN) Crystals: Comparative Magnetic Resonance (EPR and ENDOR) Study”. *Quantum Reports* 6.2 (2024), 263–277. old.
- [17] Shihao Ru és tsai. “Robust Nuclear Spin Polarization via Ground-State Level Anti-Crossing of Boron Vacancy Defects in Hexagonal Boron Nitride”. (2023). DOI: 10.48550/ARXIV.2306.15960. URL: <https://arxiv.org/abs/2306.15960>.

A. Nem degenerált, időfüggetlen perturbációs számítás

A perturbációs számítás a fizika egy fontos eszköze, amelynek az alapvető célja, hogy egy komplex rendszeren kis változtatást - perturbációt - végrehajtva a rendszer viselkedéséről kapjunk közelítő képet.

A nem degenerált, időfüggetlen perturbációszámítás alapja, hogy a perturbálatlan rendszerre a Schrödinger-egyenlet felírható a következő alakban

$$\hat{H}_0 |\Psi_n^{(0)}\rangle = E_n^{(0)} |\Psi_n^{(0)}\rangle, \quad (\text{A.1})$$

ahol $\hat{H}_0$ a rendszer Hamilton-operátor, $|\Psi_n^{(0)}\rangle$ az n -ik sajátállapota, és $E_n^{(0)}$ a hozzá tartozó energiasajátérték. Perturbációszámításban a teljes $\hat{H}$ Hamilton-operátorban megjelenik egy $\hat{H}_p$ perturbáció tag a $\hat{H}_0$ tag mellett. Annak érdekében, hogy kismértékű legyen a perturbáció, a $\hat{H}_p$ tagot egy $\gamma \ll 1$ szorzófaktorral látjuk el:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \gamma \hat{H}_p. \quad (\text{A.2})$$

Ekkor a perturbált Hamilton-operátorral felírt Schrödinger-egyenlet,

$$(\hat{H}_0 + \gamma \hat{H}_p) |\Psi_n\rangle = E_n |\Psi_n\rangle. \quad (\text{A.3})$$

Az egyenlet megoldásaiként kapott állapotokat és energiasajátértékeket közelítőleg sor alakban írjuk fel

$$|\Psi_n\rangle = |\Psi_n^{(0)}\rangle + \gamma |\Psi_n^{(1)}\rangle + \gamma^2 |\Psi_n^{(2)}\rangle + \dots \quad (\text{A.4a})$$

$$E_n = E_n^{(0)} + \gamma E_n^{(1)} + \gamma^2 E_n^{(2)} + \dots \quad (\text{A.4b})$$

Kihasználva azt, hogy $\gamma \ll 1$, és azt, hogy a Hamilton-operátor sajátállapotai bázist alkotnak a $\mathcal{H}$ Hilbert-téren kiszámíthatók az egyes rendekhez tartozó sajátvektorok, illetve a megfelelő energiaértékek. Az első rendet kifejtve az eredmény a következő:

$$E_n = E_n^{(0)} + \gamma \frac{\langle \Psi_n^{(0)} | \hat{H}_p | \Psi_n^{(0)} \rangle}{\langle \Psi_n^{(0)} | \Psi_n^{(0)} \rangle} + \dots \quad (\text{A.5a})$$

$$|\Psi_n\rangle = |\Psi_n^{(0)}\rangle + \gamma \sum_{k \neq n} \frac{\langle \Psi_k^{(0)} | \hat{H}_p | \Psi_n^{(0)} \rangle}{E_n^{(0)} - E_k^{(0)}} |\Psi_k^{(0)}\rangle + \dots \quad (\text{A.5b})$$

A nemdegeneráltság igen fontos a (A.5b) egyenletben, hiszen látható, hogy ha két energiaszint megegyezne, akkor a kifejezés divergálna. A (A.5b) egyenlethez hasonló $E_n^{(0)} - E_k^{(0)}$ -val való osztás a magasabb rendű tagok kifejtésében is megjelenik.