

Streszczenie rozprawy doktorskiej pt. "Własności układów dziurowych w kropkach kwantowych: mieszanie pasm walencyjnych, własności optyczne oraz spinowe"

mgr inż. Wojciech Julian Pasek

1 Negative trion emission spectrum in stacked quantum dots: External electric field and valence band mixing [Physical Review B 85, 085301 (2012)]

Ta praca zawiera opis badań teoretycznych ujemnie naładowanego trionu ekscytonowego związanego w podwójnej kropce kwantowej sterowanej zewnętrznym polem elektrycznym. Główną motywacją do przeprowadzenia badań było odnalezienie opisanego powyżej niewiążącego stanu podstawowego pojedynczej dziury. Postanowiliśmy sprawdzić w jaki sposób oddziaływanie kulombowskie pomiędzy nośnikami ładunku wpłynie na ten efekt. Poza ustaleniem samego charakteru stanu (funkcji falowej) istotne jest zagadnienie czy ślady fenomenu można by odnaleźć w widmie fotoluminescencyjnym, ponieważ otwierało to możliwość empirycznej weryfikacji zachowania układu pod tym względem. Skupiliśmy się na ekscytonach neutralnych i trionach, jako najprostszych kompleksach ekscytonowych. W tej pracy omówiono triony ujemne.

Elektron może być dobrze opisany za pomocą prostej skalarnej masy efektywnej. By uwzględnić procesy mieszania się pasm lekkiej i ciężkiej dziury, do opisanego układu potrzebowaliśmy co najmniej czteropasmowego hamiltonianu Kohna-Luttingera. Dla porównania prowadziliśmy też obliczenia dla drugiego modelu, w którym poszczególne pasma walencyjne są rozdzielone, a stan podstawowy ciężkiej dziury jest zawsze ściśle wiążący. Aby zachować zgodność naszych wyników z uzyskanymi wcześniej przyjęliśmy układ o takich samych wymiarach geometrycznych oraz wytworzony w identycznym materiale co w pracy [1]. Molekule kwantową tworzyły dwa płaskie dyski ze stopu arsenku galu z arsenkiem indu w otoczeniu arsenku galu, o wysokości w kierunku wzrostu 2 nm dla kropki dolnej, i 2.1 nm dla kropki górnej. Ta asymetria układu oddaje uwarunkowania procesu technologicznego osadzania kropek samorosnących. Promień obu z nich wynosił 10 nm. Funkcje stanów wielocząstkowych uzyskaliśmy za pomocą metody oddziaływania konfiguracji. Przyjęliśmy jednorodne zewnętrzne pole elektryczne (F), o kierunku zgodnym z osią z .

Zaczęliśmy od uzyskania widma energii dla pojedynczej dziury związanej w molekułę kwantowej w funkcji szerokości bariery (sekcja III A). Pozwoliło to na ustalenie charakterystycznej odległości pomiędzy kropkami (D_0), dla której następuje przełączenie wiążącego charakteru stanu podstawowego ($D < D_0$) na niewiążącego ($D > D_0$). Dalsze obliczenia prowadziliśmy dla parametrów układu odpowiadających temu drugiemu zakresowi.

W widmach energetycznych układów wielocząstkowych została szczegółowo omówiona rola pola elektrycznego, które powoduje separację nośników ładunku i zniesienie sprzężenia tunelowego (sekcja III B). W tym celu opracowaliśmy system diagramów pokazujących lokalizację cząstek dla poszczególnych linii widmowych ekscytonu i trionu, umożliwiającą śledzenie ich przepływu pomiędzy kropkami.

Okazało się, że niewiążący stan podstawowy dziury sprawia, że w widmie rekombinacji w trionach dla przypadku kropek silnie sprzężonych znajdują się poszukiwane sygnatury mieszania pasm walencyjnych. W przypadku modelu KL [Rys. 2 (a)] prawdopodobieństwo rekombinacji do stanu podstawowego elektronu w zakresie głównego odpychania poziomów, występującego w okolicach $F = 0$ posiada minimum, jeśli stan podstawowy trionu jest stanem początkowym. W tym samym miejscu obserwujemy maksimum dla początkowego pierwszego stanu wzbudzonego. Jest to odwrócenie sytuacji z którą mamy do czynienia w przypadku modelu rozdzielonych pasm [Rys. 2 (b)]. Ponadto zauważamy, że kształt widma trionu jest bardzo podobny do tego związanego z ekscytonem i różni się od niego jedynie niewielkimi przesunięciami na osiach energii i F .

Rozsuniecie kropek kwantowych tworzących molekułę powoduje osłabienie sprzężenia tunelowego i w konsekwencji efekty związane z niewiążącym stanem podstawowym dziury stają się zaniedbywalne (Rys. 3). Wobec tego obliczenia z użyciem obu modeli prowadzą do uzyskania tego samego charakterystycznego wzoru X -*pattern*, jak również tego samego względnego ułożenia linii rekombinacji ekscytonu i trionu. Wystąpienie tego układu linii wskazuje na dwa etapy dysocjacji trionu poprzez usunięcie kolejno dwóch elektronów z kropki zajmowanej przez dziurę. W przeciwieństwie do poprzedniego przypadku stwierdzamy, że widma rekombinacji ekscytonów i trionów są zupełnie różne w przypadku takiego układu. W szczególności dla obu modeli proces dysocjacji ujemnego trionu w stanie podstawowym, zachodzącej pod wpływem pola elektrycznego, odbywa

się jako proces dwuetapowy. Towarzysząca temu charakterystyczna linia rekombinacji została zaobserwowana eksperymentalnie [2].

Przeprowadziliśmy również obliczenia testowe dla molekuly składającej się z dwóch identycznych kropek (sekcja III C). Wyniki (Rys. 4) okazały się podobne do uzyskanych w przypadku poprzedniego układu, przy czym nastąpiło wzmocnienie wpływu niewiążącego charakteru stanu podstawowego pojedynczej dziury na widmo trionu. W zakresie silnego sprzężenia przy $F = 0$ prawdopodobieństwo rekombinacji w stanie podstawowym trionu do podstawowego stanu końcowego staje się równe dokładnie zero. Porównanie tej sytuacji z molekulą 2.0/2.1 nm pozwala stwierdzić, że pole elektryczne pełni rolę kompensującą asymetrię geometryczną, gdyż w tym drugim przypadku minimum rekombinacji w linii podstawowej występuje dla niezerowego F .

2 Optical signatures of valence-band mixing in positive trion recombination spectra of double quantum dots [Physical Review B 89, 245303 (2014)]

W tej pracy obliczyliśmy i opisaliśmy widma rekombinacyjne trionów dodatnich w molekuie kwantowej złożonej z dwóch kropek kwantowych sprzężonych w kierunku wzrostu, w zewnętrznym polu elektrycznym (F_z). Szukamy optycznych oznak mieszania pasm walencyjnych w liniach widmowych. Praca jest naturalną kontynuacją poprzedniej i rozszerza badanie na nowy rodzaj kompleksów ekscytonowych. Wobec tego parametry geometryczne układu i jego kompozycja są przyjęte identycznie, co poprzednio, dzięki czemu jest możliwe porównanie uzyskanych wyników.

Podobnie jak dla trionów ujemnych, obliczenia z użyciem hamiltonianu Kohna-Luttingera skonfrontowano z modelem skalarnej masy efektywnej, a układ z niewielką asymetrią z układem identycznych kropek. Opisaliśmy jakościowe zmiany w procesie dysocjacji trionu w zależności od modelu i szerokości bariery pomiędzy kropkami za pomocą występujących także w poprzedniej pracy diagramów ilustrujących lokalizację cząstek, a także klasyfikacji stanów trionu na trzy typy w zależności od ich względnego położenia. Odnotowaliśmy znaczące różnice pomiędzy wzorami rekombinacyjnymi uzyskanymi w obu przypadkach, najsilniejsze dla silnego sprzężenia (sekcja III A). Występuje zamiana maksimum z minimum prawdopodobieństwa rekombinacji w pobliżu $F_z = 0$ [Rys. 2 (a) względem 2 (b) oraz 4 (a) względem 4 (b)], związana z formowaniem się niewiążącego stanu podstawowego w układzie z hamiltonianem KL podobnie jak dla trionu ujemnego w poprzedniej pracy.

Niezdysocjowany stan trionu, to jest stan z wszystkimi cząstkami zlokalizowanymi w jednej kropce kwantowej, określiliśmy w naszej pracy terminem *united*. W przypadkach średniego (sekcja III D) i słabego sprzężenia tunelowego (sekcja III E) dla hamiltonianu Kohna-Luttingera linia widmowa związana z tym stanem jest "przesunięta ku fioletowi" (ang. blueshifted) względem poziomu ekscytonu z cząstkami zlokalizowanymi w tej samej kropce, podczas gdy jest "przesunięta ku czerwieni" (ang. redshifted) w przypadku rozdzielonych pasm. W zakresie słabego sprzężenia tunelowego występuje zgodność pomiędzy wzorem *X-pattern* obserwowanym eksperymentalnie [3] i wynikami dla KL [Rys. 5 (a) i Rys. 8 (a)], w przeciwieństwie do hamiltonianu z rozdzielonymi pasmami [Rys. 5 (b) i Rys. 8 (b)].

Sekcja III G, stanowi porównanie wyników otrzymanych dla dwóch rodzajów trionów. Pokazujemy, że tym co łączy obie odmiany tych kompleksów jest zjawisko odwrócenia minimum i maksimum prawdopodobieństwa, opisane powyżej. Odnotowujemy natomiast dwie różnice pomiędzy nimi. Pierwszą jest zmiana kolejności energetycznej linii rekombinacji prowadzącej z niezdysocjowanego stanu trionu do podstawowego stanu dziury względem linii ekscytonu. Drugą natomiast stanowi zmiana charakteru procesu dysocjacji trionu.

3 Spin exchange energy for a pair of valence band holes in artificial molecules [Semiconductor Science and Technology, 29, 115022-115031 (2014)]

W pracy zbadaliśmy wpływ mieszania pasm walencyjnych lekkich i ciężkich dziur na energię wymiany pary cząstek dodatnio naładowanych związanych w molekuie kwantowej, podobnej do układu z poprzednich publikacji. Sprawdziliśmy widmo energii układu w zewnętrznym polu elektrycznym zorientowanym równoległe do osi z . Jedną z motywacji do tych badań była publikacja [4], która dotyczy podobnego zagadnienia w podwójnych kropkach o kształcie piramid wykonanych z germanu w otoczeniu krzemu. Autorzy opisują znikanie energii wymiany i identyfikują źródło tego zjawiska w połączeniu mieszania pasm walencyjnych przez oddziaływanie spin-orbita z nierównoważnością energetyczną kropek składowych molekuly kwantowej,

wynikającą z odkształceń materiałowych (ang. strain). Wspomniana nierównoważność ma mieć takie znaczenie, że powoduje zniesienie sprzężenia tunelowego pomiędzy kropkami kwantowymi, wzmacniając lokalizację dziury w jednocząstkowym stanie podstawowym w jednej z kropek oraz w stanie wzbudzonym w drugiej z nich, przy parametrach układu odpowiadających wspomnianemu fenomenowi dwucząstkowemu.

Ustaliliśmy, że dla szerokości bariery odpowiadającej degeneracji wiążącego i niewiążącego stanu pojedynczej dziury (D_0), w układzie dwóch identycznych cząstek opisanej hamiltonianem Kohna-Luttingera również mamy do czynienia z degeneracją singlet-tryplet [Rys. 2 (a) oraz Rys. 3 "KL $F_z = 0$ "]. W przeciwieństwie do tego, w przypadku rozdzielonych pasm walencyjnych, zależność między energią wymiany a odległością pomiędzy kropkami jest dla tego zakresu odległości pomiędzy kropkami monotoniczna [Rys. 2 (b) oraz Rys. 3 "SS $F_z = 0$ "]. W naszym układzie kropki są identyczne. Posiada on więc symetrię względem odbicia w płaszczyźnie $z = 0$, potrzebne było nowe wytłumaczenie dla degeneracji singlet-tryplet. Za pomocą prostego hamiltonianu macierzowego udało nam się pokazać, że otrzymane w przypadku tego pierwszego modelu zjawisko jest efektem rozszczepienia sześciokrotnej degeneracji [widocznej na Rys. 2 (d)] zakorzenionej w efekcie jednocząstkowym [Rys. 2 (c)] przez oddziaływanie elektrostatyczne nośników ładunku [Rys. 2 (e)].

W istocie, w kontraście do wcześniej zaproponowanego wyjaśnienia, okazuje się, że asymetria układu, wprowadzona przez ustalone zewnętrzne pole elektryczne, nierównoważność energetyczna kropek nie umożliwia, a przeciwdziała omawianemu efektowi. Na kolejnych wykresach energii wymiany w funkcji odległości pomiędzy kropkami w modelu Kohna-Luttingera dla coraz silniejszej asymetrii układu [Rys. 3, linie "KL"] coraz słabiej zaznaczają się minima w okolicy D_0 . Analogiczne, choć znacznie słabsze działanie odnotowaliśmy w przypadku geometrycznej asymetrii kropek [Rys. 6]. Ponadto, zaobserwowaliśmy przejście pomiędzy dwoma sposobami zachowania się układu w pobliżu $D = D_0$, którego poszczególne etapy ilustruje seria wykresów. Poziomy trypletowe w pierwszym przypadku zdegenerowane są z podstawowym singletem [Rys. 2 (a)], natomiast wraz z wprowadzaniem do układu coraz silniejszego pola następuje ich oderwanie i stopniowe przeniesienie przez stadium pośrednie [Rys. 5 (a)] do singletu wzbudzonego [Rys. 5 (b)]. Ten proces związany jest też ze zmianą korelacji cząstek w stanie podstawowym ze stanu wyraźnie preferującego dziury rozdzielone w różnych kropkach [Rys. 4 (a)] na mocno preferujący jedną z kropek [Rys. 4 (b)].

Omówiliśmy także ewolucję widma energetycznego w układzie o ustalonych wymiarach geometrycznych, sterowanym zewnętrznym polem elektrycznym [Rys. 7]. Pokazaliśmy, że w warunkach degeneracji singlet-tryplet energia wymiany spinów staje się w szerokim przedziale ($-F_0, F_0$) niewrażliwa na zewnętrzne pole elektryczne, z towarzyszącym "wyplaszczaniem" stanu podstawowego [Rys. 7 (b)]. Natomiast poza tym szczególnym przypadkiem zależność jest bardzo wyraźna, a energia stanu podstawowego układu dwóch dziur przypomina parabolę w otoczeniu $F_z = 0$ [Rys. 7 (a) i (c)]. Przyczynę takiej zmiany zachowania znaleźliśmy w "zamknięciu" mijania poziomów energetycznych pojedynczej dziury dla $D = D_0$ [Rys. 8 (b)], który to *anticrossing* jest "otwarty" dla innej wartości szerokości bariery [Rys. 8 (a)]. Jest to znakiem znikania sprzężenia tunelowego, które jednak występuje - na co warto zwrócić uwagę - w tych wynikach w układzie zupełnie symetrycznym.

4 Valence band mixing versus higher harmonic generation in electric-dipole spin resonance [Semiconductor Science and Technology, 30, 055017-055026 (2015)]

W tej pracy badaliśmy przejścia rezonansowe pomiędzy stanami dziury w cylindrycznej kropce kwantowej, które są wywoływane przez zewnętrzne oscylujące w czasie pole elektryczne. Rozważany nanoukład w stanie niezaburzonym stanowi pojedyncza kropka z arsenku indu, wytworzona w oparciu o drut kwantowy (odpowiadający za uwięzienie boczne) z nałożonymi na niego elektrodami (których potencjał odpowiada za uwięzienie w kierunku wzrostu). Zaburzenie występuje w postaci pola elektrycznego zorientowanego według osi nanodrutu z .

Przebadaliśmy dwa rodzaje kropek kwantowych o różnych stosunkach promienia do wysokości. W przypadku układu o kształcie płaskiego dysku (sekcja 3.2) mamy do czynienia z rozdzieleniem się stanów z dużymi wkładami pasm lekkiej dziury i tymi o dominującym wkładzie pasm ciężkiej dziury. Wobec tego poprzez odpowiednią modulację częstotliwości zaburzającego pola elektrycznego można wywołać przejścia międzypasmowe typu lekka-ciężka dziura. Jednocześnie, z uwagi na ograniczoną wysokość kropki względna siła zaburzenia jest niewielka i uzyskane widmo jest dosyć proste, nie zawierające przejść ułamkowych. W przeciwnym przypadku kropki wydłużonej (sekcja 3.1) występuje istotne mieszanie się pasm walencyjnych i jednocześnie pojawienie się przejść ułamkowych (opisanych poniżej) spowodowane silnym zaburzeniem.

Ważną cechą stanu własnego hamiltonianu Kohna-Luttingera w układzie niezaburzonym jest określona z -chiralność, to jest układ parzystości wkładów poszczególnych pasm walencyjnych ze względu na odbicie

w płaszczyźnie $z = 0$ (patrz wzór 8 w publikacji). Okazuje się, że prawie wszystkie przejścia rezonansowe podlegają prostym regułom wyboru (sekcja 3.1.1), z których jedna dotyczy właśnie stosunku chiralności stanów początkowego i końcowego:

- Maksimum piku prawdopodobieństwa przejścia odpowiada częstotliwości modulacji pola elektrycznego opisanej równaniem:

$$\nu_{F_z} = \frac{E_{final} - E_{initial}}{h n_{trans}} \quad (1)$$

gdzie n_{trans} to dodatnia liczba naturalna.

- Jeśli stany początkowy i końcowy mają przeciwne z -chiralności, to jedynie przejścia z nieparzystym n_{trans} są dozwolone. Natomiast jeśli stany początkowy i końcowy mają takie same z -chiralności, to dozwolone są przejścia z parzystym n_{trans} .

Przejścia rezonansowe z $n_{trans} = 1$ nazywamy przejściami prostymi, a te z $n_{trans} > 1$ przejściami ułamkowymi, ponieważ ich częstotliwości odpowiadają danemu ułamkowi różnicy energii stanów początkowego i końcowego.

Zasadniczo wielkość pików zależy od dwóch czynników. Po pierwsze, dla ustalonych stanów początkowego i końcowego, silnie maleje ona wraz ze wzrostem n_{trans} . Po drugie, dla ustalonego nieparzystego n_{trans} zależy ona mocno od modułu wartości elementu macierzowego operatora \hat{z}' dla stanów pomiędzy którymi zachodzi przejście. \hat{z}' jest równy z wewnątrz kropki i zero poza nią. Należy odnotować, że jeśli stany początkowy i końcowy mają tę samą z -chiralność, wtedy odpowiedni element macierzowy równy jest zero. W takich przypadkach mechanizm przejścia jest bardziej skomplikowany i wymaga on dodatkowego sprzężenia za pośrednictwem pozostałych stanów, co odpowiada co najmniej drugiemu rzędowi rachunku zaburzeń. W efekcie piki takich przejść są względnie bardzo małe.

Jednakże znaleźliśmy i opisaliśmy także dodatkowe przejścia rezonansowe, których występowanie nie da się wyjaśnić za pomocą powyżej opisanych reguł (sekcja 3.1.2). Taka sytuacja może wystąpić, gdy energia charakterystyczna dla pewnego przejścia $\left(\frac{E_{final} - E_{initial}}{n_{trans}}\right)$ znajduje się w przedziale któregoś piku dozwolonego. Do możliwych efektów tego rodzaju zjawisk należą: pojawienie się pików przejść "zabronionych" ze względu na z -chiralność (czyli odstępstwa od drugiej reguły wyboru), wyraźne wzmocnienie bądź osłabienie pików, przesunięcia częstotliwości odpowiadających ich maksimum (to jest odstępstwa od pierwszej reguły wyboru).

Literatura

- [1] J. I. Climente, M. Korkusiński, G. Goldoni, P. Hawrylak, Phys. Rev. B **78**, 115323 (2008)
- [2] H. J. Krenner, E. C. Clark, T. Nakaoka, M. Bichler, C. Scheurer, G. Abstreiter, J. J. Finley, Phys.Rev.Lett. **97**, 076403 (2006)
- [3] M. Scheibner, M. F. Doty, I. V. Ponomarev, A. S. Bracker, E. A. Stinaff, V. L. Korenev, T. L. Reinecke, D. Gammon, Phys. Rev. B **75**, 245318 (2007)
- [4] A. I. Yakimov, A. A. Bloshkin, A. V. Dvurechenskii, Phys. Rev. B. **81**, 115434 (2010)