

VÁLASZ

Rockenbauer Antal Professzor Úr opponensi véleményére

Köszönöm Rockenbauer Antal Professzor Úrnak, hogy az akadémiai doktori értekezésemben leírt tudományos eredményeimet túlnyomórészt elismerte. Köszönöm, hogy az értekezésben a módszerleírást pozitívan értékelte.

Az alábbiakban pontról pontra szeretnék válaszolni kérdéseire illetve megjegyzéseire. Az egyik tézispontomat érintő kritikájára a végén válaszolok.

1) Az elektronspin, mint kvantumbit megbízható beállítása és kiolvasása: Röviden szeretnék válaszolni a kérdésre rákoncentráva elsősorban az NV-centrummal elért eredményekre és megadva a megfelelő referenciákat. Lehetőség van arra, hogy a hiperfinom-csatolást kihasználva az elektronspin állapotát egyértelműen hozzárendeljük a gyémántrácsban levő ^{13}C (vagy a megfelelő nitrogénizotóp) magspinjéhez, amelyet kvázi memóriaként használhatunk és eltárolja az elektronspin állapotát még azelőtt, hogy az elektronspin állapotát optikailag kiolvastuk volna. Amennyiben csak az elektronspin kiolvasására hagyatkozunk, akkor az elektronspin kiolvasásának megbízhatósága csak 75% körüli. Amennyiben a kiolvasási eljárást 10^5 -ször megismétlik a magspint megfelelően manipulálva, akkor lehet eléggé megbízható eredményt kapni. Ha nem egy magspint, hanem többet manipulálunk egyszerre, akkor lehetőség van lényegesen növelni a kiolvasás megbízhatóságát, azaz csökkenteni a kiolvasási eljárás ismétlési számát [L. Jiang et al.: Repetitive Readout of a Single Electronic Spin via Quantum Logic with Nuclear Spin Ancillae, Science, vol. 326, 267 (2010)]. Nemrég mutatta be egy másik csoport, hogy az elektronspin és magspin megfelelő manipulációjával egy egyszeri méréssel is elérhető a $92 \pm 2\%$ megbízhatósági mutató a magspin kiolvasására, illetve az egymásután kétszer elvégezve a mérési eljárást ez a mutató kb. 82,5%, amely arra utal, hogy sikerült a magspin értékét úgy kimérni, hogy praktikusán a magspin állapotát nem változtatták meg a mérés során. Ezt nevezik „quantum non-demolition” protokollnak. Nagy remény van arra, hogy ezt a protokollt valóban sikerül az NV-centrummal megvalósítani [Neumann et al.: Single-Shot Readout of a Single Nuclear Spin, Science, vol. 329, 542 (2010)].

2) A g-tenzor számítása: a g-tenzor pontos számítása nagyban hozzájárulhatna a ponthibák azonosításához. Ez a spin-pálya csatolás pontos számítását (is) igényli, amely nagyon nehéz feladat a szupercella-módszeren belül pszeudopotenciálokat vagy projektorokat használva a törzselektronok kezelésére. Ugyanakkor hozzá kell tennem, hogy a közelmúltban a normatartó pszeudopotenciál-formalizmuson belül a g-tenzor számítását megoldották [D. Ceresoli et al., Phys. Rev. B vol. 81, 060409(R) (2010)]. Így lehetőség nyílt arra, hogy a jövőben a g-tenzorokat is kiszámítsuk a különféle paramágneses rendszerekre, amelyet tervezek is elvé-

gezni.

3) Az NV-centrumban a nitrogénatom pályáját lehet-e ligandumtér-elmélettel kezelni: az NV-centrumban a vakanciát körülvevő nitrogénatomnak és három szénatomnak egy ún. lógó kötése van, amely a vakancia felé mutat. A lógó kötés megtévesztő elnevezés, mert nem kémiai kötésben résztvevő elektronpályákról van szó, hanem elszakadt kötésekből „felszabaduló” elektronpályákról, amelyeket ún. sp^3 hibridpályaként lehet leírni a gyémántrácsban. Ezek nem hoznak egymással létre σ vagy π kötéseket, hanem egymással elektrosztatikus illetve korrelációs kölcsönhatásba lépnek. Véleményem szerint emiatt nincs közvetlen kapcsolat az NV-centrum leírása és a ritkaföldfémek koordinációs kötéseit leíró ligandumtér-elmélet között. Annyiban van hasonlóság, hogy mindkét esetben célszerű csoportelméletet alkalmazni a pályák szimmetriáinak és az energiaszint jellegének meghatározására.

4) Az NV-centrum gerjesztési spektruma: az A-B vertikális abszorpcióra a kísérletben 2,18 eV-ot kaptak. A PBE funkcionállal 1,91 eV-ot, míg a HSE06 funkcionállal 2,213 eV-ot kaptam. A fenti értékek szerepelnek az 5.2 táblázatban. A kísérleti értéktől való eltérés rendre 0,27 eV és 0,033 eV a PBE és HSE06 funkcionálokkal. Emiatt a szövegben helyesnek tűnik az a megállapítás, hogy a HSE06 funkcionállal kapom vissza a kísérleti értéket. Az „ANTI-STOKES adatok a táblázat C-D vertikális abszorpciójánál vannak” megállapítás egy félreértésből származhat. Az értekezés 162. oldalán található 5.4 ábráról leolvasható, hogy a „C-D”-vel jelölt átmenet energiája a vertikális emissziót jelöli, míg az „AS”-sel jelölt oszlopban nem az „ANTI-STOKES átmenet”, hanem az ANTI-STOKES eltolódás energiáját írtam be a kérdéses 5.2 táblázatban. Ezeket a kifejezéseket az 5.2 táblázat feliratában is definiálom. A vertikális emisszióra PBE funkcionállal kapott 1,534 eV érték mind a Davies és Hamer által mért 1,76 eV-tól és a Manson és Harrison által mért 1,88 eV-tól távol esik. Ezzel szemben a HSE06 funkcionállal kapott 1,738 eV közel van Davies és Hamer által mért értékhez. Az értekezésemben a 168. oldalon leírt mondat, "A PBE funkcionállal kapott értékek jelentősen eltérnek bármelyik kísérleti adattól." erre utal, és itt talán pontosabban fogalmazhattam volna. Ugyanakkor a következő mondat már egyértelmű: „A HSE06 érték (1,738 eV) nagyon közel van a DAVIES és HAMER által kapott értékhez (1,760 eV).”

5) A ^{13}C hiperfinom-csatolások értelmezése az NV-centrumban: az 5.4 táblázatban első-sorban a kvantumbitként használt magspineket szerettem volna azonosítani, és valóban nem adtam meg olyan részletességgel az adatokat, mint az 5.3 táblázatban. A kérdéses adat, a 6 ekvivalens szénatomra vonatkozó, hiperfinomtenzor főátló elemei rendre [14,0; 14,4; 19,7] MHz egységben. Ezek nagyjából 1 MHz-zel nagyobbak, mint a három ekvivalens szénatomra kapott értékek, amelyek szerepelnek az 5.4 táblázatban.

Azt a jóslatomat, hogy valójában 6+3 szénatom rendelkezik 15 MHz körüli hiperfinom csa-

tolással azóta két független mérés megerősítette. Az egyik esetben sok egyedi NV-centrumot ún. ESLAC méréssel sikerült megvizsgálni, a másik esetben az NV-centrum sokaságot mérték ki elektron-mag kettős rezonancia (ENDOR) módszerrel, amely sokkal érzékenyebb, mint az EPR módszer; az utóbbival nem tudták a három és a hat ekvivalens szénatomhoz tartozó jeleket feloldani, míg az ENDOR módszerrel igen.

A két új mérési eredmény értelmezésében részt vettem együttműködve a kísérleti csoportokkal. Az első esetben elfogadott cikkben vagyok társszerző az NV-centrummal foglalkozó speciális kiadványban [Benjamin Smeltzer, Lilian Childress, and Adam Gali: ^{13}C hyperfine interactions in the NV centre in diamond, New Journal of Physics, elfogadva], a másik esetben pedig a Junichi Isoya professzorral vagyok társszerző abban a kéziratban, amelyet hamarosan beküldünk a Physical Review Letters folyóiratba.

6) Az opponensi bírálóban említett pontatlanságokért illetve a nem eléggé körültekintő fogalmazásért elnézést kérek.

7) Az 5(c) tézispont: Az opponens az 5(c) tézispont utolsó mondatában szereplő állítást nem fogadja el, amely így hangzik: „Megadtam egy olyan protokollt, amellyel elvileg lehetséges a semleges nitrogén-vakancia hiba gerjesztett kvartett elektronspinjét és a környező hiperfinomaktív izotópok magspinjét kvantumbitek létrehozására használni.” Az opponensi vélemény szerint vitatható, hogy a túl rövid relaxációs idő illetve a túl kicsi spin-pálya kölcsönhatás miatt a semleges NV-centrumon alapuló kvantumbit megvalósítható.

A gyémántminta tisztaságától függően a relaxációs idő közel van a millisecundumhoz a nitrogénhez köthető paramágneses hibákban, így tapasztalat szerint a π impulzussal a negatívan töltött NV-hibában lehetséges szobahőmérsékleten az elektronspin átbillentése. Feltételezhető, hogy a semleges NV-hibában is hasonló relaxációs idő lép fel.

A továbbiakban szeretném az értekezésben szereplő 5.12 ábrát használni a magyarázathoz. A kritikus lépés a $^4A_2 \rightarrow ^2A_1$ átmenet, hiszen a gerjesztett 2A_1 szintről várható csak sugárzásos átmenet a 2E alapállapotba, és így volna lehetséges a spinállapot optikai kiolvasása. A kérdés az, hogy a $^4A_2 \rightarrow ^2A_1$ szórás valószínűsége-e nagyobb, vagy pedig annak valószínűsége, hogy a 4A_2 $m_s = \pm 1/2$ elektronállapot spontán átszóródik az $m_s = \pm 3/2$ elektronállapotba, amely aztán transzverzális spin-pálya csatolás és rezgési állapotok segítségével át tud szórni sugárzásmentesen a 2E alapállapotba.

a) $^4A_2 \rightarrow ^2A_1$ szórás: ennek valószínűsége valóban erősen függ a 4A_2 és 2A_1 állapotok energiakülönbségétől. A két állapot között a párhuzamos (vagy axiális) spin-pálya csatolás ad kapcsolatot. Ennek várhatóan az energiája a MHz nagyságrendjébe esik. Emiatt a relatíve gyors átmenet akkor valószínű a két állapot között, amennyiben a 4A_2 és 2A_1 állapotok közel degeneráltak (10 meV-on belül egyezik az energiájuk).

b) 4A_2 $ms=\pm 1/2$ elektronállapot spontán átszóródik az $ms=\pm 3/2$ elektronállapotba, majd transzverzális (vagy nem-axiális) spin-pálya csatolás a 2E alapállapotba: ez a folyamat két lépésre bontható. Mindkét lépés kritikus.

Feltételezve, hogy külső váltakozó mágneses tér nem hat, akkor az elektronspin szóródása vagy a gyémántban levő más paramágneses ponthibák elektronspinjével vagy pedig a gyémántban előforduló magspinekkal való kölcsönhatás miatt lehetséges. Ha a ponthibák koncentrációja alacsony, akkor az első folyamat valószínűsége nagyon kicsi. Mivel a kvantumbit megvalósítását egy darab ponthibával meg lehet valósítani, ezért nincs gyakorlati akadálya annak, hogy a ponthibák koncentrációját alacsonyan tartsuk. A második folyamat viszont elvileg felléphet, hiszen az NV ponthibában a nitrogénatomnak izotópjától függően vagy $I = 1$ vagy $I = 1/2$ magspinje van. Ebben az esetben a transzverzális hiperfinomkölcsönhatás az $ms=\pm 1/2$ elektronspint átszórhatja az $ms=\pm 3/2$ állapotba. Az átszórás valószínűsége függ az ms állapotok közötti energiakülönbségtől, amely függ az általunk használt külső állandó mágneses tér nagyságától. A tipikusan használt mágneses terek esetén ez az energiakülönbség legalább két nagyságrenddel nagyobb, mint a hiperfinomcsatolás energiája. Ebből az következik, hogy ez a szórás kis valószínűséggel történik meg.

Miután ez a szórás megtörtént, akkor a második lépésben megtörténhet a szórás az alapállapotba (ahogyan azt az értekezésben leírtam). Ez egy viszonylag lassú folyamat, hiszen a semleges NV-hibának a gerjesztett állapotát pontosan amiatt sikerült kimérni, mert a 4A_2 gerjesztett állapot élettartama eléggé hosszúnak bizonyult. Sajnos, ezt az élettartamot ugyanakkor nem mérték ki pontosan.

Összességében az a) és b) lehetőségeket összevetve az látszik, hogy az a) esetben a szórás valószínűségét nem lehet lényegesen befolyásolni, a b) esetben viszont a mágneses tér növelésével lényegesen lehet csökkenteni a szórás valószínűségét. Így elvi lehetőség van arra, hogy a b) folyamat valószínűségét csökkentsük, és így az a) folyamat menjen végbe, ahogy azt az értekezésemben javasoltam. Az a) és b) folyamatok rátájának megbecsléséhez szükség van a 2A_1 és 4A_2 állapotok energiájának ismeretére, hogy mennyiben lehet gyakorlatban megvalósítani a fent elmondottakat.

A fentiek alapján az értekezésben szereplő mondatot

„Megadtam egy olyan protokollt, amellyel elvileg lehetséges a semleges nitrogén-vakancia hiba gerjesztett kvartett elektronspinjét és a környező hiperfinomaktív izotópok magspinjét kvantumbitek létrehozására használni.”

továbbra is érvényesnek gondolom, de óvatosabban megfogalmazva

„Megadtam egy olyan protokollt, amely esetleg lehetővé teszi, hogy a semleges nitrogénvakancia hiba gerjesztett kvartett elektronspinjét és a környező hiperfinomaktív izotópok magspinjét kvantumbitek létrehozására használni.”

Még egyszer szeretném megköszönni Rockenbauer Antal Professzor Úrnak, hogy az akadémiai doktori értekezésemben leírt tudományos eredményeimet és annak fogadtatását összességében pozitívan értékelte.

Dr. Gali Ádám