На правах рукописи

Чехович Евгений Александрович

ЯДЕРНЫЕ СПИНОВЫЕ ЭФФЕКТЫ В ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ КВАНТОВЫХ ТОЧКАХ ПРИ ОПТИЧЕСКОМ ВОЗБУЖДЕНИИ

01.04.07 - физика конденсированного состояния

Автореферат

диссертации на соискание учёной степени кандидата физико-математических наук

Черноголовка — 2010

Работа выполнена в Учреждении Российской академии наук Институт физики твердого тела РАН.

Научный руководитель:	доктор физико-математических наук, профессор Кулаковский Владимир Дмитриевич
Официальные оппоненты:	доктор физико-математических наук Жуков Евгений Алексеевич
	кандидат физико-математических наук Девятов Эдуард Валентинович
Ведущая организация:	Учреждение Российской академии наук Физико-технический институт РАН им. А.Ф. Иоффе

Защита состоится "___" 2010 г. в ____ ч. ___ мин. на заседании диссертационного совета Д 002.100.01 при Учреждении Российской академии наук Институт физики твердого тела РАН по адресу: 142432, Московская область г. Черноголовка, ул. Институтская, д. 2.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ИФТТ РАН.

Автореферат разослан "____"____ 2010.

Учёный секретарь диссертационного совета доктор физико-математических наук

Зверев В. Н.

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы. Основным направлением развития современных вычислительных систем является уменьшение физических размеров логических элементов. Однако, приближение к пределу миниатюризации кремниевой микроэлектроники заставляет исследователей обратиться к принципиально новым подходам в создании информационных систем. Наибольший интерес представляет возможность создания квантового компьютера с использованием в качестве базового логического элемента двухуровневой квантовой системы (так называемого q-бита) [1, 2]. В качестве возможных физических реализаций q-бита были предложены такие системы как, одиночные ионы, которые могут находиться в основном или возбужденном состояниях, или спины одиночных частиц, таких как, например, электроны или ядра [2–4].

Необходимым свойством для q-бита является его изоляция от взаимодействия с окружением на достаточно длительное время, в течение которого выполняются логические операции. С этой точки зрения хорошими кандидатами на роль q-бита являются спины одиночных ядер, помещенных в матрицу материала с нулевым спином: примеси атомов кремния ²⁹Si или фосфора ³¹P [4] в кремнии ²⁸Si, или атомы углерода ¹³C в алмазе [3, 5]. Однако, несмотря на исключительно большие времена когерентности, перечисленные выше системы обладают существенным недостатком, а именно, невозможностью масштабирования.

III-V полупроводники широко используются в сложных электронных и оптоэлектронных устройств с малыми топологическими размерами. Наиболее перспективным объектом для реализации q-бита на их основе является квантовая точка (KT) [2,6]. Квантовой точкой называется область полупроводника с размерами порядка 10-100 нм, ограниченная в трех измерениях и имеющая меньший электростатический потенциал, чем окружающий материал. Из-за трехмерной локализации заряд (электрон проводимости или дырка в валентной зоне), находящийся в KT, имеет дискретный энергетический спектр, что позволяет рассматривать его спиновые состояния как основу для реализации элементарной ячейки памяти или логического элемента (q-бита). В связи с этим большой интерес представляет изучение механизмов, приводящих к дефазировке и релаксации спинов электронов и дырок.

Во всех *III-V* соединениях ядра атомов имеют отличные от нуля ядерные спины. Несмотря на свою малость, магнитное взаимодействие между спинами ядер и спином электрона (сверхтонкое взаимодействие) оказывает су-

щественное влияние на спиновую динамику локализованных в КТ носителей. Флуктуации ядерной поляризации приводят к спиновой релаксации зарядов в КТ, ограничивая максимальное время когерентности [7].

Прогресс на пути к реализации q-бита требует поиска методов манипуляции ядерной спиновой системой, позволяющих увеличить время электронной спиновой когерентности. Один из предложенных подходов заключается в подавлении флуктуаций ядерного спина за счет создания большой степени ядерной поляризации [8]. Необходимо также выяснение условий, при которых требуемая конфигурация ядерной системы могла бы сохраняться в течение продолжительного времени. В связи с этим особый интерес представляет исследование процессов выстраивания и релаксации неравновесной поляризации спинов ядер в полупроводниковых КТ. Кроме того, замораживание ядерной поляризации в нано-размерном объеме квантовой точки на длительное время представляет отдельный интерес, как модель запоминающего устройства, позволяющего реализовать высокую плотность хранения информации.

Целью настоящей диссертационной работы являлось экспериментальное исследование процессов накачки ядерной поляризации в *III-V* полупроводниковых наноструктурах при резонансном и нерезонансном оптическом возбуждении, а также изучение динамики ее релаксации.

Для достижения поставленных целей были решены следующие задачи:

1. С помощью оптической спектроскопии исследованы условия формирования КТ при выращивании InP на подложке GaInP и найдены оптимальные параметры роста, позволяющие получать структуры с KT InP/GaInP с заданным распределением размеров и плотностью точек.

2. Разработаны оптическая схема и программное обеспечение, на основе которых была сконструирована экспериментальная установка, позволяющая выполнять комплексные исследования ядерной спиновой поляризации в одиночных КТ при резонансном и нерезонансном оптическом возбуждении.

3. Исследованы экситонные состояния в одиночных KT InP/GaInP с различным зарядом. Измерены g-факторы электронов проводимости и дырок в валентной зоне и величина электрон-дырочного обменного взаимодействия в KT.

Практическая ценность работы:

1. Показана возможность создания высокой степени поляризации ядер в KT InP/GaInP при нерезонансном оптическом возбуждении в широком диапазоне магнитных полей, включая нулевое поле.

2. Разработана экспериментальная методика, позволяющая исследовать процессы ядерной спиновой поляризации в одиночных КТ при резонансном возбуждении как оптически активных, так и запрещенных экситонных переходов.

3. Продемонстрировано эффективное подавление ядерной спиновой релаксации в полупроводниковых KT InP/GaInP. Найдено, что неравновесная ядерная спиновая поляризация в KT с размерами \sim 30x30x5 нм³ может быть заморожена на время более 2 часов. Накачка и считывание могут быть выполнены оптическим методом за время \sim 1 с.

Научную новизну составляют следующие положения, выносимые на защиту:

1. Экспериментально исследовано возникновение ядерной поляризации в одиночных квантовых точках InP/GaInP с различным зарядом в широком диапазоне магнитных полей при нерезонансном оптическом возбуждении. Найдено, что при возбуждении циркулярно поляризованным светом ядерная поляризация в КТ возникает за счет двух механизмов: сверхтонкого взаимодействия ядер (i) с поляризованными электронами в основном состоянии непосредственно в КТ, и (ii) с делокализованными электронами в смачивающем слое. Первый механизм эффективен в однократно заряженных КТ, причем накачка ядерного спина в положительно заряженных точках происходит в результате взаимодействия ядер с фотовозбужденным электроном, а в отрицательно заряженных КТ - с резидентным электроном, остающимся после рекомбинации фотовозбужденной электрон-дырочной пары в КТ.

2. Показано, что эффективность динамической ядерной поляризации при нерезонансном оптическом возбуждении в КТ InP/GaInP зависит от степени компенсации внешнего поля ядерным полем. Эта зависимость приводит к сильной положительной обратной связи в заряженных точках в диапазоне внешних полей 0.3÷1 Тл, что позволяет реализовать 50% степень поляризации ядер в КТ. Найдено, что в этих условиях система электронных и ядерных спинов демонстрирует бистабильное поведение. В отрицательно заряженных КТ в состоянии с большой ядерной поляризацией наблюдается ускорение релаксации спина резидентного электрона, приводящее к изменению степени циркулярной поляризации излучения КТ на ~7%.

3. Показано, что в положительно заряженных КТ InP/GaInP ядерная поляризация при резонансном оптическом возбуждении возникает в результате двух различных циклических процессов, начинающихся, соответствен-

но, с возбуждения разрешенного оптического перехода (аналог классического эффекта Оверхаузера) или дипольно запрещенного перехода (аналог "солидэффекта"). Найдено, что при больших плотностях возбуждения накачка ядерной поляризации через запрещенный переход более эффективна, как в ненулевом, так и в нулевом магнитном поле. Эффект объяснен в рамках теоретической модели, основанной на решении оптических уравнений Блоха, как результат малой вероятности одновременного переворота спинов ядра и электрона, приводящей к ограничению эффективности процесса, связанного с возбуждением разрешенного перехода, но несущественной для "оптического солид-эффекта".

4. Экспериментально найдено, что при увеличении интенсивности резонансной оптической накачки запрещенного перехода в положительно заряженной KT InP/GaInP происходит насыщение степени поляризации ядер на уровне 65%, практически не зависящем от внешнего магнитного поля. Установлено, что такое насыщение достигается значительно раньше насыщения накачки трионов в KT через запрещенный переход. Оно также не может быть связано с малой скоростью дырочной спиновой релаксации в KT. Полученная максимальная степень ядерной поляризации совпадает с найденной ранее в экспериментах по нерезонансной оптической накачке в KT в других *III-V* полупроводниках [9,10].

5. Динамика релаксации ядерных спинов в квантовой яме (КЯ) GaAs/Al_{0.33}Ga_{0.67}As исследована с помощью время-разрешенного детектирования Оверхаузеровского сдвига в КТ, образованной флуктуациями толщины ямы. Найдено, что время затухания пространственно неоднородной ядерной спиновой поляризации составляет \approx 60 с, а основным механизмом релаксации является спиновая диффузия. Коэффициент спиновой диффузии из КЯ в \sim 15 раз меньше, чем в объемном GaAs, что объясняется суммарным влиянием квадрупольного эффекта, вызванного деформациями и понижением симметрии на гетерогранице, и увеличенного расстояния между ядрами галлия в барьере Al_{0.33}Ga_{0.67}As.

6. Исследована динамика релаксации ядерной поляризации в самоорганизованных квантовых точках InP/GaInP с различным зарядом. Найдено, что время затухания ядерной поляризации в КТ в одном и том же образце изменяется от точки к точке в пределах от 100 с до 6000 с. Наибольшие времена ≈6000 с, наблюдаемые в отрицательно заряженных точках, свидетельствуют о практически полном подавлении спиновой диффузии из КТ. Механизм подав-

ления диффузии не может быть описан одним лишь влиянием квадрупольных эффектов, предложенных ранее для объяснения медленной ядерной динамики в KT InGaAs/GaAs [11], и может быть обусловлен влиянием неоднородного найтовского поля электрона [12]. В некоторых KT наблюдается большой разброс значений ядерного поля, детектируемых после достаточно длительной задержки. Стохастический характер регистрируемых величин ядерного поля свидетельствует о включении быстрой релаксации ядерной спиновой поляризации в KT через спиновую диффузию при случайной перезарядке KT.

Личный вклад соискателя в диссертационную работу состоит в его участии в постановке задач, разработке экспериментальных методик, проведении экспериментов по исследованию ядерных эффектов в одиночных квантовых точках, обработке и интерпретации результатов, а также подготовке полученных результатов к публикации.

Апробация работы. Основные результаты представленных в диссертации исследований докладывались на международной конференции "UK Semicondocturs 2008" (Шеффилд, Великобритания, 2008), на международной конференции по физике полупроводников ICPS2008 (Рио-Де-Жанейро, Бразилия, 2008), на международной конференции по полупроводниковым квантовым точкам QD2008 (Кёнджу, Южная Корея, 2008), на 37-й ежегодной международной школе по физике полупроводниковых соединений (Яшовец, Польша, 2008), на международной конференции по квантовой когерентности (Сан-Себастьян, Испания, 2008), на международной конференции по квантовой физике и технологиям ICQFT'09 (Шанхай, Китай, 2009).

Публикации. По материалам диссертации опубликовано 3 работы [A1, A2, A3] в реферируемых журналах "Physical Review B", "Physical Review Letters".

Структура и объем диссертации. Диссертация состоит ИЗ введения, пяти глав, заключения списка цитируемой литерату-И Общий объём диссертации составляет _____ страниц, ры. вклю-_____ рисунков и список литературы наименований. чая ИЗ

КРАТКОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность проблемы, сформулированы цели диссертационной работы, перечислены полученные в диссертации новые результаты, представлены положения, выносимые на защиту, и описана структура диссертации.

<u>В главе 1</u> дан обзор экспериментальных и теоретических работ, имеющих отношение к теме диссертации.

В разделе 1.1 рассмотрены основные свойства ядерной спиновой системы в твердом теле. Приведены гамильтонианы, описывающие межъядерное взаимодействие, влияние электрических и магнитных полей на ядерные спины, рассмотрены специфические свойства электронно-ядерного сверхтонкого взаимодействия и дан обзор основных механизмов ядерной спиновой релаксации и динамической поляризации.

В разделе 1.2 дан обзор способов выращивания и основных свойств полупроводниковых КТ. Рассмотрена структура энергетического спектра электронов и дырок в зависимости от количества зарядов локализованных в квантовой точке, а также обсуждается влияние упругой деформации и асимметрии геометрической формы КТ на спиновые взаимодействия зарядов.

В разделе 1.3 рассмотрены эффекты связанные с взаимодействием электронов и ядер в полупроводниковых КТ. Приведены результаты исследования динамической ядерной поляризации в КТ оптическими методами и обсуждается влияние ядерной спиновой системы на спиновую релаксацию и когерентность спинового состояния электрона, локализованного в КТ.

<u>В главе 2</u> приведено описание исследуемых образцов и методики эксперимента.

В разделе 2.1 приведено описание полупроводниковых структур с квантовыми точками InP/GaInP. Образцы были выращены методом эпитаксии из газовой фазы металло-органического соединения на подложках GaAs (100), разориентированных в направлении <111> на угол α =3÷10°. Рост KT InP на подложке GaInP происходит в режиме самоорганизации Странского-Крастанова. Получающиеся нанокристаллы имеют бимодальное распределение геометрических размеров [13]. Точки первого типа ("сформировавшиеся" точки) имеют вид усеченных пирамид с высотой ~15 нм и с основанием ~40-50 нм. Точки второго типа ("частично сформировавшиеся" точки) имеют схожие латеральные размеры и высоту порядка 5 нм. В данной работе исследуются ядерные спиновые эффекты в KT второго типа, фотолюминесценция (ФЛ) экситонов в которых состоит из узких спектральных линий с шириной менее 15 мкэВ, что позволяет детектировать зеемановское расщепление экситонов с высокой точностью.

В разделе 2.2 приведено описание структур с КТ GaAs/AlGaAs. Образец представляет собой квантовую яму GaAs с номинальной толщиной 13 моно-

слоев, выращенную в барьере Al_{0.33}Ga_{0.67}As. Квантовые точки формировались в результате моноатомных флуктуаций толщины квантовой ямы с латеральными размерами ~10-100 нм. Энергия локализации экситонов в таких КТ составляет порядка 15 мэВ.

В разделе 2.3 описана методика низкотемпературной спектроскопии магнитофотолюминесценции одиночных квантовых точек. Для исследования ядерных спиновых эффектов в индивидуальных КТ поверхность образца покрывалась непрозрачной металлической пленкой с отверстиями диаметром 400-800 нм. Образец размещался в оптическом криостате при температуре жидкого гелия 4.2 К. Сверхпроводящий магнит позволял получать магнитное поле до 8 Тл. Фотолюминесценция КТ возбуждалась нерезонансным излучением лазера, сфокусированным в пятно диаметром 1÷3 мкм на поверхности образца, с энергией фотона, меньшей энергии барьера (GalnP или AlGaAs, соответственно). Люминесценция небольшого числа КТ из отдельной апертуры, собранная микроскопным объективом, фокусировалась на входную щель двойного монохроматора Ramanor U-1000 и детектировалась с помощью ПЗС матрицы, охлаждаемой азотом. Для накачки ядерной спиновой поляризации в КТ использовалось сверхтонкое взаимодействие электронов и ядер. Спин-поляризованные электроны, созданные циркулярно поляризованной оптической накачкой, индуцируют неравновесную ядерную поляризацию посредством процессов электронно-ядерного спин-флипа. Для измерения средней намагниченности ядерных спинов в КТ также использовался эффект сверхтонкого взаимодействия. Суммарный спин ядер действует на электроны в КТ как эффективное магнитное поле B_N и приводит к дополнительному зеемановскому расщеплению электронных спиновых уровней, которое детектируется в спектрах нерезонансной фотолюминесценции электрон-дырочных пар в КТ. Данная методика позволяет определять среднюю степень поляризации спинов небольшого числа (10^4 - 10^5) ядер в КТ с точностью $\sim 1\%$. Для изучения динамики ядерной спиновой поляризации в экспериментальной установке дополнительно использовались механические и/или электронные затворы, позволяющие блокировать возбуждающий лазер и сигнал люминесценции КТ согласно требуемой временной последовательности, задаваемой программируемым генератором импульсов.

В разделе 2.3 приведено описание методики исследования ядерных спиновых эффектов при резонансном оптическом возбуждении оптических переходов в KT InP/GaInP. Образец освещался излучением одномодового лазера

со спектральной шириной менее 1 мкэВ и плавно перестраиваемой длиной волны, близкой к длине волны рекомбинации основного состояния электрондырочной пары в выбранной КТ. Измерение спектра люминесценции КТ при резонансном возбуждении невозможно из-за интенсивного рассеянного излучения возбуждающего лазера. Эффект резонансного оптического возбуждения на ядерную спиновую поляризацию в КТ исследовался с помощью методики "накачка-тестирование". Для измерения зеемановского расщепления электронных спиновых уровней излучение резонансного лазера блокировалось затвором на короткий промежуток времени, в течение которого ядерная спиновая поляризация не успевает существенно измениться. Одновременно образец освещался нерезонансным лазером и измерялся спектр фотолюминесценции. Длина волны лазера пошагово сканировалась, что позволяло измерять стационарные значения энергий оптических переходов и ядерной спиновой поляризации в КТ как функции энергии резонансного лазера.

<u>В главе 3</u> приведены результаты исследования стационарных эффектов электронно-ядерного взаимодействия в KT InP/GaInP при нерезонансном оптическом возбуждении. Спиновым эффектам в структурах с KT GaAs/AlGaAs и In(Ga)As/(Al)GaAs, в том числе эффектам сверхтонкого взаимодействия электронов и ядер, было посвящено большое количество работ [14]. Одиночные KT InP/GaInP исследованы значительно меньше.

В разделе 3.1 приведены результаты характеризации структур с КТ InP/GaInP. Исследуемые образцы не имели электрических контактов, позволяющих изменять заряд КТ, однако, из-за наличия примесей в барьере точки могли захватывать при низкой температуре как электроны, так и дырки. Для определения зарядового состояния каждой индивидуальной КТ использовались результаты измерения магнитофотолюминесценции [15] и эффекта Ханле [16]. В работе использовались только те КТ, в которых в широком диапазоне плотностей возбуждения доминирует люминесценция лишь одного зарядового состояния. На рисунке 1 показаны спектры ФЛ нейтральной (а) и однократно заряженной (б) КТ в магнитном поле в геометрии Фойхта (поле B перпендикулярно оси роста структуры Oz). Характерной особенностью нейтральных КТ является спектральное расщепление (тонкая структура) при B=0 и появление дополнительных компонент, отщепленных на $\delta_0 \approx 200$ мкэB, в малом поле $B_x = 0.5$ Тл. В однократно заряженных КТ спектр люминесценции состоит из одиночной линии, которая линейно расщепляется на четыре компоненты во внешнем поле $B \perp Oz$. Из измерений в магнитных полях различных направ-



Рис. 1. Спектры ФЛ нейтральной (а) и однократно заряженной (б) КТ в ортогональных линейных поляризациях (π_1 и π_2) в магнитном поле в плоскости образца. Кривые Ханле в положительно (в) и отрицательно (г) заряженных КТ.

лений было найдено, что g-фактор электрона не зависит от направления поля $(g_e \approx +1.6)$ и анизотропен в случае дырки: $g_{h,z} \approx +2.5 \div +3.0$, $|g_{h,x}| \approx 0.5 \div 0.7$. Для определения знака заряда КТ использовались измерения зависимости степени циркулярной поляризации ФЛ от величины магнитного поля B_x при циркулярном возбуждении. Получены два типа кривых деполяризации Ханле, соответствующие положительно (рис. 1 (в)) и отрицательно (рис. 1 (г)) однократно заряженным точкам, из которых также определено время деполяризации спинового состояния фотовозбужденного (резидентного) электрона, равное ≈ 0.2 нс (≈ 1.2 нс) при B=0.

В разделе 3.2 приведены результаты исследования статической ядерной поляризации в КТ InP/GaInP при оптической накачке. На рисунке 2 показаны зависимости интегральной интенсивности ФЛ I_{PL} (а), и эффективного ядерного поля B_N (б) от плотности σ^+ поляризованного фотовозбуждения P_{exc} для трех КТ с различным зарядом во внешнем магнитном поле B_z =2.5 Тл. Зависимости I_{PL} качественно одинаковы для всех КТ: с ростом накачки интенсивность ФЛ растет и достигает максимального значения при $P_{exc} \approx 30$ мкВт, при которой достигается наибольшая степень заполнения КТ одной фотовозбуж-



Рис. 2. Зависимость интенсивности ФЛ (а) и ядерного поля (б) от плотности циркулярно поляризованного фотовозбуждения в нейтральной (X^0) , положительно (X^+) и отрицательно (X^-) заряженных КТ.

денной электрон-дырочной парой. В этих условиях в заряженных точках обоих знаков наблюдается ядерное поле $|B_N| \approx 0.8$ Тл, которое слабо изменяется при дальнейшем увеличении плотности возбуждения. Напротив, в нейтральной КТ значительное ядерное поле может быть индуцировано лишь при высокой плотности возбуждения ($P_{exc}>250$ мкВт), когда в спектре ФЛ уже доминирует рекомбинация делокализованных электрон-дырочных пар в смачивающем слое. Различие в характере зависимости B_N от P_{exc} позволяет сделать вывод о существовании двух механизмов динамической ядерной поляризации при оптическом возбуждении: сверхтонкого взаимодействия ядер с (i) поляризованными электронами непосредственно в КТ (доминирует при малых плотностях накачки), и (ii) с делокализованными электронами в смачивающем слое (доминирует при высокой плотности накачки). Первый механизмо эффективен лишь в заряженных КТ.

В разделе 3.3 исследуется эффект обратной связи в системе электронных и ядерных спинов в КТ InP/GaInP при оптическом возбуждении. На рис. 3 показана зависимость ядерного поля в положительно заряженной КТ от плотности накачки при B_z =0.85 Тл. Эффект динамической ядерной поляризации сильно асимметричен относительно знака циркулярной поляризации возбуждающего света. Накачка σ^+ светом приводит к значительно бо́льшей ядерной поляризации, чем в случае $\sigma^$ возбуждения. Кроме того, наблюдается



Рис. 3. Эффект бистабильности в зависимости спектрального расщепления ФЛ и величины ядерного поля в положительно заряженной КТ от плотности циркулярно поляризованного фотовозбуждения.

эффект памяти: равновесное значение ядерного поля B_N зависит от предыстории изменения мощности накачки P_{exc} (указано стрелками на рис. 3). Существование двух устойчивых значений B_N при фиксированной плотности возбуждения (ядерная спиновая бистабильность) является следствием зависимости эффективности динамической поляризации от величины B_N [10]. Накачка σ^+ светом создает отрицательное ядерное поле $B_N < 0$, которое может компенсировать внешнее поле $(B_N \approx -B_z)$, приводя к уменьшению электронного спинового расщепления. Благодаря малости зеемановской энергии, которая должна быть скомпенсирована при перевороте спина электрона, пере-

дача спина от поляризованных электронов к ядрам существенно ускоряется, что позволяет поддерживать высокую степень поляризации ядерных спинов в КТ, достигающую 50%.

<u>В главе 4</u> исследуется влияние резонансного оптического возбуждения на ядерную поляризацию в одиночных KT InP/GaInP. В предыдущих работах [17, 18] эффект резонансного возбуждения KT исследовался с помощью методики селективного поглощения, которая позволяет изучать лишь оптически активные переходы. Примененная в данной работе методика "резонансная накачка/нерезонансное тестирование" лишена этого недостатка, и делает возможным более полное понимание процессов динамической ядерной поляризации.

В разделах 4.1 и 4.2 приведены результаты экспериментов по изучению ядерных спиновых эффектов при резонансном оптическом возбуждении в положительно заряженных КТ. На рис. 4 (а) показана схема энергетических уровней тяжелых дырок (h) и положительных трионов (X^+) в КТ в магнитном поле вдоль оси роста структуры. Правила отбора для фотовозбуждения/рекомбинации трионов определяются проекциями спинов электронов (\uparrow, \downarrow) и дырок (\uparrow, \downarrow) на направление поля: дипольно разрешенными являются лишь циркулярно поляризованные переходы, показанные вертикальными жирными стрелками, переходы изображенные тонкими стрелками запрещены в дипольном приближении. Символами на рис. 4 (б) показана экс-



Рис. 4. (a) Схема энергетических уровней и оптических переходов в положительно заряженной КТ в магнитном поле $B \| Oz$. (б) Экспериментальная зависимость ядерного поля от энергии резонансного лазера (символы). Сплошными линиями показана расчетная зависимость.

периментальная зависимость стационарного значения ядерного поля в KT от энергии кванта σ^+ поляризованного лазера в поле B_z =2.5 Tл. Резонанс-

ное возбуждение разрешенного σ^+ перехода при энергии лазера $E_l - E_0 \approx 0$ (E_0 - константа, примерно равная энергии разрешенного перехода) приводит к появлению отрицательного ядерного поля. Вопреки ожиданиям, резонанс лазера с запрещенным переходом (тонкая пунктирная стрелка на схеме) при $E_l - E_0 \approx 170$ мкэВ сопровождается динамической ядерной поляризацией, существенно большей, чем при накачке разрешенного перехода.

В разделе 4.3 рассматривается теоретическая модель, позволяющая объяснить эксперимент. Сверхтонкое взаимодействие электронов и ядер смешивает спиновые состояния трионов, частично снимая правила отбора. Возбуждение или рекомбинация через дипольно запрещенные переходы сопровождается переворотом ядерного спина и ведет к динамической ядерной поляризации. Можно выделить два циклических процесса накачки ядерного спина. Оба начинаются из состояния КТ с дыркой со спином вниз (↓). Первый процесс (эффект Оверхаузера) начинается с возбуждения триона через разрешенный переход (сплошная жирная стрелка). Переворот ядерного спина происходит при рекомбинации через запрещенный переход (тонкая сплошная стрелка). Цикл завершается релаксацией дырочного спина (стрелка с коротким пунктиром). Второй процесс ("солид-эффект") начинается с возбуждения триона через запрещенный переход с одновременным переворотом спина ядра (тонкая пунктирная стрелка). Рекомбинация происходит через разрешенный переход (жирная пунктирная стрелка), после чего следует переворот дырки. Скорости процессов динамической ядерной поляризации могут быть рассчитаны с помощью оптических уравнений Блоха. Величина ядерного поля B_N при заданной энергии лазера находится из решения уравнения баланса, учитывающего процессы накачки и релаксации ядерной спиновой поляризации.

В разделе 4.4 приведено сравнение эксперимента с предложенной теоретической моделью для различных величин магнитного поля и интенсивности лазера. Результат численного решения уравнения динамики с малым числом подгоночных параметров показан на рис. 4 (б) сплошной линией. Теоретический расчет дает хорошее согласие с экспериментом и позволяет объяснить асимметрию кривых зависимости B_N от энергии лазера, а также бо́льшую степень поляризации ядер при оптическом возбуждении запрещенного перехода.

В разделе 4.5 исследуется возможность создания высокой степени поляризации ядерных спинов с помощью оптической накачки. Из измерений с различной плотностью мощности резонансного лазера было найдено, что ядерное поле, индуцируемое с помощью "солид-эффекта", растет с увеличением интенсивности лазера и насыщается на уровне $|B_N| \approx 1.7$ Тл, что соответствует $\approx 65\%$ степени поляризации ядер. При накачке ядер через эффект Оверхаузера удается достичь лишь 45% степени поляризации, что связано с насыщением разрешенного оптического перехода. Однако, насыщение ядерной поляризации в случае "солид-эффекта" не связано с насыщением соответствующего запрещенного перехода, а также, как следует из измерений в широком диапазоне магнитных полей, не может быть объяснено малой скоростью дырочной спиновой релаксации в положительно заряженной КТ. То есть ни один из двух механизмов, названных раннее в качестве возможных ограничений для предельно достижимой ядерной поляризации [8], не объясняет наблюдаемое насыщение. Полученная степень поляризации сравнима с наибольшей величиной поляризации найденной в КТ в других полупроводниках, что, повидимому, указывает на общую, пока неизвестную причину, препятствующую оптической накачке 100% ядерной поляризации.

<u>В главе 5</u> исследуется динамика ядерной спиновой поляризации в структурах с квантовыми точками InP/GaInP и GaAs/AlGaAs.

В разделе 5.1 приведены результаты исследования динамики ядерной спиновой поляризации при оптической накачке (динамика выстраивания ядерного спина). Обнаружено сильное замедление ядерной спиновой динамики с ростом магнитного поля, связанное с уменьшением вероятности электронно-ядерного спин-флипа при увеличении зеемановского расщепления электрона. Время выстраивания ядерного спина в KT InP/GaInP возрастает от ~5 мс при B=0 до ~2 с при B=2 Тл, с выходом на насыщение при B>2 Тл.

В разделе 5.2 дано описание методики "накачки-тестирования", использованной для измерения динамики релаксации ядерной спиновой поляризации в темноте (динамики затухания ядерного спина). В методике использовался экспериментальный цикл, состоящий из циркулярно поляризованного импульса накачки для приготовления спин-поляризованного состояния ядер и короткого импульса тестирования, используемого для измерения ядерного поля в КТ по истечении времени задержки t_{del} .

В разделе 5.3 приведены результаты измерения динамики затухания ядерной поляризации в квантовых ямах GaAs/AlGaAs. Ядерное поле в двумерном слое квантовой ямы детектировалось по изменению зеемановского расщепления в спектре ФЛ квантовых точек, образованных флуктуациями толщины ямы. Время затухания ядерной поляризации в КЯ составляет ≈60 с, что много



Рис. 5. Динамика затухания ядерной поляризации в однократно заряженных KT InP/GaInP в магнитном поле $B \| Oz$ (символы). Пунктирными линиями показана аппроксимация экспериментальных зависимостей экспоненциальной функцией, сплошной - расчет на основе уравнения диффузии.

меньше, чем в объемном GaAs (\approx 1000 с). Столь сильное уменьшение времени затухания в КЯ свидетельствует об интенсивной спиновой диффузии из ямы в барьер. Из аппроксимации зависимости ядерного поля B_N в КТ от t_{del} с помощью кривой, рассчитанной из уравнения диффузии, определен коэффициент спиновой диффузии D из КЯ GaAs. Найденное значение $D=6\cdot10^{-15}$ см²/с в ~15 раз меньше, чем в объемном GaAs [19]. Замедление диффузии из КЯ частично обусловлено увеличением расстояния между идентичными ядрами галлия в барьере. Кроме того, квадрупольный сдвиг ядерных спиновых уровней, вызванный упругими напряжениями на гетерогранице, также ведет к замедлению диффузии.

В разделе 5.4 приведены результаты измерения динамики затухания ядерной поляризации в квантовых точках InP/GaInP с различным зарядом. На рисунке 5 (а) символами показаны зависимости ядерного поля B_N от времени задержки t_{del} , измеренные в положительно $(X^+ \text{ N1})$ и отрицательно $(X^- \text{ N2})$ заряженных квантовых точках. Пунктирными линиями показана экспоненциальная аппроксимация зависимости $B_N(t_{del})$ с временами затухания $\tau_{dec}^{X^+,N1} \approx 90$ с и $\tau_{dec}^{X^-,N2} \approx 5800$ с, соответственно. Время затухания ядерной поляризации в отрицательно заряженной КТ $(X^- \text{ N2})$ сравнимо с временем затухания в объемном InP ($\approx 7000 \text{ c}$), что свидетельствует о практически полном подавлении спиновой диффузии. Затухание ядерной поляризации в положительно заряженной КТ X^+ N1 в том же образце происходит на значительно меньшем масштабе времени и носит неэкспоненциальный характер.

На начальном этапе наблюдается быстрая релаксация ядерной поляризации с последующим замедлением. Такое поведение является характерным в случае, когда спиновая релаксация определяется спиновой диффузии. Расчет на основе уравнения диффузии (сплошная линия) дает более точное описание динамики релаксации в КТ X^+ N1. На рисунке 5 (б) показана динамика затухания ядерной поляризации в еще одной отрицательно заряженной КТ X^- N3. В отличие от других точек в этой КТ наблюдается большой разброс значений B_N , измеренных после достаточно длинных задержек ($t_{del} \ge 100$ с). Флуктуации величины B_N при больших t_{del} , существенно превосходящие погрешность измерения, свидетельствуют о существовании дискретного процесса, случайным образом изменяющего скорость ядерной спиновой релаксации.

В разделе 5.5 обсуждаются механизмы подавления релаксации ядерной поляризации в КТ InP/GaInP. Показано, что подавление спиновой диффузии, наблюдаемое в некоторых КТ, не может быть описано одним лишь влиянием квадрупольных эффектов, вызванных упругими напряжениями [11, 20]. Большой разброс времен затухания ядерного спина в различных КТ в одном образце может быть объяснен различием их зарядовых состояний: наиболее длинные времена релаксации ядерного спина наблюдаются в КТ, заряженных одним электроном. Дополнительное замедление спиновой релаксации в отрицательно заряженных точках может быть обусловлено влиянием неоднородного найтовского поля электрона, которое приводит к рассогласованию зеемановских расщеплений соседних ядер и, как следствие, к существенному замедлению спиновой диффузии [12]. Случайная перезарядка квантовых точек в течение темнового времени приводит к скачкообразному изменению скорости ядерной спиновой релаксации. Данный процесс позволяет объяснить большой разброс значений B_N , измеренных после длительной задержки в некоторых $\mathsf{KT}(X^- \mathsf{N3}).$

<u>В Заключении</u> перечислены основные результаты работы:

1. Экспериментально исследованы спектры люминесценции одиночных квантовых точек InP/GaInP с различным зарядом. Определена величина электрон-дырочного обменного взаимодействия и g-факторы носителей в KT. Измерено время релаксации спина электрона в KT в нулевом магнитном поле.

2. Исследовано возникновение ядерной поляризации при нерезонансном оптическом возбуждении в одиночных KT InP/GaInP с различным зарядом. Найдено, что накачка ядерного спина поляризованными электронами, локализованными в основном состоянии непосредственно в KT, эффективна лишь

в однократно заряженных точках. В нейтральных КТ динамическая ядерная поляризация возможна лишь за счет взаимодействия с делокализованными поляризованными электронами в смачивающем слое.

3. Показано, что сильная обратная связь в системе электронных и ядерных спинов в KT InP/GaInP, возникающая при нерезонансном оптическом возбуждении σ^+ поляризованным светом в диапазоне магнитных полей 0.3÷1 Тл, приводит к бистабильности ядерной поляризации. В этих условиях может быть достигнута ~50% степень поляризации ядер.

4. Компенсация зеемановского расщепления электрона эффективным ядерным полем в состоянии с большой ядерной поляризацией в режиме ядерной спиновой бистабильности приводит к ускорению релаксации электронного спина, что в случае отрицательно заряженных точек позволяет детектировать переход ядерной спиновой системы между двумя устойчивыми состояниями по изменению степени циркулярной поляризации излучения КТ.

5. Для экспериментального исследования ядерной поляризации в положительно заряженных квантовых точках InP/GaInP при резонансном оптическом возбуждении предложена методика "резонансная накачка/нерезонансное тестирование".

6. Обнаружена эффективная динамическая ядерная поляризация при оптическом возбуждении дипольно запрещенных экситонных переходов в КТ.

7. Предложена теоретическая модель, обосновывающая существование двух различных механизмов резонансной оптической накачки ядерного спина: 1) процесса, связанного с возбуждением разрешенного оптического перехода (аналог классического эффекта Оверхаузера), и 2) процесса, связанного с возбуждением дипольно запрещенного перехода (аналог солид-эффекта). Высокая эффективность "оптического солид-эффекта" объяснена отсутствием характерного для эффекта Оверхаузера ограничения, связанного с малой вероятностью одновременного переворота спинов ядра и электрона.

8. Найдено, что с ростом интенсивности резонансного возбуждения степень поляризации ядер в положительно заряженной КТ InP/GaInP насыщается на уровне ~65%, сравнимом с наибольшей степенью, полученной в предыдущих работах в КТ в различных полупроводниках. Показано, что насыщение ядерной поляризации на уровне, значительно меньшем 100%, не связано ни с насыщением запрещенного перехода, ни с малой скоростью дырочной спиновой релаксации.

9. Найдено, что доминирующим механизмом ядерной спиновой релак-

сации в квантовых ямах GaAs/Al_{0.33}Ga_{0.67}As является спиновая диффузия. Коэффициент диффузии из КЯ в ~15 раз меньше, чем в объемном GaAs, что связано с подавлением диффузии на гетерогранице из-за квадрупольных эффектов и увеличения расстояния между идентичными ядрами.

10. Показано, что времена ядерной спиновой релаксации в различных KT InP/GaInP в одном и том же образце лежат в пределах от 100 с до 6000 с. Время релаксации в отрицательно заряженных KT, достигающее 6000 с, сравнимо с временем релаксации в объемном InP, что свидетельствует о практически полном подавлении диффузии. Замораживание ядерной спиновой поляризации объяснено эффектом неоднородного найтовского поля электрона, локализованного в KT.

Материалы диссертации опубликованы в работах:

- A1. J. Skiba-Szymanska, E. A. Chekhovich, A. E. Nikolaenko, A. I. Tartakovskii, M. N. Makhonin, I. Drouzas, M. S. Skolnick, and A. B. Krysa. "Overhauser effect in individual $InP/Ga_xIn_{1-x}P$ dots". Phys. Rev. B 77, 165338 (2008).
- A2. A. E. Nikolaenko, E. A. Chekhovich, M. N. Makhonin, I. W. Drouzas,
 A. B. Van'kov, J. Skiba-Szymanska, M. S. Skolnick, P. Senellart,
 D. Martrou, A. Lemaître, and A. I. Tartakovskii. "Suppression of nuclear spin diffusion at a GaAs/Al_xGa_{1-x}As interface measured with a single quantum-dot nanoprobe". Phys. Rev. B **79**, 081303 (2009).
- A3. E. A. Chekhovich, M. N. Makhonin, K. V. Kavokin, A. B. Krysa, M. S. Skolnick, and A. I. Tartakovskii. "Pumping of nuclear spins by optical excitation of spin-forbidden transitions in a quantum dot". принято к публикации в Phys. Rev. Lett. **104** (2010).

Список цитируемой литературы:

- S. Lloyd, "A Potentially Realizable Quantum Computer", Science 261, 1569 (1993).
- [2] D. Loss and D. P. DiVincenzo, "Quantum computation with quantum dots", Phys. Rev. A 57, 120 (1998).
- [3] M. V. G. Dutt, L. Childress, L. Jiang, E. Togan, J. Maze, F. Jelezko, A. S. Zibrov, P. R. Hemmer, and M. D. Lukin, "Quantum Register Based on

Individual Electronic and Nuclear Spin Qubits in Diamond", Science **316**, 1312 (2007).

- [4] B. E. Kane, "A silicon-based nuclear spin quantum computer", Nature 393, 133 (1998).
- [5] L. Childress, M. V. Gurudev Dutt, J. M. Taylor, A. S. Zibrov, F. Jelezko, J. Wrachtrup, P. R. Hemmer, and M. D. Lukin, "Coherent Dynamics of Coupled Electron and Nuclear Spin Qubits in Diamond", Science **314**, 281 (2006).
- [6] G. Burkard, D. Loss, and D. P. DiVincenzo, "Coupled quantum dots as quantum gates", Phys. Rev. B 59, 2070 (1999).
- [7] I. A. Merkulov, A. L. Efros, and M. Rosen, "Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots", Phys. Rev. B 65, 205309 (2002).
- [8] A. Imamoğlu, E. Knill, L. Tian, and P. Zoller, "Optical Pumping of Quantum-Dot Nuclear Spins", Phys. Rev. Lett. 91, 017402 (2003).
- [9] D. Gammon, A. L. Efros, T. A. Kennedy, M. Rosen, D. S. Katzer, D. Park, S. W. Brown, V. L. Korenev, and I. A. Merkulov, "Electron and Nuclear Spin Interactions in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots", Phys. Rev. Lett. 86, 5176 (2001).
- [10] A. I. Tartakovskii, T. Wright, A. Russell, V. I. Fal'ko, A. B. Van'kov, J. Skiba-Szymanska, I. Drouzas, R. S. Kolodka, M. S. Skolnick, P. W. Fry, A. Tahraoui, H.-Y. Liu, and M. Hopkinson, "Nuclear Spin Switch in Semiconductor Quantum Dots", Phys. Rev. Lett. **98**, 026806 (2007).
- [11] P. Maletinsky, M. Kroner, and A. Imamoglu, "Breakdown of the nuclearspin-temperature approach in quantum-dot demagnetization experiments", Nature Phys. 5, 407 (2009).
- [12] C. Deng and X. Hu, "Nuclear spin diffusion in quantum dots: Effects of inhomogeneous hyperfine interaction", Phys. Rev. B 72, 165333 (2005).
- [13] D. Hessman, J. Persson, M.-E. Pistol, C. Pryor, and L. Samuelson, "Electron accumulation in single InP quantum dots observed by photoluminescence", Phys. Rev. B 64, 233308 (2001).

- [14] A. S. Bracker, D. Gammon, and V. L. Korenev, "Fine structure and optical pumping of spins in individual semiconductor quantum dots", Semicond. Sci. Technol. 23, 114004 (2008).
- [15] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. A. Gorbunov, A. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. L. Reinecke, S. N. Walck, J. P. Reithmaier, F. Klopf, and F. Schäfer, "Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots", Phys. Rev. B 65, 195315 (2002).
- [16] A. S. Bracker, E. A. Stinaff, D. Gammon, M. E. Ware, J. G. Tischler, A. Shabaev, A. L. Efros, D. Park, D. Gershoni, V. L. Korenev, and I. A. Merkulov, "Optical Pumping of the Electronic and Nuclear Spin of Single Charge-Tunable Quantum Dots", Phys. Rev. Lett. 94, 047402 (2005).
- [17] C. Latta, A. Hogele, Y. Zhao, A. N. Vamivakas, P. Maletinsky, M. Kroner, J. Dreiser, I. Carusotto, A. Badolato, D. Schuh, W. Wegscheider, M. Atature, and A. Imamoglu, "Confluence of resonant laser excitation and bidirectional quantum-dot nuclear-spin polarization", Nature Physics 5, 758 (2009).
- [18] X. Xu, W. Yao, B. Sun, D. G. Steel, A. S. Bracker, D. Gammon, and L. J. Sham, "Optically controlled locking of the nuclear field via coherent dark-state spectroscopy", Nature 459, 1105 (2009).
- [19] D. Paget, "Optical detection of NMR in high-purity GaAs: Direct study of the relaxation of nuclei close to shallow donors", Phys. Rev. B 25, 4444 (1982).
- [20] R. I. Dzhioev and V. L. Korenev, "Stabilization of the Electron-Nuclear Spin Orientation in Quantum Dots by the Nuclear Quadrupole Interaction", Phys. Rev. Lett. 99, 037401 (2007).