

DOKTORI ÉRTEKEZÉS TÉZISEI

Ponthibák azonosítása félvezető szerkezetekben hiperfinom tenzor számításával

Szász Krisztián

okleveles fizikus

Témavezető:

Dr. Gali Ádám

tudományos tanácsadó, MTA doktora

Eötvös Loránd Tudományegyetem Természettudományi Kar

Fizika Doktori Iskola

Anyagtudomány és Szilárdtestfizika Program

Doktori Iskola vezetője: Dr. Palla László

Doktori Program vezetője: Dr. Lendvai János



MTA Wigner Fizikai Kutatóközpont Szilárdtestfizikai és Optikai Intézet

Budapest

2015

1. Bevezetés, célkitűzés

Az elektronikus berendezések legfőbb alkotóeleme a félvezető anyag, ami a legtöbbször szilícium. Ebből ugyan könnyen és olcsón lehet kiváló eszközöket gyártani, viszont extrém körülmények között, pl. magas hőmérsékleten, radioaktív sugárzásban vagy nagy teljesítményű illetve nagy frekvencián működő készülékek gyártásához a szilícium nem megfelelő. Kutatások szerint ezeknek a kritériumoknak olyan széles tiltott sávú félvezetők felelnek meg, mint a gyémánt, a szilícium-karbid vagy a gallium-nitrid, mert a szükséges fizikai paramétereik (pl. olvadáspont, letörési feszültség) sokkal nagyobbak, mint a szilícium esetén. Azonban ezek az anyagok sem tökéletes kristályok, hanem különböző ponthibákat tartalmaznak. A ponthibák kutatása, mikroszkopikus viselkedésének ismerete azért fontos, mert jelenlétük megváltoztathatják a félvezető elektromos, mágneses vagy optikai tulajdonságát. Negatív hatásuk abban nyilvánul meg, hogy ezek a hibák csapdát jelenthetnek a többségi töltéshordozók számára, ezáltal gátolhatják az eszközt a helyes működésében. Viszont pozitívum, hogy a manapság intenzíven kutatott kvantuminformatica, kvantumoptika és spintronika területén fontos szerep jut a hibával rendelkező félvezetőknek. Ugyanis ezek a hibák gyakran véges spinű alapállapottal rendelkeznek, melyek spinállapota koherens módon kontrollálható fénnyel akár szobahőmérsékleten is, emiatt kiváló jelöltek az ún. kvantumbit (qubit) megvalósításában. Ezen túlmenően, nem csak a hibaállapot spinje manipulálható, hanem egyes esetekben a manipuláció által a hiba környezetében elhelyezkedő atommagok magspinje is szabályozható, ezért az az ún. kvantum memória létrehozásában fontos. Az elektronspin általi magspin szabályozás lényeges előrelépést jelent a távoli érzékelés (remote sensing) kifejlesztésében, ahol úgy szerzünk információt egy távol levő objektumról, hogy nem lépünk közvetlen kontaktusba vele. Ezzel a módszerrel egyetlen, spinnel rendelkező atommag kicsiny mágneses tere is érzékelhető. Viszont előfordulhat, hogy a kvantumbit vagy az atommag spinállapotának élettartama (coherence time) lecsökken egy másik, elektronspinnel rendelkező szennyeződés hatására. Az ilyen nem kívánt hatás (információvesztés) elkerülése céljából is szükséges a ponthibák tanulmányozása. Ezek mellett fontos megemlíteni, hogy egyes ponthibák az újgenerációs fényforrások, azaz az egyfotonos források (single photon source) megvalósításában is lényeges szerephez jutnak, melyek a kvantum-kommunikáció kifejlesztésében elengedhetetlenek. A félvezetőbeli ponthibák vizsgálata napjaink egyik legfelkapottabb témája, nap mint nap jelennek meg róluk tanulmányok rangos folyóiratokban, ugyanis fizikai tulajdonságaik megértése és kiaknázása egyáltalán nem lezárt, sőt messze nem teljes.

A fenti motivációk alapján szilícium-karbidban, szilíciumban és gyémántban (IV-es

főcsoportbeli kristályokban) levő paramágneses ponthibáktól származó hiperfinom tenzort számoltam ki. A hiperfinom kölcsönhatás szoros kapcsolatban áll a mag helyén levő és a mag körüli spinsűrűséggel. A hibára jellemző spinsűrűség-eloszlás ismeretét felhasználhatjuk arra, hogy leírjuk a hiba szerkezetét, valamint megértsük a hibával rendelkező rendszer fizikai tulajdonságait. A spinsűrűség kísérletileg az elektron paramágneses rezonancia (EPR) vagy az elektron-mag kettős rezonancia (ENDOR) módszerekkel térképezhető fel a hiba elektronspinje és a magspin közötti kölcsönhatás által. Ez a kölcsönhatás ebben a mérésekben a vonalak hiperfinom felhasadását eredményezi, melyek elemzése a spinsűrűség eloszlását tárja elénk. A hiperfinom tenzort illetően, az alapállapotú számolási eredményeket az említett mérésekben meghatározottakkal összevetve kiváló lehetőség nyílik adott rendszerekben található ponthibák azonosítására. Az azonosítás mellett célom, hogy minél pontosabban meg tudjam határozni a félvezető anyagbeli ponthibák hiperfinom szerkezetét az alkalmazott kóddal. Ezáltal lehetséges megjósolni kísérletileg még nem vizsgált rendszerek hiperfinom struktúráját, vagy egy adott rendszerre a kísérletileg ellentmondó eredményeket tisztázni. Akár az alapállapotbeli, akár a gerjesztett állapotbeli hiperfinom tenzor számítással olyan ponthibával rendelkező rendszert lehet vizsgálni, amelyben az atomok spinpolarizációja manipulálható a hibaállapotok gerjesztésével. A hiperfinom szerkezet tanulmányozása azért is fontos, mert a manipuláció mechanizmusában vagy az előző bekezdésben leírt információvesztésben a hiperfinom kölcsönhatás alapvető szerepet játszik. Ezért a hiperfinom szerkezet ismerete segít megérteni ezeket a folyamatokat, valamint segít abban, hogy újabb jelölteket találjunk a kvantuminformaticai eszközök megvalósításában.

2. Alkalmazott módszerek

A hiperfinom tenzor illetve a spinsűrűség meghatározásához a Kohn–Sham-féle sűrűségfunkcionál-elméletet használtam. A számítások elvégzéséhez a VASP (Vienna Ab Initio Simulation Package) programcsomagot hívtam segítségül, amit hazai vagy külföldi számítógépeken futtattam. Ez a kód síkhullám bázisú és teljes elektron módszert (projektorral kiegészített hullám, röviden PAW-módszer) használ, amivel a spinsűrűség a mag helyén is pontosan számolható. A vizsgált rendszereket szupercella-módszerrel modelleztem a 400-500 atomot tartalmazó szupercella közepén elhelyezve a hibát. A hibával rendelkező szupercella optimális konfigurációját a konjugált gradiens módszerrel kerestem meg szintén a VASP kóddal. Az Brillouin-zóna mintavételezése legtöbbször a Γ -pontban történt, de néhány esetben fontos volt a $2 \times 2 \times 2$ -es Monkhorst-Pack-hálót használni. A kicserélődési-korrelációs tag közelítésére a PBE- és a HSE06-funkcionálokat alkalmaztam.

3. Tézispontok

1. Kiemelkedően fontos illetve kísérletileg jól ismert félvezetőbeli ponthibákhoz kötődő hiperfinom tenzor meghatározásával megmutattam, hogy a hiperfinom főértékek kiszámolásában a legjobb eredmény akkor érhető el, ha a kicserélődési-korrelációs tag közelítésére az ún. HSE06 hibrid funkcionált használjuk, valamint ehhez hozzávesszük a törzselektronok spinpolarizációjából származó járulékot a Fermi-féle kontaktus tagban, ami egyes esetekben igen nagy is lehet, ellentétben a korábbi feltételezésekkel [1].
 - a) Megállapítottam, hogy a NV-centrum esetén a lényegesen kevesebb számolási időt igénylő PBE-funkcionál használata is megfelelő. Ekkor a törzskorrekciót nem kell figyelembe venni, mert a korrekció elhanyagolása és a hullámfüggvények lokalizáltságának alulbecsülése kompenzálja egymást. Viszont most is elmondható az, hogy a HSE06-funkcionál és a törzselektronok járuléka együtt is megadja a helyes hiperfinom tenzort [1].
2. Meghatároztam a semleges szilíciumvakanciába kerülő nióbbiumatom (Nb_{Si}^0) és a semleges szén-szilícium kettős vakanciában aszimmetrikusan ülő nióbbiumatom ($\text{Nb}_{\text{Si-V}_\text{C}}^0$) hiperfinom szerkezetét 4H-SiC-ban. Összehasonlítva a nióbbiumra és a szomszédos szilíciumatomokra kapott hiperfinom főértékeket a nióbbiummal szennyezett mintán végzett EPR-kísérletben meghatározott hiperfinom eredményekkel, megállapítottam, hogy az egyetlen megfigyelt, nióbbiumhoz kötődő EPR-spektrum az $\text{Nb}_{\text{Si-V}_\text{C}}^0$ hibától származik. Ezáltal igazoltam azt a korábbi jóslatot, hogy ilyen szennyezés esetén ez a hiba jön létre a legnagyobb valószínűséggel, azaz ez a legstabilabb nióbbiumhoz köthető ponthiba a SiC-ban [2].
3. A hiperfinom tenzor kiszámításával az alacsony energiájú (250 keV) elektronokkal besugárzott, nitrogénnel szennyezett 4H-SiC-ban EPR-méréssel talált új hibacentrumot a negatívan töltött, k helyen levő szénvakanciával ($\text{V}_\text{C}(k)^-$) azonosítottam. Ezen túlmenően, megmagyaráztam azt a jelenséget, hogy alacsony hőmérsékleten (~ 30 K) a mért hiperfinom eloszlás C_{1h} szimmetriát mutat, míg magasabb hőmérsékleten (~ 100 K) ugyanez C_{3v} szimmetriával rendelkezik. A C_{1h} szimmetriájú geometria kétféle módon alakulhat ki, amelyek merőben eltérő hiperfinom struktúrával rendelkeznek. Ezekben a C_{1h} szimmetria háromféleképpen valósulhat meg, melyek közötti energiagát termikusan legyőzhető. Ez a három konfiguráció egyformán van jelen magasabb hőmérsékleten, azaz a spin sűrűség eloszlása „vándorol” a hiba mel-

letti három szilíciumatom között, ami azt eredményezi, hogy a megfigyelt szimmetria C_{3v} [3].

a) A korábban meghatározott betöltési szintek ismeretében beláttam, hogy a h helyettesítés negatív- U tulajdonsága gyengébb a k helyettesítésénél, valamint hogy a $(-|0)$ betöltési szint a h esetben alacsonyabban helyezkedik el, mint a k esetben. Ezekkel az eredményekkel meg tudtam magyarázni a mért EPR-spektrum hőmérsékletfüggését. A kapott betöltési szintek jó egyezést mutatnak a kísérletben mértekkel, így ez még inkább megerősíti a hiperfinom főértékek alapján történt azonosítást [3].

4. A 3C-, 4H- és 6H-SiC-ban leggyakrabban előforduló nitrogén donoratom a szénatom helyét foglalja el (N_C). 3C-SiC esetén a k , míg 4H- és 6H-SiC-ban a h vagy a k rácshelyekre beülő nitrogénatomtól származó hiperfinom eloszlást vizsgáltam meg. Az eredményeim korábbi és a linköpingi kollégák által végzett új kísérletekkel való összehasonlításával sikerült az addig ellentmondó hiperfinom szerkezeteket tisztáznom. Megállapítottam, hogy mindegyik SiC típusban a spinsűrűség főként a szénatomokon és a szilíciumatomok közötti csatornán található. Továbbá megmutattam, hogy 3C-SiC esetén hiperfinom kölcsönhatás csak a nitrogénatommal és néhány szénatommal lép fel, viszont az meglehetősen gyenge. 4H-SiC esetén a h és a k helyettesítés egyértelműen megkülönböztethető a nitrogéneken vagy a hiba körüli szilíciumatomokon mért hiperfinom állandók által. 6H-SiC-ben hasonlóan elkülöníthető a h és a köbös helyettesítés, valamint a két k_1 és k_2 is szétválasztható, mert a c -tengelyen elhelyezkedő szilíciumatomon csak a k_1 esetben van mérhető hiperfinom főérték [4].

5. 4H-SiC-ban vizsgáltam a semleges, szilíciumatom helyére bekerülő szénantihelyszénvakancia ($C_{Si}-V_C$) hibapárt. Megmutattam, hogy a rendszer alapállapotában a várakozással ellentétben nem az $S = 0$ spinű, C_{3v} szimmetriájú, hanem az $S = 1$ spinű C_{1h} szimmetriájú elrendezés az alacsonyabb energiájú. A hiperfinom tenzor, a betöltési szintek, valamint együttműködésben végzett gerjesztési energia és D -tenzor (zérustér-felhasadás) számításával rámutattam arra, ahogy a gyémántbeli NV-centrumhoz hasonlóan a hiba spinjét manipulálni is lehet, sőt a számolt hiperfinom főértékek alapján lehetőség van szénatomok illetve szilíciumatomok magspinjei és a hiba elektronspinje közötti összefonódott állapot kialakítására, ezáltal az atomok spinállapotát is lehetne szabályozni. A kiszámolt hiperfinom szerkezet felhasználható 4H-SiC-ra végzett EPR-mérésekben azonosítás céljából [5].

4. Következtetések

A félvezetőbeli ponthibák hiperfinom tenzorjának meghatározására a dolgozatban bemutatott és alkalmazott módszer rendkívül hatásos eszköz az anyagban található hiba vizsgálatához. A szimulációval meghatározott hiperfinom felhasadást összehasonlítva az EPR-kísérletben kapott spektrummal, annak eredetét lehet megismerni, azaz a hibát lehet azonosítani. Az azonosításon túl a hiperfinom szerkezet ismeretét felhasználhatjuk olyan esetekben is, amikor elektronspin-magspin összefonódott állapotot kívánjuk megvizsgálni, illetve ha a magspint szeretnénk polarizálni. Ekkor – az azonosítással ellentétben – a kisebb, de még mérhető hiperfinom főértékkel rendelkező atomok játsszák a döntő szerepet.

A tézisek alapjául szolgáló hivatkozások

- [1] K. SZÁSZ, T. HORNOS, M. MARSMAN, A. GALI, *Physical Review B* **88**, 075202 (2013).
- [2] N. T. SON, X. T. TRINH, A. GALLSTRÖM, S. LEONE, O. KORDINA, E. JANZÉN, K. SZÁSZ, V. IVÁDY, A. GALI, *Journal of Applied Physics* **112**, 083711 (2012).
- [3] X. T. TRINH, K. SZÁSZ, T. HORNOS, K. KAWAHARA, J. SUDA, T. KIMOTO, A. GALI, E. JANZÉN, N. T. SON, *Physical Review B* **88**, 235209 (2013).
- [4] K. SZÁSZ, X. T. TRINH, N. T. SON, E. JANZÉN, A. GALI, *Journal of Applied Physics* **115**, 073705 (2014).
- [5] V. I. K. SZÁSZ, I. A. ABRIKOSOV, E. JANZÉN, M. BOCKSTEDTE, A. GALI, *Physical Review B* **91**, 121201(R) (2015).

További publikációk

- [6] A. SZÁLLÁS, K. SZÁSZ, X. T. TRINH, N. T. SON, E. JANZÉN, A. GALI, *Journal of Applied Physics* **116**, 113702 (2014).
- [7] V. IVÁDY, R. ARMIENTO, K. SZÁSZ, E. JANZÉN, A. GALI, I. A. ABRIKOSOV, *Physical Review B* **90**, 035146 (2014).
- [8] K. SZÁSZ, V. IVÁDY, E. JANZÉN, A. GALI, *Materials Science Forum* **778-780**, 499 (2014).

- [9] X. T. TRINH, K. SZÁSZ, T. HORNOS, K. KAWAHARA, J. SUDA, T. KIMOTO, A. GALI, E. JANZÉN, N. T. SON, *Materials Science Forum* **778-780**, 285 (2014).