ИНСТИТУТ ФИЗИКИ ТВЕРДОГО ТЕЛА РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

На правах рукописи

Чехович Евгений Александрович

ЯДЕРНЫЕ СПИНОВЫЕ ЭФФЕКТЫ В ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ КВАНТОВЫХ ТОЧКАХ ПРИ ОПТИЧЕСКОМ ВОЗБУЖДЕНИИ

01.04.07 - физика конденсированного состояния

Диссертация на соискание учёной степени кандидата физико-математических наук

Научный руководитель доктор физико-математических наук Кулаковский В. Д.

Черноголовка 2010

Оглавление

Bı	Введение					
1.	Литературный обзор					
	1.1.	Ядерная спиновая система в твердом теле		12		
		1.1.1.	Физические взаимодействия в системе ядерных спинов	12		
		1.1.2.	Электронно-ядерные взаимодействия	14		
		1.1.3.	Динамическая ядерная поляризация	17		
		1.1.4.	Релаксация ядерной поляризации	19		
	1.2.	Спинс	овые состояния электронов и дырок в квантовых точках	22		
		1.2.1.	Полупроводниковые квантовые точки	22		
		1.2.2.	Энергетический спектр состояний в квантовых точках			
			с различным зарядом	23		
	1.3.	Эффе	кты сверхтонкого взаимодействия электронов и ядер в			
	полупроводниковых квантовых точках					
		1.3.1.	Оптическая накачка и детектирование ядерной поля-			
			ризации в квантовых точках	28		
		1.3.2.	Влияние сверхтонкого взаимодействия электронов и			
			ядер на спиновую релаксацию электронов в кванто-			
			вых точках	30		
2.	Обр	азцы	и методика эксперимента	34		
	2.1. Структуры с квантовыми точками InP/GaInP					
	2.2.	. Структуры с квантовыми точками GaAs/AlGaAs				
	2.3.	Спект	роскопия фотолюминесценции	36		

	2.4.	Резонансная спектроскопия квантовых точек	39					
3.	Эфе	фект Оверхаузера в одиночных квантовых точках						
	InP/GaInP							
	3.1.	Характеризация экситонных состояний в квантовых точках						
		InP/GaInP	42					
	3.2.	Оптическая накачка ядерной спиновой поляризации в кван-						
		товых точках InP/GaInP с различными зарядовыми состоя-						
		НИЯМИ	52					
	3.3.	Обратная связь в системе электронных и ядерных спинов в						
		квантовых точках $InP/GaInP$	60					
	3.4.	Выводы	68					
4	П							
4.	яде тър	ерная спиновая поляризация в квантовых точках	70					
	111P	/ Gainp при резонансном оптическом возоуждении	10					
	4.1.	Оощие своиства отклика ядерной спиновой поляризации на						
		резонансное оптическое возоуждение экситонных переходов	71					
	4.9	B KBAHTOBEIX TO4Kax IIIP/GaIIIP	(1					
	4.2.	Эффект Оверхаузера и оптический солид-эффект при ре-	75					
	19	Зонансном возоуждении квантовых точкек пг/ Gamer	70 00					
	4.5.	Георетическая модель	0U 07					
	4.4.		01					
	4.0.	пасыщение степени поляризации ядерных спинов при резо-	09					
	16		92 07					
	4.0.	Dыводы	91					
5.	Динамика ядерной спиновой поляризации в квантовых точ-							
	ках							
	5.1.	Динамика ядерной спиновой поляризации при оптическом						
		возбуждении (динамика выстраивания) в квантовых точках	100					

Литература			
Заключение			
5.6.	Выводы	124	
	ции в различных материалах)	116	
	вых КТ (сравнение динамики затухания ядерной поляриза-		
5.5.	Подавление ядерной спиновой диффузии в полупроводнико-		
	товых точках $InP/GaInP$	112	
5.4.	Динамика затухания ядерной спиновой поляризации в кван-		
	товых точках GaAs/AlGaAs	108	
5.3.	Динамика затухания ядерной спиновой поляризации в кван-		
	точках	106	
	ции в темноте (динамики затухания) в одиночных квантовых		
5.2.	Методика измерения динамики ядерной спиновой поляриза-		

Введение

Основным направлением развития современных вычислительных систем является уменьшение физических размеров логических элементов. Начиная с 60-х годов XX века в качестве основного элемента в вычислительной технике используется кремниевый полупроводниковый транзистор. Последовательное уменьшение размеров полупроводниковых интегральных схем привело к небывалому росту производительности компьютеров. Однако, миниатюризация полупроводниковых схем не может быть безграничной. Основой работы транзисторных логических вентилей и ячеек памяти является коммутация электрического тока — направленного движения *макроскопически большого числа* электронов. Уменьшение величины тока ограничено дробовым шумом, связанным с дискретной природой носителей. Кроме того, увеличение плотности элементов, а значит, и плотности тока, связано с еще одной проблемой — с увеличением тепловыделения.

Приближение к пределу миниатюризации кремниевой микроэлектроники заставляет исследователей обратится 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) [1–4]. В качестве возможных физических реализаций q-бита были предложены такие системы как, одиночные ионы, которые могут находиться в возбужденном или основном состоянии [5], или *спины одиночных частиц*, таких, как например, электроны или ядра [2,4,6]. Необходимым свойством для q-бита является его изоляции от взаимодействия с окружением на достаточно длинное 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 [7, 8] или фосфора ³¹P [2, 9] в кремнии ²⁸Si, атомы азота в молекулах N@C₆₀ [10] и атомы углерода ¹³C в алмазе [6, 11–13]. В частности, в недавних работах было продемонстрирована возможность контролировать спин одиночного ядра ¹³C, взаимодействующего с одиночным электроном, локализованным на примесном центре в алмазе. Время когерентности такого q-бита при комнатной температуре достигает сотен микросекунд [6, 11]. Однако, 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 [14]. Квантовой точкой (КТ) называется область полупроводника размерами порядка 10-100 нм ограниченная в трех измерениях и имеющая меньший электростатический потенциал, чем окружающий материал. Такая потенциальная яма может быть образована или благодаря различию ширин запрещенных зон материалов КТ и окружения (нанокристаллы в матрице более широкозонного полупроводника [15, 16]) или вследствие совместного эффекта разницы ширин запрещенных зон и электрического поля (квантовые точки в двумерном электронном газе [17–19]). Из-за трехмерной локализации заряд (электрон проводимости или дырка в валентной зоне), находящийся в КТ, 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 дефазировки и релаксации спинов электронов и дырок.

Во всех *III-V* полупроводниках ядра атомов имеют отличные от нуля ядерные спины. Несмотря на свою малость, магнитное взаимодействие

между спинами ядер и спином заряда (сверхтонкое взаимодействие) оказывает существенное влияние на спиновую динамику локализованных в КТ носителей. Типичная квантовая точка состоит из $10^4 \div 10^6$ ядер, а потому их суммарный спин представляет собой макроскопическую величину. Флуктуации полного ядерного спина, действующего как эффективное магнитное поле, приводят к спиновой релаксации зарядов в КТ. Как было показано в работах [20,21], сверхтонкое взаимодействие является доминирующим фактором, определяющим максимально возможное время когерентности спина электрона в квантовой точке ~1 мкс.

Для успешного использования КТ в качестве q-бита необходимо большое время когерентности электрона. Увеличить время когерентности можно путем создания конфигурации ядерной системы с узким распределением спиновых состояний [22–25]. Другим способом уменьшения флуктуаций ядерного спина является выстраивание моментов ядер в одном направлении [26]. В этом случае требуется создание большой степени ядерной поляризации (>99%) [25], тогда как до настоящего времени в квантовых точках удалось достичь степени поляризации ядер лишь ~60% [27-30]. Помимо поиска способа манипуляции ядерной системой, обеспечивающей большие времена когерентности электрона, необходимо выяснение условий, при которых требуемая конфигурация ядерной системы могла бы сохраняться в течение продолжительного времени. В связи с этим особый интерес представляет исследование процессов релаксации ядерного спина в полупроводниковых КТ. Кроме того, выяснение условий при которых ядерная поляризация в нано-размерном объеме квантовой точки может быть заморожена на длительное время, представляет отдельный интерес, как модель запоминающего устройства, позволяющего реализовать высокую плотность хранения информации.

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

Научную новизну работы составляют следующие результаты, 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 KT возникает за счет двух механизмов: сверхтонкого взаимодействия ядер (i) с поляризованными электронами в основном состоянии непосредственно в KT, и (ii) с делокализованными электронами в смачивающем слое. Первый механизм эффективен в однократно заряженных KT, причем накачка ядерного спина в положительно заряженных точках происходит в результате взаимодействия ядер с фотовозбужденным электроном, а в отрицательно заряженных KT — с резидентным электроном, остающимся после рекомбинации фотовозбужденной электрон-дырочной пары в KT.

2. Показано, что эффективность динамической ядерной поляризации при нерезонансном оптическом возбуждении в KT 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 $0.3 \div 1$ Tл, что позволяет реализовать 50% степень поляризации ядер в KT. Найдено, что в этих условиях система электронных и ядерных спинов демонстрирует бистабильное поведение. В отрицательно заряженных KT в состоянии с большой ядерной поляризацией наблюдается ускорение релаксации спина резидентного электрона, приводящее к изменению степени циркулярной поляризации излучения KT на $\sim 7\%$.

3. Показано, что в положительно заряженных КТ InP/GaInP ядерная поляризация при резонансном оптическом возбуждении возникает в результате двух различных циклических процессов, начинающихся, соответственно, с возбуждения разрешенного оптического перехода (аналог классического эффекта Оверхаузера) или дипольно запрещенного перехода (аналог "солид-эффекта"). Найдено, что при больших плотностях воз-

буждения 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 [27–30].

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 ≈60 с, а основным механизмом релаксации является спиновая диффузия. Коэффициент спиновой диффузии из КЯ в ~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 KT в одном и том же образце изменяется от точки к точке в пределах от 100 с до 6000 с. Наиболь-

шие времена ≈6000 с, наблюдаемые в отрицательно заряженных точках, свидетельствуют о практически полном подавлении спиновой диффузии из KT. Механизм подавления диффузии не может быть описан одним лишь влиянием квадрупольных эффектов, предложенных ранее для объяснения медленной ядерной динамики в KT InGaAs/GaAs [31], и может быть обусловлен влиянием неоднородного найтовского поля электрона [32]. 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.

Результаты автора отражены в работах [30, 33, 34].

Диссертация построена следующим образом.

В главе 1 дан обзор теоретических и экспериментальных работ, посвященных основным свойствам ядерной спиновой системы и эффектам сверхтонкого взаимодействия спинов ядер и электронов в твердом теле. Изложены основные результаты работ, посвященных спиновым свойствам носителей в квантовых точках. В главе 2 дано описание экспериментальной техники и образцов, использованных в исследованиях. В 3-й главе приведены результаты экспериментального исследования поляризации ядерных спинов в самоорганизованных квантовых точках InP/GaInP оптическими методами. С помощью измерений магнитофотолюминесценции идентифицированы нейтральные и однократно заряженные индивидуальные КТ, и подробно исследована зависимость стационарной ядерной поляризации при нерезонансном возбуждении циркулярно поляризованным светом от интенсивности накачки и величины внешнего магнитного поля в квантовых точках с различным зарядом. В главе 4 представлены результаты измерений ядерной поляризации при селективном резонансном возбуждении положительно заряженных квантовых точек InP/GaInP. Предложена теоретическая модель, основанная на решении оптических уравнений Блоха, в рамках которой описаны экспериментальные результаты. Обсуждают-

ся механизмы динамической ядерной поляризации и возможные причины ее насыщения. В 5-й главе обсуждаются результаты исследования динамики релаксации ядерной спиновой поляризации в квантовых точках GaAs/AlGaAs и InP/GaInP. Рассмотрены механизмы подавления спиновой диффузии, приводящие к замедлению ядерной спиновой релаксации в KT InP/GaInP. И, наконец, в Заключении кратко сформулированы основные результаты исследований, выполненных в данной работе.

Глава 1.

Литературный обзор

1.1. Ядерная спиновая система в твердом теле

Исследование свойств ядер началось на рубеже XIX и XX веков. В 1938 году в работе Раби был впервые продемонстрирован метод резонансной радиочастотной спектроскопии для исследования магнитных свойств ядер в пучках частиц [35]. В 1946 году метод ядерного магнитного резонанса (ЯМР) был адаптирован к изучению свойств ядер в твердых телах и жидкостях [36,37]. Исследования, проведенные в последующие десятилетия, позволили построить практически полную картину физических процессов в ядерной системе. Ниже приведен обзор основных свойств ядерной спиновой системы применительно к твердым телам.

1.1.1. Физические взаимодействия в системе ядерных спинов

Ядра атомов, состоящие из протонов и нейтронов, обладают механическим моментом движения (спином). Величина спина может принимать как целые, так и полуцелые значения и для большинства стабильных изотопов лежит в пределах $I=0\div9/2$ в единицах \hbar . Лишь у нескольких сортов ядер спин полностью отсутствует, для большинства же изотопов $I \ge 1/2$. С ненулевым механическим моментом I связан магнитный момент $\mu_N=\gamma\hbar I$, где γ — гиромагнитное соотношение. Ядерный магнитный момент намного меньше электронного и лежит в пределах $\mu_N=10^3\div10^4\mu_B$, где μ_B — магнетон Бора. Магнитное взаимодействие двух ядер j и k друг с другом сводится к диполь-дипольному взаимодействию, энергия которого дается выражением $W_{j,k} = \frac{\gamma_j \gamma_k \hbar^2}{r_{j,k}^3} (\vec{I_j} \vec{I_k} - 3 \frac{(\vec{I_j} \vec{r}_{j,k})(\vec{I_k} \vec{r}_{j,k})}{r_{j,k}^2})$, где $\vec{r}_{j,k}$ — вектор соединяющий точки в которых расположены ядра [38]. Полный гамильтониан дипольдипольного взаимодействия спинов ядер всего кристалла имеет вид:

$$H_{dd} = \sum_{j < k} W_{j,k} = \sum_{j < k} \frac{\gamma_j \gamma_k \hbar^2}{r_{j,k}^3} (\vec{I_j} \vec{I_k} - 3 \frac{(\vec{I_j} \vec{r}_{j,k})(\vec{I_k} \vec{r}_{j,k})}{r_{j,k}^2}).$$
(1.1)

Энергию *j*-ого ядра $H_j = \gamma_j \hbar \vec{I}_j \vec{B}_{loc,j}$ можно представить как результат влияния эффективного локального магнитного поля $B_{loc,j}$, создаваемого всеми остальными ядрами кроме *j*-ого. B_{loc} меняется от ядра к ядру и имеет величину порядка $B_{loc} \sim 0.1$ мТл. Используя данное значение, нетрудно получить, что температура перехода ядерной магнитной системы в упорядоченное состояние (ферромагнитное или антиферромагнитное) не превышает 10^{-7} К. Таким образом, во всех практически реализуемых условиях ядерная спиновая система *парамагнитна*. Заметим, что взаимодействие (1.1) не сохраняет полный спин ядерной системы.

Внешнее магнитное поле *B* вдоль оси *Oz* расщепляет спиновые уровни ядер на состояния с определенными проекциями момента *I_z* на направление поля. Вклад зеемановской энергии в полный гамильтониан имеет вид:

$$H_Z = -\hbar B \sum_j \gamma_j I_{z,j}.$$
 (1.2)

Электрический дипольный момент всех ядер равен нулю или ничтожно мал [39, 40], поэтому однородное электрическое поле не влияет на их энергетический спектр. Для ядер со спином I=1/2 равны нулю также и все электрические моменты более высоких порядков. Отличные от нуля моменты появляются для ядер с $I \ge 1$, наиболее важным из них является момент наименьшего порядка — квадрупольный момент, приводящий к взаимодействию с *градиентом* электрического поля. Вклад квадрупольного взаимодействия в полный гамильтониан дается выражением [38, 41]:

$$H_Q = \sum_j \frac{eQ_j}{4I_j(2I_j - 1)} \times \left[(3I_{z',j}^2 - I_j^2) \frac{\partial^2 V}{\partial z'^2} \Big|_{r_j} + (I_{x',j}^2 - I_{y',j}^2) \left(\frac{\partial^2 V}{\partial x'^2} - \frac{\partial^2 V}{\partial y'^2} \right) \Big|_{r_j} \right], \quad (1.3)$$

где Q_j — квадрупольный момент *j*-ого ядра, V — электростатический потенциал, производные которого взяты в точке расположения ядра r_j , оси координатной системы Ox'y'z' направлены вдоль главных осей симметричного тензора вторых производных потенциала V, вообще говоря не совпадающих с направлением магнитного поля B_z . Квадрупольный эффект приводит к сдвигу спиновых уровней ядер пропорциональному I_z^2 . В присутствии внешнего магнитного поля появление неоднородного электрического поля приведет к неэквидистантности зеемановских уровней энергии. Кроме того, при несовпадении направления поля с главными осями тензора $\frac{\partial^2 V}{\partial \alpha \partial \beta}$ или отличном от нуля втором слагаемом в квадратной скобке в (1.3) квадрупольное взаимодействие имеет недиагональные члены в базисе с собственными проекциями спина на направление магнитного поля, т. е. смешивает состояния ядерного спина с различными I_z .

1.1.2. Электронно-ядерные взаимодействия

Электроны являются важным источником полей, действующих на ядерные спины. Один из механизмов связан с описанным выше квадрупольным взаимодействием. Градиент электрического поля, возникающий из-за несферичности электронных оболочек, влияния соседних ионов в решетке с симметрией ниже кубической, или искажения решетки в результате упругих деформаций, может приводить к модификации энергетического спектра ядер.

Более важным является магнитное взаимодействие электронов и ядер, которое в первом порядке теории возмущений может быть представлено как результат воздействия магнитного момента ядра со спином \vec{I} на движение электрона с орбитальным моментом \vec{l} и спином \vec{s} . Полный вклад

электронно-ядерного (сверхтонкого) взаимодействия в гамильтониан удобно представить в виде суммы трех слагаемых $H_{hf} = H_c + H_a + H_L$, где

$$H_c = 2\mu_B \gamma \hbar \vec{I} \cdot \left(\frac{8}{3}\pi \vec{s}\delta(\vec{r})\right) \tag{1.4}$$

$$H_a = 2\mu_B \gamma \hbar \vec{I} \cdot \left(3\frac{\vec{r}(\vec{s}\vec{r})}{r^5} - \frac{\vec{s}}{r^3}\right)$$
(1.5)

$$H_l = 2\mu_B \gamma \hbar \vec{I} \cdot \left(\frac{\vec{l}}{r^3}\right), \qquad (1.6)$$

где \vec{r} — радиус вектор между ядром и электроном. H_c называется контактным взаимодействием спинов \vec{s} и \vec{I} , поскольку отлично от нуля только при r=0, H_a имеет вид схожий с энергией взаимодействия двух диполей (1.1) и называется анизотропным сверхтонким взаимодействием, H_L описывает взаимодействие магнитного поля ядра и орбитального движения электрона.

В первом порядке по теории возмущений полная энергия сверхтонкого взаимодействия дается усреднением H_{hf} по электронной волновой функции $\psi(\vec{r})$: $E_{hf} = \int \psi^*(\vec{r}) H_{hf} \psi(\vec{r}) d^3 r$. Для электронов в зоне проводимости с волновой функцией *s*-типа H_l обращается в нуль, а величиной H_a можно пренебречь по сравнению H_c , поскольку $H_a \ll H_c$. В этом случае взаимодействие спинов электрона \vec{s} и ядра \vec{l} сводится к виду

$$H^e_{hf} = A^e_{hf}(\vec{I}\vec{s}), \tag{1.7}$$

где $A_{hf}^e = \frac{16}{3} \pi \mu_B \gamma \hbar |\psi(0)|^2$ — константа сверхтонкого взаимодействия. Взаимодействие (1.7) можно представить как влияние эффективного ядерного поля

$$\vec{B}_N = A_{hf}^e \vec{I} / (\mu_B g_e), \qquad (1.8)$$

действующего на электроны (g_e — электронный g-фактор). В этом случае $A_{hf}^e I$ представляет собой электронное спиновое расщепление, возникающее при полностью поляризованных спинах всех ядер. Для большинства твердых тел $A_{hf}^e \approx 50$ мкэВ, что в зависимости от величины g-фактора соответствует ядерному полю $B_N \sim 1 \div 10$ Тл, в то время как макроскопическое ядерное поле создаваемое ядрами не превышает $B_L \sim 0.1$ мТл. Такое различие связано с большой локализацией электрона в окрестности ядра, описываемой множителем $|\psi(0)|^2$ в формуле (1.7). Выражение для H_{hf} можно также представить как результат воздействия на ядра электронного поля B_e , однако, в отличие от случая ядерного поля B_N , максимальная величина B_e зависит от числа ядер с которыми взаимодействует электрон, т. е. от объема его локализации. Складываясь с внешним магнитным полем, B_e приводит к изменению зеемановской энергии спинов ядер (к так называемому сдвигу Найта) [42].

Для дырок в валентной зоне имеет место противоположная ситуация: контактное взаимодействие равно нулю $H_c=0$, а $H_l\neq 0$, поскольку орбитальные волновые функции *p*-типа (l=1) обращаются в нуль при r=0. Сверхтонкое взаимодействие в этом случае определяется слагаемыми H_l и H_a . Точное выражение для гамильтониана дырочного сверхтонкого взаимодействия H_{hf}^h зависит от структуры энергетических уровней валентной зоны. Приведем выражение для практически важного случая состояний тяжелой дырки с проекцией полного момента на ось $Oz \ j_z=\pm 3/2$, обладающих проекцией спинового момента $s_z^h=\pm 1/2$ (см. подробнее в разделе 1.2):

$$H_{hf}^{h} = A_{hf}^{h} [I_{z} s_{z}^{h} + a(I_{x} s_{x}^{h} + I_{y} s_{y}^{h}) + b(I_{z} s_{x}^{h} + I_{z} s_{y}^{h})], \qquad (1.9)$$

где b≪a≪1 — параметры, описывающие смешивание состояний тяжелых $(j_z=\pm 3/2)$ и легких дырок $(j_z=\pm 1/2)$ [43]. Как видно из формулы (1.9), в отличие от случая электронов проводимости сверхтонкое взаимодействие дырок анизотропно и содержит слагаемые вида $I_z s_x^h$, не сохраняющие суммарный спин ядра и дырки. Сверхтонкое взаимодействие дырок мало: $A_{hf}^h \sim 0.1 \cdot A_{hf}^e$ [44, 45]. В большинстве случаев, в том числе для исследуемых в данной работе ядерных спиновых эффектов, им можно пренебречь, полагая $A_{hf}^h=0$. Однако, в некоторых случаях отличие A_{hf}^h от нуля имеет принципиальное значение [43,46]. К примеру, так же, как и для электрона, сверхтонкое взаимодействие с флуктуирующим ядерным спином приводит к релаксации спина дырки, ограничивая его время когерентности.

1.1.3. Динамическая ядерная поляризация

Состояние совокупности большого числа N ядер со спинами $\vec{I_j}$ может быть охарактеризовано степенью поляризации

$$S_N = \left| \sum_{j=1}^N \vec{I_j} \right| / \sum_{j=1}^N I_j,$$

$$0 \leqslant S_N \leqslant 1 \tag{1.10}$$

В отсутствие внешнего магнитного поля в равновесии все направления равновероятны и $S_N=0$. При приложении внешнего поля спины ядер выстраиваются параллельно полю, что приводит к увеличению S_N . Как уже было упомянуто в параграфе 1.1.1, магнитные моменты ядер очень малы. В результате при практически реализуемых экспериментальных условиях ($B \leq 8$ Tл, $T \geq 1$ K) равновесная степень поляризации оказывается мала $S_N < 0.1\%$.

Сверхтонкое взаимодействие ядер с электронами делает возможным создание большой степени поляризации ядер без использования сверхвысоких полей или сверхнизких температур. Действительно, выражение (1.7) может быть переписано в виде

$$H_{hf}^e = A_{hf}^e [I_z s_z + (I_+ s_- + I_- s_+)/2], \qquad (1.11)$$

где $I_{\pm}(s_{\pm})$ — оператор, изменяющий *z*-проекцию спина ядра (электрона) на ±1. Слагаемое в круглой скобке, очевидно, отвечает одновременному перевороту спина электрона и ядра с сохранением их полного момента.

Рассмотрим сначала систему электронных и ядерных спинов во внешнем магнитном поле B_z в состоянии равновесия. Обозначим заселенности электронных уровней со спином вдоль поля и против поля n_{\uparrow} и n_{\downarrow} , а заселенности ядерных уровней с проекциями I_z ($I_z = -I..I$) как N_{I_z} . В стационарном состоянии должны выполняться уравнения баланса

$$W_{I_z,I_z+1}N_{I_z}n_{\uparrow} = W_{I_z+1,I_z}N_{I_z+1}n_{\downarrow}, \qquad (1.12)$$

где W_{I_z,I_z+1} — вероятность одновременного изменения спинов ядра и электрона $|\uparrow, I_z\rangle \rightarrow |\downarrow, I_z+1\rangle$, а W_{I_z+1,I_z} — вероятность обратного процесса. Од-

новременный переворот ядра и электрона требует компенсации зеемановской энергии $\Delta E_e + \Delta E_N$, являющейся суммой электронного ΔE_e и ядерного ΔE_N зеемановских расщеплений. Если компенсация энергии происходит за счет резервуара (например колебаний решетки), находящегося при температуре T, то для вероятностей переворота выполняется соотношение

$$\frac{W_{I_z,I_z+1}}{W_{I_z+1,I_z}} = \exp\left(\frac{\Delta E_e + \Delta E_N}{k_B T}\right). \tag{1.13}$$

В состоянии равновесия заселенности электронных уровней подчиняются соотношению $(n_{\downarrow}/n_{\uparrow})_{eq} = \exp[\Delta E_e/(k_B T)]$, поэтому из (1.12) получается, что $N_{I_z+1}/N_{I_z} = \exp[\Delta E_N/(k_B T)]$, т. е. равновесная поляризация ядер практически равна нулю $(S_N \approx 0)$ из-за малости ΔE_N .

Одним из первых открытых механизмов динамической ядерной поляризации стал эффект Оверхаузера в металлах (1953 год) [47]. В нем неравновесная ядерная поляризация достигается путем изменения поляризации электронов по сравнению с равновесным значением. С помощью мощного микроволнового облучения, настроенного в резонанс с электронным переходом, заселенности спиновых уровней электронов выравниваются $n_{\downarrow} = n_{\uparrow}$. Согласно уравнению (1.12) стационарное соотношение заселенностей ядерных спиновых уровней при этом составляет

$$N_{I_z+1}/N_{I_z} = \exp[(\Delta E_e + \Delta E_N)/(k_B T)],$$
 (1.14)

а значит степень поляризации ядер может быть намного больше равновесного значения из-за большой величины электронного расщепления $\Delta E_e \gg \Delta E_N$. Сущность динамической ядерной поляризации состоит в том, что при равной заселенности электронных уровней, вероятность процесса с увеличением ядерного спина, сопровождаемого испусканием энергии, больше вероятности обратного процесса, требующего поглощения энергии из резервуара находящегося при низкой температуре.

Другой метод динамической ядерной поляризации, так называемый *"coлuд-эффект"*, был впервые предложен Абрагамом в 1955 году [48]. Его идея состоит в том, что энергия, необходимая для переворота электрона и изменения спина ядра, берется не из теплового резервуара, как в эффекте Оверхаузера, а от радиочастотного поля. Для этого микроволновое излучение настраивается не в точный резонанс с электронным переходом с энергией ΔE_e , а на энергию $\Delta E_e + \Delta E_N$, отличающуюся на малую величину ядерного спинового расщепления ΔE_N . Переход с энергией $\Delta E_e + \Delta E_N$ запрещен в дипольном приближении и возможен лишь за счет частичного снятия правил отбора недиагональной частью сверхтонкого взаимодействия (слагаемое в круглых скобках в (1.11)). Возбуждение такого перехода приводит к *стимулированному* процессу $|\uparrow, I_z\rangle \leftrightarrow |\downarrow, I_z + 1\rangle$ с равными вероятностями прямого и обратного переворотов $W_{I_z+1,I_z}=W_{I_z,I_z+1}$. Используя (1.12), для заселенностей ядерных уровней можно написать

$$N_{I_z+1}/N_{\mu} = (n_{\uparrow}/n_{\downarrow})_{eq} = \exp[-\Delta E_e/(k_B T)].$$
(1.15)

Из сравнения этого выражения с (1.14) видно, что солид-эффект приводит практически к такой же величине ядерной поляризации, как и эффект Оверхаузера, но с обратным знаком. Динамическая ядерная поляризация при стимулированном возбуждении запрещенных переходов впервые наблюдалась в твердых телах с парамагнитными примесями, и поэтому была названа "солид-эффектом" [49].

1.1.4. Релаксация ядерной поляризации

Рассмотрим механизмы, приводящие к затуханию неравновесной поляризации ядер. Как было упомянуто в параграфе 1.1.1, диполь-дипольное взаимодействие между ядрами, характеризующееся локальным полем $B_L\approx0.1$ мТл, не сохраняет полный спин. В результате, в отсутствие внешнего поля, намагниченность спинов ядер релаксирует за время порядка периода прецессии ядерных спинов в локальном поле $T_2 \sim \hbar/(\mu_N B_L) \sim 100$ мкс [20, 38, 49]. При приложении магнитного поля зеемановские уровни ядер расщепляются, поэтому спин-флип процессы должны происходить с сохранением энергии. Энергия, необходимая для изменения спина ядра, может быть скомпенсирована обратным изменением спина другого ядра, однако в этом процессе не происходит изменение полного спина, а значит, он не приводит к релаксации ядерной поляризации. Компенсация зеемановской энергии ядра может быть достигнута за счет изменения энергии диполь-дипольного взаимодействия путем изменения конфигурации других ядер без изменения их суммарного спина. Из-за быстрого убывания диполь-дипольного взаимодействия с расстоянием (см. выражение (1.1)) такой процесс возможен с участием лишь ближайших соседей. Поэтому релаксация с компенсацией энергии диполь-дипольным резервуаром становится неэффективной в большом поле $B \gg B_L$. В этом случае релаксация ядерной поляризации в объемных веществах возможна за счет взаимодействия с электронами, или фононами.

Как было показано в предыдущем параграфе, сверхтонкое взаимодействие ядер и электронов (1.11), ответственное в том числе за динамическую ядерную поляризацию, приводит к релаксации ядерного спина к равновесному состоянию с близкой к нулю поляризацией $S_N \approx 0$. Особенно эффективным оказывается такой механизм в металлах, где концентрация свободных электронов велика. Расчеты показывают, что время релаксации обратно пропорционально температуре $T_1^e \sim 1/T$ [38], что подтверждается в эксперименте. Даже при температуре жидкого гелия время T_1^e для большинства металлов не превышает 1 с [38]. Релаксация через сверхтонкое взаимодействие возможна и в полупроводниках при наличии примесных центров.

Прямое взаимодействие с фононами возможно лишь при наличии у ядер квадрупольного электрического момента. Как было показано в параграфе 1.1.1, гамильтониан квадрупольного взаимодействия в базисе состояний с проекциями спинов ядер на магнитное поле (1.3) содержит недиагональные члены. Поэтому колебания решетки, создающие осциллирующий градиент электрического поля, могут вызывать переходы между спиновыми подуровнями ядер. Расчет предсказывает зависимость времени квадрупольной релаксации от температуры вида $T_1^Q \sim 1/T^2$, которая подтверждается экспериментально для достаточно высоких темпера-

тур ($T \ge 20$ К). При комнатной температуре $T_1^Q \sim 100$ мс, и резко уменьшается при низких температурах, становясь пренебрежимо малым при $T \le 20$ К [50]. В результате, релаксация в чистых полупроводниках в магнитном поле B > 1 Тл при низких температурах оказывается очень медленной, время затухания неравновесной намагниченности ядерных спинов может достигать $T_1 \sim 1000 \div 100000$ с [50] и более.

В условиях, когда все механизмы релаксации пространственно однородной намагниченности ядерных спинов подавлены, существенными могут быть эффекты, связанные с пространственно неоднородным распределением ядерной поляризации. Недиагональная часть диполь-дипольного взаимодействия может приводить к одновременному изменению состояний двух ядер $|I_z, I'_z + 1\rangle \leftrightarrow |I_z + 1, I'_z\rangle$. Для ядер одного сорта такой процесс не требует изменения зеемановской энергии, и фактически означает перенос спина из одного узла решетки в другой. Если неравновесная поляризация $S_N>0$ существует в ограниченной области пространства, то передача спина соседним ядрам (спиновая диффузия) может быть эффективным механизмом релаксации. Динамика пространственного распределения ядерного спина I описывается уравнением диффузии

$$\frac{dI(\vec{r},t)}{dt} = D\nabla^2 I(\vec{r},t) - \frac{I(\vec{r},t)}{\tau_d},$$
(1.16)

где D — коэффициент диффузии, а время τ_d описывает затухание поляризации, вызванное всеми прочими механизмами. Из-за быстрого убывания диполь-дипольного взаимодействия с расстоянием, коэффициент диффузии $D=Wa^2$ определяется вероятностью обмена спинами между ближайшими соседями W и постоянной решетки a. Расчет дает следующую оценку для вероятности $W\approx 1/(30T_2)$, поэтому практически во всех веществах коэффициент диффузии имеет порядок $D\sim 10^{-12}\div 10^{-13}$ см²/с [51]. Существование спиновой диффузии подтверждается экспериментально: из измерений динамики спиновой поляризации ядер в GaAs было установлено, что для неравновесной ядерной поляризации, созданной в малой окрестности примесных центров, время релаксации составляет ~ 15 сек и увеличивается в ~60 раз, если образец поляризован равномерно [52]. Там же для коэффициента диффузии было получено значение $D=10^{-13}$ см²/с.

1.2. Спиновые состояния электронов и дырок в квантовых точках

1.2.1. Полупроводниковые квантовые точки

Полупроводниковой квантовой точкой (КТ) называется трехмерная потенциальная яма с нанометровыми размерами, образованная различием энергий зоны проводимости и валентной зоны внутри КТ и в окружающем ее материале. Уникальные свойства квантовых точек связаны с возможностью трехмерной локализации зарядов (электронов и дырок) в очень малом объеме. Нульмерная локализация приводит к тому, что энергетический спектр носителей становится дискретным. В результате, электрондырочная пара в КТ оказывается по своим свойствам подобна атому, ее спектры возбуждения и фоторекомбинации имеют вид набора узких линий, что делает оптическую спектроскопию мощным методом исследования свойств КТ. Отсутствие поступательного движения приводит также к тому, что спиновая релаксация оказывается сильно подавленной. Возможность управления зарядовым и спиновым состоянием делает квантовые точки перспективным объектом для реализации квантового компьютера [1–4].

Один из методов получения квантовых точек был предсказан еще в 1937 году Странским и Крастановым. При напылении материала на подложку с отличающейся постоянной решетки, первые несколько монослоев вырастают, наследуя структуру подложки (смачивающий слой), дальнейший же рост из-за возникающих напряжений идет путем формирования небольших, порядка десятка нанометров, бездефектных островков. Если затем снова напылить материал подложки, то получается полупроводниковая структура содержащая самоорганизованные нанокристаллы другого вещества. Начиная с 1985 года таким способом были получены кван-

товые точки для различных пар веществ: InAs в InGaAs (InAs/InGaAs), InP/GaInP, CdSe/ZnSe, GaN/AlN, InGaN/GaN и другие [15, 53, 54].

Еще одним типом полупроводниковых структур, в которых возможна нульмерная локализация, является квантовая яма GaAs в AlGaAs. Данные вещества имеют очень близкие постоянные решетки, поэтому при напылении на подложку AlGaAs вырастает однородный двумерный слой GaAs без обособленных островков. Однако, при определенных условиях роста, толщина слоя GaAs может варьироваться на один атомный монослой. Такие флуктуации толщины с размерами в плоскости ямы ~10÷100 нм могут создавать локализующий потенциал для электронов и дырок. В квантовых точках такого типа впервые наблюдались атомоподобные спектры излучения [55] одиночных квантовых точек и тонкая структура спектра фотолюминесценции [16].

При наличии примесей в образце, квантовые точки могут захватывать один и более заряд. Если квантовые точки выращены на легированной подложке, то электрическое поле, приложенное между подложкой и поверхностью структуры, позволяет управляемым образом изменять заряд KT [56]. Это открывает возможность исследовать свойства носителей различного знака, эффекты связанные с их взаимодействием, а также спектры излучения электрон-дырочной пары в заряженной КТ. Ниже приведены основные результаты исследования свойств энергетического спектра зарядов в квантовых точках.

1.2.2. Энергетический спектр состояний в квантовых точках с различным зарядом

Расчет спектра состояний в кристалле является сложной многочастичной задачей из-за сильного электрон-электронного взаимодействия и точного аналитического решения не имеет. В случае объемных полупроводников хорошие результаты дает расчет с использованием приближения эффективной массы. В нем учитываются лишь блоховские состояния вблизи дна зоны проводимости и потолка валентной зоны. Такие состояния со-

ответствуют электронам и дыркам, однако, в отличие от исходных частиц, эти квазичастицы могут иметь сложный, анизотропный и непараболический закон дисперсии. Для гетероструктур, состоящих из различных полупроводников (квантовые ямы и квантовые точки), наилучший результат может быть получен при проведении микроскопического анализа. Однако, в большинстве случаев для качественного анализа по-прежнему может быть использован метод эффективной массы [57]. При этом эффективные массы и прочие параметры могут быть положены равными соответствующим значениям для объемного полупроводника. Точность такого подхода тем выше, чем больше размеры области локализации носителей. Таким образом, задача нахождения спектра электронов и дырок в КТ может быть сведена к задаче для частицы со сложным законом дисперсии в трехмерной потенциальной яме.

Несимметричная геометрическая форма КТ, а также наличие упругих деформаций и внешних полей приводит к тому, что задача определения состояний носителей усложняется. Однако, существует достаточно общий метод определения свойств энергетического спектра – метод инвариантов [58]. Оказывается, что задание только пространственной симметрии системы позволяет найти общий вид гамильтониана, определить кратности вырождения уровней, а также отличные от нуля матричные элементы для различных операторов. Сравнение с общирными данными экспериментальных исследований позволило построить достаточно полную модель свойств зарядов в квантовых точках.

Для большинства полупроводников все вычисления могут быть ограничены учетом лишь двух зон: зоны проводимости и валентной зоны. Как правило, зона проводимости происходит из атомных оболочек *s*-типа, поэтому в качестве базисных функций могут быть выбраны состояния с определенными проекциями спина на некоторую ось. Волновые функции дырок в валентной зоне в *III-V* полупроводниках обычно относятся к *p*-типу. С учетом спиновой степени свободы набор этих состояний оказывается шестимерным. Из-за спин-орбитального взаимодействия в объемных полупровод-

никах с кубической симметрией происходит расщепление зоны на четырехкратно вырожденную подзону с полным моментом j=3/2 и отщепленную двукратно вырожденную подзону с полным моментом j=1/2. Величина спин-орбитального расщепления имеет порядок $\Delta_{SO} \approx 100$ мэВ. Упругие деформации, возникающие из-за рассогласования решеток при росте квантовых точек, приводят к нарушению кубической симметрии и модификации состояний подзоны с j=3/2. Растяжение или сжатие происходит в основном в направлении роста структуры Oz. В результате понижение симметрии потенциала приводит к расщеплению подзоны дырок с j=3/2 на два двукратно вырожденных состояния с проекциями полного момента $j_z = \pm 1/2$ (легкие дырки, lh) и $j_z = \pm 3/2$ (тяжелые дырки, hh), причем последние имеют собственные значения проекции спинового момента $s_z^h = \pm 1/2$. Величина расщепления в III-V гетеросруктурах Δ_{lh-hh} обычно превышает 10 мэВ, что позволяет пренебречь состояниями легких дырок, и рассматривать лишь основную *hh*-зону. Деформации не могут привести к снятию вырождения дублетов тяжелых и легких дырок, которое обусловлено симметрией по отношению к инверсии времени. Однако, упругие напряжения в плоскости перпендикулярной Oz, а так же асимметрия формы KT могут привести к частичному подмешиванию состояний с $j_z = \pm 1/2$ к волновым функциям тяжелых дырок с $j_z = \pm 3/2$ [59]. В результате состояния hh-зоны с $j_z \approx \pm 3/2$ принимают вид

$$|h \Uparrow\rangle = |j_z = +3/2\rangle + \alpha |j_z = -1/2\rangle$$
$$|h \Downarrow\rangle = |j_z = -3/2\rangle - \alpha |j_z = +1/2\rangle$$
$$\alpha \ll 1. \tag{1.17}$$

Электронные состояния с проекцией спина $s_z{=}\pm1/2$

$$|e\uparrow\rangle = |s_z = +1/2\rangle$$

$$|e\downarrow\rangle = |s_z = -1/2\rangle$$
 (1.18)

вместе с дырочными состояниями (1.17) образуют базис одночастичных волновых функций зарядов в квантовой точке.

Рассмотрим характерные особенности энергетических спектров электрон-дырочных состояний в квантовых точках в зависимости от заряда КТ и внешнего магнитного поля [60]. Основным состоянием |0> нейтральной КТ является точка не содержащая зарядов (рис. 1.1 (a)). Фотовозбуждение такой точки приводит к захвату одного электрона е и одной дырки h. Без учета их взаимодействия состояние e-h пары в KT имеет четырехкратное вырождение (все возможные произведения базисных функций (1.17) и (1.18)). Кулоновское притяжение электрона и дырки вызывает увеличение энергии их связи по сравнению с энергией локализации определяемой потенциалом KT. Как и в атоме водорода, обменная часть кулоновского взаимодействия, зависящая от спинов частиц, приводит к появлению тонкой структуры. Из-за несферичности KT обменное взаимодействие носит анизотропный характер. Наибольший вклад в е-h взаимодействие дает слагаемое вида ~s_zj_z, связанное с размерным квантованием и рассогласованием решеток материалов КТ и барьера. Его результат сводится к расщеплению четырехкратно вырожденного состояния экситона на состояния с суммарной проекцией момента $J_z = \pm 1$ (состояния $|e\uparrow h\Downarrow\rangle$ и $|e\downarrow h\Uparrow\rangle$), и $J_z=\pm 2$ (состояния $|e\uparrow h\Uparrow\rangle$ и $|e\downarrow h\Downarrow\rangle$). Для состояний с $J_z = \pm 1$ разрешена оптическая рекомбинация, в то время как состояния с $J_z = \pm 2$, являются "темными", поскольку переход из них в состояние |0> дипольно запрещен законом сохранения момента. Величина расщепления δ_0 в *III-V* полупроводниках лежит в пределах $\sim 0.2 \div 2$ мэВ. Слагаемое $\sim s_z j_z$ определяет также и снятие двукратного вырождения "темного" экситона: собственные состояния с волновыми функциями $(|e\uparrow h\uparrow\rangle \pm |e\downarrow h\downarrow\rangle)/\sqrt{2}$ оказываются расщеплены на величину δ_d , которая однако не велика $\delta_d \sim 1$ мкэВ.

Обменное взаимодействие вида $\sim (s_x j_x - s_y j_y)$, возникающее лишь при нарушении латеральной симметрии квантовой точки, приводит к снятию вырождения экситонных состояний с $J_z = \pm 1$: в *III-V* квантовых точках состояния, расщепленные на $\delta_b \sim 0 \div 100$ мкэВ, имеют волновые функции $(|e\uparrow h\Downarrow\rangle \pm |e\downarrow h\uparrow\rangle)/\sqrt{2}$ и обладают нулевой проекцией момента на ось Oz. Ре-



Рис. 1.1. Схема энергетических уровней и дипольно-разрешенных переходов в нейтральной (а), положительно заряженной (б), и отрицательно заряженной (в) квантовых точках при B=0 и в магнитном поле B_z вдоль оси роста стурктуры Oz. Состояния электронов [дырок] со спином вдоль (против) поля показаны символами $\uparrow(\downarrow)$ [$\uparrow(\downarrow)$].

комбинация таких экситонов происходит с излучением фотонов, линейно поляризованных в ортогональных направлениях, а в спектре люминесценции наблюдается дублет с расщеплением δ_b [16].

Магнитное поле B_z вдоль оси роста структуры Oz приводит к увеличению расщепления дублетов $J_z = \pm 1$ и $J_z = \pm 2$, не смешивая их друг с другом. В результате "темные" состояния оста-Достаточно оптически неактивными. большое ются магнитное эффект анизотропного обменного компенсирует взаимолейполе В резульвосстанавливая *z*-проекции экситонного момента. ствия. тате состояния дипольно-разрешенного экситона принимают ВИД $|e\uparrow h\Downarrow\rangle$ и $|e\downarrow h\uparrow\rangle$, их рекомбинация происходит с излучением фотонов с σ^- и σ^+ поляризацией, соответственно (показано стрелками на рис. 1.1 (a)). Энергии дипольно-активных (E_b) и "темных" (E_d) экситонов с учетом магнитного поля, отсчитанные от энергии основного состояния |0>, имеют вид [60]:

$$E_b(B_z) = E_0 + \varkappa B_z^2 + \delta_0/2 \pm \frac{1}{2}\sqrt{\delta_b^2 + \mu_B^2(g_{h,z} - g_{e,z})^2 B_z^2}$$

$$E_d(B_z) = E_0 + \varkappa B_z^2 - \delta_0/2 \pm \frac{1}{2}\sqrt{\delta_d^2 + \mu_B^2(g_{h,z} + g_{e,z})^2 B_z^2},$$
(1.19)

где E_0 — ширина запрещенной зоны в КТ, μ_B — магнетон Бора, \varkappa — константа диамагнитного сдвига, а $g_{e,z}(g_{h,z})$ — электронный (дырочный) g-

фактор.

Основное состояние положительно (отрицательно) заряженной квантовой точки содержит одну тяжелую дырку (один электрон). Из-за полуцелого спина основное состояние в точках обоих типов оказывается невырожденным при B=0. При возбуждении экситона в заряженной точке формируется комплекс из трех зарядов (трион): две дырки и один электрон в положительно заряженной KT, и два электрона и одна дырка в отрицательно заряженной КТ (см. рис. 1.1 (б,в)). В основном состоянии трионов обоих типов одноименные заряды образуют спиновой синглет, взаимодействие которого с зарядом противоположного знака не зависит от спина. В результате, спиновые свойства положительно (отрицательно) заряженного триона $X^+(X^-)$ эквивалентны свойствам электрона (дырки). В отсутствие магнитного поля спектр люминесценции заряженных точек состоит из одиночной линии. Магнитное поле вдоль оси Ог приводит к расщеплению начальных и конечных состояний. Отметим, что в отличие от нейтральных точек, электронно-дырочные состояния в заряженных КТ обладают собственными значениями проекции спина в сколь угодно малом поле. С учетом правил отбора в обоих типах заряженных КТ разрешенными являются лишь два циркулярно поляризованных перехода (стрелки на рис. 1.1 (6, B)), зависимость их энергий от B_z имеет простой вид

$$E^{\sigma^{\pm}}(B_z) = E_0 + \varkappa_z B_z^2 \pm \mu_B (g_{h,z} - g_{e,z}) B_z/2.$$
(1.20)

1.3. Эффекты сверхтонкого взаимодействия электронов и ядер в полупроводниковых квантовых точках

1.3.1. Оптическая накачка и детектирование ядерной поляризации в квантовых точках

Исследования эффектов, связанных со сверхтонким взаимодействием электронов и ядер в квантовых точках начались спустя некоторое время

после того, как была разработана методика оптических исследований в одиночных KT [16,53]. Отличительной особенностью исследования ядерной спиновой системы по сравнению с объемными полупроводниками является возможность оптической накачки и оптического детектирования с высокой точностью ядерной поляризации в отдельной KT [27,61,62].

Накачка ядерной поляризации в КТ возможна благодаря сверхтонкому взаимодействию. Для этого сначала требуется создать неравновесную поляризацию электронов, динамическая ядерная поляризация является следствием процессов переворота электронного спина с одновременным изменением ядерного спина (см. параграф 1.1.3). В полупроводниках накачка неравновесной электронной поляризации возможна при возбуждении *e-h* пар циркулярно поляризованным светом с энергией близкой к энергии основного состояния экситонов [63]. В случае квантовых точек высокая степень поляризации электронов может быть достигнута при оптическом возбуждении состояний в смачивающем слое, либо непосредственно в самой КТ через возбужденные экситонные состояния [64], или при резонансном возбуждении оптических переходов [43, 65]. Накачка ядерного спина возможна как в нейтральных [27], так и в заряженных квантовых точках [30, 66].

В классическом эффекте Оверхаузера насыщение электронного парамагнитного резонанса используется для *выравнивания* заселенностей электронных спиновых уровней $(n_{\uparrow}=n_{\downarrow})$, сильно различающихся в условиях равновесия в большом магнитном поле при низкой температуре. Использование оптической накачки позволяет создавать электроны с высокой степенью поляризации (как положительной $n_{\uparrow}>n_{\downarrow}$, так и отрицательной $n_{\uparrow}< n_{\downarrow}$), определяемой лишь поляризацией возбуждающего света. В связи с этим оптическая накачка ядерного спина менее чувствительна к температуре и возможна даже в нулевом магнитном поле [66].

Детектирование ядерной поляризации в КТ также основано на использовании эффекта сверхтонкого взаимодействия. Как было показано ранее, поляризованные спины ядер действуют на электрон как дополни-

тельное эффективное поле B_N (см. уравнение 1.8), и, следовательно, приводят к изменению расщепления между спектральными компонентами люминесценции квантовой точки. Из выражения (1.20) для энергий оптических переходов следует, что спектральное расщепление между циркулярно поляризованными линиями излучения в заряженной КТ с учетом ядерного поля имеет вид

$$\Delta E^{PL} = \mu_B[(g_{h,z} - g_{e,z})B_z - g_{e,z}B_N].$$
(1.21)

Это выражение справедливо и для расщепления компонент дипольноактивного экситона в нейтральной КТ в достаточно большом магнитном поле $\mu_B(g_{h,z} - g_{e,z})B_z \gg \delta_b$. Благодаря малой спектральной ширине линий излучения в квантовых точках, измерение расщепления поляризованных компонент в спектре фотолюминесценции позволяет определить с высокой точностью ядерное поле с помощью выражения (1.21) [29, 30, 61, 66].

1.3.2. Влияние сверхтонкого взаимодействия электронов и ядер на спиновую релаксацию электронов в квантовых точках

Рассмотрим основные механизмы спиновой релаксации электронов в квантовых точках, а также возможные подходы к проблеме увеличения времени спиновой когерентности [20, 21]. В объемных полупроводниках главный механизм спиновой релаксации связан со спин-орбитальным взаимодействием, однако он оказывается сильно подавленным для локализованных носителей в квантовых точках. Спиновая релаксация, вызванная электрон-дырочным взаимодействием, играет важную роль во время энергетической релаксации через возбужденные состояния, но несущественна для зарядов в основном состоянии в КТ. Из-за малости энергетического расщепления спиновых уровней и малого объема локализации носителей в КТ взаимодействие с длинноволновыми колебаниями решетки маловероятно при низких температурах в слабом магнитном поле. В результате релаксация возможна лишь в двух-фононном процессе и потому сильно подавлена. Таким образом электронная спиновая релаксация через сверх-

тонкое взаимодействие с ядрами оказывается доминирующим механизмом.

Суммарное ядерное поле, созданное случайно распределенными ядерными спинами, вызывает прецессию электронного спина с характерным периодом ~ 1 нс. Среднее эффективное поле, связанное с электронным спином, в свою очередь, вызывает прецессию среднего ядерного поля с характерным временем этого процесса ~ 1 мкс. Наконец, диполь-дипольное взаимодействие ядер друг с другом приводит к релаксации ядерной поляризации с характерным временем ~ 100 мкс.

В нулевом магнитном поле спин электрона, приготовленный в чистом состоянии с проекцией на ось Oz (например, с помощью накачки циркулярным светом), будет прецессировать вокруг направления среднего ядерного поля \vec{B}_N , которое имеет случайное направление. В состоянии равновесия значения $|\vec{B}_N|$ имеют гауссово распределение со среднеквадратичным отклонением $\sigma(|\vec{B}_N|) \sim B_{N,max}/\sqrt{N}$, где N — число ядер в КТ, а *B_{N.max}* — ядерное поле, отвечающее полностью ориентированным спинам ядер. В ансамбле одинаковых квантовых точек, содержащих электроны, направление и величины \vec{B}_N изменяются от точки к точке. В результате, дефазировка ансамбля электронов, приготовленных в одинаковом состоянии в начальный момент, будет происходить за время порядка периода электронной прецессии $T_2^* \sim 1$ нс. В то же время прецессия в каждой отдельной точке будет когерентной, причем средний электронный спин $\langle \vec{s} \rangle$ будет направлен вдоль ядерного поля \vec{B}_N . Поскольку период ядерной прецессии намного больше периода электронной прецессии, то ядерные спины будут реагировать лишь на среднюю величину $\langle \vec{s} \rangle$. Поэтому можно было бы ожидать, что \vec{B}_N должно оставаться неизменным во времени. Следует, однако, учесть, что электронная плотность различна для ядер находящихся на разном удалении от центра КТ. В результате, частоты прецессии отдельных ядер не совпадают, что ведет к изменению \vec{B}_N во времени и, в свою очередь, к дефазировки электронного спина за время $T_2 \sim 1$ мкс, порядка периода ядерной прецессии. Эволюция \vec{B}_N под влиянием диполь-дипольного взаимодействия также накладывает ограничение на максимально возможное время электронной когерентности. Однако, характерное время этого процесса $T_2 \sim 100$ мкс существенно превышает все остальные времена, и им как правило можно пренебречь.

В достаточно большом магнитном поле, $B > \sigma(|\vec{B}_N|)$ направление прецессии электронного спина будет определяться внешним магнитным полем. Время релаксации компоненты спина вдоль поля T_1 , связанное с энергетической релаксацией, оказывается очень велико и может достигать десятков миллисекунд [67]. Однако, время дефазировки электронного спина T_2 по-прежнему определяется сверхтонким взаимодействием. Основную роль играет компонента ядерного поля B_N^{\parallel} параллельная внешнему полю, которая изменяет период прецессии электронного спина. Как и в нулевом поле, случайное изменение B_N^{\parallel} во времени ведет к тому, что фаза электронной волновой функции через конечное время Т₂ после приготовления электронного спина окажется непредсказуемой, и выполнение логических операций с использованием q-бита основанном на электронном спине станет невозможным. Для массива KT случайное распределение периодов прецессии вызовет дефазировку ансамбля электронных спинов за значительно меньшее время $T_2^* \sim 1$ нс, $T_2^* \ll T_2$ (или что тоже самое, сделает непредсказуемым результат большого числа повторных измерений на одном q-бите). Очень большое магнитное поле, при котором зеемановское расщепление электрона велико, так что становится возможной релаксация спина с возбуждением коротковолновых акустических фононов, приводит к ускорению продольной релаксации (время T_1) [67,68], а, значит, и к ограничению времени когерентности.

Для увеличения времени электронной спиновой релаксацией было предложено несколько подходов. Один из способов увеличения времени когерентности спина электрона заключается в использовании метода спинового эха, в котором когерентное состояние электронного спина восстанавливается путем обращения направления прецессии ядерных спинов. С использованием данного подхода было продемонстрировано увеличение времени когерентности двухэлектронного q-бита с ~10 нс до ~1 мкс [19].

Другим направлением является манипуляция ядерными спинами для создания такого состояния, в котором флуктуации ядерного поля намного меньше, чем в случае статистического равновесия - так называемое сужение спектра ядерных состояний (nuclear spin state narrowing) [22–25]. В рамках такого подхода было продемонстрировано увеличение времени когерентности в ~70 раз при подавлении флуктуаций ядерного поля за счет манипуляции электронными спинами в двойной квантовой точке [22, 23]. На схожем принципе основано удлинение электронной спиновой когерентности при резонансном фотовозбуждении оптических переходов в KT. В частности, в ансамблях отрицательно заряженных точек наблюдалась фокусировка частот прецессии электронных спинов за счет автоподстройки ядерного поля [69]. В экспериментах на одиночных КТ также было обнаружено уменьшение ядерных флуктуаций за счет обратной связи в системе электронных и ядерных спинов при резонансной лазерной накачке [43,65]. Наиболее прямым способом уменьшения флуктуаций ядерного спина является выстраивание моментов ядер в одном направлении [26]. В этом случае, однако, увеличение времени когерентности на один порядок требует большой степени ядерной поляризации (>99%) [25], тогда как до настоящего времени в квантовых точках удалось достичь степени поляризации ядер лишь ~60% [27-30].

Глава 2.

Образцы и методика эксперимента

2.1. Структуры с квантовыми точками InP/GaInP

Образцы с квантовыми точками (KT) InP/GaInP, исследуемые в данной работе, были выращены в Университете города Шеффилд методом эпитаксии из газовой фазы металло-органического соединения низкого давления в кварцевом реакторе с горизонтальным потоком. Образцы были выращены на подложках GaAs (100), разориентированных в направлении <111> на угол α =3÷10°, что позволяло избежать упорядочивания типа CuPt в матрице GaInP. Рост буферного слоя GaAs и слоя GaInP происходил при температуре 690° С. Перед нанесением слоя InP подложка охлаждалась до температуры 650° С. После формирования слоя квантовых точек InP температура вновь поднималась до 690° С и выращивался верхний слой GaInP. Скорость роста составляла 0.7 нм/с для слоев GaAs и GaInP и 0.35 нм/с для InP, соответственно. С помощью рентгеновской диффрактометрии было установлено, что рассогласование постоянных решеток слоев GaAs и GaInP не превышало 0.04%.

Квантовые точки InP/GaInP имеют выраженное бимодальное распределение геометрических размеров [70]. 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 латеральные размеры схожие с точками первого типа, в то время как их высота имеет величину лишь порядка 5 нм [71]. Ширина запрещенной зоны составляет ~1.65 эВ в сформировавшихся КТ и ~1.8 эВ в частично сформировавшихся точках. Большой размер КТ первого типа приводит к тому, что в них может накапливаться значительное количество носителей зарядов [70], в результате чего фотолюминесценция (Φ Л) из таких точек имеет вид сильно уширенных линий (~1 мэВ). В то же время Φ Л основного состояния КТ второго типа состоит из узких спектральных линий с шириной менее 15 мкэВ. В настоящей работе исследуются свойства экситонных состояний и ядерной поляризации лишь в частично сформировавшихся точках с энергией излучения 1.8-1.9 эВ.

В процессе роста и тестирования данных структур было установлено, что плотность КТ второго типа в образцах сильно зависит от угла разориентации подложки α . Из измерений фотолюминесценции было найдено, что в образце с α =3° плотность точек составляет $\sim 10^9$ см⁻¹ и увеличивается до более чем 10^{10} см⁻¹ при α =10°. Существенный рост плотности КТ с увеличением разориентации подложки может быть связан с повышенной плотностью моноатомных ступенек, служащих центрами зарождения точек в таких структурах [72]. В данной работе были использованы оба типа структур. Ниже образец с α =3° с низкой плотностью КТ обозначен для краткости как НП-образец, а образец с высокой плотностью КТ (α =10°) как ВП-образец.

2.2. Структуры с квантовыми точками GaAs/AlGaAs

Помимо структур с квантовыми точками InP/GaInP в данной работе также были исследованы образцы с GaAs/AlGaAs KT. Образец представлял собой квантовую яму GaAs с номинальной толщиной 13 монослоев, выращенную в барьере Al_{0.33}Ga_{0.67}As. Скорость роста составляла 0.1 нм/с (0.15 нм/с) для квантовой ямы (барьера). Квантовые точки формировались в результате моноатомных флуктуаций толщины квантовой ямы. Энергия локализации экситонов в таких KT составляет порядка 15 мэВ. Из данных сканирующей туннельной микроскопии было найдено, что латеральные размеры КТ находятся в пределах 10-100 нм при плотности 10⁹ см⁻¹.

2.3. Спектроскопия фотолюминесценции

Основной методикой исследования квантовых точек в данной работе являлась оптическая спектроскопия фотолюминесценции. Для работы с индивидуальными КТ поверхность образца покрывалась непрозрачной металлической пленкой с периодически расположенными отверстиями диаметром 400-800 нм. Принципиальная схема установки изображена на рисунке 2.1. Образец помещался в оптический криостат, оснащенный сверхпроводящим магнитом. Фотолюминесценция КТ возбуждалась светом полупроводникового лазера, который, проходя через светоделитель, фокусировался на поверхность образца с помощью объектива в пятно диаметром 1-3 мкм в зависимости от типа объектива. Перемещение объектива относительно образца позволяло выбирать отдельную апертуру на поверхности образца. Люминесценция, собранная тем же объективом, фокусировалась на входную щель двойного монохроматора Ramanor U-1000 и детектировалась с помощью азотно охлаждаемой ПЗС матрицы. Линейные поляризаторы и фазовые пластинки, установленные на оптическом пути лазера и сигнала люминесценции, позволяли осуществлять возбуждение и детектирование в линейных либо циркулярных поляризациях. В ряде экспериментов использовалось излучение нескольких лазеров с разной мощностью/поляризацией, в этом случае пучки сводились с помощью дополнительного светоделителя.

В данной работе эксперименты проводились на двух типах низкотемпературных установок. В первом случае это был проточный криостат Oxford, позволяющий регулировать температуру холодного пальца, на который монтировался образец, от ~15 K до комнатной и получать магнитное поле до 5 Тл. Микроскопный объектив находился вне криостата. Существенным ограничением такой системы являлся неизбежный простран-


Рис. 2.1. Принципиальная схема установки низкотемпературной микрофотолюминесценции.

ственный дрейф образца, что ограничивало время одного измерения на одиночных КТ в пределах 30 мин. Данная установка использовалась для первичной характеризации структур с КТ.

Во втором случае использовалась система фирмы Attocube. В ней образец и объектив располагались в низкотемпературной вставке. Пространственное сканирование поверхности образца при этом достигалось за счет того, что образец был смонтирован на трехкоординатной системе прецизионных пьезо-подвижек. Низкотемпературная вставка помещалась в дьюар со свободно испаряющимся жидким гелием. В этой установке температура могла меняться от 4.2 K до ~70 K, а магнитное поле от 0 до 8 T. Жесткость конструкции и отсутствие вибраций, связанных с принудительной прокачкой гелия, обеспечивали длительное постоянство условий эксперимента (до 40 часов). Высокая стабильность позволила полностью автоматизировать эксперимент: магнитное поле, интенсивность и поляризация накачки, поляризация детектирования и прочие параметры эксперимента изменялись с помощью компьютера согласно заранее заданной программе. Основная часть работы была выполнена именно на этой установке.

В обеих установках магнитное поле было направленно параллельно оптическому пути лазера и сигнала ФЛ и перпендикулярно поверхности образца (геометрия Фарадея). Для экспериментов, требующих магнитного поля в плоскости образца (геометрия Фойхта), использовалось дополнительное зеркало, установленное под углом 45° непосредственно рядом с образцом.

При исследовании ядерной спиновой системы в КТ, основным способом создания динамической ядерной поляризации была оптическая накачка. Возбуждение циркулярно поляризованным лазером приводит к генерации поляризованных электронов, передающих свой спин ядрам за счет сверхтонкого взаимодействия. Для повышения эффектиности этого процесса в случае InP точек использовалось фотовозбуждение с энергией ниже запрещенной зоны барьера GaInP (~1.89 эВ), а в случае GaAs точек использовалось возбуждение с энергией в области состояний квантовой ямы (~1.84 эВ). Благодаря малой разности энергий возбуждения и люминесценции удавалось получить высокую степень поляризации фотоэлектронов и, как результат, высокую степень поляризации ядер (~50%).

Метод детектирования ядерной поляризации в одиночной КТ, использованный в данной работе, также основан на использовании эффекта сверхтонкого взаимодействия. Ядерная поляризация проявляется как эффективное ядерное поле, действующее на электроны. Величина этого поля может быть измерена по дополнительному спектральному расщеплению линии люминесценции КТ. Ширина аппаратной функции спектральной установки, использованной в данной работе составляла ~50 мкэВ, в то же время положение спектральной линии, определяемое как центр тяжести линии излучения, могло быть определено с точностью до ±1 мкэВ, что позволяло детектировать изменение степени ядерной поляризации менее 1%.

В экспериментах по исследованию динамики ядерной поляризации временное разрешение достигалось за счет использования затворов блокирующих излучение лазеров и систему детектирования в соответствии с

временной диаграммой, заданной программируемым генератором цифровых сигналов. В большей части экспериментов использовались механические затворы, обеспечивающие минимальную длительность импульса от 2 мс и длительность фронта/спада ~0.5 мс. Достоинством таких затворов является полное подавление света в закрытом состоянии. При необходимости получения более коротких импульсов в дополнение к механическим использовались акусто-оптические модуляторы, работающие с субмикросекундным разрешением и обеспечивающие контраст ~1:5000. Кроме того, в ряде экспериментов были использованы электрооптические модуляторы (ячейки Поккельса), позволяющие переключать знак циркулярной поляризации за время ~0.5 мкс.

2.4. Резонансная спектроскопия квантовых точек

В главе 4 данной работы приведены результаты исследования влияния резонансного фотовозбуждения на ядерную поляризацию в одиночных квантовых точках. В этих экспериментах использовалось излучение лазера с перестраиваемой энергией фотонов, близкой к энергии ФЛ из основного состояния электрон-дырочной пары в КТ. Для проведения таких экспериментов потребовалась модификация установки, её схема показана на рис. 2.2. Рассеянное излучение резонансного лазера намного сильнее сигнала ФЛ КТ, что не позволяет измерять излучение самой квантовой точки. Для решения этой проблемы было применено временное разделение возбуждения и детектирования (методика "накачка-тестирование").

Образец освещался излучением одномодового лазера со спектральной шириной менее 1 мкэВ и с перестраиваемой длиной волны, близкой к длине волны рекомбинации основного состояния экситона в выбранной КТ. Для тестирования состояния точки излучение резонансного лазера блокировалось затвором на короткий промежуток времени. Одновременно образец освещался нерезонансным лазером (энергия фотонов ~1.89 эВ) и открывался затвор на спектрометре. Такой цикл повторялся периодически,



Рис. 2.2. Принципиальна схема установки для резонансной спектроскопии одиночных KT.

время детектирования было выбрано намного меньшим периода повторения ($\sim 1/300$ периода) для уменьшения влияния нерезонансного лазера на ядерную поляризацию КТ. Кроме того, длительность детектирования была меньше времени выстраивания ядерной спиновой поляризации под влиянием тестирующего лазера, так что ядерное поле оставалось практически постоянным во время измерения. Для записи спектра ФЛ КТ с хорошим отношением сигнал/шум указанный цикл повторялся несколько раз за время накопления спектра (~ 1 мин).

Длина волны резонансного лазера контролировалась с помощью интерферометрического волнометра, обеспечивающего высокую стабильность и точность определения энергии фотона ~0.01 мкэВ. В установке был предусмотрен дополнительный затвор, позволяющий заводить излучение перестраиваемого лазера в монохроматор (пунктирная линия). Измерения энергии одного и того же лазера волнометром и спектрометром позволяло периодически калибровать спектрометр в процессе измерений. Такая калибровка была необходима для устранения эффекта теплового дрейфа зеркал и решеток спектрометра. Этот дрейф приводит к параллельному сдвигу спектрального изображения в плоскости ПЗС детектора, в результате которого энергия, измеренная спектрометром,

 $E^{spectrometer}$, отличается от точного значения энергии, измеряемого волнометром, $E^{precise}$, на некоторую величину $\Delta E(T)$, зависящую от температуры, $E^{spectrometer} = E^{precise} + \Delta E(T)$. Используя энергии лазера, измеренные обоими способами ($E^{spectrometer}_{laser}$ и $E^{precise}_{laser}$), и значение энергии ФЛ квантовой точки, измеренное только на спектрометре, $E^{spectrometer}_{QD}$, можно вычислить точную энергию перехода КТ: $E^{precise}_{QD} = E^{spectrometer}_{QD} - \Delta E(T) = E^{spectrometer}_{QD} - (E^{spectrometer}_{laser} - E^{precise}_{laser})$. Таким образом, в данной методике энергии оптических переходов КТ (а значит, и ядерная поляризация, рассчитанная из спектрального расщепления) измерялись как функции энергии резонансного лазера.

Глава З.

Эффект Оверхаузера в одиночных квантовых точках InP/GaInP

3.1. Характеризация экситонных состояний в квантовых точках InP/GaInP

На рисунке 3.1 показаны типичные спектры фотолюминесценции образца с высокой плотностью точек (ВП-образец) InP/GaInP, измеренные с открытой поверхности (диаметр пятна возбуждения d=3 мкм) и из апертуры в металлической маске диаметром d=400 нм при возбуждении лазером с энергией кванта 3 эВ, превосходящей ширину запрещенной зоны барьера GaInP. В спектре, измеренном на открытой поверхности образца, отчетливо видны два распределения: одно с центром около 1.67 эВ и другое, более интенсивное и широкое, с центром 1.8 эВ. Бо́льшая энергия люминесценции свидетельствует о меньшем размере КТ [70]. Кроме того, время-разрешенные измерения при возбуждении фемтосекундным лазером дают разное время затухания люминесценции: 700-1200 пс для высокоэнергетических точек и ~350 пс для низкоэнергетических. Меньшее время затухания для низкоэнергетичных КТ свидетельствует о бо́льших геометрическим размерах по сравнению с высокоэнергетичными. Таким образом, низкоэнергетическое и высокоэнергетическое распределения могут быть сопоставлены точкам первого и второго типов, соответственно. При умень-



Рис. 3.1. Типичные спектры люминесценции КТ из образца с высокой плотностью точек.

шении размера области, из которой детектируется люминесценция, число линий в высокоэнергетическом распределение заметно сокращается, но остается достаточно плотным. В то же время линии, соответствующие низкоэнергетическому распределению, присутствуют лишь в некоторых апертурах, что свидетельствует о низкой плотности сформировавшихся КТ по сравнению с частично сформировавшимися.

Использованные в данной работе структуры с КТ InP/GaInP не были легированы и не содержали электрического затвора, позволяющего регулировать количество зарядов в КТ. Наличие примесей, случайно распределенных в барьере, приводит к тому, что при низкой температуре часть точек может быть заполнена электронами или дырками. В данной работе для определения зарядового состояние конкретных КТ использовались результаты измерения магнито-фотолюминесценции в конфигурациях Фарадея и Фойхта. Систематический анализ данных, полученных с большого количества индивидуальных КТ, показал, что в одном и том же образце могут наблюдаться различные типы спектров, которые могут быть приписаны излучению нейтральных, положительных и отрицательных однократно заряженных КТ. Ниже описаны результаты, позволяющие различить зарядовые состояния и определить магнитные свойства носителей, необходимые для дальнейшего рассмотрения.



Рис. 3.2. Спектры люминесценции двух различных нейтральных КТ, измеренные в двух ортогональных линейных поляризациях (π_1 и π_2) в нулевом магнитном поле.

На рисунке 3.2 показаны спектры, измеренные в двух ортогональных линейных поляризациях для двух точек (N1 и N2, НП-образец), которые могут быть приписаны излучению нейтральных КТ. В нулевом магнитном поле каждой точке соответствует два линейно поляризованных дублета с обратным порядком компонент обозначенных X и XX. При уменьшении накачки возбуждения дублет XX, отщепленный от X на ~5 мэВ, исчезает. Такое поведение характерно для эмиссии экситона (X) и биэкситона (XX) в нейтральной КТ [60,73].

На рисунке 3.3 (а) показаны спектры ФЛ нейтральной точки X^0 N1, измеренные при различных значениях магнитного поля. В геометрии Фарадея (B||Oz) спектры записаны в циркулярных поляризациях (σ^+ и σ^-), а в геометрии Фойхта ($B\perp Oz$) — в двух ортогональных линейных (π_1 и π_2). Энергии люминесценции всех спектрально разрешенных компонент показаны символами на рисунке 3.3 (б) как функции магнитного поля.

В нулевом поле спектр ФЛ состоит из линейно-поляризованного дублета, расщепленного анизотропным электрон-дырочным обменным взаимодействием на величину $\delta_b \sim 50$ мкэВ. Известно, что магнитное поле, параллельное поверхности образца (геометрия Фойхта), приводит к смешиванию оптически активных состояний с величиной проекции момента $J_z=\pm 1$ и так называемых "темных" состояний с $J_z=\pm 2$, для которых оптическая рекомбинация запрещена в дипольном приближении в силу закона сохранения момента [60]. В результате такого смешивания



Рис. 3.3. (а) Спектры фотолюминесценции нейтральной КТ N1, измеренные в циркулярных поляризациях в геометрии Фарадея и в ортогональных линейных поляризациях в геометрии Фойхта. Части спектров в геометрии Фарадея, отделенные вертикальной чертой, домножены на 10 для наглядности. (б) Энергии спектральных компонент излучения нейтральной КТ как функции внешнего магнитного поля. Символы - эксперимент, сплошные линии - аппроксимация (см. текст).

"темные" состояния приобретают ненулевую силу осциллятора и уже в небольшом поле ($B_x=0.5$ Тл) проявляются в спектре люминесценции в виде дополнительной линии с энергией, меньшей энергии основного дублета на $\delta_0 \sim 200$ мкэВ. Дальнейшее увеличение магнитного поля приводит к сдвигу всех экситонных состояний, и, в пределе большого поля, наблюдаются четыре спектральные линии. При этом линии, происходящие из дублета $J_z=\pm 1$, пересекаются в магнитном поле $B_x\sim 2$ Тл и в большом поле имеют порядок, противоположный порядку в нулевом поле.

Магнитное поле, перпендикулярное поверхности образца (B||Oz), приводит к увеличению расщепления экситонного дублета и постепенному превращению линейных поляризаций в циркулярные (см. параграф 1.2.2). Однако, в данной точке поле также приводит к появлению и росту интенсивности двух дополнительных спектральных линий, которые становятся заметными при $B_z>0.3$ Тл. Нетрудно проследить, что в пределе нулевого поля энергии этих компонент соответствуют "темным" состояниям экситона, которые наблюдаются в геометрии Фойхта (см. рис. 3.3 (б)). Появление линий, соответствующих состояниям $J_z = \pm 2$, в геометрии Фарадея может быть связанно с нарушением симметрии квантовой точки или с небольшим отклонением оси квантования КТ от оси роста Oz [60].

Спектральные компоненты, соответствующие экситонным состояниям с $J_z=\pm 2$, имеют значительно больший сдвиг в магнитном поле по сравнению с состояниями $J_z=\pm 1$, в результате чего при определенных значениях поля происходят пересечения. В поле $B_z\sim 2.5$ Тл интенсивность компоненты $J_z=+2$ существенно возрастает, такой рост может быть связан с антипересечением состояний $J_z=+1$ и $J_z=+2$ [74–76], вызванным электрондырочным обменным взаимодействием в низкосимметричной КТ. В то же время, энергия "темной" компоненты $J_z=-2$ намного меньше энергий всех остальных компонент, и явление антипересечения для нее не наблюдается, ее интенсивность монотонно растет с ростом B_z .

Измерения спектра ФЛ при разных плотностях мощности фотовозбуждения свидетельствуют о том, что интенсивности всех компонент насыщаются с ростом накачки. Было найдено, что насыщение "темных" компонент происходит при значительно меньших интенсивностях лазера, чем разрешенных линий. При этом максимальная интенсивность компонент $J_z=\pm 1$ превышает максимальную интенсивность линии $J_z=-2$ в $1/\beta\sim100$ раз в поле 8 Тл. Фотовозбуждение создает примерно равные доли дипольно активных и "темных" экситонов (см. стр. 57). Поэтому можно принять, что при высоких накачках, когда интенсивности всех компонент насыщаются, все экситонные состояния имеют примерно равную заселенность. Отсюда, учитывая, что излучение состояний $J_z=\pm 2$ связано лишь с подмешиванием состояний $J_z=\pm 1$, можно оценить величину смешивания волновых функций оптически запрещенных и разрешенных уровней $\beta\sim1\%$, вызванного магнитным полем B_z .

Малость величины β означает, что смешивание состояний не приводит к существенной модификации экситонных энергий. Поэтому для зависимостей энергий разрешенных $J_z=\pm 1$ [запрещенных $J_z=\pm 2$] уровней от внешнего поля по-прежнему можно использовать выражения (1.19), полученные для симметричных КТ [60]

$$E_b(B_z) = E_0 + \varkappa B_z^2 + \delta_0/2 \pm \frac{1}{2}\sqrt{\delta_b^2 + \mu_B^2(g_{h,z} - g_{e,z})^2 B_z^2} \\ \left[E_d(B_z) = E_0 + \varkappa B_z^2 - \delta_0/2 \pm \frac{1}{2}\sqrt{\delta_d^2 + \mu_B^2(g_{h,z} + g_{e,z})^2 B_z^2} \right], \quad (3.1)$$

где E_0 — ширина запрещенной зоны в КТ, μ_B — магнетон Бора, \varkappa — константа диамагнитного сдвига, δ_0 — расщепление между разрешенным и запрещенным дублетами, $\delta_{b(d)}$ — расщепление разрешенного (запрещенного) дублета, а $g_{e,z}(g_{h,z})$ — электронный (дырочный) g-фактор.

Аппроксимация экспериментальных данных с использованием выражения (3.1) показана на рисунке 3.3 (б) сплошными линиями. В расчетах были использованы следующие значения параметров, наилучшим образом описывающие эксперимент: $\varkappa \approx 5.8$ мкэВ/Tл², $\delta_0 \approx 200$ мкэВ, $\delta_b \approx 65$ мкэВ. Расщепление "темных" состояний δ_d не разрешается в спектрах и было положено равным нулю. Наличие запрещенных компонент в спектре ФЛ позволяет независимо определить абсолютные значения g-факторов электронов и дырок. Учитывая порядок σ^+ и σ^- поляризованных компонент, было найдено, что $g_{e,z} \approx +1.64$, $g_{h,z} \approx +2.74$.

Заметим, что величина δ_0 , связанная с обменным взаимодействием, вызванным рассогласованием решеток InP и GaInP, практически одинакова для всех нейтральных точек. В то же время тонкая структура (δ_b), связанная с нарушением латеральной симметрии KT, варьируется от точки к точке в пределах 0÷70 мкэВ. Аналогично, смешивание состояний экситонов с $J_z=\pm 1$ и $J_z=\pm 2$ магнитным полем B||Oz наблюдается лишь в части KT.

На рисунке 3.4 представлены спектры $\Phi \Pi$ двух других квантовых (N3 и N4) точек из НП-образца во внешнем магнитном поле в геометриях Фарадея и Фойхта, демонстрирующих поведение, отличное от нейтральных КТ. В нулевом магнитом поле спектр излучения каждой из точек состоит из одиночной неполяризованной линии, которая расщепляется на циркулярно поляризованный дублет в поле B||Oz. В геометрии Фойхта линия расщепляется на четыре компоненты, попарно линейно поляризованные в ортогональных направлениях. Однако, в отличие от спектра излучения нейтраль-



Рис. 3.4. Спектры фотолюминесценции двух различных однократно заряженных КТ измеренные в циркулярных поляризациях в геометрии Фарадея и в ортогональных линейных поляризациях в геометрии Фойхта.

ных точек, все компоненты квартета имеют сравнимые интенсивности при любых значениях поля и интенсивности накачки. Такой тип спектра характерен для излучения однократно заряженных квантовых точек X^c [59,60].

Зависимости энергий компонент от внешнего поля в геометрии Фарадея [Фойхта] описываются простыми соотношениями (см. уравнение 1.20)

$$E(B_z) = E_0 + \varkappa_z B_z^2 \pm \mu_B (g_{h,z} - g_{e,z}) B_z / 2$$

[$E(B_x) = E_0 + \varkappa_x B_x^2 + \mu_B (\pm g_{h,x} \pm g_{e,x}) B_x / 2$], (3.2)

где значения диамагнитного сдвига \varkappa и g-факторов g_e и g_h зависят от направления магнитного поля (B||Ox или B||Oz). Из аппроксимации результатов, показанных на рисунке 3.4, было найдено, что $\varkappa_z \approx 6.3$ мкэB/Tл², $\varkappa_x \approx 0.9$ мкэB/Tл² для X^C N3 ($\varkappa_z \approx 4.5$ мкэB/Tл², $\varkappa_x \approx 1.1$ мкэB/Tл² для X^C N4). Из измерений в геометрии Фойхта были отдельно найдены значения g-факторов электронов и дырок: $g_{e,x} \approx 1.63$, $|g_{h,x}| \approx 0.55$ для X^C N3 ($g_{e,x} \approx 1.60$, $|g_{h,x}| \approx 0.61$ для X^C N4). Величины $g_{e,x}$ для заряженных точек находятся в хорошем согласии со значением $g_{e,z}$, найденным для нейтрального экситона, что свидетельствует об изотропии электронного g-фактора. Из из-

мерений для заряженных точек в геометрии Фарадея может быть получена только разность $g_{h,z}$ - $g_{e,z}$, Однако, принимая во внимание, что $g_{e,x}=g_{e,z}$ можно найти электронный и дырочный g-факторы отдельно: $g_{h,z}\approx 3.02$ для X^C N3 ($g_{h,z}\approx 2.45$ для X^C N4). Существование значительной компоненты дырочного g-фактора в плоскости образца $g_{h,x}\sim 1/5$ $g_{h,z}$ может свидетельствовать о смешивании состояний тяжелых ($j_z=\pm 3/2$) и легких ($j_z=\pm 1/2$) дырок, вызванном анизотропными деформациями в квантовой точке [59].

Спектроскопия квантовых точек в магнитных полях различной конфигурации позволяет различить заряженные и нейтральные КТ и дает важную информацию о магнитных свойствах носителей, а также о симметрийных свойствах точек. Однако, тонкая структура спектров излучения точек, заряженных одним носителем, полностью совпадает для положительных и отрицательных КТ.

В данной работе для определения знака заряда в КТ были использованы результаты измерения эффекта Ханле. В этих экспериментах образец возбуждался циркулярно поляризованным светом. Знак поляризации лазера переключался с частотой 16 кГц для того, чтобы избежать возникновения ядерной поляризации. Степень поляризации люминесценции, определяемая как $\rho_c = (I_{co} - I_{cross})/(I_{co} + I_{cross})$, где $I_{co}(I_{cross})$ — интенсивность ФЛ, ко-(кросс-)поляризованной с излучением лазера, измерялась как функция магнитного поля B_x в плоскости образца. Результаты таких экспериментов для нескольких заряженных точек показаны символами на рисунке 3.5 (все точки кроме КТ N5 из НП-образца, КТ N5 — из ВП-образца). Сплошными кривыми на том же рисунке показаны результаты аппроксимации кривыми Лоренца.

Как известно, эффект Ханле состоит в том, что под влиянием магнитного поля в плоскости образца носители, поляризованные по спину вдоль оси роста структуры, начинают прецессировать вокруг направления поля. Если период вращения оказывается меньше времени рекомбинации, то большая часть спинов оказывается деполяризованной, что наблюдается как уменьшение степени циркулярной поляризации излучения, созданной цир-



Рис. 3.5. Эффект Ханле в индивидуальных однократно заряженных КТ. Символами показана экспериментальная зависимость степени циркулярной поляризации люминесценции от магнитного поля в плоскости образца при возбуждении циркулярным светом. Сплошные линии — аппроксимация кривыми Лоренца.

кулярной накачкой. В пределе большого поля степень поляризации должна стремиться к нулю. Однако, из рисунка 3.5 видно, что с ростом поля поляризация выходит на некоторую константу $\rho_c \sim \pm 5\%$, отличную от нуля и варьирующуюся от точки к точке. По-видимому, это связано с влиянием несовершенства формы субмикронного отверстия в металлической апертуре или с асимметрией самой КТ, в результате чего прохождение света поляризованного по правому и по левому кругу через отверстие может оказаться различным. Влияние данного паразитного эффекта сводится лишь к некоторому сдвигу кривой Ханле по оси ординат, в то время как наиболее существенным является *изменение* ρ_c с изменением поля. Из результатов, приведенных на рисунке 3.5, можно заключить, что существует два разных типа квантовых точек: для КТ, показанных на рисунке (а), поле B_x приводит к уменьшению ρ_c , т.е. к подавлению *положительной* поляризации, в то время как в КТ, показанных на рисунке (б), происходит подавление *отрицательной* поляризации.

Рассмотрим сначала КТ с отрицательной поляризацией (рис. 3.5 (б)). Аппроксимация экспериментальных кривых с помощью кривых Лоренца позволяет определить ширину кривой $B_{1/2} = \hbar/(\mu_B g T_s)$, которая выражается через g-фактор носителя g и время жизни спинового

состояния T_s. При этом T_s включает в себя все процессы, приводящие к исчезновению спина: спиновую релаксацию и рекомбинацию носителей. Экспериментальные данные на рис. 3.5 (б) хорошо описываются одиночными контурами Лоренца, которые дают $gT_s \approx 2.3$ нс (1.1 нс) для X^- N4 (N5). Используя значения $g_{e,x}$ и $g_{h,x}$, найденные из измерений в геометрии Фойхта, можно получить для X^- N4 $T_s \approx 1.4$ нс (3.8 нс), если наблюдаемые кривые соответствуют деполяризации электрона (дырки). Независимо от знака заряда, полученные значения T_s превышают экспериментально измеренное время радиационной рекомбинации 0.8-1.2 нс в данных KT. Таким образом, можно заключить, что кривые Ханле, наблюдаемые для данного типа точек, соответствуют спиновой памяти резидентного носителя в КТ. Явление спиновой памяти в КТ, заряженных электронами, было найдено ранее как для образцов n-типа [77–79], так и для структур с диодами Шоттки [64]. Было установлено, что негативная циркулярная поляризация ($\rho_c < 0$) возникает из-за влияния состояния резидентного электрона на процесс спиновой релаксации фотовозбужденной электрондырочной пары (основное состояние триона может формироваться только, если спины резидентного и фотоэлектронов имеют противоположные спины), и является характерным признаком отрицательно заряженных точек [78]. Следовательно, точки типа X^- , показанные на рисунке 3.5 (б), соответствуют рекомбинации отрицательных трионов.

В случае квантовых точек, показанных на рис. 3.5 (а), кривые Ханле имеют заметно большую ширину, $gT_s \approx 0.28$ нс (0.35 нс) для X^+ N3 (N6). Эти кривые следует приписать положительно заряженным КТ [64]. Наблюдаемое в этом случае подавление положительной ρ_c внешним магнитным полем связано с деполяризацией фотовозбужденного электрона (поле не влияет на спаренные дырки с нулевым полным спином). Время $T_s \approx 0.18$ нс (0.22 нс), рассчитанное для X^+ N3 (N6), описывает затухание электронного спина за счет спиновой релаксации и фоторекомбинации.

Из измерений, выполненных для большого числа квантовых точек, было установлено, что основные свойства носителей в КТ в НП и ВП образцах совпадают. В обеих структурах наблюдаются схожие значения электронных и дырочных g-факторов, а также сравнимые величины электрондырочного обменного взаимодействия и энергии связи биэкситона.

3.2. Оптическая накачка ядерной спиновой поляризации в квантовых точках InP/GaInP с различными зарядовыми состояниями

Кристаллическая решетка исследуемых квантовых точек InP/GaInP состоит из двух сортов атомов: ядра фосфора ³¹P имеют спин $I_P=1/2$, в то время как оба устойчивых изотопа индия ¹¹³In и ¹¹⁵In имеют момент $I_{In}=9/2$. Взаимодействие ядер и электронов проводимости характеризуется константами сверхтонкого взаимодействия A_N , зависящими от сорта ядер N и описывающими электронное спиновое расщепление $I_PA_P=18$ мкэВ, $I_{In}A_{In}=212$ мкэВ, возникающее при полной поляризации соответствующей подматрицы [80]. Малость собственных магнитных моментов всех ядер (~10⁻⁴ магнитного момента электрона) приводит к тому, что равновесная степень поляризация ядер S_N , возникающая в используемых экспериментальных условиях (T=4.2 K, B<8 Tл), не превышает 10⁻³.

Возникновение значительно большей динамической ядерной поляризации возможно благодаря передаче спина от поляризованных электронов (см. параграф 1.3.2). Сверхтонкое взаимодействие вида $A_N(\vec{s}, \vec{I})$ электронного \vec{s} и ядерного \vec{I} спинов (см. уравнения (1.9, 1.11)) делает возможным спин-флип процесс, при котором электронный спин уменьшается (увеличивается) на единицу при одновременном увеличении (уменьшении) ядерного спина. Из-за требования сохранения энергии скорость такого процесса, описываемая выражением

$$w_s \sim |A_N|^2 / (\Delta E_e^2 + \gamma^2),$$
 (3.3)

сильно уменьшается, когда величина электронного спинового расщепления ΔE_e становится большой по сравнению с уширением электронных уровней

γ [29,63,81]. Стационарная ядерная поляризация, возникающая при оптическом возбуждении, зависит от заряда КТ, внешнего магнитного поля, интенсивности и поляризации фотовозбуждения.

Рассмотрим влияние интенсивности накачки P_{exc} на экситонные состояния квантовых точек. На рисунке 3.6 показаны спектры ФЛ из отверстия диаметром 800 нм НП-образца, записанные при различных накачках в магнитном поле 2.5 Тл. При малых плотностях накачки электрон-дырочные пары, рожденные в смачивающем слое или в возбужденных состояниях КТ, релаксируют в основные состояния точек за время порядка нескольких пикосекунд, что намного меньше времени рекомбинации. В результате спектр люминесценции состоит из небольшого числа узких линий, соответствующих отдельным КТ (зеемановский дублет Х дипольно-активного экситона в нейтральной КТ при *P*_{exc}=0.4 мкВт на рис. 3.6). Увеличение накачки приводит к росту интенсивности люминесценции квантовых точек, а также к появлению линий, соответствующих состояниям КТ с двумя электрон-дырочными парами (на рис. 3.6 — биэкситонный дублет XX, появляющийся при Perc=15 мкВт и относящийся к той же КТ что и дублет X). При плотности возбуждения $P_{exc}=15$ мкВт в спектре излучения также наблюдаются дополнительные уширенные линии, обозначенные X_m на рис. 3.6. Данные линии могут быть сопоставлены излучению из нейтральной КТ, содержащей 3 и более электрон-дырочные пары [82]. В силу принципа Паули образование мультиэкситонного комплекса Х_m с количеством *e*-*h* пар *m*≥3 требует заполнения возбужденных электронных и дырочных *p*-оболочек. Рекомбинация электрон-дырочной пары из основной *s*-оболочки такого комплекса оставляет КТ в короткоживущем возбужденном конечном состоянии, что объясняет уширение линий X_m и не позволяет разрешить их тонкую структуру и идентифицировать состояния с различными *т* [82].

При определенной интенсивности накачки достигается максимум интенсивности излучения экситонного состояния, что соответствует ситуации, когда КТ большую часть времени занята одним экситоном.



Рис. 3.6. Спектры люминесценции образца записанные при малой (0.4 мкВт), средней (15 мкВт) и большой (250 мкВт) накачках в поле $B_z=2.5$ Тл. На рисунке отмечены линии соответствующие излучению экситона (X), биэкситона (XX) и экситонных комплексов (X_m), состоящих из трех и более электрон-дырочных пар ($m \ge 3$), из одной и той же нейтральной КТ N1.

Дальнейший рост накачки приводит к уменьшению интенсивности экситонных (X), биэкситонных (XX), а затем и мультиэкситонных (X_m) линий. В пределе очень большой мощности ($P_{exc}=250$ мкВт на рис. 3.6) спектр люминесценции характеризуется большой интенсивностью фонового излучения, состоящего из широких линий. В данном режиме скорость рождения электрон-дырочных пар заметно превышает возможную скорость рекомбинации в квантовых точках, в результате чего в спектре доминирует излучение сильно-возбужденных состояний и делокализованных экситонов в смачивающем слое.

Зависимости интенсивности линий, соответствующих излучению дипольно-активного $(J_z=\pm 1)$ экситона (X^0) и биэкситона (XX^0) из нейтральной КТ, а также отрицательного (X^-) и положительного (X^+) трионов из заряженных точек от интенсивности накачки σ^+ -лазером в магнитном поле $B_z=2.5$ Тл показаны на рис. 3.7 (а). Для всех представленных на рисунке КТ максимум интенсивности ФЛ достигается при накачке $P_{exc}\sim 30$ мкВт (варьируется для различных точек и зависит от диаметра апертуры в металлической маске), дальнейшее увеличение мощности возбуждения приводит к спаду интенсивности люминесценции КТ, сопровождаемому ростом фонового излучения (см. рис. 3.6).

Для определения величины ядерной поляризации использовался Оверхаузеровский сдвиг спектрального расщепления (OHS) зеемановского дублета КТ, вызванный сдвигом электронных уровней под влиянием сверхтонкого взаимодействия. Учет ядерной поляризации B_N приводит к модификации выражений (3.1), (3.2) для энергий оптических переходов (см. уравнение 1.21). Энергии "разрешенных" переходов нейтрального экситона в достаточно большом магнитном поле ($\delta_b < \mu_B B_z$) примут вид $E_b(B_z, B_N) = E_0 + \varkappa B_z^2 + \delta_0/2 \pm \frac{1}{2}\sqrt{\delta_b^2 + \mu_B^2(g_{h,z}B_z - g_{e,z}(B_z + B_N))^2}$. Anaлогично, для заряженных точек $E(B_z, B_N) = E_0 + \varkappa_z B_z^2 \pm \frac{1}{2} \mu_B(g_{h,z}B_z - \omega_z)$ $g_{e,z}(B_z + B_N))$ при любом B_z . В пределе малых накачек $(P_{exc} \rightarrow 0)$ спектральное расщепление не зависит от поляризации возбуждения, что позволяет определить $E(B_z, B_N = 0)$ и, при известных величинах g-факторов и δ_b , вычислить B_N из $E(B_z, B_N)$ при произвольном P_{exc} . Для измерений при больших накачках, когда в спектре невозможно выделить линию излучения одиночной точки, была использована методика "накачка-тестирование", схожая с той, что используется в гл. 4 для детектирования ядерной поляризации при резонансном возбуждении (см. описание методики в разделе 2.4): луч лазера возбуждения периодически прерывается на короткие промежутки времени, в течении которых регистрируется люминесценция одиночной KT, возбуждаемая слабым тестирующим лазером. Полученные таким образом зависимости спектрального расщепления от плотности возбуждения, а также рассчитанные из них величины ядерного поля B_N , показаны на рисунке 3.7 (б) для тех же KT, что и на рисунке 3.7 (а).

Сразу же стоит отметить существенную разницу в поведении ядерной поляризации в нейтральной и заряженных точках. В случае заряженных КТ зависимость B_N от накачки имеет сублинейный характер, свидетельствующий о том, что существенная ядерная поляризация индуцируется уже при умеренных мощностях возбуждения $P_{exc}\sim30$ мкВт, соответствующих максимуму интенсивности ФЛ из одиночной КТ, при бо́льших P_{exc}



Рис. 3.7. Интенсивности люминесценции (а) и величины ядерной поляризации (б) в квантовых точках с различными зарядовыми состояниями как функции интенсивности накачки P_{exc} в магнитном поле $B_z=2.5$ Тл.

ядерная поляризация выходит на насыщение. Совершенно иная ситуация наблюдается в нейтральной точке, где рост мощности возбуждения приводит лишь к слабому линейному росту B_N . При этом значительное ядерное поле достигается лишь при очень больших мощностях ($P_{exc}>200$ мкВт), когда экситонная ФЛ практически полностью подавлена.

Такая разница в характере динамической ядерной поляризации позволяет сделать вывод о разных механизмах накачки ядерных спинов в разных типах КТ. Быстрый рост B_N с увеличением степени заполнения КТ трионами (рост интенсивности ФЛ) означает, что ядерная поляризация в заряженных КТ связана с непосредственным воздействием на ядра поляризованных носителей в самой точке. В то же время заполнение пустой КТ спин-поляризованными нейтральными экситонами или спиннеполяризованными биэкситонами не приводит к ядерной поляризации накачка ядерных спинов в нейтральных КТ происходит лишь тогда, когда происходит заполнение фотовозбужденными носителями возбужденных состояний в точке и в смачивающем слое.

Рассмотрим возможные механизмы оптической накачки ядерной по-



Рис. 3.8. Спектры фотолюминесценции экситона в нейтральной квантовой точки при возбуждении σ^+ и σ^- поляризованным светом малой интенсивности P_{exc} =90 нВт в магнитном поле B_z =4.1 Тл.

ляризации в KT с различными зарядовыми состояниями. Возбуждение σ^+ поляризованным лазером приводит к появлению дырок со спином вверх, $h\uparrow$, и электронов со спином вниз, $e\downarrow$, непосредственно в возбужденных состояниях КТ либо в смачивающем слое. В последнем случае носители быстро локализуются потенциалом в ближайших КТ. Спин-орбитальное взаимодействие, а также смешивание состояний тяжелой и легкой дырок приводят к тому, что свободные дырки теряют свой спин намного быстрее, чем электроны. Данный эффект наблюдается в исследованных структурах и проиллюстрирован на примере нейтрального экситона на рисунке 3.8, где показаны спектры люминесценции, записанные при возбуждении циркулярным светом противоположенных поляризаций в магнитном поле $B_z=4.1$ Тл. Из спектров видно, что при возбуждение σ^+ -лазером ($e\downarrow$ -hпары) люминесценция из состояний с электронным спином вниз $J_z = -2$ $(|e\downarrow h\downarrow\rangle)$ и $J_z=+1$ $(|e\downarrow h\uparrow\rangle)$ оказывается более интенсивной, чем при σ^- накачке, в то время как для состояний со спином вверх $J_z = +2 \; (|e \uparrow h \Uparrow \rangle)$ и $J_z = -1 (|e \uparrow h \downarrow \rangle)$ наблюдается обратный эффект.

<u>В положительно заряженной КТ</u> в основном состоянии находится одна дырка, не взаимодействующая с ядерными спинами. Фотовозбуждение приводит к формированию триона X^+ , в котором две дырки образуют спиновой синглет, а спин электрона может быть направлен по полю ($|e\uparrow h \downarrow h \uparrow \rangle$) или против поля $(|e\downarrow h \Downarrow h \Uparrow \rangle)$. Из правил отбора следует, что поляризация фотона, излучаемого при рекомбинации, определяется только спином электрона в трионе. Наблюдение положительной степени поляризации $\rho_c > 0$ (см. рис. 3.5 (a)) означает, что при σ^+ возбуждении $(e\downarrow -h \Uparrow$ пары) преобладают трионы $|e\downarrow h \Downarrow h \Uparrow \rangle$. Неравновесная заселенность трионов приводит к тому, что число спин-флип процессов $|e\downarrow, I_z + 1\rangle \rightarrow |e\uparrow, I_z\rangle$ превышает число обратных процессов $|e\uparrow, I_z\rangle \rightarrow |e\downarrow, I_z + 1\rangle$. В результате возникает избыточное количество ядер с проекцией спина I_z , меньшей равновесного значения, что наблюдается как дополнительное ядерное поле $B_N < 0$. Очевидно, что вероятность одновременного переворота спина электрона и ядра пропорциональна доле времени, в течение которого в КТ находится трион. Этим объясняется линейный рост B_N с увеличением накачки с последующим насыщением, когда доля времени, в течение которого в заряженной точке находится только один экситон, стремится к 100%.

В отрицательно заряженной КТ поляризация люминесценции определяется спином дырки, так как два электрона в основном состоянии триона образуют спиновый синглет. В то же время дырки практически не взаимодействуют с ядрами, поскольку их волновая функция обращается в нуль на узлах решетки. Поэтому взаимодействие с ядрами возможно только для электрона в невозбужденной точке. Наблюдаемая в данных структурах отрицательная поляризация излучения трионов при B=0 (см. рис. 3.5 (б)) означает, что при возбуждении $e \downarrow -h \Uparrow$ пар излучение происходит преимущественно за счет рекомбинации "перевернутых" $h \Downarrow$ дырок с электроном e^{\uparrow} , в результате чего в KT остаются преимущественно электроны со спином вниз $e \downarrow$. Как и в случае положительных точек, взаимодействие таких электронов с ядрами после рекомбинации триона приводит к возникновению отрицательного ядерного поля $B_N < 0$. Следует отметить, что в условиях, когда $\rho_c > 0$ [66], электрон, остающийся в KT, имеет спин, противоположный спину фотоэлектрона, и наблюдается противоположный знак ядерного поля для X^+ по сравнению с X^- . В исследуемых структурах $\rho_c < 0$ и ядерное поле имеет один знак для обоих типов заряженных КТ, что подтверждает

роль резидентного носителя в динамической ядерной поляризации в отрицательных точках. Поляризация электрона в КТ возможна, если интервал между последовательными фотовозбуждениями, обновляющими его спин, сравним или меньше времени спиновой релаксации. В этом случае увеличение накачки приводит к росту электронной поляризации и появлению ядерного поля (рис. 3.7). При насыщении заряженной КТ фотовозбужденным экситоном эффективность такого механизма должна уменьшаться изза уменьшения доли времени, которое точка проводит в состоянии с одним электроном. Однако, в эксперименте уменьшение ядерной поляризации с ростом накачки не наблюдается. По-видимому, это связано с компенсирующим влиянием обсуждаемого ниже дополнительного механизма ядерной поляризации, появляющегося при больших плотностях возбуждения и обусловленного электронами в смачивающем слое.

<u>В нейтральных КТ</u> оптическое возбуждение умеренной интенсивности не приводит к ядерной поляризации несмотря на то, что соотношение интенсивностей компонент в спектре люминесценции свидетельствует о высокой степени поляризации электронов (рис. 3.8). B_N остается незначительным в широком диапазоне магнитных полей независимо от поляризации накачки. Кроме того, было найдено, что вопреки теоретическому предсказанию [83], динамическая ядерная поляризация малоэффективна даже при $B_z \approx 2.5$ Тл, когда ожидается максимальное увеличение эффективности спин-флипа согласно уравнению (3.3) из-за уменьшения расщепление между уровнями с противоположными направлениями электронного спина $J_z = +1$ и $J_z = +2$.

Линейный рост ядерной поляризации с накачкой при большой интенсивности возбуждения ($P_{exc}\approx 250 \text{ мкBt}$), очевидно, не связан с эффектом от одиночных поляризованных экситонов в КТ. Как было показано ранее (см. рис. 3.6), возбуждение высокой плотности приводит не только к заполнению КТ, но и к последующему заполнению делокализованных состояний в смачивающем слое поляризованными носителями. Последние также могут приводить к накачке ядерных спинов. Однако, в отличие от заряженных

точек, где динамическая ядерная поляризация возникает лишь в ограниченном объеме KT, делокализованные электроны создают пространственно однородную ядерную поляризацию во всем двумерном слое InP. Следует предположить, что подобный механизм существует и для заряженных точек и дает свой вклад в ядерную поляризацию при больших P_{exc} наряду с прямой накачкой за счет носителей в KT, как было указано выше.

Неэффективность ядерной поляризации экситонами в нейтральных КТ связана с влиянием "темных" экситонных состояний. В однократно заряженных точках все состояния трионов дипольно активны. В то же время в нейтральных КТ существуют состояния экситона с проекцией полного момента $J_z=\pm 2$, оптическая рекомбинация которых сильно подавлена. Из-за длинного времени жизни КТ, захватившая "темный" экситон, может оставаться в данном состоянии значительную долю времени, что существенно замедляет динамику ядерной поляризации. Полное объяснение процессов динамической ядерной поляризации требует детального учета кинетики фотовозбуждения и рекомбинации электрон-дырочных пар, процессов релаксации между экситонными состояниями, а также различия вероятностей переворота ядерного спина в зависимости от спина экситона. Подробное рассмотрение данного вопроса выходит за рамки данной работы.

3.3. Обратная связь в системе электронных и ядерных спинов в квантовых точках InP/GaInP

Как уже было указано выше, скорость процесса динамической ядерной поляризации w_s зависит от величины электронного спинового расщепления согласно уравнению (3.3). Полное уравнение динамики ядерной поляризации B_N , учитывающее процессы релаксации, имеет вид [81,84]

$$\frac{dB_N}{dt} = -\frac{|A_N|^2 P}{\Delta E_e^2 + \gamma^2} (B_N - B_{N,0}) - \frac{B_N}{\tau_d},$$
(3.4)

где A_N — константа сверхтонкого взаимодействия, ΔE_e — электронное спиновое расщепление, γ — уширение электронных уровней, величина P — пропорциональна заполнению KT спин-поляризованными электронами (P растет с увеличением интенсивности оптической накачки P_{exc}). Равновесное значение ядерной поляризации $B_{N,0}$ определяется средним спином электронов, участвующих в динамической поляризации, второе слагаемое в правой части описывает релаксацию ядерной поляризации с характерным временем τ_d . Стационарные состояния электронно-ядерной системы описываются уравнением (3.4), в котором положено $dB_N/dt = 0$. Расщепление электронных уровней $\Delta E_e = \mu g_e(B_z + B_N)$, в свою очередь, зависит от ядерной поляризации B_N , поэтому (3.4) представляет собой нелинейности проявляется в магнитных полях, сравнимых с эффективным ядерным полем, когда компенсация ядерного и внешнего полей приводит к резонансному усилению динамической поляризации.

Экспериментальные зависимости ядерной поляризации в положительно заряженной квантовой точке от интенсивности накачки в магнитном поле $B_z=0.85$ Тл показаны на рисунке 3.9 для обеих циркулярных поляризаций возбуждающего лазера. В эксперименте мощность возбуждения пошагово изменялась в направлении уменьшения или увеличения (указано стрелками). Временной интервал между шагами накачки был достаточно длинным, чтобы ядерная поляризация достигала своего стационарного значения.

Как видно из рисунка 3.9, зависимость ядерного поля от накачки при двух поляризациях возбуждения имеет принципиально различный характер. При накачке σ^- светом возникает ядерное поле $B_N > 0$, которое складывается с внешним полем, увеличивая электронное расщепление, тем самым, уменьшая w_s и затрудняя дальнейшую накачку ядерной поляризации. Максимальное ядерное поле при этом не превышает 0.2 Тл. В случае σ^+ возбуждения ядерная поляризация зависит от предыстории изменения мощности возбуждения: при некоторых значениях P_{exc} может существо-



Рис. 3.9. Зависимости спектрального расщепления и соответствующего ядерного поля в положительно заряженной КТ N6 от накачки при возбуждении σ^+ (квадраты) и σ^- (треугольники) лазером в магнитном поле B_z =0.85 Тл. Сканирование мощности лазера происходило как в сторону уменьшения (открытые символы), так и в сторону увеличения (сплошные символы), направление также показано стрелками.

вать два устойчивых состояния. Такое явление, называемое ядерной спиновой бистабильностью [84], наблюдалось ранее в экспериментах по оптической динамической поляризации как в объемных полупроводниках [85,86], так и в квантовых точках InGaAs [29]. Этот эффект также обнаружен на образцах с квантовыми точками GaAs [33], исследуемых в данной работе.

Причиной ядерной спиновой бистабильности является сильная положительная обратная связь в системе электронных и ядерных спинов. Накачка σ^+ светом приводит к появлению отрицательного ядерного поля $B_N < 0$, которое ведет к уменьшению электронного расщепления и, следовательно, к усилению динамической ядерной поляризации. Вследствие резонансного характера зависимости w_s от ΔE_e , эффективность динамической поляризации достигает максимального значения при $B_N \sim -B_z$. При $B_z = 0.85$ Тл (см. рис. 3.9) максимальное ядерное поле $B_N \approx -1$ Тл несколько превышает по абсолютной величине внешнее магнитное поле.

Возникновение бистабильности может быть качественно понято на основании уравнения 3.4. В стационарных условиях $(dB_N/dt=0)$ данное уравнение удовлетворяется, когда скорость накачки поляризации (первое сла-



Рис. 3.10. Графическое решение уравнения (3.4). Скорость деполяризации ядерного спина как функция B_N изображена наклонной прямой, скорости динамической ядерной поляризации для различных мощностей оптической накачки $P_1 < P_2 < P_3$ показаны лоренцианами.

гаемое в правой части) сравнивается со скоростью затухания (второе слагаемое). Решения уравнения могут быть найдены графически, для этого на рисунке 3.10 построены графики абсолютных значений скоростей поляризации и деполяризации как функции ядерного поля (для простоты выбрано $B_N > 0$). Затуханию поляризации соответствует наклонная прямая линия. В приближении малых полей можно пренебречь множителем $(B_N - B_{N,0})$, ответственным за насыщение ядерного поля. Накачка, описываемая в этом случае кривыми Лоренца, показана для трех величин мощности оптического возбуждения $P_1 < P_2 < P_3$. На рис. 3.10 видно, что максимумы всех кривых достигаются при $B_N = -B_z$. Решения уравнения находятся как точки пересечения лоренцианов наклонной прямой (отмечены на рис. 3.10). В пределе малых накачек (P₁) существует лишь одно решение с малой величиной ядерной поляризации $|B_N| \ll |B_z|$. Аналогично, при большой накачке (P_3) возможно лишь одно решение с большой поляризацией $|B_N| > |B_z|$. При промежуточных значениях накачки (P₂) существует три решения, из которых одно неустойчивое (отмечено крестиком) и физически не реализуется. Два других решения соответствуют наблюдаемым в эксперименте двум ветвям зависимости от накачки при 1 мкВт< P_{exc} <30 мкВт (см. рис. 3.9).

Отметим, что в исследуемых структурах с КТ InP/GaInP компен-

сация электронного расщепления в состоянии с $|B_N| > |B_z|$ проявляется как увеличение спектрального расщепления триона, в то время как в KT InGaAs [29] в режиме бистабильности наблюдалось уменьшение расщепления. Такое отличие связано с противоположными знаками электронных g-факторов: в InP $g_e > 0$, в то время как в InGaAs $g_e < 0$. В результате электронное расщепление дает вклад различного знака в полное спектральное расщепление, и, соответственно, обнуление электронного расщепления эффективным ядерным полем также приводит к противоположному эффекту для двух типов полупроводников.

Измерения зависимости ядерного поля B_N от интенсивности циркулярного возбуждения P_{exc} , аналогичные тем, результаты которых показаны на рисунке 3.9, были повторены в широком диапазоне магнитных полей $B_z=0\div 8$ Тл как для положительно, так и для отрицательно заряженных точек. Для обоих типов заряженных КТ при накачке σ^+ светом в интервале полей $B_z\sim0.3\div1$ Тл наблюдается ядерная спиновая бистабильность, причем ширина петли гистерезиса и амплитуда скачка B_N сильно зависят от B_z и знака заряда КТ. Экспериментально было установлено, что независимо от величины B_z и знака поляризации/заряда КТ величина ядерного поля слабо меняется при $P_{exc}>70$ мкВт. В области существования бистабильности при таких накачках КТ может находиться лишь в состоянии $|B_N|>|B_z|$. В связи с этим, поле B_N , измеренное при накачке $P_{exc}=70$ мкВт, может служить мерой максимальной ядерной поляризации, достижимой при данном значении внешнего поля.

Зависимости ядерной поляризации от внешнего магнитного поля в положительно и отрицательно заряженных квантовых точках при возбуждении циркулярным светом в обеих поляризациях с высокой интенсивностью накачки $P_{exc}=70$ мкВт показаны на рис. 3.11. В обоих типах КТ оптическая накачка в нулевом магнитном поле приводит к возникновению ядерного поля $|B_N|\approx 0.2$ Тл [66]. Увеличение внешнего поля приводит к подавлению ядерной спиновой релаксации, вызванной диполь-дипольным взаимодействием. В результате максимально дости-



Рис. 3.11. Зависимость ядерной поляризации в отрицательно (а) и положительно (б) заряженных квантовых точках от внешнего магнитного поля при возбуждении σ^+ (квадраты, $B_N < 0$) и σ^- (кружки, $B_N > 0$) поляризованным лазером, с высокой мощностью $P_{exc} = 70$ мкВт.

жимая ядерная поляризация возрастает. При этом в случае интенсивного σ^+ возбуждения положительная обратная связь между B_N и скоростью динамической ядерной поляризации приводит к тому, что в диапазоне магнитных полей $B_z=0\div1.1$ Тл выполняется условие $-B_N>B_z$, и ядерное поле растет почти линейно по B_z . Наибольшее ядерное поле $|B_N|\approx1.2$ Тл, соответствующее степени ядерной поляризации $S_N\approx50\%$, достигается в диапазоне полей $B_z=1\div2.5$ Тл для X^- и $B_z=1\div4$ Тл для X^+ .

В случае σ^- накачки отрицательная обратная связь между B_N и w_s приводит к уменьшению абсолютной величины достижимого ядерного поля по сравнению со случаем σ^+ возбуждения. Как уже было показано ранее (см. рис. 3.9), при увеличении накачки P_{exc} от 0 до 70 мкВт, B_N в положительно заряженной КТ монотонно меняется от ~0 до ~0.3 Тл при B_z =0.85 Тл. Во внешнем магнитном поле $B_z \sim 1.5 \div 3.5$ Тл зависимость $B_N(P_{exc})$ в положительно заряженной КТ при σ^- возбуждении приобретает немонотонный характер. В отличие от поведения $B_N(P_{exc})$ при B_z =0.85 Тл, показанного на рис. 3.9, в этих полях первоначальный рост B_N сменяется уменьшением при $P_{exc}>20$ мкВт. Полное изменение ядерного поля в диапазоне накачек $0 < P_{exc} < 150$ мкВт при этих условия не превышает 0.1 Тл, и в зависимости от внешнего поля (рис. 3.11) наблюдается практически полное обнуление ядерной поляризации $B_N \sim 0$ при $B_z \sim 2.5$ Тл. Такой сложный вид

зависимости B_N от внешнего поля характерен только для положительно заряженных точек и не может быть объяснен в рамках качественной модели, изложенной выше. Полное описание процессов, определяющих равновесную ядерную поляризацию в положительно заряженных КТ, требует детального учета факторов, влияющих на скорость выстраивания ядерного спина, таких, например, как скорость спиновой релаксации дырок и зависимость вероятности спин-флипа от ядерного поля B_N .

В больших полях ($B_z>4$ Тл) изменение электронного расщепления ΔE_e за счет ядерной поляризации становится малым по сравнению с исходным зеемановским расщеплением. Механизм обратной связи, описанный выше, становится неэффективным, поскольку изменение B_N приводит лишь к незначительному изменению скорости поляризации w_s (см. уравнения (3.3, 3.4)). В результате с увеличением поля зависимость B_N от знака циркулярного возбуждения практически исчезает (рис. 3.11). Кроме того, с ростом зеемановского расщепления электрона увеличивается энергия, которую требуется скомпенсировать при одновременном перевороте ядерного и электронного спинов. Из-за этого вероятность спинфлипа уменьшается, и наблюдается уменьшение абсолютной величины достижимого ядерного поля с ростом B_z для обоих типов заряженных KT, независимо от знака циркулярного возбуждения (см. рис. 3.11).

Рассмотрим различия в процессах, происходящих в режиме бистабильности в положительно и отрицательно заряженных КТ. На рисунке 3.12 представлены результаты измерения зависимостей ядерного поля (а, б) и степени циркулярной поляризации ρ_c люминесценции (в, г) от интенсивности накачки σ^+ поляризованного лазера для X^- при $B_z=0.5$ Тл (а,в), и для X^+ при $B_z=0.85$ Тл (б,г). В обеих КТ наблюдается "переключение" ядерной поляризации между состояниями с $|B_N| \ll |B_z|$ и $|B_N| > |B_z|$, однако, зависимости степени поляризации от интенсивности накачки имеют различный характер. В отрицательной КТ "переключение" B_N сопровождается "переключением" ρ_c , в то время как степень поляризации в положительно заряженной точке неизменна в пределах экспериментальной погрешности (на графиках (в) и (г) масштаб шкалы ординат одинаковый).



Рис. 3.12. Зависимости спектрального расщепления (а, б) и степени циркулярной поляризации (в, г) от накачки при возбуждении σ^+ лазером в отрицательно (а, в) и положительно (б, г) заряженных квантовых точках в магнитном поле $B_z=0.5$ Тл и $B_z=0.85$ Тл, соответственно. Направление изменения мощности показано стрелками

Как было показано выше, состояние с большой величиной ядерной поляризации $|B_N|$ возникает благодаря росту скорости передачи спина от электронов к ядрам w_s при уменьшении электронного расщепления ΔE_e . Из рисунка 3.12 (в) видно, что в отрицательно заряженной КТ в состоянии с большой ядерной поляризацией ($|B_N| > |B_z|$) степень поляризации ФЛ $|\rho_c|$ на ~7% меньше, чем в состоянии с $|B_N| \ll |B_z|$. Уменьшение $|\rho_c|$ соответствует подавлению отрицательной циркулярной поляризации, непосредственно связанной со спиновой памятью резидентного электрона в КТ (см. раздел 3.1, стр. 50). Таким образом, наблюдаемое в отрицательно заряженной КТ уменьшение $|\rho_c|$ с ростом $|B_N|$ отражает ускорение деполяризации электрона из-за увеличении скорости передачи спина ядрам w_s .

Различие между поведением степени поляризации в положительно и отрицательно заряженных точках может быть понято, если учесть, что скорость электронно-ядерного спин-флип процесса, $1/\tau_{spin-flip}$ существенно меньше скорости рекомбинации триона в КТ, $1/\tau_r$. Влияние сверхтонкого

взаимодействия спинов ядер и электрона на степень поляризации излучения в положительно заряженных КТ, пропорциональное вероятности переворота ядра за время жизни триона, определяется соотношением $\tau_r/\tau_{spin-flip} \ll 1$. В случае же отрицательно заряженных точек время, в течение которого электрон может взаимодействовать с ядрами, определяется временем между фотовозбуждениями точки au_{exc} (при условии что это время меньше времени переворота спина электрона из-за взаимодействия с фононами, которое может превосходить 100 мкс [67]). В эксперименте, показанном на рисунке 3.12 (в), интенсивность фотовозбуждения ~10 мкВт мала по сравнению с интенсивностью насыщения данной отрицательно заряженной КТ ~ 100 мкВт, что соответствует $\tau_{exc} \approx 10 \tau_r$. В этих условиях в отрицательно заряженных КТ деполяризация электронов из-за взаимодействия с ядрами определяется соотношением $\tau_{exc}/\tau_{spin-flip}$, которое в ≈ 10 раз больше отношения $au_r/ au_{spin-flip}$, определяющего деполяризацию электрона в положительно заряженных KT, что и позволяет наблюдать бистабильное поведение степени циркулярной поляризации ρ_c в излучении X^- .

3.4. Выводы

В данной главе получены следующие результаты:

— Исследованы экситонные состояния в частично сформировавшихся квантовых точках InP/GaInP, выращенных методом эпитаксии из металлоорганического соединения. На основании результатов измерений магнитофотолюминесценции и эффекта Ханле идентифицированы нейтральные, положительно и отрицательно однократно заряженные одиночные КТ. Из измерений в различных конфигурациях магнитного поля определены параметры тонкой структуры в нейтральных КТ $\delta_0 \approx 200$ мкэВ, $|\delta_b| < 70$ мкэВ, а также значения констант диамагнитного сдвига и g-факторов.

— Экспериментально исследовано возникновение ядерной поляризации при оптическом возбуждении в КТ с различным зарядом. Найдено, что ядерная поляризация в КТ возникает за счет двух механизмов:

сверхтонкого взаимодействия ядер (i) с поляризованными электронами непосредственно в КТ (доминирует при малых плотностях накачки) и (ii) с делокализованными электронами в смачивающем слое (доминирует при высокой плотности накачки). Первый механизм эффективен лишь в заряженных КТ, причем накачка ядерного спина в положительно заряженных точках происходит в течение времени жизни фотовозбужденного электрона в трионе, а в отрицательно заряженных КТ — под влиянием спин-поляризованного резидентного электрона, остающегося после рекомбинации фотовозбужденной электрон-дырочной пары.

— Показано существование сильной обратной связи в системе электронных и ядерных спинов в КТ InP/GaInP, обусловленной влиянием ядерного поля на скорость динамической ядерной поляризации при оптическом возбуждении. Положительная обратная связь, возникающая при нерезонансной оптической накачке в заряженных точках в диапазоне внешних полей 0.3÷1 Тл, позволяет создавать высокую степень поляризации ядер в КТ, достигающую 50%. В этих условиях в определенной области накачек могут существовать два устойчивых состояния с различными величинами ядерной поляризации при одной мощности возбуждения. Эффект памяти, возникающий в режиме ядерной спиновой бистабильности, проявляется в гистерезисе зависимости поляризации ядер от плотности оптического возбуждения.

— В отрицательно заряженных точках компенсация внешнего поля эффективным ядерным полем приводит к ускорению релаксации спина резидентного электрона. В режиме ядерной спиновой бистабильности переход между состояниями с различным ядерным полем сопровождается изменением степени циркулярной поляризации фотолюминесценции на ~7%, что позволяет детектировать изменение ядерной поляризации в измерениях степени циркулярной поляризации. В положительно заряженных КТ влияние ядерного поля на степень поляризации ФЛ пренебрежимо мало из-за короткого времени жизни электронного спина в положительном трионе, не превышающего время электрон-дырочной рекомбинации.

Глава 4.

Ядерная спиновая поляризация в квантовых точках InP/GaInP при резонансном оптическом возбуждении

Резонансное возбуждение экситонов в отдельных квантовых точках является мощным средством манипуляции спинами индивидуальных носителей и исследования их когерентных свойств [43, 46, 65, 87–89]. Данный подход был использован для приготовления чистых спиновых состояний одиночных электронов и дырок в квантовой точке [46, 88], а также для подавления флуктуаций поляризации ядерных спинов [43, 65]. Наиболее распространенная в таких экспериментах методика состоит в измерении оптического поглощения одиночной КТ. Для этого под образцом с КТ помещается фотодетектор (фотодиод), с помощью которого измеряется интенсивность лазера прошедшего через образец как функция длины волны возбуждения. Поглощение в КТ, наблюдаемое как ослабление пропускания, свидетельствует о резонансе лазера и оптического перехода КТ, и позволяет исследовать структуру энергетических уровней носителей в КТ.

В настоящей работе используется иной метод детектирования взаимодействия одномодового лазера и квантовой точки. В отличие от спектроскопии поглощения, где измеряется интенсивность лазера, в данной работе использована методика "резонансная накачка/нерезонансное тестирование", в которой детектируются непосредственно энергии оптических переходов и величина ядерного поля как функции длины волны возбуждения (см. описание методики в разделе 2.4). В настоящей главе приведены результаты исследования влияния резонансного возбуждения на ядерную поляризацию в положительно заряженной квантовой точке InP/GaInP [34].

4.1. Общие свойства отклика ядерной спиновой поляризации на резонансное оптическое возбуждение экситонных переходов в квантовых точках InP/GaInP

Схема энергетических уровней в положительно заряженной КТ показана на рисунке 4.1 (a). Магнитное поле в геометрии Фарадея приводит к расщеплению спиновых уровней дырок $|h\uparrow\rangle$, $|h\downarrow\rangle$ и трионов $|e\uparrow h\downarrow h\uparrow\rangle$, $|e\downarrow h\downarrow h\uparrow \rangle$ (см. раздел 3.1). В соответствии с правилами отбора дипольно разрешены лишь два циркулярно поляризованных оптических перехода, показанных жирными стрелками на рис. 4.1 (a). Первоначальный тестовый эксперимент был выполнен в большом магнитном поле $B_z=4.1$ Тл, при котором зеемановские расщепления носителей велики, и энергии всех возможных переходов между состояниями дырки и триона превосходят спектральное уширение уровней (<10 мкэВ) при любом возможном значении В_N. В такой ситуации резонансный лазер может взаимодействовать лишь с одним переходом, что существенно упрощает интерпретацию результатов. Экспериментальные зависимости ядерного поля B_N от энергии лазера E_{laser} в поле $B_z=4.1$ Тл показаны на рисунке 4.1 (б) для различных мощностей и поляризаций резонансной накачки. В данном эксперименте E_{laser} сканировалась в области энергий, соответствующей энергии σ^+ -поляризованного перехода $|e \downarrow h \Downarrow h \Uparrow \rangle \leftrightarrow |h \Downarrow \rangle$, предварительно определенной из измерения спектра ФЛ при нерезонансном возбуждении.

Как видно из рисунка 4.1 (б), при нерезонансном возбуждении σ^+ -



Рис. 4.1. (а) Схема энергетических уровней положительно заряженной квантовой точки в магнитном поле в геометрии Фарадея. Разрешенные циркулярно поляризованные оптические переходы показаны жирными стрелками. (б) Эффект резонансного возбуждения σ^+ поляризованного оптического перехода при B_z =4.1 Тл. Ядерное поле показано как функция энергии одномодового лазера E_{laser} с мощность P_{res} =7 мкВт (σ^+ и σ^- возбуждение) и P_{res} =0.3 мкВт (только σ^+ возбуждение). Ось абсцисс смещена для удобства на константу E_0 =1.83882 эВ.

поляризованным одномодовым лазером малой мощности Pres=0.3 мкВт в квантовой точке наводится фоновая положительная ядерная поляризация $B_N \approx +0.1$ Тл. Ее возникновение связано с эффектом тестирующего лазера, поляризация которого (σ^- в данном случае) имезнак противоположный знаку поляризации лазера накачки, как ет описано в разделе 2.4. Попадание лазера в резонанс с переходом $|e\downarrow h\Downarrow h\Uparrow \rangle$ ф ри $E_{laser} \approx E_0 = 1.83882$ эВ приводит к динамической ядерной поляризации, наблюдаемой как узкий отрицательный пик в зависимости $B_N(E_{laser})$. Ширина пика составляет ≈ 10 мкэВ, что сопоставимо с шириной линии перехода ≈ 2 мкэВ, наблюдаемой в спектрах поглощения в одиночных КТ [88]. Увеличение мощности накачки σ^+ -поляризованным лазером до 7 мкВт приводит к увеличению амплитуды и уширению пика, при этом зависимость B_N от E_{laser} оказывается сильно асимметричной: плавное уменьшение B_N с ростом энергии лазера сменяется резким срывом при $E_{laser} - E_0 \approx 20$ мкэВ.

При возбуждении σ^- -поляризованным одномодовым лазером с боль-
шой мощностью (*P_{res}*=7 мкВт) фоновая поляризация, возбуждаемая нерезонансным лазером меняет знак. При этом изменение ядерного поля, связанное с резонансом, по прежнему отрицательное, $B_N < 0$, как и в случае σ^+ -поляризованного резонансного возбуждения. При возбуждении линейно поляризованным резонансным лазером также наблюдается отрицательный пик в зависимости B_N от E_{laser} . Таким образом, в отличие от нерезонансной накачки, знак B_N при резонансном возбуждении не зависит от поляризации лазера, а целиком определяется тем, с каким переходом в квантовой точке взаимодействует электромагнитное поле лазера. Взаимодействие σ^- возбуждения с σ^+ переходом в КТ запрещено правилами отбора в дипольном приближении, поэтому величина ядерного поля, наблюдаемого в резонансе, определяется интенсивностью σ^+ поляризованной компоненты в излучении лазера. Наблюдаемое в данном эксперимента изменение ядерного поля в резонансе с σ^- поляризованным лазером, по-видимому, связано с частичным искажением поляризации лазера при прохождении через апертуру в металлической маске с диаметром, меньшим длины световой волны. Возникающая при этом σ^+ компонента в излучении лазера мала: изменение B_N при σ^- возбуждении с $P_{res}=7$ мкВт сравнимо с изменением вызываемым σ^+ лазером со значительно меньшей накачкой $P_{res}=0.3$ мкВт.

Рассмотрим основные особенности кинетики выстраивания ядерных спинов в положительно заряженной KT InP/GaInP при резонансном оптическом возбуждении. Динамика ядерной поляризации при различных экспериментальных условиях будет подробно рассмотрена в главе 5, ниже приведены лишь основные особенности, существенные для методики резонансного возбуждения.

Кинетика ядерной поляризации изучалась с помощью методики "накачка-тестирование". Экспериментальный цикл состоит из последовательности трех лазерных импульсов: 1) сначала образец освещается длинным импульсом нерезонансного σ^- лазера, создающего поляризацию $B_N \approx +0.3$ Тл не зависимо от величины ядерного поля до начала этого импульса, 2) далее ядерная поляризация накачивается импульсом длительно-



Рис. 4.2. Динамика выстраивания ядерных спинов в положительно заряженной точке при оптической накачке в магнитном поле $B_z=4.1$ Тл. Квадратами показана экспериментальная зависимость B_N от времени накачки резонансным σ^+ лазером с мощностью $P_{res}=7$ мкВт и энергией E_{laser} - $E_0\approx15$ мкэВ (см. рис. 4.1). Треугольниками показана динамика ядерной спиновой поляризации в идентичных условиях, но при накачке нерезонансным σ^+ лазером. Сплошные линии соответствуют наилучшей аппроксимации эксперимента экспоненциальными зависимостями с временем релаксации $\tau\approx10.5$ с (1.75 с) для резонансной (нерезонансной) накачки.

стью t_{pump} резонансного σ^+ лазера с мощностью $P_{res}=7$ мкВт и с фиксированной энергией квантов света, приблизительно соответствующей максимуму $|B_N|$ (E_{laser} - $E_0\approx15$ мкэВ для случая, показанного на рис. 4.1), 3) после этого короткий импульс нерезонансного лазера возбуждает ФЛ квантовой точки, спектр которой используется для тестирования ядерного поля, созданного резонансным возбуждением. Зависимость B_N от t_{pump} , измеренная таким способом в тех же условиях, что и для эксперимента на рис. 4.1, показана символами на рис. 4.2. На этом же рисунке представлена динамика, измеренная в идентичных условиях, но с заменой резонансной накачки на возбуждение нерезонансным σ^+ -поляризованным лазером, дающим приблизительно равное значение $B_N\approx-0.5$ Тл в стационарном состоянии.

Экспериментальные зависимости B_N от t_{pump} хорошо аппроксимируются экспоненциальными кривыми с временем установления ядерной поляризации $\tau \approx 10.5$ с (1.75 с) при резонансной (нерезонансной) накачке. В

типичных экспериментах по резонансной спектроскопии квантовых точек, результаты которых приведены ниже, длина волны лазера пошагово менялась в сторону увеличения либо в сторону уменьшения. Спектр люминесценции КТ регистрировался в течение t_{exp} =45 сек, при этом для каждого значения длины волны делалось 4 экспозиции. Поскольку $t_{exp} > \tau$, значение B_N , полученное из усреднения трех последних измерений, с хорошей точностью дает оценку стационарной ядерной поляризации при заданном значении E_{laser} . Из результатов измерения ядерной динамики при нерезонансном возбуждении, длительность тестирующего импульса для экспериментов в большом магнитном поле была выбрана равной t_{probe} =8 мс, что намного меньше τ и, следовательно, позволяет избежать изменения B_N во время детектирования (см. раздел 2.4). Из аналогичных измерений длительность тестирующего импульса для экспериментов в нулевом поле была выбрана равной t_{probe} =0.5 мс.

4.2. Эффект Оверхаузера и оптический "солидэффект" при резонансном возбуждении квантовых точкек InP/GaInP

На рисунке 4.3 представлены результаты эксперимента по резонансной накачке ядерных спинов в положительно заряженной КТ в магнитном поле B_z =2.5 Тл. В данном эксперименте измерялись как ядерное поле, так и энергии оптических переходов в КТ. Символами на рисунке 4.3 (в) показаны энергии обеих компонент спектрального дублета X^+ как функции энергии излучения σ^+ поляризованного лазера с большой мощностью P_{res} =15 мкВт. Кроме того, на графике проведена сплошная прямая линия единичного наклона, соответствующая энергии самого лазера: расстояние по оси ординат между экспериментальными точками и этой прямой дает разницу энергий соответствующего оптического перехода в КТ и лазера. Величина ядерного поля B_N , рассчитанная из спектрального расщепления компонент на рисунке 4.3 (в), показана символами на рисунке 4.3 (б). Как и в предыдущем эксперименте (рис. 4.1 (б), поле B_z =4.1 Тл), при малой энергии квантов света лазера ($E_{laser}-E_0$ <-70 мкэВ) наблюдается лишь незначительное ядерное поле, а увеличение E_{laser} приводит к постепенному нарастанию отрицательной ядерной поляризации. Наибольшая величина ядерного поля $B_N \approx -0.6$ Тл достигается, при $E_{laser}-E_0 \approx 10$ мкэВ. Из графика 4.3 (в) видно, что при этом лазер оказывается практически в точном резонансе с σ^+ -поляризованным оптическим переходом КТ. При дальнейшем увеличении E_{laser} наблюдается "срыв" ядерной поляризации: $|B_N|$ резко уменьшается до ≈ 0.2 Тл, с последующим плавным спадом до нуля.

При увеличении энергии квантов лазера до $E_{laser} - E_0 \approx 160$ мкэВ наблюдается еще один резкий скачок отрицательной ядерной поляризации, сменяемый плавным уменьшением $|B_N|$ до нуля при дальнейшем увеличении E_{laser} . Как видно из рисунка 4.3 (в), дополнительный пик в спектре B_N возникает при энергиях, существенно превышающих энергии обеих компонент дублета, наблюдаемых в спектре люминесценции, и, следовательно, не может быть связан с резонансным возбуждением разрешенных оптических переходов в КТ. Отметим, что абсолютная величина ядерного поля, наблюдаемая в высокоэнергетическом пике $|B_N| \approx 1.5$ Тл, в несколько раз превышает величину поля для пика, соответствующего возбуждению σ^+ поляризованного перехода КТ. Оба пика имеют асимметричную форму, однако асимметрия имеет различный знак: в низкоэнергетическом пике скачок происходит со стороны бо́льших энергий, в то время как в высокоэнергетическом пике — со стороны меньших энергий.

Возникновение дополнительного пика следует приписать возбуждению дипольно-запрещенного перехода, показанного тонкой стрелкой на рис. 4.1 (а). Данный переход не наблюдается в спектре ФЛ, тем не менее его энергия при $B_N \approx 0$ может быть определена из спектров резонансной накачки ядерных спинов. На рисунке 4.3 (а) показана зависимость B_N от E_{laser} при низкой мощности накачки $P_{res}=220$ нВт ($P_{res}=65$ нВт) для низкоэнергетического (высокоэнергетического) пика. Наблюдаемые узкие



Рис. 4.3. Эффект резонансного оптического возбуждения положительно заряженной КТ при $B_z=2.5$ Тл. (а) Зависимость ядерного поля от энергии квантов света лазера E_{laser} при малой мощности накачки $P_{res}=220$ нВт и $P_{res}=65$ нВт для низкоэнергетической и высокоэнергетической областей, соответственно. (в) Зависимости энергий люминесценции E_{PL} обеих компонент спектрального дублета квантовой точки от энергии одномодового лазера (символы) при мощности накачки $P_{res}=15$ мкВт. Сплошная линия - прямая единичного наклона, изображающая энергию лазера. Величина ядерного поля, рассчитанная из спектрального расщепления показана на рисунке (б).

отрицательные пики позволяют определить энергии разрешенного и запрещенного переходов в КТ. Расщепление между пиками $\Delta E \approx 230$ мкэВ находится в хорошем согласии с величиной электронного спинового расщепления $\mu_B g_e B_z = 232$ мкэВ в магнитном поле $B_z = 2.5$ Тл, равенство $\Delta E \approx \mu_B g_e B_z$ хорошо выполняется в широком диапазоне полей $B_z = 1 \div 8$ Тл.

Качественно процесс поглощения фотона при возбуждении запрещенного перехода может быть представлен следующим образом: поглощение фотона σ^+ -поляризованного резонансного лазера ($e\downarrow$ - $h\uparrow$ пара) квантовой точкой, содержащей дырку со спином вниз $|h\Downarrow\rangle$, приводит к образованию триона с электронным спином вверх $|h\Downarrow\rangle+(e\downarrow-h\uparrow)\rightarrow|e\uparrow h\Downarrow h\uparrow\rangle$, а различие в электронных спинах компенсируется одновременным изменением проекции ядерного спина $|I_z + 1\rangle \rightarrow |I_z\rangle$. Схожий процесс, приводящий к динамической ядерной накачке — "солидэффект" хорошо известен для твердых тел, содержащих магнитные примеси [38] (параграф 1.1.3). Данный эффект состоит в перекачке спиновой поляризации от электронов к ядрам при возбуждении дипольнозапрещенного перехода в электронном спиновом резонансе. Наблюдаемое в данной работе возникновение ядерного поля при накачке запрещенного перехода можно по аналогии назвать "оптическим солид-эффектом" [62] (далее для краткости обозначается SE).

Процесс, связанный с возникновением ядерной поляризации при резонансном возбуждении дипольно-разрешенного перехода, аналогичен классическому эффекту Оверхаузера, в котором радиочастотное излучение используется для манипуляции заселенностью электронных уровней. В связи с этим термин "эффект Оверхаузера" (ОЕ) будет использован далее для наблюдаемого в данной работе процесса накачки ядерных спинов при возбуждении разрешенных оптических переходов в КТ. Подробное рассмотрение обоих процессов резонансной накачки ядерных спинов в КТ будет дано в следующем разделе 4.3.

Резонансное возбуждение ядерной поляризации в положительно заряженных КТ оказывается возможным и в отсутствие внешнего магнитного поля. Результаты соответствующего эксперимента при возбуждении σ^+ поляризованным лазером с большой мощностью $P_{res}=15$ мкВт представлены на рисунке 4.4. Как и в случае конечного магнитного поля, были измерены энергии оптических переходов (рис. 4.4 (б)) и соответствующая величина ядерного поля (рис. 4.4 (а)). Абсолютная величина ядерной поляризации, возникающей при оптическом возбуждении в отсутствие внешнего поля, оказывается намного меньше, чем в случае большого поля, из-за быстрой релаксации, связанной с диполь-дипольным взаимодействием при B=0. В

свою очередь, малым оказывается и Оверхаузеровский сдвиг уровней трионов. Как следствие, величина спектрального сдвига линий ФЛ за счет B_N оказывается сравнимой с величиной случайного спектрального дрейфа, вызванного флуктуациями зарядов в окрестности исследуемой КТ [90]. Меняющееся электрическое поле приводит лишь к медленному сдвигу средней энергии люминесценции на величину порядка 10 мкэВ (рис. 4.4 (б)), в то время как ее расщепление и ядерное поле B_N , не подвержены влиянию зарядов и могут быть измерены с хорошей точностью (рис. 4.4 (а)).



Рис. 4.4. Эффект резонансного оптического возбуждения положительно заряженной КТ при B=0 Тл. (б) Зависимости энергий люминесценции E_{PL} обеих компонент спектрального дублета квантовой точки от энергии квантов света одномодового лазера (символы) при мощности накачки $P_{res}=15$ мкВт. Сплошная линия — прямая единичного наклона, изображающая энергию лазера. Величина ядерного поля, рассчитанная из спектрального расщепления, показана на рисунке (а).

Зависимость ядерной поляризации от энергии лазера, показанная на рисунке 4.4 (a) для случая B=0 Тл, имеет сильно ассиметричную форму, как и в случае $B_z=2.5$ Тл. Резкий скачок ядерного поля с -0.35 Тл до -0.1 Тл наблюдается при E_{laser} - $E_0\approx5$ мкэВ, при этом, как видно из графика 4.4 (б), σ^+ поляризованный лазер оказывается в точном резонансе с σ^- поляризованным оптическим переходом. В то же время точный резонанс с σ^+ переходом КТ при E_{laser} - $E_0 \approx 40$ мкэВ не сопровождается, существенным изменением B_N . Этот неожиданный результат может быть качественно понят, если учесть, что в отсутствие внешнего поля дырочные уровни не расщеплены, а спектральное расщепление, наблюдаемое в спектре ФЛ, происходит только из-за расщепления трионных уровней, вызванного ядерным полем. В таком случае энергия разрешенного σ^- перехода КТ совпадает с энергией дипольно-запрещенного перехода (см. рис. 4.1(a)). Возбуждение такого запрещенного перехода, как было показано выше для случая ненулевого поля, приводит к солид-эффекту. Таким образом, достижение наибольшей поляризации $B_N \approx -0.35$ Тл именно при резонансе лазера с кросс-поляризованным переходом свидетельствует о том, что солидэффект доминирует над эффектом Оверхаузера в КТ в нулевом магнитном поле. Стоит также отметить, что форма спектра B_N , совпадает с формой для SE в ненулевом поле: резкое изменение ядерного поля происходит со стороны низких энергий.

4.3. Теоретическая модель

Рассмотрим механизмы возникновения ядерной поляризации при резонансной оптической накачке положительно заряженной КТ, схема энергетических уровней которой во внешнем магнитном поле показана на рисунке 4.5. Квантовая точка содержит порядка 10⁴-10⁵ ядерных спинов, поэтому выстраивание значительной доли ядер в одном направлении требует большого количества циклов оптического возбуждения. Возбуждение одного из оптически разрешенных переходов (вертикальные жирные стрелки на рис. 4.5) с последующей спонтанной или индуцированной рекомбинацией триона через тот же переход происходят с сохранением спина и поэтому не могут приводить к динамической накачке ядерной поляризации. Возникновение последней требует процесса с одновременным переворотом спина электрона и спина ядра. Зеемановское расщепление ядра пренебрежимо



Рис. 4.5. Схема энергетических уровней положительно заряженной квантовой точки в магнитном поле в геометрии Фарадея. Разрешенные циркулярно поляризованные оптические переходы показаны жирными стрелками. Тонкие стрелки соответствуют запрещенным переходам, которые становятся слабо разрешенными под влиянием сверхтонкого взаимодействия. Стрелка с коротким пунктиром изображает релаксацию дырочного спина.

мало по сравнению с расщеплением электрона, поэтому одновременный переворот спинов требует компенсации энергии $\mu_B g_e B_z \approx 0.1 \text{ мэB/Tл}$. Такая компенсация может происходить с участием одного или нескольких фононов. Так, например, переворот электронного спина за время жизни триона $|e\downarrow h \Downarrow h \Uparrow, I_z + 1 \rangle \rightarrow |e\uparrow h \Downarrow h \Uparrow, I_z \rangle$ с одновременным изменением спина ядра I_z должен сопровождаться поглощением энергии $\mu_B g_e B_z$ из теплового резервуара. Малость требуемой энергии фонона при используемых в эксперименте величинах магнитного поля означает большую длину волны акустических колебаний, превосходящую размеры КТ, что существенно уменьшает эффективность взаимодействия с колебаниями решетки. Поэтому следует ожидать, что ядерная поляризация с участием фононов несущественна.

Альтернативный механизм компенсации зеемановской энергии при электронно-ядерном спин-флипе, который слабо зависит от температуры и магнитного поля, заключается в возбуждении или рекомбинации через запрещенные переходы (тонкие стрелки на рис. 4.5). В случае разрешенных переходов разница проекций орбитального момента носителей на ось Oz в начальном и конечном состояниях $\Delta l_z = \pm 1$ компенсируется излучаемым/поглощаемым фотоном, тогда как проекция спинового момента неизменна $\Delta s_z = 0$. В то же время для обоих запрещенных переходов $\Delta l_z = \Delta s_z = \pm 1$ и, следовательно, они невозможны в дипольном приближении. Накачка ядерного спина через запрещенные переходы возможна в результате процесса второго порядка: излучение/поглощение фотона, обеспечивающее сохранение орбитального момента Δl_z , происходит одновременно с переворотом спина ядра, компенсирующим разницу Δs_z . Возникновение ненулевой вероятности излучения/поглощения для запрещенных переходов может быть также описано, как результат подмешивания электронных спиновых состояний сверхтонким взаимодействием, под влиянием которого волновые функции трионов принимают вид $|h \Downarrow h \Uparrow e \downarrow \rangle + \alpha |h \Downarrow h \Uparrow e \uparrow \rangle$ и $|h \Downarrow h \Uparrow e^{\uparrow} - \alpha |h \Downarrow h \Uparrow e^{\downarrow} \rangle$ [91]. Запрещенные переходы становятся частично разрешенными в циркулярных поляризациях, как показано на рис. 4.5. Дипольный момент для таких переходов равен моменту для разрешенных переходов с множителем α^2 .

Смешивание трионных волновых функций определяется недиагональной частью $A_N(s_x I_x + s_y I_y)$ сверхтонкого взаимодействия электронного (\vec{s}) и ядерного (\vec{I}) спинов, просуммированной по всем ядрам в КТ. Спины ядер имеют случайные направления в плоскости перпендикулярной оси Oz, поэтому их суммарный эффект определяется статистическими флуктуациями поперечного ядерного поля $\delta B_{N,\perp}$ [20]. Смешивание волновых функций можно выразить через среднеквадратичную величину флуктуаций и расщепление трионных уровней $E_{\uparrow \uparrow \downarrow} - E_{\downarrow \uparrow \downarrow} = \mu_B g_e (B_z + B_N)$:

$$\alpha = \mu_B g_e \langle \delta B_{N,\perp}^2 \rangle^{1/2} / |E_{\uparrow \uparrow \downarrow \downarrow} - E_{\downarrow \uparrow \downarrow \downarrow}| = \langle \delta B_{N,\perp}^2 \rangle^{1/2} / |B_z + B_N|.$$
(4.1)

Для квантовой точки, содержащей порядка $N \approx 10^5$ ядер, амплитуда флуктуаций составляет $\mu_B g_e \langle \delta B_N^2 \rangle^{1/2} = \mu_B g_e B_{N,max} / \sqrt{N} \approx 1$ мкэВ, где $B_{N,max}$ ядерное поле, соответствующее полностью поляризованным ядерным спинам (в InP $\mu_B g_e B_{N,max} \approx 230$ мкэВ [80]). Таким образом, смешивание мало даже в нулевом поле, поскольку наблюдаемое спектральное расщепление, равное электронному расщеплению $\mu_B g_e B_N$, превосходит 10 мкэВ (см. рис. 4.4). Поэтому приближение $\alpha \ll 1$ остается всегда справедливо.

Появление дипольного момента у запрещенных переходов может быть связано не только со сверхтонким взаимодействием. Такой же эффект даст компонента внешнего магнитного поля B_{\perp} , перпендикулярная Oz, поскольку она также приведет к смешиванию трионных состояний. Аналогично, подмешивание состояний легкой дырки (lh) к состояниям тяжелой дырки (hh) из-за асимметричных напряжений и деформаций [59], должно приводить к ненулевой вероятности рекомбинации или оптического возбуждения трионов через запрещенные переходы. Однако переходы, вызванные такими механизмами, не приводят к накачке ядерных спинов, а, напротив, конкурируют с описанным выше процессом второго порядка, обеспечивающим переворот спина ядра.

Суммарную величину смешивания α , вызванную всеми механизмами, можно оценить из нерезонансного спектра люминесценции КТ, в котором должны наблюдаться слабые запрещенные линии с энергиями $E_0 \pm \mu_B(g_h + g_e)B_z/2$, отличными от энергий разрешенных линий $E_0 \pm \mu_B (g_h - g_e) B_z / 2$ (см. уравнения 3.2). Спектр люминесценции с длительной экспозицией (высоким отношением сигнал/шум) был измерен в максимальном магнитном поле $B_z=8$ Тл, чтобы добиться наибольшего спектрального разделения слабых запрещенных и интенсивных разрешенных линий. Тем не менее запрещенные линии в спектре ФЛ наблюдать не удалось. Это позволяет дать лишь верхнюю оценку величине подмешивания $\alpha^2 < 1/3000$ исходя из интенсивности разрешенных линий и соотношения сигнал/шум характеризующего спектральную установку. Малость полной величины смешивания означает малость эффекта поля в плоскости B_{\perp} , *lh-hh* смешивания и других паразитных эффектов, и позволяет пренебречь ими, поэтому в дальнейшем будет принято, что α обусловлена лишь сверхтонким взаимодействием.

При возбуждении σ^+ поляризованным резонансным светом, использованном в эксперименте, результаты которого показаны на рисунке 4.3,

может существовать два циклических процесса, приводящих к накачке ядерных спинов. Оба процесса начинаются из основного состояния квантовой точки с дыркой со спином вниз $|h\Downarrow\rangle$ и происходят с участием запрещенных переходов.

1) Первый цикл, связанный с эффектом Оверхаузера (OE), состоит из трех этапов: (i) возбуждение лазером трионного состояния $|e\downarrow h\Downarrow h\uparrow \rangle$ через оптически разрешенный σ^+ переход (сплошная жирная стрелка на рис. 4.3), (ii) рекомбинация триона через запрещенный переход в состояние с дыркой вверх $h\uparrow \rangle$ (сплошная тонкая стрелка), (iii) релаксация дырки в исходное состояние $h\Downarrow \rangle$ (стрелка с коротким пунктиром).

2) Второй цикл, связанный с солид-эффектом (SE), также состоит из трех этапов: (i) возбуждение лазером трионного состояния $|e\uparrow h \Downarrow h \Uparrow \rangle$ через запрещенный переход (пунктирная тонкая стрелка на рис. 4.3), (ii) рекомбинация триона через разрешенный σ^- переход в состояние с дыркой вверх $|h \Uparrow \rangle$ (пунктирная жирная стрелка), (iii) и, наконец, релаксация дырки в исходное состояние.

Каждый из этих циклов приводит к изменению проекции ядерного спина вдоль оси Oz на -1. Матричный элемент возбуждения в ОЕ процессе равен Раби частоте $\Omega_R \sim \sqrt{P_{res}}$, где P_{res} — мощность резонансного возбуждения. В случае же SE цикла матричный элемент возбуждения запрещенного перехода $\Omega_R^{SE} = \alpha \Omega_R$ сильно уменьшен за счет множителя α . С другой стороны, вероятность рекомбинации триона, приводящей к перевороту ядерного спина, составляет $\alpha^2 \tau_r^{-1}$ для OE, и τ_r^{-1} для SE, где τ_r — время спонтанной рекомбинации триона через дипольно разрешенный переход. Для вычисления скорости поляризации ядер W_{pump} сделаем упрощающее предположение о малости времени дырочной релаксации τ_h , присутствующей в обоих процессах, т. е. положим $\tau_h \ll \tau_r$. Обоснованность такого предположения будет выяснена ниже при обсуждении экспериментальных результатов в разделе 4.5. Такое предположение позволяет исключить из рассмотрения промежуточное дырочное состояние $|h\uparrow\rangle$ (см. рис. 4.3), и для каждого из циклических процессов рассматривать квантовую точку как



Рис. 4.6. Зависимость суммарной скорости накачки ядер $|W_{OE}+W_{SE}|$, нормированной на τ_r^{-1} , от энергии лазера, рассчитанная в соответствии с уравнениями 4.2 для различных величин накачки $\Omega_R \tau^*$ при $B_N=0$. В расчете использованы следующие значения параметров: $\alpha=1/100, E_{\downarrow\uparrow\downarrow}-E_{\downarrow}=0, E_{\uparrow\uparrow\downarrow}-E_{\downarrow}=250$ мкэВ, $\hbar/\tau^*=1$ мкэВ.

двухуровневую систему. В этом случае W_{pump} можно представить в виде произведения вероятности заселения соответствующего фотовозбужденного состояния ($|e\downarrow h\downarrow h\uparrow\uparrow\rangle$ для ОЕ и $|e\uparrow h\downarrow h\uparrow\uparrow\rangle$ для SE) на вероятность рекомбинации, приводящей к ядерной поляризации (через запрещенный переход для случая ОЕ и через разрешенный для SE). Средняя заселенность верхнего уровня при оптическом возбуждении дается известным выражением для задачи резонансной флуоресценции двухуровневого атома [92]. В результате для скорости поляризации ядер получаются следующие формулы:

$$W_{OE} = -(\alpha^{2}\tau_{r}^{-1}) \cdot \frac{(\tau^{*}\Omega_{R})^{2}/2}{1 + (\tau^{*}\Omega_{R})^{2} + (E_{\downarrow\uparrow\downarrow\downarrow} - E_{\downarrow\downarrow} - E_{laser})^{2}\tau^{*2}\hbar^{-2}}$$
$$W_{SE} = -(\tau_{r}^{-1}) \cdot \frac{(\alpha\tau^{*}\Omega_{R})^{2}/2}{1 + (\alpha\tau^{*}\Omega_{R})^{2} + (E_{\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow} - E_{\downarrow\downarrow} - E_{laser})^{2}\tau^{*2}\hbar^{-2}}, \quad (4.2)$$

где $\tau^* < \tau_r$ — время, описывающее уширение уровней трионов как за счет спонтанной рекомбинации, так и за счет релаксации электронного спина и других процессов. Полная скорость накачки ядерных спинов равна сумме скоростей двух процессов $W_{pump} = W_{OE} + W_{SE}$.

Рассмотрим общие свойства выражений (4.2), для чего обратимся к рисунку 4.6, на котором изображена суммарная скорость накачки ядер

 $|W_{OE}+W_{SE}|$ в зависимости от энергии резонансного лазера E_{laser} для различных величин интенсивности накачки $\Omega_R \tau^*$ в отсутствие ядерного поля $B_N{=}0$. В расчете было положено $\alpha{=}1/100, \ \hbar/\tau^*{=}1$ мкэВ, а энергии переходов KT выбраны равными $E_{\downarrow \uparrow \downarrow} - E_{\downarrow} = 0$ для OE процесса, и $E_{\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow}-E_{\downarrow}=250$ мкэВ для SE процесса (здесь вычтена константа, примерно равная ширине запрещенной зоны в КТ). При низкой интенсивности лазера ($\Omega_R \tau^* \ll 1$) спектр $|W_{pump}|$ состоит из двух идентичных пиков, соответствующих двум циклическим процессам, описанным выше. Рост накачки до $\Omega_R \tau^* > 1$ вызывает насыщение возбуждения через разрешенный оптический переход, используемый в ОЕ процессе, и приводит к равной заселенности состояний $|e\downarrow h \Downarrow h \Uparrow \rangle$ и $|h \Downarrow \rangle$. В результате пик, соответствующий ОЕ процессу, уширяется, а скорость поляризации ядер достигает своего максимального значения $W_{OE}^{max} = \alpha^2 \tau_r^{-1}/2$. В случае солид-эффекта, из-за малой вероятности запрещенного перехода насыщение и уширение соответствующего пика происходят при значительно большей накачке ($\alpha \Omega_R \tau^* > 1$), чем для OE, а предельная скорость накачки ядер достигает $W_{SE}^{max} = \tau_r^{-1}/2$. Зависимость | W_{pump} | от накачки для каждого из процессов при точном резонансе лазера с соответствующим переходом в КТ показана на рисунке 4.7 для того же значения $\alpha = 1/100$, что и на рис. 4.6. Из рисунка видно, что при высокой мощности оптического возбуждения эффективность солид-эффекта может существенно превосходить эффективность процесса Оверхаузера.

Стационарное значение ядерной поляризации при резонансном возбуждении определяется балансом скорости накачки W_{pump} и скорости деполяризации, определяемой спин-решеточной релаксацией и спиновой диффузией. Уравнение баланса имеет вид

$$W_{OE}(B_N, E_{laser}) + W_{SE}(B_N, E_{laser}) = \gamma N \frac{B_N}{B_{N,max}},$$
(4.3)

где γ — коэффициент, описывающий скорость деполяризации ядер, N — число ядер в КТ, $B_{N,max}$ — ядерное поле, соответствующее 100% поляризации ядерных спинов (для InP $\mu g_e B_{N,max}$ =230 мкэВ [80]). Скорости поляри-



Рис. 4.7. Зависимость скорости поляризации ядер, нормированной на τ_r^{-1} , от накачки $\Omega_R \tau^*$ для двух резонансных процессов $|W_{OE}|$ и $|W_{SE}|$. Расчет сделан в соответствии с уравнениями (4.2) для случая точного резонанса лазера с соответствующим переходом при $\alpha = 1/100$.

зации W_{OE} и W_{SE} зависят от ядерного поля через зависимость от энергий соответствующих трионных уровней $E_{\downarrow \uparrow \downarrow \downarrow}$ и $E_{\uparrow \uparrow \downarrow \downarrow}$, в результате выражение (4.3) с учетом (4.1, 4.2) становится нелинейным алгебраическим уравнением относительно B_N , в котором энергия лазера E_{laser} является параметром.

4.4. Сравнение расчетов с экспериментом

Нелинейное уравнение (4.3) решалось численно, при этом значения параметров, входящих в выражения (4.1-4.3), подбирались так, чтобы минимизировать отклонение расчетной зависимости $B_N(E_{laser})$ от экспериментальной. Подгоночными параметрами были уширение \hbar/τ^* , накачка $\Omega_R \tau^*$, скорость деполяризации $\tau_r \gamma N$ и величина ядерной флуктуации $\mu_B g_e \langle \delta B_{N,\perp}^2 \rangle^{1/2}$. Результаты расчета для эксперимента, выполненного в магнитном поле $B_z=2.5$ Тл при большой интенсивности накачки $P_{res}=15$ мкВт (см. рис. 4.3), показаны на рисунке 4.8. Там же для сравнения приведена соответствующая экспериментальная зависимость величины ядерного поля $B_N(E_{laser})$. Для теоретической кривой были использованы следующие значения параметров: $\hbar/\tau^*\approx5.5$ мкэВ, $\Omega_R\tau^*\approx3.5$, $\tau_r\gamma N\approx7.5\cdot10^{-5}$ и $\mu_B g_e \langle \delta B_{N,\perp}^2 \rangle^{1/2}\approx1.05$ мкэВ. Величина уширения $\tau^*\approx120$ пс, использованы ная в расчете, меньше экспериментального значения $\tau_r \approx 1$ нс и находится в качественном согласии с величиной $T_s \approx 220$ пс, полученной из измерения эффекта Ханле (см. раздел 3.1).



Рис. 4.8. Расчет эффекта σ^+ -поляризованного резонансного оптического возбуждения в положительно заряженной КТ при $B_z=2.5$ Тл с использованием уравнения (4.3). Символами на рисунке (б) показаны зависимости энергий люминесценции E_{PL} обеих компонент спектрального дублета квантовой точки от энергии возбуждающего одномодового лазера. Сплошная линия на рисунке (б) — прямая единичного наклона, изображающая энергию лазера. Величина ядерного поля, рассчитанная из данных на рисунке (б), показана на рисунке (а) сплошными линиями. Стабильные (метастабильные) решения уравнения (4.3) показаны кружками (крестиками) на рисунке (б) и тонкими (жирными) линиями на рисунке (а). Символами на рисунке (а) для сравнения показан результат эксперимента (см. рис. 4.3).

Расчет находится в хорошем согласии с экспериментальной зависимостью и воспроизводит все ее характерные особенности. Как и в эксперименте, рассчитанный спектр B_N состоит из двух пиков с противоположными знаками асимметрии, которые могут быть сопоставлены двум процессам ядерной поляризации (ОЕ и SE). Как и в эксперименте, скачок ядерной поляризации, наблюдаемый при возбуждении разрешенного перехода ($E_{laser}-E_0\approx15$ мкэВ), происходит при точном резонансе лазера и соответствующего разрешенного перехода в КТ (ср. рисунки 4.3 (в) и 4.8 (б)). Отметим, что найденное из аппроксимации значение $\Omega_R \tau^* \approx 3.5$ соответствует режиму большой накачки ($\Omega_R \tau^* > 1$), что объясняет бо́льшую величину $|B_N|$ в случае солид-эффекта по сравнению с эффектом Оверхаузера (см. рис. 4.7).

При некоторых значениях E_{laser} уравнение (4.3) имеет несколько решений. Часть этих корней неустойчива, и они не показаны на рисунке 4.8, однако возможна ситуация, когда существует несколько устойчивых решений при одном E_{laser} . Устойчивые решения с бо́льшей величиной $|B_N|$ являются метастабильными, они показаны крестиками и жирными линями на рис. 4.8. Как и в случае нерезонансного возбуждения (см. раздел 3.3), существование нескольких устойчивых решений должно приводить к явлению бистабильности.

Подробная зависимость ядерной поляризации от энергии лазера при возбуждении запрещенного перехода, полученная в тех же экспериментальных условиях, что и на рис. 4.3, показана на рис. 4.9. Энергия лазера сканировалась в сторону уменьшения и в сторону увеличения (показано стрелками). Как и при нерезонансном возбуждении, в зависимости B_N наблюдается широкая петля гистерезиса в области значений E_{laser} , где теория предсказывает существование метастабильных состояний. Из решения уравнения 4.3 следует, что возникновение эффекта бистабильности возможно в определенном интервале величин накачки и скорости ядерной релаксации, и при некоторых значения последних эффект может возникать для обоих исследуемых процессов. В случае возбуждения разрешенного перехода (OE) гистерезис в зависимости $B_N(E_{laser})$ экспериментально не наблюдался, что, по-видимому, связано с быстрым насыщением W_{OE} при насыщении оптического перехода.

Рассмотренная теоретическая модель позволяет объяснить различие форм линий спектров резонансной накачки ядерной поляризации для ОЕ и SE. Асимметрия зависимостей $B_N(E_{laser})$ является следствием зависимости энергий трионных уровней от ядерного



Рис. 4.9. Зависимость ядерного поля от энергии лазера при возбуждении запрещенного перехода (солид-эффект) при $B_z=2.5$ Тл. Две кривые соответствуют различным направлениям сканирования энергии лазера (указаны стрелками).

поля, в результате которой расстройка энергий лазера и возбуждаемого оптического перехода, а также скорость накачки W_{pump} также зависят от B_N . При фиксированной интенсивности лазера, наибольшая абсолютная величина ядерного поля $|B_N|$ достигается при точном резонансе лазера с переходом $|h\Downarrow\rangle \rightarrow |e\downarrow h\Downarrow h\Uparrow\rangle$ для ОЕ и $|h\Downarrow\rangle \rightarrow |e\uparrow h\Downarrow h\Uparrow\rangle$ для SE процесса. Изменение энергии лазера может привести лишь к уменьшению $|B_N|$ независимо от того, уменьшается или увеличивается E_{laser} . Уменьшение $|B_N|$ ведет к уменьшению энергии трионного состояния $|e\downarrow h \downarrow h \uparrow \rangle$, участвующего в эффекте Оверхаузера (см. рис. 4.5). В случае увеличения энергии лазера, такой сдвиг уровня ведет к росту расстройки энергий лазера и экситонного перехода, а значит и к уменьшению W_{pump} и дальнейшему уменьшению $|B_N|$. Возникающая положительная обратная связь приводит к резкому "срыву" ядерной поляризации, наблюдаемому в эксперименте. Напротив, если энергия лазера перестраивается в сторону меньших энергий от резонанса, то сдвиг трионного уровня приводит к уменьшению расстройки и частичному восстановлению резонанса между энергиями лазера и экситонного перехода. В результате, изменение $|B_N|$ оказывается более плавным.

В случае солид-эффекта задействуется трионное состояние $|e\uparrow h\Downarrow h\Uparrow\rangle$,

энергия которого увеличивается при уменьшении $|B_N|$. Из-за этого резкий скачок ядерной поляризации происходит при уменьшении энергии лазера, что и объясняет различные знаки асимметрии кривых, соответствующих двум процессам.

Сравнение результатов расчета с экспериментом в отсутствие магнитного поля при $P_{res}=15$ мкВт показано на рисунке 4.10. Оптимальные значения параметров $\hbar/\tau^*\approx 6.8$ мкэВ, $\Omega_R\tau^*\approx 2.0$, и $\mu_B g_e \langle \delta B_{N,\perp}^2 \rangle^{1/2}\approx 1.53$ мкэВ оказываются близки к соответствующим значениям, найденным в измерениях в большом магнитном поле. В то же время, для описания эксперимента скорость ядерной деполяризации необходимо положить равной $\tau_r \gamma N \approx 5 \cdot 10^{-2}$, что на три порядка превосходит величину, полученную для $B_z=2.5$ Тл. Повышенная скорость спиновой релаксации ядер в нулевом магнитном поле обеспечивается диполь-дипольным взаимодействием. Из-за быстрой релаксации ядер величина ядерной поляризации $|B_N|\approx 0.3$ Тл, достигаемая при резонансной накачке, существенно меньше, чем при $B_z=2.5$ Тл, когда достигается $|B_N|>1.5$ Тл.

При B=0 предложенная теоретическая модель дает лишь качественное согласие с экспериментом. Некоторые детали экспериментальной зависимости $B_N(E_{laser})$ не удается воспроизвести варьированием подгоночных параметров. Так, например, резкий скачок ядерной поляризации, наблюдаемый в эксперименте, в расчетах оказывается заметно сглаженным. Тем не менее, наиболее важные особенности эксперимента описываются в рамках предложенной модели: расчетная зависимость $B_N(E_{laser})$ имеет асимметричную форму с резким изменением со стороны меньших энергий, характерную для солид-эффекта, причем наибольшее значение $|B_N|$ достигается при точном резонансе σ^+ лазера с σ^- -поляризованной линией ФЛ КТ. Из расчета видно, что доминирование солид-эффекта в нулевом поле обусловлено малой эффективностью процесса Оверхаузера при насыщении разрешенного оптического перехода ($\Omega_R \tau^* \approx 2.0$).

Расхождение теории с экспериментом в малых полях может быть связано с ограниченной применимостью предположения о том, что резонанс-



Рис. 4.10. Рассчитанные с использованием уравнения (4.3) зависимости B_N и энергий ФЛ от частоты σ^+ -поляризованного резонансного оптического возбуждения для положительно заряженной КТ при $B_z=0$. Символами на рисунке (б) показаны зависимости энергий люминесценции E_{PL} обеих компонент спектрального дублета квантовой точки от энергии одномодового лазера. Величина ядерного поля рассчитанная из данных на рисунке (б) показана на рисунке (а) сплошными линиями. Символами на рисунке (а) показан результат эксперимента (см. рис. 4.4).

ная накачка ядерных спинов может быть разделена на два отдельных процесса (ОЕ и SE). Действительно, при B=0 расщепление трионных уровней $|e\downarrow h\Downarrow h\Uparrow\rangle$ и $|e\uparrow h\Downarrow h\Uparrow\rangle$ сравнимо с величиной их спектрального уширения \hbar/τ^* . Поэтому более точная модель должна учитывать когерентное взаимодействие лазера с обоими оптическими переходами, и основываться на решении полного уравнения для матрицы плотности в четырехуровневой системе.

4.5. Насыщение степени поляризации ядерных спинов при резонансной накачке

Рассмотрим влияние интенсивности лазерного возбуждения на спектры резонансной ядерной поляризации. Измерения B_N при сканировании длины волны лазера, результаты которых были показаны ранее на рисунке 4.3 (a, б), были повторены при различных значениях мощности лазера P_{res} в поле $B_z=2.5$ Тл. Полученные зависимости $B_N(E_{laser})$ представлены на ри-



Рис. 4.11. Зависимость спектрального расщепления и величины ядерного поля от энергии лазера E_{laser} при возбуждении разрешенного (OE) и запрещенного (SE) экситонных переходов в магнитном поле $B_z=2.5$ Тл при различных значениях мощности лазера P_{res} .

сунке 4.11. Как уже обсуждалось выше, при малых накачках в зависимости $B_N(E_{laser})$ наблюдаются два узких пика, соответствующих разрешенному и запрещенному переходам. С увеличением накачки ($P_{res} \approx 15 \text{ мкBt}$) оба пика увеличиваются, уширяются и приобретают асимметричную форму, с резким скачком поляризации со стороны высоких (низких) энергий для случая разрешенного (запрещенного) перехода. При еще большей накачке ($P_{res} > 50 \text{ мкBt}$) наряду с дальнейшим ростом $|B_N|$ и уширением пиков наблюдается сглаживание скачков поляризации.

Из уравнений (4.2), (4.3) следует, что при фиксированной плотности накачки лазера наибольшие скорости поляризации W_{OE} (W_{SE}) и величины ядерного поля $|B_N|$ должны достигаться при точном резонансе с разрешенным (запрещенным) переходом. Измеренные в резонансе величины ядерного поля $|B_N|$ и степени поляризации ядер $S_N = |B_N|/B_{N,max}$ в зависимости от P_{res} при $B_z=2.5$ Тл показаны на рисунке 4.12. В случае ОЕ процесса степень поляризации растет с увеличением P_{res} и достигает максимального значения $S_N \approx 45\%$, в то время как для SE процесса насыщение



Рис. 4.12. Зависимость ядерного поля и степени поляризации ядер S_N от мощности лазера P_{res} , настроенного в резонанс с разрешенным (OE) или запрещенным (SE) переходами в магнитном поле $B_z=2.5$ Тл.

происходит при $S_N \approx 65\%$. При малых P_{res} величина S_N растет значительно быстрее в случае SE процесса, так что насыщение происходит при меньшей мощности, чем в случае OE процесса.

Из уравнения (4.2) следует, что в пределе малых накачек ($\Omega_R \tau^* \ll 1$) эффективности ОЕ и SE процессов совпадают и растут линейно по мощности $W_{OE} \approx W_{SE} \sim P_{res}$ (см. рис. 4.7). Согласно линейному уравнению (4.3), справедливому при $|B_N| \ll B_{N,max}$, ядерное поле и степень поляризации S_N также должны расти линейно с накачкой, с коэффициентом пропорциональности, определяемым скоростью релаксации γ . Более быстрый рост S_N , наблюдаемый в случае SE процесса, может быть объяснен, если принять, что γ отличается для двух процессов, а именно: $\gamma_{OE} > \gamma_{SE}$. Причина повышенной скорости релаксации в случае ОЕ процесса по сравнению с SE процессом, по-видимому, связана с бо́льшей долей времени, которую квантовая точка заселена трионами. Действительно, при одинаковой интенсивности лазера $\sim \! \Omega_R^2$ вероятность возбуждения триона в случае солидэффекта будет меньше за счет множителя $\alpha^2 \ll 1$. Присутствие фотовозбужденного электрона в KT приводит к появлению действующего на ядра неоднородного электрического поля, которое смешивает зеемановские уровни ядер через квадрупольное взаимодействие. Поэтому осцилляции такого поля при возбуждении/рекомбинации могут приводить к ускорению релаксации ядерного спина [93].

Детальный учет факторов, влияющих на релаксацию спиновой поляризации ядер, выходит за рамки данного рассмотрения. Достаточно отметить, что γ является коэффициентом пропорциональности между скоростью поляризации W_{pump} и результирующим ядерным полем B_N , который однако практически не влияет на характер зависимости от накачки Pres. А именно, как было показано выше, максимальная скорость поляризации через запрещенный переход $W_{SE}^{max} = \tau_r/2$ существенно превосходит скорость для разрешенного перехода $W_{OE}^{max} = \alpha^2 \tau_r/2$. Поэтому можно было ожидать, что насыщение B_N , связанное с насыщением запрещенного перехода, должно происходить при накачке порядка $(\alpha \Omega_R \tau^*)^2 \sim 1$, значительно большей, чем в случае эффекта Оверхаузера $(\Omega_R \tau^*)^2 \sim 1$ (см. рис. 4.12). Однако в эксперименте насыщение степени поляризации S_N в случае SE происходит при *меньшей* интенсивности лазера, чем в случае OE процесса. Следовательно, насыщение S_N в случае солид-эффекта не может быть связано с насыщением самого запрещенного перехода и определяется другими, неучтенными в модели факторами.

Наблюдаемая максимальная поляризация $S_N \approx 65\%$ заметно меньше 100%. Рассмотрим некоторые факторы, которые могут ограничивать степень ядерной поляризации.

Использованные выше уравнения (4.2) были получены в приближении бесконечно быстрой дырочной релаксации. Переворот дырки является необходимым шагом в каждом цикле, приводящем к перевороту ядра, как для OE, так и для SE процесса. В случае ненулевого времени спиновой релаксации дырки τ_h , квантовая точка может проводить конечную долю времени в состоянии $|h\uparrow\rangle$, в котором она выходит из резонанса с лазером. В течение этого времени в КТ не может происходить оптическая накачка ядер. Влияние дырки будет сказываться лишь при больших накачках, когда скорости поляризации W_{OE} и W_{SE} , вычисленные согласно уравнению (4.2), превысят максимально возможную скорость переворота спина дырки au_h^{-1} . В этом случае, максимально достижимые скорости поляризации будут определяться наименьшим из значений au_h^{-1} и полученным из выражений (4.2): $W_{OE}^{max} \approx \min\{\alpha^2 \tau_r/2, \tau_h^{-1}\}$ и $W_{SE}^{max} \approx \min\{\tau_r/2, \tau_h^{-1}\}$. Точное значение τ_h в KT In
P/GaInP не известно, однако для большинства структур оно превосходит время радиационной рекомбинации [68]. Поэтому стоит ожидать, что максимальная эффективность солид-эффекта действительно будет ограничена временем жизни спина дырки. Однако, известно, что в большом магнитном поле дырочная релаксация определяется взаимодействием с акустическими фононами. Вычисления показывают, что τ_h должно резко уменьшатся с ростом поля, как $\sim B^{-7}$ [94]. Общий характер такой зависимости подтверждается измерениями в структурах с КТ InGaAs, в которых наблюдается уменьшение τ_h в ~ 50 раз при увеличении B от 1.5 Тл до 12 Тл [68]. В то же время, максимальная степень поляризации $S_N \approx 65\%$, полученная в данной работе при возбуждении запрещенного перехода, оказывается неизменной в диапазоне $B_z = 1 \div 8$ Тл (ср. со случаем нерезонансной накачки, рис. 3.11). Следовательно, дырочная релаксация не является фактором ограничивающим S_N .

Увеличение степени ядерной поляризации приводит к уменьшению количества ядер, доступных для переворота спина. В случае ядерного спина 1/2, поляризация $S_N \approx 65\%$ означает уменьшение числа еще не выстроенных ядер лишь в ~2 раза по сравнению $S_N=0$. Как уже было упомянуто ранее, в InP наибольший вклад в сдвиг Оверхаузера дает поляризация ядер индия со спином $I_{In}=9/2$, у которых проекция ядерного спина на внешнее поле может принимать любое полуцелое значение от -9/2 до 9/2. Из них лишь состояние с проекцией -9/2 окажется "запрещенным" для дальнейшего увеличения поляризации, поэтому следует ожидать еще меньшего влияния нехватки ядер, чем в простом случае ядерного спина 1/2. Так, например, состоянию ядерной системы, в котором ядра поровну распределены между подуровнями с проекциями спина -7/2 и -9/2, будет соответствовать степень поляризации $S_N=88\%$, при том что все ядра с проекцией спина -7/2 будут доступны для спин-флипа.

Таким образом, следует заключить, что наблюдаемое в эксперименте насыщение ядерного поля не может быть связано ни с насыщением оптического перехода в КТ, задействованного в динамической накачке ядерного спина, ни с медленной спиновой динамикой дырок. Описание процессов динамической поляризации при S_N, близких к 100%, оказывается невозможным в рамках предложенной теоретической модели, и может свидетельствовать о существовании фундаментального предела степени поляризации достижимой оптической накачкой в квантовых точках. Здесь можно отметить, что в других полупроводниках максимальная степень ядерной поляризации, достигнутая в условиях нерезонансной оптической накачки, имеет схожее значение $40 \div 65\% [27, 29, 30]$, что может указывать на общий механизм насыщения ядерной поляризации. Выяснение причин наблюдаемого насыщения потребует более полного рассмотрения, с учетом специфических свойств взаимодействия носителей с ядрами в KT, включая подавление ядерных спиновых флуктуаций и возможное формирование так называемых "темных" состояний [23, 26], в которых электронно-ядерный спин-флип оказывается невозможным.

4.6. Выводы

В данной главе были получены следующие результаты:

— Разработана методика резонансной спектроскопии "накачкатестирование", основанная на детектировании Оверхаузеровского сдвига в спектре нерезонансной люминесценции. Данная методика была использована для изучения механизмов накачки ядерной поляризации в одиночных положительно заряженных квантовых точках InP/GaInP при селективном оптическом возбуждении переходов триона.

— Экспериментально найдено, что высокая степень ядерной поляризации возникает при возбуждении как разрешенных (аналог классического эффекта Оверхаузера), так и дипольно запрещенных переходов в КТ (аналог солид-эффекта). Обнаружено, что накачка ядерной поляризации через

запрещенный переход оказывается более эффективной, в том числе и в нулевом магнитном поле, где солид-эффект оказывается доминирующим процессом.

— В рамках развитой в работе теоретической модели, основанной на рассмотрении двух циклических процессов ядерной поляризации, было дано объяснение наблюдаемым в эксперименте спектрам, в том числе явлению бистабильности и различию знаков асимметрии спектральных зависимостей степени ядерной поляризации, связанных с эффектом Оверхаузера и солид-эффектом. На основании анализа предложенной модели показано, что при большой интенсивности оптического возбуждения солид-эффект является наиболее эффективным механизмом динамической поляризации в квантовых точках. Скорость накачки в таком процессе ограничена лишь временем рекомбинации триона или переворота спина дырки, но не ограничена малой величиной вероятности одновременного переворота спинов электрона и ядра.

— Экспериментально найдено, что при накачке ядерной поляризации через запрещенный переход степень поляризации ядер насыщается на уровне 65%, практически не зависящем от внешнего магнитного поля. Данная степень поляризации является наибольшей полученной в экспериментах по оптической накачке в полупроводниковых КТ. Из анализа данных установлено, что такое насыщение не связано с насыщением оптического перехода или с медленной релаксацией дырки, а отражает фундаментальные свойства электронно-ядерного взаимодействия в квантовой точке, учет которых требуют более полной теоретической модели.

Глава 5.

Динамика ядерной спиновой поляризации в квантовых точках

В предыдущих главах 3 и 4 были рассмотрены стационарные эффекты, связанные с взаимодействием поляризованных электронов и ядерной спиновой системы при нерезонансном и резонансном оптическом возбуждении. Минимальный масштаб времени, на котором можно манипулировать электронным спином, определяется временем рекомбинации экситона и составляет ~ 1 нс. Типичная КТ содержит $\sim 10^4 \div 10^5$ ядер и, поскольку переворот электрона может привести к перевороту спина лишь одного ядра, то характерный масштаб времени манипуляции ядерной поляризацией составляет не менее 10÷100 мкс. Из-за малой вероятности электронноядерного спин-флипа не каждый поляризованный фотоэлектрон участвует в накачке ядерных спинов, поэтому в действительности данное время оказывается еще длиннее. В данной главе будут представлены результаты исследования динамики ядерной поляризации при нерезонансном оптическом возбуждении (далее называемой "динамика выстраивания" ядерных спинов) в KT InP/GaInP и GaAs/AlGaAs. Кроме того, в отличие от поляризованных фотоэлектронов, которые исчезают за время ~ 1 нс в результате рекомбинации, неравновесная ядерная спиновая поляризация может существовать и после выключения оптического возбуждения. Результаты изучения динамики ядерной поляризации в отсутствие оптической накачки

(далее *"динамика затухания"*) в широком диапазоне экспериментальных условий также изложены в данной главе как для GaAs/AlGaAs, так и для InP/GaInP квантовых точек.

5.1. Динамика ядерной спиновой поляризации при оптическом возбуждении (динамика выстраивания) в квантовых точках

Как было показано в главе 3, стационарное значение ядерного поля *B_N* при фиксированной величине внешнего поля зависит от интенсивности и поляризации оптического возбуждения. Быстрое изменение параметров накачки (например, переключение знака циркулярной поляризации) приводит к тому, что ядерное поле начинает изменяться во времени по некоторому закону $B_N(t)$, характеризующему динамику выстраивания ядерных спинов. Временная диаграмма, использованная в измерениях динамики выстраивания ядерной поляризации при нерезонансном оптическом возбуждении, показана на рисунке 5.1 (a). Цикл начинается с того, что образец освещается длинным импульсом "стирания" (длительностью t_{erase}), который приводит ядерное поле к заданной величине, устраняя влияние предыдущего цикла. После этого стирающий лазер блокируется, и КТ возбуждается лазером "накачки", с отличной поляризацией/интенсивностью. Затвор на системе детектирования (спектрометре) открывается на короткое время t_{det} спустя время t_{pump} после начала импульса накачки. Для улучшения соотношения сигнал/шум данный цикл повторяется несколько раз в течение накопления спектра ФЛ. Измеряя величину спектрального расщепления (и соответствующую величину B_N) как функцию t_{pump} , можно получить кривую динамики выстраивания ядерных спинов. В большинстве экспериментов импульс накачки имел циркулярную поляризацию, а импульс стирания либо циркулярную поляризацию противоположного знака, либо линейную поляризацию. В последнем случае, ядерное поле перед началом накачки было близко к нулю $B_N \sim 0$. Длительности импульсов стирания и детектирования также варьировались, чтобы сделать возможным измерение динамики в широком диапазоне времен накачки t_{pump} , при этом поддерживались постоянными соотношения $t_{erase} = 8t_{pump}$, $t_{det} = t_{pump}/4$.

Статические эффекты, связанные с динамической ядерной поляризацией в квантовых точках InP/GaInP, были подробно исследованы в главе 3. Ядерные спиновые эффекты в KT GaAs/AlGaAs, образованных флуктуациями толщины ямы (см. описание образца в разделе 2.2), хорошо изучены [27, 33, 61, 95], и во многом схожи с рассмотренными явлениями в InP KT. Их важным отличием является то, что в нейтральных квантовых точках GaAs возможна накачка значительной степени ядерной поляризации при небольших плотностях возбуждения в магнитном поле, при котором зеемановское расщепление превосходит величину тонкой структуры оптически активного экситона ($\mu_B | g_h - g_e | B_z > \delta_b, \ \delta_b \approx 3$ мкэВ в исследуемых образцах GaAs/AlGaAs). Так же, как и в KT InP, в структурах с KT GaAs/AlGaAs существует обратная связь в системе электронных и ядерных спинов, приводящая к ядерной спиновой бистабильности [33] (см. раздел 3.3). В исследуемых в данной главе нейтральных КТ GaAs/AlGaAs спиновая бистабильность реализуется в магнитном поле $B_z=2$ Тл при возбуждении σ^+ -поляризованным светом, в результате чего в зависимости величины ядерного поля от интенсивности накачки наблюдается гистерезис. При интенсивности накачки $P_{exc} > 0.35$ мкВт возможно лишь одно устойчивое состояние с большой ядерной поляризацией $B_N \sim -2$ Тл (при вычислении ядерного поля использовано значение электронного g-фактора $g_e{=}0.44$ из [96]), причем эта величина B_N практически не изменяется при дальнейшем росте плотности возбуждения (ср. с зависимостью $B_N(P_{exc})$ на рис. 3.12 (a) для случая InP KT, где ядерная поляризация практически постоянна при $P_{exc} > 17$ мкВт).

Результаты измерения динамики выстраивания ядерных спинов в нейтральной KT GaAs/AlGaAs показаны на рис. 5.1 (б) при $B_z=2$ Тл. В данном эксперименте импульс стирания имел линейную поляризацию, а импульс накачки с мощностью $P_{pump}=0.35$, 1 или 5 мкВт был σ^+ -



Рис. 5.1. (а) Временная диаграмма измерения динамики выстраивания ядерных спинов при оптическом возбуждении. (б) Динамика выстраивания в нейтральной КТ GaAs/AlGaAs при различных интенсивностях σ^+ -поляризованной накачки (символы). Импульс стирания имеет линейную поляризацию. Сплошные кривые — результат аппроксимации эксперимента моноэкспоненциальными зависимостями с временами $\tau_{build-up}=3.4$; 1.3; 0.4 с, для накачек $P_{pump}=0.35$; 1; 5 мкВт, соответственно. (в, г) Динамика выстраивания ядерной поляризации в отрицательно заряженной КТ InP/GaInP N5 при $B_z=0$ (кружки), 0.4 Тл (треугольники), 2 Тл (квадраты). Открытые (сплошные) символы соответствуют эксперименту с σ^- стиранием/ σ^+ накачкой (σ^+ стиранием/ σ^- накачкой), оба импульса имеют мощность 70 мкВт. Пунктирной стрелкой отмечено быстрое первоначальное изменение B_N , не наблюдаемое из-за ограниченного временного разрешения системы.

поляризован. Отметим, что в данных структурах мощность возбуждения $P_{pump}=5$ мкВт соответствует максимуму интенсивности люминесценции КТ (наибольшему заполнению КТ нейтральными экситонами). При всех плотностях накачки ядерное поле достигает $B_N \sim -2$ Тл в пределе длинных t_{pump} , однако релаксация ядерного поля к стационарному значению происходит с различной скоростью. Все три кривые хорошо аппроксимируются экспоненциальными зависимостями (сплошные линии на рис. 5.1 (б)), время накачки ядерного спина оказывается равным $\tau_{build-up}=3.4$; 1.3; 0.4 с, при накачке $P_{pump}=0.35$; 1; 5 мкВт, соответственно. Наблюдаемое увеличение скорости выстраивания спинов ядер с ростом интенсивности возбуждения объясняется ростом доли времени, в течение которого КТ запол-

нена поляризованным экситоном, который может передавать спин ядрам. Аналогичный эффект был обнаружен при исследовании заряженных квантовых точек InP/GaInP. В случае положительно заряженных КТ ускорение накачки ядерного спина также объясняется увеличением времени, в течение которого КТ заполнена поляризованными трионами. В отрицательно заряженных точках электрон постоянно находится в КТ. В этом случае динамическая ядерная поляризация обусловлена взаимодействием ядер с резидентным электроном. Рост плотности возбуждения приводит к увеличению степени поляризации спина электрона, что и вызывает увеличение скорости выстраивания ядерной поляризации.

Рассмотрим зависимость динамики ядерной поляризации от внешнего магнитного поля на примере отрицательно заряженных KT InP/GaInP. На рисунке 5.1 (в) показаны результаты измерения динамики выстраивания ядерных спинов при B=0 и при $B_z=2$ Тл. В данном эксперименте использовались σ^- (σ^+)-поляризованные импульсы стирания (накачки) с мощностью ~70 мкВт. Из рисунка видно, что в нулевом внешнем поле ядерное поле изменяется от $B_N=0.2$ Тл до $B_N=-0.2$ Тл в течении нескольких миллисекунд. Увеличение B_z до 2 Тл приводит к заметному уменьшению скорости выстраивания ядерных спинов — равновесная поляризация достигается за время порядка нескольких секунд. Уменьшение скорости передачи спина от электронов к ядрам с ростом магнитного поля связано с увеличением разности зеемановских энергий, которая должна быть скомпенсирована при спин-флипе (см. уравнение 3.3 в разделе 3.2).

Зависимость спинового расщепления электрона от эффективного ядерного поля приводит к нелинейности динамики B_N (см. уравнение 3.4). На рисунке 5.1 (г) показаны результаты измерения динамики выстраивания ядерных спинов при $B_z=0.4$ Тл. В данном эксперименте использовался σ^+ или σ^- -поляризованный импульс накачки, при этом импульс стирания имел противоположную циркулярную поляризацию. Мощность обоих импульсов была ~70 мкВт, так что две экспериментальные кривые соответствуют динамике B_N при быстром переключении знака поляризации воз-

буждения с σ^+ на σ^- и наоборот, с σ^- на σ^+ . Как видно из рисунка 5.1 (г), зависимость величины ядерного поля от времени накачки асимметрична по отношению к знаку циркулярной поляризации возбуждения. В случае σ^+ -поляризованной накачки ядерное поле изменяется от ≈ 0.2 Тл до своего стационарного значения ≈ -0.6 Тл за время ≈ 0.3 с и далее остается практически постоянным. В случае σ^- накачки наблюдается более плавный рост поляризации, при этом B_N продолжает изменяться при задержках $t_{pump} > 1$ с. Экспериментальная зависимость $B_N(t_{pump})$ при σ^- накачке, измеренная для $t_{pump} \ge 0.007$ с, начинается с уровня ≈ -0.2 Тл, отличного от стационарного значения $B_N \approx -0.6$ Tл, создаваемого импульсом стирания. Такое отличие означает, что первоначальное изменение B_N , показанное стрелкой на рисунке 5.1 (г), происходит за время наименьшей задержки, используемой в эксперименте, $t_{pump} \approx 0.007$ с. Это время определяется разрешающей способностью системы в данном эксперименте. Таким образом, независимо от знака поляризации накачки, максимальная скорость изменения ядерного поля $|dB_N/dt|$ наблюдается в области ядерных полей $B_N \approx -B_z$ (т. е. когда электронное расщепление $\Delta E_e \approx 0$): при σ^- возбуждении быстрое изменение ядерной поляризации происходит на начальном этапе, а в случае σ^+ возбуждения с задержкой ≈ 0.3 с — при прближении к равновесному значению B_N . В случае эксперимента с σ^+ поляризованной накачкой наблюдаемая скорость изменения B_N при $t_{pump} \approx 0.3$ с оказывается ограниченной из-за того, что ядерное поле детектируется в течение конечного времени t_{det} .

Поскольку зависимости $B_N(t_{pump})$ не являются экспоненциальными, для количественной оценки скорости выстраивания ядерной поляризации было использовано время $\tau_{build-up}$, за которое B_N изменяется на $(1 - e^{-1})\approx 0.7$ от величины полного динамического диапазона $B_N(t_{pump}\rightarrow\infty)-B_N(t_{pump}=0)$. В случае экспоненциальной динамики ядерной поляризации $B_N(t_{pump})\sim\exp(-t_{pump}/\tau_0)$ величина $\tau_{build-up}$ совпадает с временем τ_0 . Зависимость $\tau_{build-up}$ от магнитного поля B_z в отрицательно заряженной квантовой точке InP/GaInP показана на рисунке 5.2 для слу-



Рис. 5.2. Зависимость времени выстраивания ядерной поляризации $\tau_{build-up}$ от магнитного поля B_z в отрицательно заряженной квантовой точке InP/GaInP для случая σ^+ поляризованной накачки.

чая σ^+ поляризованной накачки. Время $\tau_{build-up}$ увеличивается от ≈ 5 мс до ≈ 2.5 с при увеличении поля от 0 до 2 Тл. Немонотонное изменение $\tau_{build-up}(B_z)$ в области $B_z \approx 0.5 \div 1.5$ Тл связано с нелинейностью эффектов динамической ядерной поляризации, выражающихся в неэкспоненциальной динамике выстраивания ядерных спинов при данных значениях поля. Резкое замедление скорости выстраивания (в ~500 раз) с ростом магнитного поля находится в качественном согласии с уравнением (3.3), однако это уравнение не описывает постоянство $\tau_{build-up}$ в полях $B_z=2\div 8$ Тл.

Из измерений в положительно заряженных KT InP/GaInP было найдено, что время выстраивания ядерной поляризации имеет в них такую же зависимость от магнитного поля, как и в случае отрицательно заряженных KT: обнаружено, что $\tau_{build-up}$ возрастает от ≈ 4 мс при B=0 до ≈ 2 с при $B_z>2$ Tл. В нейтральных KT InP/GaInP, где динамическая ядерная поляризация наблюдается лишь в магнитном поле при больших плотностях возбуждения (см. стр. 59 в разделе 3.2), время выстраивания ядерных спинов составляет $\tau_{build-up}\approx 1$ с при $B_z>2$ Tл и при мощности циркулярно поляризованной накачки $P_{pump}=400$ мкВт.

5.2. Методика измерения динамики ядерной спиновой поляризации в темноте (динамики затухания) в одиночных квантовых точках

Затухание ядерной поляризации в квантовых точках было исследовано с помощью методики "накачка-тестирование". Временная диаграмма эксперимента показана на рисунке 5.3. Цикл начинается с циркулярно поляризованного импульса лазера накачки длительностью t_{pump} , который создает неравновесное ядерное поле в КТ. После окончания импульса накачивающий лазер блокируется, и КТ остается в темноте в течение времени задержки t_{delay} . По истечении времени задержки образец освещается коротким импульсом тестирования длительностью t_{probe} , в течение которого записывается спектр ФЛ КТ. Измерения величины ядерного поля в течение импульса тестирования при различных временах задержки позволяет определить закон затухания поля $B_N(t_{delay})$. Для каждого эксперимента длительности импульсов выбирались исходя из соотношения $t_{probe} \ll t_{build-up} \ll t_{pump}$, при этом длительность импульса накачки достаточна для достижения стационарного значения начального ядерного поля $B_N(t_{delay}=0)$, не зависящего от величины поляризации до начала цикла, а тестирующий импульс оказывает минимальное влияние на величину ядерной поляризации во время детектирования. В большинстве экспериментов были использованы следующие значения длительностей импульсов $t_{pump} \approx 7 t_{build-up}$ и $t_{probe} \approx t_{build-up}/10$.

В разделе 5.1 было найдено, что $t_{build-up}$ сильно уменьшается в малых магнитных полях, поэтому в измерениях в этих условиях надо использовать короткие импульсы тестирования. В экспериментах с заряженными точками InP/GaInP в полях $B_z < 0.3$ Тл максимально допустимая длительность t_{probe} оказывается меньше времени экспозиции, необходимой для надежного детектирования спектрального расщепления в спектре ФЛ КТ. В этом случае, для регистрации спектра, экспериментальный цикл, показанный на рисунке 5.3, повторялся несколько раз. Значение B_N , найденное



Рис. 5.3. Временная диаграмма эксперимента по измерению динамики затухания ядерной поляризации в одиночных KT.

таким образом, представляло собой среднее по нескольким повторениям. Наибольшая задержка t_{delay} в этих измерениях ограничена максимальной длительностью экспозиции ПЗС-камеры, в частности, в измерениях динамики затухания ядерной поляризации в заряженных KT InP в нулевом поле наибольшая задержка составляла $t_{delay} \approx 10$ с.

В полях $B_z>0.3$ Тл спектр измерялся в течение одного тестирующего импульса, поэтому полученные значения B_N соответствовали *мгновенному* значению ядерного поля в квантовой точке. В этих экспериментах наибольшая использованная задержка $t_{delay}\approx4000$ с ограничивалась лишь суммарным временем задержек ≈40 часов, необходимым для измерения подробной зависимости $B_N(t_{delay})$. Во всех экспериментах по измерению динамики затухания B_N для блокирования лазеров использовались механические затворы, обеспечивающие полное подавление света, что особенно важно для устранения влияния остаточной засветки при больших задержках t_{delay} .

В разделе 3.2 было найдено, что возбуждение однократно заряженных KT InP/GaInP нерезонансным лазером с мощностью $P_{sat}\approx 20\div 30$ мкВт, соответствующей насыщению интенсивности ФЛ триона, позволяет создавать высокую степень поляризации ядер локализованную в объеме KT. В нейтральных KT InP/GaInP накачка существенного ядерного поля требует использования значительно большей мощности возбуждения, которая приводит к поляризации ядер не только в самой KT, но и в ее окрестности. Поэтому в экспериментах по измерению динамики зату-

хания B_N в заряженных точках InP и нейтральных точках GaAs мощность импульса накачки была порядка P_{sat} , а при исследовании нейтральных KT InP использовалась значительно большая мощность $\sim 15P_{sat}$.

В большинстве экспериментов по измерению $B_N(t_{delay})$ при повторении циклов, показанных на рис. 5.3, поляризация импульсов накачки чередовалась между σ^+ и σ^- , что позволяло измерять кривые динамики затухания B_N для начальной поляризации противоположных знаков в одном эксперименте. Такое чередование позволяло исключить сценарий, при котором большое количество импульсов одной поляризации могло бы привести к поляризации ядер в значительной области вокруг КТ из-за спиновой диффузии, изменив тем самым динамику затухания B_N [38, 51, 52].

5.3. Динамика затухания ядерной спиновой поляризации в квантовых точках GaAs/AlGaAs

Динамика затухания ядерной поляризации в нейтральных КТ GaAs/AlGaAs изучалась в магнитном поле $B_z=2$ Тл. Для накачки ядерной поляризации использовались циркулярно поляризованные импульсы длительностью $t_{pump}=10$ с и мощностью 8 мкВт, а для тестирования — линейно поляризованные импульсы мощностью 4 мкВт и длительностью $t_{det}=0.15$ с. Экспериментально измеренные кривые затухания ядерной поляризации показаны символами на рисунке 5.4 для обеих циркулярных поляризаций импульса накачки. Из рисунка видно, что при увеличении задержки t_{del} ядерное поле, детектируемое в тестирующем импульсе, стремится к нулю. Аппроксимация экспоненциальными функциями, показанная на рисунке 5.4 линиями с коротким пунктиром, дает характерное время затухания $\tau_{dec}\approx 60$ с как для положительного, так и для отрицательного начального ядерного поля $B_N(t_{del}=0)$.

В параграфе 1.1.4 было отмечено, что основные механизмы релаксации ядерной поляризации в чистых объемных полупроводниках при низких температурах ($T \leq 20$ K) в большом магнитном поле (B > 1 Tл) сильно по-


Рис. 5.4. Кинетика затухания ядерной поляризации в нейтральной КТ GaAs/AlGaAs в поле B_z =2 Тл. Сплошными (открытыми) символами показан результат эксперимента с σ^+ (σ^-) поляризованными импульсами накачки. Линиями показана экспоненциальная аппроксимация с $\tau_{dec}\approx$ 60 с (линии с коротким пунктиром) и решение уравнения диффузии (5.1) для толщины квантовой ямы GaAs 4 нм, τ_d =1000 с, и коэффициента диффузии $D\approx$ 6·10⁻¹⁵ см²/с (сплошные линии) или D=1·10⁻¹³ см²/с (пунктирные линии).

давлены [50]. В GaAs в этих условиях релаксация пространственно однородной намагниченности ядерных спинов происходит за время $\tau_{dec} \approx 1000$ с. В низкоразмерных полупроводниковых наноструктурах эффективным методом релаксации пространственно неоднородной ядерной поляризации является спиновая диффузия, механизм которой состоит в передаче спина ядра I_z соседнему ядру того же сорта I'_z путем их одновременного изменения на ± 1 : $|I_z, I'_z + 1\rangle \rightarrow |I_z + 1, I'_z\rangle$ либо $|I'_z, I_z + 1\rangle \rightarrow |I'_z + 1, I_z\rangle$ [38, 52]. Динамика пространственного распределения ядерного поля описывается уравнением диффузии (1.16)

$$\frac{dB_N(\vec{r},t)}{dt} = D\nabla^2 B_N(\vec{r},t) - \frac{B_N(\vec{r},t)}{\tau_d},\tag{5.1}$$

где D — коэффициент диффузии, а время τ_d описывает затухание поляризации вызванное всеми прочими механизмами. Расчет коэффициента диффузии, учитывающий передачу спина между ближайшими соседями (см. параграф 1.1.4), дает схожие значения для всех веществ $D \sim 10^{-12} \div 10^{-13} \text{ см}^2/\text{c}$ [51]. Расчеты подтверждаются в измерениях динамики спиновой поляризации ядер расположенных вблизи примесных центров. Для GaAs таким образом было получено значение $D=10^{-13} \text{ см}^2/\text{c}$ [52].

Быстрое затухание ядерной поляризации в исследуемых структурах с КТ GaAs ($\tau_{dec} \approx 60$ с) по сравнению со случаем объемного полупроводника ($\tau_{dec} \approx 1000$ с) свидетельствует о существенном вкладе диффузии в процессы релаксации, которые могут быть описаны с помощью уравнения (5.1). В изучаемых структурах GaAs/AlGaAs (см. раздел 2.2) в самих квантовых точках, образованных флуктуациями толщины ямы, локализуется лишь небольшая доля фотовозбужденных экситонов. Поэтому накачка циркулярным светом приводит к почти равномерной поляризации ядер во всем двумерном слое квантовой ямы GaAs, т. е. начальная поляризация $B_N(\vec{r}, t=0)$ не зависит от координат в плоскости Oxy. После выключения накачки временная эволюция $B_N(\vec{r},t)$ также не зависит от координат в плоскости образца. Таким образом, в отличие от случая точечных примесных центров [52], в изучаемых структурах диффузия носит одномерный характер, что соответствует замене $B_N(\vec{r},t) \rightarrow B_N(z,t), \nabla \rightarrow \partial/\partial z$ в уравнении (5.1). При этом квантовая точка, образованная флуктуациями толщины ямы, выполняет роль точечного зонда, расположенного в плоскости квантовой ямы.

Уравнение (5.1) решалось численно для ядерной поляризации $B_N(z,t)$ внутри квантовой ямы GaAs толщиной 4 нм и в окружающем барьере AlGaAs. Время релаксации было принято равным τ_d =1000 с [50], коэффициент диффузии D считался равным для ямы и барьера и был подгоночным параметром в расчете. Наилучшее согласие с экспериментом получается при $D\approx 6\cdot 10^{-15}$ см²/с. Соответствующее решение показано на рис. 5.4 сплошными линиями, там же пунктирными линиями для сравнения показан расчет для $D=1\cdot 10^{-13}$ см²/с. Полученное значение $D\approx 6\cdot 10^{-15}$ см²/с для GaAs/AlGaAs в ~15 раз меньше коэффициента диффузии для объемного GaAs. Такое различие следует приписать замедлению диффузии на границе гетероперехода и в материале барьера AlGaAs.

Рассмотрим возможные механизмы, ответственные за уменьшение D. Поскольку зеемановские расщепления различных изотопов отличаются, диффузия возможна лишь между ядрами одного сорта. В барьере Al_{0.33}Ga_{0.67}As часть атомов галлия замещена атомами алюминия, отсутствующими в самой яме. Замещение части атомов галлия приводит к увеличению среднего расстояния между ними, и, следовательно, к уменьшению вероятности одновременного переворота спинов W. В результате, релаксация поляризации ядер галлия, находящихся в квантовой яме, оказывается подавлена из-за уменьшения коэффициента диффузии для данного сорта ядер в барьере. Подавление диффузии может также происходить на границе квантовой ямы. В этом случае уменьшение W может происходить не только из-за изменения расстояния, но и из-за различия зеемановских энергий ядер одного сорта. Такое различие может возникать из-за взаимодействия квадрупольного момента ядра с градиентом электрического поля, который различается на гетерогранице и в глубине материала из-за понижения симметрии на интерфейсе и рассогласования решеток [31, 97, 98]. Квадрупольный эффект, вызванный нарушением кубической симметрии на гетерогранице, может также приводить к неэквидестантности зеемановских уровней ядер [99] (см. параграф 1.1.1). В результате процессы переворота спинов соседних ядер $|I_z, I_z' + 1\rangle \leftrightarrow |I_z + 1, I_z'\rangle$ оказываются затруднены при $I_z \neq I'_z$.

Найденное уменьшение D в системе GaAs/AlGaAs в 15 раз по сравнению с объемным GaAs не очень велико, что не позволяет разделить вклад перечисленных выше механизмов. Несмотря на уменьшение D, пространственная диффузия остается основным механизмом релаксации ядерных спинов в квантовой яме: время затухания пространственно неоднородной поляризации ($\tau_{dec}\approx$ 60 с) значительно меньше, чем в случае пространственно однородной ($\tau_{dec}\approx$ 1000 с). Как будет показано в следующем разделе, для квантовых точек InP/GaInP может реализовываться случай, когда диффузия практически полностью подавлена, а время затухания неоднородной поляризации сравнимо с временем затухания в объемном материале.

5.4. Динамика затухания ядерной спиновой поляризации в квантовых точках InP/GaInP

В отличие от образцов с КТ GaAs/AlGaAs характер динамики затухания ядерной поляризации в структурах InP/GaInP сильно меняется от точки к точке и зависит от ряда факторов включая заряд КТ. Для изучения механизмов релаксации ядерного спина измерения динамики затухания ядерной спиновой поляризации были выполнены для нескольких квантовых точек InP/GaInP с различными зарядовыми состояниями (нумерация квантовых точек N1-N6, рассматриваемых в данном разделе, соответствует нумерации использованной в главе 3). Ниже представлены результаты измерения зависимостей $B_N(t_{del})$ в различных экспериментальных условиях и рассмотрены основные особенности полученных результатов. Подробный анализ механизмов релаксации и сравнение динамики затухания в различных материалах приведены в следующем разделе 5.5.

Для изучения процессов ядерной спиновой релаксации, специфических для квантовых точек, эксперименты были выполнены в магнитном поле $B_z \gg B_L \approx 0.1$ мТл, когда механизмы релаксации, присущие объемным полупроводникам, подавлены. Использование больших полей ($B_z > 3$ Тл) позволяет также получать высокую начальную степень спиновой поляризации ядер при оптической накачке (см. рис. 3.11), что увеличивает соотношение сигнал/шум при детектировании B_N . Кроме того, в этих условиях удается получить хорошее спектральное разделение зеемановских компонент в спектре ФЛ КТ (см. рис. 3.4), что также уменьшает погрешность определения B_N .

На рисунке 5.5 показаны результаты измерения динамики затухания ядерной поляризации в четырех KT InP/GaInP с различным зарядом в магнитном поле $B_z=4.1$ Tл при накачке σ^+ -поляризованным лазером. В этих экспериментах ядерное поле измерялось в одном цикле "накачкитестирования". Данные, представленные на рис. 5.5, были получены в результате усреднения нескольких измерений (как правило от 4 до 6), повто-



Рис. 5.5. (а) Кинетика затухания ядерной поляризации в двух положительно заряженных КТ N3 и N6 InP/GaInP в поле B_z =4.1 Тл (символы). Пунктирными линиями показаны экспоненциальные аппроксимации с $\tau_{dec}\approx$ 95 с (4200 с) для КТ N3 (N6). Сплошная линия — расчет согласно уравнению 5.1 с коэффициентом диффузии $D\approx 2\cdot 10^{-15}$ см²/с для КТ N3. (б) Кинетика затухания ядерной поляризации в нейтральной КТ N1 и отрицательно заряженной КТ N4 InP/GaInP в поле B_z =4.1 Тл (символы). Пунктирными линиями показаны экспоненциальные аппроксимации с $\tau_{dec}\approx$ 350 с (5800 с) для КТ N1 (N4).

ренных для одной задержки t_{del} , а величины погрешностей определялись как стандартное отклонение.

На рисунке 5.5 (а) символами показаны экспериментальные зависимости $B_N(t_{del})$ для двух положительно заряженных КТ N3 и N6. В КТ N3 затухание ядерной поляризации происходит намного быстрее, чем в КТ N6. Пунктирными линиями на этом же рисунке показаны наилучшие среднеквадратичные аппроксимации результатов с помощью экспонент. Времена затухания, полученные из аппроксимации, равны $\tau_{dec}^{N3} \approx 95$ с и $\tau_{dec}^{N6} \approx 4200$ с для КТ N3 и N6, соответственно. Отметим однако, что из рисунка 5.5 (а) видно, что характер затухания B_N в КТ N3 сильно отличается от экспоненциального: затухание происходит значительно быстрее на начальном этапе, а затем сильно замедляется. Такой характер зависимости $B_N(t_{del})$ свидетельствует о доминирующем вкладе спиновой диффузии в спиновую релаксацию ядер в КТ — скорость деполяризации уменьшается по мере того как пространственное распределение B_N становится более однородным. Для описания процесса спиновой диффузии воспользуемся уравнением (5.1). Результат численного решения для КТ цилиндрической формы высотой 4 нм и диаметром 30 нм с коэффициентом диффузии, используемым в качестве подгоночного параметра, $D^{N3}\approx 2\cdot 10^{-15}$ см²/с для КТ N3 показан на рис. 5.5 (а) сплошной линией. Как видно, модель, учитывающая диффузию, описывает эксперимент лучше, чем экспоненциальная зависимость, характерная для динамики затухания пространственно-однородной поляризации. В положительно заряженной КТ N6 после наибольшей использованной задержки t_{del} =4000 с ядерная поляризация уменьшается лишь до половины своего начального значения $B_N(t_{del}=4000 \ c)\approx 0.5B_N(t_{del}=0)$, что не позволяет извлечь информацию о диффузионной составляющей в спиновой релаксации ядер в этой КТ.

На рисунке 5.5 (б) символами показаны экспериментальные зависимости $B_N(t_{del})$ еще для двух КТ InP/GaInP: для отрицательно заряженной КТ N4 и для нейтральной КТ N1. Пунктирными линиями на том же рисунке показаны результаты экспоненциальной аппроксимации. В отрицательно заряженной KT N4 наблюдается самое медленное затухание B_N с характерным временем $\tau_{dec}^{N4} \approx 5800$ с. В нейтральной точке зависимость $B_N(t_{del})$ описывается временной константой $\tau_{dec}^{N1} \approx 350$ с. Как уже отмечалось выше (см. раздел 5.2), накачка большой ядерной поляризации в нейтральных КТ возможна лишь при высоких плотностях возбуждения. В данном эксперименте, для нейтральной KT InP использовалась накачка мощностью $P_{pump} \approx 400$ мкВт, при которой ядерная поляризация может создаваться делокализованными носителями в смачивающем слое (см. раздел 3.2). Поэтому нельзя исключить, что поляризация индуцировалась не только в самой КТ, но и в окружающем ее материале (см. стр. 59), что могло привести к замедлению динамики затухания B_N по сравнению с положительно заряженной КТ N3.

На рисунке 5.6 показаны результаты измерения динамики затухания ядерной поляризации в еще одной отрицательно заряженной точке N5. В этой точке характер релаксации принципиально отличается от наблюда-



Рис. 5.6. Кинетика затухания ядерной поляризации в отрицательно заряженной KT N5 InP/GaInP в поле $B_z=8$ Тл. Сплошными (открытыми) символами показан результат эксперимента с σ^- (σ^+) поляризованными импульсами накачки

ющегося в рассмотренных выше КТ. Эксперимент был выполнен в большом магнитном поле $B_z=8$ Тл. Импульс накачки длительностью $t_{pump}=15$ с имел циркулярную поляризацию σ^+ или σ^- , причем циклы с противоположным знаком поляризации накачки чередовались, как описано в разделе 5.2. Для каждой задержки t_{del} ядерная поляризация измерялась в одном цикле с помощью тестирующего импульса длительностью $t_{probe}=0.15$ сек, так что каждая точка на рисунке 5.6 соответствует однократному измерению мгновенного значения ядерного поля в КТ.

Из рисунка 5.6 видно, что для обеих поляризаций накачки B_N практически не изменяется при задержках $t_{del} < 100$ с. При бо́льших задержках значения ядерной поляризации, измеренные по истечении времени t_{del} , разбросаны в пределах от 0 до величины сравнимой с величиной начальной поляризации $\sim B_N(t_{del}=0)$. Флуктуации $B_N(t_{del})$, наблюдаемые при больших задержках существенно превосходят экспериментальную погрешность измерения (≈ 0.15 Tл), и заметно больше разброса значений B_N , получаемых при коротких задержках.

Такой характер динамики затухания свидетельствует о существовании дискретного процесса, изменяющего режим затухания ядерного спина в КТ случайным образом. Полное описание процесса затухания не может быть дано функцией $B_N(t_{del})$, а должно описываться распределением вероятности $\xi(B_N, t_{del})$. Стоит отметить, что разброс значений B_N , получаемых в эксперименте на нейтральной точке при задержках $t_{del} \approx 100 \div 500$ с (см. рис. 5.5) превосходит экспериментальную погрешность и разброс B_N при малых задержках $t_{del} < 100$ с. Такой эффект, по-видимому, имеет схожее происхождение, хотя для данной нейтральной КТ выражен намного слабее, чем для отрицательно заряженной КТ N5.

В следующем разделе будут рассмотрены механизмы ядерной спиновой релаксации и проанализировано влияние зарядового состояния КТ на динамику затухания ядерного спина.

5.5. Подавление ядерной спиновой диффузии в полупроводниковых КТ (сравнение динамики затухания ядерной поляризации в различных материалах)

Рассмотрим возможное объяснение полученных в предыдущем разделе результатов. Для начала заметим, что в InP вклад полностью поляризованных ядер фосфора ³¹P в суммарный сдвиг Оверхаузера не превышает ~8% [80]. Следовательно, наблюдаемая в данной работе для InP степень поляризации ~50% является, в основном, результатом намагниченности ядер индия ¹¹⁵In. Из измерений в объемном InP n-типа при низких температурах было найдено, что время затухания ядерной поляризации для изотопа ¹¹⁵In составляет $\tau_{dec}\approx$ 450 с, причем релаксация обусловлена сверхтонким взаимодействием со свободными электронами [100]. Для полуизолирующего InP время релаксации, обусловленное взаимодействием с фононами, значительно больше и при низких температурах составляет $\tau_{dec}\approx$ 7000 с [101].

В квантовых точках могут существовать дополнительные механизмы ядерной релаксации. В работе [102], выполненной на структурах с диодами Шоттки, в поле B_z =0.22 Тл в отрицательно заряженных KT InGaAs (обратное смещение диода) наблюдалась очень быстрая релаксация B_N за время порядка нескольких миллисекунд. Изменение зарядового состояния КТ на нейтральное, приводило к увеличению времени релаксации до ~60 с. Быстрое исчезновение поляризации ядер в отрицательно заряженной КТ было приписано туннелированию электрона между состояниями в КТ и в электрическом контакте с характерным временем ~20 нс. Сверхтонкое взаимодействие спинов ядер и электрона в КТ приводит к затуханию ядерной поляризации. По существу такой процесс соответствует переносу спина от ядер в квантовой точке к равновесным электронам в контакте через резидентный электрон, являющийся промежуточным звеном.

Другим эффективным механизмом релаксации пространственно неоднородной ядерной поляризации в КТ является уже рассмотренная выше спиновая диффузия. Как было показано в разделе 5.3, в KT GaAs/AlGaAs утечка ядерной поляризации в поле $B_z=2$ Тл происходит за время ~60 с. С другой стороны, в недавней работе Малетинского и соавторов было найдено, что в нейтральной KT InGaAs/GaAs в поле $B_z=2$ Тл время жизни ядерной поляризации может достигать ~1 часа [31]. Наблюдаемая медленная релаксация была связана с подавлением диффузии на границе квантовой точки из-за наличия градиента электрических полей, возникающих под влиянием больших упругих напряжений (рассогласование решеток InGaAs и GaAs составляет $\sim 3\%$). Взаимодействие квадрупольных моментов ядер с неоднородными электрическими полями приводит к тому, что зеемановское расщепление соседних ядер становится различным (см. параграф 1.1.1), и их одновременный переворот, составляющий основу процесса спиновой диффузии, оказывается затруднен [97]. В исследованных в разделе 5.3 структурах GaAs/AlGaAs релаксация происходит намного быстрее, а значит эффект подавления диффузии за счет квадрупольного взаимодействия незначителен. Такое различие можно объяснить намного меньшим рассогласованием решеток GaAs и AlGaAs ~0.05% [103].

Из приведенных в предыдущем разделе 5.4 результатов следует, что время затухания ядерной поляризации в KT InP может достигать $\tau_{dec} \approx 5800$ с (отрицательно заряженная KT N4), что сравнимо с временем затухания в объемном материале. Такой результат свидетельствует о *подав*лении спиновой диффузии — основного механизма релаксации пространственно неоднородной поляризации. Из полученных результатов можно заключить, что практически полное подавление спиновой диффузии из KT характерно лишь для некоторых точек, поскольку время затухания спиновой поляризации ядер отличается в ~60 раз для различных KT в одном и том же образие (KT N4 и положительно заряженная KT N3). В частности, было показано, что быстрая релаксация ядер в положительно заряженной KT N3 имеет характер спиновой диффузии, несмотря на то, что рассогласование решеток InP и GaInP ~3% [104] сравнимо с рассогласованием InGaAs/GaAs, и следовало бы ожидать сравнимой величины квадрупольных эффектов. Кроме того, подробные исследования магнитофотолюминесценции (см. главу 3) свидетельствуют о том, что все KT InP имеют схожие энергии люминесценции и диамагнитные сдвиги (а значит, схожие размеры и химический состав), сравнимые величины расщеплений светлых и темных экситонов в нейтральных КТ (схожие величины асимметричного *e*-*h* обменного взаимодействия, вызванного рассогласованием решеток), примерно равные значения дырочного g-фактора в плоскости структуры (сравнимые величины смешивания тяжелых и легких дырок, вызванного понижением симметрии потенциала KT). В связи с этим следует ожидать схожие значения электрических градиентов, ответственных за квадрупольные эффекты, для всех КТ в одном и том же образце. Поэтому предположение о доминирующей роли квадрупольного взаимодействия плохо согласуется с наблюдаемым большим разбросом времен затухания ядерной поляризации от точки к точке.

В отрицательно заряженной КТ N5 скорость затухания ядерной поляризации варьируется случайным образом от измерения к измерению (рис. 5.6): B_N может затухать практически полностью за время t_{del} <200 с, в то время как в некоторых циклах "накачки-тестирования" существенная ядерная поляризация наблюдается при t_{del} >1000 с. Время релаксации свыше 1000 с свидетельствует о подавлении диффузии аналогично случаю отрицательно заряженной КТ N4. Большой разброс значений B_N , наблюдаемых в динамике затухания ядерной поляризации в КТ N5, не может быть результатом статистических флуктуаций, поскольку КТ состоит из большого числа ядер $N \sim 10^4 \div 10^5$. Наблюдаемый характер зависимости $B_N(t_{del})$, означает что в данной точке ядерная релаксация контролируется некоторым дискретным процессом, служащим спусковым механизмом для быстрого исчезновения спиновой намагниченности. Данное наблюдение, а также приведенный выше аргумент о сходстве структурных свойств различных КТ в одном образце, позволяют сделать заключение о том, что статическое квадрупольное взаимодействие вызванное асимметричными деформациями, рассмотренное в работах [31, 97], не может полностью объяснить экспериментальные результаты для квантовых точек InP/GaInP, изложенные в разделе 5.4.

Учитывая дискретный характер процесса релаксации ядерной намагниченности, обнаруженный в отрицательно заряженной КТ N5, можно предположить, что механизм релаксации *связан со случайной перезарядкой квантовой точки электроном*, изменяющей скорость деполяризации ядер. Спонтанному изменению заряда исследуемых квантовых точек может способствовать близость больших, полностью сформировавшиеся КТ (см. раздел. 2.1), в которых может накапливаться большое количество электронов [70]. Следует, однако, отметить, что эффект быстрой релаксации изза туннелирования электрона, обнаруженный в работе [102], невозможен в исследуемых структурах с КТ InP/GaInP без электрических контактов.

Альтернативный механизм влияния электрона, находящегося в КТ, на динамику релаксации ядер был рассмотрен в теоретической работе Дэнга и Ху [32]. Воздействие электрона на спины ядер может быть описано эффективным электронным полем B_e (полем Найта) которое пропорционально плотности электронной волновой функции в месте расположения ядра. Неоднородность электронного поля приводит к тому, что зеемановские расщепления ядер не совпадают (см. схему на рис. 5.7). Это в свою оче-



Рис. 5.7. Схема влияния неоднородного электронного поля на ядерные спины, приводящего к подавлению диффузии из-за изменения зеемановского расщепления ядер.

редь приводит к подавлению спиновой диффузии из квантовой точки из-за уменьшения вероятности одновременного переворота соседних спинов.

Величина найтовского поля может быть определена экспериментально из измерения зависимости ядерного поля $|B_N|$ от малого внешнего поля $|B_z| < 20$ мТл при возбуждении циркулярно поляризованным светом, как показано на рисунке 5.8 для отрицательно заряженной КТ N5. Когда для части ядер в квантовой точке внешнее магнитное поле компенсирует поле, созданное поляризованным электроном, спиновое расщепление таких ядер обращается в нуль. В результате ускоряется их деполяризация, приводящая к частичному уменьшению стационарного значения ядерного поля (<10%). Возбуждение светом с противоположными знаками циркулярной поляризации создает эффективное магнитное поле электрона вдоль оси Ог с обратными знаками. Расщепление $2\langle B_e \rangle$ между отрицательными пиками, наблюдаемыми в зависимостях $|B_N(B_z)|$ при σ^+ и σ^- поляризованном возбуждении, позволяет определить среднее найтовское поле $\langle B_e \rangle \approx 3$ мТл. Учитывая, что степень поляризации ФЛ, равная степени поляризации электрона в КТ, равна $\rho_c \approx -30\%$ находим, что абсолютная величина поля электрона, действующего на ядра, составляет $B_e \approx 10$ мТл. Если принять, что КТ имеет форму диска высотой $z_0=4$ нм и диаметром $d_0=30$ нм и для простоты считать, что найтовское поле равномерно меняется от своего максимального значения В_е в центре до нуля на границе, то для изменения найтовского поля B_e/l_0 на одну элементарную ячейку размером $l_0 \approx 0.5$ нм получим $\Delta B^z_e{\approx}2.5$ м Тл
и $\Delta B^{x,y}_e{\approx}0.33$ м Тл, для направления вдольOzи в плоскости



Рис. 5.8. Зависимость ядерного поля $|B_N|$ в КТ N5 при возбуждении σ^+ (квадраты) и σ^- (кружки) поляризованным светом. Расщепление пиков соответствует удвоенному среднему электронному полю $2B_e$.

структуры, соответственно. Полученные оценки поля, вызывающего различие зеемановского расщепления между соседними ядрами, превосходят локальное поле $B_L \sim 0.1$ мТл, определяющее уширение ядерных спиновых уровней. Таким образом, следует ожидать, что диффузия будет подавлена, и спины ядер и электрона будут образовывать замкнутую систему. Более полный расчет, использующий аналитические выражения для электронных волновых функций и процессы одновременного переворота ядер с участием электрона, был выполнен в работе [32]. Из вычислений было найдено, что под влиянием электрона уменьшение коэффициента диффузии может достигать ~ 100 раз.

Модель, учитывающая эффект найтовского поля, согласуется с предположением о том, что в отрицательно заряженной КТ N5 релаксация спинов ядер контролируется электроном. Действительно, если в промежутке времени между накачкой и детектированием электрон покидает квантовую точку, то релаксация ядер существенно ускоряется из-за спиновой диффузии. Напротив, если электрон все время находится в КТ, то поляризация ядер оказывается замороженной. В рамках такого подхода также можно объяснить очень большое время жизни ядерного спина в отрицательно заряженной КТ N4 ($\tau_{dec} \approx 5800$ с), а также быструю релаксацию в положительно заряженной КТ N3 и нейтральной КТ N1, не содержащих элек-

трона ($\tau_{dec}\approx95$ с и $\tau_{dec}\approx350$ с, соответственно. Бо́льшая величина τ_{dec} в нейтральной КТ объяснима, поскольку диффузия может быть несколько замедлена из-за использования накачки большой интенсивности, приводящей к поляризации ядер за пределами КТ, см. стр. 59). Однако из измерений скорости затухания ядерного спина в большом числе положительно заряженных точек было найдено, что и в таких точках время спиновой релаксации ядер может быть достаточно большим. Так в положительно заряженной КТ N6 наблюдается существенное подавление диффузии (время затухания $\tau_{dec}\approx4200$ с), что на первый взгляд противоречит предположению о стабилизирующей роли электрона. Заметим, что вне зависимости от действительной роли электрона (ускорение релаксации за счет туннелирования или подавление диффузии за счет найтовского поля), найденное различие времен затухания в ~45 раз в двух положительно заряженных КТ ставит под сомнение связь динамики релаксации и зарядового состояния квантовой точки.

Такое противоречие может быть разрешено, если предположить возможность перезарядки положительно заряженной KT N6 в промежуток времени, когда она не освещается лазером, аналогично случайной разрядке отрицательно заряженной KT N5 (см. рис. 5.6). Как уже было упомянуто выше, отсутствие электрического затвора является важным достоинством исследуемых структур, поскольку позволяет устранить быструю утечку спина в результате туннелирования электрона. Недостатком является невозможность надежно контролировать зарядовое состояние KT. В исследуемых структурах InP/GaInP оптическое возбуждение даже небольшой мощности может создавать электрические поля, которые могут изменять распределение зарядов локализованных в квантовых точках и на примесях в смачивающем слое [105] по сравнению с зарядовой конфигурацией в темноте. Поэтому для объяснения медленной ядерной релаксации в положительно заряженной KT N6 в рамках предложенной модели требуется предположить, что в отсутствие фотовозбуждения данная точка обратимым образом захватывает два электрона.

В поддержку данной гипотезы говорит то, что при достаточно высоком уровне накачки КТ N6 демонстрирует неустойчивость зарядового состояния. На рисунке 5.9 (а) показан спектр ФЛ из апертуры размером 800 нм, содержащей обе исследуемые положительно заряженные КТ (N3 и N6) при низкой накачке P_{exc} =10 мкВт. Временная эволюция спектра ФЛ при повышенной накачке (P_{exc} =200 мкВт) показана на контурном графике 5.9 (б). Из рисунка видно, что линия, соответствующая КТ N6, может полностью исчезать из спектра ФЛ, что сопровождается большим спектральным дрейфом [90] дополнительных линий. В то же время, люминесценция КТ N3 очень стабильна, ее интенсивность и спектральное положение оставались практически неизменными во время экспериментов общей длительностью более 1000 часов.



Рис. 5.9. (а) Спектр ФЛ из апертуры диаметром 800 нм содержащей две положительно заряженные КТ (N3 и N6) при низкой мощности возбуждения P_{exc} =10 мкВт. (б) Временная зависимость спектра ФЛ той же апертуры при высокой мощности возбуждения P_{exc} =200 мкВт (более темные участки соответствуют бо́льшей интенсивности ФЛ). КТ N6 и дополнительные линии, наблюдаемые при большой накачке, демонстрируют значительный спектральный дрейф, в то время как спектр КТ N3 стабилен во времени.

Следует отметить, что другие возможные объяснения длинного времени жизни ядерного спина, наблюдаемого в КТ N6, также наталкиваются на противоречия. Объяснение медленной ядерной спиновой динамики за счет квадрупольных эффектов требует предположить сильное различие величины упругих напряжений в разных КТ. Однако, такое объяснение маловероятно, поскольку КТ N3 и N6, демонстрирующие различие времен жизни ядерного спина в ~45 раз, имеют очень схожие структурные свойства (см. стр. 118). Замедление спиновой диффузии из-за более высокой пространственной однородности поляризации, вызванной оптической накачкой ядерного спина в близко расположенных КТ, также не может объяснить динамику затухания в КТ N6. Действительно, из-за большого соотношения латеральных размеров и высоты КТ доминирующей является диффузия в GaInP барьер. Накачка ядерной поляризации в окрестности КТ при использовании оптического возбуждения высокой плотности приводит к увеличению τ_{dec} с ≈95 с (положительно заряженная КТ N3) лишь до ≈350 с (нейтральная КТ N1), что намного меньше чем $\tau_{dec}\approx$ 4200 с в случае КТ N6.

Окончательное выяснение механизма подавления спиновой диффузии и проверка выдвинутого в данной работе предположения о стабилизирующем эффекте найтовского поля электрона требует дальнейших экспериментальных исследований и разработки полупроводниковых структур, позволяющих контролировать заряд квантовой точки при минимальном эффекте туннелирования. Возможным вариантом может быть использование структур с диодами Шоттки с большими промежуточными барьерами, или использование легированных структур без электрических контактов.

5.6. Выводы

В данной главе были получены следующие результаты:

— С помощью методики "накачка-тестирование" была измерена динамика оптического выстраивания ядерной поляризации в структурах с квантовыми точками GaAs/AlGaAs и InP/GaInP. Было установлено, что ключевым параметром, влияющим на скорость передачи спина ядрам от поляризованных электронов, является величина электронного спинового расщепления ΔE_e . Увеличение электронного спинового расщепления вызывает рост энергии, которая должна быть скомпенсирована при электронноядерном спин-флипе. В результате время выстраивания ядерной поляризации в квантовых точках InP/GaInP увеличивается с ~5 мс в нулевом поле до ~2 с при B=2 Тл. Зависимость электронного расщепления от ядерного поля приводит к обратной связи в системе спинов электронов и ядер. В результате в квантовых точках InP/GaInP в области малых полей $B_z=0.3\div1$ Тл в динамике выстраивания ядерных спинов наблюдается сильная нелинейность и асимметрия по отношению к знаку циркулярно поляризованного возбуждения.

— Экспериментально исследована динамика ядерной релаксации в нейтральных квантовых точках GaAs/AlGaAs, образованных флуктуациями толщины квантовой ямы. Найдено, что на гетерогранице происходит замедление спиновой диффузии в ~15 раз, обусловленное суммарным влиянием квадрупольного эффекта, вызванного деформациями и понижением симметрии, и увеличения расстояния между идентичными изотопами в AlGaAs барьере. Несмотря на частичное замедление, диффузия остается наиболее эффективным механизмом релаксации в данной структуре и приводит затуханию ядерной поляризации за время ≈60 с.

— Обнаружено, что в квантовых точках InP/GaInP время релаксации может достигать ≈6000 с, что свидетельствует о практически полном подавлении спиновой диффузии. Найдено, что эффективность такого подавления различается для индивидуальных точек: время затухания ядерной поляризации в одном и том же образце изменяется от точки к точке в пределах от 100 с до 6000 с. Кроме того, обнаружено, что в некоторых КТ наблюдается большой разброс в значениях ядерного поля, детектируемых после достаточно длительной задержки. Из анализа всего набора экспериментальных данных было сделано заключение о том, что механизм подавления спиновой диффузии не может быть описан одним лишь влиянием квадрупольных эффектов, связанных с деформациями решетки на

границе квантовой точки и барьера. Для описания полученных результатов была предложена модель, объясняющая подавление спиновой диффузии влиянием неоднородного найтовского поля электрона, находящегося в КТ. Данная модель позволяет объяснить экспериментальные данные, если предположить, что в некоторых КТ зарядовое состояние квантовой точки может изменяться при выключении оптического возбуждения. Дальнейшее уточнение влияния электрона на ядерную спиновую динамику требует изготовления структур, позволяющих более надежно контролировать зарядовое состояние точки и обеспечивающих малое туннелирование электрона между КТ и электрическим контактом.

Заключение

Выводы полученные в отдельных разделах диссертации подробно изложены в конце соответствующих глав. Ниже приведены основные результаты:

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

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 солидэффекта). 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 KT InP/GaInP насыщается на уровне ~65%, сравнимом с наибольшей степенью, полученной в предыдущих работах в KT 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 релаксации 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.

В заключение, автор хочет выразить благодарность своему научному руководителю В. Д. Кулаковскому за организацию исследовательской работы и обсуждение полученных результатов. Также хочу поблагодарить сотрудников ИФТТ РАН А. В. Горбунова и А. В. Ларионова за помощь в освоении экспериментальных методик и практические советы.

Работа была выполнена в тесном сотрудничестве с группой низкоразмерных полупроводниковых устройств (LDSD) под руководством профессора М. С. Школьника (М. S. Skolinck) в Университе в городе Шеффилд (Великобритания). Хочу поблагодарить А. И. Тартаковского приложившего значительные усилия для организации данного сотрудничиства и М. Н. Махонина за помощь в экспериментальной работе.

Литература

- S. Lloyd, "A Potentially Realizable Quantum Computer", Science 261, 1569 (1993).
- B. E. Kane, "A silicon-based nuclear spin quantum computer", Nature 393, 133 (1998).
- N. A. Gershenfeld and I. L. Chuang, "Bulk Spin-Resonance Quantum Computation", Science 275, 350 (1997).
- 4. D. Loss and D. P. DiVincenzo, "Quantum computation with quantum dots", Phys. Rev. A 57, 120 (1998).
- J. I. Cirac and P. Zoller, "Quantum Computations with Cold Trapped Ions", Phys. Rev. Lett. 74, 4091 (1995).
- 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).
- A. E. Dementyev, D. G. Cory, and C. Ramanathan, "Dynamic Nuclear Polarization in Silicon Microparticles", Phys. Rev. Lett. 100, 127601 (2008).
- H. Hayashi, K. M. Itoh, and L. S. Vlasenko, "Nuclear magnetic resonance linewidth and spin diffusion in [sup 29]Si isotopically controlled silicon", Phys. Rev. B 78, 153201 (2008).

- D. K. Wilson and G. Feher, "Electron spin resonance experiments on donors in silicon. III. Investigation of excited states by the application of uniaxial stress and their importance in relaxation processes.", Phys. Rev. 124, 1068 (1961).
- G. W. Morley, J. van Tol, A. Ardavan, K. Porfyrakis, J. Zhang, and G. A. D. Briggs, "Efficient Dynamic Nuclear Polarization at High Magnetic Fields", Phys. Rev. Lett. 98, 220501 (2007).
- 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).
- R. Hanson, V. V. Dobrovitski, A. E. Feiguin, O. Gywat, and D. D. Awschalom, "Coherent Dynamics of a Single Spin Interacting with an Adjustable Spin Bath", Science **320**, 352 (2008).
- F. Jelezko, T. Gaebel, I. Popa, M. Domhan, A. Gruber, and J. Wrachtrup, "Observation of Coherent Oscillation of a Single Nuclear Spin and Realization of a Two-Qubit Conditional Quantum Gate", Phys. Rev. Lett. 93, 130501 (2004).
- G. Burkard, D. Loss, and D. P. DiVincenzo, "Coupled quantum dots as quantum gates", Phys. Rev. B 59, 2070 (1999).
- L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse, and G. L. Roux, "Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices", Applied Physics Letters 47, 1099 (1985).
- D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer, and D. Park, "Fine Structure Splitting in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots", Phys. Rev. Lett. **76**, 3005 (1996).
- 17. L. P. Kouwenhoven, A. T. Johnson, N. C. van der Vaart, C. J. P. M.

Harmans, and C. T. Foxon, "Quantized current in a quantum-dot turnstile using oscillating tunnel barriers", Phys. Rev. Lett. **67**, 1626 (1991).

- F. H. L. Koppens, C. Buizert, K. J. Tielrooij, I. T. Vink, K. C. Nowack, T. Meunier, L. P. Kouwenhoven, and L. M. K. Vandersypen, "Driven coherent oscillations of a single electron spin in a quantum dot", Nature 442, 766 (2006).
- J. R. Petta, A. C. Johnson, J. M. Taylor, E. A. Laird, A. Yacoby, M. D. Lukin, C. M. Marcus, M. P. Hanson, and A. C. Gossard, "Coherent Manipulation of Coupled Electron Spins in Semiconductor Quantum Dots", Science **309**, 2180 (2005).
- 20. I. A. Merkulov, A. L. Efros, and M. Rosen, "Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots", Phys. Rev. B 65, 205309 (2002).
- A. V. Khaetskii, D. Loss, and L. Glazman, "Electron Spin Decoherence in Quantum Dots due to Interaction with Nuclei", Phys. Rev. Lett. 88, 186802 (2002).
- D. J. Reilly, J. M. Taylor, J. R. Petta, C. M. Marcus, M. P. Hanson, and A. C. Gossard, "Suppressing Spin Qubit Dephasing by Nuclear State Preparation", Science **321**, 817 (2008).
- H. Ribeiro and G. Burkard, "Nuclear State Preparation via Landau-Zener-Stückelberg Transitions in Double Quantum Dots", Phys. Rev. Lett. 102, 216802 (2009).
- D. Stepanenko, G. Burkard, G. Giedke, and A. Imamoglu, "Enhancement of Electron Spin Coherence by Optical Preparation of Nuclear Spins", Phys. Rev. Lett. 96, 136401 (2006).
- D. Klauser, W. A. Coish, and D. Loss, "Nuclear spin state narrowing via gate-controlled Rabi oscillations in a double quantum dot", Phys. Rev. B 73, 205302 (2006).

- A. Imamoğlu, E. Knill, L. Tian, and P. Zoller, "Optical Pumping of Quantum-Dot Nuclear Spins", Phys. Rev. Lett. 91, 017402 (2003).
- 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).
- B. Urbaszek, P.-F. Braun, T. Amand, O. Krebs, T. Belhadj, A. Lemaitre,
 P. Voisin, and X. Marie, "Efficient dynamical nuclear polarization in quantum dots: Temperature dependence", Phys. Rev. B 76, 201301 (2007).
- 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).
- 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).
- P. Maletinsky, M. Kroner, and A. Imamoglu, "Breakdown of the nuclear-spin-temperature approach in quantum-dot demagnetization experiments", Nature Phys. 5, 407 (2009).
- C. Deng and X. Hu, "Nuclear spin diffusion in quantum dots: Effects of inhomogeneous hyperfine interaction", Phys. Rev. B 72, 165333 (2005).
- 33. 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).

- 34. 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", Phys. Rev. Lett. 104, принято в печать (2010).
- I. I. Rabi, J. R. Zacharias, S. Millman, and P. Kusch, "A New Method of Measuring Nuclear Magnetic Moment", Phys. Rev. 53, 318 (1938).
- 36. E. M. Purcell, H. C. Torrey, and R. V. Pound, "Resonance Absorption by Nuclear Magnetic Moments in a Solid", Phys. Rev. **69**, 37 (1946).
- F. Bloch, W. W. Hansen, and M. Packard, "The Nuclear Induction Experiment", Phys. Rev. 70, 474 (1946).
- А. Абрагам, *Ядерный магнетизм* (Издательство Иностранной Литературы, Москва, 1963).
- E. M. Purcell and N. F. Ramsey, "On the Possibility of Electric Dipole Moments for Elementary Particles and Nuclei", Phys. Rev. 78, 807 (1950).
- S. K. Lamoreaux and R. Golub, "Experimental searches for the neutron electric dipole moment", Journal of Physics G: Nuclear and Particle Physics 36, 104002 (37pp) (2009).
- 41. Ч. Сликтер, *Основы теории магнитного резонанса* (Мир, Москва, 1981).
- 42. W. D. Knight, "Nuclear Magnetic Resonance Shift in Metals", Phys. Rev. 76, 1259 (1949).
- 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).
- 44. C. Testelin, F. Bernardot, B. Eble, and M. Chamarro, "Hole–spin dephasing time associated with hyperfine interaction in quantum dots", Phys. Rev. B 79, 195440 (2009).

- J. Fischer, W. A. Coish, D. V. Bulaev, and D. Loss, "Spin decoherence of a heavy hole coupled to nuclear spins in a quantum dot", Phys. Rev. B 78, 155329 (2008).
- B. D. Gerardot, D. Brunner, P. A. Dalgarno, P. Ohberg, S. Seidl, M. Kroner, K. Karrai, N. G. Stoltz, P. M. Petroff, and R. J. Warburton, "Optical pumping of a single hole spin in a quantum dot", Nature 451, 441 (2007).
- A. W. Overhauser, "Polarization of Nuclei in Metals", Phys. Rev. 92, 411 (1953).
- A. Abragam, "Overhauser Effect in Nonmetals", Phys. Rev. 98, 1729 (1955).
- A. Abragam and M. Goldman, "Principles of dynamic nuclear polarisation", Reports on Progress in Physics 41, 395 (1978).
- 50. J. A. McNeil and W. G. Clark, "Nuclear quadrupolar spin-lattice relaxation in some III-V compounds", Phys. Rev. B 13, 4705 (1976).
- Г. Р. Хуцишвили, "Спиновая диффузия", Успехи Физических Наук 87, 211 (1965).
- 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).
- 53. J. Y. Marzin, J. M. Gérard, A. Izraël, D. Barrier, and G. Bastard, "Photoluminescence of Single InAs Quantum Dots Obtained by Self-Organized Growth on GaAs", Phys. Rev. Lett. 73, 716 (1994).
- 54. B. Daudin, F. Widmann, G. Feuillet, Y. Samson, M. Arlery, and J. L. Rouvière, "Stranski-Krastanov growth mode during the molecular beam epitaxy of highly strained GaN", Phys. Rev. B 56, R7069 (1997).

- 55. K. Brunner, U. Bockelmann, G. Abstreiter, M. Walther, G. Böhm, G. Tränkle, and G. Weimann, "Photoluminescence from a single GaAs/AlGaAs quantum dot", Phys. Rev. Lett. 69, 3216 (1992).
- 56. R. J. Warburton, C. Schaflein, D. Haft, F. Bickel, A. Lorke, K. Karrai, J. M. Garcia, W. Schoenfeld, and P. M. Petroff, "Optical emission from a charge-tunable quantum ring", Nature 405, 926 (2000).
- 57. E. Ivchenko and G. Pikus, *Superlattices and Other Heterostructures:* Symmetry and Optical Phenomena (Springer-Verlag, New York, 1995).
- 58. Г. Л. Бир, Г. Е. Пикус, Симметрия и деформационные эффекты в полупроводниках (Наука, Москва, 1972).
- 59. A. V. Koudinov, I. A. Akimov, Y. G. Kusrayev, and F. Henneberger, "Optical and magnetic anisotropies of the hole states in Stranski-Krastanov quantum dots", Phys. Rev. B 70, 241305 (2004).
- 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).
- D. Gammon, S. W. Brown, E. S. Snow, T. A. Kennedy, D. S. Katzer, and D. Park, "Nuclear Spectroscopy in Single Quantum Dots: Nanoscopic Raman Scattering and Nuclear Magnetic Resonance", Science 277, 85 (1997).
- 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).
- Б. П. Захарченя, Ф. Майер, Оптическая ориентация (Наука, Ленинград, 1989).

- 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).
- 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).
- C. W. Lai, P. Maletinsky, A. Badolato, and A. Imamoglu, "Knight-Field-Enabled Nuclear Spin Polarization in Single Quantum Dots", Phys. Rev. Lett. 96, 167403 (2006).
- M. Kroutvar, Y. Ducommun, D. Heiss, M. Bichler, D. Schuh,
 G. Abstreiter, and J. J. Finley, "Optically programmable electron spin memory using semiconductor quantum dots", Nature 432, 81 (2004).
- D. Heiss, S. Schaeck, H. Huebl, M. Bichler, G. Abstreiter, J. J. Finley,
 D. V. Bulaev, and D. Loss, "Observation of extremely slow hole spin relaxation in self-assembled quantum dots", Phys. Rev. B 76, 241306 (2007).
- A. Greilich, A. Shabaev, D. R. Yakovlev, A. L. Efros, I. A. Yugova,
 D. Reuter, A. D. Wieck, and M. Bayer, "Nuclei-Induced Frequency Focusing of Electron Spin Coherence", Science **317**, 1896 (2007).
- 70. 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).
- G. J. Beirne, M. Reischle, R. Rosbach, W.-M. Schulz, M. Jetter, J. Seebeck, P. Gartner, C. Gies, F. Jahnke, and P. Michler, "Electronic shell

structure and carrier dynamics of high aspect ratio InP single quantum dots", Phys. Rev. B **75**, 195302 (2007).

- 72. M. Sopanen, H. Lipsanen, and J. Ahopelto, "Self-organized InP islands on (100) GaAs by metalorganic vapor phase epitaxy", Applied Physics Letters 67, 3768 (1995).
- V. D. Kulakovskii, G. Bacher, R. Weigand, T. Kümmell, A. Forchel,
 E. Borovitskaya, K. Leonardi, and D. Hommel, "Fine Structure of Biexciton Emission in Symmetric and Asymmetric CdSe/ZnSe Single Quantum Dots", Phys. Rev. Lett. 82, 1780 (1999).
- 74. L. Besombes, Y. Léger, L. Maingault, D. Ferrand, H. Mariette, and J. Cibert, "Probing the Spin State of a Single Magnetic Ion in an Individual Quantum Dot", Phys. Rev. Lett. 93, 207403 (2004).
- P. S. Dorozhkin, A. S. Brichkin, V. D. Kulakovskii, A. V. Chernenko, S. V. Zaitsev, S. V. Ivanov, and A. A. Toropov, "Electron-hole complexes in individual semimagnetic quantum dots", physica status solidi (a) 202, 2609 (2005).
- 76. Y. Masumoto, K. Toshiyuki, T. Suzuki, and M. Ikezawa, "Resonant spin orientation at the exciton level anticrossing in InP quantum dots", Phys. Rev. B 77, 115331 (2008).
- 77. S. Cortez, O. Krebs, S. Laurent, M. Senes, X. Marie, P. Voisin, R. Ferreira, G. Bastard, J.-M. Gérard, and T. Amand, "Optically Driven Spin Memory in *n*-Doped InAs-GaAs Quantum Dots", Phys. Rev. Lett. **89**, 207401 (2002).
- 78. S. Laurent, M. Senes, O. Krebs, V. K. Kalevich, B. Urbaszek, X. Marie, T. Amand, and P. Voisin, "Negative circular polarization as a general property of n-doped self-assembled InAs/GaAs quantum dots under nonresonant optical excitation", Phys. Rev. B 73, 235302 (2006).

- 79. Y. Masumoto, S. Oguchi, B. Pal, and M. Ikezawa, "Spin dephasing of doped electrons in charge-tunable InP quantum dots: Hanle-effect measurements", Phys. Rev. B 74, 205332 (2006).
- B. Gotschy, G. Denninger, H. Obloh, W. Wilkening, and J. Schnieder, "Overhauser shift and dynamic nuclear polarization in InP", Solid State Comunications 71, 629 (1989).
- 81. P. Maletinsky, C. W. Lai, A. Badolato, and A. Imamoglu, "Nonlinear dynamics of quantum dot nuclear spins", Phys. Rev. B **75**, 035409 (2007).
- J. J. Finley, A. D. Ashmore, A. Lemaître, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick,
 I. E. Itskevich, P. A. Maksym, M. Hopkinson, and T. F. Krauss, "Charged and neutral exciton complexes in individual self-assembled *In(Ga)As* quantum dots", Phys. Rev. B 63, 073307 (2001).
- В. Л. Коренев, "Динамическая Самополяризация Ядер в Низкоразмерных Системах", Письма в ЖЭТФ 70, 124 (1999).
- A. Russell, V. I. Fal'ko, A. I. Tartakovskii, and M. S. Skolnick, "Bistability of optically induced nuclear spin orientation in quantum dots", Phys. Rev. B 76, 195310 (2007).
- 85. E. Aubay and D. Gourier, "Magnetic bistability and Overhauser shift of conduction electrons in gallium oxide", Phys. Rev. B 47, 15023 (1993).
- 86. L. Binet and D. Gourier, "Bistable magnetic resonance of conduction electrons in InP", Phys. Rev. B 56, 2688 (1997).
- V. L. Korenev, "Nuclear Spin Nanomagnet in an Optically Excited Quantum Dot", Phys. Rev. Lett. 99, 256405 (2007).
- M. Atature, J. Dreiser, A. Badolato, A. Hogele, K. Karrai, and A. Imamoglu, "Quantum-Dot Spin-State Preparation with Near-Unity Fidelity", Science **312**, 551 (2006).

- M. Atature, J. Dreiser, A. Badolato, and A. Imamoglu, "Observation of Faraday rotation from a single confined spin", Nature Physics 3, 101 (2007).
- 90. J. Seufert, R. Weigand, G. Bacher, T. Kümmell, A. Forchel, K. Leonardi, and D. Hommel, "Spectral diffusion of the exciton transition in a single self-organized quantum dot", Applied Physics Letters 76, 1872 (2000).
- 91. J. Dreiser, M. Atatüre, C. Galland, T. Müller, A. Badolato, and A. Imamoglu, "Optical investigations of quantum dot spin dynamics as a function of external electric and magnetic fields", Phys. Rev. B 77, 075317 (2008).
- 92. Л. Мандель, Э. Вольф, Оптическая когерентность и квантовая оптика (Физматлит, Москва, 2000).
- D. Paget, T. Amand, and J.-P. Korb, "Light-induced nuclear quadrupolar relaxation in semiconductors", Phys. Rev. B 77, 245201 (2008).
- 94. L. M. Woods, T. L. Reinecke, and R. Kotlyar, "Hole spin relaxation in quantum dots", Phys. Rev. B 69, 125330 (2004).
- 95. T. Belhadj, T. Kuroda, C.-M. Simon, T. Amand, T. Mano, K. Sakoda, N. Koguchi, X. Marie, and B. Urbaszek, "Optically monitored nuclear spin dynamics in individual GaAs quantum dots grown by droplet epitaxy", Phys. Rev. B 78, 205325 (2008).
- 96. I. Toft and R. T. Phillips, "Hole g factors in GaAs quantum dots from the angular dependence of the spin fine structure", Phys. Rev. B 76, 033301 (2007).
- 97. 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).

- 98. S. E. Barrett, R. Tycko, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, "Directly detected nuclear magnetic resonance of optically pumped GaAs quantum wells", Phys. Rev. Lett. 72, 1368 (1994).
- 99. Y. Kondo, M. Ono, S. Matsuzaka, K. Morita, H. Sanada, Y. Ohno, and H. Ohno, "Multipulse Operation and Optical Detection of Nuclear Spin Coherence in a GaAs/AlGaAs Quantum Well", Phys. Rev. Lett. 101, 207601 (2008).
- 100. B. Clerjaud, F. Gendron, H. Obloh, J. Schneider, and W. Wilkening, "Effect of nuclear polarization on the conduction-electron spin resonance in InP", Phys. Rev. B 40, 2042 (1989).
- 101. C. A. Michal and R. Tycko, "Nuclear Spin Polarization Transfer with a Single Radio-Frequency Field in Optically Pumped Indium Phosphide", Phys. Rev. Lett. 81, 3988 (1998).
- 102. P. Maletinsky, A. Badolato, and A. Imamoglu, "Dynamics of Quantum Dot Nuclear Spin Polarization Controlled by a Single Electron", Phys. Rev. Lett. 99, 056804 (2007).
- 103. S. Adachi, "GaAs, AlAs, and $Al_xGa_{1-x}As$: Material parameters for use in research and device applications", Journal of Applied Physics **58**, R1 (1985).
- 104. A. Onton, M. R. Lorenz, and W. Reuter, "Electronic Structure and Luminescence Processes in $In_{1-x}Ga_xP$ Alloys", Journal of Applied Physics **42**, 3420 (1971).
- 105. A. Hartmann, Y. Ducommun, E. Kapon, U. Hohenester, and E. Molinari, "Few-Particle Effects in Semiconductor Quantum Dots: Observation of Multicharged Excitons", Phys. Rev. Lett. 84, 5648 (2000).