09

Электронно-ядерное взаимодействие вакансий бора в гексагональном нитриде бора

© Е.В. Дмитриева[1], Г.В. Мамин[1], Ф.Ф. Мурзаханов[1], И.Н. Грачева[1], М.Р. Гафуров[1], В.А. Солтамов[2]

[1] Казанский Федеральный университет,
Казань, Россия
[2] Физико-технический институт имени А.Ф. Иоффе РАН,
Санкт-Петербург, Россия
E-mail: dev600@mail.ru

Поступила в Редакцию 30 апреля 2025 г.
В окончательной редакции 8 сентября 2025 г.
Принята к публикации 11 ноября 2025 г.

Проведено исследование взаимодействий спинового дефекта и ближайших ядер азота в гексагональном нитриде бора методами электронного парамагнитного резонанса и двойного электронно-ядерного резонанса. Определены константы сверхтонкого ($A_{iso} = 59.5\,\text{MHz}$, $A_{dd} = 13.8\,\text{MHz}$) и квадрупольного ($C_q = 1.96\,\text{МГц}$) взаимодействий для ядер азота ^{14}N первой координационной сферы. Полученные результаты важны для понимания механизмов электронно-ядерных взаимодействий в hBN и разработки квантовых устройств на основе спиновых дефектов в двумерных материалах.

Ключевые слова: электронный парамагнитный резонанс, ДЭЯР спектроскопия, вакансия бора, hBN, спиновый дефект.

DOI: 10.61011/FTT.2025.12.62448.8056k-25

1. Введение

Особенностью исследуемых спиновых дефектов для квантовых приложений является их возможность сохранять квантовую когерентность при комнатной температуре ($T = 297\,\text{K}$), что было экспериментально подтверждено методами оптически детектируемого магнитного резонанса. Вышеупомянутое преимущество кардинально отличает изучаемую систему от традиционных сверхпроводящих кубитов, требующих низких температур ($\sim 10\,\text{mK}$), что представляет собой дополнительные трудности при масштабировании и реализации квантовых алгоритмов. Время электронной спин-спиновой релаксации T_2 вакансии бора оценивается величиной порядка нескольких микросекунд [1–4].

Отрицательно заряженная вакансия бора V_B^- в кристалле гексагонального нитрида бора (hBN) представляет собой точечный дефект по Френкелю с локальной симметрией D_{6h} в окружении трех эквивалентных атомов азота в плоскости слоя BN, возникающий при удалении атома бора во время облучения высокоэнергетическими частицами с последующим захватом электрона из кристаллической решетки [5]. Спиновый дефект V_B^- представляет особую ценность для квантовых вычислений благодаря уникальным спиновым и оптическим свойствам. Важное условие применимости кубита — возможность осуществления инициализации, считывания и манипулирования спиновыми состояниями. Указанные операции могут быть реализованы посредством комбинированного оптического, микроволнового и радиочастотного воздействий для состояний вакансии бора в hBN [6–8].

Однако к временам когерентности предъявляются более строгие требования, так как этот параметр определяет временной интервал для выполнения квантовых операций и хранения квантовой информации [9]. Длительное время когерентности ядерных спинов порядка миллисекунд [10] критически важно для реализации квантовой памяти и электронно-ядерных регистров [11,12], где ядерные спины выступают долгоживущими элементами памяти, а электронные спины обеспечивают канал управления. Таким образом, возникает необходимость в получении величин, характеризующих ядра и их взаимодействия с вакансией бора.

2. Детали эксперимента

В данной работе исследовался монокристалл гексагонального нитрида бора размером $0.90 \times 0.54 \times 0.05$ мм, подвергнутый воздействию пучком электронов с энергией 2 MeV. Эксперименты методом электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) проводились на спектрометре Bruker Elexsys E680 в W-диапазоне (94 GHz) при оптическом возбуждении с использованием диодного лазера ($\lambda 532\,\text{nm}$, $P = 100\,\text{mW}$). С целью получения констант сверхтонкого и квадрупольного взаимодействий между спиновым дефектом и ядрами азота первой координационной сферы (рис. 1, *a*) использовалась спектроскопия двойного электронно-ядерного резонанса (ДЭЯР).

3. Результаты и их обсуждение

В спектре электронного парамагнитного резонанса наблюдаются два перехода (рис. 1, *b*), соответствующие

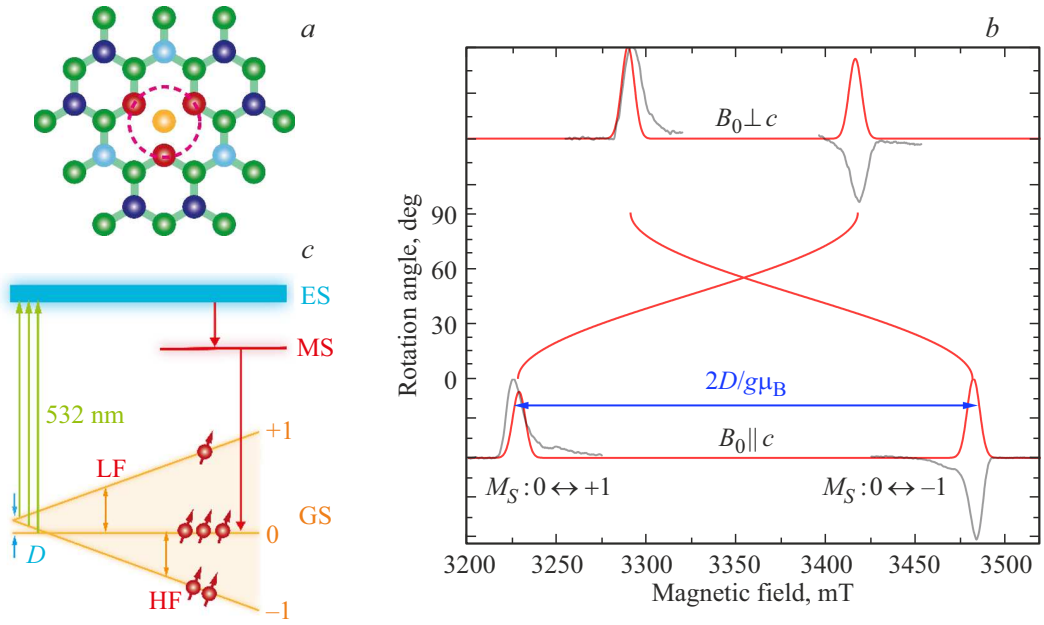


Рис. 1. *a* — кристаллическая решетка hBN, вакансия бора изображена в центре.Зеленым цветом показаны атомы бора, красным — атомы азота первой координационной сферы; *b* — спектр ЭПР (черная линия) и моделирование (красная линия) для двух ориентаций: ось кристалла с параллельна и перпендикулярна вектору магнитного поля B_0 (W-диапазон, $T = 25$ K). Приведено моделирование угловой зависимости (сплошные красные линии); *c* — упрощенная схема энергетических уровней спинового дефекта при оптическом накачке на длине волны 532 nm. ES — возбужденное состояние, MS — метастабильное состояние, GS — основное состояние.

тонкой структуре вакансии бора со спином $S = 1$. Проведенное моделирование угловой зависимости спектров позволило определить параметры спинового гамильтониана. Значение g-фактора составило 2.004. Расщепление в нулевом магнитном поле описывается выражением $2D/g\mu_B$ с величиной $D = 3.55$ GHz [6].

Особый интерес представляет изменение фазы сигнала высокополевого перехода в спектре ЭПР на 180°, что свидетельствует об отклонении населенностей спиновых подуровней от распределения Больцмана. Данный эффект обусловлен лазерной накачкой и может быть интерпретирован в рамках приведенной модели энергетических уровней (рис. 1, *c*) и соответствующих оптических переходов.

Спектроскопические особенности исследуемой системы обусловлены совокупностью пяти вкладов: электронное Зеемановское, расщепление в нулевом магнитном поле, ядерное Зеемановское, сверхтонкое и квадрупольное взаимодействия. Спиновый гамильтониан в случае параллельной ориентации может быть записан в следующем виде:

$$\hat{H} = g\mu_B B_0 S_z + D\left(S_z^2 - \frac{S(S+1)}{3}\right) - \gamma\hbar B_0 I_z + \sum_{i=1}^{3}\left(A_{xx}S_x I_{x(i)} + A_{yy}S_y I_{y(i)} + A_{zz}S_z I_{z(i)} + \frac{C_q}{4I(2I-1)}\left(3I_{z(i)}^2 - I(I+1) + \eta(I_{x(i)}^2 - I_{y(i)}^2)\right)\right),$$

где суммирование ведется по ядрам азота.

Для переходов $0 \leftrightarrow +1$ и $0 \leftrightarrow -1$ были получены спектры ДЭЯР от ядер ^{14}N ($I = 1$, 99.6 %) первой координационной сферы (рис. 2). В результате моделирования были установлены главные значения тензора сверхтонкого взаимодействия: $A_{xx} = 46.5$ MHz, $A_{yy} = 45.0$ MHz, $A_{zz} = 87.0$ MHz, что соответствует изотропной составляющей $A_{iso} = 59.5$ MHz и анизотропному вкладу $A_{dd} = 13.8$ MHz. Константа квадрупольной связи составила $C_q = 1.96$ MHz, параметр асимметрии $\eta = -0.07$. Анализ спектральных особенностей потребовал применения теории возмущений второго порядка, что позволило объяснить наблюдаемые сдвиги сигналов ДЭЯР относительно ядерной частоты Лармора.

В перпендикулярной ориентации для низкополевого перехода вблизи ларморовской частоты были обнаружены резонансные пики (рис. 3). Проведенное моделирование позволило идентифицировать происхождение сигналов, соответствующих переходам, связанным со взаимодействиями ядер первой координационной сферы и вакансии бора.

Проведенный анализ многокомпонентных спектров ДЭЯР позволил детально охарактеризовать радиочастотные переходы, связанные с ядрами ^{14}N в первой координационной сфере вакансии бора в hBN. Установлена зависимость положения резонансных линий от пространственной ориентации (θ, φ) между вакансией бора и ближайшими ядрами азота. Применение возбуждающих импульсов открывает возможность селективного управления спинами для конкретных ядер

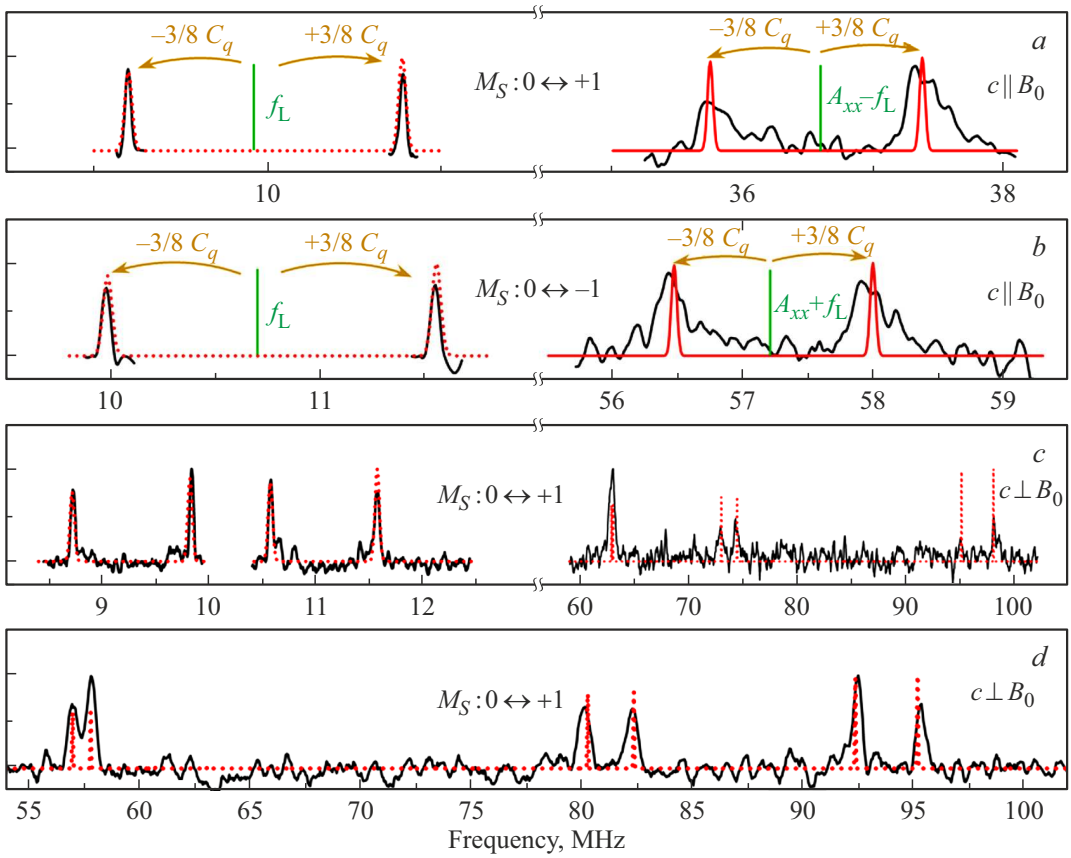


Рис. 2. Спектр ДЭЯР азота ^{14}N для двух электронных переходов: $M_S = 0 \leftrightarrow +1$ в магнитном поле $B_0 = 3223.1$ mT и $M_S = 0 \leftrightarrow -1$ в магнитном поле $B_0 = 3480.5$ mT: *a* — параллельная ориентация, низкополевой переход; *b* — параллельная ориентация, высокополевой переход; *c* — перпендикулярная ориентация, $\varphi = 7.5^\circ$, $T = 50$ K; *d* — $\varphi = 18^\circ$, $T = 25$ K, где φ — угол отклонения в плоскости оборванной связи. f_L — Ларморовская частота азота ^{14}N, C_q — константа квадрупольной связи.

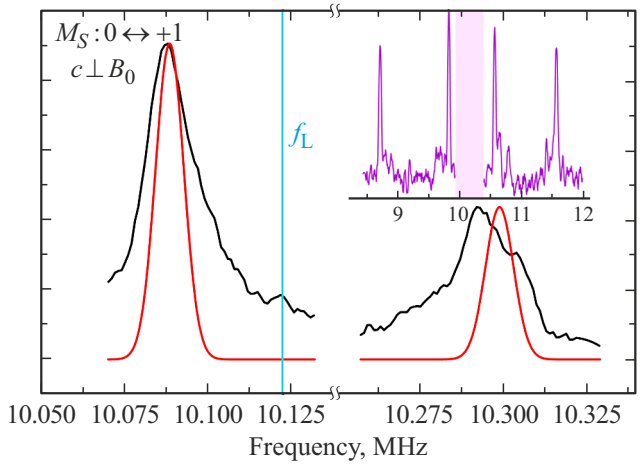


Рис. 3. Спектр ДЭЯР азота ^{14}N вблизи ларморовской частоты для перехода $M_S = 0 \leftrightarrow +1$ ($\varphi = 7.5^\circ$, $T = 25$ K).

^{14}N, в частности, подавления в случае необходимости нежелательных ядерных взаимодействий в системе через селективное насыщение конкретных переходов [4]. Анализ констант сверхтонкого взаимодействия показал, что изотропная составляющая значительно превышает анизотропный вклад, что свидетельствует о высокой степени локализации спиновой плотности на атомах азота. Особый интерес представляет возможность создания гибридных квантовых систем, где электронный спин выступает в качестве управляющего кубита, а ядерные спины ^{14}N выполняют функцию квантовой памяти. Такой подход, реализуемый в двумерном материале, открывает новые возможности для разработки масштабируемых квантовых устройств [13].

4. Заключение

Проведенные исследования методом ДЭЯР-спектроскопии позволили детально изучить взаимодействие спинового дефекта и ядерной подсистемы. Полученные результаты открывают перспективы для создания масштабируемых квантовых устройств на основе гибридных электронно-ядерных систем, спиновый дефект и ядра в hBN могут служить платформой для реализации многокубитных логических операций и квантовой памяти с увеличенным временем когерентности. Дальнейшие исследования могут быть направлены на оптимизацию ме-

тодов управления спиновыми состояниями и интеграцию данных систем в практические квантовые приложения.

Финансирование работы

Исследование выполнено в рамках гранта РНФ № 24-12-00151.

Конфликт интересов

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

Список литературы

[1] A. Gottscholl, M. Diez, V. Soltamov, C. Kasper, A. Sperlich, M. Kianinia, C. Bradac, I. Aharonovich, V. Dyakonov. Sci. Adv. **7**, *14*, eabf3630 (2021). DOI: 10.1126/sciadv.abf3630
[2] F.F. Murzakhanov, G.V. Mamin, S.B. Orlinskii, U. Gerstmann, W.G. Schmidt, T. Biktagirov, I. Aharonovich, A. Gottscholl, A. Sperlich, V. Dyakonov, V.A. Soltamov. Nano Lett. **22**, *7*, 2718 (2022). DOI: 10.1021/acs.nanolett.1c04610
[3] P. Krantz, M. Kjaergaard, F. Yan, T.P. Orlando, S. Gustavsson, W.D. Oliver. Appl. Phys. Rev. **6**, *2*, 021318 (2019). DOI: 10.1063/1.5089550
[4] J. Lee, H. Park, H. Seo. npj 2D Mater. Appl., **6**, *1*, 60 (2022). DOI: 10.1038/s41699-022-00336-2
[5] G. Barcza, V. Ivády, T. Szilvási, M. Vörös, L. Veis, Á. Gali, Ö. Legeza. J. Chem. Theory Comput. **17**, *2*, 1143 (2021). DOI: 10.1021/acs.jctc.0c00809
[6] A. Gottscholl, M. Kianinia, V. Soltamov, S. Orlinskii, G. Mamin, C. Bradac, C. Kasper, K. Krambrock, A. Sperlich, M. Toth, I. Aharonovich, V. Dyakonov. Nat. Mater. **19**, *5*, 540 (2020). DOI: 10.1038/s41563-020-0619-6
[7] W. Lee, V.S. Liu, Z. Zhang, S. Kim, R. Gong, X. Du, K. Pham, T. Poirier, Z. Hao, J.H. Edgar, P. Kim, C. Zu, E.J. Davis, N.Y. Yao. Phys. Rev. Lett. **134**, *9*, 096202 (2025). DOI: 10.1103/PhysRevLett.134.096202
[8] F.F. Murzakhanov, B.V. Yavkin, G.V. Mamin, S.B. Orlinskii, I.E. Mumdzhi, I.N. Gracheva, B.F. Gabbasov, A.N. Smirnov, V.Y. Davydov, V.A. Soltamov. Nanomaterials **11**, *6*, 1373 (2021). DOI: 10.3390/nano11061373
[9] G. Wolfowicz, F.J. Heremans, C.P. Anderson, S. Kanai, H. Seo, A. Gali, G. Galli, D.D. Awschalom. Nat. Rev. Mater. **6**, *10*, 906 (2021). DOI: 10.1038/s41578-021-00306-y
[10] G.D. Fuchs, G. Burkard, P.V. Klimov, D.D. Awschalom. Nature Phys. **7**, *10*, 789 (2011). DOI: 10.1038/nphys2026
[11] M.A. Perlin, Z. Wang, J. Casanova, M.B. Plenio. Quantum Sci. Technol. **4**, *1*, 015007 (2019). DOI: 10.1088/2058-9565/aade5c
[12] A. Bourassa, C.P. Anderson, K.C. Miao, M. Onizhuk, H. Ma, A.L. Crook, H. Abe, J. Ul-Hassan, T. Ohshima, N.T. Son, G. Galli, D.D. Awschalom. Nat. Mater. **19**, *12*, 1319 (2020). DOI: 10.1038/s41563-020-00802-6
[13] C.E. Bradley, J. Randall, M.H. Abobeih, R.C. Berrevoets, M.J. Degen, M.A. Bakker, M. Markham, D.J. Twitchen, T.H. Taminiau. Phys. Rev. X **9**, *3*, 031045 (2019). DOI: 10.1103/PhysRevX.9.031045

Редактор А.Н. Смирнов