

Учреждение образования
«БЕЛОРУССКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ
ИНФОРМАТИКИ И РАДИОЭЛЕКТРОНИКИ»

УДК 548.571; 548.4

ПУШКАРЧУК
Вадим Александрович

**СТРОЕНИЕ, ЭЛЕКТРОННЫЕ И СПИНОВЫЕ СВОЙСТВА НАНОРАЗМЕРНЫХ
АЛМАЗОВ, СОДЕРЖАЩИХ NV-ЦЕНТРЫ**

АВТОРЕФЕРАТ
диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

по специальности 05.16.08 – Нанотехнологии и наноматериалы

Минск 2012

Работа выполнена в учреждении образования «Белорусский государственный университет информатики и радиоэлектроники».

Научный руководитель

Борисенко Виктор Евгеньевич, доктор физико-математических наук, профессор, заведующий кафедрой микро- и нанoeлектроники учреждения образования «Белорусский государственный университет информатики и радиоэлектроники»

Официальные оппоненты:

Грабчиков Сергей Степанович, доктор физико-математических наук, главный научный сотрудник государственного научно-производственного объединения «Научно-практический центр Национальной академии наук Беларуси по материаловедению»

Дорожкин Николай Николаевич, кандидат физико-математических наук, доцент кафедры физики твердого тела Белорусский государственный университет

Оппонирующая организация:

Государственное научное учреждение «Институт физики имени Б.И. Степанова» Национальной академии наук Беларуси

Защита состоится 21 июня 2012г. в 14⁰⁰ на заседании совета по защите диссертаций Д 02.15.07 при учреждении образования «Белорусский государственный университет информатики и радиоэлектроники» по адресу: 220013, г. Минск, ул. П.Бровки, 6, корп. 1, ауд. 232, тел. 293-89-89, e-mail: dissovet@bsuir.by.

КРАТКОЕ ВВЕДЕНИЕ

Развитие технологии получения наноразмерных структур, состоящих из атомов углерода – фуллеренов, графена, углеродных нанотрубок, наноразмерных алмазов (наноалмазов), стимулирует значительный интерес к их использованию в быстро развивающихся нанoeлектронике и нанофотонике. Из этой группы только наноалмаз обладает нужными свойствами для создания устройств оптической и оптоэлектронной обработки информации, работающих при комнатной температуре. Эти свойства он приобретает при наличии в нем различного рода примесей и дефектов, в частности, примеси атомов азота в виде дефекта типа «азот-вакансия» (NV-центр). Благодаря своей исключительно высокой стабильности эти дефекты могут быть использованы в квантовой оптике в качестве источников одиночных фотонов и источников света для спектроскопии ближнего поля. Особый интерес представляет их использование в качестве физических носителей квантовых битов информации, кубитов в квантовых системах обработки информации. Данные центры полностью соответствуют требованиям предельной миниатюризации элементной базы нано- и оптоэлектроники, согласно которым устройство создается на основе одиночного атома, молекулы или отдельного дефекта.

Хотя свойства азотных и азотно-вакансионных центров в монокристаллах алмаза достаточно хорошо изучены, при переходе к наноразмерным структурам возникает ряд проблем, связанных с процессами создания и разрушения этих центров, их стабильностью, локализацией в нанокристалле, структурными, электронными и спиновыми свойствами. Недостаточная изученность этих свойств сдерживает создание приборов на основе наноалмазов, содержащих NV-центры. Кроме того, в настоящее время активно осуществляются исследовательские работы по созданию технологических методов формирования наноструктур и методов моделирования их свойств. Принимая во внимание сложность и высокую стоимость нанотехнологических процессов теоретическое моделирование атомарных и электронных свойств приобретает особую актуальность.

В связи с вышеизложенным теоретическое исследование структурных, электронных и спиновых свойств одиночных примесных NV-центров в наноалмазах представляется весьма перспективной задачей, решение которой позволит добиться более глубокого понимания физических процессов, происходящих в наноалмазах, и будет способствовать созданию новых нано- и оптоэлектронных приборов, а также устройств для квантовой обработки информации.

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Связь работы с крупными научными программами и темами

Тема диссертационной работы соответствует приоритетному направлению «Нанотехнологии, наноструктуры и наноматериалы в электронике, оптике, оптоэлектронике». Работа выполнялась в Центре наноэлектроники и новых материалов учреждения образования «Белорусский государственный университет информатики и радиоэлектроники» в рамках межвузовской программы фундаментальных исследований «Наноэлектроника» (2001–2005 гг.), гранта Фонда фундаментальных исследований для молодых ученых Ф05М-137 «Моделирование спиновых свойств NV-центра в алмазе» (2005–2007 гг.), гранта Фонда фундаментальных исследований для молодых ученых Ф08М-151 «Моделирование электронных и спиновых свойств конструкционных элементов квантовых процессоров на основе NV-центров, расположенных вблизи поверхности наноструктурированного алмаза» (2008–2009 гг.), гранта Министерства образования Республики Беларусь ГБЦ 05-3177 «Спиновые характеристики вакансионных дефектов в алмазных наноструктурах и возможное их использование для квантовых вычислений» (2005–2006 гг.), проекта EQUIND Engineered quantum information in nanostructured diamond «Сконструированная квантовая информация в наноструктурированном алмазе» (СКИНА), который выполняется в рамках шестой Европейской Рамочной программы, контракт № 034368 от 31.10.2006. Часть исследований проведена в сотрудничестве со специалистами из Института физики им. Б. Н. Степанова НАН Беларуси и Института физико-органической химии НАН Беларуси.

Цель и задачи исследования

Целью диссертационной работы является установление структурных особенностей и закономерностей изменения фундаментальных электронных и спиновых свойств бездефектных наноалмазов и наноалмазов, содержащих дефекты «азот-вакансия» (NV-центры), в зависимости от их размера, структуры объема и поверхности.

Для достижения указанной цели необходимо решить следующие задачи:

- проанализировать известные данные о свойствах бездефектных наноалмазов, а также наноалмазов, содержащих NV-центры, выявить нерешенные проблемы в описании их атомарной структуры, электронных и спиновых свойств;
- выбрать наиболее перспективный метод теоретического исследования структурных, электронных и спиновых свойств углеродных наноструктур и адаптировать его для моделирования свойств изучаемых объектов;

- провести теоретическое моделирование и определить фундаментальные электронные свойства бездефектных нанодiamondов в зависимости от их размера, атомарного строения и пассивации поверхности водородом;
- определить влияние NV-центров на фундаментальные электронные и спиновые свойства нанодiamondов;
- оценить перспективы применения нанодiamondов для квантовой обработки информации.

Объектом исследования являются нанодiamondы, как бездефектные, так и содержащие NV-центры. Предметом исследования служат структурные, электронные и спиновые свойства нанодiamondов и закономерности их изменения.

Положения, выносимые на защиту

1. Нанодiamondы, состоящие из 10–100 атомов углерода, поверхность которых пассивирована атомами водорода, имеют независимо от размера устойчивую алмазоподобную кристаллическую решетку и характеризуются наличием одинарных тетраэдрических ковалентных связей между атомами углерода без переноса заряда в центральной области и со слабым переносом на границах нанодiamondа, а непассивированные нанодiamondы состоят из эндоэдральных фуллереноподобных структур при их диаметре менее 0,6 нм, а при больших размерах трансформируются в наноструктуры, состоящие из алмазоподобного ядра и фуллереноподобной оболочки.

2. В энергетической щели пассивированных атомами водорода нанодiamondов, содержащих NV-центры, формируются состояния, ответственные за оптические переходы для данных центров, которые обусловлены оборванными связями атомов углерода, являющихся ближайшими соседями к вакансии, и заселены неспаренными электронами, что обуславливает локализацию данных электронов в области дефекта, причем 70 % спиновой плотности локализуется на трех атомах углерода, являющихся ближайшими соседями, а 12 % спиновой плотности – на атомах углерода, являющихся вторыми и третьими соседями по отношению к вакансии, при этом распределение спиновой плотности носит не монотонный, а осциллирующий характер, что приводит к ее увеличению на третьих соседях.

3. В пассивированных атомами водорода нанодiamondах, содержащих NV-центры, сверхтонкое взаимодействие неспаренных электронов NV-центра с магнитными ядрами изотопов ^{13}C имеет достаточную величину для организации квантовой обработки информации только на первых и третьих соседях NV-центров, а при отсутствии пассивации поверхности преимущественно поверхностные атомы пригодны для такой обработки информации.

4. При расположении NV-центра в непосредственной близости от поверхности одной из $\{111\}$ непассивированных граней в целом

пассивированного водородом наноалмаза наибольшие значения спиновой плотности и констант сверхтонкого взаимодействия принадлежат трем атомам углерода, являющимся ближайшими соседями к вакансии, а также атомам, формирующим первый слой непассивированной поверхности наноалмаза, что позволяет организовывать квантовую обработку информации на данных атомах.

Личный вклад соискателя

Содержание диссертации отражает личный вклад автора. Он заключается в его непосредственном участии в подготовке и проведении теоретических расчетов свойств наноалмазов, содержащих NV-центры, разработке методик моделирования структурных, электронных и спиновых свойств в рамках выбранного метода, в анализе, интерпретации и обобщении полученных результатов. Вклад научного руководителя профессора, д-ра физ.-мат. наук, проф. В. Е. Борисенко связан с постановкой цели и задач исследования, обсуждением и критической оценкой полученных научных результатов. Кроме того, в интерпретации и обсуждении результатов принимал участие канд. физ.-мат. наук А. Б. Филонов. В обсуждениях рекомендаций по приборному применению наноалмазов, содержащих NV-центры, участвовали член-корреспондент НАН Беларуси, профессор д-р физ.-мат. наук С. Я. Килин, д-р физ.-мат. наук А. П. Низовцев и канд. физ.-мат. наук С. А. Кутень. Другие соавторы опубликованных работ принимали участие в обсуждении промежуточных и конечных результатов.

Апробация результатов диссертации

Материалы, вошедшие в диссертационную работу, докладывались и обсуждались на X, XI International Conference on Quantum Optics (Минск, Республика Беларусь, 2004 г., 2006 г.), XII International Conference on Quantum Optics and Quantum Information (Вильнюс, Литва, 2008 г.), IV Белорусско-российской научно-технической конференции «Технические средства защиты информации» (Минск – Нарочь, Республика Беларусь, 2006 г.), международной конференции NANOMEETING (Минск, Республика Беларусь, 2007 г., 2009 г., 2011 г.), международной конференции ICONO/LAT (Минск, Республика Беларусь, 2007 г., 2010 г.), международной конференции «Лазерная физика и оптические технологии» (Минск, Республика Беларусь, 2008 г.), 12th International Workshop on New Approaches to High-Tech: Nano-Design, Technology, Computer Simulations (Минск, Республика Беларусь, 2008 г.), международном симпозиуме Methods and Applications of Computational Chemistry (Харьков, Киев, Одесса – Украина 2005 г., 2007 г., 2009 г.), международной научной конференции НАНО–2008 (Минск, Республика Беларусь, 2008 г.), Quantum cryptography and

computing: Theory and Implementation (Гданьск, Польша, 2009 г.), международной научной конференции «Наноструктурные материалы 2010: Беларусь–Россия–Украина» (НАНО – 2010) (Киев, Украина, 2010 г.).

Опубликованность результатов диссертации

По теме диссертационной работы опубликовано 34 печатные работы: 10 статей в научных журналах, 11 статей в сборниках материалов конференций, 13 тезисов докладов в сборниках международных и республиканских конференций.

Общий объем публикаций по теме диссертации, соответствующих пункту 18 Положения о присуждении ученых степеней и присвоении ученых званий в Республике Беларусь, составляет 9,5 авторских листов. Опубликованных материалов – 142 страницы, из них 142 страницы в совместно опубликованных научных работах.

Структура и объем диссертации

Диссертационная работа состоит из введения, общей характеристики работы, пяти глав с выводами по каждой главе, заключения, библиографического списка и приложения.

В **первой главе** проанализированы известные методы и особенности формирования алмазов и углеродных наноструктур, содержащих NV-центры, и определены проблемы, возникающие при теоретическом описании таких структур. Во **второй главе** описан метод функционала плотности, используемый в работе для теоретического исследования структурных, электронных и спиновых свойств наноалмазов, содержащих NV-центры, проведена генерация атомарной структуры наноалмазов. В **третьей главе** представлены результаты моделирования электронной структуры и спиновой плотности бездефектных наноалмазов и наноалмазов, содержащих NV-центры. В **четвертой главе** представлены результаты расчета анизотропных и изотропных констант сверхтонкого взаимодействия, а также главных значений тензора анизотропного сверхтонкого взаимодействия для наноалмазов, содержащих NV-центры. В **пятой главе** приведены результаты моделирования влияния поверхности на спиновые свойства наноалмазов, содержащих NV-центры.

Общий объем диссертации составляет 117 страниц, в том числе 41 иллюстрация на 18 страницах, 6 таблиц на 3 страницах, библиографический список из 110 наименований на 9 страницах, приложение на 1 странице.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

В общей характеристике работы дано обоснование актуальности темы диссертационной работы, определены цель и задачи исследования. Сформулированы научная новизна и практическая значимость полученных результатов, а также основные положения, выносимые на защиту.

В первой главе проведен обзор литературы, проанализированы известные методы и особенности формирования алмазов и углеродных наноструктур, содержащих NV-центры, и определены проблемы, возникающие при теоретическом описании таких структур. Обоснован выбор наноалмазов, содержащих NV-центры, в качестве объекта исследования.

Отмечено, что в последнее время квантовая информатика, являющаяся одной из быстро развивающихся передовых областей современной науки, вышла на уровень практического создания различных устройств – процессоров квантовых компьютеров, источников одиночных фотонов для квантовой криптографии, квантовых репитеров, биосенсоров и других устройств. Среди предлагаемых решений лидирующие позиции занимают твердотельные системы, в которых в качестве стационарных кубитов используются спины (электронные и ядерные) различных дефектов и примесей в полупроводниках. Наиболее перспективными из них представляются одиночные дефекты «азот-вакансия» (NV-центры) в алмазе, состоящие из замещающего углерод атома азота (N) и вакансии (V), расположенной в соседнем узле решетки.

В основном триплетном электронном состоянии 3A NV-центр имеет электронный спин $S=1$, магнитные подуровни $m_S=0$ и $m_S=\pm 1$ которого расщеплены кристаллическим полем алмаза на 2,88 ГГц. Благодаря спин-селективной фотокинетике NV-центра эти спиновые состояния могут быть избирательно заселены. Ими можно манипулировать с помощью микроволнового излучения ~2,88 ГГц и считывать их, измеряя интенсивность испускаемого одиночным центром излучения, то есть регистрируя его флуоресценцию или наблюдая оптически детектируемый магнитный резонанс (ОДМР) на одиночных центрах. Интерес к изучению влияния поверхности наноалмазов на свойства находящихся в них NV-центров обусловлен тем, что получение этих знаний необходимо для разрабатываемых применений наноалмазов с NV-центрами в качестве биосенсоров и датчиков для детектирования сверхслабых магнитных полей со сверхвысоким пространственным разрешением.

В выводах по главе сформулированы цель и основные задачи диссертационной работы.

Во второй главе описаны методы квантовой химии, используемые в работе для теоретического исследования структурных, электронных и спиновых свойств наноалмазов, содержащих NV-центры. Кроме того, в данной главе проведена

генерация атомарной структуры, моделирование и оптимизация расположения атомов в наноалмазах, не пассивированных и пассивированных атомами водорода, а также не содержащих и содержащих NV-центры. В диссертации использовался метод теории функционала электронной плотности (ТФП).

Рассмотрены основные понятия и представления ТФП, основой которой является теорема Хоэнберга и Кона. Причем ТФП, несмотря на однодетерминантное представление волновой функции, учитывает корреляционную энергию. Отмечено, что начало использованию методов ТФП в квантовой химии положило внедрение в расчетную схему орбиталей Кона-Шэма, отвечающих системе невзаимодействующих электронов. В результате проведения расчетов в рамках ТФП мы получили такие фундаментальные величины, характеризующие электронное строение изучаемой многоатомной системы, как наборы одноэлектронных энергетических уровней, и соответствующие им молекулярные орбитали, либо орбитали Кона-Шэма. Полученную информацию предложено использовать для интерпретации экспериментальных результатов и предсказания ряда электронных и спиновых характеристик изучаемых структур. Приводятся основные математические выражения, используемые для вычисления спиновых характеристик в рамках методов ТФП и схема реализации ТФП в программных комплексах Gamess и ORCA, которые использованы нами для расчета атомарных, электронных и спиновых свойств изучаемых наноструктур.

Приведены результаты моделирования атомарной структуры непассивированных и пассивированных атомами водорода наноалмазов, а также не содержащих и содержащих NV-центры алмазных нанокластеров. В качестве объектов исследования, передающих локальную атомарную структуру наноалмаза, были выбраны кластеры C_X , где $X = 35, 38, 71$ и 86 – количество атомов углерода в кластере. Их формировали путем выделения группы атомов углерода из идеальной кристаллической решетки алмаза. На основе группы кластеров C_X была сгенерирована группа кластеров C_XH_Y , содержащих атомы водорода, насыщающие оборванные связи на поверхности кластера, где X и Y соответствуют количеству атомов C и H . В результате получены два набора кластеров C_{35} , C_{38} , C_{71} , C_{86} и $C_{35}H_{36}$, $C_{38}H_{42}$, $C_{71}H_{84}$, $C_{86}H_{78}$, позволяющие исследовать свойства наноалмазов. Наноалмазы с NV-центром строили на основе кластеров C_X и C_XH_Y путем замещения двух атомов углерода в их центре на атом азота и вакансию. Методом ТФП была проведена оптимизация расположения атомов во всех исследуемых наноалмазах.

Установлено, что в случае наноалмазов C_{35} и C_{38} формируются фуллереноподобные эндодральные структуры $C_1@C_{34}$ и $C_2@C_{36}$ соответственно. Для наноалмазов C_{71} и C_{86} формируются нанокристаллы BD-типа (bucky diamond) ($C_{71}BD$ и $C_{86}BD$), которые отличаются наличием алмазоподобного ядра и фуллереноподобной оболочки. Кластеры C_XH_Y приобретают структуру

алмазидов независимо от числа атомов в них. При этом все атомы углерода образуют между собой одинарные тетраэдрические ковалентные связи.

Обнаружено, что в случае формирования NV-центра в пассивированных атомами водорода кластерах алмазоподобная структура остальной части кластера сохраняется с учетом незначительных изменений положений атома азота и трех ближайших к вакансии атомов углерода по направлению от геометрического центра этого дефекта. Атомарная конфигурация и локальная симметрия в непассивированных наноалмазах, содержащих NV-центр, зависит от числа атомов в них. Так, для малых фуллереноподобных наноалмазов атом N замещает один из атомов C в фуллереноподобной оболочке, а для нанокристаллов BD-типа NV-центр формируется в алмазоподобном ядре.

В выводах по главе обобщены результаты моделирования атомарной структуры наноалмазов и влияния на нее пассивации поверхности атомами водорода и наличием в наноалмазе NV-центра.

В третьей главе представлены результаты моделирования электронной структуры и спиновой плотности бездефектных наноалмазов и наноалмазов, содержащих NV-центры. По результатам расчета электронной структуры оценивали ширину энергетической щели $E_g = E_{\text{взмо-нсмо}}$, где $E_{\text{взмо-нсмо}}$ – разность между одноэлектронными энергиями орбиталей Кона-Шэма, соответствующими верхней заполненной (ВЗМО) и нижней свободной (НСМО) орбитали. Кроме того, изучали пространственную локализацию ВЗМО и НСМО. Анализировали также и величину E_v , которая является аналогом ширины валентной зоны. В таблице 1 приведены результаты расчетов данных величин.

Установлено, что непассивированные наноалмазы являются полупроводниками, у которых E_g варьируется в пределах 0,9 – 1,7 эВ в зависимости от размера наноалмаза и попадает в энергетический диапазон, характерный для фуллеренов. Для пассивированных наноалмазов величина E_g варьируется от 12,29 до 7,96 эВ также в зависимости от их размеров. Такая величина E_g превышает аналогичную для объемного алмаза, что совпадает с известными представлениями об уширении запрещенной зоны для наночастиц за счет эффекта квантового ограничения.

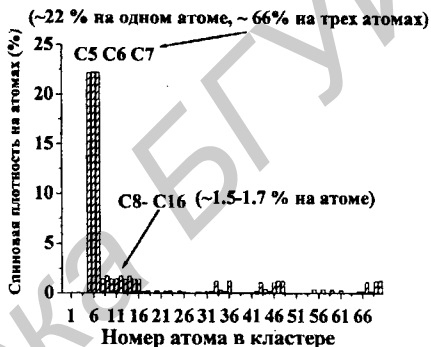
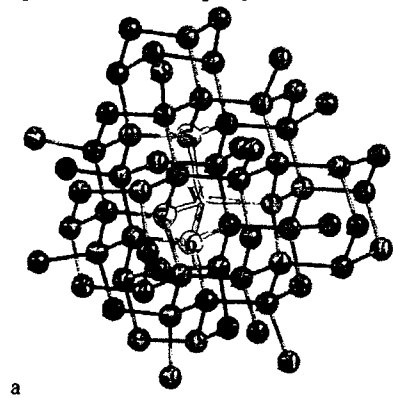
Таблица 1 – Значения E_g и E_v (эВ) для непассивированных (нп) и пассивированных водородом (п) наноалмазов

Количество атомов C	E_g (нп)	E_v (нп)	E_g (п)	E_v (п)
35	1,23	22,96	12,76	18,39
38	1,70	21,55	12,29	18,24
71	1,22	23,66	7,96	18,57
86	0,90	22,90	7,54	19,36

Примечание – Для объемного алмаза значения E_g для прямых переходов составляет 5,5 эВ, для непрямых 7,3 эВ, $E_v = 20$ эВ. Для фуллеренов $E_g \sim 1,5$ эВ.

Анализ локализации ВЗМО, и НСМО показал, что соответствующая верхнему заполненному состоянию волновая функция локализована на трех атомах углерода, формирующих ближайшее окружение вакансии, принадлежащей NV-центру, независимо от размеров наноалмаза.

Для наноалмазов, содержащих NV-центры, рассчитывали распределение спиновой плотности, которое является разностью плотностей электронов с проекциями спина $+1/2$ и $-1/2$: $n(r) = n_{\uparrow}(r) - n_{\downarrow}(r)$. Примеры расчета представлены на рисунке 2.



а – структура наноалмаза $C_{69}H_{84}[NV]$ с указанием нумерации атомов; б – распределение спиновой плотности

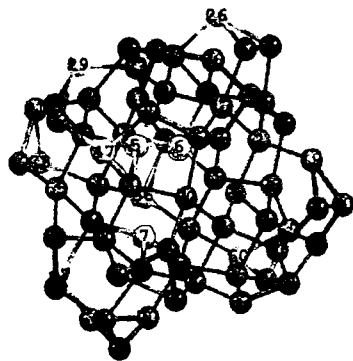
Рисунок 1 – Распределения спиновой плотности в наноалмазе $C_{69}H_{84}[NV]$, атомы С 5, 6, 7 (светлые) – ближайшие соседи к вакансии, 1 – атом N, V – вакансия, атомы Н не показаны

В неспассивированных наноалмазах обнаружен качественно новый эффект – сильная поверхностная локализация спиновой плотности, что позволяет говорить о возможности сверхтонкого расщепления на изотопах ^{13}C , принадлежащих поверхности данных нанокристаллов. В спассивированных же наноалмазах порядка 70 % спиновой плотности локализовано на атомах углерода, которые являются ближайшими соседями для вакансии и ~12 % на вторых и третьих соседях (рисунок 1, а, б) и, следовательно, в процессах квантовой обработки информации с использованием наноалмазов с NV-центрами могут участвовать не только ядра ^{13}C ближайших соседей, но и более удаленные соседи.

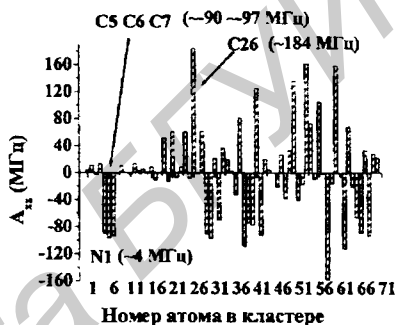
В выводах по главе обобщены результаты моделирования фундаментальных электронных и спиновых свойств исследуемых наноалмазов.

В четвертой главе представлены результаты расчета анизотропных и изотропных констант сверхтонкого взаимодействия (АСТВ и ИСТВ

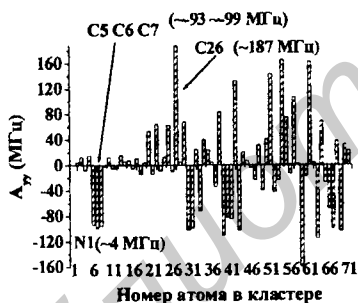
соответственно), а также главных значений тензора анизотропного СТВ (ТАСТВ) для наноалмазов, содержащих NV-центры. Данные константы характеризуют взаимодействие неспаренных электронов NV-центра с ядрами атомов углерода и азота. Для их расчета средствами программного комплекса ORCA соответствующие атомы в наноалмазе заменяли их изотопами ^{13}C или ^{15}N , что позволило рассчитать константы СТВ для атомов, локализованных в любом месте наноалмаза и сравнить с соответствующими экспериментальными результатами. На рисунках 3 и 4 приведены результаты расчета главных значений тензоров СТВ для наноалмазов $\text{C}_{69\text{BD}}[\text{NV}]$ и $\text{C}_{84}\text{H}_{78}[\text{NV}]$.



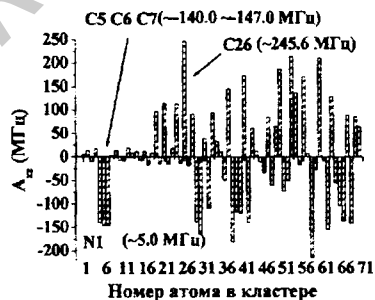
а



б



в



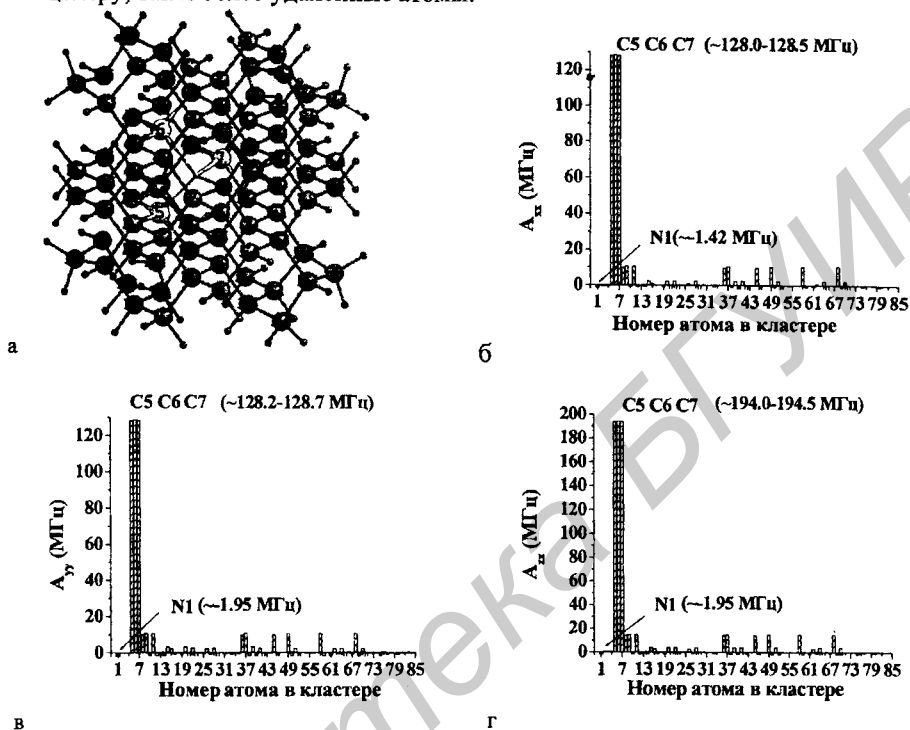
г

а – структура наноалмаза $\text{C}_{69\text{BD}}[\text{NV}]$ с указанием нумерации атомов на гистограммах;
б, в, г – распределение главных значений ТСТВ

Рисунок 2 – Главные значения ТСТВ для наноалмазов $\text{C}_{69\text{BD}}[\text{NV}]$

Установлено, что для неспариванных наноалмазов главное значение ТСТВ A_{zz} для отдельных атомов углерода может достигать величины ~ 250 МГц в наноалмазах $\text{C}_{69\text{BD}}[\text{NV}]$ (рисунок 2). Данное значение по порядку величины сопоставимо со значением соответствующей константы СТВ для NV-центра в объемном алмазе. Очевидно, что в наноалмазах $\text{C}_{33\text{BD}}[\text{NV}]$ и $\text{C}_{69\text{BD}}[\text{NV}]$ формируется квантовая система «одионый NV-центр + одионый ядерный спин ^{13}C », которую можно рассматривать как базовый элемент для создания

квантового процессора. Причем для создания кубитов квантовых компьютеров могут использоваться как атомы углерода, являющиеся ближайшими соседями к NV-центру, так и более удаленные атомы.



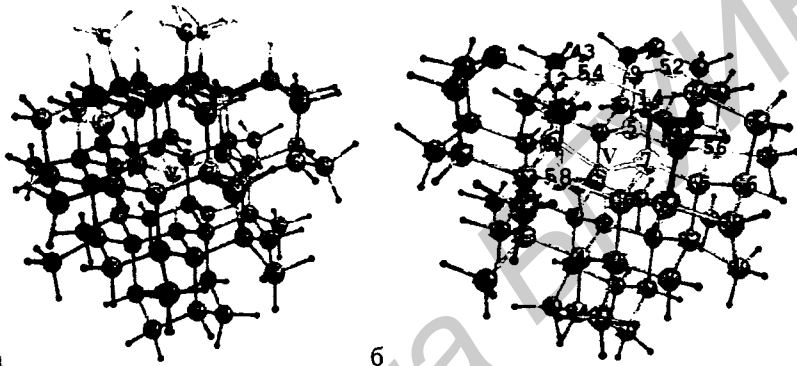
а – наноалмаз $C_{84}H_{78}[NV]$; выделены атомы N1, C5, C6 и C7, являющиеся ближайшими соседями для вакансии (V); б, в, г – распределение главных значений ТСТВ

Рисунок 3 – Главные значения тензора СТВ для атомов наноалмазов $C_{84}H_{78}[NV]$

В пассивированных водородом наноалмазах главные значения ТСТВ (рисунок 3) имеют наибольшую величину для атомов C5, C6 и C7, которая изменяется в пределах 128,0 – 128,5 МГц для главных значений ТСТВ A_{xx} , A_{yy} и 194,0 – 194,5 МГц – для главного значения ТСТВ A_{zz} . Эти результаты близки к известным данным, полученным в ЭПР экспериментах с NV-центрами в объемном алмазе (123,3 и 204,9 МГц).

В выводах по четвертой главе отмечается, что распределение спиновой плотности и, как следствие, магниторезонансных параметров носит не монотонный, а осциллирующий характер в зависимости от расстояния от атома азота. Утверждается, что в качестве кубитов для квантовых компьютеров могут использоваться не только атомы азота, являющиеся ближайшими соседями к NV-центру, но и более удаленные атомы.

В пятой главе приведены результаты моделирования влияния поверхности на спиновые свойства наноалмазов, содержащих NV-центры. Введено понятие пассивированных наноалмазов с одной непассивированной гранью, которые строятся путем удаления ряда атомов углерода и водорода на соответствующих плоскостях пассивированных водородом наноалмазов, рассматривающихся в предыдущих главах. В частности, на основе наноалмаза $C_{69}H_{84}[NV]$ построен наноалмаз с одной непассивированной гранью $\{111\}$ $C_{66}H_{72}[NV]$ путем удаления двенадцати атомов водорода и трех атомов углерода на грани $\{111\}$, рисунок 4.



а – наноалмаз $C_{69}H_{84}[NV]$, белым цветом выделены удаляемые атомы С и Н;
 б – нумерация атомов в наноалмазе $C_{66}H_{72}[NV]$

Рисунок 4 – Построение наноалмаза с одной непассивированной гранью $\{111\}$ $C_{66}H_{72}[NV]$ на основе наноалмаза $C_{69}H_{84}[NV]$ путем удаления двенадцати атомов Н и трех атомов С на грани $\{111\}$

Сравнение рассчитанных констант сверхтонкого взаимодействия в исходном полностью пассивированном наноалмазе $C_{69}H_{84}[NV]$ и наноалмазе $C_{66}H_{72}[NV]$ показало, что в наноалмазе $C_{69}H_{84}[NV]$ наибольшими являются константы A_{ZZ} ($\sim 192,0-192,6$ МГц) и A_{XX} , A_{YY} ($\sim 125,4-126,1$ МГц) для атомов С5, С6 и С7, являющихся ближайшими соседями вакансии NV-центра. В случае же расположения NV-центра вблизи поверхности наноалмаза $C_{66}H_{72}[NV]$ при незначительном изменении констант СТВ для атомов С5, С6 и С7 наблюдается существенное изменение констант СТВ для поверхностных атомов. Так, для атомов С42, С45, С64 константы СТВ принимают значительные отрицательные значения (A_{XX} , $A_{YY} \sim -41-50$ МГц и $A_{ZZ} \sim -77-69$ МГц), в то время как для атомов С43, С52 и С54 значения констант СТВ положительны (A_{XX} , $A_{YY} \sim +99$ МГц и $A_{ZZ} \sim +129-130$ МГц). Изменяются также константы СТВ с ядерным спином изотопа ^{14}N , входящего в NV-центр.

В выводах по главе отмечается, что обнаруженные изменения атомарной структуры, электронных и спиновых свойств необходимо учитывать при

планировании, постановке и интерпретации экспериментов с NV-центрами для создания масштабируемого квантового компьютера, а для приповерхностных NV-центров еще и при проведении магнитометрии полей отдельных центров.

В приложении представлен акт внедрения результатов работы в учебный процесс на кафедре микро- и наноэлектроники Белорусского государственного университета информатики и радиоэлектроники.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Основные научные результаты диссертации

1. Проведенным теоретическим моделированием показано, что в случае нанокристаллов алмаза, пассивированных атомами водорода, в них формируются алмазоподобные кластеры – алмазоиды, состоящие из четырех координированных атомов C. При наличии в нем NV-центра алмазоподобная структура кластера сохраняется с учетом незначительных смещений атома N и трех ближайших к вакансии атомов C по направлению от центра дефекта [1–A – 7–A, 9–A, 11–A, 16–A, 22–A, 24–A, 25–A, 28–A, 31–A].

2. Установлено, что атомарное строение наноалмазов, не пассивированных атомами водорода, зависит от количества атомов в них: в наноалмазах C_{35} и C_{38} формируются фуллереноподобные эндоэдральные структуры $C_1@C_{34}$ и $C_2@C_{36}$, соответственно, с образованием ионной связи между эндоэдральными атомами и фуллереноподобной оболочкой; в наноалмазах C_{71} и C_{86} формируются нанокристаллы BD-типа (C_{71BD} и C_{86BD}), которые отличаются наличием алмазоподобного ядра и фуллереноподобной оболочки. Это следствие возрастающей с размером роли поверхности по сравнению с объемом наноалмазов [3–A, 4–A, 6–A, 16–A, 28–A, 31–A].

3. Установлено, что наноалмазы имеют электронную структуру, характерную для полупроводников и диэлектриков, состоящую из четко выраженной валентной зоны и зоны проводимости, разделенных запрещенной зоной. При этом ширина запрещенной зоны для непассивированных структур составляет порядка 1 эВ, что значительно меньше аналогичной величины для объемного алмаза, и попадает в энергетический диапазон, характерный для фуллеренов. Для наноалмазов, пассивированных атомами водорода, она превышает ширину запрещенной зоны для объемного алмаза, что совпадает с известными представлениями об уширении запрещенной зоны в наночастицах вследствие квантового ограничения. Ширина валентной зоны для всех наноалмазов находится в хорошем соответствии с экспериментальными данными для объемного алмаза [3–A, 4–A, 5–A].

4. Показано, что для нанокристаллов алмаза, пассивированных атомами водорода и содержащих NV-центры, основную роль в формировании дефектных уровней в запрещенной зоне играют оборванные связи на атомах углерода, являющихся ближайшими соседями вакансии. Для таких структур оптические переходы, детектируемые в экспериментах с использованием оптически детектируемого магнитного резонанса, обусловлены неспаренными электронами со спином $1/2$, расположенными на высших занятых энергетических уровнях в запрещенной зоне. Результаты по локализации и энергетическому положению состояний в запрещенной зоне совпадают с экспериментальными данными, полученными для NV-центра в объемном алмазе [3-А, 4-А, 5-А].

5. Показано, что в наноалмазах, не пассивированных атомами водорода и содержащих NV-центры, дефектные уровни в запрещенной зоне формируются за счет орбиталей, локализованных на поверхностных атомах. Предложен механизм, объясняющий различие в локализации спиновой плотности в пассивированных и непассивированных наноклстерах углерода, содержащих NV-центр, учитывающий, что неспаренные электроны для пассивированных наноалмазов заселяют уровни, локализованные в области NV-центра, а для непассивированных – в области поверхностных атомов [3-А, 4-А, 5-А].

6. Установлено, что в наноалмазах, пассивированных атомами водорода и содержащих NV-центры, независимо от их размера и формы порядка 70 % спиновой плотности локализуется на трех атомах С, являющихся ближайшими соседями вакансии NV-центра, а около 3 % спиновой плотности – на атомах С, являющихся вторыми и третьими соседями по отношению к этой вакансии. При этом распределение спиновой плотности и, как следствие, магниторезонансных свойств носит не монотонный, а осциллирующий характер, что приводит к ее увеличению на третьих соседях [1-А, 2-А, 7-А, 8-А, 10-А – 13-А, 15-А, 18-А – 27-А, 29-А, 31-А – 34-А].

7. В наноалмазах, не пассивированных атомами водорода и содержащих NV-центры, обнаружен качественно новый эффект – сильная поверхностная локализация спиновой плотности на атомах С, принадлежащих поверхности данных нанокристаллов, независимо от их размера и формы [3-А, 4-А, 23-А].

8. Расчеты главных значений тензора СТВ показали, что непассивированные наноалмазы могут рассматриваться как кандидаты для создания квантовой системы «одиночный NV-центр + одиночный ядерный спин ^{13}C » и, следовательно, как базовый элемент для создания квантового процессора. Причем место локализации изотопа ^{13}C , формирующего данную квантовую систему, зависит от конкретных размеров и формы наноалмаза, а сверхтонкое расщепление для отдельных ядер ^{13}C , принадлежащих поверхности данных нанокристаллов, может достигать величины ~ 250 МГц [3-А, 4-А, 23-А].

9. Впервые в кластерном приближении рассчитаны константы ИСТВ и АСТВ для всех атомов, входящих в исследуемые кластеры. Установлено, что значение констант ИСТВ для изотопа ^{13}C , являющихся ближайшими соседями по отношению к вакансии, изменяется в пределах от 154 до 148 МГц в зависимости от формы и величины нанокристалла. Данная величина находится в очень хорошем согласии с данными по ОДМР и ЭПР-спектроскопии NV-центров в алмазе (150 МГц). В то же время впервые показано, что абсолютное значение констант ИСТВ для изотопа ^{13}C , являющихся ближайшими соседями по отношению к вакансии, варьируется в пределах от 0,7 до 10 МГц, что не соответствует высказывавшимся ранее предположениям о ее величине порядка 40 МГц [7-А, 8-А, 10-А – 13-А, 15-А, 18-А – 27-А, 29-А, 31-А – 34-А].

10. Впервые в кластерном приближении рассчитаны главные значения тензора СТВ A_{xx} , A_{yy} и A_{zz} для пассивированных наноалмазов. Установлено, что для изотопов ^{13}C , являющихся ближайшими соседями вакансии $A_{xx} = A_{yy} = 125,5$ МГц, а $A_{zz} = 192,0$ МГц, что согласуется с экспериментальными данными для объемного алмаза (± 123 и 205 МГц соответственно); в свою очередь соответствующие величины для третьих соседей варьируются в пределах 10,2–14,7 МГц, что позволяет организовывать квантовую обработку информации как на первых, так и на третьих соседях NV-центров [7-А, 8-А, 10-А – 13-А, 15-А, 18-А – 27-А, 29-А, 31-А – 34-А].

11. Показано, что моделирование магниторезонансных параметров NV-центров с использованием кластеров, содержащих порядка ста атомов и менее, позволяют получить значения соответствующих величин, достаточно хорошо согласующиеся с экспериментальными результатами. В то же время установлено, что кластерное приближение в ряде случаев позволяет получить результаты, более близкие к экспериментальным результатам, чем использование более трудоемкого приближения суперъядейки, предполагающего анализ структуры из пятисот атомов и более. [7-А, 8-А, 10-А – 13-А, 15-А, 18-А – 27-А, 29-А, 31-А – 34-А].

12. Впервые установлено, что на непассивированной грани {111} наноалмаза с расположенным вблизи нее NV-центром формируется графитоподобная структура, характеризующаяся тем, что атом N и ближайшие к нему атомы C лежат практически в одной плоскости. Релаксация поверхностных атомов происходит таким образом, что атом N сдвигается в направлении от вакансии NV-центра, а поверхностные атомы C – к вакансии параллельно направлениям $\langle 111 \rangle$ [8-А, 13-А, 14-А, 17-А, 20-А, 28-А, 30-А, 33-А, 34-А].

13. Показано, что при перестройке непассивированной грани {111} наноалмаза с расположенным вблизи нее NV-центром происходит перераспределение спиновой плотности таким образом, что она локализуется в основном на трех атомах C, являющихся ближайшими соседями к атому N, и

атомах С, формирующих первый атомный слой грани {111} нанокристалла [8–А, 13–А, 14–А, 17–А, 20–А, 28–А, 30–А, 33–А, 34–А].

14. Обнаружено, что в случае расположения NV-центра вблизи неpassивированной поверхности наноалмаза происходит незначительное изменение главных значений тензоров сверхтонкого взаимодействия для изотопа ^{13}C – ближайших соседей к вакансии – и существенное – для поверхностных атомов. Причем для поверхностных атомов наблюдается спиновая поляризация, приводящая к тому, что спиновая плотность на атомах и, как следствие, главные значения тензоров сверхтонкого взаимодействия принимают как положительные, так и отрицательные значения, сравнимые по абсолютной величине с полученными для ближайших соседей. Изменяется также и тензор сверхтонкого взаимодействия для изотопа ^{14}N , входящего в NV-центр [8–А, 13–А, 14–А, 17–А, 20–А, 28–А, 30–А, 33–А, 34–А].

Рекомендации по практическому использованию результатов

Результаты теоретического моделирования спиновых свойств passивированных водородом и неpassивированных наноалмазов, содержащих NV-центры, рекомендовано использовать при проектировании элементов систем для квантовой обработки информации, а также в квантовой оптике при проектировании источников одиночных фотонов и источников света для спектроскопии ближнего поля.

Установленные закономерности изменения спиновых свойств наноалмазов в зависимости от размера и структуры поверхности рекомендовано учитывать при разработке технологии создания таких структур, при постановке и интерпретации экспериментов с приповерхностными NV-центрами для создания масштабируемого квантового компьютера, а также при проведении магнитометрии полей с помощью отдельных NV-центров.

Предложена конструкция квантового регистра, в котором в качестве квантового бита (кубита) используется NV-центр в наноалмазе, интегрированный в фотонный кристалл. Управление состояниями кубитов такого регистра осуществляется при помощи микроволнового и лазерного излучения.

Практическая полезность результатов работы и сформулированных рекомендаций подтверждена актом внедрения результатов работы в учебный процесс на кафедре микро- и нанoeлектроники Белорусского государственного университета информатики и радиоэлектроники.

СПИСОК ПУБЛИКАЦИЙ СОИСКАТЕЛЯ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

Статьи в научных рецензируемых журналах

1–А. Моделирование электронных и спиновых свойств NV-центра в алмазе в кластерном приближении / В.А. Пушкарчук, В.Е. Борисенко, С.Я. Килин, А.П. Низовцев, А.Б. Филонов, А.Л. Пушкарчук // Известия Белорусской Инженерной Академии. – 2003. – № 1 (15)/4. – С. 8–10.

2–А. Моделирование электронных и спиновых свойств [NV]-центра в нанокристаллах C₃₆H₄₂ и C₃₆ алмаза полуэмпирическими методами квантовой химии / В.А. Пушкарчук, С.Я. Килин, А.П. Низовцев, А.Л. Пушкарчук, В.Е. Борисенко, А.Б. Филонов // Известия Белорусской Инженерной Академии. – 2004. – № 2 (18)/2. – С. 7–8.

3–А. Ab initio моделирование электронных и спиновых свойств NV-центра в нанокристаллах алмаза / В.А. Пушкарчук, С.Я. Килин, А.П. Низовцев, А.Л. Пушкарчук, С. von Borcziszowski, В.Е. Борисенко, А.Б. Филонов // Оптика и Спектроскопия. – 2005. – Т. 99, № 2. – С. 261–272.

4–А. Моделирование атомной структуры нанокристаллов алмаза, содержащих [NV]-центры методом функционала плотности / В.А. Пушкарчук, С.Я. Килин, А.П. Низовцев, А.Л. Пушкарчук, В.Н. Родин, В.Е. Борисенко, А.Б. Филонов // Известия Белорусской Инженерной Академии. – 2006. – № 1 (21)/3. – С. 11–12.

5–А. Моделирование атомной и электронной структуры нанокристаллов алмаза, содержащих [NV]-центры методом функционала плотности / В.А. Пушкарчук, С.Я. Килин, А.П. Низовцев, А.Л. Пушкарчук, А.Б. Филонов, В.Е. Борисенко // Журнал прикладной спектроскопии. – 2007. – Т. 74, № 1. – С. 86–92.

6–А. Атомарно-структурная генерация алмазных нанокластеров, содержащих [NV]-центры / В.А. Пушкарчук, С.Я. Килин, А.П. Низовцев, А.Л. Пушкарчук, А.Б. Филонов, В.Е. Борисенко // Доклады БГУИР. – 2009. – № 2 (40). – С. 17–22.

7–А. Квантовые регистры на одиночных NV + n¹³C центрах в алмазе. I. Метод спин гамильтониана / В.А. Пушкарчук, А.П. Низовцев, С.Я. Килин, А.Л. Пушкарчук, С.А. Кутень // Оптика и спектроскопия. – 2010. – Т. 108, № 2. – С. 260–269.

8–А. Квантово-химическое моделирование структурных электронных и спиновых характеристик NV-центров в наноструктурированном алмазе: влияние поверхности / В.А. Пушкарчук, А.Л. Пушкарчук, С.Я. Килин, А.П. Низовцев,

В.Е. Борисенко, А.Б. Филонов, С.А. Кутень // Оптика и спектроскопия. – 2010. – Т. 108, № 2. – С. 278–284.

9–A. Quantum chemical modelling of Si subsurface amorphisation due to incorporation of H atoms and its stabilisation by O atoms / A. Pushkarchuk, A. Saad, A. Fedotov, A. Mazanik, O. Zinchuk, S. Turishchev // Phys. Status Solidi. – 2010. – Vol. 7, Issue 3–4. – P. 650–653.

10–A. Kramers Degenerated Spin Systems “NV Center + Few Proximal ¹³C Nuclei” in Diamond for Single-Spin Magnetometry / A.P. Nizovtsev, S.Ya. Kilin, V.A. Pushkarchuk, A.L. Pushkarchuk, S.A. Kuten // Nonlinear phenomena in complex systems. – 2011. – Vol. 14, № 4.– P. 319–334.

Материалы конференций

11–A. AB INITIO modeling of nanodiamonds with single [NV] centers / V.A. Pushkarchuk, S.Ya. Kilin, A.P. Nizovtsev, A.L. Pushkarchuk, V.E. Borisenko, C. von Borczyskowski, A.B. Filonov // Physics, Chemistry and Application of Nanostructures. Reviews and Short Notes to Nanomeeting – 2005 : Proceedings of the International Conference / Ed. by V.E. Bor isenko, S.V. Gaponenko, V.S. Gurin. – Singapore: Word Scientific Publishing, 2005. – P. 311–314.

12–A. Spin properties of nanodiamonds with a single [NV] center AB INITIO modelling / V.A. Pushkarchuk, A.B. Filonov, V.E. Borisenko, S.Ya. Kilin, A.P. Nizovtsev, A.L. Pushkarchuk, S.A. Kuten // Physics, Chemistry and Application of Nanostructures. Reviews and Short Notes to Nanomeeting – 2007 : Proceedings of the International Conference /Ed. by V.E. Borisenko, S.V. Gaponenko, V.S. Gurin. – Singapore: Word Scientific Publishing, 2007. – P. 22–26.

13–A. Моделирование электронной и спиновой структуры одиночных NV-центров в наноструктурированном алмазе: влияние поверхности наноалмаза / В.А. Пушкарчук, А.П. Низовцев, А.Л. Пушкарчук, А.Б. Филонов, В.Е. Борисенко, С.А. Кутень, В.И. Корзюк, С.Я. Килин // Лазерная физика и оптические технологии: VII Международная научная конференция, 17–19 июня 2008 г., Минск : сб. науч. тр. конф. – Минск, 2008.– С. 168–172.

14–A. Modeling of electronic and spin structure of single NV centers in nanostructured diamond: influence of nanodiamond surface / V.A. Pushkarchuk, A.P. Nizovtsev, A.L. Pushkarchuk, A.B. Filonov, V.E. Borisenko, S.A. Kuten, S.Ya. Kilin // 12th International Workshop on New Approaches to High-Tech: Nano-Design, Technology, Computer Simulations (NDTCS-2008), Minsk, June 23–27, 2008. – Minsk, 2008. – P. 73–77.

15–A. Towards scalable quantum computer: nano-design and simulations of quantum register / V.A. Pushkarchuk, S.Ya. Kilin, A.P. Nizovtsev, A.S. Maloshtan, A.L. Pushkarchuk, S.A. Kuten, F. Jelezko, J. Wrachtrup // 12th International Workshop

on New Approaches to High-Tech: Nano-Design, Technology, Computer Simulations (NDTCS-2008), Minsk, June 23–27, 2008. – Minsk, 2008. – P. 191–195.

16–A. Моделирование спиновых характеристик одиночных [NV]-центров в наноалмазах / В.А. Пушкарчук, С.Я. Килин, А.П. Низовцев, А.Л. Пушкарчук, А.Б. Филонов, В.Е. Борисенко, С.А. Кутень // Наноструктурные материалы – 2008 : Беларусь – Россия – Украина : НАНО-2008 : материалы Первой междунар. науч. конф., Минск, 22–25 апр. 2008 г. – Минск : Белорусская наука, 2008. – С. 418.

17–A. Atomic and spin structure of single NV-centers near nanodiamond surface / V.A. Pushkarchuk, A.B. Filonov, S.Ya. Kilin, A.P. Nizovtsev, A.L. Pushkarchuk, S.A. Kuten // Physics, Chemistry and Application of Nanostructures. Reviews and Short Notes to Nanomeeting – 2009 : Proceedings of the International Conference / Ed. by V.E. Borisenko, S.V. Gaponenko, V.S. Gurin. – Singapore: World Scientific Publishing, 2009. – P. 28–31.

18–A. Spin properties of nanodiamonds with NV-centers / V.A. Pushkarchuk, A.B. Filonov, S.Ya. Kilin, A.P. Nizovtsev, A.L. Pushkarchuk, S.A. Kuten, V.E. Borisenko // Physics, Chemistry and Application of Nanostructures. Reviews and Short Notes to Nanomeeting – 2009 : Proceedings of the International Conference / Ed. by V.E. Borisenko, S.V. Gaponenko, V.S. Gurin. – Singapore: World Scientific Publishing, 2009. – P. 24–27.

19–A. Towards scalable quantum computers: nano-design and simulations of quantum register / V.A. Pushkarchuk, S.Ya. Kilin, A.P. Nizovtsev, A.S. Maloshtan, A.L. Pushkarchuk, S.A. Kuten, F. Jelezko, J. Wrachtrup // Proceedings of the SPIE. – 2009. – Vol. 7377. – P. 737711–737711-10.

20–A. Modeling of electronic and spin structure of single NV centers in nanostructured diamond: influence of nanodiamond surface / V.A. Pushkarchuk, A.L. Pushkarchuk, A.P. Nizovtsev, A.B. Filonov, V.E. Borisenko, S.A. Kuten, S.Ya. Kilin // Proceedings of the SPIE. – 2009. – Vol. 7377. – P. 737707–737707-9.

21–A. Spin-Hamiltonian analysis of quantum registers on single NV center and proximal ^{13}C nuclei in diamond / V.A. Pushkarchuk, A.P. Nizovtsev, S.Ya. Kilin, A.L. Pushkarchuk, S.A. Kuten // Proceedings of NATO ARW «Quantum cryptography and computing: Theory and Implementation», 9–12 Sept. 2009, Gdansk, Poland / Ed. by R. Horodecki [et al.]. – 2010. – P. 148–157.

Тезисы докладов

22–A. Electronic Spin Properties of NV-center in Diamond Nanocrystals / V.A. Pushkarchuk, A.L. Pushkarchuk, S.Ya. Kilin, A.P. Nizovtsev, V.E. Borisenko, A.B. Filonov // X International Conference on Quantum Optics, May 30 – June 3, 2004, Minsk, Belarus : Book of abstracts. – Minsk, 2004. – P. 34.

23–A. *Ab initio* modeling of $C_{36}H_{42}[NV]$ and $C_{36}[NV]$ nanodiamonds / V.A. Pushkarchuk, V.E. Borisenko, V.A. Pushkarchuk, S.Ya. Kilin, A.P. Nizovtsev, A.L. Pushkarchuk, C. von Borczyskowski // *Methods and Applications of Computational Chemistry. 1st International Symposium, Kharkiv, Ukraine, 30 June – 1 July 2005 : Book of abstracts. – Kharkov, 2005. – P. 20.*

24–A. *Ab initio* modeling of spin properties of nanodiamonds with single $[NV]$ center / V.A. Pushkarchuk, A.L. Pushkarchuk, S.A. Kuten, C. von Borczyskowski, S.Ya. Kilin, A.P. Nizovtsev, V.E. Borisenko, A.B. Filonov // *XI International Conference on Quantum Optics, May 26–31, 2006, Minsk, Belarus : Book of abstracts. – Minsk, 2006. – P. 27–28.*

25–A. Моделирование атомной и электронной структуры нанокристаллов алмаза, содержащих $[NV]$ – центры методами квантовой химии / В.А. Пушкарчук, С.Я. Килин, А.П. Низовцев, А.Л. Пушкарчук, В.Н. Родин, В.Е. Борисенко, А.Б. Филонгов // *Новые технологии изготовления многокристалльных модулей : Материалы Междунар. науч.-техн. конф., 25-29 сент. 2006 г., Минск – Нарочь: БГУИР. – 2006. – С. 45.*

26–A. Quantum register on nitrogen-vacancy center in diamond: Optical accessibility of proximal ^{13}C nuclear spins / V.A. Pushkarchuk, A.L. Pushkarchuk, S.Ya. Kilin, A.P. Nizovtsev, S.A. Kuten, V.E. Borisenko // *ICONO'2007, May 28 – June 1 (Minsk, Belarus, 2007): Book of abstracts. – Minsk, 2007. – P. 90.*

27–A. DFT modeling of ESR parameters of nanodiamonds with single $[NV]$ -center / V.A. Pushkarchuk, S.Ya. Kilin, A.P. Nizovtsev, V.E. Borisenko, A.B. Filonov, A.L. Pushkarchuk, S.A. Kuten // *Methods and Applications of Computational Chemistry. 2nd International Symposium, Kyiv, Ukraine, 2–4 July 2007 : Book of abstracts. – Kyiv, 2007. – P. 82.*

28–A. Моделирование электронной и спиновой структуры одиночных NV-центров в наноструктурированном алмазе: влияние поверхности наноалмаза / В.А. Пушкарчук, С.Я. Килин, А.П. Низовцев, А.Л. Пушкарчук, А.Б. Филонов, В.Е. Борисенко, В.И. Корзюк, С.А. Кутень // *Тезисы докладов VII Международной конференции «Лазерная физика и оптические технологии», 17–19 июня 2008 г., Минск, Беларусь. – Минск, 2008. – С. 35.*

29–A. DFT simulation of spin properties of proximal ^{13}C nearby the NV-center in nanodiamond for quantum register / V.A. Pushkarchuk, A.P. Nizovtsev, A.L. Pushkarchuk, A.B. Filonov, V.E. Borisenko, S.A. Kuten, S.Ya. Kilin // *XII International Conference on Quantum Optics and Quantum Information, Sept. 20–23, 2008, Vilnius, Lithuania: Book of abstracts. – Vilnius, 2008. – P. 41–42.*

30–A. Quantum chemical modeling of atomic, electronic and spin structure of single NV centers in nanostructured diamond: influence of free and h- saturated nanodiamond surface / V.A. Pushkarchuk, A.P. Nizovtsev, A.L. Pushkarchuk, A.B. Filonov, V.E. Borisenko, S.A. Kuten, S.Ya. Kilin // *XII International Conference*

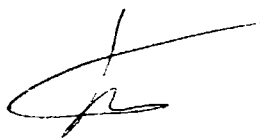
on Quantum Optics and Quantum Information, Sept. 20–23, 2008, Vilnius, Lithuania : Book of abstracts. – Vilnius, 2008. – P. 42–43.

31–A. DFT modeling of ESR parameters of proximal ^{13}C nearby the NV center in nanodiamond for quantum processor / V.A. Pushkarchuk, A.L. Pushkarchuk, S.Ya. Kilin, A.P. Nizovtsev, V.E. Borisenko, A.B. Filonov, S.A. Kuten // Methods and Applications of Computational Chemistry (MACC-3). 3rd International Symposium, Odesa, Ukraine, 28 June – 2 July 2009. – Odessa, 2009. – P. 63.

32–A. DFT Modeling of ESR Parameters of Proximal ^{13}C nearby the NV Center in Nanodiamond for Quantum Processor / V.A. Pushkarchuk, S.Ya. Kilin, A.P. Nizovtsev, V.E. Borisenko, A.B. Filonov, A.L. Pushkarchuk, S.A. Kuten // Methods and Applications of Computational Chemistry. 3rd International Symposium, Odesa, Ukraine, 28 June – 2 July 2009. – Odessa, 2009, – P. 63.

33–A. Kramers-degenerated spin systems «Single NV center plus $2n+1$ proximal carbon- ^{13}C nuclei» in diamond as a sensor for NV-based quantum magnetometry: Spin-Hamiltonian and quantum chemistry analysis / V.A. Pushkarchuk, A.P. Nizovtsev, S.Ya Kilin, A.L. Pushkarchuk, S.A. Kuten // XIII International Conference on Quantum Optics and Quantum Information (ICQOQI-2010), May 28 – June 1, 2010, Kyiv, Ukraine : Book of abstracts. – Kyiv, 2010. – P. 70–71.

34–A. Моделирование методом функционала плотности магниторезонансных параметров для атомов, являющихся ближайшими соседями к NV-центру в наноалмазе / В.А. Пушкарчук, С.Я. Килин, А.П. Низовцев, В.Е. Борисенко, А.Б. Филонов, А.Л. Пушкарчук, С.А. Кутень // Наноструктурные материалы–2010: Беларусь – Россия – Украина (НАНО – 2010) : Тезисы II Междунар. науч. конф. 19–22 окт. 2010 г., Киев, Украина. – Киев, 2010. – С. 173.



ПАБУДОВА, ЭЛЕКТРОННЫЯ І СПІНАВЫЯ ЎЛАСЦІВАСЦІ НАНАРАЗМЕРНЫХ АЛМАЗАЎ, ЯКІЯ ЗМЯШЧАЮЦЬ NV-ЦЭНТРЫ

Ключавыя словы: нанаалмаз, NV-цэнтр, электронная структура, спінавыя ўласцівасці, канстанты ЗТУ, параметры ЭПР, квантавы кампутар, квантава-хімічныя разлікі, метады ТФШ (DFT).

Мэта даследавання: ўстанаўленне структурных асаблівасцей і заканамернасцей змянення фундаментальных электронных і спінавых ўласцівасцей бездэфектных нанаалмазаў і нанаалмазаў, якія змяшчаюць дэфекты «азот-вакансія» (NV-цэнтры), у залежнасці ад іх памеру, структуры аб'ёму і паверхні.

Метады даследавання: квантавахімічнае мадэліраванне ў рамках тэорыі функцыянала электроннай шчыльнасці (ТФШ).

Атрыманыя вынікі і іх навізна. Квантавахімічным мадэліраваннем ўстаноўлены структурныя асаблівасці, фундаментальныя электронныя і спінавыя ўласцівасці бездэфектных нанаалмазаў і нанаалмазаў, якія змяшчаюць NV-цэнтры, пры колькасці атамаў вугляроду ў іх ад 35 да 86. Упершыню ў кластарнама прыбліжэнні разлічаны ізатропныя і анізатропныя канстанты, а таксама галоўныя значэнні тэнзара звыштонкага ўзаемадзеяння неспараных электронаў NV-цэнтра з ядрамі ізатопаў ^{13}C для пасівіраваных вадародам і непасівіраваных нанаалмазаў, якія змяшчаюць NV-цэнтры. Паказана, што з выкарыстаннем пасівіраваных нанаалмазаў магчыма арганізацыя квантавых вылічэнняў як на першых, так і на трэціх суседзях NV-цэнтраў, а таксама на атамах, якія фарміруюць выдзеленую паверхню такіх структур. Непасівіраваныя нанаалмазы дазваляюць арганізаваць квантавыя вылічэнні на атамах, якія фарміруюць фулеренападобную абалонку.

Рэкамендацыі па выкарыстанню, вобласць прымянення. Атрыманыя вынікі аб спінавых характарыстыках пасівіраваных і непасівіраваных нанаалмазаў, якія змяшчаюць NV-цэнтры, рэкамендавана выкарыстоўваць пры праектаванні элементаў сістэм для квантавай апрацоўкі інфармацыі, а таксама ў квантавай аптыцы пры праектаванні крыніц адзіночных фатонаў і крыніц святла для спектраскапіі блізкага поля.

Устаноўленыя заканамернасці змены спінавых ўласцівасцяў нанаалмазаў у залежнасці ад памеру і структуры паверхні рэкамендавана ўлічваць пры распрацоўцы тэхналогіі стварэння такіх структур, пры пастаюўцы і інтэрпрэтацыі эксперыментаў з прыпаверхневымі цэнтрамі для стварэння маштабемага квантавага кампутара, а таксама пры правядзенні магнітаметрыі палей з дапамогай асобных NV-цэнтраў.

СТРОЕНИЕ, ЭЛЕКТРОННЫЕ И СПИНОВЫЕ СВОЙСТВА НАНОРАЗМЕРНЫХ АЛМАЗОВ, СОДЕРЖАЩИХ NV-ЦЕНТРЫ

Ключевые слова: наноалмаз, NV-центр, электронная структура, спиновые свойства, константы СТВ, параметры ЭПР, квантовый компьютер, квантово-химические расчеты, метод ТФП (DFT).

Цель исследования: установление структурных особенностей и закономерностей изменения фундаментальных электронных и спиновых свойств бездефектных наноалмазов и алмазов, содержащих дефекты «азот-вакансия» (NV-центры), в зависимости от их размера, структуры объема и поверхности.

Методы исследования: квантовохимическое моделирование в рамках теории функционала электронной плотности (ТФП).

Полученные результаты и их новизна. Квантовохимическим моделированием установлены структурные особенности, фундаментальные электронные и спиновые свойства бездефектных наноалмазов и алмазов, содержащих NV-центры, при количестве атомов углерода в них от 35 до 86. Впервые в кластерном приближении рассчитаны изотропные и анизотропные константы, а также главные значения тензора сверхтонкого взаимодействия неспаренных электронов NV-центра с ядрами изотопов ^{13}C для пассивированных водородом и непассивированных наноалмазов, содержащих NV-центры. Показано, что с использованием пассивированных наноалмазов возможна организация квантовых вычислений как на первых, так и на третьих соседях NV-центров, а также на атомах, формирующих выделенную поверхность таких структур. Непассивированные наноалмазы позволяют организовать квантовые вычисления на атомах, формирующих фуллереноподобную оболочку.

Рекомендации по использованию, область применения. Полученные результаты по спиновым характеристикам пассивированных и непассивированных наноалмазов, содержащих NV-центры, рекомендовано использовать при проектировании элементов систем для квантовой обработки информации, а также в квантовой оптике при проектировании источников одиночных фотонов и источников света для спектроскопии ближнего поля.

Установленные закономерности изменения спиновых свойств наноалмазов в зависимости от размера и структуры поверхности рекомендовано учитывать при разработке технологии создания таких структур, при постановке и интерпретации экспериментов с приповерхностными центрами для создания масштабируемого квантового компьютера, а также при проведении магнитометрии полей с помощью отдельных NV-центров.

STRUCTURE, ELECTRONIC AND SPIN PROPERTIES OF NANOSCALE DIAMONDS CONTAINING NV-CENTERS

Keywords: nanodiamond, NV-center, electronic structure, spin properties, hyperfine interaction constants, EPR parameters, quantum computer, quantum-chemical calculations, DFT method.

Objective of the research: to establish the structural features and regularities in the fundamental electronic and spin properties of defect-free nanodiamonds and nanodiamonds containing «nitrogen-vacancy» (NV-centers) defects depending on their size, as well as bulk and surface structure.

Methods of investigation: quantum-chemical simulation within density functional theory (DFT).

The results obtained and their novelty. By means of quantum-chemical simulation the structural features, fundamental electronic and spin properties of defect-free nanodiamonds and nanodiamonds containing NV-centers with the number of carbon atoms from 35 to 86 are established. For the first time in the cluster approximation isotropic and anisotropic constants are calculated, as well as the tensor of the hyperfine interaction of unpaired electrons of a NV-center with the nuclei of isotopes ^{13}C in passivated with hydrogen and non-passivated nanodiamond containing NV-centers. It is shown that in passivated nanodiamonds it is possible to organize quantum computation on the first and third neighbors of NV-centers, as well as on the atoms forming specified surfaces of such structures. Non-passivated nanodiamonds allow for quantum calculations involving atoms which form fullerene-like shell.

Recommendations for application. The results obtained on the spin characteristics of the passivated and non-passivated nanodiamonds containing NV-centers are recommended to use for design of components of quantum information processing systems, as well as in quantum optics for design of single-photon sources and light sources of near-field spectroscopy.

The established regularities of changes in the spin properties of the nanodiamonds with respect to on the size and structure of the surface are recommended to consider at the development of technologies for formation of such structures, at the performing and interpretation experiments with near-surface centers for development of a scalable quantum computer, as well as at field magnetometry using single NV-centers.

Научное издание

ПУШКАРЧУК ВАДИМ АЛЕКСАНДРОВИЧ

**СТРОЕНИЕ, ЭЛЕКТРОННЫЕ И СПИНОВЫЕ СВОЙСТВА
НАНОРАЗМЕРНЫХ АЛМАЗОВ, СОДЕРЖАЩИХ NV-ЦЕНТРЫ**

Специальность 05.16.08 – Нанотехнологии и наноматериалы

Автореферат диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Подписано в печать <i>15.05.10/16.</i>	Формат 60x84 1/16.	Бумага офсетная.
Гарнитура «Таймс».	Отпечатано на ризографе.	Усл. печ. л. <i>163</i>
Уч.-изд. л. <i>15.</i>	Тираж 60 экз.	Заказ <i>119.</i>

Издатель и полиграфическое исполнение: учреждение образования
«Белорусский государственный университет информатики и радиоэлектроники»
ЛИ №02330/0494371 от 16.03.2009. ЛП №02330/0494175 от 03.04.2009.
220013, Минск, П. Бровки, 6.