



Politechnika Wrocławska

ROZPRAWA DOKTORSKA

DZIEDZINA:

Nauki Ścisłe i Przyrodnicze

DYSCYPLINA:

Nauki Fizyczne

Badanie zjawisk koherencji w pojedynczych kropkach kwantowych na zakres telekomunikacyjny

AUTOR:

mgr inż. Maja Wasiluk

PROMOTOR:

dr hab. inż.
Wojciech Rudno-Rudziński

PROMOTOR POMOCNICZY:

dr inż. Anna Musiał

SŁOWA KLUCZOWE:

kropki kwantowe InAsP/InP, podczerwień telekomunikacyjna,
procesy dekoherencji w ciele stałym, źródła pojedynczych fotonów,
nierozróżnialność pojedynczych fotonów, efekt Honga-Ou-Mandela,
spin, efekt Hanlego

Wrocław 2026

Praca naukowa dofinansowana ze środków budżetu państwa w ramach programu
Ministra Edukacji i Nauki pod nazwą „Perły Nauki”, nr projektu: PN/01/0117/2022,
kwota dofinansowania: 239 910,00 zł, całkowita wartość projektu: 239 910,00 zł.



Minister
Edukacji i Nauki



*„Im Augenblick ist die Physik wieder schrecklich verworren.
Jedenfalls ist sie mir zu schwer, und ich wünschte,
ich wäre Filmkomiker oder so etwas geworden
und hätte nie etwas von Physik gehört.“*

– Wolfgang Pauli, list do Arnolda Sommerfelda, 1924

*„Where is truth if we can make statements about it that exclude each other?
Are we at all capable of recognizing the truth, and is there any sense
in occupying oneself with science at all? I have lost the conviction
that my work has led to any objective truth and I don't know
what I lived for; I only regret that I did not die five years ago
when everything still seemed clear to me.“*

– Hendrik Antoon Lorentz, według relacji A.F. Joffego, 1924

Podziękowania

Przygotowywanie rozprawy doktorskiej było dla mnie okresem intensywnej pracy naukowej, wypełnionym trudnościami i chwilami zwątpienia. Myśl, że nawet najwięksi fizycy doświadczali podobnych trudności, daje mi pewne pocieszenie. Chciałabym podziękować wszystkim, którzy przyczynili się do powstania niniejszej pracy.

W pierwszej kolejności chciałam podziękować mojemu Promotorowi, dr hab. inż. Wojciechowi Rudno-Rudzińskiemu, za opiekę i wsparcie na wszystkich etapach doktoratu, a także za poświęcony czas. Szczególnie dziękuję za liczne uwagi i poprawki, które pomogły mi lepiej formułować myśli oraz przedstawiać wyniki.

Szczególne podziękowania kieruję do mojej Promotor, dr inż. Anny Musiał. Była ona moją promotorką już podczas prac inżynierskiej i magisterskiej i przez wiele lat poświęcała ogrom czasu i energii mojej edukacji. Dziękuję za zaufanie, cierpliwość i wymagania, które pomogły mi się rozwijać.

Chciałabym również podziękować prof. Krzysztofowi Ryczko, który już na pierwszym roku studiów fizycznych dostrzegł we mnie potencjał i zaproponował mi możliwość pracy w laboratorium. Był to początek mojej drogi w fizyce eksperymentalnej.

Heleno, dziękuję Ci za pomoc w laboratorium. Szczególnie cenię to, że z takim samym entuzjazmem jak ja cieszyłaś się, kiedy w końcu udało nam się zmierzyć pierwszą, a rok później kolejną krzywą Hanlego.

Dziękuję mojej rodzinie za wsparcie i wiarę we mnie, a jednocześnie przepraszam, że to właśnie praca naukowa oddaliła mnie na setki kilometrów od Was.

Tosiu, dziękuję Ci za szydełkowanie, którego mnie nauczyłaś, dzięki któremu mogłam naprawdę skutecznie odpocząć od pracy, oraz za wszystkie wycieczki, konferencje i rozmowy w biurze. Dzięki Tobie przez te lata w moim życiu znalazło się miejsce również na rzeczy niezwiązane z nauką.

Und schließlich möchte ich meinem Freund Dominik danken. Danke, dass wir in meinen schwierigsten Momenten auch über alles andere als Physik und die Universität sprechen konnten. Und wenn ich doch über die Schwierigkeiten reden musste, war es besonders wertvoll, jemanden an meiner Seite zu haben, der sie aus eigener Erfahrung so gut versteht.

Dziękuję wszystkim, którzy byli częścią tej drogi.

Streszczenie

Dyskretne widmo energetyczne, które determinuje właściwości optyczne pojedynczych kropek kwantowych, oraz możliwość inicjalizacji i kontroli pojedynczego spinu nośnika sprawiają, że stanowią one jedną z najbardziej obiecujących platform do zastosowania w przetwarzaniu i przesyłaniu informacji kwantowej. Szczególne znaczenie mają kropki kwantowe emitujące w zakresie telekomunikacyjnym, ponieważ umożliwiają wykorzystanie istniejącej infrastruktury światłowodowej do transmisji informacji kwantowej. Jednym z kluczowych warunków zastosowania kropek kwantowych w tych technologiach jest długi czas koherencji nośników oraz ich spinów, czyli czas zachowania relacji fazowej pomiędzy stanami własnymi układu. Procesy prowadzące do utraty koherencji zależą zarówno od właściwości samych kropek, jak i od ich oddziaływania z otoczeniem, dlatego ich poznanie i kontrola stanowią istotne zagadnienie z punktu widzenia zastosowań w technologiach kwantowych.

Przedmiotem rozprawy doktorskiej jest doświadczalna analiza koherencji nośników i spinów nośników związanych w pojedynczych kropkach kwantowych emitujących w trzecim oknie telekomunikacyjnym oraz ocena ich przydatności do zastosowań w kwantowym przetwarzaniu informacji. W ramach pracy zbadano kropki kwantowe w układzie materiałowym InAs(P)/InP, wzrastane z wykorzystaniem różnych metod epitaksjalnych w trybie wzrostu Straskiego-Krastanowa.

Przed przystąpieniem do docelowych badań określono podstawowe właściwości optyczne i magnetooptyczne badanych kropek kwantowych, co pozwoliło na identyfikację kompleksów ekscytonowych oraz wyznaczenie ich g -czynników. Uzyskane informacje wykorzystano następnie w badaniach koherencji nośników poprzez interferencję dwufotonową w układzie Honga-Ou-Mandela oraz koherencji spinowej nośników z wykorzystaniem efektu Hanlego. Zbadano zależność obserwowanej nierozróżnialności fotonów od odstępu czasowego pomiędzy kolejnymi procesami wzbudzenia oraz od mocy wzbudzania. Określono czasy dekoherencji nośników oraz przeanalizowano wpływ warunków wzbudzania na obserwowaną koherencję. Dynamikę spinową pojedynczych nośników badano z wykorzystaniem efektu Hanlego, który umożliwił wyznaczenie czasów defazowania spinów nośników w pojedynczych kropkach kwantowych. Zbadano również zależność czasu defazowania od temperatury. Uzyskane wyniki pozwoliły określić wpływ warunków eksperymentalnych na procesy dekoherencji spinów pojedynczych nośników oraz wskazać mechanizmy mogące odpowiadać za obserwowany zanik koherencji.

Porównanie struktur otrzymanych różnymi metodami wzrostu epitaksjalnego wskazuje, że sama metoda wzrostu nie determinuje jednoznacznie badanych właściwości optycznych i spinowych, a uzyskane parametry są ze sobą porównywalne. Może to wynikać z faktu, że obie grupy kropek kwantowych wzrastane były w tym samym układzie materiałowym. Wyniki pracy pokazują, że pojedyncze kropki kwantowe emitujące w zakresie trzeciego okna telekomunikacyjnego emitują pojedyncze fotony oraz zachowują koherencję optyczną i spinową. Otrzymane rezultaty wskazują tym samym na ich potencjał jako źródła światła kwantowego oraz elementów przyszłych układów kwantowego przetwarzania informacji.

Abstract

The discrete energy spectrum that determines the optical properties of individual quantum dots, and the ability to initialize and control a single-carrier spin, make them one of the most promising platforms for quantum information processing and transmission. Quantum dots emitting in the telecommunication range are particularly important because they enable the use of the existing fiber-optic infrastructure to transmit quantum information. A key requirement for using quantum dots in these technologies is long coherence times of the carriers and their spins. The processes that lead to coherence loss depend on both the properties of the dots themselves and their interactions with the environment; therefore, understanding and controlling them is crucial for applications in quantum technologies.

The subject of this doctoral dissertation is the analysis of the coherence of carriers and carrier spins confined in single quantum dots emitting in the third telecommunication window and the assessment of their suitability for applications in quantum information processing. In this work, I investigated quantum dots in the InAs(P)/InP material system, grown using various epitaxial methods in the Stranski-Krastanov growth mode.

Prior to the main experiments, the basic optical and magneto-optical properties of the quantum dots were characterized, enabling the identification of exciton complexes and the determination of their g -factors. The information obtained was subsequently used to study carrier coherence via two-photon interference in a Hong-Ou-Mandel setup and carrier spin coherence using the Hanle effect. It was investigated how the observed photon indistinguishability depended on the time interval between successive excitation processes and on excitation power. The carrier decoherence time was determined, and the effect of excitation conditions on the observed coherence was analyzed. The spin dynamics of a single carrier was studied using the Hanle effect, which allowed for the determination of its spin dephasing time in a single quantum dot. The dependence of the dephasing time on temperature was also investigated. These results allowed for the determination of how experimental conditions influence single-carrier spin decoherence and the identification of mechanisms that may be responsible for the observed coherence loss.

Comparison of structures obtained using different epitaxial growth methods indicates that the growth method itself does not determine the optical and spin properties, and the obtained parameters are comparable. The results demonstrate that single quantum dots emitting in the third telecommunication window emit single photons and maintain optical and spin coherence. These results indicate their potential as quantum light sources and components of future quantum information processing systems.

Wprowadzenie

Rzeczywistość fizyki kwantowej umożliwił opis teoretyczny, a także badanie zjawisk zachodzących w skali mikro- i nanometrowej. Pomimo jej ponad stuletniej historii, opis wielu układów kwantowych oraz zachodzących w nich procesów nadal stanowi przedmiot intensywnych badań. Szczególne znaczenie mają zjawiska wynikające z superpozycji stanów, koherencji kwantowej oraz kwantowego charakteru oddziaływań między układem a jego otoczeniem. Ich poznanie jest istotne zarówno z punktu widzenia badań podstawowych, jak i rozwoju technologii wykorzystujących właściwości układów kwantowych.

Wśród obszarów, w których efekty kwantowe znajdują zastosowanie, szczególne znaczenie ma przetwarzanie i przesyłanie informacji. Technologie kwantowe umożliwiają wykorzystanie superpozycji i splątania do realizacji nowych metod przetwarzania informacji, komunikacji oraz kryptografii. W niniejszej rozprawie skupiono się na badaniu półprzewodnikowych kropek kwantowych InAs(P)/InP, emitujących w zakresie III okna telekomunikacyjnego, ze względu na ich potencjał aplikacyjny jako emiterzy nieklasycznego światła w komunikacji i kryptografii kwantowej oraz jako kubity i pamięci spinowe w kwantowym przetwarzaniu informacji.

Celem niniejszej rozprawy doktorskiej była weryfikacja potencjału aplikacyjnego badanych struktur kwazierowymiarowych oraz określenie mechanizmów ograniczających ich koherencję. Do realizacji tego celu potrzebne było zaprojektowanie i zbudowanie dwóch układów pomiarowych. Pierwszy z nich posłużył do obserwacji efektu Honga-Ou-Mandela poprzez interferencję dwufotonową, a drugi — do pomiaru efektu Hanlego. W ramach pracy rozszerzono zakres eksperymentów możliwych do przeprowadzenia w Laboratorium Optycznej Spektroskopii Nanostruktur, działającym na Wydziale Podstawowych Problemów Techniki Politechniki Wrocławskiej. Autorka pracy była odpowiedzialna za zaprojektowanie oraz złożenie układów pomiarowych lub ich części, a także za przeprowadzanie pomiarów z ich użyciem. Przedmiotem badań były kropki kwantowe InAs(P)/InP emitujące w zakresie III okna telekomunikacyjnego. Badano dwie grupy struktur różniące się metodą wzrostu. Pierwsza próbka była wzrastana metodą epitaksji z wiązek molekularnych na Uniwersytecie w Kassel, a druga metodą epitaksji z fazy gazowej z użyciem związków metaloorganicznych na Duńskim Uniwersytecie Technicznym.

Opierając się na przedstawionym problemie badawczym oraz celach pracy sformułowano następujące tezy, których weryfikacja została przeprowadzona na podstawie wyników badań eksperymentalnych:

- Na podstawie pomiarów interferencji Honga-Ou-Mandela możliwe jest wyznaczenie czasów dekoherencji nośników w kropkach kwantowych InAs(P)/InP wzrastanych metodami epitaksji.
- Efekt Hanlego umożliwia wyznaczenie czasu defazowania spinu pojedynczego nośnika w kropce kwantowej emitującej w zakresie telekomunikacyjnym.
- Rodzaj zastosowanej metody epitaksjalnego wzrostu w trybie Stranckiego-Krastanowa

nie determinuje jednoznacznie właściwości badanych kropek kwantowych w zakresie ich parametrów optycznych i spinowych.

- Badane kropki kwantowe, emitujące w trzecim oknie telekomunikacyjnym, stanowią obiecującą platformę dla zastosowań w kwantowym przetwarzaniu informacji.
- Czas dekoherencji nośników w kropkach kwantowych jest determinowany zarówno przez ich oddziaływanie z otoczeniem, jak i przez dynamikę tego oddziaływania.
- Warunki wzbudzania, w szczególności energia i moc promieniowania wzbudzającego, wpływają na dynamikę oraz dekoherencję nośników i ich spinów w kropkach kwantowych.

Rozprawa składa się z sześciu głównych rozdziałów. Rozdział 1. służy jako wprowadzenie do fizyki kropek kwantowych, wyjaśnia metody ich wytwarzania, opisuje najważniejsze właściwości optyczne wymagane do zrozumienia dalszej części rozprawy oraz podkreśla ich znaczenia w kontekście zastosowań w technologiach kwantowych. W rozdziale 2. przedstawiono definicję koherencji nośników i ich spinów w kropkach kwantowych oraz metody jej określenia, w szczególności pomiar efektu Honga-Ou-Mandela i efektu Hanlego. W rozdziale 3. opisano dokładnie układy pomiarowe, które zostały przygotowane na potrzeby niniejszych badań oraz struktury, które były ich przedmiotem. Rozdziały 4. i 5. zawierają wyniki odpowiednio efektu Honga-Ou-Mandela i efektu Hanlego dla obu próbek oddzielnie, poprzedzone wynikami niezbędnych wstępnych pomiarów optycznych uzasadniających wybór badanych struktur i warunków pomiaru. Przedstawiono również wyniki pomiarów funkcji autokorelacji drugiego rzędu oraz wyniki prowadzące do wyznaczenia g -czynnika, które niezbędne były do poprawnej analizy wyników odpowiednio interferencji dwufotonowej i pomiaru efektu Hanlego. W rozdziale 6. podsumowano wyniki pomiarów dla obu badanych próbek oraz wysunięto wnioski odnośnie otrzymanych rezultatów identyfikując dominujące mechanizmy dekoherencji w kropkach kwantowych InAs(P)/InP.

Spis treści

Streszczenie	III
Abstract	V
Wprowadzenie	VII
Spis treści	IX
1 Kropki kwantowe i ich właściwości	1
1.1 Metody wytwarzania kropek kwantowych oraz ich morfologia.....	1
1.2 Właściwości półprzewodnikowych kropek kwantowych.....	4
1.2.1 Struktura energetyczna	4
1.2.2 Reguły wyboru dla międzypasmowych przejść optycznych	6
1.2.3 Kompleksy ekscytonowe	7
1.2.4 Struktura subtelna	9
1.2.5 Polaryzacja emisji i optyczna orientacja spinów nośników	10
1.2.6 Wzbudzenie optyczne i relaksacja energetyczna nośników	11
1.2.7 Magnetoptyczne właściwości kropek kwantowych.....	13
1.3 Zastosowania pojedynczych kropek kwantowych.....	17
1.3.1 Komunikacja i kryptografia kwantowa	17
1.3.2 Kwantowe przetwarzanie informacji	19
2 Koherencja i metody mierzenia jej charakterystycznych czasów	21
2.1 Pojęcie koherencji w układach dwupoziomowych	21
2.2 Emisja jednofotonowa i koherencja nośników w kropkach kwantowych	23
2.2.1 Pomiar prawdopodobieństwa emisji wielofotonowej	24
2.2.2 Interferencja dwufotonowa	26
2.2.3 Wybrane wyniki eksperymentalne	30
2.3 Koherencja spinów nośników związanych w kropkach kwantowych	32
2.3.1 Wybrane metody pomiaru koherencji spinowej	34
2.3.2 Pomiar efektu Hanlego	37
2.3.3 Wybrane wyniki eksperymentalne	41
3 Szczegóły eksperymentalne	43
3.1 Układy pomiarowe	43
3.1.1 Interferencja dwufotonowa	43
3.1.2 Efekt Hanlego	45
3.2 Badane struktury.....	48
3.2.1 Kropki kwantowe InAs(P)/InP wzrastane metodą MBE	49
3.2.2 Kropki kwantowe InAs(P)/InP wzrastane metodą MOVPE	50
4 Koherencja nośników w pojedynczych kropkach kwantowych	53
4.1 Kropki kwantowe InAs(P)/InP wzrastane metodą MBE.....	53
4.1.1 Wstępne pomiary optyczne.....	53

4.1.2	Prawdopodobieństwo emisji wielofotonowej.....	57
4.1.3	Widoczność interferencji dwufotonowej i koherencja emitera.....	60
4.2	Kropki kwantowe InAs(P)/InP wzrastane metodą MOVPE.....	67
4.2.1	Wstępne pomiary optyczne.....	67
4.2.2	Prawdopodobieństwo emisji wielofotonowej.....	68
4.2.3	Widoczność interferencji dwufotonowej i koherencja emitera.....	70
4.3	Podsumowanie i porównanie wyników dla obu struktur.....	76
5	Koherencja pojedynczych spinów nośników	81
5.1	Kropki kwantowe InAs(P)/InP wzrastane metodą MBE.....	81
5.1.1	Wstępne pomiary optyczne.....	81
5.1.2	Efekt Hanlego	87
5.2	Kropki kwantowe InAs(P)/InP wzrastane metodą MOVPE.....	97
5.3	Podsumowanie wyników pomiaru efektu Hanlego	100
6	Podsumowanie	107
	Spis rysunków	121
	Spis tabel	123
	Lista publikacji	125
	Lista wystąpień konferencyjnych	127

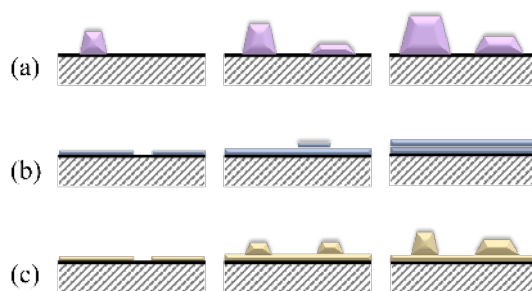
1. Kropki kwantowe i ich właściwości

W 1982 roku przewidziano, że ograniczenie ruchu nośników w półprzewodniku w trzech wymiarach prowadzi do zasadniczych zmian jego właściwości elektronowych i optycznych. Gdy rozmiar struktury staje się porównywalny z długością fali de Broglie'a nośników, ciągle pasma energetyczne ulegają dyskretyzacji, czemu towarzyszy istotna modyfikacja funkcji gęstości stanów. W przypadku ograniczenia w trzech wymiarach gęstość stanów przyjmuje postać sumy funkcji typu delty Diraca odpowiadających dyskretnym poziomom energetycznym. Powstałe w ten sposób kropki kwantowe charakteryzują się całkowicie skwantowaną drabinką stanów energetycznych, przypominającą atomowe widmo energii.¹ W niniejszym rozdziale przedstawiono metody wytwarzania oraz podstawowe właściwości epitaksjalnych kropek kwantowych o strukturze pasm energetycznych typu I, które są przedmiotem niniejszych badań, oraz ich wybrane zastosowania w technologiach kwantowych.

1.1 Metody wytwarzania kropek kwantowych oraz ich morfologia

Istnieją dwie główne grupy kropek kwantowych obecnie rozwijanych zarówno w kręgach naukowych, jak i w różnych gałęziach przemysłu. Koloidalne kropki kwantowe wytwarzane metodami fizyko-chemicznymi powstają w wyniku wytrącania kryształów o rozmiarach nanometrycznych z roztworu. Istnieje wiele różnych metod ich syntezy, w wyniku których otrzymuje się nanokryształy o różnych kształtach i rozmiarach. W przypadku gdy źródłem ograniczenia kwantowego dla nośników jest powierzchnia nanokryształu, dużą rolę odgrywają defekty powierzchniowe oraz obecność niezwiązanych elektronów na powierzchni. Prowadzi to do zmniejszenia efektywności kwantowej luminescencji. Zastosowanie powłoki z dodatkowego materiału o większej przerwie energetycznej, otaczającego nanokryształ półprzewodnikowy o mniejszej przerwie energetycznej, redukuje wpływ efektów powierzchniowych, a co za tym idzie, zwiększa wydajność kwantową emisji z kropki kwantowej. Koloidalne kropki kwantowe cechują się bardzo małymi rozmiarami, rzędu kilku nanometrów, symetrycznym kształtem (często sferycznym) oraz dobrą rozpuszczalnością w wodzie. Znalazły zastosowanie w biologii i medycynie, np. jako znaczniki komórek nowotworowych, natomiast ich implementację w przemyśle półprzewodnikowym ogranicza trudność w integracji z układami elektronicznymi.

Z tego względu w optoelektronice i optyce kwantowej dominują kropki epitaksjalne, które łączą wysoką jakość struktury krystalicznej z możliwością integracji z rozwiniętą technologią półprzewodnikową. Epitaksja (z ang. *epitaxy*) jest techniką osadzania pojedynczych warstw materiału półprzewodnikowego na krystalicznym podłożu. W zależności od materiału podłoża i osadzonej warstwy wyróżnia się homoepitaksję oraz heteroepitaksję. W przypadku hetero-



Rysunek 1.1: Schemat wzrostu epitaksyjnego w trzech trybach. (a) Tryb Volmera-Webera. (b) Tryb Franka-van der Merwego. (c) Tryb Straskiego-Krastanowa

epitaksji stałe sieci tych materiałów różnią się od siebie, co powoduje odkształcenia w warstwie osadzonej. Istnieje kilka metod epitaksyjnego wzrostu kropek kwantowych, m.in.: epitaksja z wiązek molekularnych (z ang. *molecular beam epitaxy* — MBE), epitaksja z fazy ciekłej (z ang. *liquid-phase epitaxy* — LPE), epitaksja z fazy gazowej (z ang. *vapour-phase epitaxy* — VPE) oraz jej odmiana — epitaksja z fazy gazowej z użyciem związków metaloorganicznych (z ang. *metal-organic vapour phase epitaxy* — MOVPE). Obecnie wytwarzanie kropek kwantowych najczęściej odbywa się na drodze samoorganizacji za pomocą techniki MBE lub MOVPE.

W zależności od stopnia niedopasowania stałych sieci nanoszonego kryształu i podłoża oraz od ich energii powierzchniowych obserwuje się różne zachowanie osadzanego materiału. Można mówić o trzech najważniejszych trybach wzrostu, które schematycznie przedstawiono na rys. 1.1. Wzrost w trybie Volmera-Webera polega na tworzeniu się zarodków z pojedynczych atomów, które następnie rosną i formują wyspy. Dzieje się tak, ponieważ energia adhezji jest większa niż energia kohezji. Przeciwnie zachowanie obserwuje się przy wzroście typu Franka-van der Merwego, w którym osadzone atomy są silniej związane z podłożem. Wzrost materiału na powierzchni kryształu następuje warstwa po warstwie, przy czym każda kolejna warstwa wzrasta ze stałą sieci dopasowaną do podłoża. Z kolei tryb Straskiego-Krastanowa (w którym różnice stałych sieci są w zakresie około 2–7%) polega na początkowym wzroście kilku monowarstw tworzących tzw. warstwę zwilżającą (z ang. *wetting layer*), a następnie na formowaniu się wysp. W pierwszym etapie wzrostu materiał osadzany dopasowuje swoją sieć krystaliczną do stałej sieci podłoża. Po przekroczeniu pewnej grubości, określanej grubością krytyczną, tworzą się trójwymiarowe wyspy będące prekursorem samoorganizujących się kropek kwantowych, które po przykryciu materiałem bariery tworzą struktury zdolne do przestrzennego ograniczenia nośników ładunku. W tej pracy badane są struktury wytworzone metodami epitaksji MBE oraz MOVPE, powstałe na drodze samoorganizacji w trybie Straskiego-Krastanowa, dlatego poniżej omówione zostaną dokładniej te grupy struktur.

Odształcenia wynikające z niedopasowania stałych sieciowych są podstawowym czynnikiem odpowiedzialnym za przejście od wzrostu dwuwymiarowego do tworzenia trójwymiarowych wysp w trybie Straskiego-Krastanowa. Początkowo na podłożu tworzy się cienka warstwa zwilżająca, której wzrost jest energetycznie korzystny dzięki bilansowi energii powierzchniowych i międzyfazowych. Wraz ze wzrostem grubości warstwy narasta energia sprężysta związana z odkształceniem sieci krystalicznej. Po przekroczeniu grubości krytycznej korzystniejsze energetycznie staje się utworzenie trójwymiarowych wysp, w których naprężenia mogą zostać częściowo zreleksowane.

Najbardziej typowy układ materiałowy używany do formowania kropek kwantowych w trybie wzrostu Straskiego-Krastanowa to InAs osadzany na podłożu z GaAs. InAs ma większą

stałą sieci niż GaAs, co powoduje niedopasowanie sieci na poziomie $\sim 7,2\%$. Początkowo InAs tworzy warstwę zwilżającą na GaAs. Po osiągnięciu grubości krytycznej $\sim 1,7$ monowarstwy (w przypadku czystego InAs) z powodu energii odkształcenia spowodowanej niedopasowaniem sieci zmienia się morfologia wzrostu z warstw na wyspy. W przypadku InAs wzrastającego na InP niedopasowanie sieciowe wynosi $\sim 3,2\%$. W tym układzie przejście od wzrostu dwuwymiarowego do formowania trójwymiarowych wysp następuje zazwyczaj po osadzeniu około 2,5–3,5 monowarstwy materiału, przy czym dokładna wartość grubości krytycznej zależy od parametrów wzrostu. Mniejsze niedopasowanie sieciowe w porównaniu do InAs/GaAs pozwala osiągnąć większe kropki kwantowe i mniej odkształcone, co obniża energię emisji.²

W metodzie MBE cały proces wzrostu odbywa się w warunkach ultrawysokiej próżni (10^{-7} – 10^{-10} Pa). Źródłem wiązek molekularnych lub atomowych są komórki efuzyjne (Knudsen), w których znajdują się pierwiastki w stanie stałym o wysokiej czystości ($\sim 99,9999\%$). Podczas procesu wzrostu są podgrzewane do temperatury sublimacji. Utworzona w ten sposób wiązka molekularna jest kierowana w stronę podłoża. Niezależna kontrola strumieni poszczególnych pierwiastków umożliwia precyzyjne sterowanie składem chemicznym, domieszkowaniem oraz grubością osadzanych warstw. Zaletami metody MBE są przede wszystkim możliwość wytworzenia zaawansowanych materiałów o wysokiej jakości sieci krystalicznej, dokładna kontrola składu i grubości warstw oraz powtarzalność procesu. Główną wadą tego wzrostu jest wysoki koszt i niska szybkość osadzania.² W technice wzrostu MOVPE prekursorami są związki metaloorganiczne oraz wodorki pierwiastków grup III i V. W przeciwieństwie do MBE, wzrost zachodzi dzięki reakcjom chemicznym na powierzchni ogrzewanego podłoża. Metoda MOVPE umożliwia otrzymywanie względnie wysokiej jakości warstw epitaksjalnych przy znacznie większej szybkości wzrostu i jest powszechnie stosowana do produkcji struktur półprzewodnikowych.

Alternatywę dla wzrostu w trybie Stranckiego–Krastanowa stanowią inne metody równolegle rozwijane, takie jak epitaksja kropelkowa (z ang. *droplet epitaxy* — *DE*) oraz epitaksja poprzedzona trawieniem kropelkowym (z ang. *local droplet etching epitaxy* — *LDE*). Umożliwiają one otrzymywanie kropek kwantowych bez tworzenia warstwy zwilżającej oraz zapewniają niezależną kontrolę rozmiaru i gęstości powierzchniowej struktur na etapie formowania kropli. Dodatkową zaletą tych technik jest możliwość wytwarzania kropek kwantowych zarówno z materiałów dopasowanych sieciowo do podłoża, jak i z materiałów o znacznym niedopasowaniu stałych sieciowych. W obu przypadkach można uzyskać kropki kwantowe bez odkształceń i o wysokiej symetrii. Z kolei losowy charakter nukleacji wysp w trybie Stranckiego–Krastanowa powoduje, że uzyskiwane kropki wykazują rozrzut rozmiarów, typowo rzędu 10%, zależny od temperatury wzrostu, ilości zdeponowanego materiału oraz kinetyki dyfuzji powierzchniowej. Rozrzut ten przekłada się bezpośrednio na niejednorodność energii emisji zespołu kropek kwantowych. Geometrię kropek na powierzchni można charakteryzować m.in. za pomocą mikroskopii sił atomowych lub skaningowej mikroskopii elektronowej. Metody te pozwalają określić rozmiar i kształt kropek przed ich przykryciem warstwą bariery. Do badania struktury kropek po przykryciu można natomiast wykorzystać transmisyjną mikroskopię elektronową, jednak wymaga ona destrukcyjnego przygotowania próbki. Ponadto losowe rozmieszczenie kropek na powierzchni utrudnia powiązanie ich struktury przed i po przykryciu. Procesy dyfuzji odgrywają istotną rolę w kształtowaniu ostatecznej geometrii i składu kropek kwantowych. W wielu przypadkach kropki wykazują również wydłużenie wzdłuż określonego kierunku w płaszczyźnie wzrostu, związane z anizotropią dyfuzji powierzchniowej wynikającą z orientacji krystalograficznej podłoża.³ Zarówno asymetria w płaszczyźnie wzrostu, jak i odkształcenia prowadzące do naprężeń wpływają na właściwości kropek kwantowych, o czym więcej w kolejnych częściach tego rozdziału.

1.2 Właściwości półprzewodnikowych kropek kwantowych

1.2.1 Struktura energetyczna

Gęstość stanów w półprzewodniku zależy od wymiarowości układu, gdyż ograniczenie ruchu nośników w określonych kierunkach prowadzi do zmniejszenia liczby stopni swobody w przestrzeni wektorów falowych k . Dla parabolicznej zależności dyspersyjnej gęstość stanów w układzie o i swobodnych wymiarach jest proporcjonalna do $\epsilon^{i/2-1}$, gdzie ϵ jest energią mierzoną od krawędzi pasma przewodnictwa. Zatem funkcja gęstości stanów elektronowych $\rho_c^{(i)}(\epsilon)$ dla i -wymiarowego półprzewodnika jest wyrażona przez:

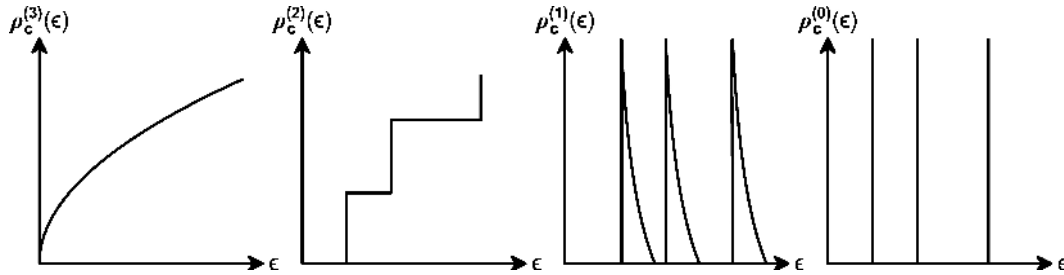
$$\rho_c^{(3)}(\epsilon) = \frac{(2m^*/\hbar^2)^{3/2}}{2\pi^2} \sqrt{\epsilon}, \quad (1.1)$$

$$\rho_c^{(2)}(\epsilon) = \sum_n \frac{m^*}{(\pi\hbar^2 L_z)} H[\epsilon - \epsilon_z(n)], \quad (1.2)$$

$$\rho_c^{(1)}(\epsilon) = \sum_{n,l} \frac{(m^*/2\hbar^2)^{1/2} / (\pi L_y L_z)}{[\epsilon - \epsilon_y(l) - \epsilon_z(n)]^{1/2}}, \quad (1.3)$$

$$\rho_c^{(0)}(\epsilon) = \sum_{n,l,k} \frac{1}{L_y L_z L_x} \delta[\epsilon - \epsilon_x(k) - \epsilon_y(l) - \epsilon_z(n)], \quad (1.4)$$

gdzie m^* jest masą efektywną elektronu, ϵ jest jego energią mierzoną od krawędzi pasma przewodnictwa E_c , $\hbar$ jest stałą Plancka, $H(\epsilon)$ oznacza funkcję skokową Heaviside'a, gdzie $H(\epsilon \geq 0) = 1$ i $H(\epsilon < 0) = 0$, natomiast $\delta(\epsilon)$ jest deltą Diraca. Wartości $\epsilon_z(n)$, $\epsilon_y(l)$ i $\epsilon_x(k)$ to energie poziomów energetycznych o liczbach kwantowych odpowiednio n , l i k .¹ W przypadku układów kwazizerowymiarowych nie występuje ciągły rozkład gęstości stanów — funkcja gęstości stanów przyjmuje wartości dyskretne. Wizualizacja funkcji gęstości stanów dla układów o i -wymiarowości została przedstawiona na rys. 1.2. Dla dziur w paśmie walencyjnym występują analogiczne zależności $\rho_v^{(i)}(\epsilon)$.



Rysunek 1.2: Funkcje gęstości stanów nośników dla układów o różnych wymiarowościach.

Wiele optycznych i elektronowych właściwości nanostruktur zależy ściśle od funkcji gęstości stanów. Siła przejścia optycznego odpowiadającego absorpcji fotonu jest proporcjonalna do gęstości stanów w stanie początkowym w paśmie walencyjnym i w stanie końcowym w paśmie przewodnictwa. Zależność ta mówi o łącznej gęstości stanów i ma analogiczne zależności od wymiarowości układu, jak indywidualne funkcje gęstości stanów dla elektronów i dziur.⁴

Istnienie skwantowanych poziomów energetycznych w zerowymiarowych strukturach półprzewodnikowych powoduje, że optyczna przerwa energetyczna jest powiększona o różnicę energii między krawędziami pasm a pierwszymi związanymi stanami energetycznymi, w porównaniu z półprzewodnikiem objętościowym. Co więcej, możliwa jest inżynieria takiej efek-

tywnej przerwy wzbronionej poprzez kontrolowanie rozmiaru struktury. Wraz ze zmniejszaniem rozmiaru nanostruktury efektywna przerwa energetyczna się poszerza, a kolejne poziomy energetyczne są dalej siebie. Jest to tzw. kwantowy efekt rozmiarowy, obserwowany dla nośników w półprzewodnikach niskowymiarowych. Dla najprostszego przypadku struktury kwazierowymiarowej, tj. prostopadłościennej kostki, kwantowe związanie nośników może być rozpatrywane oddzielnie dla każdego kierunku w przestrzeni. W przybliżeniu nieskończenie głębokiej studni potencjału, energie nośników w prostopadłościennej kostce o wymiarach L_z , L_y i L_x są funkcją trzech liczb kwantowych n , m i l :⁵

$$\epsilon_{n,m,l} = \frac{\hbar^2 \pi^2 n^2}{2m^* L_z^2} + \frac{\hbar^2 \pi^2 m^2}{2m^* L_y^2} + \frac{\hbar^2 \pi^2 l^2}{2m^* L_x^2} \quad (n, m, l = 1, 2, 3, \dots). \quad (1.5)$$

Kształt rzeczywistych kropek kwantowych jest dużo bardziej skomplikowany, dlatego obliczenie energii stanów związanych wymaga numerycznego rozwiązania odpowiednich równań Schrödingera. Kwantyzacja energii jest powodem, dla którego kropki kwantowe nazywane są potocznie sztucznymi atomami. Z tego względu kolejne poziomy energetyczne w kropkach oznaczane są często literami s, p i d, analogicznie do orbitali atomowych, przy czym w naszym przypadku odnoszą się one do stanu podstawowego i stanów wzbudzonych w kropkach kwantowych.

Najprostszym do rozwiązania potencjałem wiążącym w przypadku kropek kwantowych jest potencjał paraboliczny, dla którego rząd degeneracji kolejnych stanów, tj. podstawowego i kolejnych wzbudzonych, przyjmuje wartości 2, 4, 6 itd., uwzględniając degenerację ze względu na orientację spinu. Z tego widać, że struktura energetyczna w takim przybliżeniu kropki kwantowej nie jest bezpośrednim odzwierciedleniem tej w atomach, gdzie kolejne orbitale mogą być wypełnione przez 2, 6, 10 itd. elektronów. Wynika to z geometrii i otoczenia kropek kwantowych, które wpływają na charakter potencjału wiążącego. Potencjał w atomach jest związany z oddziaływaniem kulombowskim i ma symetrię w trzech wymiarach, natomiast w kropkach kwantowych o kształcie soczewkowym, w których wysokość kropki jest zdecydowanie mniejsza od jej średnicy, symetria występuje tylko w jednej płaszczyźnie. Poza rozmiarem kropki kwantowej, wpływ na jej strukturę energetyczną mają jej kształt, materiał, z którego została wykonana, oraz rodzaj bariery potencjału ograniczającej ruch nośników.

Dla rzeczywistych kropek kwantowych strukturę elektronową wyznacza się najczęściej za pomocą modeli jednocząstkowych, które można podzielić na modele ciągłe i atomistyczne. Najpowszechniej stosowaną metodą ciągłą jest model $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$, oparty na przybliżeniu funkcji odwrotności, w którym funkcja falowa rozwijana jest w bazie funkcji Blocha (najczęściej w wariancie 8-pasmowym).^{6,7} Metoda ta umożliwia wyznaczenie poziomów energetycznych z uwzględnieniem naprężeń oraz efektów piezoelektrycznych i dobrze sprawdza się w opisie stosunkowo dużych kropek kwantowych, dla których atomowa struktura interfejsu ma niewielki wpływ na właściwości elektronowe. Jej istotną zaletą jest również dostępność dobrze scharakteryzowanych parametrów materiałowych, takich jak masy efektywne, parametry Luttingera czy wartości przerw energetycznych, dla wielu standardowych półprzewodników. Z kolei metody atomistyczne, takie jak metoda pseudopotencjałów czy metoda ciasnego wiązania (z ang. *tight binding*), uwzględniają położenie oraz oddziaływania poszczególnych atomów. Pozwalają dzięki temu uwzględnić efekty wynikające z atomowej struktury układu, jednak wymagają znacznie bardziej szczegółowej parametryzacji oddziaływań atomowych i są bardziej wymagające obliczeniowo. Ogranicza to ich zastosowanie do względnie małych układów lub wymaga stosowania dodatkowych przybliżeń.^{8,9}

W półprzewodnikach III–V pasmo walencyjne składa się z podpasem o charakterze ciężko-

i lekkodziurowym, które w strukturach objętościowych oraz w studniach kwantowych mogą istotnie wpływać na ich własności optyczne. W przypadku kropek kwantowych wzrastanych w trybie Straskiego-Krastanowa, silne ograniczenie przestrzenne oraz odkształcenia sieci krystalicznej prowadzą do zniesienia degeneracji i silnego rozszczepienia tych podpasm. Najniższe energetycznie stany dziurowe mają wówczas dominujący charakter ciężkodziurowy, natomiast wkład lekkich dziur jest silnie ograniczony. W dalszej części pracy rozważane będą wyłącznie stany o dominującym charakterze ciężkiej dziury. Przybliżenie to jest uzasadnione dla większości samoorganizujących się kropek kwantowych z półprzewodników III–V, w których naprężenia ściskające oraz anizotropia kształtu prowadzą do znacznego rozdzielania stanów ciężkiej i lekkiej dziury.⁹

1.2.2 Reguły wyboru dla międzypasmowych przejść optycznych

W temperaturze 0 K w półprzewodniku wszystkie elektrony znajdują się w paśmie walencyjnym, natomiast pasmo przewodnictwa jest puste. Dodanie energii do układu, np. poprzez absorpcję fotonu o odpowiedniej energii, powoduje wzbudzenie elektronu do pasma przewodnictwa, pozostawiając dodatnio naładowaną dziurę w paśmie walencyjnym.

Złota reguła Fermiego określa szybkość przejścia, czyli prawdopodobieństwo przejścia na jednostkę czasu, pomiędzy stanem początkowym i i stanem końcowym f . Dla przejść do kontinuum stanów końcowych ma ona postać:

$$w_{if} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle f | H' | i \rangle|^2 \rho(E_f), \quad (1.6)$$

gdzie H' jest hamiltonianem opisującym oddziaływanie będące przyczyną przejścia (np. oddziaływanie z promieniowaniem elektromagnetycznym), $\langle f | H' | i \rangle$ jest elementem macierzowym przejścia określającym siłę sprzężenia pomiędzy stanami, natomiast $\rho(E_f)$ oznacza gęstość dostępnych stanów końcowych o energii E_f .

W bardziej ogólnej postaci złota reguła Fermiego zawiera deltę Diraca:

$$w_{if} = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_f |\langle f | H' | i \rangle|^2 \delta(E_f - E_i), \quad (1.7)$$

która wymusza spełnienie zasady zachowania energii. Oznacza to, że przejście może zajść jedynie pomiędzy stanami, których różnica energii $E_f - E_i$ odpowiada energii dostarczonej lub oddanej w procesie oddziaływania. W przypadku absorpcji lub emisji fotonu warunek ten oznacza, że różnica energii pomiędzy stanami początkowym i końcowym musi odpowiadać energii fotonu uczestniczącego w przejściu. W kropkach kwantowych energia ta musi być równa różnicy energii między danymi poziomami energetycznymi.

Wartość elementu macierzowego przejścia determinuje również siłę oscylatora przejścia f_{if} (z ang. *oscillator strength*), która jest bezwymiarową miarą siły przejścia optycznego, określającą jego zdolność do absorpcji i emisji promieniowania elektromagnetycznego:

$$f_{if} = \frac{2m_0\omega_{fi}}{3\hbar e^2} |\langle f | \hat{\mathbf{d}} | i \rangle|^2, \quad (1.8)$$

gdzie m_0 oznacza masę spoczynkową elektronu, e oznacza ładunek elementarny, $\hat{\mathbf{d}} = -e\mathbf{r}$ jest operatorem elektrycznego momentu dipolowego, a $\omega_{fi} = (E_f - E_i)/\hbar$ oznacza częstość kątową przejścia. Im większa siła oscylatora, tym silniejsze sprzężenie przejścia optycznego z polem elektromagnetycznym. W półprzewodnikowych kropkach kwantowych zależy ona m.in. od przekrywania się funkcji falowych elektronu i dziury oraz od symetrii rozważanych stanów.

Duża siła oscylatora prowadzi do zwiększenia szybkości rekombinacji promienistej, na skutek skrócenia czasu życia stanu wzbudzonego.

Poza warunkiem zachowania energii istnieją również reguły wyboru dla przejść optycznych. W nanostrukturach, przy założeniu nieskończonego głębokiego potencjału wiążącego, oraz izotropowych mas efektywnych zarówno dziury, jak i elektronu, obwiednie funkcji falowych elektronu φ_{ev} i dziury φ_{hv} są identyczne i niezależne od mas efektywnych. Zatem całka przekrycia funkcji falowych jest iloczynem skalarnym wektorów stanu z tej samej bazy:

$$i_{vv'} = \int \varphi_{ev}^*(\mathbf{r}) \varphi_{hv'}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \quad (1.9)$$

prowadząc do reguły wyboru:

$$i_{vv'} = \delta_{vv'} . \quad (1.10)$$

Zatem przejścia optyczne są dozwolone tylko pomiędzy podpasмами (lub poziomami w kropce kwantowej) walencyjnymi i przewodnictwa o równych liczbach kwantowych.

W przypadku skończonej głębokości potencjału wiążącego kształty obwiedni funkcji falowych dla elektronów i dziur zależą od mas efektywnych tych nośników i różnią się od siebie. Jednak różnice te nie są znaczące, co daje w rezultacie miękkie reguły wyboru:

$$i_{vv} \approx 1 \quad \text{oraz} \quad |i_{vv'}| \ll 1 \quad \text{dla} \quad v \neq v'. \quad (1.11)$$

Jeśli natomiast potencjał wiążący posiada oś symetrii, jak w przypadku kropek o kształcie soczewkowym, wtedy przejścia międzypasmowe pomiędzy stanami o obwiedniach φ_{ev} , $\varphi_{hv'}$ o przeciwnej parzystości są zabronione.¹⁰

Reguły wyboru wynikające z zachowania momentu pędu oraz polaryzacji światła zostaną omówione w kolejnych podrozdziałach.

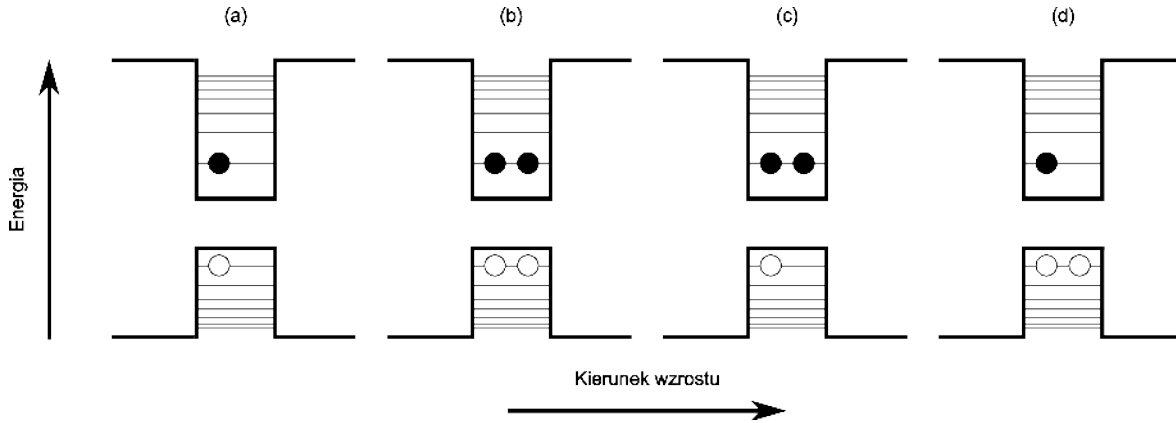
1.2.3 Kompleksy ekscytonowe

Oddziaływanie kulombowskie między wzbudzonymi nośnikami powoduje utworzenie kompleksu ekscytonowego. Oddziaływanie to redukuje energię potrzebną do wzbudzenia ekscytonu względem nieoddziałujących ze sobą nośników, gdzie energia ta jest równa energii przerwy wzbronionej E_g , powiększonej o energię stanu elektronowego ϵ_e i dziurowego ϵ_h . Powoduje to powstanie serii dyskretnych poziomów energetycznych poniżej krawędzi pasma przewodnictwa, o energiach opisywanych wyrażeniem:

$$E_{\text{exc},n} = E_g + \epsilon_{e,n} + \epsilon_{h,n} - \epsilon_{\text{exc}}/n^2 \quad (n = 1, 2, 3, \dots, \infty). \quad (1.12)$$

Energia wiązania ekscytonu ϵ_{exc} to energia, którą należy dodać do układu, aby zniszczyć wiązanie kulombowskie między nośnikami.

W półprzewodnikach z grupy pierwiastków III-V energia wiązania ekscytonu jest rzędu kilku meV, stąd w temperaturze pokojowej ($k_B T = 25$ meV) energia termiczna powoduje, że prawdopodobieństwo utworzenia kompleksu ekscytonowego jest niskie. Przestrzenne związanie nośników w nanostrukturach uniemożliwia ich ruch (brak energii kinetycznej) i powoduje większe przekrycie funkcji falowych nośników, a w konsekwencji większą energię wiązania ekscytonu. W studni kwantowej nośniki są ograniczone jedynie w jednym kierunku i mogą swobodnie poruszać się w płaszczyźnie warstwy, natomiast w kropce kwantowej są ograniczone we wszystkich trzech wymiarach. Prowadzi to do zwiększenia energii wiązania ekscytonu nawet do 30 meV dla kropek kwantowych InAs/GaAs i do 20 meV dla kropek InAs/InP,^{7,11} co umożliwia obserwację efektów ekscytonowych w znacznie wyższych temperaturach.



Rysunek 1.3: Schemat kropki kwantowej w różnych konfiguracjach nośników wzbudzonych tworzących: (a) ekscyton, (b) biekscyton, (c) trion naładowany ujemnie i (d) trion naładowany dodatnio. Czarne kulki oznaczają elektrony, białe kulki oznaczają dziury, czarne grubsze linie to krawędzie pasm, a szare węższe linie to dyskretne poziomy energetyczne

Kiedy zarówno elektron, jak i dziura znajdują się w najniższych energetycznie stanach, odpowiednio w paśmie przewodnictwa i walencyjnym, mówimy o ekscytonie w stanie podstawowym (rys. 1.3(a)), a energia jego wiązania jest równa:

$$\varepsilon_X = E_e + E_h - E_X, \quad (1.13)$$

gdzie E_e i E_h to energie odpowiednio elektronu i dziury, a E_X to energia stanu ekscytonowego.

Gdy w kropce znajdują się dwie pary elektron-dziura w najniższych stanach, mówimy o biekscytonie w stanie podstawowym. Energia potrzebna do wzbudzenia biekscytonu E_{XX} jest równa różnicy podwojonej energii ekscytonu E_X i energii wiązania biekscytonu:

$$\varepsilon_{XX} = 2E_X - E_{XX} \quad (1.14)$$

Gdy $\varepsilon_{XX} > 0$, biekscyton ma charakter wiążący, natomiast gdy $\varepsilon_{XX} < 0$ — antywiązący. W przypadku typowych kropek samorosnących z grup pierwiastków III-V, jak GaAs lub InAs, charakter wiązania biekscytonu jest zwykle wiążący, a jego energia jest rzędu kilku meV.¹¹ Po rekombinacji biekscytonu w kropce zostaje ekscyton, natomiast po rekombinacji ekscytonu w kropce nie ma żadnych nośników wzbudzonych; ponownie wszystkie elektrony znajdują się w paśmie walencyjnym.

Szczególnie interesującym dla tej pracy przypadkiem jest naładowany ekscyton, tzw. trion. Jest to sytuacja, w której w kropce znajdują się trzy wzbudzone nośniki. Gdy wzbudzone są dwa elektrony i jedna dziura, mówimy o trionie ujemnym, a w przeciwnym wypadku — o trionie dodatnim. Ich energie wiązania wynoszą odpowiednio:

$$\varepsilon_{X-} = E_X + E_e - E_{X-}, \quad (1.15)$$

$$\varepsilon_{X+} = E_X + E_h - E_{X+}. \quad (1.16)$$

Po rekombinacji trionu w kropce pozostaje jeden wzbudzony nośnik: elektron lub dziura. Z punktu widzenia zastosowań w pamięciach spinowych i kubitach jest to niezwykle ważna cecha, o czym więcej w podrozdziale 1.3.

Schemat kropki kwantowej ze wzbudzonymi nośnikami w różnych konfiguracjach przedstawiono na rys. 1.3. Oprócz przytoczonych konfiguracji nośników wzbudzonych każdy z omó-

wionych kompleksów ekscytonowych może występować w stanach wzbudzonych, gdy co najmniej jeden nośnik znajduje się w wyższym stanie niż stan podstawowy w danym paśmie. Każdy ze wspomnianych kompleksów ekscytonowych ma charakterystyczną energię przejścia optycznego, właściwości polaryzacyjne oraz czas życia.¹²

1.2.4 Struktura subtelna

Z reguły nośniki w kropkach kwantowych będą obsadzać najniższe poziomy energetyczne, jednak dokładna energia zależeć będzie od konfiguracji spinowej danego nośnika. Silne przekrywanie się funkcji falowych elektronu i dziury, spowodowane związaniem przestrzennym nośników, prowadzi do różnych oddziaływań między tymi nośnikami. Oprócz wspomnianego wcześniej (bezpośredniego) oddziaływania kulombowskiego obecne jest też oddziaływanie wymiany między dziurą a elektronem, które prowadzi do rozszczepienia subtelnej struktury stanów ekscytonowych. Efekt ten zależy od symetrii układu.

Hamiltonian krótkozasięgowego oddziaływania wymiany w ekscytonie utworzonym przez dziurę o całkowitym momencie pędu J_h i elektron o spinie S_e ma postać:¹³

$$\mathcal{H}_{\text{exchange}} = \sum_{i=x,y,z} \left(a_i J_{h,i} S_{e,i} + b_i J_{h,i}^3 S_{e,i} \right). \quad (1.17)$$

Kierunek wzrostu struktury jest zgodny z kierunkiem z . Pomijając mieszanie się stanów lekko- i ciężkodziurowych, ekscyton jest utworzony z ciężkiej dziury o spinie $J_h = 3/2$, $J_{h,z} = \pm 3/2$ oraz elektronu o spinie $S_e = 1/2$, $S_{e,z} = \pm 1/2$. Z kombinacji tych stanów mogą być utworzone cztery stany ekscytonowe, opisywane przez rzut momentu pędu na kierunek z : $M = S_{e,z} + J_{h,z}$. Stany o $|M| = 2$ nie sprzęgają się ze światłem, którego moment pędu $|M_p| = 1$ i nazywane są ekscytonami ciemnymi. Z kolei stany o $|M| = 1$ są optycznie aktywne i nazywane są ekscytonami jasnymi. Używając stanów ekscytonu o określonym rzucie momentu pędu na kierunek z jako bazy, można sformułować powyższy Hamiltonian w postaci macierzowej:¹³

$$\mathcal{H}_{\text{exchange}} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} +\delta_0 & +\delta_1 & 0 & 0 \\ +\delta_1 & +\delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\delta_0 & +\delta_2 \\ 0 & 0 & +\delta_2 & -\delta_0 \end{pmatrix} \quad (1.18)$$

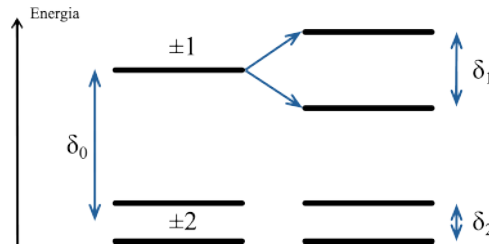
Okazuje się, że stany jasne i ciemne nie mieszają się ze sobą (Hamiltonian wymiany jest blokowo diagonalny), natomiast te o przeciwnych wartościach momentu pędu ulegają hybrydyzacji. Pozadiagonalne elementy macierzy $\mathcal{H}_{\text{exchange}}$ opisujące mieszanie się dwóch stanów jasných i stanów ciemnych mają wartości:¹³

$$\delta_1 = 0,75(b_x - b_y), \quad (1.19)$$

$$\delta_2 = 0,75(b_x + b_y). \quad (1.20)$$

Z tego wynika, że w układzie o symetrii obrotowej, tzn. gdy $b_x = b_y$, stany jasne są zdegenerowane, podczas gdy złamanie symetrii ($b_x \neq b_y$) powoduje zniesienie degeneracji i mieszanie stanów jasných. Warto zauważyć, że stany ciemne nie będą w żadnym wypadku zdegenerowane. Rozszczepienie pomiędzy stanami o $|M| = 1$ i $|M| = 2$ wynosi:¹³

$$\delta_0 = 1,5(a_z + 2,25b_z). \quad (1.21)$$



Rysunek 1.4: Schemat stanów ekscytonu z podziałem na stany jasne ($|M| = 1$, u góry) i ciemne ($|M| = 2$, na dole). Po lewej rozszczepienie stanów jasnych od ciemnych δ_0 oraz pomiędzy stanami ciemnymi δ_2 , spowodowane oddziaływaniem wymiany między elektronem a dziurą. Po prawej (góra) rozszczepienie stanów jasnych ekscytonu δ_1 w przypadku układu o niskiej symetrii, np. kropki kwantowej wydłużonej w jednym z kierunków x lub y .

Schemat na rys. 1.4 przedstawia rozszczepienie struktury subtelnej ekscytonu spowodowane oddziaływaniem wymiany elektronu i dziury oraz złamaniem symetrii układu.

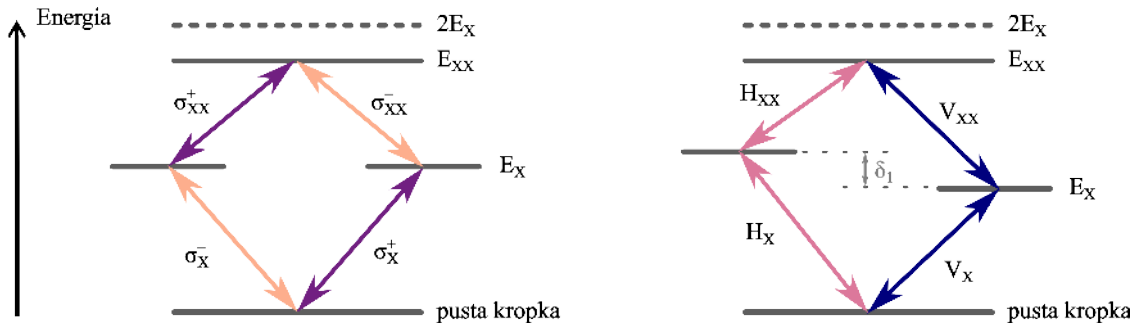
W przypadku, gdy w kropce znajduje się dodatkowy nośnik wzbudzony (na pierwszym stanie wzbudzonym), z powodu zakazu Pauliego spiny dwóch elektronów (trion ujemny) albo spiny dwóch dziur (trion dodatni) muszą być przeciwne. Sparowane nośniki tworzą singlet spinowy i mają zerowy moment pędu, co sprawia, że oddziaływanie wymiany zanika. Z tego wynika, że spin trionu jest definiowany przez niesparowany nośnik. Co więcej, należy zauważyć, że w trionie nie tworzą się stany ciemne, jak ma to miejsce w przypadku ekscytonu neutralnego. Podobnie sytuacja ma się w przypadku biekscytonu, gdzie oba typy nośników są sparowane.¹⁴

1.2.5 Polaryzacja emisji i optyczna orientacja spinów nośników

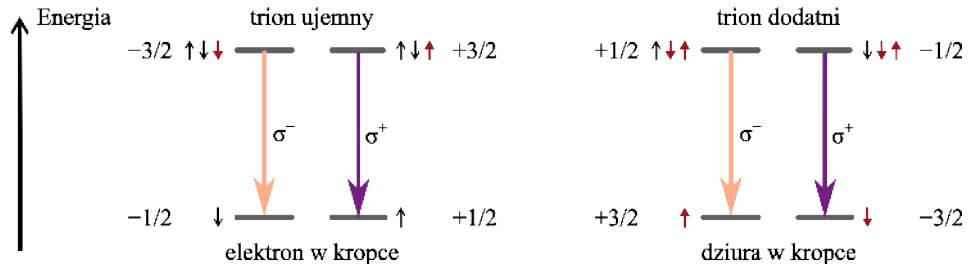
W przypadku układu o wysokiej symetrii, w którym stany jasne ekscytonu są zdegenerowane, ale nie mieszają się, emisja ze stanu ekscytonowego, tj. przy rekombinacji promienistej elektronu i dziury, będzie spolaryzowana kołowo. Natomiast w układzie o złamanej symetrii, np. w wydłużonej w płaszczyźnie kropce kwantowej, z powodu mieszania stanów emisja po rekombinacji każdego ze stanów ekscytonu będzie spolaryzowana liniowo, o kierunku zależnym od konfiguracji spinowej, przy czym polaryzacje dla dwóch stanów będą w pierwszym przybliżeniu ortogonalne (przy założeniu pomijalnego mieszania stanów lekko- i ciężkodziurowych) (rys. 1.5). Obserwacja rozszczepienia struktury subtelnej jest możliwa eksperymentalnie poprzez pomiar fotoluminescencji rozdzielczej polaryzacyjnie. Jest to jedna z metod identyfikacji neutralnych kompleksów ekscytonowych. Ograniczającym aspektem obserwacji tego rozszczepienia są rozdzielczość spektralna układu pomiarowego oraz szerokość linii emisyjnej. Wyniki pomiarów rozdzielczych polaryzacyjnie, z widocznym rozszczepieniem struktury subtelnej ekscytonu i biekscytonu, zaprezentowano w rozdziale 5.

Gdy obecny jest dodatkowy nośnik w kropce, polaryzacyjne reguły przejść optycznych wyglądają inaczej i zaprezentowane są schematycznie na rys. 1.6. Schemat przejść dla trionu ujemnego widoczny jest po lewej stronie, natomiast dla trionu dodatniego — po prawej. Pomarańczowe i fioletowe strzałki symbolizują przejścia optyczne dozwolone ze względu na zasadę zachowania momentu pędu o kołowej polaryzacji emisji odpowiednio lewo- i prawoskrętnej. Widać, że niezależnie od symetrii układu emisja z danego stanu trionu będzie spolaryzowana kołowo, o orientacji zależnej od orientacji spinu niesparowanego nośnika.

Możliwe jest optyczne orientowanie spinów, tj. magnetycznych momentów pędu nośników, poprzez pompowanie optyczne. Jest to bezpośrednia konsekwencja zasady zachowania momentu pędu. Foton spolaryzowany kołowo przenosi moment pędu, który podczas absorpcji



Rysunek 1.5: Kaskada rekombinacji promienistej biekscyton-ekscyton. Po lewej: układ o wysokiej symetrii. Emisja po rekombinacji promienistej biekscytonu i ekscytonu spolaryzowana kołowo. Po prawej: układ o złamanej symetrii. Emisja spolaryzowana liniowo o polaryzacjach ortogonalnych dla dwóch różnych stanów ekscytonu i biekscytonu. Widoczne rozszczepienie struktury subtelnej jasnego ekscytonu δ_1 .



Rysunek 1.6: Reguły wyboru przejść optycznych dla trionu ujemnego (po lewej) i dodatniego (po prawej). Czarne strzałki symbolizują spin elektronu, natomiast czerwone — spin dziury.

zostaje przekazany do układu. Dzięki polaryzacyjnym regułom wyboru możliwe jest zatem selektywne wzbudzenie nośników do określonych stanów spinowych danego kompleksu ekscytonowego.

Skuteczność optycznej orientacji spinów zależy od schematu wzbudzania. W przypadku wzbudzania nierezonansowego, nośniki, przed wychwyceniem do kropki kwantowej, przechodzą wielostopniową relaksację energetyczną, podczas której mogą ulegać procesom relaksacji i depolaryzacji spinowej. Dlatego do efektywnej inicjalizacji spinu najczęściej stosuje się wzbudzanie rezonansowe lub kwazirezonansowe, w których relaksacja przebiega przez niewielką liczbę procesów, często zachowujących orientację spinu. Różne schematy wzbudzania zostały omówione w następnym podrozdziale.

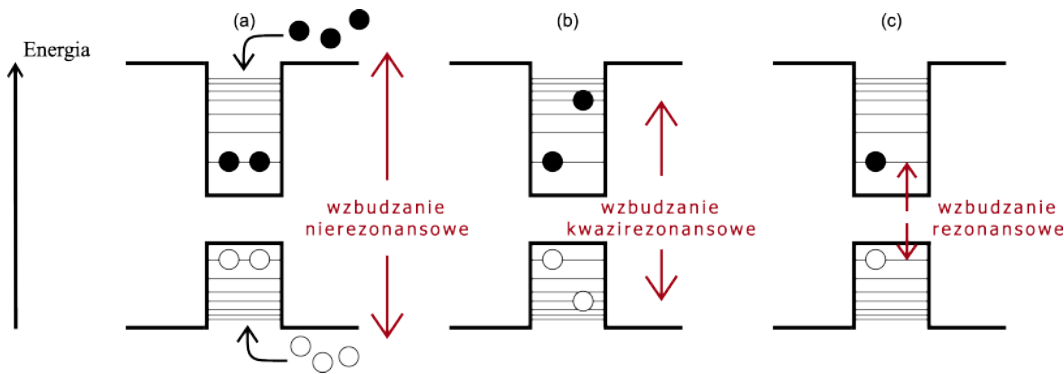
Ciągłe wzbudzanie światłem o określonej polaryzacji prowadzi do powstania nierównowagowej polaryzacji spinowej nośników P , opisanej zależnością:

$$P = \frac{N_{\uparrow} - N_{\downarrow}}{N_{\uparrow} + N_{\downarrow}}, \quad (1.22)$$

gdzie $N_{\uparrow}$ i $N_{\downarrow}$ oznaczają populację spinów o odpowiedniej orientacji polaryzacji „w górę” i „w dół”. Możliwość optycznej inicjalizacji i odczytu stanu spinowego stanowi podstawę eksperymentalnych metod badania dynamiki spinów oraz ich koherencji.

1.2.6 Wzbudzanie optyczne i relaksacja energetyczna nośników

Najprostszym optycznym sposobem na wzbudzenie nośników w kropce kwantowej jest zrobienie tego pośrednio, poprzez wzbudzenie ich w barierze potencjału lub w materiale pod-



Rysunek 1.7: Typowe schematy wzbudzenia nośników w kropkach kwantowych. (a) Wzbudzenie nierezonansowe nośników w materiale bariery lub podłoża. Po wzbudzeniu następuje relaksacja nośników do niższych stanów, w tym stanów w kropkach kwantowych, z których może nastąpić rekombinacja promienista. (b) Wzbudzenie kwazirezonansowe w wyższe stany wzbudzone w kropkach kwantowych. W zależności od energii wzbudzenia mogą zostać obsadzone różne stany. Relaksacja prowadzi do obsadzenia najniższego stanu w kropce, z którego następuje rekombinacja. (c) Wzbudzenie rezonansowe. W wyniku wzbudzenia zostaje obsadzony stan końcowy, z którego następuje rekombinacja promienista. Wzbudzenie rezonansowe jest koherentne.

łoża, których przerwa energetyczna jest większa niż przerwa energetyczna materiału kropki (rys. 1.7(a)). Wzbudzenie nierezonansowe prowadzi do termicznej relaksacji nośników do najniższego stanu wzbudzonego poprzez procesy wielofononowe oraz wychwyt nośników przez kropkę. W tym stanie zachodzi przejście optyczne, tj. rekombinacja promienista, po którym układ wraca do stanu podstawowego. Jest to spowodowane tym, że szybkość relaksacji w obrębie pasm jest typowo znacznie większa niż szybkość przejść międzypasmowych, w tym rekombinacji promienistej. W kropkach kwantowych z grupy pierwiastków III-V, takich jak GaAs/AlGaAs, InAs/GaAs czy InAs/InP, czasy te są odpowiednio rzędu dziesiątek ps i pojedynczych ns.^{15,16} Wzbudzenie nierezonansowe jest eksperymentalnie łatwe do zrealizowania ze względu na dużą odległość spektralną światła wzbudzającego i emisji, co ułatwia odfiltrowanie sygnału od promieniowania laserowego. Co więcej, materiał podłoża lub bariery jest półprzewodnikiem objętościowym, co oznacza wysoki współczynnik absorpcji i duży przekrój czynny na absorpcję ze względu na dużą liczbę dostępnych stanów. Przy względnie małej gęstości mocy wzbudzenia absorpcja jest wyższa w materiale objętościowym niż w układach o niższej wymiarowości. Powoduje to efektywną absorpcję, a tym samym efektywne zasilanie kropki kwantowej nośnikami. Eksperymenty z wzbudzeniem nierezonansowym pozwalają na obserwację podstawowych własności optycznych kropek kwantowych, takich jak energie przejść stanów ekscytonowych, oraz na identyfikację tych kompleksów poprzez pomiary w funkcji gęstości mocy wzbudzenia czy rozdzielcze polaryzacyjnie. Natomiast ze względu na skomplikowane i wielostopniowe procesy relaksacji nośników do stanów podstawowych ekscytanu i jego kompleksów, wzbudzenie nierezonansowe jest niewystarczające w eksperymentach wymagających koherentnego wzbudzenia nośników. Co więcej, rozrzut czasowy relaksacji do stanu podstawowego skutkuje większym rozrzutem czasowym rekombinacji promienistej. Jest to szczególnie problematyczne w eksperymencie interferencji dwufotonowej, opisanym w następnym rozdziale.

Drugim względnie prostym modelem wzbudzenia nośników jest tzw. wzbudzenie kwazirezonansowe, tj. w wyższe stany energetyczne w kropce kwantowej (rys. 1.7(b)). Zapewnia to selektywniejsze wzbudzenie wybranych kompleksów ekscytonowych, gdyż każdy z nich charakteryzuje się własną drabinką energetyczną stanów, do których mogą zostać wzbudzone

nośniki. W takich przypadkach różnica między energią wzbudzenia a energią emisji wynosi zwykle od kilku do kilkudziesięciu meV, co daje możliwość względnie prostego odfiltrowania promieniowania laserowego od emisji z badanej struktury poprzez zastosowanie odpowiednich filtrów optycznych. Relaksacja z wyższych stanów w kropce do stanu podstawowego danego kompleksu ekscytonowego może być nawet procesem jednostopniowym, zachowującym orientację spinu nośników wygenerowanych w procesie wzbudzenia. Powyższy schemat wzbudzenia został zastosowany w eksperymentach, które stanowią główne wyniki tej pracy.

Wzbudzenie rezonansowe z kolei jest bardzo atrakcyjne ze względu na generowanie nośników bezpośrednio w docelowym stanie, z którego następuje rekombinacja, co nie powoduje dodatkowego rozrzutu czasowego emisji związanego z relaksacją. Ponadto jest to wzbudzenie koherentne, co oznacza, że wzbudzone nośniki zachowują fazę wzbudzającego fotonu, o czym więcej w rozdziale 2. Implementacja takiego schematu wzbudzenia jest utrudniona eksperymentalnie, ponieważ energia emisji jest dokładnie taka sama jak energia fotonów użytych do wzbudzenia nośników (rys. 1.7(c)). Generuje to trudność w odfiltrowaniu światła laserowego. Rozwiązaniem jest np. filtrowanie polaryzacyjne, w którym światło lasera wzbudzającego jest spolaryzowane ortogonalnie do polaryzacji mierzonej emisji.

Istnieją bardziej skomplikowane metody wzbudzenia, w których celem jest koherentne przygotowanie nośników w danym stanie. Jedną z tych metod jest wzbudzenie dwufotonowe biekscytonu. Fotony wzbudzające mają energię dwukrotnie niższą niż energia biekscytonu. Wzbudzenie następuje poprzez jednoczesną absorpcję dwóch fotonów bezpośrednio do stanu biekscytonowego. W widmie emisji linia laserowa jest wtedy widoczna dokładnie pośrodku, pomiędzy energią emisji ekscytonu a biekscytonu. Inną ciekawą metodą jest niedawno zaproponowana i zaimplementowana metoda koherentnego wzbudzenia przy użyciu impulsów laserowych znacznie odstrojonych od energii absorpcji, które w normalnych warunkach nie prowadziłyby do obsadzenia stanu ekscytonu. Proponowany mechanizm opiera się na okresowych zmianach częstości Rabiego, co prowadzi do podniesienia obsadzenia ze stanu podstawowego do stanu wzbudzonego, tj. podstawowego stanu ekscytonowego, w charakterystyczny, periodyczny sposób (z ang. *Swing-UP of the quantum Emitter population — SUPER*).^{17,18}

W ramach niniejszych badań stosowano wyłącznie wzbudzenie nierezonansowe oraz kwazirezonansowe do wyższych stanów w kropce kwantowej.

1.2.7 Magnetoptyczne właściwości kropek kwantowych

Istnieją dwa efekty wpływające na energię stanów ekscytonowych w zewnętrznym polu magnetycznym: przesunięcie diamagnetyczne oraz rozszczepienie Zeemana. Przesunięcie diamagnetyczne wynika z oddziaływania ruchu orbitalnego elektronu i dziury z zewnętrznym polem magnetycznym, które modyfikuje energię tego ruchu i prowadzi do wzrostu energii stanu ekscytonowego.¹⁹ Długość magnetyczna l_B jest charakterystyczną skalą długości opisaną zależnością:

$$l_B = \sqrt{\frac{\hbar}{eB}}, \quad (1.23)$$

gdzie B to wartość indukcji pola magnetycznego, e to elektryczny ładunek elementarny, a $\hbar$ to zredukowana stała Plancka. Jeżeli długość magnetyczna jest większa od charakterystycznego rozmiaru funkcji falowej ekscytonu, wpływ pola magnetycznego stanowi jedynie niewielką perturbację i przesunięcie diamagnetyczne jest w przybliżeniu opisane zależnością:

$$\Delta_{\text{diamag}} = \gamma B^2, \quad (1.24)$$

gdzie $\gamma = e^2 \langle \rho^2 \rangle / 8\mu$ jest współczynnikiem diamagnetycznym, μ to zredukowana masa ekscytynu, a $\langle \rho^2 \rangle$ odzwierciedla rozmiar funkcji falowej.²⁰ W granicy silnych pól magnetycznych energia ekscytynu wykazuje liniową zależność od pola magnetycznego, co odpowiada dominacji kwantowania cyklotronowego. W tym reżimie stany nośników można opisywać jako stany Focka–Darwina. Na podstawie powyższych zależności, wpływ zewnętrznego pola magnetycznego na przesunięcie energetyczne emisji można opisać empiryczną funkcją postaci:

$$\Delta E_{\text{diamag}} = \frac{\gamma B^2}{1 + \alpha B}, \quad (1.25)$$

gdzie α i γ mogą służyć jako parametry dopasowania do danych eksperymentalnych. Z tej zależności wynika, że dla małych pól magnetycznych ($B \rightarrow 0$) otrzymujemy zależność z równania 1.24, natomiast dla dużych pól magnetycznych ($B \rightarrow \infty$) otrzymujemy zależność $\Delta E_{\text{diamag}} = (\gamma/\alpha)B$.²¹

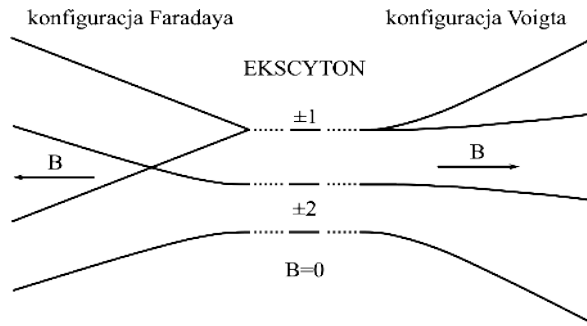
Jak pokazano w podrozdziale 1.2.4, w przypadku struktury symetrycznej stany jasne ekscytynu pozostają zdegenerowane, co oznacza, że nie są rozróżnialne energetycznie, natomiast różnią się konfiguracją spinową. Spin oddziałuje z zewnętrznym polem magnetycznym powodując rozszczepienie stanów jasnych ekscytynu. Rozszczepienie to jest nazwane rozszczepieniem Zeemana i zależy od czynników Landégo elektronu i dziury w danej kropce kwantowej:

$$\Delta E_{\text{Zeeman}} = g_X \mu_B B, \quad (1.26)$$

gdzie g_X oznacza czynnik Landégo ekscytynu będący w przybliżeniu sumą czynników elektronu g_e i dziury g_h , a μ_B jest magnetonem Bohra. Czynnik Landégo nazywany jest również czynnikiem żyromagnetycznym oraz g -czynnikiem. W dalszej części rozprawy będę używać nazwy „ g -czynnik” ze względu na zgodność z angielską nomenklaturą w literaturze dotyczącej kropek kwantowych (z ang. *g-factor*). g -czynnik określa proporcjonalność między spinowym momentem pędu a związanym z nim momentem magnetycznym. Dla swobodnego elektronu wynosi on $g_e = 2,0023$; w półprzewodnikach objętościowych zależy od materiału, a w kropce kwantowej dodatkowo od jej geometrii. Ze wzoru (1.26) wynika, że rozszczepienie Zeemana jest liniową funkcją pola magnetycznego.¹³

Obserwacja zmiany energii przejść związanych z rekombinacją poszczególnych kompleksów ekscytonowych pozwala na wyznaczenie ich g -czynników oraz współczynnika przesunięcia diamagnetycznego na podstawie zależności energii emisji od wartości indukcji pola magnetycznego. Warto jednak zauważyć, że ani wartości g -czynników, ani współczynniki diamagnetycznych, nie będą izotropowe dla kropek kwantowych, które nie mają symetrii sferycznej. Różnice wynikają z kształtu kropki kwantowej, jej składu oraz kierunku krystalograficznego sieci w kropce kwantowej. Z tego względu dla kropek kwantowych często wyznacza się te współczynniki w płaszczyźnie poprzez pomiar w konfiguracji Voigta oraz w kierunku wzrostu w konfiguracji Faradaya, zgodnie z przyjętą nomenklaturą.

W konfiguracji Faradaya pole magnetyczne jest skierowane równolegle do kierunku propagowania się mierzonej emisji, a więc w kierunku wzrostu kropek kwantowych. Ekscyton jasny posiada dwie możliwe konfiguracje spinowe, ponieważ przy rekombinacji pary elektron-dziura istnieją dwa stany początkowe (ekscyton w dwóch różnych konfiguracjach spinowych) i jeden stan końcowy (pusta kropka), co przekłada się na rozszczepienie na dwa stany. Dla potencjału wiążącego kropek o symetrii obrotowej, rozszczepienie stanów jasnych ekscytynu rośnie liniowo z polem magnetycznym, również w zakresie niskich pól magnetycznych. W przypadku ekscytonów ciemnych rozszczepienie spinowe wykazuje nieliniową zależność od pola magnetycznego ze względu na hybrydyzację stanów ciemnych w zerowym polu magnetycznym. W przypadku struktur niesymetrycznych rozszczepienie energii odbiega od zależności linio-



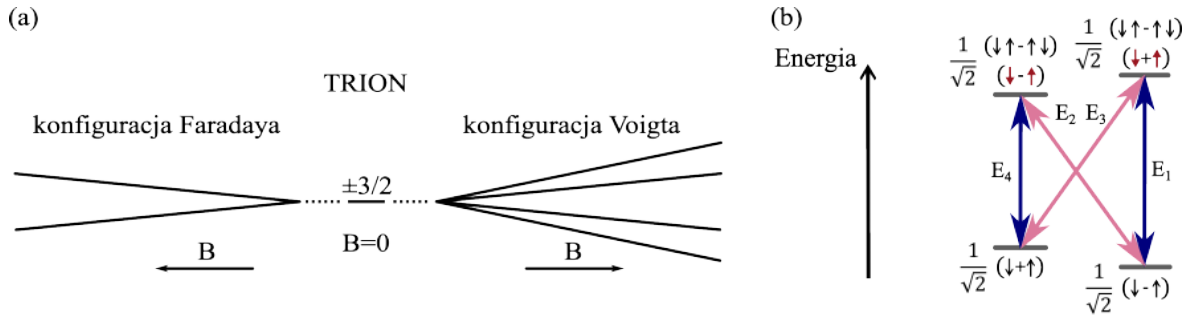
Rysunek 1.8: Schematycznie przedstawiona zmiana rozszczepienia Zeemana ekscytonu neutralnego w funkcji zewnętrznego pola magnetycznego przyłożonego w konfiguracji Faradaya (po lewej) i Voigta (po prawej) dla symetrycznej kropki kwantowej. W konfiguracji Faradaya jeden ze stanów jasnych ekscytonu krzyżuje się ze stanem ciemnym ekscytonu dla pewnej wartości indukcji pola magnetycznego. Brak takiego krzyżowania w konfiguracji Voigta.

wej: dla niskich pól zmienia się kwadratowo z B . Tylko dla wysokich pól, dla których energie oddziaływań Zeemana są znacznie większe niż energie oddziaływania wymiany, występuje liniowa zależność rozszczepienia spinowego od pola magnetycznego. Na rys. 1.8 przedstawiona została ewolucja rozszczepienia Zeemana w polu magnetycznym dla kropki kwantowej o wysokiej symetrii obrotowej względem kierunku wzrostu z (konfiguracja Faradaya po lewej stronie rysunku).

Z kolei w konfiguracji Voigta pole przyłożone równoległe do kierunku x lub y powoduje złamanie symetrii obrotowej, co prowadzi do mieszania się stanów jasnych i ciemnych ekscytonu, umożliwiając obserwację każdego z nich w widmie fotoluminescencji. Jest to bezpośrednia konsekwencja precesji elektronów i dziur wokół kierunku pola magnetycznego. W przeciwieństwie do sytuacji w konfiguracji Faradaya, stany jasne i ciemne w konfiguracji Voigta nie przecinają się energetycznie w funkcji pola magnetycznego. W tym przypadku energie dla obu stanów ciemnych maleją z polem magnetycznym, skutkując wzrostem rozszczepienia między jasnymi i ciemnymi stanami ekscytonu (rys. 1.8, po prawej stronie). Rozszczepienie Zeemana w funkcji pola magnetycznego dla bieksytonu ma taką samą charakterystykę jak rozszczepienie stanów jasnych ekscytonu, ponieważ stany ekscytonu są jego stanami końcowymi.²²

Pole magnetyczne powoduje także rozszczepienie stanów trionu ze względu na spin. W przypadku trionu ujemnego (dodatniego) w stanie początkowym rozszczepienie wynika ze spinu dziury (elektronu), natomiast w stanie końcowym — ze spinu elektronu (dziury). W rezultacie obserwowane rozszczepienie wynika z g -czynnika rekombinującej pary elektron-dziura. Podobnie jak w przypadku ekscytonu, dla kropek kwantowych o wysokiej symetrii dozwolona jest tylko rekombinacja pary elektron-dziura o sumarycznym momencie pędu $M = \pm 1$. Jest to stwierdzenie prawdziwe przy braku zewnętrznego pola magnetycznego oraz w przypadku pola magnetycznego przyłożonego w konfiguracji Faradaya. W konfiguracji Voigta pole magnetyczne jest prostopadłe do osi wzrostu stanowiącej oś kwantyzacji w zerowym polu. W rezultacie stany spinowe elektronu i dziury przestają być stanami własnymi układu, co prowadzi do ich mieszania. W przeciwieństwie do konfiguracji Faradaya, wszystkie cztery przejścia optyczne pomiędzy dwoma stanami początkowymi i dwoma stanami końcowymi stają się dozwolone (rys. 1.9(b)). W konsekwencji pojedyncza linia emisyjna trionu ulega rozszczepieniu na cztery składowe w polu magnetycznym.^{13,22,23} Zobrazowane to zostało na rys. 1.9(a). Mieszanie stanów spinowych w konfiguracji Voigta stanowi podstawę magnetooptycznych metod badania dynamiki spinów, takich jak efekt Hanlego.

Z powyższych rozważań wynika, że energię emisji ekscytonu w konfiguracji Faradaya, przy



Rysunek 1.9: Rozszczepienia Zeemana trionu w konfiguracji Faradaya i Voigta. (a) Zmiana rozszczepienia Zeemana dla trionu w funkcji zewnętrznego pola magnetycznego przyłożonego w konfiguracji Faradaya (po lewej) i Voigta (po prawej). W konfiguracji Faradaya obserwuje się rozszczepienie na 2 stany, natomiast w konfiguracji Voigta – na 4 stany. (b) Schemat ilustrujący złamanie zasady zachowania spinu przy przejściach optycznych związanych ze wzbudzeniem i rekombinacją pary elektron-dziura w trionie będącego konsekwencją mieszania stanów jasnych i ciemnych w polu magnetycznym w konfiguracji Voigta. Przejścia optyczne oznaczone E_1 oraz E_4 (niebieskie) dają emisję spolaryzowaną liniowo, ortogonalnie do kierunku pola magnetycznego, natomiast E_2 i E_3 (różowe) dają emisję spolaryzowaną liniowo, równoległą do kierunku pola magnetycznego.

uwzględnieniu przesunięcia diamagnetycznego oraz rozszczepienia Zeemana, można opisać przybliżoną zależnością:²⁴

$$E_X^F(B) = E_X(0) \pm 0,5|g_X^F|\mu_B B + \gamma_X^F B^2, \quad (1.27)$$

Podobnie w przybliżeniu zależność energii emisji trionu od pola magnetycznego w konfiguracji Faradaya E_T^F przy uwzględnieniu zarówno przesunięcia diamagnetycznego, jak i rozszczepienia Zeemana, można zapisać jako:

$$E_T^F(B) = E_T(0) \pm 0,5|g_T^F|\mu_B B + \gamma_T^F B^2, \quad (1.28)$$

W konfiguracji Faradaya zależność energii emisji, zarówno dla trionu, ekscytonu, jak i bieksytonu, będzie analogiczna, przy założeniu, że stany jasne ekscytonu są zdegenerowane lub że rozszczepienie struktury subtelnej jest pomijalnie małe. W przeciwnym przypadku, dla ekscytonu neutralnego, obserwowane w polu magnetycznym dwa stany jasne mają widoczne rozszczepienie δ_1 . Energia zatem opisana jest zależnością:²²

$$E_X^F(B) = E_X(0) \pm \frac{1}{2}\sqrt{\delta_1^2 + (g_X^F\mu_B)^2} + \gamma_X^F B^2. \quad (1.29)$$

Jak pokazano na rys. 1.8, zmiana energii stanów jasnych i ciemnych ekscytonu neutralnego związana z rozszczepieniem Zeemana odbiega od liniowej zależności dla małych wartości indukcji pola magnetycznego przyłożonego w konfiguracji Voigta. Tylko dla większych pól, dla których energia oddziaływania Zeemana jest większa od oddziaływania wymiany, zależność rozszczepienia jest w przybliżeniu liniową funkcją pola. Ze względu na ograniczoną rozdzielczość spektralną eksperymentu, często obserwuje się rozszczepienie tylko w wyższych polach, dlatego zależność energii ekscytonu neutralnego od pola magnetycznego w konfiguracji Voigta można zapisać analogicznie jak w przypadku konfiguracji Faradaya:

$$E_X^V(B) = E_X(0) \pm 0,5|g_X^V|\mu_B B + \gamma_X^V B^2, \quad (1.30)$$

W przypadku trionu, zależność energii emisji od pola magnetycznego w konfiguracji Voigta

ma postać:

$$E_{T,H}^V(B) = E_T(0) \pm 0.5(g_e^V + g_h^V)\mu_B B + \gamma_T^V B^2, \quad (1.31)$$

$$E_{T,V}^V(B) = E_T(0) \pm 0.5(g_e^V - g_h^V)\mu_B B + \gamma_T^V B^2, \quad (1.32)$$

Litera w indeksie górnym oznacza konfigurację Voigta (V) lub Faradaya (F), pierwsza litera w indeksie dolnym odnosi się do trionu (T), natomiast druga litera rozróżnia polaryzację światła emitowanego przy danym przejściu optycznym w przypadku konfiguracji Voigta.^{25,26} Dozwolone przejścia optyczne dostępne dla trionu w konfiguracji Voigta zostały schematycznie przedstawione na rys. 1.9(b).

Powyższe zależności są słuszne dla względnie małych pól magnetycznych, jak wyjaśniono na początku tego podrozdziału. Pomiary w polu magnetycznym posłużyły w tej pracy do wyznaczenia współczynników diamagnetycznych oraz g -czynn timerów nośników, z których te drugie są niezbędne do interpretacji wyników uzyskanych w pomiarze efektu Hanlego, jak również do potwierdzenia prawidłowej identyfikacji kompleksów ekscytonowych. Wyniki te zostały przedstawione w rozdziale 5.

1.3 Zastosowania pojedynczych kropek kwantowych

Kropki kwantowe są atrakcyjne zarówno do klasycznych zastosowań w optoelektronice, jak i do zastosowań w technologiach kwantowych. Ze względu na to, że umieszczone są w macierzy innego ciała stałego (kryształu półprzewodnika), mogą być zintegrowane z rozwiniętą technologią półprzewodnikową. Mogą stanowić część bardziej złożonych układów elektronicznych, a nawet być zasilane poprzez elektryczne wstrzykiwanie nośników, jeśli umieści się je w obszarze aktywnym złącza p-n. Zbiory kropek kwantowych znalazły zastosowania m.in. jako obszar aktywny w laserach oraz diodach elektroluminescencyjnych, a także w fotodetektorach i wzmacniaczach optycznych. Z kolei z punktu widzenia zastosowań w technologiach kwantowych istotne są właściwości pojedynczych kropek kwantowych. Ze względu na zakres niniejszej pracy, szczególną uwagę poświęcono zastosowaniom źródeł pojedynczych i nierozróżnialnych fotonów oraz kubitów spinowych, których obiecującą implementacją są półprzewodnikowe kropki kwantowe.

W tabeli 1.1 zestawiono właściwości fotonów i nośników niezbędne do wymienionych zastosowań. Wydłużone czasy koherencji oraz wysoki stopień nierozróżnialności fotonów umożliwiają tworzenie i zachowywanie splątania między nimi, co pozwala na bezpieczną komunikację na duże odległości. W obliczeniach kwantowych czas koherencji przekłada się bezpośrednio na liczbę operacji logicznych, które można zrealizować, zanim układ utraci kwantowy charakter. Kryteria wystarczającej liczby operacji są ograniczone przez pomyślne wykonanie kwantowej korekcji błędów, co odpowiada liczbie w zakresie od 10^4 do 10^6 . Zatem jeśli operacja bramkowa na spinie elektronu może zostać wykonana w 1 ns, to jej czas koherencji musi być dłuższy niż 10 μ s.²⁷

1.3.1 Komunikacja i kryptografia kwantowa

W 1984 dwaj naukowcy zajmujący się kwantową teorią informacji, Gilles Brassard i Charles Bennett, zaproponowali protokół kwantowej dystrybucji klucza kryptograficznego wykorzystujący korpuskularną naturę światła.²⁸ Protokół ten nosi nazwę BB84 od inicjałów jego autorów. Bezpieczeństwo transmisji jest w nim zapewnione przez wykorzystanie pojedynczych fotonów i wynika z postulatów mechaniki kwantowej. Pomiar stanu kwantowego pojedynczego fotonu prowadzi do jego projekcji (rzutowania von Neumanna) na jeden ze stanów własnych mierzonej obserwacji, przez co próba odczytania informacji przez osobę trzecią zmienia stan

Tabela 1.1: Właściwości fotonów i nośników niezbędne w wybranych zastosowaniach w technologiach kwantowych

Zastosowanie	Najważniejszy parametr
kwantowa dystrybucja klucza (BB84)	czystość emisji jednofotonowej
teleportacja kwantowa	nierozróżnialność fotonów, splątanie kwantowe
duplikatory kwantowe	nierozróżnialność fotonów, splątanie kwantowe
kubity spinowe	długi czas koherencji spinu

kwantowy i może zostać wykryta. Dla porównania, w klasycznej komunikacji dane wysyłane są w formie bitów: elektronicznie lub w postaci modulowanego światła laserowego, a klasyczne klucze kryptograficzne opierają się na matematycznie skomplikowanych algorytmach. Istnieją również inne protokoły kwantowej dystrybucji klucza, takie jak E91, których działanie opiera się na źródłach par polaryzacyjnie splątanych fotonów,²⁹ oraz protokoły bazujące na zastosowaniu dodatkowych stanów (wabików, z ang. *decoy states*), które mają na celu zmylenie podsłuchującego w ten sposób, że nie jest on w stanie odróżnić stanów składających się na klucz kryptograficzny od wabików.³⁰

Ze względu na nieuniknione straty w światłowodach, transmisja kwantowa na duże odległości wymaga zastosowania duplikatorów kwantowych, pełniących rolę analogiczną do wzmacniaczy sygnału w klasycznych sieciach telekomunikacyjnych. W przeciwieństwie do klasycznej komunikacji, nie jest jednak możliwe bezpośrednie wzmacnianie sygnału kwantowego, ponieważ nieznanego stanu kwantowego nie można sklonować. Z tego względu duplikatory kwantowe wykorzystują dystrybucję splątania oraz teleportację kwantową, której kluczowym elementem jest pomiar rzutujący na jeden ze stanów Bella.³¹ Realizacja tego pomiaru opiera się na interferencji dwóch fotonów na dzielniku wiązki. Warunkiem uzyskania wysokiej skuteczności pomiaru jest wysoka nierozróżnialność fotonów. Oznacza to, że fotony powinny mieć identyczne właściwości we wszystkich stopniach swobody, takich jak częstotliwość, szerokość spektralna, czas trwania impulsu, polaryzacja oraz profil modu przestrzennego, a ponadto muszą dotrzeć do dzielnika wiązki jednocześnie.

Dyskretna gęstość stanów i silne właściwości ekscytonowe sprawiają, że kropka kwantowa jest dobrym przybliżeniem układu dwupoziomowego. W przypadku ekscytonu stanem podstawowym jest pusta kropka, a stanem wzbudzonym — ekscyton. Zakaz Pauliego zapewnia, że w danym stanie kwantowym znajduje się dokładnie jeden nośnik, co w konsekwencji daje dokładnie jedno przejście optyczne o danej energii w danym momencie czasu. Kropka kwantowa może być zatem źródłem pojedynczych fotonów, tzn. fotonów emitowanych jeden po drugim.

Co szczególnie istotne w tej pracy, kropki kwantowe mogą emitować pojedyncze nierozróżnialne fotony. Jeśli rekombinacja promienista zachodzi wielokrotnie z jednego stanu energetycznego w kropce kwantowej, w idealnym przypadku nie da się odróżnić emitowanych fotonów ze względu na żadną z ich fizycznych właściwości. Szczegółowy opis parametrów i kryteriów stosowanych do oceny jakości źródeł pojedynczych i nierozróżnialnych fotonów przedstawiono w rozdziale 2.

Innym przykładem światła nieklasycznego emitowanego przez kropki kwantowe są pary splątanych polaryzacyjnie fotonów. Ich emisja jest możliwa w kaskadzie biekscyton–ekscyton (rys. 1.5), gdy rozszczepienie struktury subtelnej ekscytonu jest pomijalnie małe. Kaskada rekombinacji może przebiegać dwiema ścieżkami, w których stanem pośrednim są dwa zde-

generowane energetycznie stany jasne ekscytonu. Nie da się zatem rozróżnić, którą ścieżką zaszła rekombinacja. Stan końcowy układu nie jest zatem opisywany jako mieszanina statystyczna dwóch możliwych kaskad rekombinacji, lecz jako ich koherentna superpozycja. Ponieważ każdej ze ścieżek odpowiada określona kombinacja polaryzacji emitowanych fotonów, stan polaryzacji pary fotonów stanowi stan splątany. Źródła par polaryzacyjnie splątanych fotonów znajdują zastosowanie w kryptografii w niektórych protokołach kwantowej dystrybucji klucza, a także w teleportacji kwantowej.

Spośród wszystkich źródeł pojedynczych fotonów kropki kwantowe charakteryzują się najmniejszym prawdopodobieństwem emisji wielofotonowej³² oraz największym stopniem nierozróżnialności pojedynczych fotonów,³³ o czym więcej napisano w rozdziale 2. Sprawia to, że są one najlepszymi kandydatami do większości z wymienionych wyżej zastosowań.

1.3.2 Kwantowe przetwarzanie informacji

Realizacja kwantowego przetwarzania informacji wymaga fizycznego układu pełniącego rolę kubit. Taki układ powinien umożliwiać przygotowanie określonego stanu kwantowego, jego kontrolowaną manipulację, zachowanie koherencji przez odpowiednio długi czas oraz odczyt tego stanu.

Kubit jest kwantowym nośnikiem informacji, analogicznie do bitu w klasycznych metodach przetwarzania informacji. Kubit z perspektywy mechaniki kwantowej jest układem dwupoziomowym, a jego stany są reprezentowane przez stany logiczne $|0\rangle$ i $|1\rangle$. Kwantowa natura kubitów umożliwia wykonywanie obliczeń wykorzystujących zjawiska superpozycji i splątania, co dla wybranych problemów prowadzi do przewagi nad algorytmami klasycznymi. W kropkach kwantowych kubitami może być spin elektronu lub dziury, a także spin jądra atomu tworzącego kropkę kwantową. Jednak w tej pracy skupiono się na spinach nośników związanych w kropce kwantowej jako potencjalnych kubitach, gdyż, jak pokazano w poprzednich podrozdziałach, w tym przypadku możliwa jest optyczna inicjalizacja, manipulacja oraz odczyt stanu spinowego. Szczególnie dogodnym układem do optycznej kontroli spinu są naładowane kropki kwantowe zawierające pojedynczy elektron lub dziurę. W takim przypadku absorpcja światła prowadzi do powstania trionu, którego reguły wyboru umożliwiają selektywną inicjalizację oraz odczyt stanu spinowego. Dzięki obecności nośnika w kropce czas koherencji jego spinu nie jest ograniczony czasem rekombinacji promienistej, w przeciwieństwie do ekscytonu, po rekombinacji którego pozostaje pusta kropka. Długi czas koherencji jest jednym z podstawowych wymagań stawianych kubitom przeznaczonym do zastosowań w kwantowym przetwarzaniu informacji. Sposoby wyznaczenia charakterystycznych czasów dekoherencji opisano w rozdziale 2.

Oprócz epitaksjalnych kropek kwantowych na przestrzeni lat zaproponowano wiele platform realizujących kubity, jednak każda z nich posiada istotne ograniczenia. Układy nadprzewodzące są obecnie najlepiej zrozumianymi i opracowanymi platformami o skalowalnej architekturze, lecz wymagają pracy w temperaturach milikelwinowych i nie są kompatybilne z systemami fonicznymi ze względu na emisję w zakresie mikrofalowym.³⁴ Pułapki jonowe i atomy Rydberga charakteryzują się bardzo długimi czasami koherencji, przekraczającymi nawet 1 s,^{35,36,37} jednak ich miniaturyzacja i integracja z półprzewodnikowymi układami scalonymi pozostają trudne technologicznie. Z kolei kubity oparte na spinach jądrowych wykazują wyjątkowo długie czasy defazowania, ale ich wadą są wolne operacje logiczne i problemy z adresowaniem pojedynczych kubitów.³⁸ Kubity foniczne bardzo dobrze zachowują koherencję podczas propagacji, jednak słabe oddziaływanie foton–foton utrudnia realizację wydajnych bramek dwukubitowych oraz skalowalnych architektur obliczeniowych.^{39,40} Zastosowanie spinów nośników związanych w kropkach kwantowych łączy kilka zalet pozostałych

wymienionych platform. Kropki kwantowe mogą być integrowane ze strukturami fotonicznymi w układach scalonych oraz są kompatybilne ze standardowymi technologiami półprzewodnikowymi. Dodatkową zaletą jest możliwość ich pracy w zakresie telekomunikacyjnym oraz możliwość optycznej kontroli spinów nośników.

Z powyższych opisów widać, że pojedyncze kropki kwantowe łączą kubity odpowiedzialne za przechowywanie informacji z kubitami przesyłającymi informację, czyli fotonami wykorzystywanymi do transmisji danych w sieciach kwantowych. Niestety, dla kropek kwantowych emitujących w zakresie III okna telekomunikacyjnego, osiągnięte dotąd stopnie nierozróżnialności pojedynczych fotonów oraz czasy koherencji nośników ładunku i spinu nie są wystarczające do praktycznej implementacji w technologiach kwantowych. Znalezienie przyczyn dekoherencji oraz sposobów na jej ograniczenie pozwoli rozwijać technologie kwantowe.

2. Koherencja i metody mierzenia jej charakterystycznych czasów

Koherencja w rozumieniu kwantowym jest zdolnością układu do pozostania w superpozycji dwóch (lub więcej) stanów w danym czasie, zwanym czasem koherencji. Każdy układ kwantowy zrealizowany fizycznie jest poddawany wpływom otoczenia, zatem będzie układem otwartym. Procesy dekoherencji w układach oddziałujących z otoczeniem są nieuchronne i niszczą stan kwantowy, powodując jego przejście od superpozycji stanów kwantowych do klasycznej mieszaniny stanów. Dekoherencja jest głównym ograniczeniem praktycznego zastosowania wielu układów fizycznych reprezentujących kubity, czy to w ciele stałym, czy w formie fotonów.

2.1 Pojęcie koherencji w układach dwupoziomowych

W przypadku układu dwupoziomowego stan kwantowy może być reprezentowany przy użyciu sfery Blocha, gdzie na przeciwległych biegunach znajdują się stany $|0\rangle$ i $|1\rangle$, które można utożsamić ze stanami własnymi rzutu spinu na wybraną oś kwantyzacji, np. oś z , wtedy $|0\rangle = |\uparrow_z\rangle$ i $|1\rangle = |\downarrow_z\rangle$. W tej bazie każdy czysty stan kubitów można zapisać jako superpozycję tych dwóch stanów:

$$|\Psi\rangle = \alpha |0\rangle + \beta |1\rangle, \quad (2.1)$$

gdzie współczynniki α i β są zespolonymi amplitudami prawdopodobieństwa spełniającymi, zgodnie z zasadą Borna, warunek normalizacji:

$$|\alpha|^2 + |\beta|^2 = 1. \quad (2.2)$$

Warunek ten pozwala zapisać amplitudy w postaci:

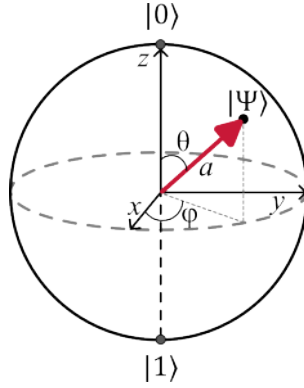
$$\alpha = \cos \frac{\theta}{2}, \quad \beta = e^{i\varphi} \sin \frac{\theta}{2}, \quad (2.3)$$

gdzie θ i φ są parametrami określającymi stan kubitów. Wówczas równanie (2.1) przyjmuje postać:

$$|\Psi\rangle = \cos \frac{\theta}{2} |0\rangle + e^{i\varphi} \sin \frac{\theta}{2} |1\rangle, \quad (2.4)$$

a θ i φ można utożsamić ze współrzędnymi sferycznymi punktu na sferze Blocha (rys. 2.1). Stanowi $|\Psi\rangle$ odpowiada więc wektorowi o początku w środku sfery i długości $a = 1$.

Stan czysty układu kwantowego można opisać za pomocą wektora stanu $|\Psi\rangle$. W przypadku niepełnej koherencji, gdy układ znajduje się w mieszaninie statystycznej różnych stanów,



Rysunek 2.1: Reprezentacja kubitu na sferze Blocha

wygodnym opisem jest macierz gęstości. Operator macierzy gęstości definiuje się jako:

$$\rho = \sum_i p_i |\Psi_i\rangle \langle \Psi_i|, \quad (2.5)$$

gdzie $|\Psi_i\rangle$ są unormowanymi wektorami stanów, a p_i oznaczają klasyczne prawdopodobieństwa występowania poszczególnych stanów w mieszaninie. Macierz gęstości pozwala odróżnić stany czyste od mieszanych. Operator gęstości dla stanu czystego zdefiniowany jest jako:

$$\rho = |\Psi\rangle \langle \Psi| \quad (2.6)$$

i spełnia zasadę $\rho^2 = \rho$. Stany mieszane nie spełniają tej zależności, zatem nie będą całkowicie koherentne, jednak mogą posiadać pewien stopień koherencji, określony długością wektora Blocha $\mathbf{a}$.⁴¹

W bazie stanów $|0\rangle$ i $|1\rangle$ operator gęstości jest reprezentowany przez macierz:

$$\rho_{ij} = \begin{pmatrix} \rho_{00} & \rho_{01} \\ \rho_{10} & \rho_{11} \end{pmatrix}, \quad (2.7)$$

gdzie elementy diagonalne to liczby rzeczywiste sumujące się do 1 i reprezentujące obsadzenie dwóch stanów $|0\rangle$ i $|1\rangle$. Elementy pozadiagonalne macierzy gęstości są zespolone i opisują koherencję fazową pomiędzy stanami bazowymi. Defazowanie prowadzi do zmniejszania wartości bezwzględnej elementów pozadiagonalnych, a w przypadku całkowitego zaniku koherencji przyjmują one wartości równe zeru.

Relaksacja oznacza zmianę obsadzenia stanów układu związaną z wymianą energii z otoczeniem. Proces ten odpowiada przejściu między stanami bazowymi $|0\rangle$ i $|1\rangle$, jeśli mają one różne energie. Na sferze Blocha relaksacja prowadzi do zmiany składowej wektora Blocha wzdłuż osi z . W przypadku ekscytonu relaksacja może być spowodowana rekombinacją promienistą, polegającą na przejściu ze stanu wzbudzonego (ekscyton) do stanu podstawowego (pusta kropka), któremu towarzyszy emisja fotonu. Natomiast w przypadku spinu nośnika w kropce kwantowej relaksacja oznacza przejście między stanami spinowymi o różnej energii, któremu towarzyszy wymiana energii z otoczeniem. Czysta dekoherencja fazowa (defazowanie) odnosi się natomiast do utraty informacji o względnej fazie pomiędzy stanami tworzącymi superpozycję. W reprezentacji za pomocą macierzy gęstości odpowiada to zanikowi elementów pozadiagonalnych. Na sferze Blocha defazowanie prowadzi do zanikania składowych wektora

w płaszczyźnie xy , a w konsekwencji do skrócenia jego długości. Dla czystego stanu koniec wektora Blocha znajduje się na powierzchni sfery, natomiast po częściowej utracie koherencji znajduje się wewnątrz niej.

Szybkość procesów prowadzących do zmiany stanu kwantowego jest standardowo opisywana przez charakterystyczne dla danego układu czasy T_1 i T_2 . Czas relaksacji T_1 opisuje procesy obejmujące transfer energii między kubitami a jego otoczeniem, podczas gdy czas T_2 opisuje wszystkie procesy niszczące koherentną superpozycję i zazwyczaj jest znacznie krótszy niż T_1 . Zanik koherencji w warunkach swobodnej ewolucji stanu uśrednionego w czasie (wiele powtórzeń pomiaru dla pojedynczego stanu) lub w przestrzeni (wiele pomiarów dla różnych stanów tego samego typu, np. zbiór kropek kwantowych) charakteryzuje się tzw. czasem koherencji niejednorodnej T_2^* . Czas T_2^* jest ograniczony przez szum kwazistatystyczny obecny w eksperymencie, tj. przez szum, który jest stały dla danego pomiaru, ale zmienia się od pomiaru do pomiaru.

Aby odróżnić dekoherencję wywołaną relaksacją od defazowania, czas T_φ jest używany do oznaczenia wkładu czystego defazowania. Całkowity czas koherencji oblicza się wówczas jako:

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T_\varphi}. \quad (2.8)$$

W zależności od tego, czy opisujemy czas koherencji nośnika związanego w kropce kwantowej, czy jego spinu, dokładne fizyczne znaczenie wielkości T_1 , T_2 , T_2^* i T_φ się różni, zatem rozwinięcie ich definicji i sposobu pomiaru w kolejnych podrozdziałach będzie rozpatrywane oddzielnie.

2.2 Emisja jednofotonowa i koherencja nośników w kropkach kwantowych

Rozpatrując kropkę kwantową jako układ dwupoziomowy można wyróżnić stan podstawowy odpowiadający pustej kropce, $|0\rangle$, oraz stan wzbudzony — ekscyton, $|1\rangle$. Koherencję stanu ekscytonu można badać metodami spektroskopii optycznej pośrednio, analizując właściwości emitowanego promieniowania. W procesie rekombinacji promienistej pary elektron–dziura stan kwantowy nośników w chwili rekombinacji determinuje właściwości emitowanego fotonu, takie jak jego energia, polaryzacja oraz faza. W konsekwencji pomiar właściwości emisji pozwala na wnioskowanie o koherencji stanu nośników związanych w kropce kwantowej.

W przypadku ekscytonu relaksacja może zachodzić m.in. poprzez rekombinację promienistą prowadzącą do przejścia ze stanu $|1\rangle$ do stanu podstawowego $|0\rangle$. W takim przypadku czas relaksacji populacji stanu wzbudzonego odpowiada jego czasowi życia. Zgodnie z równaniem (2.8) całkowity czas koherencji T_2 zależy od czasu życia stanu wzbudzonego T_1 oraz czasu czystego defazowania T_φ . Czas T_1 opisuje średni czas życia nośników i może zostać wyznaczony na podstawie pomiaru zaniku fotoluminescencji. Natomiast czas T_φ związany jest z procesami prowadzącymi do utraty koherencji fazowej bez zmiany obsadzenia poziomów energetycznych. W kropkach kwantowych głównymi mechanizmami czystego defazowania są oddziaływanie stanu ekscytonowego z fononami oraz fluktuacje elektrostatyczne otoczenia kropki, które prowadzą do fluktuacji energii przejścia optycznego.

Poszerzenie jednorodnej linii emisyjnej wynika z procesów zachodzących w czasie pomiaru, które wpływają na stan układu, prowadząc do zaniku jego koherencji. Obejmuje ono procesy ograniczające czas koherencji, takie jak relaksacja oraz czyste defazowanie. W przypadku przejścia optycznego szybkość zaniku koherencji jest związana z czasem koherencji (T_2) zależnością ($\gamma = 1/T_2$). Jeżeli obserwowana szerokość linii jest większa niż wartość wynikająca

wyłącznie z czasu życia stanu wzbudzonego, świadczy to o znaczącym wpływie mechanizmów defazowania na stan nośników w kropce kwantowej. W granicznym przypadku, gdy jedynym procesem prowadzącym do zaniku koherencji jest rekombinacja promienista, osiągnięta jest minimalna szerokość, ograniczona transformatą Fouriera zaniku monowykładniczego z charakterystycznym czasem T_1 (ang. *transform-limited linewidth*), a zależność między wyżej wymienionymi czasami przyjmuje postać:

$$T_2 = 2T_1 \quad (2.9)$$

W praktyce widmo fotoluminescencji rejestrowane jest jako średnia z wielu procesów emisji, a nie z pojedynczej realizacji przejścia optycznego. W rezultacie na obserwowaną szerokość linii wpływają również fluktuacje ładunkowe otoczenia kropki kwantowej. Ładunki obecne w otoczeniu kropki kwantowej prowadzą poprzez efekt Starka do zmiany energii przejścia optycznego. Jeżeli czas charakterystyczny tych fluktuacji jest dłuższy od czasu rekombinacji promienistej, ale krótszy od czasu pomiaru, w widmie obserwowane jest poszerzenie niejednorodne linii emisyjnej. Mechanizm ten określany jest jako rozmycie widmowe (z ang. *spectral diffusion*). W dalszej części pracy czas związany z niejednorodnym zanikiem koherencji będzie oznaczany symbolem T_2^* .

2.2.1 Pomiar prawdopodobieństwa emisji wielofotonowej

Zastosowania pojedynczych kropek kwantowych jako źródeł nierozróżnialnych fotonów, omówione w podrozdziale 1.3, wymagają niskiego prawdopodobieństwa emisji wielofotonowej. Właściwość tę bada się poprzez pomiar funkcji autokorelacji drugiego rzędu $g^{(2)}(\tau)$. Pomiar funkcji $g^{(2)}(\tau)$ poprzedza pomiar interferencji dwufotonowej, a wyznaczona z niego wartość $g^{(2)}(\tau = 0)$ jest niezbędna do poprawnego wyznaczenia stopnia nierozróżnialności fotonów. Warto zauważyć, że niskie prawdopodobieństwo emisji wielofotonowej nie jest jedynym warunkiem potrzebnym do uzyskania wysokiego stopnia nierozróżnialności fotonów.

Funkcja korelacji drugiego rzędu $g^{(2)}(\tau)$ jest miarą prawdopodobieństwa zarejestrowania fotonów oddzielonych odstępem czasu τ , znormalizowaną do prawdopodobieństwa oczekiwanego dla zdarzeń niezależnych. Jeśli rozważymy dwa mody światła j i k , to funkcja korelacji między nimi wyrażona w operatorach kreacji $\hat{a}_i^\dagger$ i anihilacji $\hat{a}_i$ fotonu w modzie i będzie miała postać:

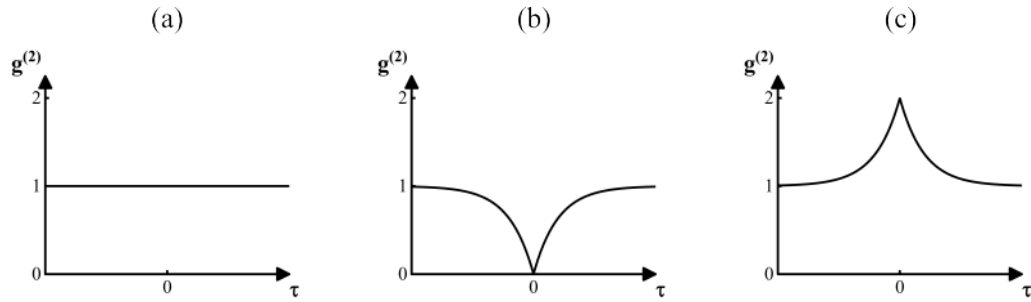
$$g_{j,k}^{(2)}(\mathbf{r}_1, t_1, \mathbf{r}_2, t_2) = \frac{\langle \hat{a}_j^\dagger(\mathbf{r}_1, t_1) \hat{a}_k^\dagger(\mathbf{r}_2, t_2) \hat{a}_k(\mathbf{r}_2, t_2) \hat{a}_j(\mathbf{r}_1, t_1) \rangle}{\langle \hat{a}_j^\dagger(\mathbf{r}_1, t_1) \hat{a}_j(\mathbf{r}_1, t_1) \rangle \langle \hat{a}_k^\dagger(\mathbf{r}_2, t_2) \hat{a}_k(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle}, \quad (2.10)$$

gdzie $\mathbf{r}_i$ i t_i określają miejsce i czas, w których odpowiednie mody światła zostały zmierzone. Jeżeli badamy jedno źródło ($j = k$) stacjonarne i pomiar realizowany jest w jednym niezmiennym położeniu ($\mathbf{r}_1 = \mathbf{r}_2$), to funkcja korelacji zależna będzie tylko od różnicy czasu $\tau = t_1 - t_2$:

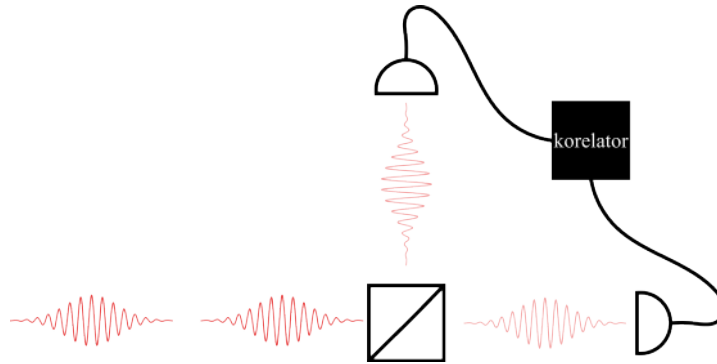
$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}^\dagger(t + \tau) \hat{a}(t) \hat{a}(t + \tau) \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}(t) \rangle^2}. \quad (2.11)$$

Taką funkcję określa się często funkcją autokorelacji II rzędu.

Źródła światła możemy podzielić ze względu na statystykę emisji fotonów, co zostało zaprezentowane na rys. 2.2 w postaci różnych przebiegów funkcji korelacji II rzędu. Dla idealnego lasera jednomodowego liczba fotonów podlega statystyce Poissona, co prowadzi do $g^{(2)}(\tau) = 1$ dla każdej wartości τ (rys. 2.2(a)). Drugą grupą źródeł w podziale ze względu na przebieg funkcji $g^{(2)}(\tau)$ są źródła, dla których występuje antygrupowanie fotonów, czyli $g^{(2)}(0) < g^{(2)}(\tau \neq 0)$ (rys. 2.2(b)). Istnieją też źródła światła (np. termiczne), dla których



Rysunek 2.2: Podział źródeł światła ze względu na przebieg funkcji $g^{(2)}(\tau)$. (a) statystyka poissonowska, (b) antygrupowanie fotonów, (c) grupowanie fotonów.



Rysunek 2.3: Schemat pomiaru funkcji autokorelacji drugiego rzędu. Fotony z jednego źródła padają na jedno z wejść dzielnika wiązki i zostają z równym prawdopodobieństwem odbite lub przetransmitowane. Jeden z detektorów pełni rolę sygnału START, drugi STOP, a korelator wyznacza histogram koincydencji w funkcji różnicy czasów rejestracji τ

emitowane fotony mają tendencję do grupowania; wtedy $g^{(2)}(0) > g^{(2)}(\tau \neq 0)$ (rys. 2.2(c)).

Innym podziałem źródeł jest podział ze względu na wartość funkcji korelacji II rzędu dla $\tau = 0$. Dla klasycznych źródeł światła $g^{(2)}(0) \geq 1$, podczas gdy nieklasyczne źródła światła cechują się $g^{(2)}(0) < 1$. Przykładem takiego źródła jest źródło pojedynczych fotonów, dla którego w idealnym przypadku $g^{(2)}(0) = 0$, natomiast graniczną wartością, dla której przyjmuje się, że źródło emituje pojedyncze fotony, jest $g^{(2)}(0) < 0,5$.

Funkcję autokorelacji II rzędu stosunkowo łatwo jest zmierzyć eksperymentalnie. Służy do tego interferometr Hanbury'ego Browna i Twissa (HBT), którego działanie zostało schematycznie zaprezentowane na rysunku 2.3. Emitowane fotony trafiają na dzielnik wiązki 50:50, który z jednakowym prawdopodobieństwem odbija i transmituje światło. Za dzielnikiem wiązki ustawione są dwa detektory, z których sygnały trafiają na korelator. Jeden z detektorów działa jako START, a drugi jako STOP, w ten sposób mierząc różnicę czasu τ między zarejestrowanymi zdarzeniami na detektorach. W pomiarze powstaje histogram zliczeń koincydencji w funkcji różnicy czasu τ . Znormalizowanie histogramu do 1 dla $\tau \rightarrow \infty$ daje zależność $g^{(2)}(\tau)$, analogicznie do rys. 2.2. Pomiar HBT weryfikuje w praktyce, jakie jest prawdopodobieństwo tego, że foton trafi w drugi detektor w czasie $t + \tau$, jeśli pierwszy detektor zliczy foton w chwili t . Warto zauważyć, że w przypadku pomiaru funkcji $g^{(2)}(\tau)$ dla źródeł pojedynczych fotonów użyte w pomiarze detektory muszą mieć zdolność detekcji (próg czułości) na poziomie jednego fotonu.

Ze względu na dyskretną strukturę poziomów energetycznych w kropkach kwantowych możliwe jest wyizolowanie pojedynczego przejścia optycznego odpowiadającego rekombinacji

określonego kompleksu ekscytonowego. W idealnym przypadku prowadzi to do emisji najwyższego fotonu podczas pojedynczego procesu rekombinacji. W rzeczywistości jednak w eksperymencie można obserwować również emisję równocześnie z podłoża, stanów defektowych, warstwy zwilżającej lub rekombinacji z innego stanu w danej lub innej kropce kwantowej. Emisja przekrywająca się spektralnie z badaną linią emisyjną lub światło rozproszone docierające do detektora, mogą dawać w efekcie w pomiarze $g^{(2)}(0) > 0$. Zliczenia ciemne detektora używanego w pomiarze również mogą negatywnie wpłynąć na otrzymany wynik, sztucznie zawyżając wartość $g^{(2)}(0)$.

Inną funkcją opisującą statystykę emisji jest prawdopodobieństwo emisji n fotonów $P(n)$. Funkcja ta jest unormowana, tzn.:

$$\sum_{n=0}^{\infty} P(n) = 1, \quad (2.12)$$

gdyż reprezentuje rozkład prawdopodobieństwa. Jeżeli badamy źródło pracy ciągłej (np. strukturę półprzewodnikową wzbudzaną laserem pracy ciągłej), możemy doprowadzić układ do stanu stacjonarnego. Wtedy rozkład $P(n)$ będzie zależeć od danego przedziału czasu ΔT i można go powiązać bezpośrednio z funkcją $g^{(2)}(\tau)$:

$$g^{(2)}(0) \cong \frac{2P(n=2, \Delta T)}{[P(n=1, \Delta T)]^2} = 1 + \frac{(\Delta n)^2 - \langle \hat{n} \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2}, \quad (2.13)$$

gdzie $\langle \hat{n} \rangle$ jest średnią liczbą fotonów, a $\Delta n = \langle n^2 \rangle - \langle n \rangle^2$ jest wariancją liczby fotonów. Zależność z równania (2.13) jest prawdziwa, gdy:

$$P(n=1, \Delta T) \gg P(n=2, \Delta T) \gg P(n \rightarrow \infty, \Delta T). \quad (2.14)$$

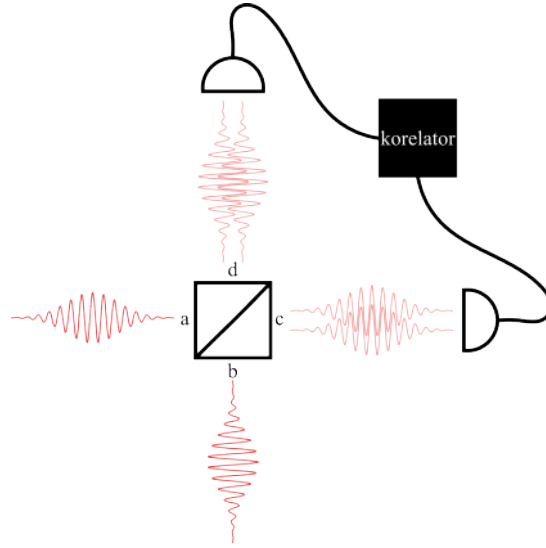
Określenie wartości $\langle \hat{n} \rangle$ i Δn jest możliwe dla każdego rozkładu $P(n)$, natomiast ich różne kombinacje mogą dać ten sam wynik $g^{(2)}(0)$. Z tego powodu pomiar rozkładu prawdopodobieństwa n fotonów daje lepszy opis źródła światła i jego charakterystyki, natomiast jest trudniejszy w realizacji eksperymentalnej. Potrzebny jest detektor, który ma rozdzielczość ze względu na liczbę fotonów (potrafi odróżnić stan o liczbie fotonów n i m), a końcowy wynik jest czuły na straty, w przeciwieństwie do pomiaru funkcji $g^{(2)}(\tau)$, gdzie straty nie wpływają na końcowy wynik, a jedynie mogą wydłużyć czas pomiaru.

2.2.2 Interferencja dwufotonowa

Pomiar funkcji autokorelacji $g^{(2)}(\tau)$ pozwala określić, czy badane źródło emituje pojedyncze fotony. Nie dostarcza jednak informacji o ich nierozróżnialności. Dwa fotony mogą być emitowane pojedynczo, lecz różnić się energią, polaryzacją, profilem czasowym lub fazą. W niektórych zastosowaniach (jak opisano w rozdziale 1.3) konieczne jest, aby kolejne emitowane fotony były wzajemnie nierozróżnialne. Właściwość tę bada się za pomocą interferencji dwufotonowej w eksperymencie Honga–Ou–Mandela (HOM).

Eksperyment HOM opiera się na interferencji na dzielniku wiązki, który dzieli padające światło na falę odbitą i transmitowaną, co schematycznie przedstawiono na rys. 2.4. W klasycznej elektrodynamice, pola wejściowe (E_a i E_b) oraz pola wyjściowe (E_c i E_d) są ze sobą powiązane poprzez zespolone współczynniki odbicia r i transmisji t :

$$\begin{pmatrix} E_c \\ E_d \end{pmatrix} = U \begin{pmatrix} E_a \\ E_b \end{pmatrix}, \quad (2.15)$$



Rysunek 2.4: Schemat pomiaru interferencji dwufotonowej oraz obrazowe przedstawienie efektu HOM. Dwa identyczne fotony spotykają się w tym samym miejscu i czasie na dzielniku wiązki o równym prawdopodobieństwie transmisji i odbicia (50:50). Oba fotony opuszczają dzielnik wiązki tym samym, ale losowym wyjściem. Detektory na każdym z wyjść dzielnika wiązki rejestrują zdarzenia, a korelator zlicza liczbę koincydencji w funkcji opóźnień między zdarzeniami na detektorze START i STOP.

gdzie

$$U = \begin{pmatrix} t & r \\ r & t \end{pmatrix} \quad (2.16)$$

Dla bezstratnego dzielnika wiązki transformacja musi być unitarna, co prowadzi do zależności:

$$|r|^2 + |t|^2 = 1 \quad (2.17)$$

oraz

$$r = \pm it. \quad (2.18)$$

W przypadku fali klasycznej jej energia może być podzielona na dwa tryby wyjściowe dzielnika wiązki, natomiast pojedynczy foton odbija się lub przejdzie przez dzielnik z prawdopodobieństwem odpowiednio $|r|^2$ i $|t|^2$. Wtedy zasada zachowania energii sprowadza się do zasady zachowania liczby fotonów. Operatory kreacji $\hat{a}^\dagger$ i anihilacji $\hat{a}$ są związane z polem elektrycznym $\hat{E}_a$ trybu wejściowego a . Tak samo można wprowadzić $\hat{b}^\dagger$, $\hat{b}$ dla trybu wejściowego b i analogiczne operatory dla trybów wyjściowych c i d .

Transformację wywołaną przez dzielnik wiązki można wyrazić za pomocą relacji pomiędzy operatorami trybów wejściowych i wyjściowych:

$$\begin{pmatrix} \hat{c} \\ \hat{d} \end{pmatrix} = U \begin{pmatrix} \hat{a} \\ \hat{b} \end{pmatrix}. \quad (2.19)$$

W bardziej ogólnej formie można zapisać te relacje jako:

$$\begin{aligned}\hat{a}^\dagger &= t\hat{c}^\dagger + r\hat{d}^\dagger \\ \hat{b}^\dagger &= r\hat{c}^\dagger + t\hat{d}^\dagger.\end{aligned}\tag{2.20}$$

W przypadku pojedynczego fotonu padającego na dzielnic wiązki wejściem a , stan ten może być opisany używając operatora kreacji $\hat{a}^\dagger$ jako:

$$|1_a, 0_b\rangle = \hat{a}^\dagger |0, 0\rangle.\tag{2.21}$$

Używając poprzednich zależności z równania (2.20) można zapisać ten sam stan za pomocą operatorów związanych z modami c i d na wyjściu dzielnika:

$$|1_a, 0_b\rangle = \hat{a}^\dagger |0, 0\rangle = (t\hat{c}^\dagger + r\hat{d}^\dagger) |0, 0\rangle = t |1_c, 0_d\rangle + r |0_c, 1_d\rangle.\tag{2.22}$$

Dostajemy w ten sposób superpozycję stanów na wyjściu z dzielnika wiązki. Widać stąd jednoznacznie, że foton padający na dzielnic wiązki wejściem a może być albo zmierzony na wyjściu c z prawdopodobieństwem $|t|^2$ albo na wyjściu d z prawdopodobieństwem $|r|^2$. Widzimy tu ponownie antygrupowanie fotonów omówione w poprzednim podrozdziale, gdzie dla strumienia pojedynczych fotonów docierających do dzielnika wiązki, dwa detektory umieszczone na jego wyjściach nigdy nie zarejestrują fotonu jednocześnie.^{42,43}

W układzie do interferencji HOM, dwa identyczne fotony są skierowane na dwa oddzielne wejścia dzielnika. Dla dwóch fotonów padających na różne wejścia dzielnika istnieją cztery możliwe procesy prowadzące do stanu wyjściowego: oba fotony mogą zostać przetransmitowane, oba odbite lub jeden odbity i drugi przetransmitowany i odwrotnie. Stan układu będzie wyglądać następująco:

$$|1_a, 1_b\rangle = \hat{a}^\dagger \hat{b}^\dagger |0_a, 0_b\rangle.\tag{2.23}$$

Posługując się operatorami związanymi z modami wyjściowymi dostajemy:

$$(t\hat{c}^\dagger + r\hat{d}^\dagger)(r\hat{c}^\dagger + t\hat{d}^\dagger) |0, 0\rangle = tr |2_c, 0_d\rangle + rt |0_c, 2_d\rangle + (t^2 + r^2) |1_c, 1_d\rangle,\tag{2.24}$$

Pierwsze dwa składniki odpowiadają sytuacjom, w których oba fotony opuszczają dzielnic tym samym wyjściem. Trzeci składnik opisuje przypadek, w którym fotony zostają zarejestrowane na różnych wyjściach dzielnika. Amplituda tego procesu jest sumą dwóch nierozróżnialnych możliwości: jednoczesnej transmisji obu fotonów oraz ich jednoczesnego odbicia.

Prawdopodobieństwo zaobserwowania obu fotonów na jednym wyjściu wynosi:⁴⁴

$$P(2_c, 0_d) = |t|^2 + |r|^2.\tag{2.25}$$

Z symetrii wynika, że $P(2_c, 0_d) = P(0_c, 2_d)$. Prawdopodobieństwo zaobserwowania fotonów na różnych wyjściach dzielnika wynosi:

$$P(1_c, 1_d) = |t^2 + r^2|^2.\tag{2.26}$$

W przypadku idealnego bezstratnego dzielnika wiązki, współczynniki mają wartości $r = 1/\sqrt{2}$ oraz $t = i/\sqrt{2}$, wtedy otrzymujemy:

$$P(2_c, 0_d) = P(0_c, 2_d) = \frac{1}{2}\tag{2.27}$$

$$P(1_c, 1_d) = 0. \quad (2.28)$$

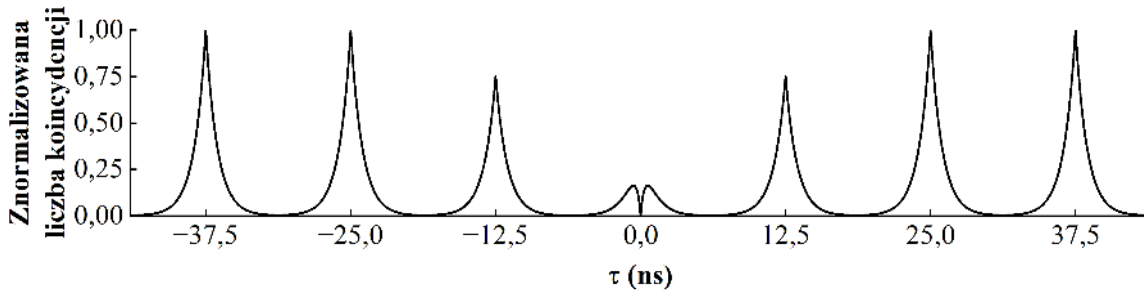
Widzimy, że amplitudy związane z $|1_c, 1_d\rangle$ interferują destruktywnie, a fotony nigdy nie opuszczają dzielnika poprzez dwa różne wyjścia. W każdym przypadku będą propagować się wspólnym modem, w 50% przypadkach modem wyjściowym c i w 50% przypadkach modem wyjściowym d . Całkowity stan układu na wyjściu dzielnika ma zatem postać:⁴²

$$|\Psi_{\text{HOM}}\rangle = \frac{|2_c, 0_d\rangle + |0_c, 2_d\rangle}{\sqrt{2}}. \quad (2.29)$$

Powyższy wynik jest prawdziwy wyłącznie wtedy, gdy oba scenariusze prowadzące do stanu $|1_c, 1_d\rangle$ są całkowicie nierozróżnialne. Wymaga to, aby fotony miały identyczną energię, polaryzację, profil przestrzenny oraz czasowy, a także docierały do dzielnika jednocześnie. Jeżeli którykolwiek z tych warunków nie jest spełniony, możliwe staje się rozróżnienie trajektorii fotonów, przez co interferencja nie jest całkowicie destruktywna.

W praktyce pomiar interferencji dwufotonowej przeprowadza się zwykle poprzez wzbudzenie kropki kwantowej promieniowaniem lasera impulsowego o znanej częstotliwości repetycji. Kolejne impulsy wzbudzają kropkę w regularnych odstępach czasu, a odpowiadające im fotony są kierowane do interferometru HOM. Odległość czasową między kolejnymi impulsami koryguje się w jednym z ramion interferometru tak, aby fotony wyemitowane w wyniku kolejnych impulsów wzbudzających docierały do dzielnika wiązki w tym samym czasie, z dokładnością ograniczoną przez rozrzut czasów emisji wynikający z czasu życia kompleksu ekscytonowego oraz, w przypadku wzbudzania nierezonansowego, czasu relaksacji. W histogramie czasów koincydencji kolejne piki odpowiadają różnicom czasowym między detekcją dwóch fotonów. Odległość między sąsiednimi pikami odpowiada okresowi repetycji lasera, natomiast pik centralny odpowiada sytuacji, w której dwa fotony pochodzące z kolejnych impulsów wzbudzających docierają do dzielnika wiązki jednocześnie. Schematyczny rysunek przedstawiający histogram koincydencji dla częściowo rozróżnialnych fotonów został przedstawiony na rys. 2.5. Znormalizowanie histogramu do $g^{(2)}(\tau \rightarrow \infty) = 1$ powoduje, że dwa piki najbliższe środkowemu mają wysokość 0,75. Środkowy pik w przypadku całkowicie rozróżnialnych fotonów miałby wysokość 0,5. Spowodowane jest to tym, że w przypadku dwóch rozróżnialnych fotonów padających na dzielnik wciąż istnieje 50% prawdopodobieństwo, że opuszczają one dzielnik tym samym wyjściem. W przedstawionym przypadku, dla częściowo rozróżnialnych fotonów, widać redukcję zliczeń w histogramie względem poziomu 0,5. Z kolei użycie lasera o pracy ciągłej wprowadza dodatkowy rozrzut czasowy pomiędzy emisją kolejnych fotonów, ograniczając maksymalny możliwy do osiągnięcia stopień nierozróżnialności. Ponadto szerokość korelacji czasowych obserwowanych w takich warunkach może być ograniczona przez czasową odpowiedź układu, a nie bezpośrednio przez czas koherencji emitera. Z tego względu w pomiarach interferencji dwufotonowej powszechnie stosuje się wzbudzenie impulsowe, które umożliwia lepszą kontrolę czasów emisji fotonów.

W przypadku pojedynczych kropek kwantowych nierozróżnialność kolejnych fotonów zależy od koherencji emitującego stanu ekscytonowego. Procesy prowadzące do czystego defazowania powodują losowe zmiany fazy fotonu. W konsekwencji kolejne fotony różnią się stanem kwantowym, a interferencja Honga–Ou–Mandela nie jest już całkowicie destruktywna. Za miarę stopnia nierozróżnialności pojedynczych fotonów uznaje się widoczność (kontrast) interferencji oznaczaną zwykle literą V (z ang. *visibility*). W pomiarze interferencyjnym umyślnie zmienia się polaryzację w jednym z ramion interferometru HOM w ten sposób, aby interferujące fotony były spolaryzowane ortogonalnie, co sprawia, że są one całkowicie rozróżnialne. Porównując wartości $g^{(2)}(0)$ dla fotonów spolaryzowanych tak samo i ortogonalnie, wyznacza



Rysunek 2.5: Przykładowy histogram HOM dla częściowo rozróżnialnych fotonów.

się widoczność na podstawie zależności:

$$V = \frac{g_{\perp}^{(2)}(0) - g_{\parallel}^{(2)}(0)}{g_{\perp}^{(2)}(0)}. \quad (2.30)$$

Zmniejszenie widoczności interferencji stanowi bezpośrednią miarę utraty koherencji optycznej kolejnych emitowanych fotonów i umożliwia wyznaczenie czasu koherencji T_2 rekombinującego kompleksu ekscytonowego związanego w kropce kwantowej. W granicznym przypadku źródła o koherencji ograniczonej wyłącznie czasem życia ekscytonu ($T_2 = 2T_1$), emitowane fotony osiągają maksymalną możliwą nierozróżnialność $V = 1$.

2.2.3 Wybrane wyniki eksperymentalne

Eksperyment interferencji dwufotonowej został zaproponowany i po raz pierwszy przeprowadzony przez C.K. Honga, Z.J. Ou i L. Mandela.⁴⁵ W publikacji z 1987 roku autorzy uzasadniają użycie interferometru do dokładnego zmierzenia odstępu czasowego między pojedynczymi fotonami wygenerowanymi w procesie spontanicznej parametrycznej konwersji w dół, z których jeden był sygnałem, a drugi sondą. W konsekwencji dało to również informację o szerokości paczki falowej badanych fotonów.

Pierwszy znaczący wynik dotyczący nierozróżnialności pojedynczych fotonów emitowanych w procesie rekombinacji pary elektron-dziura wzbudzonej w kropce kwantowej został zademonstrowany przez Santoriego i innych.⁴⁶ Pokazali oni widoczność na poziomie $V = 0,81$ oraz związany z nią czas koherencji $T_2 = 223$ ps dla fotonów emitowanych przez samorośnące kropki kwantowe z InAs wzrosnięte na podłożu z GaAs. Dla badanej kropki stosunek $2T_1/T_2 = 1,5$ ($T_2/2T_1 = 0,67$), co implikuje obecność mechanizmów dekoherencji związanych z czystym defazowaniem (czas T_{ϕ}). Autorzy wskazali trzy potencjalne przyczyny obserwowania $V < 1$. Kropka kwantowa była wzbudzana impulsem laserowym generującym parę elektron-dziura w wyższym stanie wzbudzonej w kropce. Proces relaksacji z emisją fononów, trwający dziesiątki pikosekund, może wprowadzać dodatkowy rozrzut czasowy emisji fotonu, powodując mniejsze przekrycie paczek falowych interferujących fotonów. Prowadzi to do redukcji mierzalnej widoczności interferencji oraz ogranicza jakość źródła nierozróżnialnych fotonów. Dekoherencja spowodowana przez fonony to kolejny możliwy mechanizm. Wreszcie, poszerzenie niejednorodnej linii widmowej spowodowane oddziaływaniem z fluktuującym otoczeniem ładunkowym (związane z czasem T_2^*) może również potencjalnie przyczyniać się do dekoherencji w krótkich skalach czasowych.

Warto mieć na uwadze, że wspomniane kropki emitują fotony o długości fali $\lambda \approx 930$ nm. Odpowiada to tzw. pierwszemu oknu telekomunikacyjnemu, które charakteryzuje się względnie silnym tłumieniem w standardowych włóknach szklanych światłowodów stosowanych

w telekomunikacji. Z tego powodu do praktycznych zastosowań w komunikacji i kryptografii kwantowej rozważa się źródło emitujące w zakresie trzeciego okna telekomunikacyjnego, którego środkowa długość fali wynosi $\lambda = 1550$ nm. Dla kropek kwantowych emitujących fotony o długości fali około 1 μm otrzymano rekordowo niskie prawdopodobieństwo emisji wielofotonowej $g^{(2)}(0) = (7,5 \pm 1,6) \times 10^{-5}$,⁴⁷ a także wysoką widoczność interferencji $V = (0,979 \pm 0,006)$ ⁴⁸ oraz $V = (0,975 \pm 0,005)$,³³ świadczącą o długim czasie czystej dekoherencji fazowej T_φ i braku wkładu od poszerzenia niejednorodnego. Dla kropek kwantowych emitujących w zakresie III okna telekomunikacyjnego prowadzone są intensywne badania o obiecujących rezultatach, gdyż osiągane parametry pracy źródeł zbliżają się do granicy stosowalności. Wartości funkcji autokorelacji II rzędu są na poziomie $g^{(2)}(0) = 5 \times 10^{-3}$ dla kropek z InAs wzrosniętych na InP^{49,50} oraz niewiele wyższe ($6\text{--}8 \times 10^{-3}$) dla kropek z InAs w barierze potencjału z InAlGaAs⁵¹. Dopiero w ostatnich latach stopień nierozróżnialności pojedynczych fotonów dla kropek emitujących w zakresie III okna telekomunikacyjnego zbliżył się do jedności. Sukcesywna poprawa kontroli wzrostu nanostruktur, deterministyczne metody wytwarzania oraz zaawansowane schematy wzbudzania pozwoliły tym źródłom na uzyskanie rezultatów zbliżonych do osiągniętych wcześniej na kropkach emitujących w zakresie krótszych fal. Tabela 2.1 pokazuje najważniejsze osiągnięcia dla kropek emitujących w zakresie III okna telekomunikacyjnego wraz z rokiem publikacji wyników, wskazując na szybki rozwój tych źródeł i duże zainteresowanie tematem.

Tabela 2.1: Zestawienie najważniejszych wyników eksperymentu interferencji dwufotonowej (i odpowiadających im pomiarów funkcji $g^{(2)}(\tau)$) na kropkach kwantowych emitujących w zakresie III okna telekomunikacyjnego.

układ materiałowy	λ [nm]	$g^{(2)}(0)$	T_1 [ps]	T_2 [ps]	$T_2/2T_1$	V [%]	rok	ref.
InAs/InAlGaAs	1544,5	0,017	–	–	–	91,7	2026	[51]
InAs/InAlGaAs	1557	0,007	67,4	–	–	90	2026	[52]
InAs/InAlGaAs	1544,5	0,0307	257,5	381	0,74	71,9	2025	[53]
InAs/GaAs	1551	0,069	500	–	–	34,9	2024	[54]
InAs/InP	1533	0,005	340	150	0,22	29	2024	[55]
InAs/InP	1555	0,0032	530	103	0,10	19,3	2024	[49]
InAs/InGaAs/GaAs	1556	0,0072	520	–	–	8,1	2023	[56]
In(Ga)As/GaAs	1555	0,023	1010	150	0,07	14,4	2021	[57]

W ciągu zaledwie kilku lat nastąpił znaczący wzrost osiąganych wartości widoczności interferencji V . Otrzymano emisję w obrębie III okna telekomunikacyjnego z jednoczesnym niskim prawdopodobieństwem emisji wielofotonowej ($g^{(2)}(0) < 0,01$), natomiast wartość widoczności $V > 90\%$ otrzymano dopiero stosunkowo niedawno, w roku pisania tej rozprawy.

Umieszczenie kropki kwantowej we wnęce optycznej skraca czas życia T_1 stanu wzbudzonego poprzez efekt Purcella,⁵⁸ co wpływa na stosunek $T_2/2T_1$. Im bliżej jest on 1, tym wyższy stopień nierozróżnialności fotonów. Zmiana względnych skali czasowych między procesami defazowania i relaksacji wpływa na czas, w którym mechanizmy czystego defazowania (fonony, fluktuacje ładunku) oddziałują z układem. Jeśli ekscyton zrekombinuje szybciej dzięki efektowi Purcella, to ma mniej czasu na utratę fazy, zanim zrekombinuje i wyemituje foton. W ref. [52] efekt Purcella, skracający czas życia do $T_1 = 67,4$ ps, spowodował uzyskanie wysokiej wartości widoczności interferencji.

W powyższych źródłach jedynie w niektórych pracach wyznaczono czasy koherencji T_2 .

Gdy czas koherencji T_2 jest krótki w porównaniu z czasem życia, w histogramie koincydencji w pomiarze interferencji dwufotonowej można zauważyć charakterystyczny kształt piku dla $\tau = 0$, jak pokazano na rysunku 2.5. Obserwowane minimum jest związane z czasem koherencji. Dopasowując je podwójnym zanikiem wykładniczym, otrzymuje się charakterystyczny czas T_2 . W przypadku, gdy $T_2 \rightarrow 2T_1$ (jak w źródłach podających wysokie wartości V), w środkowym pikie obserwuje się redukcję zliczeń bez charakterystycznego dodatkowego minimum, co nie pozwala wyznaczyć czasu T_2 opisaną metodą, ale może świadczyć o długim czasie koherencji. Znając czasy T_1 oraz T_2 , autorzy ref. [53] wyznaczyli czas $T_\varphi = 1470$ ps na podstawie relacji ze wzoru (2.8) i określili, że pochodzi on zarówno z jednorodnego poszerzenia spowodowanego oddziaływaniem z kąpielą fononową, jak i z niejednorodnego poszerzenia spowodowanego fluktuacjami otoczenia ładunkowego lub magnetycznego.

2.3 Koherencja spinów nośników związanych w kropkach kwantowych

Jedną z największych przeszkód w realizacji pamięci spinowych oraz kwantowego przetwarzania informacji opartego na kubitach spinowych jest utrata informacji zakodowanej w spinie nośnika. Relaksacja spinu zachodzi przy przejściu ze stanu wzbudzonego do stanu podstawowego w czasie T_1 . Natomiast dekoherencja związana z utratą informacji o względnej fazie stanów własnych zachodzi w charakterystycznej skali czasu T_2 . Dekoherencja może zachodzić bez zmiany obsadzenia stanu. Jest to czyste defazowanie opisywane czasem T_φ . Procesy relaksacji spinów nośników w kropkach kwantowych są ograniczone ze względu na trójwymiarowe związanie nośników. W porównaniu z półprzewodnikami objętościowymi i dwuwymiarowymi, czasy relaksacji spinów nośników w kropkach kwantowych są dłuższe. Dlatego spiny nośników w kropkach kwantowych mają duży potencjał do wykorzystania jako kubity spinowe. Dla neutralnych kompleksów ekscytonowych czas relaksacji spinów wygenerowanych optycznie nośników jest ograniczony czasem rekombinacji pary elektron-dziura. Z kolei w przypadku trionów, elektron lub dziura są obecne w kropce kwantowej przed i po rekombinacji, zatem czas relaksacji ich spinu nie jest nią ograniczony.

Spin elektronu (lub dziury) nie jest odizolowany od otoczenia, ale przeciwnie — bez przerwy z nim oddziałuje. W przypadku kubitów realizowanych w kropkach kwantowych spin nośnika może oddziaływać z otoczeniem za pośrednictwem dwóch głównych mechanizmów. Pierwszym jest oddziaływanie spin-orbita, które sprzęga spin nośnika z jego orbitalnym stopniem swobody, a drugim oddziaływanie z jądrami atomów tworzących kropkę kwantową.⁵⁹ Schematyczna reprezentacja spinu elektronu w kropce kwantowej oddziałującego ze spinami jądrowymi została przedstawiona na rysunku 2.6. To sprzężenie z otoczeniem zmienia stan kwantowy spinu, a w konsekwencji powoduje utratę informacji przez niego przenoszonej.



Rysunek 2.6: Spin elektronu (czerwona strzałka) oddziałujący ze spinami jądrowymi (czarne strzałki) w kropce kwantowej.

Pole elektryczne nie może bezpośrednio spowodować obrotu spinu elektronu. Natomiast żaden stan spinowy w kropce kwantowej nie jest czystym stanem spinowym, a sprzęga się ze stanem orbitalnym poprzez oddziaływanie spin-orbita. Jednym z najistotniejszych źródeł

oddziaływania na stan spinowy pośrednio poprzez oddziaływanie ze stanem orbitalnym są fonony. W półprzewodnikach III–V oddziaływanie elektron–fonon zachodzi między innymi poprzez potencjał deformacyjny oraz efekt piezoelektryczny. W połączeniu ze sprzężeniem spin–orbita mechanizmy te umożliwiają przejścia pomiędzy stanami spinowymi, prowadząc do relaksacji spinu opisaną czasem T_1 .^{60,27}

Oddziaływanie spinu elektronu (lub dziury) ze spinami jądrowymi w atomach nazywa się oddziaływaniem nadsubtelnym (z ang. *hyperfine interaction*). W typowych epitaksjalnych kropkach kwantowych, z materiałów takich jak InAs czy GaAs, liczba atomów N oddziałujących ze spinem elektronu jest rzędu 10^4 – 10^6 . Hamiltonian oddziaływania nadsubtelnego dla elektronu ma postać:

$$\mathcal{H}_{\text{HF}} = \sum_k^N A_k \mathbf{I}_k \mathbf{S}, \quad (2.31)$$

gdzie $\mathbf{I}_k$ jest operatorem spinu jądra atomu k , a $\mathbf{S}$ jest operatorem spinu elektronu. Ponieważ funkcja falowa elektronu nie jest jednorodna, stała sprzężenia A_k między elektronem a jądrem jest proporcjonalna do kwadratu przekrycia funkcji falowej elektronu z danym jądrem. Stan elektronu związanego w kropce kwantowej ewoluuje znacznie szybciej (~ 1 – 10 ns) w porównaniu ze spinami jądrowymi (w zakresie od 100 μ s nawet do ~ 1 s). Oba układy kwantowe oddziałują na siebie. Oddziaływanie spinu elektronu z dużą liczbą atomów, z których każdy posiada własny spin jądrowy, sprawia, że początkowo czysty stan kwantowy spinu elektronu staje się klasyczną mieszaniną wielu stanów.

Przyjęto, że efektywne pole oddziałujące na spin elektronu, pochodzące od spinów jądrowych, nazywa się polem Overhausera, natomiast pole pochodzące od spinu elektronu, oddziałujące na spiny jądrowe, — polem Knighta. Pole Overhausera B_N działa na spin elektronu podobnie jak pole zewnętrzne i ma wartość:

$$B_N = \frac{\sum_k^N A_k \mathbf{I}_k}{g\mu_B}, \quad (2.32)$$

gdzie g jest g -czynnikiem nośnika oddziałującego z jądrami, a μ_B jest magnetonem Bohra. Maksymalna wartość B_N jest osiągana, gdy spiny jądrowe są całkowicie spolaryzowane. Dla dowolnego materiału ta wartość jest niezależna od liczby atomów N , gdyż A_k jest proporcjonalne do $1/N$, co oznacza, że przy większej liczbie jąder atomowych wkład każdego z nich do B_N jest mniejszy. Nie zmienia to faktu, że w przypadku prawie zupełnie niespolaryzowanych spinów jądrowych fluktuacje statystyczne pola pochodzącego od nich są wciąż zależne od $1/N$; z tego względu spiny elektronów w kropkach kwantowych silniej odczuwają te fluktuacje w porównaniu np. ze spinami w dwuwymiarowym gazie elektronowym. Jest to bezpośrednia konsekwencja różnicy w rozmiarze funkcji falowej elektronu.⁶⁰

Fluktuacje pola magnetycznego pochodzącego od spinów jądrowych są spowodowane oddziaływaniami typu dipol–dipol (magnetyczny) pomiędzy jądrami atomów oraz oddziaływaniami między spinami elektronu i jąder atomowych poprzez pole Knighta. Obecność spinów jądrowych powoduje defazowanie stanu, gdy na elektron, którego stan ewoluuje w czasie, działa fluktuujące pole Overhausera. Zmiana pola może być spowodowana lokalną zmianą polaryzacji spinów jądrowych, ale także wymianą polaryzacji spinów (z ang. *flip-flop*) pomiędzy sąsiednimi jądrami, gdy całkowita polaryzacja spinów jądrowych pozostaje niezmienna. Dekoherencja wynika z tego, że w każdej chwili czasu zwrot i wartość pola są przypadkowe (z punktu widzenia elektronu). Dokładna postać funkcji zaniku koherencji spinu elektronu jest zależna od rozkładu prawdopodobieństwa pola Overhausera, ale jego charakterystyczny czas defazowania T_φ jest proporcjonalny do $\sqrt{N}/A_k$.⁶¹ Warto zauważyć, że stała oddziaływania

A_k będzie inna dla każdego jądra atomowego, gdyż zależna jest od położenia danego jądra względem funkcji falowej elektronu. Ponadto różni się dla różnych izotopów danego pierwiastka, dlatego często określa się efektywną stałą oddziaływania A dla elektronów w danym półprzewodniku. Wartości A oraz wartości spinów jądrowych I dla wybranych pierwiastków z grup III i V, których stopy pozwalają osiągnąć emisję w zakresie telekomunikacyjnym, zostały zebrane w tabeli 2.2.^{62,63,61}

Tabela 2.2: Efektywne stałe oddziaływania A dla elektronów oraz wartości spinów jądrowych I dla wybranych pierwiastków.

pierwiastek	A [μeV]	I
Ga	90	3/2
As	44	3/2
In	47	9/2
P	36	1/2

Dla elektronów w paśmie przewodnictwa, którego część Blocha funkcji falowej ma charakter s, lokalny czynnik Blocha wykazuje sferyczną symetrię wokół jądra. W rezultacie dominuje izotropowe oddziaływanie kontaktowe Fermiego, opisane stałą oddziaływania nadsubtelnego A , której wartość jest związana z gęstością elektronową w jądrze. Stała A jest dodatnia dla większości półprzewodników III–V. Dla nośników w paśmie walencyjnym sytuacja jest odmienna. Ze względu na niesferyczną symetrię części Blocha związanej z orbitalami typu p kontaktowy wkład Fermiego jest silnie ograniczony, a istotną rolę odgrywają nie-lokalne składniki oddziaływania nadsubtelnego, w szczególności oddziaływanie dipol-dipol. Jego znak, amplituda i anizotropia zależą od charakteru części Blocha funkcji falowej pasma walencyjnego.⁶⁴ Dlatego dla spinów dziur oddziaływanie nadsubtelne jest słabsze w porównaniu ze spinem elektronu. Charakterystyczne czasy dekoherencji związanej z utratą fazy dla spinów elektronów w kropkach kwantowych w półprzewodnikach grup III–V są rzędu kilku ns, podczas gdy dla dziur te czasy są nawet o rząd dłuższe.⁶⁵

Oprócz czystego defazowania obecność jąder atomowych może spowodować również obrót spinu. W przypadku braku zewnętrznego pola spin elektronu precesuje wokół pola Overhausera B_N , co prowadzi do ciągłej zmiany między spinem skierowanym w górę a w dół. Bezpośrednia wymiana spinu między elektronem a jądrem jest mało prawdopodobna, gdyż magneton Bohra jest znacznie większy niż magneton jądrowy μ_N ($1 \mu_B \approx 1836 \mu_N$), co powoduje, że różnica energii między stanami spinowymi elektronu nie jest bliska energii między stanami spinowymi jądra (niespełniona zasada zachowania energii w procesie jednoczesnego obrotu spinu).

2.3.1 Wybrane metody pomiaru koherencji spinowej

W literaturze opisywane są różne metody wyznaczania czasów relaksacji i koherencji spinów nośników w kropkach kwantowych. Różnią się one sposobem przygotowania i odczytu stanu spinowego, wymaganiami dotyczącymi wzbudzenia optycznego oraz możliwością kontrolowanej manipulacji fazą spinu. Poniżej omówiono wybrane metody, które pojawiają się najczęściej lub są przyjęte powszechnie za standardowe.

Pomiar czasu relaksacji spinu

Charakterystyczny czas relaksacji spinu T_1 mierzony jest standardowo za pomocą techniki pomiaru fotoluminescencji rozdzielczej czasowo i polaryzacyjnie. Po optycznej inicjalizacji spinów za pomocą impulsu światła o określonej polaryzacji rejestruje się emisję dla dwóch polaryzacji kołowych. Na podstawie czasowego przebiegu intensywności obu polaryzacji wyznacza się czasową zależność stopnia polaryzacji kołowej P_σ :

$$P_\sigma = \frac{I_{\sigma-} - I_{\sigma+}}{I_{\sigma-} + I_{\sigma+}}, \quad (2.33)$$

gdzie $I_{\sigma-}$ i $I_{\sigma+}$ oznaczają intensywności emisji spolaryzowanej kołowo lewo- i prawoskrętnie. W odpowiednio dobranym schemacie eksperymentalnym zanik polaryzacji można wykorzystać do wyznaczenia czasu relaksacji T_1 .^{66,67,68} Powyższy eksperyment wymaga wzbudzania rezonansowego, detekcji rozdzielczej czasowo oraz kontroli polaryzacji światła wzbudzającego.

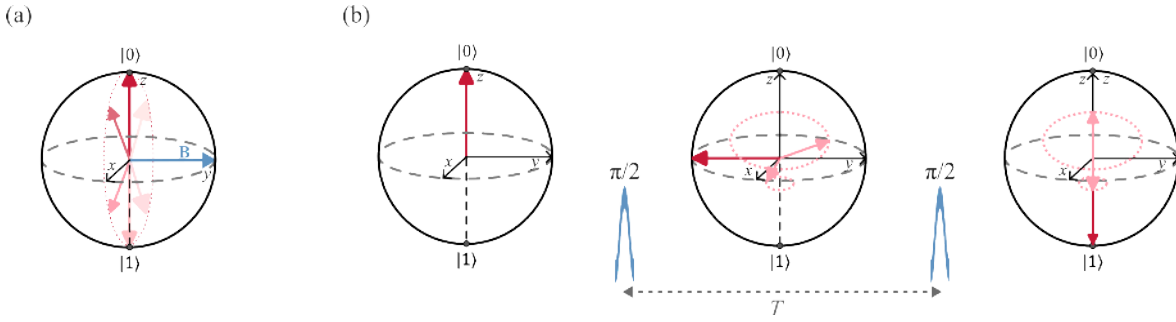
Należy jednak uwzględnić fakt, że obserwowana dynamika fotoluminescencji może być również modyfikowana przez rekombinację nośników (promienistą i niepromienistą). Z tego względu czas zaniku polaryzacji nie może być bezpośrednio utożsamiany z czasem relaksacji spinu T_1 bez uwzględnienia dynamiki całego układu. Bezpośrednie wyznaczenie czasu relaksacji spinu T_1 wymaga odpowiedniego schematu inicjalizacji i odczytu populacji spinowej, który pozwala oddzielić relaksację spinu od pozostałych procesów. W kropkach kwantowych z elektrostatyczną kontrolą ładunku możliwy jest również elektryczny odczyt stanu spinowego, np. poprzez pomiar zależnej od spinu dynamiki tunelowania. Pozwala to ograniczyć wpływ procesów optycznych, takich jak rekombinacja promienista, na wyznaczany czas T_1 dla spinu nośnika.

Pomiar czasu czystego defazowania

Czas czystego defazowania pojedynczego kubitów jest niemożliwy do zmierzenia i zazwyczaj korzysta się z relacji ze wzoru (2.8), aby na podstawie wyznaczonych czasów T_1 i T_2 oszacować czas jednorodnego defazowania T_φ w wyniku swobodnej ewolucji stanu kubitów. Większość metod wyznaczania czasu defazowania polega na wielokrotnym powtórzeniu pomiaru, co prowadzi do wyznaczenia czasu defazowania niejednorodnego T_2^* . W tym przypadku poprzez fluktuujące otoczenia ładunkowe i spinowe, w każdym kolejnym pomiarze kubit doświadcza innych warunków, co sumarycznie prowadzi do utraty spójności faz w kolejnych pomiarach. W przypadku pomiarów na zbiorze kropek kwantowych do źródeł dekoherencji niejednorodnej dochodzi rozrzut g -czynników nośników.

Pomiar czasu dekoherencji niejednorodnej

Jednym z eksperymentów służących wyznaczeniu czasu defazowania niejednorodnego T_2^* jest rozdzielczy czasowo pomiar rotacji Faradaya lub Kerra. Metody te należą do metod spektroskopii optycznej typu pompa-sonda. Kropki kwantowe są wzbudzone impulsami laserowymi będącymi w rezonansie z danym przejściem optycznym. Światło laserowe jest spolaryzowane kołowo, powodując optyczną orientację spinów elektronów i dziur. Przyłożone w konfiguracji Voigta pole magnetyczne powoduje precesję makroskopowej polaryzacji spinów (rys. 2.7(a)), która jest sondowana przez drugi impuls laserowy o polaryzacji liniowej. Płaszczyzna polaryzacji liniowej impulsu sondującego jest obracana przy przejściu przez próbkę (efekt Faradaya) lub przy odbiciu od próbki (efekt Kerra). Analiza kąta obrotu w funkcji odległości czasowej między impulsem pompującym a sondującym pozwala wyznaczyć czas defazowania niejednorodnego spinu nośników.^{69,70}



Rysunek 2.7: Ewolucja spinu na sferze Blocha. (a) Precesja spinu w polu magnetycznym w konfiguracji Voigta. (b) Ewolucja spinu na sferze Blocha w eksperymencie interferencji Ramseya. Lewy panel: spin w stanie $|0\rangle$. Środkowy panel: po impulsie $\pi/2$ wektor Blocha obrócony na płaszczyznę xy . Faza każdego spinu wygenerowanego w pojedynczym przebiegu eksperymentu ulega ewolucji. Prawy panel: drugi impuls po czasie T powoduje obrót spinu na oś z powodując zmianę z relacji fazowej na populacyjną.

Inną metodą wyznaczenia charakterystycznego czasu defazowania jest pomiar interferencji Ramseya, opierający się na sekwencji dwóch impulsów koherentnych. Najpierw koherentna superpozycja stanów własnych spinu jest generowana przez krótki impuls laserowy $\pi/2$ obracający wektor spinu o 90° na sferze Blocha (rys. 2.7(b)). Pierwszy impuls ustala fazę superpozycji, ale w czasie pomiędzy impulsami T ulega ona swobodnej ewolucji. Po czasie T drugi impuls $\pi/2$ powoduje obrót spinu na sferze Blocha o 90° , co prowadzi do zamiany informacji o fazie względnej na informację o różnicy obsadzeń. W wyniku eksperymentu uzyskuje się prawdopodobieństwo obsadzenia stanów spinowych w funkcji czasu T pomiędzy impulsami. Zmiana odległości czasowej pomiędzy tymi dwoma impulsami pozwala próbować ewoluującą fazę kubitu za pomocą interferencji. W przypadku pojedynczego pomiaru, w trakcie całej sekwencji długość wektora Blocha będzie niezmienna i równa $r = 1$. Pomiar ma charakter probabilistyczny, co oznacza, że charakterystyczne prążki interferencyjne uzyskuje się poprzez wielokrotne powtórzenie sekwencji impulsów. Analiza pozwala uzyskać czas defazowania na podstawie zaniku obwiedni uzyskanej modulacji polaryzacji.^{71,27}

Powyższe eksperymenty nie wymagają detekcji rozdzielczej czasowo w sensie bezpośredniego pomiaru czasu emisji fotonów. Informacja o dynamice układu jest zawarta w kontrolowanym opóźnieniu między impulsami. Metody te wymagają natomiast źródła impulsów o czasie trwania krótszym od badanej skali czasowej oraz precyzyjnej kontroli opóźnienia. W eksperymencie interferencji Ramseya dodatkowo konieczna jest kontrola koherencji fazowej pomiędzy impulsami oraz kontrola ich amplitudy i polaryzacji.

Istnieje również metoda wykorzystująca pomiar autokorelacji dla emisji o polaryzacji zgodnej i przeciwnej do polaryzacji wzbudzenia. Ponownie na podstawie wyznaczonego zaniku stopnia polaryzacji kołowej w czasie można wyznaczyć czas defazowania nośnika w stanie podstawowym.^{68,72,73}

Pomiar czasu dekoherencji jednorodnej

Czas dekoherencji niejednorodnej związany jest z czasem dekoherencji jednorodnej poprzez zależność:

$$\frac{1}{T_2^*} = \frac{1}{T_2} + \frac{1}{T_{inh}} \quad (2.34)$$

Wylimitowanie czynnika utraty koherencji związanej wyłącznie z defazowaniem niejednorodnym T_{inh} pozwala uzyskać czas dekoherencji jednorodnej. Standardowo metodą jest eks-

peryment echa spinowego. Jest to modyfikacja pomiaru interferencji Ramseya, w której pomiędzy dwoma impulsami $\pi/2$ dodaje się impuls π , który obraca fazy ewoluujących spinów o 180° , powodując ponowną synchronizację faz. Zmiana obsadzenia stanów w funkcji czasu T pomiędzy kolejnymi impulsami pozwala wyznaczyć charakterystyczny czas koherencji, którego wartość dąży do T_2 w przypadku całkowitego wyeliminowania wkładu dekoherencji niejednorodnej.^{74,75} Podobnie jak w interferencji Ramseya, konieczna jest precyzyjna kontrola energii, fazy i wzajemnej koherencji impulsów, a także opóźnienia między nimi.

2.3.2 Pomiar efektu Hanlego

Alternatywą do wyżej opisanych metod wyznaczenia czasu defazowania spinów nośników związanych w kropkach kwantowych jest pomiar efektu Hanlego. Efekt ten został pierwotnie zaobserwowany w atomach, a nazwany na cześć Wilhelma Hanlego, który jako pierwszy wyjaśnił to zjawisko przy pomocy fizyki klasycznej.⁷⁶ Zaobserwowano, że przy rezonansowym wzbudzaniu atomów rtęci emisja ulega depolaryzacji pod wpływem zewnętrznego pola magnetycznego. Efekt Hanlego, obserwowany w atomach, służy do pomiaru czasu życia elektronów w pierwszym stanie wzbudzonym.

W nanostrukturach półprzewodnikowych efekt Hanlego bada się w zewnętrznym polu magnetycznym w konfiguracji Voigta, tzn. pole magnetyczne jest przyłożone prostopadle do kierunku wzrostu oraz kierunku wzbudzania i obserwacji emisji. W przypadku kropek kwantowych metodą Hanlego bada się przede wszystkim naładowane kompleksy ekscytonowe, ze względu na degenerację stanów trionowych w zewnętrznym polu magnetycznym. Efekt ten można by zaobserwować również w neutralnych ekscytonach, pod warunkiem braku rozszczepienia struktury subtelnej ekscytonu. W pomiarze efektu Hanlego bada się dynamikę orientacji spinu nośnika w skali czasowej określonej przez okres precesji Larmora. W niniejszej pracy do badania koherencji spinów nośników wykorzystano efekt Hanlego, dlatego poniżej opisano dokładnie zasadę działania pomiaru.

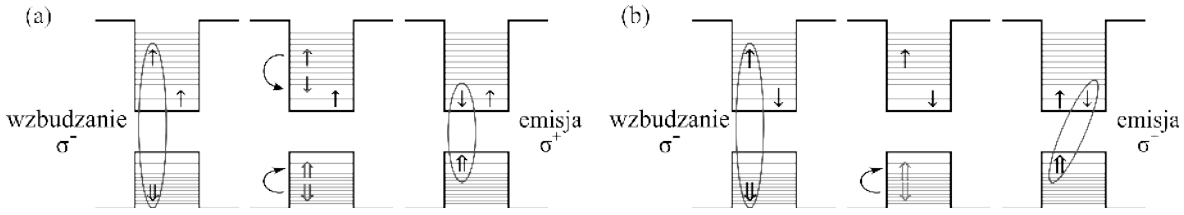
Wytwarzanie nośników w stanie wzbudzonym trionu światłem spolaryzowanym kołowo powoduje optyczną orientację spinów nośników. Konieczne jest w tym eksperymencie wzbudzanie do stanów możliwie bliskich stanowi podstawowemu, np. wyższych stanów w kropce, ponieważ mniejsza różnica energii pomiędzy stanem wzbudzonym a stanem podstawowym sprzyja zachowaniu orientacji spinu podczas procesów relaksacji. W idealnym przypadku, gdy orientacja spinu zachodzi ze 100% skutecznością, a w procesie relaksacji spiny zachowują swoją orientację, obserwuje się emisję o tej samej polaryzacji. Stopień polaryzacji kołowej P_σ zdefiniowany jest jako:

$$P_\sigma = \frac{I_+^+ - I_-^+}{I_+^+ + I_-^+}, \quad (2.35)$$

gdzie I_+^+ (I_-^+) oznacza intensywność emisji o polaryzacji kołowej jednakowej (przeciwnej) do polaryzacji światła wzbudzającego. Drugą możliwością jest proces powodujący obrót spinu, co prowadziłoby do obserwacji ujemnego stopnia polaryzacji kołowej (z ang. *Negative Circular Polarization* — *NCP*), w idealnym przypadku $P_\sigma = -100\%$.

Ujemny stopień polaryzacji kołowej

Mechanizm powstawania NCP dla trionów ujemnych został wyjaśniony na podstawie dwóch mechanizmów występujących w kropkach kwantowych. Załóżmy, że wzbudzanie nośników następuje poprzez światło spolaryzowane kołowo lewoskrętnie σ^- ; wtedy optycznie wzbudzony elektron ma spin $\uparrow$, a dziura ma spin $\downarrow$. Gdy wzbudzony elektron i obecny przed



Rysunek 2.8: Mechanizm tworzenia ujemnego stopnia polaryzacji kołowej. Zaadaptowano z ref. [81].

wzbudzeniem elektron w kropce kwantowej mają spiny zwrócone w tę samą stronę, z powodu zakazu Pauliego, wzbudzony elektron nie może zrelaksować do stanu podstawowego (rys. 2.8(a)). W trionie oddziaływanie wymiany pomiędzy elektronem i dziurą jest możliwe dzięki temu, że elektrony zajmują różne stany orbitalne. Anizotropowa część tego oddziaływania wynika z braku symetrii walcowej przekrycia funkcji falowych elektronu i dziury. W konsekwencji, podczas relaksacji do stanu podstawowego trionu może dochodzić do jednoczesnej zmiany orientacji spinów elektronu i dziury. Następnie następuje rekombinacja elektronu o spinie $\downarrow$ i dziury o spinie $\uparrow$, z emisją fotonu spolaryzowanego kołowo prawoskrętnie σ^+ .

W drugiej możliwości wzbudzony elektron i obecny w kropce elektron mają przeciwne spiny. Ze względu na to, że całkowity spin elektronów jest równy 0, oddziaływanie wymiany między elektronem a dziurą zanika, a obrót spinu dziury z $\downarrow$ do $\uparrow$ może nastąpić przed procesem relaksacji dziury do stanu podstawowego (rys. 2.8(b)). Rekombinacja elektronu o spinie $\downarrow$ z dziurą o spinie $\uparrow$ ponownie prowadzi do emisji fotonu spolaryzowanego kołowo prawoskrętnie σ^+ . W ten sposób elektron pozostający po rekombinacji ma spin przeciwny do tego obecnego przed wzbudzeniem. Wysoko prawdopodobne jest oczywiście, że nie nastąpi obrót spinu dziury i wyemitowany zostanie foton o polaryzacji kołowej lewoskrętnej. Natomiast wielokrotne powtórzenie procesu wzbudzania prowadzi do optycznej orientacji spinu elektronu pozostającego w kropce kwantowej po wzbudzeniu. W ten sposób mechanizm prowadzący do emisji polaryzacji przeciwnej do polaryzacji światła wzbudzającego przeważa nad mechanizmem, który zachowuje orientację spinową.^{77,78,79} Wynika z tego, że o polaryzacji światła decyduje orientacja elektronu obecnego przed wzbudzeniem, dlatego też w pomiarze efektu Hanlego dla trionów ujemnych obserwuje się czas defazowania elektronu obecnego w kropce kwantowej przed wzbudzeniem nośników. Pokazali to między innymi autorzy artykułu z ref. [77], którzy zbadali kinetykę procesu obrotu spinów elektronu i dziury, i zauważyli, że stopień polaryzacji kołowej zmienia swój znak około 100 ps po wzbudzeniu kropek kwantowych InP/InGaP/GaAs, a następnie osiąga ustaloną ujemną wartość. Ponadto w ref. [80] autorzy wyznaczyli czas z szerokości krzywej Hanlego kilkukrotnie dłuższy od czasu życia trionu.

Sedno efektu Hanlego leży w precesji nośników w zewnętrznym polu magnetycznym B , z częstością Larmora:

$$\Omega_L = \frac{|g|\mu_B B}{\hbar}, \quad (2.36)$$

gdzie $|g|$ jest g -czynnikiem danego nośnika. W konfiguracji Voigta pole magnetyczne $\mathbf{B}$ jest prostopadłe do spinu elektronu $\mathbf{S}_0$ wygenerowanego w procesie optycznej orientacji: $\mathbf{B} \perp \mathbf{S}_0$. Składowa spinu wzdłuż kierunku wiązki wzbudzającej będzie zmieniać się okresowo z częstością Ω_L . Czas życia spinu T_s można zapisać jako:

$$\frac{1}{T_s} = \frac{1}{\tau} + \frac{1}{\tau_s}, \quad (2.37)$$

gdzie τ jest czasem życia elektronu a τ_s jest czasem relaksacji spinu. Jeśli w czasie T_s spin

wykona wielokrotną precesję wokół pola $\mathbf{B}$, to w warunkach stacjonarnych średnia wartość $\mathbf{S}_0$ wzdłuż pierwotnego kierunku będzie bardzo mała. Składowa ta definiuje stopień polaryzacji kołowej.

Jeśli początkowo spin zorientowany jest wzdłuż kierunku z (rys. 2.9(a)), to po czasie t , wartość S_z będzie wynosić:

$$S_0 = \cos \Omega t \exp \left\{ \left(\frac{-t}{\tau_s} \right) \right\}. \quad (2.38)$$

Po uśrednieniu wartości, przy uwzględnieniu rozkład czasów życia $W(t)$, otrzymujemy:

$$S_z = S_0 \int_0^\infty dt W(t) \exp \left\{ \left(\frac{-t}{\tau_s} \right) \cos \Omega t \right\}. \quad (2.39)$$

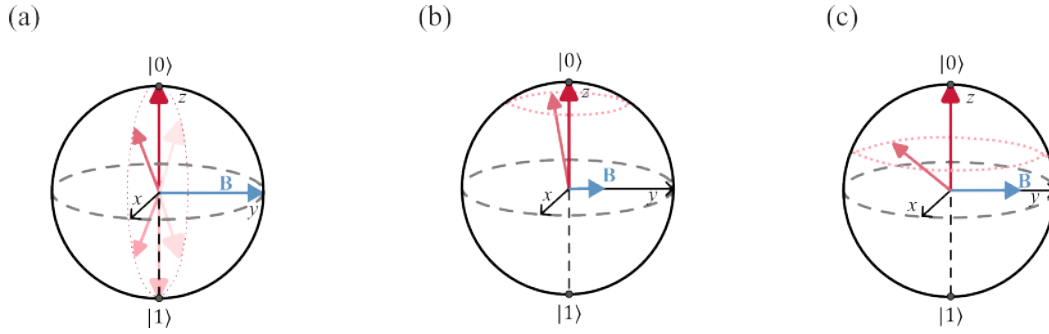
Rozkład czasów życia dla elektronów po termalizacji wynosi: $W(t) = \tau^{-1} \exp(-t/\tau)$, co daje z równania (2.39):

$$S_z(B) = \frac{S_z(0)}{1 + (\Omega T_s)^2}, S_z(0) = \frac{S_0}{1 + \tau/\tau_s} \quad (2.40)$$

i odpowiada kształtowi spodziewanej krzywej Hanlego. W przypadku trionu ujemnego w kropce dwa elektrony tworzą stan singletowy, a informacja o spinie rezydentnego elektronu jest zachowana w układzie i może zostać odczytana poprzez polaryzację emitowanego fotonu. Istotne jest przy tym, że rezydentny elektron pozostaje w kropce po rekombinacji trionu. Jeżeli czas charakterystyczny uzyskany z krzywej Hanlego jest znacznie dłuższy niż czas życia trionu, obserwowany zanik polaryzacji nie może być przypisany dynamice spinu nośnika znajdującego się w stanie wzbudzonym. Zaobserwowano niemal 7-krotnie dłuższy czas zmierzony w eksperymencie Hanlego w porównaniu do czasu życia trionu.⁸⁰ Oznacza to, że krzywa Hanlego odpowiada koherencji spinu rezydentnego elektronu, która jest zachowana również po rekombinacji trionu. Jeżeli dodatkowo czas relaksacji spinu T_1 jest dłuższy od obserwowanego czasu zaniku, szerokość krzywej Hanlego jest określona przede wszystkim przez czas czystego defazowania spinu rezydentnego elektronu, a nie przez czas jego relaksacji. W kropkach kwantowych czas T_1 dla spinu może osiągać wartości rzędu milisekund,⁸² a nawet dziesiątek sekund przy schłodzeniu do bardzo niskich temperatur (< 100 mK).⁸³

Jeżeli spin został wygenerowany w czystym stanie $|0\rangle$, a pole zostało przyłożone w kierunku osi y , to koherentna precesja spinu będzie zachodzić wokół tego kierunku, jak pokazano na rys. 2.9(a). Wielokrotne pomiary powodują, że w każdym z nich nośnik doświadcza innych warunków otoczenia zewnętrznego, co powoduje rozmycie fazowe pomiędzy poszczególnymi wynikami i w rezultacie utratę koherencji. Na rys. 2.9(b) widoczny jest przykład dla względnie małej wartości indukcji pola magnetycznego. Wówczas kąt precesji wykonany w czasie defazowania jest niewielki, a średni rzut spinu na oś z pozostaje znaczny. Wraz ze wzrostem indukcji magnetycznej rośnie częstość precesji Larmora, a tym samym kąt precesji wykonany w czasie defazowania. Dla odpowiednio większej wartości indukcji, przedstawionej na rys. 2.9(c), spin wykonuje większy obrót wokół osi y , co prowadzi do dalszego zmniejszenia jego średniego rzutu na oś z . W granicznym przypadku, gdy kąt precesji osiąga wartość 90° , rzut wektora spinu na oś z zanika. Pomiar zależności polaryzacji od indukcji magnetycznej umożliwia zatem określenie charakterystycznej skali czasowej dekoherencji poprzez porównanie częstości precesji Larmora z dynamiką utraty koherencji.

Czas defazowania wyznaczony z krzywej Hanlego jest czasem defazowania niejednorodnego T_2^* , a obliczany jest na podstawie szerokości krzywej w połowie wysokości i g -czynnika danego nośnika. Pole odpowiadające połowie szerokości krzywej Hanlego $B_{1/2}$ odpowiada



Rysunek 2.9: Schemat ilustrujący wpływ precesji Larmora i defazowania na rzut wektora spinu na oś z . (a) Koherentna precesja spinu przygotowanego w stanie $|0\rangle$ wokół osi y , wyznaczonej przez kierunek zewnętrznego pola magnetycznego. (b) Przypadek małej wartości indukcji pola magnetycznego, dla której spin wykonuje niewielki obrót w czasie zachowania koherencji, a średni rzut na oś z pozostaje niezerowy. (c) Przypadek większej wartości indukcji pola magnetycznego, dla której większa częstota precesji prowadzi do zmniejszenia średniego rzutu spinu na oś z .

częstości precesji:

$$\Omega_L = \frac{|g|\mu_B B_{1/2}}{\hbar}. \quad (2.41)$$

Szerokość połówkowa oznacza, że:

$$P_\sigma(B_{1/2}) = \frac{P_\sigma(0)}{2}. \quad (2.42)$$

Zatem $\Omega_L T_s = 1$ i

$$T_2^* = \frac{\hbar}{|g|\mu_B B_{1/2}}. \quad (2.43)$$

W praktyce do pomiaru efektu Hanlego w kropkach kwantowych potrzebne jest kwazi-rezonansowe wzbudzenie do wyższych stanów w kropce, kontrola polaryzacji światła wzbudzające oraz detekcja emisji o danej polaryzacji. Ostatnim elementem jest zewnętrzne pole magnetyczne, przyłożone w konfiguracji Voigta. Przewagą tego eksperymentu nad innymi metodami służącymi do pomiaru czasu T_2^* polega na braku konieczności stosowania krótkich impulsów laserowych oraz kontroli ich właściwości i czasu nadejścia. Kolejnym pozytywem jest brak konieczności stosowania detekcji rozdzielczej czasowo czy czulej na pojedyncze fotony. Ponadto używane wartości indukcji pola magnetycznego są niskie (< 1 T).

W standardowym pomiarze efektu Hanlego polaryzacja wzbudzenia jest modulowana poprzez okresowe przełączanie pomiędzy polaryzacją kołową prawo- i lewoskrętną. Wzbudzenie o przeciwnej polaryzacji prowadzi do przeciwnej orientacji spinu rezydentnego elektronu. Okres modulacji powinien być znacznie krótszy niż czas relaksacji spinów jądrowych. W ten sposób unika się tzw. dynamicznej polaryzacji jąder atomów (z ang. *dynamic nuclear polarization*), gdyż ich spiny nie nadążają za zmianą polaryzacji elektronu. Tym samym oznacza to, że polaryzacja spinów jąder nie będzie wpływać na polaryzację nośników, dla których mierzony jest czas defazowania. Modulacja polaryzacji wzbudzenia jest zsynchronizowana z detekcją sygnału fotoluminescencji. Rejestrowana jest więc różnica sygnału odpowiadająca dwóm przeciwnym stanom polaryzacji wzbudzenia. Dzięki temu mierzona jest jedynie emisja zależna od orientacji spinu elektronu, co pozwala uniezależnić wynik pomiaru od niespolaryzowanego tła oraz innych składników sygnału, które zmieniają się z częstotliwością inną niż częstotliwość modulacji. Dla każdej wartości poprzecznego pola magnetycznego wyznacza się w ten sposób odpowiadającą jej polaryzację emisji. Do realizacji takiego pomiaru potrzebny jest modula-

tor polaryzacji, np. fotoelastyczny lub elektrooptyczny, oraz układ detekcji zsynchronizowanej z modulacją polaryzacji, zazwyczaj wykorzystujący wzmacniacz typu lock-in, którego pasmo obejmuje częstotliwość modulacji.

W pomiarach opisanych w niniejszej pracy zastosowano stałe wzbudzenie światłem o danej polaryzacji kołowej ze względu na ograniczenia techniczne. Emisja o przeciwnych polaryzacjach była detektowana oddzielnie przez wybrany przedział czasu (zwykle około 30 s), zależny od intensywności emisji. Pomiar powtarzano dla kolejnych wartości B . Szczegóły eksperymentalne zostały opisane w następnym rozdziale.

2.3.3 Wybrane wyniki eksperymentalne

W tabeli 2.3 podano najważniejsze lub najnowsze wyniki czasu defazowania zmierzonego dla kropek kwantowych zarówno w pomiarze efektu Hanlego, jak i innymi metodami, zaznaczając, w jakim układzie materiałowym zostały wzrastane, długość fali ich emisji, a także czy były to pomiary na pojedynczych kropkach kwantowych, czy na ich zbiorze. Ze względu na charakter pomiaru efektu Hanlego, wymagający wysokiego poziomu sygnału, większość przeprowadzonych do tej pory eksperymentów wykonano na zbiorze kropek kwantowych, w szczególności emitujących światło o długości fali poniżej 1 μm . Przebadano kropki kwantowe w różnych układach materiałowych i wzrastane różnymi metodami, np. naturalne kropki kwantowe GaAs/AlGaAs,⁶¹ czy kropki InAs/GaAs, InP/GaAs i (In, Ga)As/GaAs wzrastane metodą MBE.^{80,84,85,86} Pierwszy pomiar efektu Hanlego na pojedynczych kropkach (naturalne kropki kwantowe na interfejsie studni kwantowej GaAs/AlGaAs) został opublikowany w pracy z ref. [87]. Z kolei dla kropek emitujących w podczerwieni telekomunikacyjnej efekt Hanlego został zbadany na zbiorze kropek kwantowych InAs/InAlGaAs/InP⁸⁸ oraz InAs/InGaAs.⁷⁰ Jedyne do tej pory opublikowane pomiary efektu Hanlego na pojedynczych kropkach kwantowych emitujących w trzecim oknie telekomunikacyjnym (w układzie materiałowym InAs(P)/InP) zostały przeprowadzone w ramach tej rozprawy.⁸¹

Czasy defazowania spinów nośników dla pojedynczych kropek kwantowych zostały również wyznaczone innymi metodami pomiarowymi, z których część została omówiona w poprzedniej sekcji. Doniesienia te jednak ograniczają się do nielicznych publikacji, m.in. dotyczących kropek kwantowych InAs/InGaAs wzrastanych metodą MOVPE w trybie Stranskiego-Krastanowa^{68,72,92} oraz kropek kwantowych InAs/InP wzrastanych metodą epitaksji kropelkowej.⁸⁹ Przedstawione w tabeli 2.3 wyniki nie obejmują wszystkich dotychczasowych doniesień literaturowych, lecz wybrane prace, w których raportowano najdłuższe czasy defazowania spinów nośników. Niniejsza praca rozszerza dostępne wyniki o pomiary czasów defazowania spinów elektronów związanych w kropkach kwantowych InAs(P)/InP, wzrastanych metodami MBE oraz MOVPE.

Tabela 2.3: Najważniejsze wyniki pomiaru czasu defazowania spinu T_2^*

układ materiałowy	λ [nm]	zbiór/ pojed.	metoda pomiarowa	nośnik	T_2^* [ns]	rok	ref.
InAsP/InP MBE	1530	pojed.	efekt Hanlego	elektron	1,59	2025	[81]
InAs/InGaAs DE	~ 1550	zbiór	efekt Hanlego	elektron	3,1	2025	[70]
InP/GaAs MBE	~ 700	zbiór	efekt Hanlego	elektron	1,7	2006	[80]
GaAs/AlGaAs naturalne kropki	~ 750	pojed.	efekt Hanlego	elektron	16	2005	[87]
GaAs/AlGaAs naturalne kropki	<1000	zbiór	efekt Hanlego	elektron	1	2002	[61]
InAs/InGaAs MOVPE	1542	pojed.	czasowy zanik polaryzacji	elektron dziura	~ 1 6,4	2025	[68]
InAs/InGaAs MOVPE	1550	pojed.	czasowy zanik polaryzacji	dziura	15,9	2025	[72]
InAs/InP DE	1535 1545	pojed.	czasowy zanik polaryzacji	elektron dziura	0,8 10	2025	[89]
GaAs/AlGaAs LDE	~ 780	zbiór	interferencja Ramseya	elektron	2,55	2023	[90]
GaAs/AlGaAs LDE	~ 780	pojed.	interferencja Ramseya	elektron	3,9	2023	[91]
InAs/InGaAs MOVPE	1557	pojed.	interferencja Ramseya	elektron	0,24	2022	[92]

3. Szczegóły eksperymentalne

3.1 Układy pomiarowe

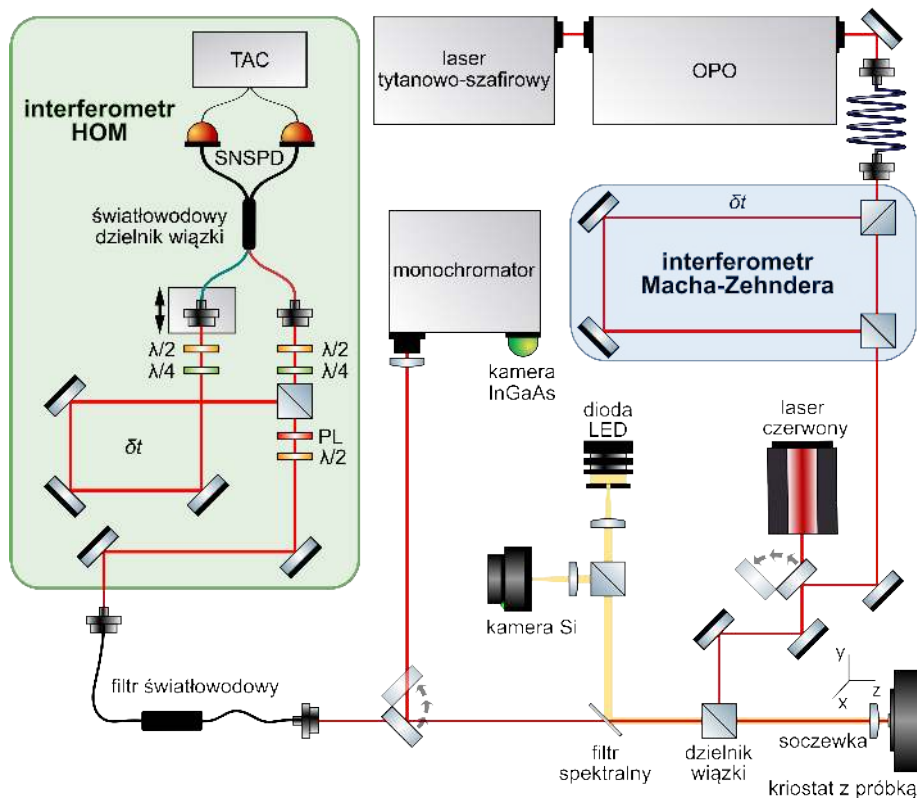
Istotnym elementem niniejszej pracy było zaprojektowanie i budowa układów pomiarowych umożliwiających realizację pomiaru interferencji dwufotonowej oraz efektu Hanlego. Stanowiska te zostały zaprojektowane i zbudowane przez autorkę rozprawy. Pozostałe pomiary służące określeniu podstawowych właściwości optycznych badanych kropek kwantowych lub będące uzupełnieniem pomiarów korelacji pojedynczych fotonów (jak pomiar funkcji autokorelacji II rzędu) przeprowadzone zostały na układach obecnych już na wyposażeniu Laboratorium Optycznej Spektroskopii Nanostruktur.

3.1.1 Interferencja dwufotonowa

Głównymi elementami układu do pomiaru interferencji dwufotonowej są interferometr Macha-Zehndera oraz interferometr HOM, oznaczone odpowiednio na rysunku 3.1. Interferometr Macha-Zehndera wprowadza opóźnienie między dwoma kolejnymi impulsami wzbudzającymi. Dzięki temu można dostosować czas między wyemitowaniem dwóch kolejnych fotonów, które będą ze sobą interferować. Spodziewanym jest, że zmiana odległości czasowej między kolejnymi fotonami wpłynie na mierzony czas koherencji fotonów oraz ich nierozróżnialność.⁹³ Należy podkreślić, że wyłącznie te elementy opisywanego układu pomiarowego zostały w pełni zaimplementowane przez autorkę. Pozostała część układu obejmująca drogę wzbudzania i detekcji została zaprojektowana i zbudowana przez dr. inż. Pawła Mrowińskiego.

Do wzbudzania nośników w kropkach kwantowych użyto przestrajalnego lasera tytanowo-szafirowego (Coherent Mira-HP) z optycznym oscylatorem parametrycznym (z ang. *Optical parametric oscillator* — *OPO*). Laser może działać w trybie femtosekundowym lub pikosekundowym, gdzie długości pojedynczego impulsu wynoszą odpowiednio 140 fs oraz 1,5 ps w zakresie długości fali od 700 nm do 1080 nm, z częstością repetycji 76 MHz (co odpowiada czasowi 13,1 ns między kolejnymi impulsami). Zastosowanie OPO opartego na nieliniowym kryształach o okresowej polaryzacji i wysokiej wydajności konwersji (Coherent/APE OPO-HP VIS/IR) rozszerza dostępny zakres długości fali do przedziału od 505 nm do 3,7 μm , obejmującego również promieniowanie generowane w procesie wytwarzania drugiej harmonicznej. OPO może generować impulsy o długości fali 1,3 μm i 1,55 μm , ze średnią mocą 1,5 W. Do wstępnych pomiarów optycznych potrzebnych do identyfikacji kompleksów ekscytonowych lub justowania układu na silniejszym sygnale ze struktury referencyjnej możliwe jest nierezonansowe wzbudzanie struktur przy użyciu lasera pracy ciągłej emitującego światło o długości fali 660 nm.

Laser impulsowy może być skierowany bezpośrednio na próbkę lub najpierw przeprowadzony przez interferometr Macha-Zehndera. Interferometr składa się z dwóch kostek światłodzielnących o stosunku transmisji do odbicia 50:50, przystosowanych do pracy w III oknie



Rysunek 3.1: Układ do interferencji dwufotonowej z wyróżnionym interferometrem Macha-Zehndera (na niebiesko) oraz interferometrem HOM (na zielono)

telekomunikacyjnym. Jedno z ramion interferometru jest dłuższe od drugiego, w wyniku czego na jego wyjściu powstają pary impulsów powtarzające się z okresem 13,1 ns, odpowiadającym okresowi pracy lasera. Opóźnienie między impulsami w obrębie każdej pary jest równe różnicy czasów propagacji w obu ramionach interferometru. Zmiana długości jednego z ramion umożliwia regulację tego opóźnienia, a tym samym kontrolę odstępu czasowego między kolejnymi fotonami emitowanymi przez próbkę i biorącymi udział w pomiarze interferencji dwufotonowej.

Próbka z kropkami kwantowymi umieszczona jest w kriostacie AttoDry800 w pełni zintegrowanym ze stołem optycznym umożliwiając pomiary w zakresie temperatur od 3,8 do 320 K. Skuteczne tłumienie vibracji oraz mały dryft umożliwiły przeprowadzenie czasochłonnych pomiarów bez konieczności justowania układu w trakcie ich trwania. Wiązka lasera wzbudzającego skupiana jest na próbce przy użyciu soczewki asferycznej o aperturze numerycznej (z ang. *Numerical Aperture* — *NA*) równej 0,55. W połączeniu z systemem AttoDry800 umożliwiającym przesuw soczewki w osiach XYZ rozdzielczość przestrzenna układu wynosi 1 μm . Sygnał zbierany tą samą soczewką jest następnie kierowany na monochromator wyposażony w siatkę dyfrakcyjną o 150 rys/mm lub sprzęgnięty do światłowodu jednomodowego i filtrowany światłowodowym filtrem pasmowym o zakresie przestrajania od 1520 do 1580 nm i pasmem przepuszczania o szerokości 0,4 nm. Na wyjściu monochromatora zamontowana jest linijka detektorów InGaAs chłodzona ogniwnem Peltiera z możliwością rejestracji widm szeroko spektralnie. W tej konfiguracji układ cechuje się rozdzielczością spektralną równą 100 μeV . W zależności od konfiguracji układu sygnał propagujący się w światłowodzie może zostać skierowany do jednego z kilku modułów pomiarowych: 1) bezpośrednio na detektor pojedynczych fotonów w celu wykonania pomiarów fotoluminescencji rozdzielczej czasowo; 2)

do światłowodowego dzielnika wiązki, a następnie na dwa kanały detektora pojedynczych fotonów w celu pomiarów funkcji autokorelacji II rzędu; 3) do interferometru HOM, a następnie do dwóch kanałów detektora pojedynczych fotonów w celu pomiaru interferencji dwufotonowej.

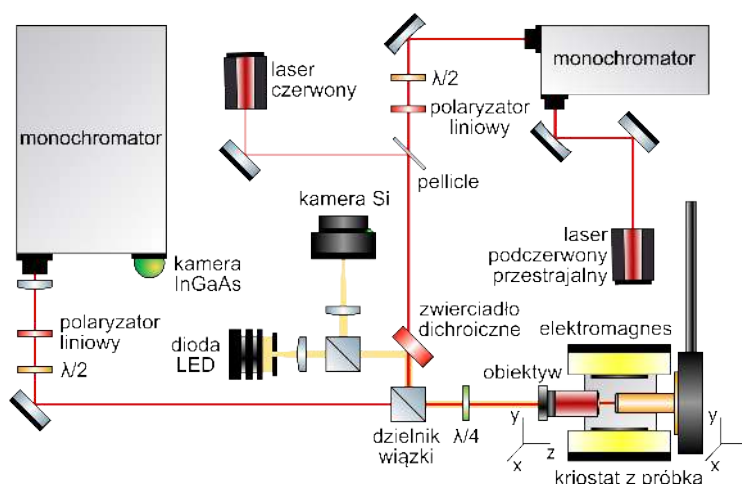
W interferometrze HOM zastosowano konfigurację hybrydową. Opóźnienie między kolejnymi emitowanymi fotonami (równe opóźnieniu w interferometrze Macha-Zehndera lub wynikającemu z częstości repetycji lasera) zachodzi częściowo w powietrzu, a częściowo w światłowodzie, natomiast interferencja dwufotonowa zachodzi na światłowodowym dzielniku wiązki. Takie rozwiązanie pozwala na swobodne dostosowywanie czasu opóźnienia poprzez odpowiednie skracanie i wydłużanie odległości od kostki światłodzielnicy do sprzęgacza światłowodowego w ramionach interferometru HOM. Dodatkowo na jednym z ramion zastosowano stolik ze śrubą mikrometryczną o maksymalnym przesuwie 25 mm (~ 83 ps) w jednym kierunku z dokładnością do 5 μm (~ 17 fs) w celu dokładnego czasowego zgrania fotonów interferujących na światłowodowym dzielniku wiązki. Interferencja w światłowodzie jest znacznie prostsza w realizacji w porównaniu z interferencją zachodzącą np. na kostce światłodzielnicy, gdzie występuje trudność w dokładnym przestrzennym zgraniu impulsów. Zmierzona w eksperymencie interferencji dwufotonowej widoczność interferencji zależy między innymi od dokładności czasowego i przestrzennego zgrania interferujących fotonów, gdyż wpływa to na całkę przekrycia ich paczek falowych.

W obu ramionach interferometru HOM konieczna jest również kontrola polaryzacji, aby zapewnić, że interferujące fotony będą identyczne ze względu na polaryzacyjny stopień swobody. Z tego względu zastosowano optykę polaryzacyjną dostosowaną do zakresu emisji około 1550 nm. W interferometrze HOM przed kostką światłodzielnicy ustawiono polaryzator liniowy poprzedzony płytką półfalową, aby zapewnić identyczną polaryzację liniową emisji na wejściu do ramion interferometru. W każdym z ramion ustawiono dodatkowo płytkę półfalową i ćwierćfalową do ustawienia polaryzacji o tej samej lub przeciwnej orientacji w światłowodowym dzielniku wiązki, aby móc przeprowadzić pomiar nierozróżnialnych fotonów oraz pomiar referencyjny — dla fotonów o ortogonalnej polaryzacji, a więc całkowicie rozróżnialnych. Polaryzację w interferometrze ustawiano i sprawdzano przy pomocy polarymetru oraz lasera pracy ciągłej przestrojonego na długość fali badanej linii emisyjnej, aby zapewnić warunki jak najbardziej zbliżone do docelowego pomiaru. Pomiar orientacji polaryzacji wykonany był za światłowodowym dzielnikiem wiązki w jednym z jego ramion.

System detekcji w pomiarach funkcji korelacji II rzędu oraz interferencji dwufotonowej składał się z detektorów pojedynczych fotonów opartych na nanodrutach nadprzewodzących (z ang. *Superconducting Nanowire Single Photon Detector* — *SNSPD*) firmy ID Quantique. Użyty model cechuje się niskimi zliczeniami ciemnymi (na poziomie 10 Hz) oraz wydajnością w trzecim oknie telekomunikacyjnym przekraczającą 80%. W pomiarach zaprezentowanych w tej rozprawie ustawiono szerokość przedziału czasowego (z ang. *time-bin width*) w histogramie na 100 ps.

3.1.2 Efekt Hanlego

Do pomiarów rozdzielczych polaryzacyjnie i w zewnętrznym polu magnetycznym przygotowany został specjalny układ pomiarowy, którego schemat widoczny jest na rys. 3.2. Do generowania zewnętrznego pola magnetycznego w konfiguracji Voigta wykorzystano elektromagnes wyposażony w dwie cewki, umożliwiające uzyskanie indukcji pola magnetycznego w zakresie od 0 do 350 mT w środkowym położeniu pomiędzy cewkami oddalonymi od siebie o około 5 cm. Zależność między wartością indukcji pola magnetycznego a wartością prądu zasilającego wyznaczono podczas kalibracji elektromagnesu z wykorzystaniem mier-

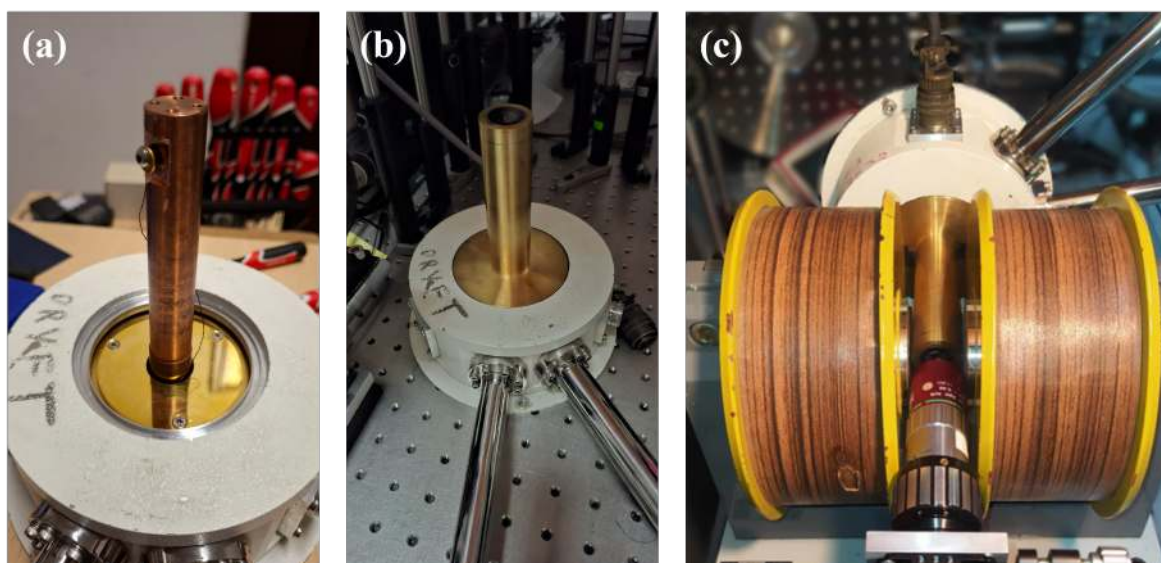


Rysunek 3.2: Układ do pomiaru efektu Hanlego wyposażony w elektromagnes, przestrajalny laser podczerwony oraz zestaw optyki polaryzacyjnej zoptymalizowanej na zakres podczerwieni telekomunikacyjnej.

nika indukcji pola magnetycznego. Otrzymano liniową zależność o współczynniku proporcjonalności równym $0,638 \text{ mT/mA}$. Aby zapewnić centralne umieszczenie próbki pomiędzy cewkami elektromagnesu, zaprojektowano specjalne elementy do kriostatu Janis ST500. Zdjęcia przedstawiające modyfikacje zastosowane w kriostacie pokazano na rys. 3.3. Przedłużenie zimnego palca (z ang. *cold finger*) wykonane zostało z miedzi w celu zapewnienia wysokiej efektywności chłodzenia (przewodnictwo cieplne miedzi wynosi około 400 W/mK) (rys. 3.3(a)), natomiast płaszcz został wykonany z mosiądzu, który wykazuje brak właściwości magnetycznych oraz ma stosunkowo niską przewodność cieplną ($109\text{--}121 \text{ W/mK}$), zapewniając dobrą izolację wnętrza kriostatu od otoczenia oraz umożliwiając pomiary w polu magnetycznym (rys. 3.3(b)). Takie rozwiązanie pozwoliło schłodzić próbkę do temperatury minimalnej równej 10 K . W przypadku pomiarów g -czynnika, gdzie wymagane były wyższe wartości indukcji pola magnetycznego, użyto kriostatu MO2 firmy Oxford Instruments, wyposażonego w nadprzewodzącą cewkę magnetyczną pozwalającą uzyskać pole magnetyczne do 5 T oraz temperaturę próbki 5 K . W tym przypadku możliwe były pomiary zarówno w konfiguracji Voigta, jak i Faradaya.

Do wzbudzenia nierezonansowego użyto lasera półprzewodnikowego pracy ciągłej o długości fali 640 nm , natomiast do wzbudzenia kwazirezonansowego użyto przestrajalnego lasera pracy ciągłej z zewnętrzną wnęką optyczną, uzyskując emisję laserową w zakresie $1425\text{--}1535 \text{ nm}$. Linia laserowa dodatkowo filtrowana jest przez monochromator w celu wyeliminowania emisji pozostałej z pasma wzmocnienia diody laserowej, co spowodowało poszerzenie linii laserowej do wartości około 100 peV .

Do wprowadzenia wiązki lasera czerwonego do osi wzbudzenia zastosowano dzielnik wiązki typu *pellicle* o stosunku odbicia do transmisji $8:92$. Z kolei do ciągłego podświetlania powierzchni próbki wykorzystano diodę elektroluminescencyjną emitującą promieniowanie o długości fali około 800 nm . Jej światło zostało wprowadzone do osi wzbudzenia za pomocą zwierciadła dichroicznego o długości fali odcięcia 1200 nm . Takie rozwiązanie umożliwiło zachowanie wysokiej mocy promieniowania podczerwonego docierającego do próbki bez konieczności stosowania uchylnych uchwytów optycznych, których każdorazowe przełączanie może prowadzić do rozjustowania układu optycznego. Możliwość ciągłego podglądu powierzchni próbki pozwoliła na bieżącą korekcję miejsca wzbudzenia podczas długotrwałych pomiarów, co umożliwiło aktywne korygowanie niestabilności mechanicznych układu pomiarowego oraz



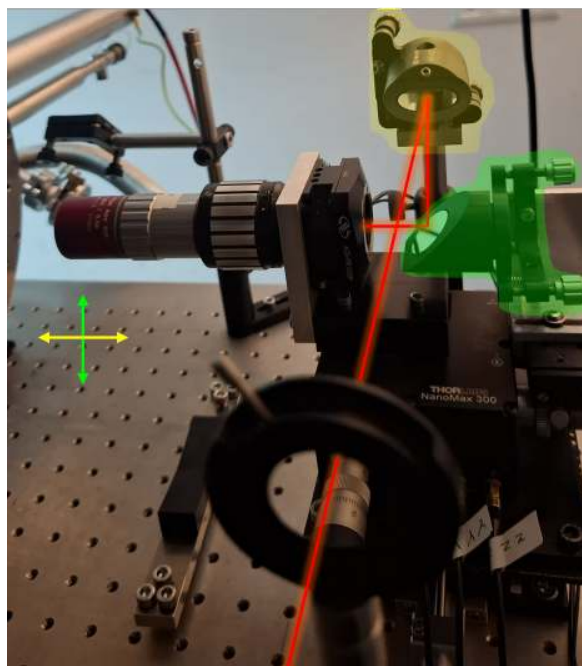
Rysunek 3.3: Zdjęcia przedstawiające elementy dorobione do kriostatu. (a) Miedziane przedłużenie do zimnego palca z czujnikiem temperatury umieszczonym możliwie blisko miejsca zamontowania próbki. b) Mosiężny płaszcz kriostatu zapewniający szczelność i izolację termiczną. (c) Kriostat z dorobionymi elementami oraz obiektyw pomiędzy dwiema cewkami magnetycznymi w konfiguracji pomiarowej.

zwiększyło dokładność uzyskanych wyników.

Laser wzbudzający skupiany jest na powierzchni próbki przy użyciu obiektywu mikroskopowego firmy Mitutoyo o aperturze numerycznej 0,4 i odległości roboczej 20 mm. Ze względu na krótki dystans roboczy obiektywu musiał on również znajdować się pomiędzy cewkami elektromagnesu, co ograniczyło możliwość jego ruchu. Emisja z kropek kwantowych zbierana jest przez ten sam obiektyw i kierowana na spektrometr FHR1000 firmy HORIBA Scientific o długości ogniskowej 1 m, wyposażony w siatki dyfrakcyjne dostosowane do podczerwieni telekomunikacyjnej (siatka 150 rys/mm dostosowana do długości fali 1200 nm oraz siatka 600 rys/mm dostosowana do długości fali 1500 nm). Następnie sygnał w postaci widma fotoluminescencji jest detektowany przez linijkę detektorów InGaAs (model Symphony II firmy HORIBA Scientific) chłodzonych ciekłym azotem. Maksymalna rozdzielczość spektralna układu wynosi około 20 μeV , natomiast rozdzielczość przestrzenna jest na poziomie pojedynczych μm .

Kontrola polaryzacji światła lasera wzbudzającego, jak i wybór detektowanej polaryzacji emisji z kropek kwantowych, realizowane są poprzez zestaw optyki polaryzacyjnej. Płytki półfalowa i polaryzator liniowy służą do wprowadzania w układ światła laserowego o polaryzacji liniowej. Płytki ćwierćfalowa umieszczona przed obiektywem pełni podwójną funkcję — zamienia polaryzację światła laserowego z liniowej na kołową (o wybranej orientacji) oraz polaryzację emisji z kołowej na liniową. Następnie płytka półfalowa w osi detekcji obraca liniowo spolaryzowaną emisję na oś polaryzatora liniowego, zapewniając niezależność się od charakterystyki polaryzacyjnej układu detekcji (w szczególności siatki dyfrakcyjnej w monochromatorze).

Ze względu na ograniczoną przestrzeń pomiędzy cewkami elektromagnesu oraz brak możliwości przemieszczania kriostatu wyposażonego w nadprzewodzącą cewkę magnetyczną opracowano układ umożliwiający pozycjonowanie obiektywu względem nieruchomej próbki. W tym celu zastosowano dwa stoliki przesuwne oraz układ dwóch zwierciadeł tworzących konfigurację analogiczną do peryskopu. Cała konstrukcja została zamocowana na stoliku umożliwia-

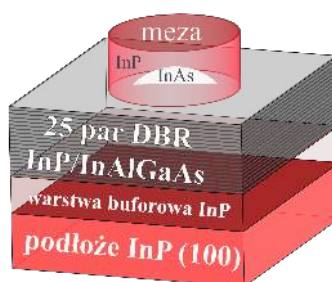


Rysunek 3.4: Zdjęcie rozwiązania umożliwiające ruch obiektywu względem płaszczyzny próbki przy zachowaniu osi optycznej układu, dzięki czemu obszary wzbudzenia i detekcji pozostają wzajemnie niezmiennie podczas zmiany położenia obiektywu.

jącym przesuw wzdłuż osi wiązki lasera doprowadzanego do układu. Na nim umieszczono drugi stolik, zapewniający ruch w kierunku prostopadłym do pierwszego i równoległym do osi optycznej obiektywu. Na drugim stoliku zamontowano dolne zwierciadło układu peryskopowego oraz stolik NanoMax firmy Thorlabs z obiektywem. Takie rozwiązanie umożliwia przesuwanie obiektywu, a tym samym ogniska wiązki laserowej po powierzchni próbki, przy jednoczesnym zachowaniu osiowości wiązki względem obiektywu. Zdjęcie zastosowanej konfiguracji przedstawiono na rys. 3.4. Cała konstrukcja, łącznie ze zwierciadłem górnym (zaznaczonym na żółto), ma umożliwiony ruch w kierunku horyzontalnym wzdłuż wiązki lasera do niej wprowadzanego. Zwierciadło dolne (zaznaczone na zielono) oraz obiektyw ze stolikiem są umieszczone na drugim stoliku, który przesuwa się wzdłuż kierunku wertykalnego. Dodatkowo stolik NanoMax zawiera element piezoelektryczny pozwalający na precyzyjny przesuw w osiach XYZ, co umożliwia ustawienie obiektywu względem wzbudzanego miejsca na próbce z submikrometrową dokładnością zarówno w płaszczyźnie próbki, jak i wzdłuż kierunku propagacji światła laserowego.

3.2 Badane struktury

W ramach rozprawy doktorskiej przeprowadzono badania na dwóch strukturach zawierających kropki kwantowe z InAs. W obu przypadkach kropki kwantowe zostały wyhodowane bezpośrednio w matrycy półprzewodnikowej z InP, natomiast różnica polega na zastosowanej metodzie wzrostu epitaksjalnego.



Rysunek 3.5: Schemat struktury zawierającej kropki kwantowe InAs(P)/InP wzrastanej metodą MBE.

3.2.1 Kropki kwantowe InAs(P)/InP wzrastane metodą MBE

Pierwsza z badanych próbek została wyhodowana na Uniwersytecie w Kassel w grupie prof. Mohameda Benyoucefa. Schemat struktury z wyróżnieniem kolejnych warstw epitaksjalnych został przedstawiony na rys. 3.5. Do wzrostu zastosowano metodę MBE osadzając kolejne warstwy na podłożu z InP (domieszkowanym żelazem) o orientacji krystalograficznej (100).

Na gotowym podłożu z InP osadzono warstwę buforową z InP, która przygotowuje powierzchnię podłoża do wzrostu właściwej struktury. Jej zadaniem jest uzyskanie powierzchni o wysokiej jakości krystalicznej i małej gęstości defektów, co ogranicza wpływ niedoskonałości podłoża na kolejne warstwy, w szczególności na warstwę zawierającą kropki kwantowe. Aby skuteczniej zbierać światło emitowane przez pojedyncze kropki kwantowe, wyhodowano zwierciadło Bragga (z ang. *Distributed Bragg Reflector* — *DBR*). DBR składa się z 25 par warstw InP/In_{0,53}Al_{0,1}Ga_{0,37}As o nominalnej grubości odpowiednio 123 nm i 110 nm. Jego użycie zapewnia >90% odbicia światła w zakresie 1525–1625 nm.

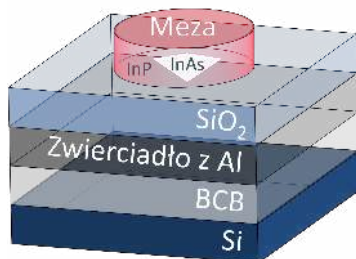
Kropki kwantowe otrzymano poprzez osadzenie materiału InAs w temperaturze 490°C, w objętości odpowiadającej dwóm pełnym monowarstwom. Wzrost przebiegał w trybie Stranckiego–Krastanowa, a niedopasowanie stałych sieciowych InAs i InP jest na poziomie 3,2%.⁹⁴ Kropki są umieszczone bezpośrednio w matrycy InP o grubości 246 nm z obu stron, tworzącej wraz ze zwierciadłem DBR i powierzchnią InP/powietrze wnękę optyczną. Grubość warstwy dobrano tak, aby uzyskać odpowiedni rozkład pola optycznego w obszarze kropek. Podczas wzrostu zachodzi wymiana atomów arsenu i fosforu na granicy InAs/InP, w wyniku czego rzeczywisty skład kropek odbiega od idealnego InAs i zawiera również atomy fosforu; stąd kropki te określane są jako InAs(P)/InP. Standardowy wzrost metodą MBE zmodyfikowano poprzez krótkotrwałe przerwanie wzrostu oraz obniżenie temperatury podłoża po utworzeniu kropek kwantowych. Kontrolując czas dojrzewania (z ang. *ripening*) nanostruktur, uzyskano ich niską gęstość powierzchniową, wynoszącą między 5×10^8 a 2×10^9 cm⁻², co umożliwiło pomiary na pojedynczych kropkach kwantowych.⁹⁵ Bezpośrednie umieszczenie kropek InAs w matrycy InP oraz zastosowanie zmodyfikowanej procedury wzrostu pozwoliły uzyskać nanostruktury o wysokiej symetrii i stosunkowo dużych rozmiarach. W rezultacie energia przejść optycznych została przesunięta do zakresu odpowiadającego III oknu telekomunikacyjnemu.⁹⁶

W tej pracy badano próbkę o zmodyfikowanej powierzchni z wytrawionymi cylindrycznymi strukturami fonicznymi — mezami. Wzór mez został wytworzony na powierzchni poprzez metodę litografii wiązką elektronów z użyciem maski SiO₂, a trójwymiarowe wyspy osiągnięto poprzez trawienie na sucho jonami reaktywnymi z plazmą sprzężoną indukcyjnie. Mezy o średnicy około 1 μm zostały wytworzone niedeterministycznie, co oznacza, że zarówno liczba kropek kwantowych, jak i ich położenie względem pojedynczej mezy, są losowe. Ce-

lem stosowania meza jest umożliwienie wielokrotnego przeprowadzenia eksperymentów na tej samej kropce kwantowej oraz ograniczenie strat emitowanego promieniowania w płaszczyźnie.

3.2.2 Kropki kwantowe InAs(P)/InP wzrastane metodą MOVPE

Drugą badaną w tej pracy strukturą była próbka wyhodowana na Duńskim Uniwersytecie Technicznym w grupie prof. Elizavety Semenovej. Tak jak w poprzednim przypadku, próbka zawiera samorosnące kropki kwantowe z InAs, wrosnięte na podłożu z InP w trybie wzrostu Stranskiego-Krastanowa.



Rysunek 3.6: Schemat struktury zawierającej kropki kwantowe InAs(P)/InP wzrastanej metodą MOVPE.

Strukturę wyhodowano na podłożu InP o orientacji krystalograficznej (100) metodą epitaksji z fazy gazowej z użyciem związków metaloorganicznych (z ang. *Metalorganic Vapour-Phase Epitaxy* — *MOVPE*). Warstwę kropek kwantowych InAs o niskiej gęstości powierzchniowej (około $2,8 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$) osadzono wewnątrz warstwy InP o grubości 488 nm wytworzonej na warstwie InGaAs o grubości 200 nm, dopasowanej sieciowo do InP. Następnie na powierzchnię InP nałożono SiO_2 o grubości 100 nm, a następnie metaliczne zwierciadło z glinu o grubości 100 nm. W kolejnym kroku odwrócono próbkę i połączono strukturę z podłożem Si za pomocą benzocyklobutenu (BCB). Na koniec usunięto podłoże InP i warstwę InGaAs.⁹⁷ Proces ten nazywa się *flip-chip*. Schemat warstw struktury przedstawiono na rys. 3.6. Wyhodowane kropki kwantowe również emitują długości fali z zakresu III okna telekomunikacyjnego.

Połączenie warstwy kropek kwantowych z podłożem krzemowym ma na celu zintegrowanie ich z dobrze opracowaną technologią krzemową, a więc połączenie komponentów optycznych i elektronicznych. Zastosowanie zwierciadła z aluminium pełni tę samą rolę co zwierciadło Bragga w przypadku pierwszej próbki — odbija emisję z kropek kwantowych w stronę detekcji. Do niedeterministycznego wytworzenia meza o średnicy $3 \mu\text{m}$ zastosowano, podobnie jak w poprzednim przypadku, litografię wiązką elektronów, a następnie trawienie jonowe z plazmą sprzężoną indukcyjnie. Należy jednak pamiętać, że modyfikowanie powierzchni próbki może wpływać na właściwości optyczne kropek kwantowych. Istotnymi efektami są zmiana efektywności sprzężenia światła z emitерem oraz powstawanie pułapek ładunkowych na atomowo chropowatych ściankach bocznych mezy. W takim przypadku mogą występować słabe efekty wnękowe ze względu na wysoki kontrast współczynnika załamania na granicy powietrze/półprzewodnik. Pułapki ładunkowe na bocznych ścianach meza mogą wpływać na stan naładowania kropek kwantowych, powodować dyfuzję widmową i rekombinację niepromieniową, np. w wyniku procesów typu Auger.

Obie opisane struktury wzrosnięte są w tym samym układzie materiałowym, tj. kropki kwantowe z InAs w matrycy półprzewodnika InP, natomiast różnią się głównie metodą wzrostu. W celu łatwego odróżnienia badanych struktur, w kolejnych rozdziałach będą odnosić

się do próbki wzrastanej metodą MBE jako „próbka MBE”, a do próbki wzrastanej metodą MOVPE — „próbka MOVPE”.

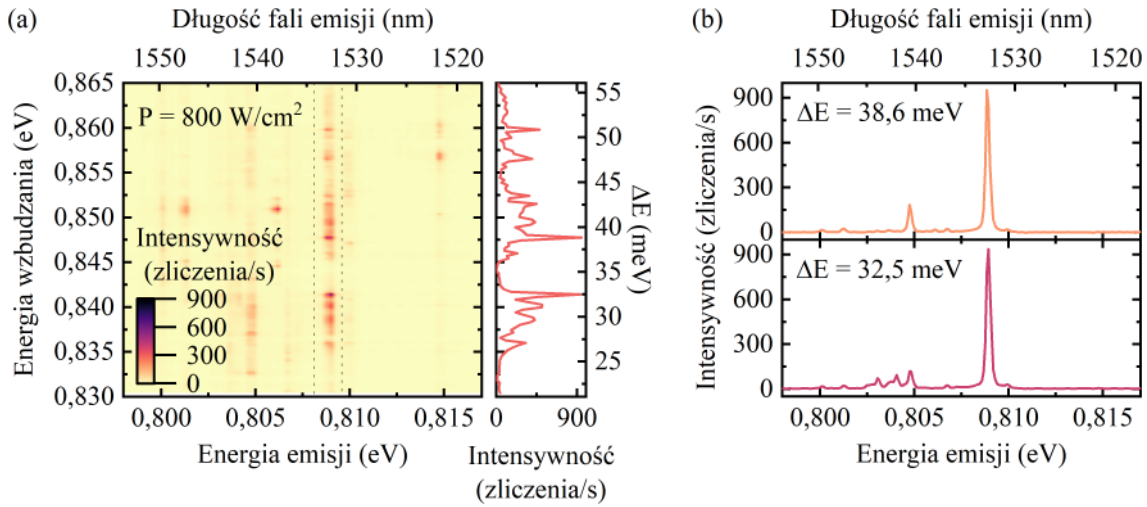
4. Koherencja nośników w pojedynczych kropkach kwantowych

Do analizy wszystkich zebranych danych pomiarowych wykorzystano program OriginLab. W przypadku pomiarów fotoluminescencji w pierwszej kolejności od sygnału odejmowano zmierzone niezależnie tło (obejmujące zliczenia ciemne detektora i ewentualne tło emisyjne z laboratorium oraz światło rozproszone), wyznaczane dla odpowiedniej skali czasowej danego pomiaru. Linie emisyjne dopasowywano funkcją Gaussa ze względu na ograniczenie szerokości linii procesami dyfuzji widmowej, powodującej odstępstwo od spodziewanego lorentzowskiego poszerzenia linii w przypadku występowania tylko poszerzenia jednorodnego. Parametry dopasowania wyznaczano metodą najlepszego dopasowania zaimplementowaną w programie OriginLab. Na ich podstawie określano energię emisji, szerokość linii spektralnej oraz intensywność całkową stanowiącą pole powierzchni pod krzywą Gaussa. O ile nie zaznaczono inaczej, niepewności wyznaczonych wielkości odpowiadają niepewnościom dopasowania określonym przez program OriginLab, co stanowi ograniczenie z dołu całkowitej niepewności wyznaczenia tych parametrów, gdyż nie uwzględnia niepewności doświadczalnego wyznaczenia każdego z punktów pomiarowych. Szczegóły opracowania histogramów z pomiarów spektroskopii korelacji pojedynczych fotonów oraz krzywych Hanlego przedstawiono odpowiednio w poniższym i kolejnym rozdziale.

4.1 Kropki kwantowe InAs(P)/InP wzrastane metodą MBE

4.1.1 Wstępne pomiary optyczne

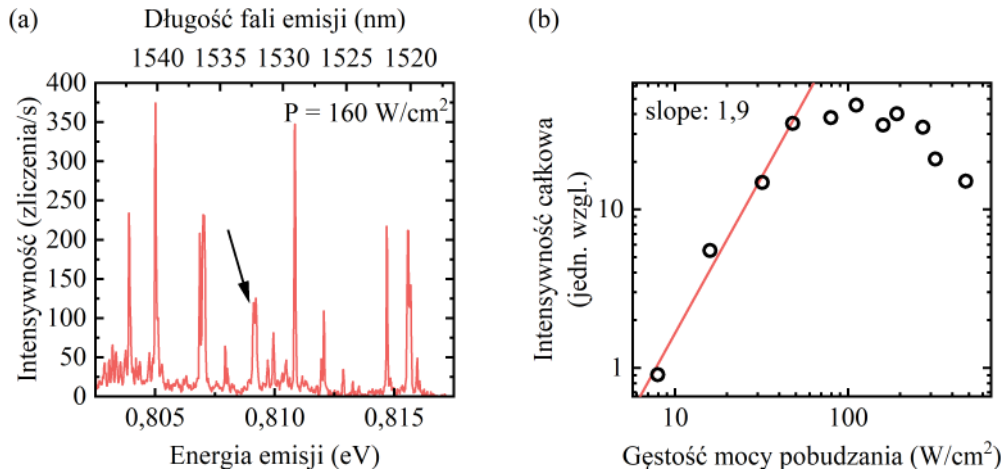
Przed przystąpieniem do bezpośrednich pomiarów koherencji, określono podstawowe właściwości optyczne badanych struktur. Wstępne pomiary optyczne mają na celu wybranie odpowiedniej mezy i linii emisyjnej do dalszych badań oraz określenie jej parametrów, które pośrednio mogą również dać wgląd w mechanizmy dekoherencji. Kierowano się kilkoma kryteriami doboru odpowiednich kandydatów. Linia emisyjna musi cechować się wysoką maksymalną intensywnością emisji (dla mocy wzbudzenia odpowiadającej nasyceniu), co silnie i bezpośrednio wpływa na czas pomiaru zarówno funkcji autokorelacji II rzędu, jak i interferencji dwufotonowej. Przy tym istotne jest zachowanie wysokiego stosunku sygnału do szumu; w przeciwnym razie zarówno zmierzone prawdopodobieństwo emisji wielofotonowej, jak i widoczność interferencji dwufotonowej, będą sztucznie zawyżone przez emisję tła. Linia powinna być też możliwie wąska spektralnie, co świadczy o niskim wpływie fluktuacji otoczenia ładunkowego, które również wpływa na mierzoną koherencję. Ważna jest również emisja blisko środka pasma III okna telekomunikacyjnego, dla którego tłumienie jest najmniejsze w standardowych włóknach światłowodów kwarcowych używanych w telekomunikacji. Jednocześnie linia emisyjna powinna być dobrze odizolowana od innych linii w celu badania



Rysunek 4.1: Widma fotoluminescencji wzbudzeniowej — próbka MBE. (a) Mapa fotoluminescencji wzbudzeniowej dla badanej mezy. Panel po prawej pokazuje intensywność w maksimum w funkcji różnicy energii między energią lasera wzbudzającego a energią emisji dla linii zaznaczonej między kropkowanymi szarymi liniami na panelu lewym. (b) Widma fotoluminescencji dla różnicy energii między wzbudzeniem a emisją o wartościach $\Delta E = 38,6$ meV (górny panel) oraz $\Delta E = 32,5$ meV (dolny panel). Rysunek zaadaptowany z ref. [98].

dokładnie jednego przejścia optycznego. Przebadano kilkanaście mez, dla których zaobserwowano wiele linii emisyjnych. Poniżej przedstawiono wyniki wstępnych pomiarów optycznych dla linii wybranej na podstawie powyższych kryteriów.

W celu zidentyfikowania energii wyższych stanów w kropce kwantowej i wybrania odpowiedniej energii do wzbudzenia kwazirezonansowego wykonano serię skanów fotoluminescencji wzbudzeniowej (ang. *photoluminescence excitation* — *PLE*) dla długości fali światła lasera pracy ciągłej w zakresie od 1429 do 1493 nm, z krokiem 0,5 nm (co odpowiada energii między 0,865 a 0,830 eV oraz krokowi energetycznemu ~ 150 μ eV). Wzbudzenie kwazirezonansowe do wyższych stanów energetycznych w kropce kwantowej jest kompromisem pomiędzy łatwością filtrowania niechcianego odbitego i rozproszonego promieniowania laserowego a generowaniem nośników możliwie blisko stanu, z którego zachodzi rekombinacja promienista. Służy to inicjalizacji stanu kwantowego z zachowaniem orientacji nośników w trakcie relaksacji do stanów podstawowych. Wielostopniowe procesy relaksacji nośników niszczą orientację spinów poprzez rozpraszanie na innych nośnikach oraz oddziaływanie z fononami. Procesy relaksacji do stanu emitującego wprowadzają także rozrzut czasowy (z ang. *time jitter*) między kolejnymi aktami emisji, co ogranicza mierzony stopień nierozróżnialności fotonów. W eksperymencie PLE bada się emisję przy zmianie energii wzbudzenia, dlatego pomiar ten ma charakter absorpcyjny. Mapa intensywności PLE jest pokazana na rys. 4.1(a). Zmieniając długość fali światła lasera przestrajalnego, a tym samym jego energię, mierzono kolejne widma fotoluminescencji. Zaobserwować można maksima świadczące o wydajnym wzbudzeniu nośników do danego kompleksu ekscytonowego. Linia emisyjna o długości fali 1532,5 nm (0,809 eV), zaznaczona w ramach szarych linii przerywanych, została wybrana do dalszych badań ze względu na wysoką intensywność oraz gęste widmo absorpcji, z wyraźnymi silnymi rezonansami. Z jednej strony ogranicza to selektywne wzbudzenie nośników do konkretnego stanu, z drugiej strony zaś pozwala uniezależnić się od fluktuacji energii światła laserowego, co umożliwia długie pomiary bez konieczności korekcji ustawień w układzie pomiarowym. Na prawym panelu wyrysowano zależność intensywności w maksimum emisji wybranej linii emisyjnej w funk-

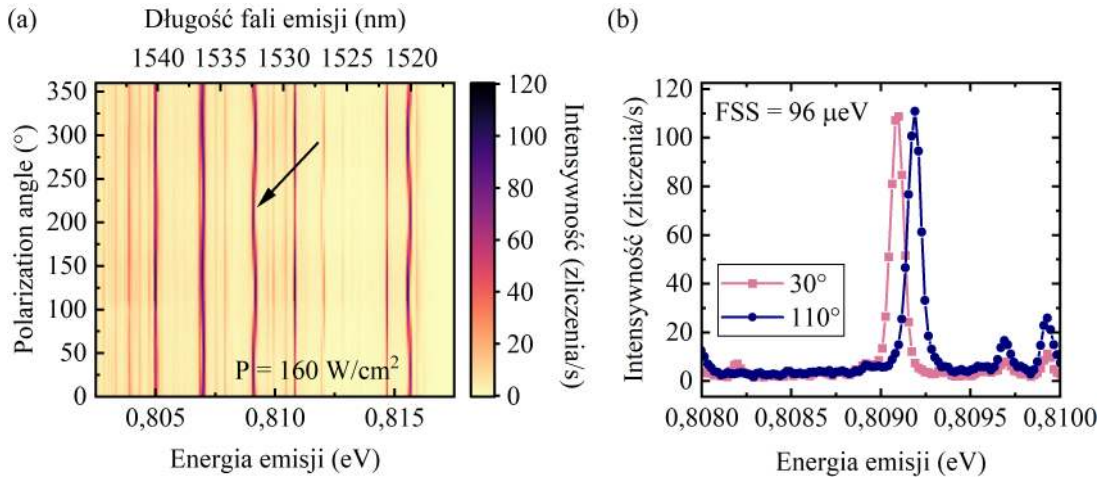


Rysunek 4.2: Zależność emisji od gęstości mocy wzbudzenia przy wzbudzaniu nierezonansowym — próbka MBE. (a) Widmo fotoluminescencji dla kropek kwantowych z badanej mezy wzbudzanych nierezonansowo gęstością mocy odpowiadającą reżimowi nasycenia intensywności. (b) Zależność intensywności całkowitej od gęstości mocy wzbudzenia dla badanej linii emisyjnej (zaznaczonej czarną strzałką na panelu (a)). Czarne punkty oznaczają zmierzone dane, a czerwona linia jest dopasowaniem danych funkcją liniową. Rysunek zaadaptowany z ref. [98].

cji różnicy między energią wzbudzenia a energią emisji. Widać dwa intensywne rezonanse o różnicach energii $\Delta E = 38,6$ meV oraz $\Delta E = 32,5$ meV, dla których widma przedstawiono na rys. 4.1(b), odpowiednio na górnym i dolnym panelu. Intensywność badanej linii dla obu energii wzbudzenia jest równie wysoka. Do eksperymentów korelacji pojedynczych fotonów wybrano jednak rezonans bliższy energii stanu, z którego następuje emisja. Odpowiada to długości fali wzbudzenia równej 1474 nm (0,841 eV).

W celu przyporządkowania danej linii emisyjnej do określonego kompleksu ekscytonowego przeprowadzono pomiary fotoluminescencji w funkcji mocy wzbudzenia oraz rozdzielcze polaryzacyjnie, w bazie polaryzacji liniowych. Są to standardowe metody, które często pozwalają odróżnić kompleksy neutralne od naładowanych, a także ekscyton od bieksytonu, jak opisano w podrozdziale 1.2. Pomiary te przeprowadzono przy wzbudzaniu nierezonansowym za pomocą lasera pracy ciągłej o emisji światła czerwonego o długości fali 640 nm, co odpowiada energii 1,94 eV. Przerwa energetyczna InP, stanowiącego barierę potencjału dla nośników w kropkach, ma szerokość 1,42 eV w temperaturze ciekłego helu. Zatem w takim schemacie wzbudzenia nośniki generowane były w materiale barierze.

Przeprowadzono serię pomiarów fotoluminescencji w funkcji mocy wzbudzenia. Na rys. 4.2(b) wykreślono zależność intensywności całkowitej linii emisyjnej od gęstości mocy wzbudzenia w podwójnej skali logarytmicznej. Gęstość mocy wzbudzenia została oszacowana na podstawie mocy dostarczanej do obiektywu oraz wielkości plamki światła laserowego w skupieniu na podstawie użytej optyki i limitu dyfrakcyjnego dla danej długości fali. Posługiwanie się wartością gęstości mocy, zamiast wartością mocy docierającej do próbki, pozwala w łatwy sposób porównać wyniki pomiędzy różnymi schematami wzbudzenia. Początkowy przebieg zależności ma charakter liniowy. Dopasowując funkcję liniową do wartości dla najniższych gęstości mocy wzbudzenia, otrzymano nachylenie 1,9, co odpowiada zależności $I \sim P^{1,9}$, gdzie I to intensywność emisji, a P moc wzbudzenia. Z równań kinetycznych dla modelu trójpoziomowego wynika, że zależność $I \sim P^{2,0}$ jest charakterystyczna dla bieksytonu. Na tej podstawie badaną linię przypisano przejściu bieksytonowemu.⁹⁹ Widmo dla wzbudzenia gęstością mocy odpowiadającą reżimowi nasycenia intensywności badanej linii przedstawiono



Rysunek 4.3: Widma fotoluminescencji rozdzielczej polaryzacyjnie — próbka MBE. (a) Mapa fotoluminescencji rozdzielczej polaryzacyjnie (polaryzacja liniowa) zmierzona przy wzbudzeniu nierezonansowym w reżimie nasycenia badanej linii emisyjnej (zaznaczonej czarną strzałką). (b) Widma fotoluminescencji dla detektowanych ortogonalnych polaryzacji liniowych badanej linii. Widoczne rozszczepienie struktury subtelnej FSS= 96 μeV . Rysunek zaadaptowany z ref. [98].

na rys. 4.2(a). Z danego wykresu widać, że wzbudzenie nierezonansowe nie jest selektywne, co oznacza, że wzbudzanych zostaje jednocześnie wiele kompleksów ekscytonowych, w dodatku mogą one pochodzić z wielu kropek, gdyż w obrębie jednej mezy może znajdować się ich nawet kilkadziesiąt. W dodatku intensywność badanej linii jest nawet trzykrotnie niższa od najintensywniejszej linii widocznej w widmie przy wzbudzaniu nierezonansowym.

Nasylenie intensywności jest osiągnięte dla dużo niższych gęstości mocy w porównaniu z wzbudzaniem kwazirezonansowym. Jest to spodziewana zależność, gdyż w przypadku wzbudzenia kwazirezonansowego fotony są absorbowane przez samą kropkę kwantową, której mały rozmiar i mała liczba dostępnych stanów (szczególnie dla konkretnej energii wzbudzenia) powodują, że przekrój czynny na absorpcję jest znacznie niższy niż w przypadku bariery będącej objętościowym półprzewodnikiem.

Istotną różnicę w widmie między wzbudzaniem kwazirezonansowym i nierezonansowym widać również w szerokości linii w połowie wysokości, która spada z 84 μeV dla wzbudzenia nierezonansowego do 62 μeV dla wzbudzenia kwazirezonansowego. Ta niemal 1,5-krotna redukcja szerokości linii wskazuje na rozmycie widmowe spowodowane fluktuującym w pobliżu kropki otoczeniem ładunkowym. W procesie wzbudzenia nierezonansowego generowane są w materiale nadmiarowe nośniki, które oddziałują z nośnikami tworzącymi kompleks ekscytonowy. Przez efekt Starka wpływa to na energię poziomów w kropce kwantowej. Fluktuacje, które są wolniejsze niż czas życia stanu wzbudzonego, a szybsze niż czas pomiaru, powodują rozmycie spektralne tego poziomu, objawiające się poszerzeniem niejednorodnym linii emisyjnej.

Pomiar fotoluminescencji rozdzielczej polaryzacyjnie dostarcza informacji na temat ewentualnego rozszczepienia struktury subtelnej. Możliwość obserwacji tego rozszczepienia jest ograniczona przez rozdzielczość spektralną układu pomiarowego oraz szerokość linii emisyjnej. Rys. 4.3(a) przedstawia mapę fotoluminescencji rozdzielczej polaryzacyjnie. Na osi poziomej znajduje się energia emisji pochodzącej z kropek kwantowych w mierzonej mezy, a na osi pionowej znajduje się kąt detektowanej polaryzacji liniowej. Czarną strzałką zaznaczono badaną linię emisyjną. Widać sinusoidalną zależność jej energii emisji od detektowanej polaryzacji. Widma emisji dla danej linii dla dwóch ortogonalnych polaryzacji liniowych przedstawiono na

rys. 4.3(b). Różnica energii emisji pomiędzy liniami wynosi $FSS = 96 \mu\text{eV}$, co odpowiada rozszczepieniu struktury subtelnej (w literaturze dotyczącej kropek kwantowych standardowo oznaczane jako FSS (z ang. *fine structure splitting*)). Widoczne rozszczepienie potwierdza, że linia emisyjna pochodzi z rekombinacji neutralnego kompleksu ekscytonowego. Wartość tego rozszczepienia jest niższa w porównaniu z kreskami kwantowymi rosnącymi w trybie Stranskiego-Krastanowa i emitującymi w zakresie III okna telekomunikacyjnego, dla których te wartości zwykle przewyższają $100 \mu\text{eV}$. Uzyskana wartość odbiega jednak od rekordowo niskich wartości uzyskanych dla kropek kwantowych w tym układzie materiałowym, mniejszych niż $10 \mu\text{eV}$.^{96,100} Biorąc pod uwagę widoczne rozszczepienie struktury subtelnej oraz zależność $I \sim P^{1,9}$ można wywnioskować, że badany kompleks ma charakter bieksytonowy. Znając odpowiednią energię jego wzbudzenia oraz podstawowe właściwości optyczne, można przejść do pomiarów korelacji pojedynczych fotonów.

4.1.2 Prawdopodobieństwo emisji wielofotonowej

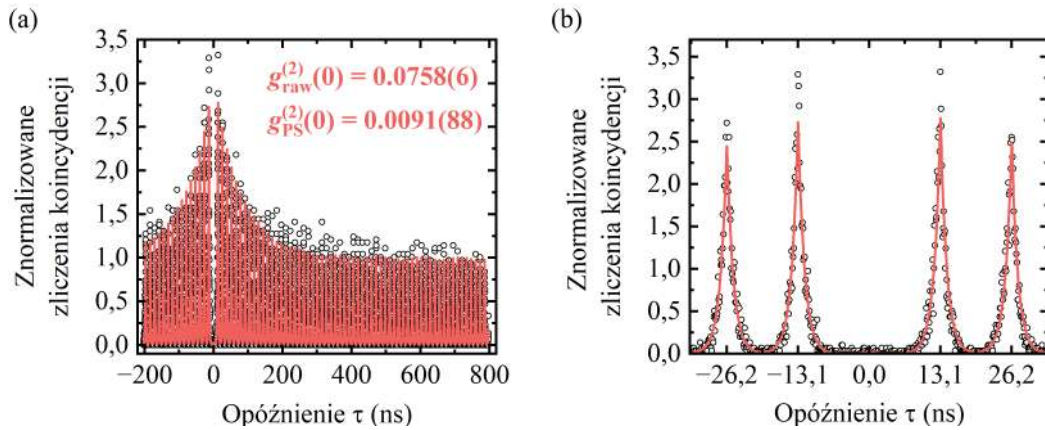
Jak wspomniano w podrozdziale 2.2, pomiar interferencji dwufotonowej zwykle poprzedza weryfikacja źródła pod kątem emisji wielofotonowej. Do wzbudzenia kropki kwantowej wybrano długość fali światła lasera równą 1474 nm . Zarówno w eksperymencie pomiaru funkcji $g^{(2)}(\tau)$, jak i w interferencji dwufotonowej, użyto lasera impulsowego. Ponieważ niemożliwe było zmierzenie mocy w pojedynczym impulsie laserowym, bezpośrednie porównanie gęstości mocy użytej w różnych eksperymentach nie jest trywialne. Wybrano zatem moc wzbudzenia P , która odpowiada nasyceniu intensywności emisji P_{sat} dla danego kompleksu ekscytonowego w danym schemacie wzbudzenia. W dalszych opisach będę posługiwać się uśrednioną wartością mocy zmierzoną przed soczewką skupiającą światło lasera wzbudzającego, porównując ją z wartością mocy odpowiadającą nasyceniu intensywności $P = P_{\text{sat}}$.

Histogram zliczeń w pomiarze funkcji $g^{(2)}(\tau)$ pokazany jest na rys. 4.4. Na panelu (a) wyrysowano znormalizowane zliczenia (do $g^{(2)}(\tau \rightarrow \infty) = 1$) w funkcji opóźnienia czasowego τ w zakresie od -200 do 800 ns , ukazujące grupowanie fotonów świadczące o migotaniu stanu, z którego następuje emisja. Histogram został dopasowany funkcją:

$$g^{(2)}(\tau) = B + \left(g_{\text{PS}}^{(2)}(0) \cdot e^{-|\tau|/\tau_1} + \sum_{n \neq 0} e^{-|\tau - n\tau_0|/\tau_1} \right) \cdot (1 + m \cdot e^{-|\tau|/\tau_{\text{mig}}}), \quad (4.1)$$

gdzie B to stałe tło, na które może składać się emisja z innych kompleksów ekscytonowych i innych kropek kwantowych, przekrywających się spektralnie z badaną linią emisyjną, rozproszone światło laserowe oraz zliczenia ciemne detektorów. W dopasowaniu wartość ta wyniosła $B = 0$, co oznacza duży stosunek sygnału do szumu. n jest liczbą naturalną odpowiadającą kolejnym pikom po ujemnej i dodatniej stronie zerowego opóźnienia na osi czasu. Czas τ_1 jest czasem zaniku w obrębie jednego piku i zwykle jego wartość jest równa czasowi życia badanego stanu T_1 , o czym w dalszej części tego rozdziału. Czas τ_0 jest odległością między impulsami lasera (w tym przypadku $13,1 \text{ ns}$), a τ_{mig} jest efektywnym czasem migotania stanu kwantowego. Czynniki $(1 + m \cdot e^{-|\tau|/\tau_{\text{mig}}})$ wprowadza do funkcji wykładniczą obwiednię amplitud kolejnych pików histogramu. Parametr m określa amplitudę procesu migotania.

Migotanie stanu oznacza, że kropka kwantowa w sposób losowy przełącza się pomiędzy stanem, z którego obserwowana jest emisja, a stanem ciemnym, z którego nie jest obserwowana fotoluminescencja (lub emisja zachodzi przy innej długości fali, co również sprowadza się do braku detekcji emisji z powodu wąskiego filtrowania spektralnego). W literaturze czasy te są często nazywane czasami włączenia (ON) i wyłączenia (OFF). Kilka efektów może być przyczyną tego procesu obserwowanego w kropkach kwantowych. Jednym z nich jest obecność

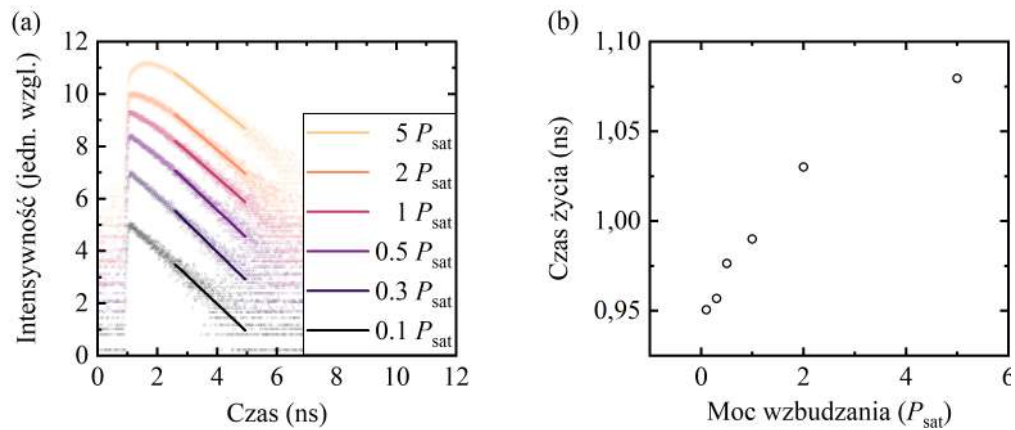


Rysunek 4.4: Histogram funkcji $g^{(2)}(\tau)$ — próbka MBE. (a) Znormalizowany histogram koincydencji dla zakresu opóźnienia detekcji między detektorami od -200 do 800 ns. Widoczne grupowanie fotonów spowodowane migotaniem stanu, z którego następuje przejście optyczne. (b) Ten sam histogram koincydencji dla wąskiego zakresu opóźnień od -30 do 30 ns. Widoczna silna redukcja zliczeń przy zerowym opóźnieniu. Czarne punkty oznaczają dane pomiarowe, natomiast czerwona linia ciągła jest dopasowaniem funkcją z równania (4.1). Rysunek zaadaptowany z ref. [98].

defektów i pułapek ładunkowych w pobliżu kropki, do których nośniki mogą relaksować.¹⁰¹ Migotanie może być też spowodowane przełączaniem pomiędzy różnymi stanami naładowania, gdyż w widmie zintegrowanym po czasie często obserwuje się zarówno ekscyton i trion pochodzące z tej samej kropki kwantowej, dla których nie jest możliwa jednoczesna rekombinacja. Ostatnią przyczyną mogą być fluktuacje lokalnego pola elektrycznego (z ang. *charge noise*), prowadzące do zmiany przekrywania się funkcji falowej elektronu i dziury.^{102,103,104}

Wartość $g_{PS}^{(2)}(0)$ określa prawdopodobieństwo emisji wielofotonowej dokładnie w zerze (wyselekcjonowana wartość, z ang. *Post Selected* — *PS*). Jest to wartość uzyskiwana dla nieskończenie wąskiego przedziału czasu, co nie ma zastosowania w praktyce. Co więcej, w tym przypadku wartość ta nie uwzględnia migotania. Bardziej miarodajną metodą określenia prawdopodobieństwa emisji wielofotonowej jest wyznaczenie stosunku liczby wszystkich zliczeń w obrębie środkowego pik (o szerokości odpowiadającej τ_0) do zliczeń w obrębie pik dla dużych wartości τ , gdzie funkcja $g^{(2)}(\tau) \rightarrow 1$. Wartość ta została oznaczona jako $g_{raw}^{(2)}(0)$. Na rys. 4.4(b) pokazano ten sam histogram ze zbliżeniem na środkowy pik. Widoczna jest silna redukcja zliczeń w okolicy $\tau = 0$, co świadczy o dobrej jakości źródła pod względem emisji pojedynczych fotonów. Wartości parametrów wyznaczonych z dopasowania funkcją z równania (4.1) oraz wyznaczona wartość $g_{raw}^{(2)}(0)$ zostały zebrane w tabeli 4.1.

Uzyskany z dopasowania czas τ_1 jest nieco dłuższy niż wyznaczony z pomiaru fotoluminescencji rozdzielczej czasowo. Na rys. 4.5(a) przedstawiono logarytm naturalny z intensywności fotoluminescencji w funkcji czasu dla kolejnych, coraz wyższych mocy wzbudzenia. Dane zostały rozsunięte względem osi intensywności w celu poprawy widoczności. Zauważyć można zmianę charakterystycznego czasu zaniku w funkcji mocy, objawiającą się zmianą nachylenia liniowego odcinka danych. Co więcej, dla najwyższych mocy widoczna jest rozbieżność z liniowym przebiegiem dla krótkich czasów sugerująca dodatkowe mechanizmy obsadzania stanu kropki kwantowej. Większa moc powoduje, że nośniki są wychwytywane przez pułapki ładunkowe znajdujące się w otoczeniu kropki kwantowej, a następnie relaksują do poziomu, z którego następuje rekombinacja. Powoduje to, że nawet po ustaniu wzbudzającego impulsu laserowego wciąż można obserwować narastanie intensywności emisji. Wyznaczone czasy zaniku w funkcji mocy wzbudzenia przedstawione są na rys. 4.5(b). Nawet dla najwyższej użytej



Rysunek 4.5: Zanik fotoluminescencji w funkcji czasu. (a) Logarytm naturalny z intensywności fotoluminescencji w funkcji czasu dla kolejnych mocy wzbudzenia (punkty) wraz z dopasowaniem liniowego odcinka (linie ciągłe). (b) Wyznaczone z dopasowania zaniku fotoluminescencji czasy życia w funkcji mocy wzbudzenia. Rysunek zaadaptowany z ref. [98].

mocy wyznaczone czasy zaniku T_1 są niższe niż wartość τ_1 uzyskana z dopasowania histogramu autokorelacji II rzędu funkcją o podwójnym zaniku wykładniczym. Może to wynikać z tego, że w przypadku pomiaru zaniku fotoluminescencji dopasowanie jest tylko do liniowego odcinka danych, natomiast w przypadku histogramu dopasowanie funkcją wykładniczą obejmuje cały pik, uwzględniając anomalię w pobliżu jego maksimum i w ten sposób sztucznie zawyżając wyznaczony czas τ_1 .

Wartość funkcji $g^{(2)}(0)$ różni się prawie o rząd w zależności od metody jej wyznaczenia. Wartość wyodrębniona bezpośrednio z dopasowania funkcją z równania (4.1) zakłada brak migotania stanu i brak zliczeń pochodzących od tła oraz określa tylko jakość źródła pojedynczych fotonów w nieskończenie krótkich odstępach czasu między fotonami. Jest to jednak wartość mówiąca o potencjale źródła w przypadku wyeliminowania czynników zewnętrznych, takich jak emisja tła z próbki czy rozproszone promieniowanie laserowe, a także czynników wewnętrznych, czyli migotania stanu, które ogranicza się np. przez stabilizację ładunkową otoczenia kropki poprzez doświetlenie kropki nierezonansowo lub poprzez przyłożenie zewnętrznego pola elektrycznego; w obu przypadkach powodując wypełnienie pułapek ładunkowych.^{105,106} Porównanie surowych danych z kolei daje bardziej praktyczne informa-

Tabela 4.1: Parametry dopasowania histogramu $g^{(2)}(\tau)$ — próbka MBE

parametr	wartość	niepewność
B	0	0,0016
n	62	—
τ_0 [ns]	13,11100	0,00028
τ_1 [ns]	1,1650	0,0072
τ_{mig} [ns]	80,7	1,2
$g_{\text{PS}}^{(2)}(0)$	0,0091	0,0088
$g_{\text{raw}}^{(2)}(0)$	0,076	0,006

cje o aktualnej jakości źródła i pozwala bezpośrednio porównać jego potencjał z potencjałem innych źródeł. Zarówno wartość $g_{\text{PS}}^{(2)}(0)$, jak i $g_{\text{raw}}^{(2)}(0)$ są znacznie poniżej granicznej wartości $g^{(2)}(0) < 0,5$, co potwierdza, że źródło można nazwać emiterym pojedynczych fotonów.

4.1.3 Widoczność interferencji dwufotonowej i koherencja emitera

Opóźnienie między kolejnymi impulsami wzbudzającymi równe 13,1 ns

Zweryfikowanie źródła pod kątem emisji pojedynczych fotonów pozwala przejść do eksperymentu interferencji dwufotonowej. Wykorzystując ten sam laser co w poprzednim eksperymencie, o częstotliwości repetycji 76 MHz, skompensowano opóźnienie między kolejnymi impulsami wzbudzającymi interferometrem HOM częściowo w powietrzu (3,1 ns), a częściowo w światłowodzie (10 ns). Z pomocą optyki polaryzacyjnej ustawionej w ramionach interferometru HOM ustawiono polaryzację interferujących fotonów na jednakową. Uzyskany histogram koincydencji znormalizowano do 1 dla $\tau \rightarrow \infty$ i przedstawiono na rys. 4.6(a) w zakresie opóźnień od -50 do 450 ns. Histogram dopasowano funkcją:

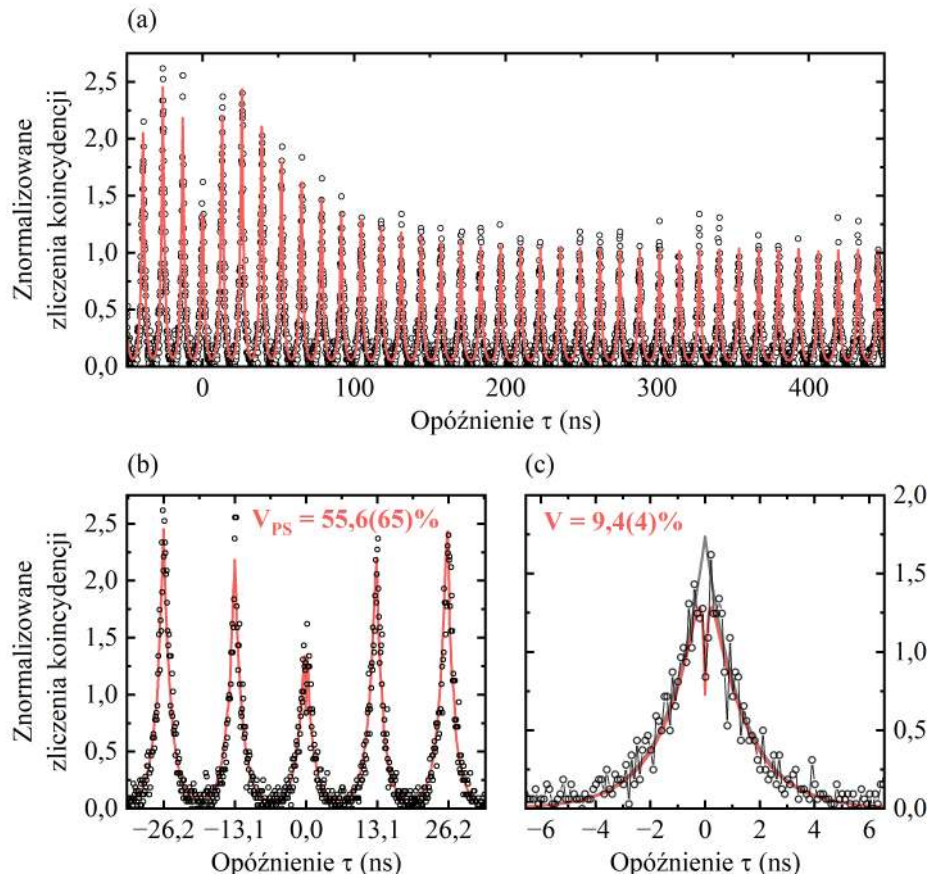
$$C_{\parallel}(\tau) = B + \left[A_{\parallel} \cdot e^{-|\tau|/\tau_1} \left(1 - V_{\text{PS}} \cdot e^{-|\tau|/\tau_2} \right) + \frac{3}{4} \left(e^{-|\tau-\tau_0|/\tau_1} + e^{-|\tau+\tau_0|/\tau_1} \right) + \sum_{n \neq -1,0,1} e^{-|\tau-n\tau_0|/\tau_1} \right] \cdot \left(1 + m \cdot e^{-|\tau|/\tau_{\text{mig}}} \right), \quad (4.2)$$

gdzie $C_{\parallel}$ oznacza liczbę koincydencji dla fotonów spolaryzowanych jednakowo, $A_{\parallel}$ jest intensywnością środkowego pików, V_{PS} oznacza wartość widoczności w obrębie nieskończenie krótkich odstępów czasu, a τ_2 jest czasem koherencji stanu kwantowego, zwykle wiązanym z czasem T_2 . Podobnie jak w przypadku histogramu autokorelacji II rzędu, widoczne jest grupowanie fotonów.

Na rys. 4.6(b) widoczny jest ten sam histogram, pokazujący jedynie 5 środkowych pików, których maksima oddalone są od siebie o 13,1 ns, zgodnie z częstotliwością repetycji lasera. W takiej konfiguracji układu spodziewane jest, że intensywność pików przy opóźnieniach 13,1 i -13,1 ns będzie stanowić 3/4 intensywności pików przy 26,2 i -26,2 ns, co uzasadnia analiza wszystkich możliwych dróg optycznych impulsów wzbudzających i emitowanych fotonów. W tym przypadku jest to zaburzone ze względu na wspomniane migotanie stanu. Na rys. 4.6(c) pokazano tylko środkowy pik w celu uwidocznienia zredukowanych zliczeń w okolicy opóźnienia $\tau = 0$. Wyznaczone parametry z dopasowania danych funkcją z równania (4.2) zostały zebrane w tabeli 4.2.

Dla pomiarów korelacji pojedynczych fotonów sygnał z kropki kwantowej był zbierany przez soczewkę i sprzęgany do światłowodu, a następnie kierowany do detektorów pojedynczych fotonów. W pomiarze autokorelacji przed detektorami znajdował się światłowodowy dzielnik wiązki, który rozdzielał sygnał na dwa detektory. Z kolei w pomiarze interferencji dwufotonowej sygnał był początkowo odsprzęgnięty i kierowany na interferometr HOM, by ponownie zostać sprzęgniętym do światłowodu. Było to konieczne ze względu na umiejscowienie interferometru HOM na oddzielnym stole optycznym od pozostałej części układu. Z tego względu bezwzględna intensywność sygnału zmalała niemal o jeden rząd wielkości, co przełożyło się na niższy stosunek sygnału do szumu. Jest to odzwierciedlone w wartości $B = 0,0393(21)$.

Czas zaniku τ_1 ponownie jest większy od tego uzyskanego z pomiaru zaniku fotoluminescencji, ale również różni się od tego uzyskanego z pomiaru funkcji $g^{(2)}(\tau)$, co nie jest spodziewane, gdyż warunki wzbudzania nie zmieniły się, podobnie jak odległość czasowa między



Rysunek 4.6: Histogram interferencji dwufotonowej dla opóźnień między impulsami laserowymi równego 13,1 ns — próbka MBE. (a) Znormalizowany histogram koincydencji dla opóźnień między zliczeniami na detektorach w zakresie od -50 do 450 ns. Widoczne jest grupowanie fotonów. (b) Ten sam histogram koincydencji dla węższego zakresu opóźnień od -33 do 33 ns. (c) Przybliżenie histogramu dla środkowego pików w okolicy zerowego opóźnienia. Zmierzone dane są przedstawione jako czarne otwarte kółka. Wynik dopasowania danych funkcją z równania (4.2) wyrysowano za pomocą czerwonej linii ciągłej, natomiast szara linia ciągła przedstawia symulację pików dla fotonów całkowicie rozróżnialnych. Rysunek zaadaptowany z ref. [98].

impulsami wzbudzającymi, a tym samym między pikami na histogramie. Innym wytłumaczeniem może być wpływ tła w histogramie na jakość dopasowania. Z dopasowania uzyskano niską niepewność wyniku, ale jest ona konsekwencją jedynie jakości dopasowania i odzwierciedla niepewność statystyczną, natomiast nie uwzględnia rozdzielczości czasowej pomiaru, która wyniosła około 100 ps. Z kolei wartość czasu korelacji migotania stanu τ_{mig} jest prawie dwukrotnie mniejsza niż wartość otrzymana w pomiarze funkcji $g^{(2)}(\tau)$. Różnica ta jest prawdopodobnie związana ze znacząco różnym czasem integracji zliczeń, odpowiednio 14 h i 0,5 h. Częstość przełączania źródła między stanem ON i OFF ma charakter statystyczny i może silnie zależeć od czasu pomiaru. Im większa próba statystyczna, tym wyznaczony czas τ_{mig} jest bliższy rzeczywistej wartości, a niepewność jego wyznaczenia mniejsza.

Z perspektywy tematu tej rozprawy szczególnie interesującymi parametrami są widoczność interferencji oraz czas koherencji. Wyznaczona wartość $V_{\text{PS}} = 55,6(65)\%$ odpowiada widoczności dla nieskończonego krótkiego zakresu opóźnień, dlatego podjęto próbę oszacowania widoczności w zakresie τ_0 . Na rys. 4.6(c) szarą ciągłą linią wyrysowano zasymulowany przebieg histogramu dla całkowicie rozróżnialnych fotonów, biorąc pod uwagę ten sam charakter

Tabela 4.2: Parametry dopasowania histogramu HOM dla opóźnienia 13,1 ns — próbka MBE.

parametr	wartość	niepewność
B	0,0393	0,0021
n	62	—
τ_0 [ns]	13,11134	0,00031
τ_1 [ns]	1,359	0,011
τ_2 [ps]	108	25
τ_{mig} [ns]	46,05	0,75
A	0,470	0,012
$V_{\text{PS}}[\%]$	55,6	6,5
$V[\%]$	9,4	0,4

migotania stanu. Porównując pole pod środkowym pikiem będącym dopasowaniem do danych $A_{\parallel}$ z polem pod zasymulowanym przypadkiem $A_{\perp}$ wyznaczono widoczność $V = 9,4(4)\%$ na podstawie zależności:

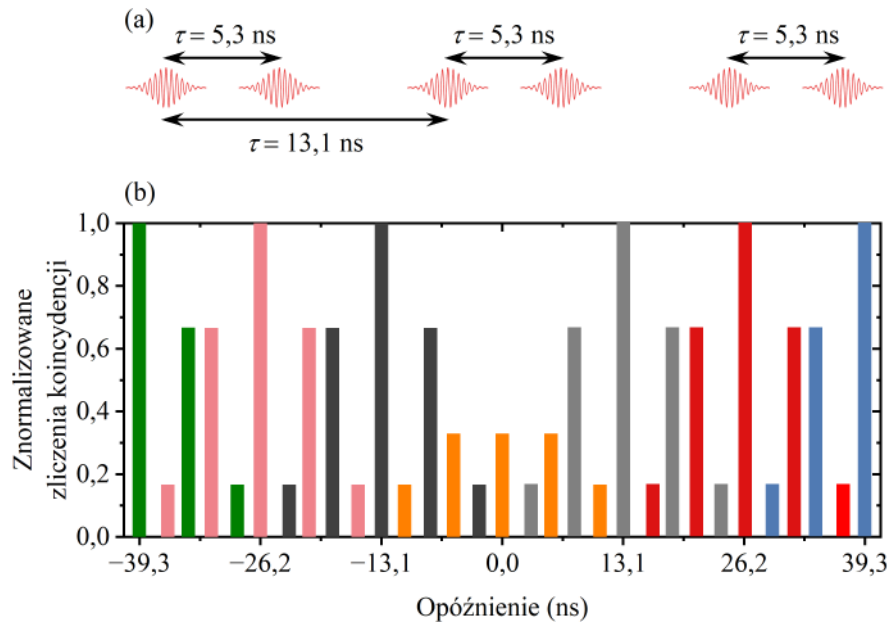
$$V = 1 - \frac{A_{\parallel}}{A_{\perp}}. \quad (4.3)$$

Pomiar interferencji dwufotonowej jest standardową metodą pozwalającą wyznaczyć czas koherencji T_2 , który odpowiada wyznaczonemu parametrowi τ_2 , przy czym czas τ_2 jest obarczony niepewnością związaną z rozdzielczością czasową układu pomiarowego, a także z dokładnością zgrania impulsów w eksperymencie. Uzyskana wartość $T_2 = \tau_2 = 108(25)$ ps jest porównywalna z rozdzielczością czasową pomiaru, co widać wyraźnie na rys. 4.6(c), na którym tylko 2 punkty pomiarowe znajdują się w obrębie minimum w środkowym pikie. Wskazana niepewność równa 25 ps pochodzi z niepewności dopasowania funkcją z równania (4.2).

Opóźnienie między kolejnymi impulsami wzbudzającymi równe 5,3 ns

Nierozróżnialność fotonów interferujących w układzie HOM nie zależy od czasu ich propagacji, natomiast stan światła zależy od stanu kwantowego emitera w momencie emisji. Jeżeli mechanizmy dekoherencji wpływają na kropkę kwantową w czasie pomiędzy kolejnymi aktami emisji, interferujące fotony mogą stać się rozróżnialne. W celu sprawdzenia wpływu czasu pomiędzy emisją kolejnych fotonów na ich nierozróżnialność skrócono czas między impulsami wzbudzającymi poprzez wprowadzenie do układu interferometru Macha-Zehndera, jak opisano w podrozdziale 3.1.1.

W przeprowadzonych pomiarach opóźnienie w jednym z ramion w interferometrze Macha-Zehndera wyniosło 5,3 ns, które ponownie zostało zrekompensowane w interferometrze HOM, częściowo w powietrzu (3,3 ns) i częściowo w światłowodzie (2 ns). Kropka kwantowa wzbudzana jest parami impulsów co 13,1 ns, przy czym w ramach jednej pary impulsy te są oddalone o 5,3 ns, jak to przedstawiono na schemacie na rys. 4.7(a). Przy takiej konfiguracji impulsów wzbudzających spodziewany histogram dla fotonów całkowicie rozróżnialnych wygląda jak na schemacie na rys. 4.7(b), gdzie kolejne kolory oznaczają korelacje między fotonami emitowanymi w wyniku wzbudzania parami impulsów w ramach tej samej lub par oddalonych o wielokrotność czasu 13,1 ns. Tak jak w przypadku prostego schematu wzbudza-



Rysunek 4.7: Opóźnienia między parami impulsów wzbudzających 13,1 ns, z opóźnieniem między impulsami w ramach jednej pary 5,3 ns. (a) Schemat wzbudzania kolejnymi impulsami. (b) Spodziewany histogram HOM w przypadku całkowicie rozróżnialnych fotonów.

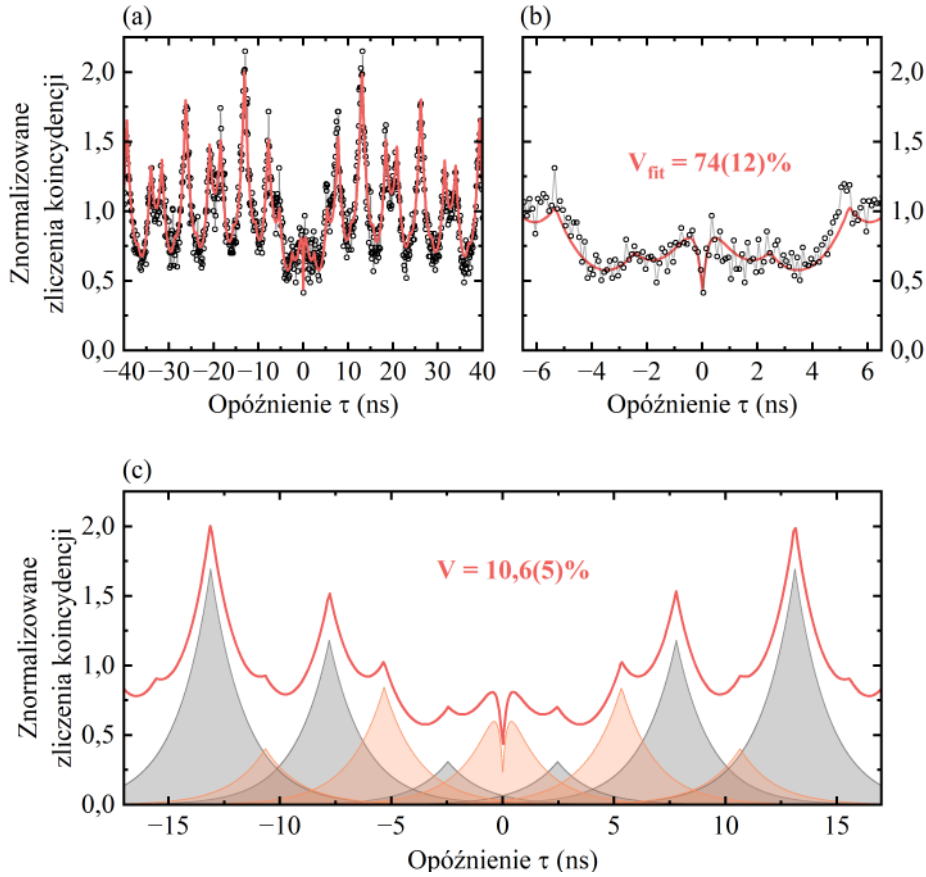
nia impulsami oddalonymi o 13,1 ns dla fotonów rozróżnialnych, środkowy pik stanowi 50% intensywności pików dla dużych τ , w powyższym przypadku suma intensywności pomarańczowych pików stanowi 50% sumy intensywności pików innego koloru.

W przypadku fotonów o niezerowym stopniu nierozróżnialności intensywność środkowego pików powinna być zredukowana. Znormalizowany histogram zliczeń otrzymany w opisanym schemacie wzbudzania został przedstawiony na rys. 4.8. Histogram przedstawiony na rys. 4.8(a), w zakresie od -40 do 40 ns, różni się od tego pokazanego na schemacie z rys. 4.7(b), gdyż w rzeczywistym przypadku czas życia stanu wzbudzonego nie jest nieskończenie krótki, co wprowadza niezerową szerokość pików; co więcej, w tym przypadku występuje migotanie źródła, co zaburza względne intensywności pików w porównaniu z tymi spodziewanymi. Widoczne jest silne przekrywanie się pików, co jest bezpośrednią konsekwencją tego, że czas życia T_1 jest porównywalny z czasem odpowiadającym separacji impulsów. Funkcja dopasowania histogramu z dodatkowo wprowadzonym opóźnieniem ma postać:

$$\begin{aligned}
 C_{\parallel}(\tau) = B + & \left[\frac{1}{6} \cdot e^{-|\tau - (-2\tau_0)|/\tau_1} + \frac{1}{3} \cdot e^{-|\tau - (-\tau_0)|/\tau_1} + \right. \\
 & + A_{\parallel} \cdot e^{-|\tau|/\tau_1} \left(1 - V_{PS} \cdot e^{-|\tau|/\tau_2} \right) + \frac{1}{3} \cdot e^{-|\tau - \tau_0|/\tau_1} + \frac{1}{6} \cdot e^{-|\tau - 2\tau_0|/\tau_1} + \\
 & + \sum_{n \neq 0} \left(\frac{1}{6} \cdot e^{-|\tau - (-n\tau_0 - 2\tau_3)|/\tau_1} + \frac{2}{3} \cdot e^{-|\tau - (-n\tau_0 - \tau_3)|/\tau_1} + e^{-|\tau - (-n\tau_0)|/\tau_1} + \right. \\
 & \left. \left. + \frac{2}{3} \cdot e^{-|\tau - (-n\tau_0 + \tau_3)|/\tau_1} + \frac{1}{6} \cdot e^{-|\tau - (-n\tau_0 + 2\tau_3)|/\tau_1} \right) \right] \cdot \left(1 + m \cdot e^{-|\tau|/\tau_{mig}} \right), \quad (4.4)
 \end{aligned}$$

gdzie jedynym nowym parametrem jest τ_3 , którego wartość jest opóźnieniem wprowadzonym w interferometrze Macha-Zehndera.

Dopasowanie bardzo dobrze odzwierciedla zmierzone dane, co widać również na rys.



Rysunek 4.8: Histogram interferencji dwufotonowej dla opóźnień między impulsami laserowymi równego 5,3 ns — próbka MBE. (a) Znormalizowany histogram koincydencji dla opóźnień między zliczeniami na detektorach w zakresie od -40 do 40 ns. (b) Ten sam histogram koincydencji dla węższego zakresu opóźnień od $-6,5$ do $6,5$ ns. Widoczne charakterystyczne antygrupowanie w środkowym pik. Zmierzone dane są przedstawione poprzez czarne otwarte kółka. Wynik dopasowania danych funkcją z równania (4.4) wyrysowany jest za pomocą czerwonej linii ciągłej. (c) Przebieg funkcji z równania (4.4) o parametrach uzyskanych z dopasowania do zmierzonych danych (czerwona linia ciągła) wraz z wyodrębnionymi pikami wynikającymi z koincydencji między fotonami z impulsów w obrębie tej samej pary (pomarańczowe piki) oraz z różnych par (szare piki). Rysunek zaadaptowany z ref. [98].

4.8(b), gdzie pokazano zbliżenie na środkowy pik. Ponownie widoczne jest charakterystyczne minimum wskazujące na interferencję nierozróżnialnych fotonów. W celu lepszego zobrazowania poszczególnych członów funkcji dopasowania, wyrysowano wkład od poszczególnych pików na rys. 4.8(c). Pomarańczowymi polami zaznaczono pięć pików odpowiadających wszystkim możliwym kombinacjom dróg optycznych, jakie mogą przebyć fotony wygenerowane przez pojedynczy impuls laserowy wprowadzony do interferometru Macha–Zehndera. Dalej odległe piki po obu stronach osi są konsekwencją korelacji fotonów wygenerowanych przez kolejne impulsy laserowe (oddalone o 13,1 ns, a także o 26,2 ns, itd.)

Parametry uzyskane z dopasowania danego histogramu przedstawiono w tabeli 4.3. Mimo otrzymanej wartości $B = 0$, spodziewane jest, że wysokość tła nie zmieniła się w porównaniu z pomiarem dla opóźnień impulsów 13,1 ns, ale w tym przypadku jest trudniejsza do określenia ze względu na pokrywanie się pików histogramu. Wartość czasu zaniku τ_1 jest ponownie wyższa niż w pomiarze fotoluminescencji rozdzielczej czasowo; ponadto jest wyższa niż w poprzednich pomiarach korelacji pojedynczych fotonów. Ponieważ warunki wzbudzenia

Tabela 4.3: Parametry dopasowania histogramu HOM dla opóźnienia 5,3 ns — próbka MBE.

parametr	wartość	niepewność
B	0,0	0,023
n	62	—
τ_0 [ns]	13,11566	0,00041
τ_1 [ns]	1,571	0,030
τ_2 [ps]	214	68
τ_3 [ns]	5,3270	0,0038
τ_{mig} [ns]	58,9	1,1
A	0,230	0,014
$V_{\text{PS}}[\%]$	74	12
$V[\%]$	10,6	0,5

pozostały jednakowe dla wszystkich pomiarów korelacyjnych, a próbka pozostawała w temperaturze 5 K podczas wszystkich pomiarów, a także pomiędzy nimi, zidentyfikowano ten wzrost czasu zaniku jako wynikający wyłącznie z jakości dopasowania histogramu. Z rys. 4.5 widać, że dla mocy wzbudzenia bliskich mocy nasycenia intensywności emisji pojawia się dodatkowy narost intensywności dla krótkich czasów. Funkcja dopasowania histogramu zakłada wyłącznie zanik monowykładniczy, co powoduje, że wyznaczony czas τ_1 jest sztucznie zawyżony przy dopasowaniu histogramu, w którym widoczne są głównie okolice maksimum pików. Różnice w czasie związanym z migotaniem stanu kwantowego są ponownie związane ze statystycznym charakterem zjawiska, zależnym od czasu trwania pomiaru.

Wyznaczona z dopasowania widoczność $V_{\text{PS}} = 74(12)\%$ obarczona jest dużą niepewnością, ponieważ dotyczy ona wartości widoczności dla nieskończonego przedziału czasu, co w danych pomiarowych oznacza jeden punkt. Rozdzielczość czasowa układu jest ponownie niewiele mniejsza od uzyskanego czasu koherencji $\tau_2 = 214(68)$ ps, którego wartość zależy od szerokości wspomnianego minimum. Wartość V wyznaczono na podstawie pików wyodrębnionych z dopasowania (z rys. 4.8(c)). Porównano pole pod środkowym pomarańczowym pikiem z sąsiadującym z nim pikiem pomarańczowym, ale przesuwając jego maksimum do $\tau = 0$ i w ten sposób symulując przypadek fotonów całkowicie rozróżnialnych. Na podstawie zależności z równania (4.3) otrzymano $V = 10,6(5)\%$.

Podsumowanie wyników pomiarów korelacji pojedynczych fotonów na próbce MBE

Badana linia emisyjna o charakterze bieksytonowym została przebadana w eksperymentach korelacji pojedynczych fotonów, a dokładnie autokorelacji II rzędu oraz interferencji dwufotonowej. W każdym z otrzymanych histogramów zaobserwowano grupowanie fotonów związane z migotaniem źródła. Oznacza to, że w sposób losowy w czasie występują periody, kiedy obserwowana jest emisja z danego stanu kwantowego, i periody, kiedy ta emisja nie jest obserwowana. Wynika z tego, że nie każdy impuls laserowy prowadzi do emisji z danego stanu, co przekłada się na zaburzenie w statystyce korelacji między kolejnymi aktami emi-

sji; stąd obserwowane grupowanie fotonów. Przyczyną takiej niestabilności źródła może być obecność pułapek ładunkowych w otoczeniu kropki kwantowej, które przechwytyują nośniki wygenerowane podczas wzbudzenia impulsem lasera. Taką niechcianą pułapką może być też inna kropka kwantowa czy efektywnie inny kompleks ekscytonowy w tej samej kropce. Jak pokazano w eksperymencie PLE, nawet przy selektywnym wzbudzaniu kwazirezonansowym widoczne są w widmie linie pochodzące z emisji z innych stanów w danej lub innej kropce kwantowej. Spodziewane jest, że wyeliminowanie migotania stanu znacząco zmniejszyłoby otrzymaną wartość $g_{\text{raw}}^{(2)} = 0,0758(60)$, o czym świadczy niska wartość $g_{\text{PS}}^{(2)} = 0,0091(88)$, która nie uwzględnia wpływu migotania stanu.

Obecność pułapek ładunkowych w otoczeniu kropki wpływa również na szerokość linii emisyjnej. Przechwytywanie i uwalnianie ładunków prowadzą do fluktuacji lokalnego pola elektrycznego, które poprzez efekt Starka powodują czasowe zmiany energii przejścia optycznego. Jeżeli fluktuacje te zachodzą na skali czasowej dłuższej niż czas życia stanu ekscytonowego, obserwuje się zjawisko rozmycia widmowego, objawiające się niejednorodnym poszerzeniem linii emisyjnej. Ponieważ kolejne emitowane fotony mają wówczas nieco różne energie, rozmycie widmowe prowadzi do obniżenia ich stopnia nierozróżnialności. Jest to związane z niejednorodnym zanikiem koherencji, którego charakterystyczny czas oznaczany jest w tej pracy jako T_2^* .

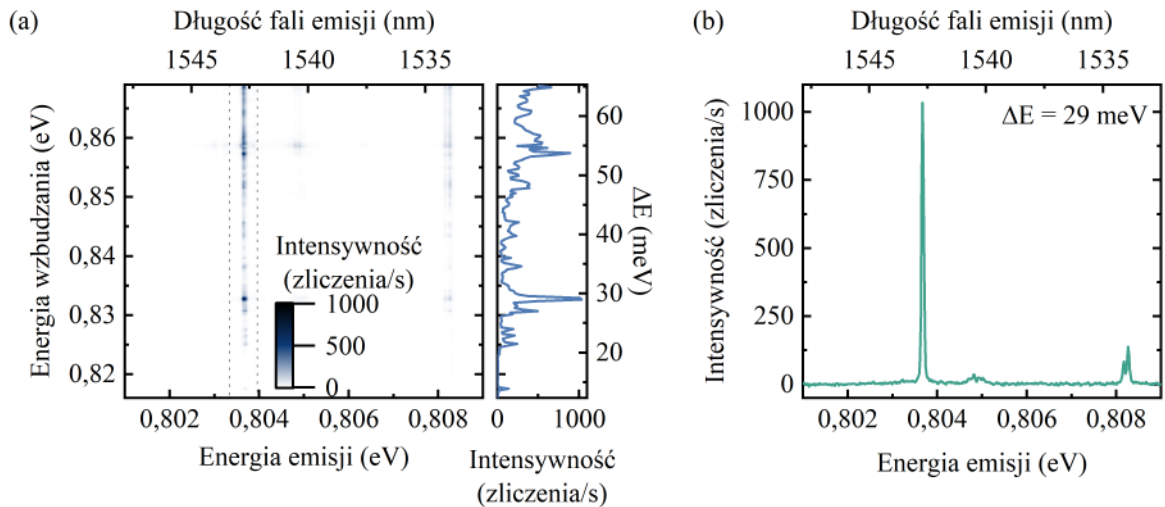
Wartość stopnia nierozróżnialności pojedynczych fotonów wzrosła przy przejściu do mniejszej separacji impulsów wzbudzających. Większą zmianę zaobserwowano dla wartości V_{PS} , która wzrosła o 35% przy przejściu z separacji 13,1 ns do 5,3 ns. Znacznie mniejszy wzrost (13%) uzyskano dla wartości V , wyznaczonej na podstawie porównania dopasowanych pików dla nierozróżnialnych i (zasymulowanych) rozróżnialnych fotonów. Chociaż z dopasowania histogramów wynika niemal dwukrotny wzrost czasu τ_2 opisującego szerokość minimum w środkowym piku, nie należy oczekiwać, aby parametr ten zależał od odstępów między impulsami wzbudzającymi. W związku z tym wzrost τ_2 nie może stanowić wyjaśnienia obserwowanego wzrostu V_{PS} , a raczej jest spowodowany dokładnością dopasowania danych oraz ograniczoną rozdzielczością czasową pomiarów. W obu pomiarach zastosowano ten sam emiter, identyczne warunki wzbudzenia oraz ten sam schemat detekcji. Ponadto podczas trwania pomiarów oraz pomiędzy nimi próbka pozostawała stale schłodzona do temperatury 5 K. Zamierzoną zmianą eksperymentalną była jedynie separacja czasowa między impulsami wzbudzającymi. Wzrost widoczności HOM dla krótszych odstępów między impulsami wzbudzającymi był wcześniej przypisywany w literaturze szumowi niemarkowowskiemu.⁹³ Pokazano również, że w przypadku defazowania markowowskiego widoczność HOM nie zależy od separacji czasowej między dwoma impulsami wzbudzenia.¹⁰⁷ Ponieważ separacje impulsów użyte w eksperymencie (5,3 ns i 13,1 ns) przekraczają wyznaczony czas koherencji jednorodnej T_2 o ponad rząd wielkości, obserwowana zależność widoczności HOM od separacji impulsów jest zgodna z obecnością dodatkowego mechanizmu dekoherencji o czasie korelacji w skali nanosekund. To zachowanie jest zgodne z powolnym rozmyciem widmowym,¹⁰⁸ które wprowadza korelacje czasowe między kolejnymi zdarzeniami emisji i zmniejsza nierozróżnialność fotonów dla dłuższych separacji między impulsami. Szerokość linii emisyjnej, znacznie przekraczająca wartość wynikającą z wyznaczonego czasu T_2 , wskazuje na istotny wkład powolnych fluktuacji energii przejścia, co pozostaje zgodne z powyższą interpretacją.

4.2 Kropki kwantowe InAs(P)/InP wzrastane metodą MOVPE

Podobnie jak w przypadku próbki MBE, na próbce MOVPE przeprowadzono wstępne pomiary optyczne w celu identyfikacji kompleksów ekscytonowych oraz wyboru odpowiedniej energii i mocy wzbudzenia do pomiarów funkcji $g^{(2)}(\tau)$ oraz interferencji dwufotonowej. Przebadano cztery mezy, a spośród wszystkich obserwowanych linii emisyjnych wybrano tę, która charakteryzowała się wysoką intensywnością, znacznie przewyższającą intensywność pozostałych linii.

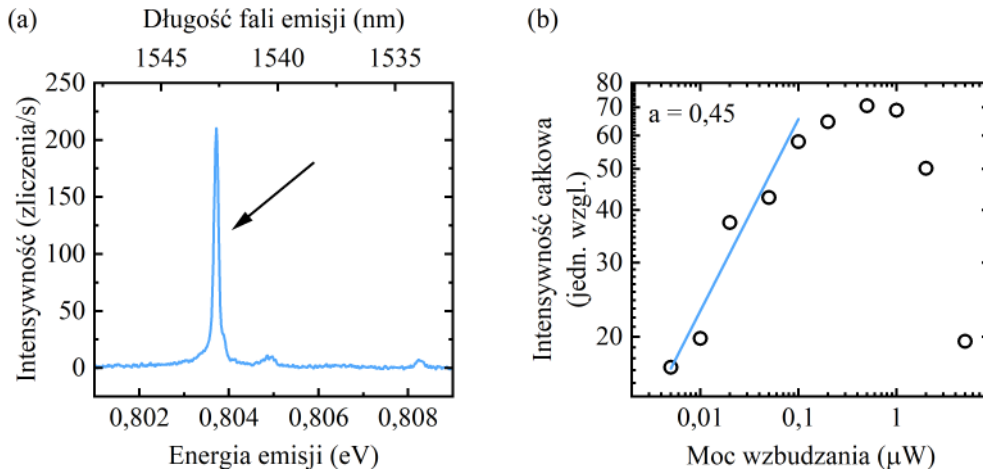
4.2.1 Wstępne pomiary optyczne

Ponownie, w celu wybrania odpowiedniej energii wzbudzenia, przeprowadzono pomiary PLE w zakresie długości fali światła lasera wzbudzającego 1426–1520 nm (0,869–0,817 eV) z krokiem 0,5 nm (~ 150 μ eV). Otrzymaną mapę intensywności PLE przy wzbudzaniu mocą 100 μ W przedstawiono na rys. 4.9(a). Linia emisyjna przy długości fali 1542,7 nm (0,8037 eV) jest widoczna w szerokim zakresie energii wzbudzenia. Panel po prawej przedstawia intensywność danej linii w funkcji różnicy między energią wzbudzenia a energią emisji ΔE . Wyraźne maksimum pojawia się dla długości fali wzbudzenia 1489 nm (0,833 eV), co daje różnicę energii $\Delta E = 29$ meV. Widmo przy takim wzbudzaniu jest pokazane na rys. 4.9(b). Badane kropki kwantowe cechują się niską gęstością powierzchniową, co jest obserwowalne w widmie fotoluminescencji jako niska gęstość linii emisyjnych, szczególnie widoczna przy wzbudzaniu nierezonansowym, które powinno być efektywne dla wszystkich kropek znajdujących się w obrębie plamki lasera wzbudzającego.



Rysunek 4.9: Widma fotoluminescencji wzbudzeniowej — próbka MOVPE. (a) Mapa fotoluminescencji wzbudzeniowej dla badanej mezy. Panel po prawej pokazuje intensywność w maksimum w funkcji różnicy energii między energią lasera wzbudzającego a energią emisji, dla linii zaznaczonej między kropkowanymi szarymi liniami na panelu lewym. (b) Widmo fotoluminescencji dla różnicy energii między wzbudzeniem a emisją o wartości $\Delta E = 29$ meV.

Seria pomiarów fotoluminescencji z mocą przy wzbudzaniu nierezonansowym wykazała zależność $I \sim P^{a < 1}$, co nie jest typowe dla żadnego z kompleksów ekscytonowych przy założeniu modelu trójpoziomowego. Rys. 4.10(a) przedstawia widmo fotoluminescencji przy wzbudzaniu nierezonansowym, natomiast panel (b) przedstawia zależność intensywności całkowitej linii emisyjnej od mocy wzbudzenia w podwójnej skali logarytmicznej wraz z dopasowaniem



Rysunek 4.10: Wzbudzenie nierezonansowe w funkcji mocy wzbudzenia — próbka MOVPE. (a) Widmo fotoluminescencji badanej kropki kwantowej wzbudzonej nierezonansowo. (b) Zależność intensywności całkowitej od mocy wzbudzenia dla badanej linii emisyjnej (zaznaczonej czarną strzałką na panelu (a)).

do liniowej części przebiegu danych. Linie zidentyfikowano jako pochodzącą z rekombinacji trionu, a dokładny opis metodyki przedstawiono w rozdziale 5.

Podobnie jak w poprzednim przypadku, szerokość linii emisyjnej jest węższa przy wzbudzeniu kwazirezonansowym ($59 \mu\text{eV}$) w stosunku do wzbudzenia nierezonansowego ($115 \mu\text{eV}$), co jest spowodowane większą liczbą nadmiarowych ładunków fluktuujących w otoczeniu kropki kwantowej w przypadku wzbudzenia nośników w barierze potencjału.

4.2.2 Prawdopodobieństwo emisji wielofotonowej

Na podstawie wyniku pomiarów PLE zdecydowano, że wzbudzenie badanej kropki kwantowej 29 meV powyżej energii emisji jest optymalne. Tak jak w przypadku próbki MBE, pomiary korelacji pojedynczych fotonów przeprowadzono dla mocy wzbudzenia odpowiadającej nasyceniu intensywności emisji w danym układzie pomiarowym ($P = P_{\text{sat}} = 1 \text{ mW}$), ale w tym przypadku przeprowadzono również pomiary dla mocy 50-krotnie niższej niż moc nasycenia ($P = 0.02 P_{\text{sat}} = 0.02 \text{ mW}$) w celu weryfikacji jej wpływu na właściwości emitera.

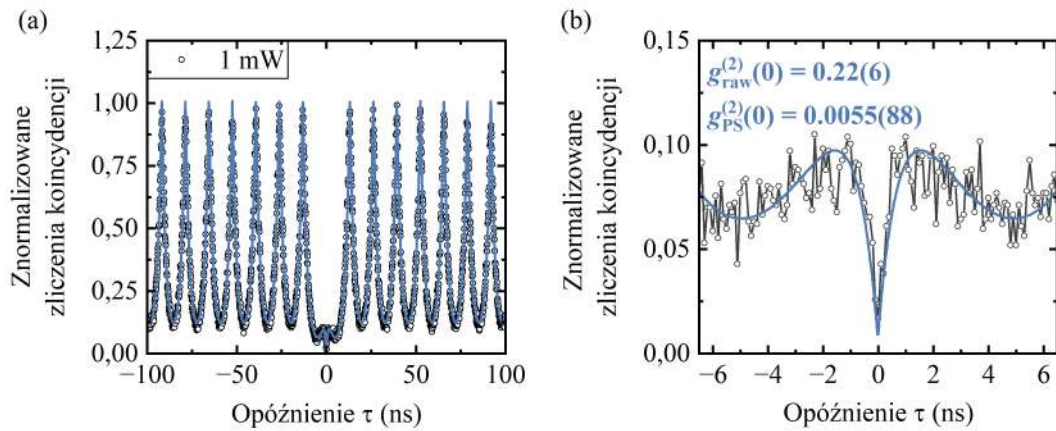
Histogram funkcji $g^{(2)}(\tau)$ dla badanej linii wzbudzonej mocą $P = P_{\text{sat}}$ przedstawiono na rys. 4.11(a), w szerokim zakresie opóźnień od -100 do 100 ns , oraz na rys. 4.11(b), w wąskim zakresie opóźnień od -6.5 do 6.5 ns , odpowiadającym separacji czasowej między impulsami wzbudzającymi (13.1 ns). W szerokim zakresie opóźnień (nawet do 800 ns) nie zaobserwowano grupowania fotonów związanego z efektem migotania emitera. Natomiast w obrębie środkowego pików widoczne jest nie tylko antygrupowanie świadczące o emisji pojedynczych fotonów, ale również grupowanie, którego przyczyną może być ponowne wychwytywanie nośników przez kropkę kwantową (z ang. *carrier recapture*). Zjawisko to jest zwykle obserwowane przy wzbudzeniu nierezonansowym, w którym impuls lasera tworzy nośniki w barierze lub warstwie zwilżającej. Po wychwyceniu nośników przez kropkę, a następnie ich rekombinacji, w otoczeniu nadal mogą pozostawać niewychwyczone nośniki, które zrelaksują do kropki kwantowej i rekombinują promieniście jeszcze przed przybyciem kolejnego impulsu lasera. W przypadku tego pomiaru nośniki są wzbudzone do wyższych stanów w kropce, zatem obserwacja opisanego zjawiska oznacza, że w otoczeniu kropki kwantowej znajdują się pułapki ładunkowe, których energia mieści się pomiędzy energią wzbudzenia a energią poziomą, z któ-

rego następuje emisja.

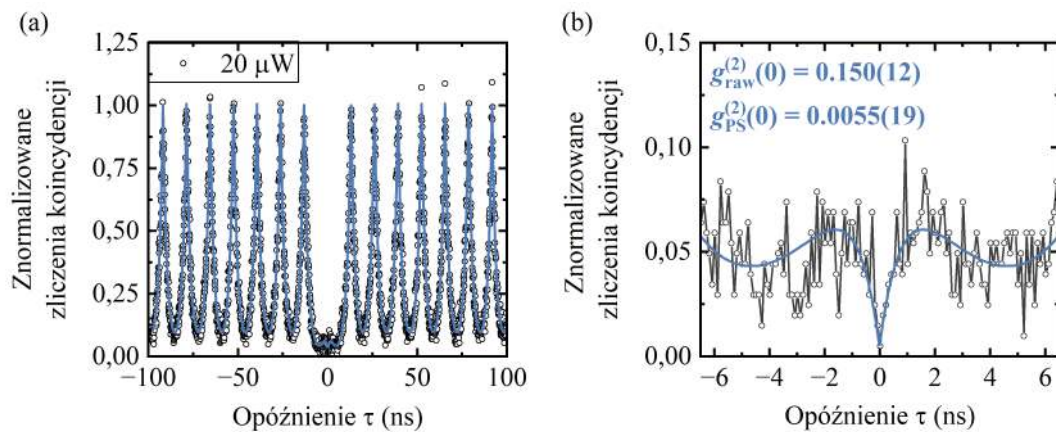
Ten sam pomiar przeprowadzono dla mocy wzbudzenia $P = 0,02P_{\text{sat}}$, a uzyskany histogram przedstawiono na rys. 4.12. Ponownie nie zaobserwowano migotania stanu, natomiast tutaj również widoczna jest emisja spowodowana wychwytywaniem nośników w czasie pomiędzy kolejnymi impulsami wzbudzającymi. Zaobserwowano również mniej zliczeń w obrębie środkowego pików w porównaniu z histogramem otrzymanym dla wyższej mocy wzbudzenia. Oba histogramy dopasowano zmodyfikowaną funkcją z równania (4.1), w którym pojawia się czas τ_{cap} , związany z ponownym wychwytywaniem nośników:

$$g^{(2)}(\tau) = B + \left[A \cdot (e^{-|\tau|/\tau_1} - e^{-|\tau|/\tau_{\text{cap}}}) + \sum_{n \neq 0} e^{-|\tau - n\tau_0|/\tau_1} \right] \cdot (1 + m \cdot e^{-|\tau|/\tau_{\text{mig}}}). \quad (4.5)$$

Parametry dopasowania dla obu histogramów zostały zebrane w tabeli 4.4.



Rysunek 4.11: Histogram funkcji $g^{(2)}$ dla mocy wzbudzenia $P = P_{\text{sat}}$ — próbka MOVPE. (a) Znormalizowany histogram koincydencji dla zakresu opóźnień detekcji między detektorami od -100 do 100 ns. (b) Ten sam histogram koincydencji dla wąskiego zakresu opóźnień od $-6,5$ do $6,5$ ns. Widoczna silna redukcja zliczeń przy zerowym opóźnieniu.



Rysunek 4.12: Histogram funkcji $g^{(2)}$ dla mocy wzbudzenia $P = 0,02P_{\text{sat}}$ — próbka MOVPE. (a) Znormalizowany histogram koincydencji dla zakresu opóźnienia detekcji między detektorami od -100 do 100 ns. Brak grupowania fotonów świadczący o stabilności źródła. (b) Ten sam histogram koincydencji dla wąskiego zakresu opóźnień od $-6,5$ do $6,5$ ns. Widoczna silna redukcja zliczeń przy zerowym opóźnieniu.

Tabela 4.4: Parametry dopasowania histogramu $g^{(2)}(\tau)$ dla dwóch mocy wzbudzenia — próbka MOVPE

Parametr	$P = P_{\text{sat}}$		$P = 0,02P_{\text{sat}}$	
	Wartość	Niepewność	Wartość	Niepewność
B	0	0,0041	0	0,0055
n	8	—	8	—
τ_0 [ns]	13,11622	0,00075	13,1115	0,0012
τ_1 [ns]	2,379	0,022	2,162	0,031
τ_{cap} [ps]	1,052	0,097	1,10	0,30
A	0,323	0,035	0,225	0,086
$g_{\text{PS}}^{(2)}(0)$	0,0055	0,0088	0,0055	0,0019
$g_{\text{raw}}^{(2)}(0)$	0,220	0,060	0,150	0,012

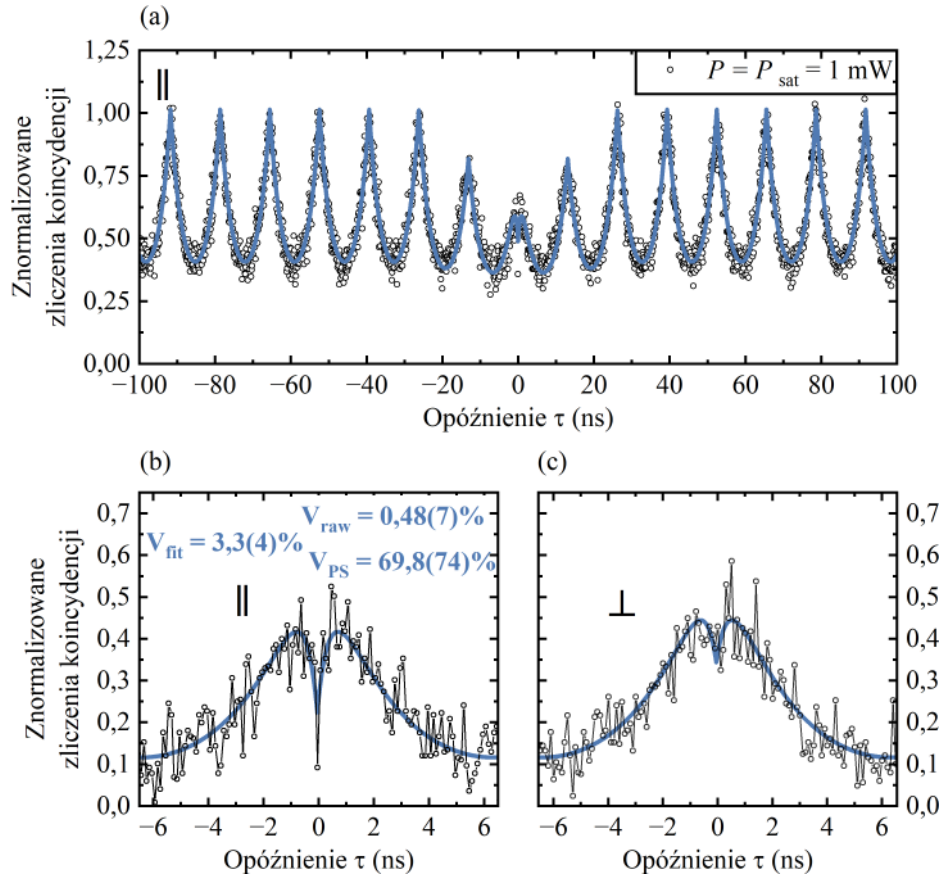
W przypadku obu mocy widać, że w pomiarze funkcji $g^{(2)}(\tau)$ tło pochodzące zarówno ze zliczeń ciemnych detektora, jak i rozproszonego lasera czy emisji z innych stanów, jest pomijalnie małe. Czas zaniku τ_1 rośnie wraz ze wzrostem mocy, co było również widoczne dla próbki MBE. Otrzymany z dopasowania czas τ_{cap} związany z ponownym wychwytywaniem nośników przez kropkę kwantową jest, w granicach niepewności, porównywalny dla obu mocy wzbudzenia, natomiast związana z nim intensywność odzwierciedlona w parametrze A zmalała niemal 1,5-krotnie przy przejściu do niższej mocy wzbudzenia. Poskutkowało to redukcją zliczeń w obrębie środkowego pików, a tym samym niższą wartością $g_{\text{raw}}^{(2)}$ wyznaczoną jako stosunek całkowitej liczby zliczeń w obrębie środkowego pików do średniej liczby zliczeń dla 8 pików przy $\tau \neq 0$. Ponieważ w funkcji dopasowującej z równania (4.5) nie ma bezpośrednio parametru $g_{\text{PS}}^{(2)}$, jego wartość została określona na podstawie minimum, jakie osiąga dopasowanie dla $\tau = 0$.

4.2.3 Widoczność interferencji dwufotonowej i koherencja emitera

Jak zostało potwierdzone w poprzednim podrozdziale, badane źródło emituje pojedyncze fotony ($g^{(2)}(0) < 0,5$), zatem można zbadać je pod kątem emisji nierozróżnialnych fotonów oraz koherencji rekombinujących nośników. Podobnie jak w przypadku pomiaru funkcji $g^{(2)}(\tau)$, pomiary interferencji dwufotonowej przeprowadzono dla dwóch mocy wzbudzenia światłem lasera o długości fali emisji 1489 nm i częstotliwości repetycji 76 MHz.

Moc wzbudzenia $P = P_{\text{sat}}$

Histogram zmierzony dla mocy wzbudzenia $P = P_{\text{sat}} = 1$ mW pokazano w zakresie opóźnień od -100 do 100 ns na rys. 4.13(a). Zaobserwować można brak grupowania charakterystycznego dla migotania stanu, natomiast poziom tła jest zdecydowanie wyższy w porównaniu do pomiarów funkcji $g^{(2)}(\tau)$, co jest spowodowane dużo słabszym stosunkiem sygnału do szumu ze względu na wyjaśnioną wyżej konieczność dwukrotnego sprzęgania sygnału do światłowodu. Na tym panelu pokazano histogram zmierzony dla fotonów spolaryzowanych jednakowo. Częstą metodą określenia stopnia nierozróżnialności jest porównanie liczby zli-



Rysunek 4.13: Histogram interferencji dwufotonowej dla mocy wzbudzenia $P = P_{\text{sat}}$ — próbka MOVPE. (a) Znormalizowany histogram koincydencji dla fotonów spolaryzowanych jednakowo dla opóźnień między zliczeniami na detektorach w zakresie od -100 do 100 ns. Brak widocznego grupowania fotonów. (b) Ten sam histogram koincydencji dla węższego zakresu opóźnień od $-6,5$ do $6,5$ ns. (c) Histogram koincydencji dla fotonów spolaryzowanych ortogonalnie (całkowicie rozróżnialnych) w zakresie opóźnień od $-6,5$ do $6,5$ ns. Zmierzone dane są przedstawione jako czarne otwarte kółka. Wynik dopasowania danych funkcją z równania (4.2) wyrysowano niebieską linią ciągłą.

czeń w obrębie środkowego pików dla fotonów spolaryzowanych jednakowo ($\parallel$) z przypadkiem fotonów spolaryzowanych ortogonalnie ($\perp$), zgodnie ze wzorem (4.3). Dla próbki MBE podjęto próbę zasymulowania przypadku fotonów całkowicie rozróżnialnych, natomiast tutaj zmieniono ustawienia optyki polaryzacyjnej, by w interferometrze HOM na dzielniku wiązki spotkały się fotony o ortogonalnych polaryzacjach. Na rys. 4.13(b) oraz 4.13(c) przedstawiono środkowy pik histogramu wraz z dopasowaniem, odpowiednio, dla fotonów spolaryzowanych jednakowo i ortogonalnie. Przedstawiono histogramy ze zredukowanym tłem, gdyż mimo takich samych warunków przeprowadzania pomiaru, jego długi czas (po 24 h dla każdego z histogramów) spowodował, że poziom tła różnił się między histogramami, co utrudniło bezpośrednie porównanie. Redukcja tła polegała na początkowym dopasowaniu histogramu przed normalizacją, a następnie, na podstawie parametrów dopasowania, odjęto od całości wartość B i unormowano histogram do 1 dla $\tau \rightarrow \infty$.

W przypadku fotonów spolaryzowanych ortogonalnie w histogramie HOM wysokość środkowego pików powinna stanowić połowę wysokości pików przy $|\tau| > \tau_0$, natomiast na rys. 4.13 widać minimum charakterystyczne dla fotonów nierozróżnialnych, dlatego optymalne było dopasowanie obu histogramów funkcją z równania 4.13. Na etapie testowania układu pomia-

Tabela 4.5: Parametry dopasowania histogramów HOM dla dwóch polaryzacji względnych przy mocy wzbudzenia $P = P_{\text{sat}}$ — próbka MOVPE

$P = P_{\text{sat}}$	$\parallel$		$\perp$	
Parametr	Wartość	Niepewność	Wartość	Niepewność
B	0,303	0,014	0,209	0,014
n	8	—	8	—
τ_0 [ns]	13,11	—	13,11	—
τ_1 [ns]	2,73	0,11	2,717	0,012
τ_2 [ps]	389	94	610	220
A	0,627	0,026	0,636	0,029
V_{PS} [%]	72,8	9,6	43,0	5,8
V_{fit} [%]	2,4	0,4	—	—
V [%]	3,6	0,4	—	—
V_{raw} [%]	2,2	0,3	—	—

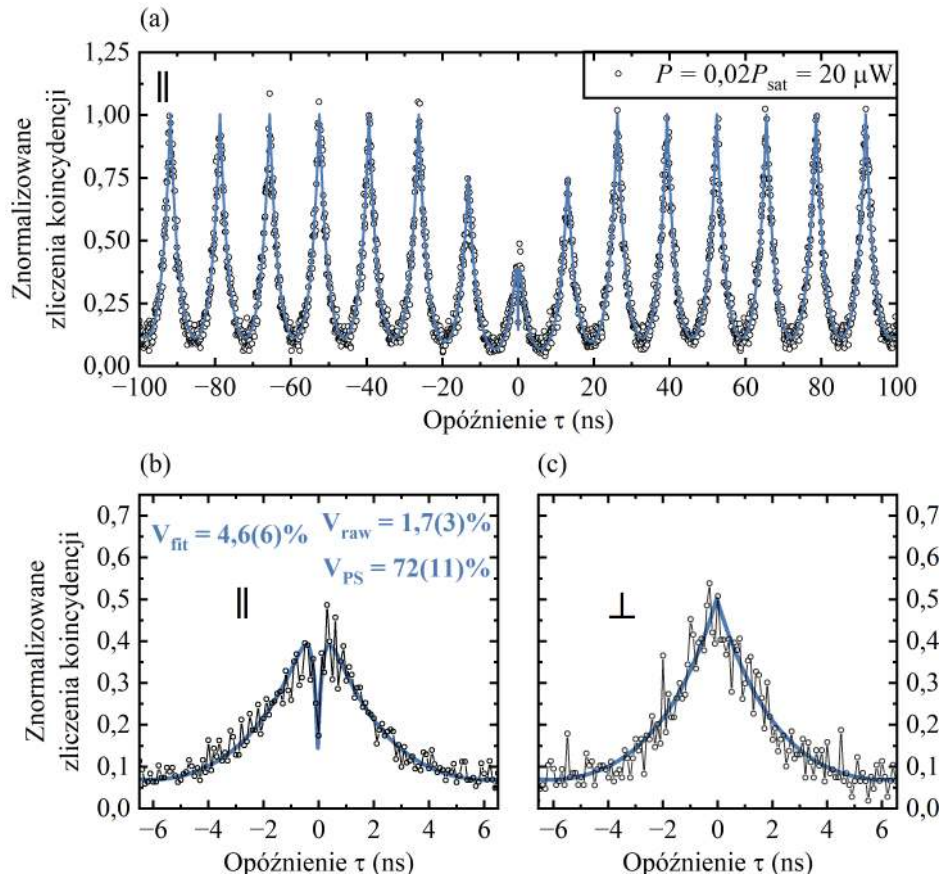
rowego sprawdzono stabilność polaryzacyjną w ramionach interferometru HOM i stwierdzono, że w skali czasowej nawet tak długiej jak doba ustawiona polaryzacja pozostaje niezmienna. Na podstawie otrzymanych wyników widać, że w trakcie pomiaru musiały występować pewne fluktuacje w układzie pomiarowym, skutkujące interferencją fotonów spolaryzowanych jednakowo. Prowadzi to również do wniosku, że w przypadku fotonów nominalnie spolaryzowanych jednakowo można by się spodziewać mniejszej liczby zliczeń w środkowym pikcie, gdyby wyeliminować źródło niestabilności polaryzacyjnej. Parametry dopasowania przedstawiono w tabeli 4.5.

Podczas trwania obu pomiarów warunki przeprowadzania eksperymentu nie zostały celowo zmienione (poza polaryzacją fotonów w interferometrze HOM), jednak wyznaczony z dopasowania poziom tła różni się pomiędzy histogramami dla różnych orientacji względnej polaryzacji fotonów. Może to być spowodowane zmianą jakości sprzęgania, a tym samym zmianą stosunku sygnału do szumu w trakcie trwania długotrwałych pomiarów. W tym i kolejnym przypadku przyjęto dobrze już określony czas separacji impulsów $\tau_0 = 13,11$ ns oraz założono jednakowy czas życia stanu wzbudzonego, gdyż warunki wzbudzenia nie uległy zmianie. Ponownie wartość czasu życia jest większa niż w przypadku pomiaru funkcji $g^{(2)}(\tau)$. Wyznaczone wartości czasów koherencji τ_2 dla obu histogramów są zbliżone, a drobna różnica wynika z jakości dopasowania, ograniczonej rozdzielczością czasową układu i niską statystyką koincydencji.

W tabeli 4.5 widać cztery różne wartości widoczności HOM. Wartość V_{PS} wyznaczona jest bezpośrednio z funkcji dopasowania. Z kolei wartości V_{fit} i V_{raw} są wynikiem porównania środkowych pików zgodnie z równaniem (4.3), przy czym pierwsza z nich pochodzi z porównania pików dopasowania, a druga — surowych danych (wszystkich zarejestrowanych koincydencji w obrębie środkowych pików). Wartość V jest wyznaczona na tej samej zasadzie co dla próbki MBE — porównania dopasowania do danych dla fotonów spolaryzowanych jednakowo z symulacją fotonów całkowicie rozróżnialnych, w celu bezpośredniego porównania wyników między próbkami. Standardowo najbardziej miarodajną wartością z nich byłaby

wartość $V_{\text{raw}} = 2,2(3)$. Jest to prawda, gdy statystyka zliczeń jest wystarczająco wysoka, a warunki pomiarów dla obu histogramów są stabilne. Niestety, z powodu dużo wyższego poziomu tła dla pomiaru interferencji fotonów spolaryzowanych jednakowo, przy standardowym określeniu wartości widoczności otrzymuje się wynik ujemny, co nie jest fizycznie możliwe. Wartość V_{raw} otrzymano zatem po odjęciu odpowiedniego poziomu tła od każdego z histogramów. Podobnie postąpiono w przypadku wyznaczenia $V_{\text{fit}} = 2,4(4)$.

Moc wzbudzenia $P = 0,02P_{\text{sat}}$



Rysunek 4.14: Histogram interferencji dwufotonowej dla mocy wzbudzenia $P = 0,02P_{\text{sat}}$ — próbka MOVPE. (a) Znormalizowany histogram koincydencji dla fotonów spolaryzowanych jednakowo dla opóźnień między zliczeniami na detektorach w zakresie od -50 do 450 ns. Brak widocznego grupowania fotonów. (b) Ten sam histogram koincydencji dla węższego zakresu opóźnień od $-6,5$ do $6,5$ ns. (c) Histogram koincydencji dla fotonów spolaryzowanych ortogonalnie (całkowicie rozróżnialnych) w zakresie opóźnień od $-6,5$ do $6,5$ ns. Zmierzone dane są przedstawione jako czarne otwarte kółka. Wyniki dopasowania danych funkcjami z równań (4.2) i (4.6) wyrysowano za pomocą niebieskiej linii ciągłej.

Na rys. 4.14(a) przedstawiono znormalizowany histogram dla fotonów spolaryzowanych jednakowo przy wzbudzaniu próbki mocą $P = 0,02P_{\text{sat}} = 0,02 \text{ mW}$, wraz z dopasowaniem funkcją z równania (4.2) dla zakresu opóźnień τ od -100 do 100 ns. Ponownie nie jest obserwowane grupowanie związane z migotaniem stanu kwantowego. Obserwowane tło jest znacznie zredukowane w porównaniu z histogramem otrzymanym dla wyższej mocy wzbudzenia. Panele (b) oraz (c) tego samego rysunku przedstawiają zbliżenie na środkowy pik, odpowiednio w przypadku fotonów spolaryzowanych jednakowo i ortogonalnie. Dla tej mocy

wzbudzenia w przypadku fotonów spolaryzowanych ortogonalnie nie obserwuje się minimum w środkowym pikie, dlatego też histogram ten został dopasowany funkcją nie zawierającą czasu τ_2 :

$$C_{\perp}(\tau) = B + \left[A_{\perp} \cdot e^{-|\tau|/\tau_1} + \frac{3}{4} \left(e^{-|\tau-\tau_0|/\tau_1} + e^{-|\tau+\tau_0|/\tau_1} \right) + \sum_{n \neq -1,0,1} e^{-|\tau-n\tau_0|/\tau_1} \right] \cdot \left(1 + m \cdot e^{-|\tau|/\tau_{\text{mig}}} \right), \quad (4.6)$$

gdzie $A_{\perp}$ jest intensywnością środkowego pikie w przypadku fotonów spolaryzowanych ortogonalnie. W tabeli 4.6 zebrano parametry dopasowania histogramów odpowiednimi funkcjami.

Wartość efektywnego czasu zaniku $\tau_1 = 2,278(18)$ ns wyznaczona z dopasowania zmalała przy przejściu do niższej mocy wzbudzenia, co jest analogiczne do poprzedniego przypadku i zostało potwierdzone pomiarami fotoluminescencji rozdzielczej czasowo (rys. 4.5). Ponownie widać rozbieżność w wyznaczonych czasach τ_2 , co przypisuje się ograniczonej rozdzielczości czasowej pomiaru oraz dokładności dopasowania. W tym przypadku pomiędzy pomiarami nie było żadnej zmiany, poza mocą wzbudzenia, zatem zgranie dystansów w interferometrze HOM oraz interferometrze Macha-Zehndera było jednakowe jak w przypadku pomiaru dla wyższej mocy wzbudzenia. W tabeli nie podano wartości V , gdyż zmierzony histogram interferencji dla fotonów spolaryzowanych ortogonalnie bardzo dobrze oddaje przypadek fotonów całkowicie rozróżnialnych, więc $V \approx V_{\text{fit}} = 5,6(6)\%$.

Tabela 4.6: Parametry dopasowania histogramów HOM dla dwóch polaryzacji względnych przy mocy wzbudzenia $P = 0,02P_{\text{sat}}$ — próbka MOVPE

$P = 0,02P_{\text{sat}}$	$\parallel$		$\perp$	
Parametr	Wartość	Niepewność	Wartość	Niepewność
B	0	0,0033	0	0,0012
n	8	—	8	—
τ_0 [ns]	13,11	—	13,11	—
τ_1 [ns]	2,278	0,018	2,278	0,018
τ_2 [ps]	186	50	—	—
A	0,502	0,014	0,497	0,013
V_{PS} [%]	72	11	—	—
$V_{\text{fit}}(\approx V)$ [%]	5,6	0,6	—	—
V_{raw} [%]	1,7	0,3	—	—

Podsumowanie wyników korelacji pojedynczych fotonów na próbce MOVPE

Pomiary funkcji $g^{(2)}(\tau)$ oraz interferencji dwufotonowej na próbce MOVPE przeprowadzono dla dwóch mocy wzbudzenia: mocy odpowiadającej nasyceniu intensywności emisji ($P = P_{\text{sat}} = 1$ mW) oraz mocy 50 razy niższej ($P = 0,02P_{\text{sat}} = 0,02$ mW). W każdym z przypadków do wzbudzenia użyto impulsów laserowych oddalonych o 13,1 ns. Długość

fali lasera wzbudzającego wynosiła 1489 nm, co odpowiada różnicy między energią emisji a energią wzbudzenia $\Delta E = 29$ meV. Pomiary funkcji autokorelacji II rzędu potwierdziły emisję pojedynczych fotonów. Wartość $g_{\text{PS}}^{(2)}(0) = 0,0055$ wyznaczona z dopasowania jest jednakowa w przypadku obu mocy wzbudzenia, natomiast wartość $g_{\text{raw}}^{(2)}(0)$ zmalała z 0,220(60) do 0,150(12) przy przejściu do niższej mocy wzbudzenia. To zachowanie jest spowodowane ponownym wychwytywaniem nośników w czasie między kolejnymi impulsami wzbudzającymi. Dla nieskończonego krótkich odstępów czasowych wartość $g^{(2)}(0)$ się nie zmieniła, natomiast większa liczba nadmiarowych nośników w przypadku wzbudzenia mocą P_{sat} wzmacnia efekt wychwytywania nośników przez kropkę pomiędzy impulsami wzbudzającymi, co zwiększa liczbę koincydencji w obrębie środkowego piku, mimo, że charakterystyczny czas narostu związany z wychwytem nośników nie zmienił się ($\tau_{\text{cap}} = 1,052(97)$ ns dla mocy $P = P_{\text{sat}}$ w porównaniu z $\tau_{\text{cap}} = 1,10(30)$ ns dla mocy $P = 0,02P_{\text{sat}}$).

Pomiary interferencji dwufotonowej dla obu mocy wzbudzenia przeprowadzono zarówno dla fotonów spolaryzowanych jednakowo, jak i ortogonalnie, w celu doprowadzenia do całkowitej rozróżnialności fotonów. Niestety, w przypadku wyższej mocy widoczne jest charakterystyczne minimum w środkowym pikie dla obu histogramów, sugerujące, że nawet dla nominalnie ortogonalnie spolaryzowanych fotonów wciąż występuje pewien stopień nierozróżnialności. Świadczy to o niedokładnym ustawieniu polaryzacji w interferometrze HOM lub o jej ograniczonej stabilności. Pierwsza przyczyna wydaje się bardziej uzasadniona, gdyż nie wystąpiło to w pomiarze dla niższej mocy wzbudzenia.

Różnice wynikające z wyznaczonych czasów zaniku τ_1 zostały wyjaśnione w poprzednich sekcjach tego rozdziału. Ponownie, rozrzut czasów τ_2 można wytłumaczyć ograniczoną rozdzielczością czasową pomiaru oraz względnie niską statystyką koincydencji. Można zauważyć, że dla histogramów otrzymanych przy niższej mocy wzbudzenia dane są mniej zaszumione, co jest odzwierciedlone w mniejszej niepewności wyznaczenia tego parametru. Moc wzbudzenia może wpłynąć na czas koherencji na kilka sposobów. Z jednej strony większa moc oznacza większą liczbę nadmiarowych nośników w otoczeniu kropki, co prowadzi do silniejszego rozpraszania nośników na nośnikach, zwiększając czyste defazowanie i efektywnie skracając czas T_2 . Z drugiej strony, w pewnym reżimie mocy, przy przejściu od niższej do wyższej mocy wzbudzenia, pułapki ładunkowe zostają wypełnione, co powoduje stabilizację otoczenia ładunkowego i zmniejsza efekt rozmycia widmowego. Nie jest to bezpośrednio powiązane z czasem T_2 , ale wpłynęłoby dodatnio na obserwowany stopień nierozróżnialności pojedynczych fotonów. Ponadto w pomiarach funkcji $g^{(2)}(\tau)$ pokazano, że wzrost mocy wzbudzenia spowodował wzmocnienie efektu wychwytywania nośników w czasie poprzedzającym nadejście kolejnego impulsu laserowego. Wzrost czasu τ_2 z jednoczesnym zachowaniem porównywalnych wartości widoczności przy przejściu do wyższej mocy wzbudzenia nie ma wyjaśnienia fizycznego, zatem został przypisany wyłącznie artefaktowi dopasowania.

Jak już wspomniano, wyznaczone wartości V_{PS} są zbliżone dla obu mocy wzbudzenia, natomiast poziom tła w przypadku wyższej mocy był zdecydowanie wyższy, ponadto znacząco różny dla różnych polaryzacji względnych fotonów, co nie pozwoliło na wyznaczenie wartości V_{raw} zgodnej z definicją. Podobnie, dla wartości V_{fit} porównano piki wynikające z dopasowania histogramów po odjęciu odpowiednich poziomów tła. Z tego powodu rozsądne jest porównanie wartości V dla obu mocy wzbudzenia. Obserwowany jest jedynie nieznaczny wzrost wartości widoczności przy niższej mocy wzbudzenia. Oznacza to, że można zwiększać moc wzbudzenia do poziomu nasycenia bez istotnego pogorszenia stopnia nierozróżnialności, uzyskując tym samym możliwie wysoką częstość emisji nierozróżnialnych fotonów. Jednocześnie przy niższych mocach obserwowano korzystniejszy stosunek sygnału do szumu, wynikający z niższego poziomu tła. Skuteczniejsze filtrowanie emisji badanej linii mogłoby zatem umożli-

liwić zastosowanie wysokiej mocy, a tym samym zwiększenie częstości emisji fotonów, bez istotnego pogorszenia jakości sygnału. Dla przebadanej w powyższym eksperymencie kropki kwantowej przeprowadzono również pomiar efektu Hanlego prowadzący do wyznaczenia czasu defazowania spinu elektronu, a wyniki zostały umieszczone w rozdziale 5.

4.3 Podsumowanie i porównanie wyników dla obu struktur

Wstępne pomiary optyczne umożliwiły wybór odpowiednich kandydatów do pomiarów korelacji pojedynczych fotonów. Wyznaczono podstawowe właściwości badanych linii emisyjnych w obu próbkach. Zidentyfikowano kompleksy ekscytonowe poprzez pomiary fotoluminescencji rozdzielczej polaryzacyjnie oraz w funkcji mocy wzbudzenia; a także określono optymalną energię wzbudzenia kwazirezonansowego (w wyższe stany wzbudzone w danej kropce kwantowej). W celu porównania zjawisk koherencji w badanych próbkach starano się odtworzyć jednakowe warunki pomiaru korelacji pojedynczych fotonów dla każdej z nich. Bezpośrednio zatem można porównać wyniki uzyskane przy wzbudzaniu impulsami o mocy odpowiadającej $P = P_{\text{sat}}$ i czasowej separacji równej $\tau_0 = 13,1$ ns. Najważniejsze wielkości wyznaczone z opisanych badań dla obu próbek zostały zebrane w tabeli 4.7.

Badane kompleksy ekscytonowe w obu próbkach charakteryzują się emisją w zakresie III okna telekomunikacyjnego, a dokładniej w obrębie pasma C (1530–1565 nm) kluczowego do zastosowań w komunikacji kwantowej. Na podstawie pomiarów optycznych zidentyfikowano, że badana linia emisyjna z próbki MBE pochodzi z rekombinacji biekscytonu, natomiast linia z próbki MOVPE — z rekombinacji trionu.

Tabela 4.7: Najważniejsze parametry wyznaczone dla badanych linii emisyjnych z obu próbek przy wzbudzaniu mocą $P = P_{\text{sat}}$ (oraz $P = 0,02P_{\text{sat}}$ dla próbki MOVPE)

próbka	MBE		MOVPE	
kompleks ekscytonowy	biekscyton		trion	
długość fali emisji [nm]	1532,5		1542,7	
szerokość spektralna linii [μeV]	62		59	
ΔE [meV]	32,5		29	
parametr	Wartość	Niepewność	Wartość	Niepewność
T_1 [ns]	1,359	0,011	2,73 (2,278)	0,11 (0,018)
T_2 [ps]	108	25	389 (186)	94 (50)
T_φ [ps]	112	28	420 (194)	110 (55)
$T_2/2T_1$	0,040	0,010	0,071 (0,041)	0,018 (0,011)
$g_{\text{PS}}^{(2)}(0)$	0,0091	0,0088	0,0055	0,0088
$g_{\text{raw}}^{(2)}(0)$	0,076	0,006	0,22	0,06
V_{PS} [%]	55,6	6,5	72,8	9,6
V [%]	9,4	0,4	3,6	0,4
M_s [%]	18,4	0,9	33	11

Nominalny skład badanych kropek kwantowych jest taki sam. Oznacza to, że podczas wzrostu warstwy kropek osadzono atomy In i As. Natomiast wzrost warstwy półprzewodnika InP bezpośrednio przed i po wzroście warstwy kropek kwantowych powoduje nieintencjonalną wymianę atomów As i P. Powoduje to, że w rzeczywistości kropki kwantowe zawierają również fosfor. Dokładna zawartość pierwiastków As i P nie jest znana w przypadku obu próbek, natomiast na podstawie zbliżonej energii emisji oraz energii stanów wyższych można wnioskować, że zarówno ich rozmiar, jak i skład, są porównywalne. Różnica energii między energią wzbudzenia a emisji $\Delta E \approx 30$ meV jest daleka zarówno od energii podłużnego fononu optycznego (LO) w materiale bariery InP (42,2 meV),¹⁰⁹ jak i od odstępów energetycznych między powłokami s i p (ang. *s-p splitting*), odpowiadającego różnicy energii między stanem podstawowym a stanem wzbudzonym kompleksu ekscytonowego (w którym elektron i dziura są w pierwszym stanie wzbudzonym). Energia ta wynosi $\Delta E_{s-p} \approx 20$ meV i została wyznaczona na podstawie obliczeń teoretycznych dla tych struktur w ramach innych badań.^{110,111} Nośniki były wzbudzane do wyższych stanów w kropce, niebędących pierwszym stanem wzbudzonym, co udowadnia pomiar PLE w szerokim zakresie energii wzbudzenia. Dla energii $\Delta E \approx 20$ meV wciąż widoczne są rezonanse świadczące o efektywnej absorpcji fotonów. Relaksacja wzbudzonego nośnika do stanu, z którego zachodzi emisja, może wymagać udziału wielu fononów. W tym procesie mogą uczestniczyć zarówno fonony optyczne, jak i akustyczne, przy czym te drugie mogą być emitowane lub absorbowane, jak przedstawiono w ref. [79].

Czas życia trionu w próbce MOVPE jest dwukrotnie dłuższy niż czas życia biekscytonu w próbce MBE. Jest to zgodne z obserwowaną w literaturze dynamiką rekombinacji kompleksów ekscytonowych, w której biekscyton zazwyczaj charakteryzuje się krótszym czasem życia niż ekscyton i trion ze względu na dwukrotnie większą liczbę możliwych kanałów rekombinacji promienistej. W obu przypadkach jednak poszerzenie linii emisyjnej jest znacznie większe niż wynikałoby jedynie z czasu życia (limitu transformaty Fouriera). Oznacza to, że obecne są inne mechanizmy wpływające na szerokość linii, takie jak czyste defazowanie (związane z czasem T_φ) oraz poszerzenie niejednorodne.

Dla próbki MOVPE podano po dwa czasy T_1 , T_2 oraz T_φ , z których pierwszy odpowiada czasom wyznaczonym z histogramu HOM przy wzbudzaniu mocą $P = P_{\text{sat}}$, a drugi, podany w nawiasie, odpowiada mocy wzbudzenia $P = 0,02P_{\text{sat}}$. Jest to uargumentowane tym, że w przypadku tego pierwszego jakość dopasowania funkcji do histogramu jest niska ze względu na duży szum w danych pomiarowych. Porównując zmierzone dane z dopasowaniem można stwierdzić, że wyznaczony czas τ_2 jest zawyżony. Czasy podane dla niższej mocy mają służyć jako dolna granica dla wyznaczonych wielkości. Podjęto próbę wyznaczenia charakterystycznego czasu defazowania T_φ na podstawie otrzymanych czasów T_1 i T_2 , zgodnie ze wzorem (2.8). Należy jednak mieć na uwadze, że wyznaczone wartości czasów T_1 oraz T_2 są obarczone dużą niepewnością. Czasy τ_1 wyznaczone z histogramów są efektywnymi czasami zaników, które nie są monowykładnicze. Wskazują zatem jedynie na przybliżoną wartość czasu życia T_1 . Z kolei czas τ_2 jest bliski rozdzielczości czasowej układu, a ponadto silnie zależy od jakości dopasowania danych odpowiednimi funkcjami. Co więcej, w pomiarze interferencji dwufotonowej wyznaczony czas jest jedynie efektywnym czasem T_2 , który oprócz właściwości wewnętrznych emitera zależy również od czasowego rozrzutu procesów emisji, co powoduje poszerzenie minimum w środkowym piku i zawyżanie wyznaczanego czasu. Podobny efekt występuje, gdy czasowe zgranie impulsów w interferometrach nie jest idealne. W pomiarze funkcji $g^{(2)}(\tau)$ dla próbki MOVPE zaobserwowano również efekt wychwytywania nośników pomiędzy impulsami, co wpłynęło na kształt środkowego piku w histogramie $g^{(2)}(\tau)$, ale mogło również wpłynąć na kształt histogramu HOM, co nie zostało uwzględnione w modelu dopasowania.

Wyznaczono czas $T_\varphi = 112(28)$ ps dla biekscytonu z próbki MBE oraz $T_\varphi = 450(110)$ ps

dla trionu z próbki MOVPE. Dla trionu, przy niższej mocy wzbudzenia, uzyskano również wartość $T_\varphi = 194(55)$ ps. Ponieważ czas defazowania nie powinien zależeć od mocy wzbudzenia, wynik ten stanowi dodatkowe oszacowanie T_φ . Niezależnie od wybranej wartości, czas defazowania trionu jest wyraźnie dłuższy niż czas wyznaczony dla biekscytonu. Różnica ta może być związana zarówno z odmiennymi właściwościami próbek MBE i MOVPE, jak i z odmiennym charakterem badanych kompleksów. Biekscyton, jako układ czterech nośników, obejmuje większą liczbę stopni swobody mogących uczestniczyć w sprzężeniu ze środowiskiem niż trion złożony z trzech nośników, co potencjalnie może prowadzić do silniejszego defazowania.

Stosunek $T_2/2T_1$ może w przybliżeniu informować o maksymalnej możliwej nierozróżnialności fotonów w przypadku występowania wyłącznie mechanizmów defazowania. Nie bierze to pod uwagę innych mechanizmów, takich jak dekoherencja niejednorodna spowodowana rozmyciem widmowym oraz ograniczenia układu pomiarowego. Daje to jednak pewną ocenę ilościową potencjału źródła. Im bliższa jest wartości 1, tym większej wartości nierozróżnialności można się spodziewać. W porównaniu z wartościami zestawionymi w tabeli 2.1 uzyskane tutaj czasy T_2 są porównywalne, natomiast czasy T_1 są nawet o ponad rząd wielkości dłuższe niż najlepsze wartości raportowane w literaturze. Warto przy tym zaznaczyć, że najkrótsze raportowane czasy T_1 uzyskano dla kropek sprzężonych z wnękami optycznymi, gdzie efekt Purcella prowadzi do skrócenia czasu życia.⁵² W niniejszej pracy wykorzystano kropki kwantowe, dla których nie zastosowano struktury fotonicznej powodującej efekt Purcella.

Pomiary funkcji $g^{(2)}(\tau)$ wykazały dwa różne mechanizmy wpływające negatywnie na emisję jednofotonową. W przypadku próbki MBE zaobserwowano grupowanie fotonów dla dużych skal czasowych rzędu dziesiątek ns, będące rezultatem niestabilności emisji źródła (migotania), czyli czasowych zmian między emisją a jej brakiem lub zmianami samej energii emisji, powodujące przesunięcie emisji poza spektralne okno detekcji. Z kolei dla próbki MOVPE zaobserwowano ponowne wychwytywanie nośników z pułapek ładunkowych w czasie pomiędzy kolejnymi impulsami lasera wzbudzającego. Widoczne było to w kształcie centralnego piku histogramu. Oba mechanizmy, choć ujawniają się w różny sposób, powodują wyższą wartość $g_{\text{raw}}^{(2)}(0)$ w porównaniu z zerową wartością dla idealnego źródła pojedynczych fotonów. Przyczyna tych mechanizmów może jednak być podobna, tj. obecność pułapek ładunkowych w otoczeniu kropki kwantowej. W pierwszym przypadku spowodowało to wychwyt nośników przez pułapki i w ten sposób wpłynęło na korelację czasową między emitowanymi fotonami (nie każdy impuls laserowy doprowadził do emisji z badanego źródła). W drugim przypadku pułapki ładunkowe stały się rezerwuarem nośników, które relaksowały do kropki kwantowej po rekombinacji nośników bezpośrednio zaabsorbowanych z impulsu laserowego. Dla mocy odpowiadającej mocy potrzebnej do nasycenia intensywności emisji uzyskano ponad dwukrotnie niższe prawdopodobieństwo emisji wielofotonowej dla linii emisyjnej pochodzącej z próbki MBE $g^{(2)}(0) = 0,076(6)$, w porównaniu z próbką MOVPE $g^{(2)}(0) = 0,22(6)$.

Wyznaczona wartość widoczności $V_{\text{PS}} = 72,8(96)\%$ dla próbki MOVPE jest o 1/3 wyższa niż dla próbki MBE, gdzie $V_{\text{PS}} = 55,6(65)\%$. Wartości te są wyznaczone bezpośrednio z dopasowania danych odpowiednią funkcją i pomijają wkład efektu migotania źródła czy obecność tła. Mogą więc informować o potencjale źródła przy wyeliminowaniu wymienionych efektów (oraz skróceniu czasu życia do wartości niższej niż charakterystyczne efekty defazowania). Natomiast wartość V uwzględnia te efekty oraz bierze pod uwagę zliczenia w obrębie całego środkowego piku. Widać, że sytuacja jest tu odwrócona — prawie trzykrotnie wyższa wartość obserwowana jest dla próbki MBE ($V = 9,4(4)\%$) względem próbki MOVPE ($V = 3,6(4)\%$).

Wiadomo, że niezerowe prawdopodobieństwo emisji wielofotonowej prowadzi do wzrostu obserwowanej widoczności HOM w interferencji dwufotonowej, dlatego wyznacza się często

również skorygowaną wartość stopnia nierozróżnialności M_s uwzględniającą niezerową wartość $g^{(2)}(0)$:¹¹²

$$M_s = \frac{V + g_{\text{raw}}^{(2)}(0)}{1 - g_{\text{raw}}^{(2)}(0)} \quad (4.7)$$

Wartości M_s wyznaczone dla badanych linii emisyjnych zostały dodane do tabeli 4.7. Ze względu na duże tło obserwowane w histogramie koincydencji HOM dla próbki MOVPE, wartość $M_s = 33(11)\%$ wzrosła niemal o rząd względem wartości V , podczas gdy dla próbki MBE wzrost jest dwukrotny ($M_s = 18,4(9)\%$). Na podstawie wyznaczonych wartości widocznych w tabeli 4.7 można by przypuszczać, że stopień nierozróżnialności dla próbki MOVPE wzrósłby znacząco w przypadku redukcji tła. Natomiast dla wyników przy niższej mocy $P = 0,02P_{\text{sat}}$, w której wyznaczone tło jest pomijalnie niskie, wartości widoczności są porównywalne z tymi otrzymanymi dla mocy $P = P_{\text{sat}}$. Na tej podstawie trudno jest bezpośrednio wyznaczyć, która struktura ma większy potencjał w zastosowaniu jako źródło nierozróżnialnych fotonów. Wyznaczone zostały natomiast ich ograniczenia i mechanizmy, które powodują wyższe prawdopodobieństwo emisji wielofotonowej oraz niższa widoczność interferencji dwufotonowej.

Istotne jest, że wyniki przedstawione w tym rozdziale uzyskano dla kropek kwantowych nieumieszczonych we wnętrzu optycznej, a nośniki nie były wzbudzane bezpośrednio do stanu, z którego następowała emisja, co podkreśliło właściwości samego emitera kwantowego. Zaprezentowane w podrozdziale 2.2 wyniki interferencji dwufotonowej uzyskane do tej pory dla kropek emitujących w zakresie podczerwieni telekomunikacyjnej dają zdecydowanie wyższe wartości widoczności, co jest konsekwencją deterministycznego wytwarzania wnek optycznych, a także koherentnych, bardziej zaawansowanych sposobów wzbudzania nośników, w tym wzbudzania dwufotonowego do stanu bieksytonowego¹¹³ lub z udziałem fononów optycznych,⁵¹ dla których różnica między energią wzbudzania i emisji jest mniejsza niż kilka meV. Takie wzbudzanie nie jest praktyczne w realizacji ze względu na trudniejsze filtrowanie rozproszonego promieniowania laserowego. Często wtedy stosuje się filtrowanie polaryzacyjne. Jest to jednak utrudnione w zastosowaniach całkowicie światłowodowych, gdyż standardowe włókna krzemowe światłowodów cechują się dwójłomnością oraz brakiem stabilności polaryzacji fotonów propagujących w światłowodzie.^{114,115} Zatem dalsze udoskonalenia badanych w tej pracy źródeł można osiągnąć poprzez inżynierię otoczenia fotonicznego. W szczególności sprzężenie emitera z wneką rezonansową może zwiększyć wydajność zbierania emisji, a także szybkość spontanicznej emisji poprzez efekt Purcella. Wynikające z tego skrócenie czasu życia promieniowania może poprawić nierozróżnialność fotonów poprzez ograniczenie wpływu rozmycia widmowego i innych procesów dekoherencji, jeśli tylko ich charakterystyczna skala czasowa jest dłuższa w porównaniu z czasem życia danego stanu.

5. Koherencja pojedynczych spinów nośników

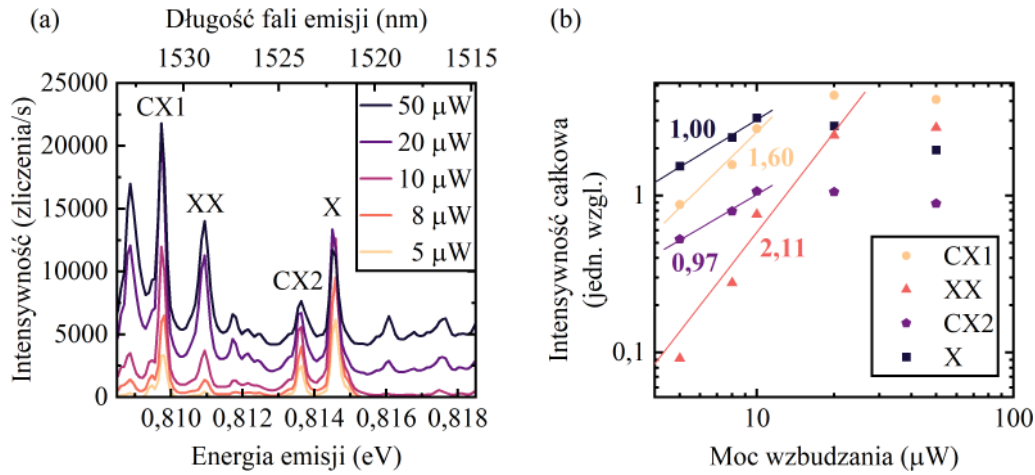
Wśród kubitów opartych na spinach nośników związanych w pojedynczych kropkach kwantowych najlepszym kandydatem jest spin nadmiarowego nośnika w trionie (elektronu w trionie ujemnym lub dziury w trionie dodatnim), gdyż jego czas koherencji nie zależy od czasu rekombinacji promienistej. Przed przystąpieniem do określenia charakterystycznych czasów koherencji spinowej w pomiarze efektu Hanlego, zidentyfikowano kompleksy ekscytonowe widoczne w widmie fotoluminescencji, aby w dalszych badaniach analizować linię emisyjną pochodzącą z rekombinacji trionu. W wyborze kierowano się również jej wysoką intensywnością, energią emisji bliską środkowi III okna telekomunikacyjnego (1550 nm), selektywnością wzbudzania oraz wysokim stopniem polaryzacji kołowej, świadczącym o efektywnej optycznej orientacji spinu pojedynczego nośnika. Wszystkie wstępne pomiary optyczne przeprowadzono w temperaturze około 5 K, natomiast, ze względu na zastosowanie dodatkowych elementów w kriostacie, w pomiarze efektu Hanlego minimalna uzyskana temperatura wynosiła 10–20 K, a jej dokładna wartość zależała od cyklu chłodzenia.

5.1 Kropki kwantowe InAs(P)/InP wzrastane metodą MBE

Pomiary optyczne służące selekcji odpowiednich linii emisyjnych zostały przeprowadzone na kilkunastu mezach, z których krzywe Hanlego zmierzono dla siedmiu przypadków. Dla dwóch z nich przeprowadzono serię pomiarów w funkcji temperatury, w tym dla jednej dodatkowo dla dwóch energii wzbudzania. Poniżej przedstawiono komplet wyników w ramach wstępnych pomiarów optycznych oraz wyniki pomiaru efektu Hanlego dla reprezentatywnej linii emisyjnej pochodzącej z rekombinacji trionu ujemnego.

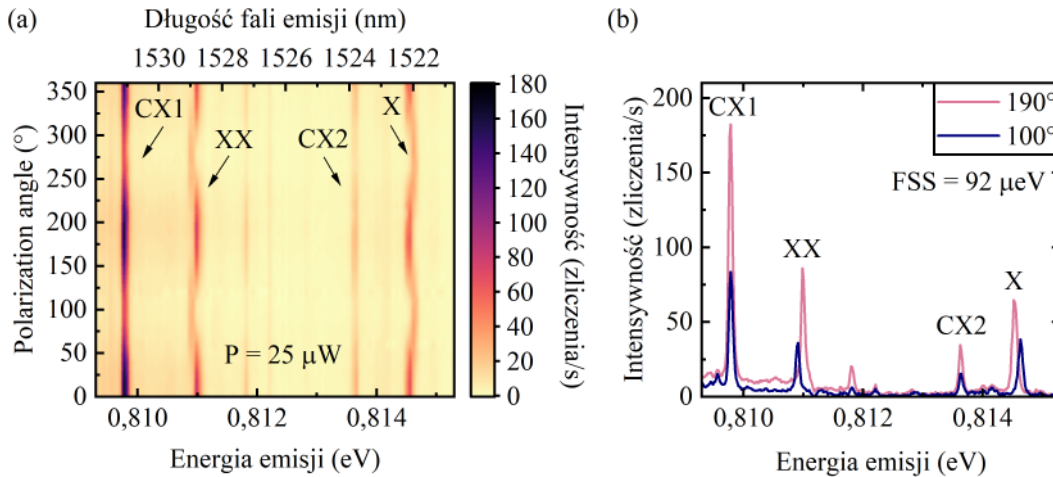
5.1.1 Wstępne pomiary optyczne

Jak opisano w podrozdziale 1, odpowiednie kompleksy ekscytonowe można zidentyfikować na podstawie pomiarów fotoluminescencji w funkcji mocy wzbudzania oraz rozdzielczej polaryzacyjnie w bazie polaryzacji liniowych. Na rys. 5.1(a) przedstawiono fragment widma fotoluminescencji dla kolejnych mocy wzbudzania nierezonansowego kropek kwantowych z badanej mezy. Intensywności linii emisyjnych oznaczonych jako CX1, XX, CX2 oraz X w funkcji mocy wzbudzania zostały wyrysowane na rys. 5.1(b) w podwójnej skali logarytmicznej. Na podstawie współczynników kierunkowych prostych można wstępnie wnioskować o typach kompleksów ekscytonowych dla każdej z linii emisyjnych. Kwadratowy wzrost intensywności dla linii oznaczonej jako XX sugeruje bieksytonowy charakter kompleksu ekscytonowego ($a_{XX} = 2,11$), podczas gdy liniowe i ponadliniowe zależności charakterystyczne są dla ekscytonów i trionów.

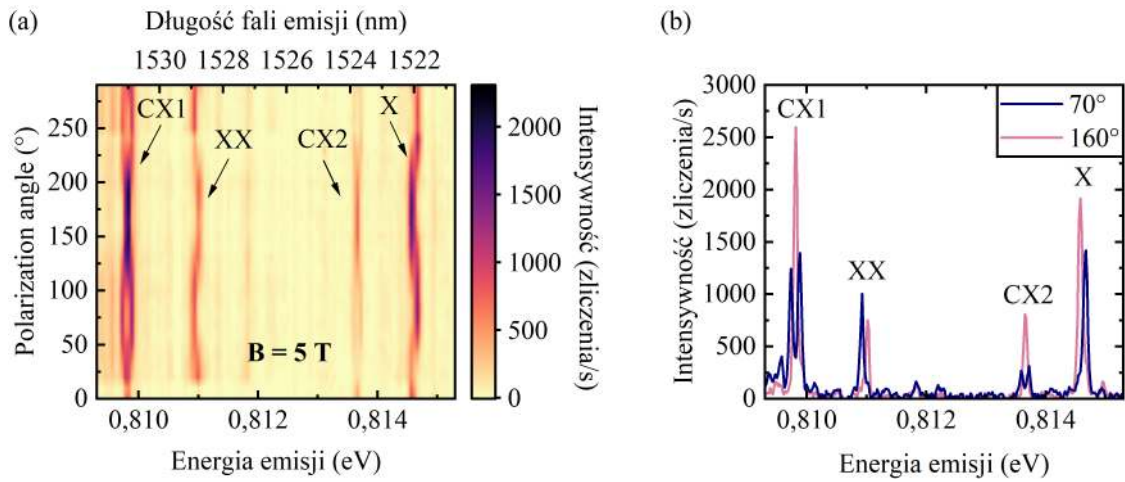


Rysunek 5.1: Emisja w funkcji mocy wzbudzenia nierezonansowego — próbka MBE. (a) Widma fotoluminescencji badanej kropki kwantowej dla kolejnych wartości mocy wzbudzenia. (b) Zależność intensywności całkowitej od mocy wzbudzenia dla badanych linii emisyjnych oznaczonych jako CX1, XX, CX2, X (punkty) wraz z dopasowaniami funkcją liniową (linie ciągłe). Rysunek zaadaptowano z ref. [81].

Aby odróżnić ekscytony neutralne od naładowanych, przeprowadzono pomiary fotoluminescencji rozdzielczej polaryzacyjnie, a wyniki przedstawiono na rys. 5.2. Na panelu (a) widoczna jest mapa fotoluminescencji dla kolejnych kierunków polaryzacji liniowej detektowanej emisji. Linie oznaczone jako XX i X przejawiają sinusoidalną zależność energii emisji od kąta detektowanej polaryzacji z rozszczepieniem struktury subtelnej wynoszącym $FSS = 92 \mu\text{eV}$, potwierdzając neutralny charakter kompleksów ekscytonowych. Co więcej, zależności ich energii emisji od polaryzacji mają przeciwne fazy, potwierdzając pochodzenie z jednej kropki kwantowej. Na podstawie serii z mocą oraz polaryzacją linia X została zidentyfikowana jako ekscyton, a linia XX — jako bieksyton o energii wiązania równej $\epsilon_{XX} = 3,6 \text{ meV}$.



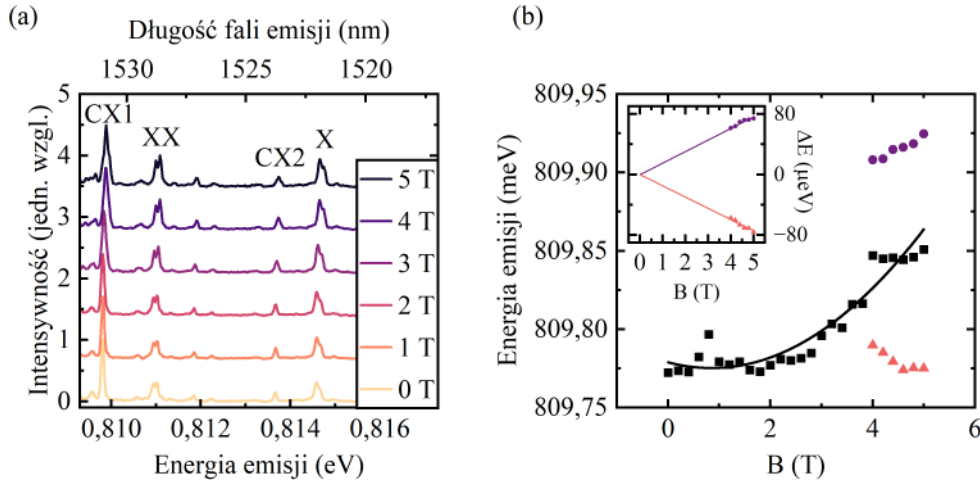
Rysunek 5.2: Widma fotoluminescencji rozdzielczej polaryzacyjnie przy wzbudzeniu nierezonansowym — próbka MBE. (a) Mapa fotoluminescencji rozdzielczej polaryzacyjnie (polaryzacja liniowa) zmierzona przy wzbudzeniu nierezonansowym w reżimie nasycenia badanych linii emisyjnych (oznaczonych jako CX1, XX, CX2, X). (b) Widma fotoluminescencji dla detektowanych ortogonalnych polaryzacji liniowych linii XX i X. Widoczne rozszczepienie struktury subtelnej $FSS = 92 \mu\text{eV}$. Rysunek zaadaptowano z ref. [81].



Rysunek 5.3: Widma fotoluminescencji rozdzielczej polaryzacyjnie w polu magnetycznym $B = 5$ T — próbka MBE. (a) Mapa fotoluminescencji rozdzielczej polaryzacyjnie (polaryzacja liniowa) zmierzona przy wzbudzeniu nierezonansowym w reżimie nasycenia badanych linii emisyjnych (oznaczonych jako CX1, XX, CX2, X) oraz w obecności zewnętrznego pola magnetycznego w konfiguracji Voigta o wartości $B = 5$ T. (b) Widma fotoluminescencji dla detektowanych ortogonalnych polaryzacji liniowych badanych linii. Widoczne rozszczepienie linii XX i X na dwie linie oraz linii CX1 i CX2 na trzy linie. Rysunek zaadaptowano z ref. [81].

Rys. 5.2(b) przedstawia widma fotoluminescencji z badanej kropki kwantowej dla dwóch detektowanych ortogonalnych polaryzacji liniowych. Dla takich warunków wzbudzenia linie emisyjne CX1, XX, CX2 i X charakteryzują się szerokościami odpowiednio: 79 μeV , 75 μeV , 73 μeV i 97 μeV (zmierzone dla jednej z polaryzacji liniowych). Linie oznaczone jako CX1 i CX2 nie mają widocznego rozszczepienia struktury subtelnej, co, łącznie z ich zależnościami intensywności od mocy, pozwala wnioskować, że linie te pochodzą z rekombinacji naładowanych kompleksów ekscytonowych. W celu ostatecznego potwierdzenia tego założenia przeprowadzono pomiary rozdzielcze polaryzacyjnie w zewnętrznym polu magnetycznym o indukcji magnetycznej równej $B = 5$ T, przyłożonym w konfiguracji Voigta (rys. 5.3).

Zgodnie z teorią przedstawioną w podrozdziale 1.2, w polu magnetycznym przyłożonym w konfiguracji Voigta stany jasne i ciemne mieszają się, co prowadzi do obserwacji przejść optycznych w widmie fotoluminescencji, które bez obecności pola magnetycznego nie są dozwolone optycznie. Dla trionu oznacza to cztery dozwolone przejścia optyczne o zniesionej degeneracji energetycznej i o polaryzacji liniowej, przy czym dwie środkowe linie spolaryzowane są ortogonalnie do dwóch linii zewnętrznych. W widmie fotoluminescencji spodziewa się zatem czterech linii emisyjnych pochodzących z rekombinacji każdego z dwóch stanów początkowych trionu do dwóch stanów końcowych, zgodnie z rys. 1.9. Na rys. 5.3(a) przedstawiono mapę fotoluminescencji rozdzielczej polaryzacyjnie (w bazie polaryzacji liniowych) w zewnętrznym polu magnetycznym o indukcji $B = 5$ T. Zachowanie linii X i XX jest analogiczne do przypadku serii z polaryzacją bez obecności zewnętrznego pola magnetycznego, co dodatkowo potwierdza neutralny charakter ekscytonów. W przypadku linii CX1 i CX2 widoczne jest rozszczepienie na 3 linie, przy czym środkowa linia jest spolaryzowana ortogonalnie do dwóch zewnętrznych. Takiego zachowania nie da się zaobserwować w przypadku linii pochodzących z rekombinacji neutralnych kompleksów. Dla trionów można zaobserwować tylko trzy linie emisyjne, gdy energie dwóch środkowych są sobie równe lub różnica między nimi jest mniejsza niż rozdzielczość spektralna układu pomiarowego. Przypuszczenie to jest wzmocnione faktem, że intensywność środkowej linii jest dwukrotnie wyższa niż in-



Rysunek 5.4: Fotoluminescencja w funkcji wartości indukcji zewnętrznego pola magnetycznego przyłożonego w konfiguracji Voigta — próbka MBE. (a) Widma fotoluminescencji przy wzbudzeniu nie-rezonansowym dla kolejnych wartości indukcji pola magnetycznego w zakresie 0–5 T co 1 T. (b) Wyznaczona zależność energii emisji dla trionu CX1 w funkcji wartości indukcji pola magnetycznego. Dla wartości $B > 4$ T możliwe jest wyodrębnienie trzech składowych trionu, dla których energie zostały wyrysowane punktami o różnych kolorach. Czarna linia ciągła jest dopasowaniem funkcją kwadratową do energii środkowego piksu. Wstawka: zależność względnej energii zewnętrznych pików w funkcji indukcji pola magnetycznego (fioletowe i pomarańczowe punkty) wraz z dopasowaniem funkcją liniową (fioletowe i pomarańczowe linie ciągłe). Rysunek zaadaptowany z ref. [81].

intensywność każdej z linii zewnętrznych. Brak rozszczepienia energetycznego środkowych linii jest możliwy, gdy bezwzględne wartości g -czynnika elektronu i dziury są sobie równe,²⁵ o czym więcej w dalszej części analizy wyników wstępnych pomiarów optycznych. Trion, którego linia oznaczona jest jako CX1, został wybrany do zbadania efektu Hanlego ze względu na wyższą intensywność w porównaniu do trionu CX2. Znaku trionu nie można określić na podstawie przedstawionych tutaj badań optycznych, jednak domieszkowanie próbki sugeruje występowanie trionów ujemnych.

Jak pokazano w podrozdziale 2.3, do wyznaczenia charakterystycznych czasów defazowania spinów nośników związanych w kropkach kwantowych na podstawie efektu Hanlego, potrzebna jest znajomość g -czynnika tych nośników. Ponieważ efekt Hanlego mierzony jest w zewnętrznym polu magnetycznym w konfiguracji Voigta, niezbędne są jedynie wartości g -czynnika w płaszczyźnie kropki kwantowej. Przeprowadzono pomiary fotoluminescencji w zewnętrznym polu magnetycznym w zakresie 0–5 T, co 0,2 T. Rys. 5.4(a) przedstawia widma fotoluminescencji dla kolejnych wartości indukcji pola magnetycznego, co 1 T, w celu zachowania przejrzystości. Dla linii X i XX widoczny jest wzrost wartości rozszczepienia energetycznego. Linia CX2 nieznacznie się poszerza wraz ze wzrostem indukcji pola magnetycznego, natomiast dla linii CX1 obserwowany jest początkowy wzrost poszerzenia linii, aż do $B > 4$ T, gdzie kształt linii sugeruje rozszczepienie na trzy linie o kształcie gaussowskim. Linia CX1 została dopasowana krzywą Gaussa dla wartości pola od 0 do 3,8 T, a następnie sumą trzech krzywych Gaussa w zakresie pól 4–5 T.

Wyznaczone energie emisji w funkcji wartości indukcji pola magnetycznego zostały wyrysowane na rys. 5.4(b). Przebieg energii emisji dla środkowej linii trionu dopasowano funkcją kwadratową, zgodnie ze wzorami (1.31) i (1.32). Następnie od energii emisji zewnętrznych linii została odjęta wyznaczona z dopasowania wartość energii w zerowym polu $E_T(0)$ oraz człon kwadratowy związany z przesunięciem diamagnetycznym. Otrzymane zależności

Tabela 5.1: Wyznaczone stałe diamagnetyczne oraz g -czynniki dla badanych kompleksów ekscytonowych — próbka MBE.

Kompleks ekscytonowy	γ [$\mu\text{eV}/T^2$]	g -czynniki
CX1	5,14	0,519
XX	4,73	0,026
CX2	5,06	0,422
X	5,60	0,067

względnych energii emisji od wartości indukcji pola magnetycznego dla zewnętrznych linii zostały przedstawione we wstawce rys. 5.4(b). W konsekwencji pozostał tylko liniowy człon $E_T(B)$ pochodzący od rozszczepienia Zeemana, na podstawie którego można wyznaczyć wartości g -czynnika nośników. Dane dopasowano funkcjami liniowymi, otrzymując wartości współczynników kierunkowych prostych, które po uśrednieniu ich wartości bezwzględnych dały $a = 15,0 \mu\text{eV}/T$. Wartość ta odpowiada współczynnikom liniowej zależności w jednym ze wzorów (1.31) i (1.32), z kolei dla drugiego z nich $a \approx 0 \mu\text{eV}/T$, gdyż brak jest widocznego rozszczepienia środkowych linii. Zatem:

$$\begin{aligned}
|0,5(g_e + g_h)\mu_B| = 0 \quad \wedge \quad |0,5(g_e - g_h)\mu_B| = 15 \\
\vee \\
|0,5(g_e + g_h)\mu_B| = 15 \quad \wedge \quad |0,5(g_e - g_h)\mu_B| = 0
\end{aligned} \tag{5.1}$$

gdzie μ_B jest magnetonem Bohra, a g_e i g_h oznaczają g -czynniki odpowiednio elektronu i dziury.

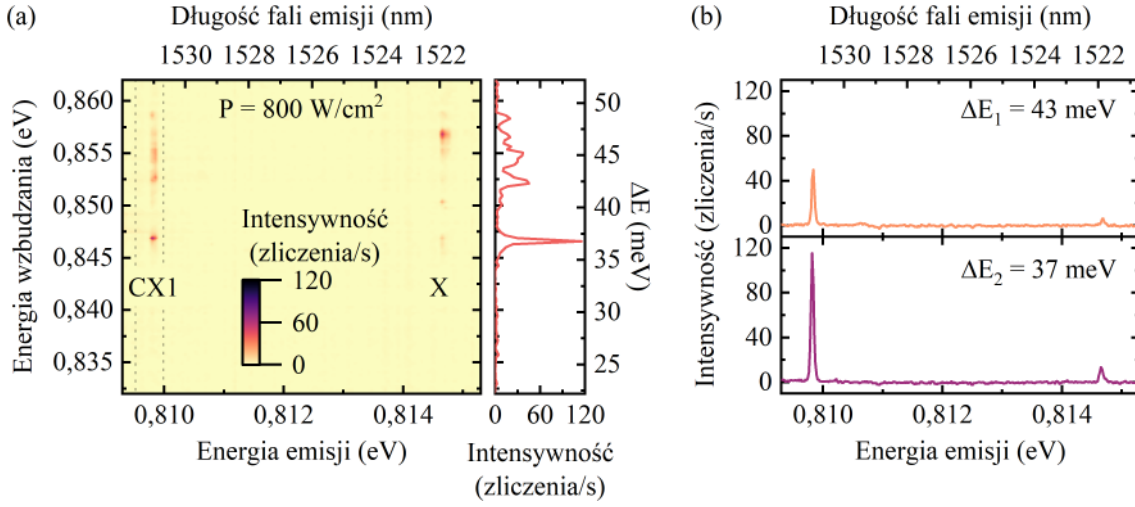
W standardowym przypadku, na podstawie przeprowadzonego pomiaru, bez znajomości zwrotu pola magnetycznego nie da się wyznaczyć dokładnej wartości g -czynnika dla każdego z nośników. W tym przypadku jednak, ze względu na brak widocznego rozszczepienia środkowych linii, widać z równania (5.1), że musi zajść warunek:

$$|g_e + g_h| = 0 \quad \vee \quad |g_e - g_h| = 0, \tag{5.2}$$

z czego wynika, że $|g_e| = |g_h| = a/(0,5\mu_B) = 0,26 \pm 0,11$. Niepewność wynika z niepewności liniowego dopasowania oraz rozdzielczości spektralnej układu. Mimo że nie jest możliwe wyznaczenie znaku żadnego z g -czynnika, nie jest to potrzebne do wyznaczenia czasu defazowania na podstawie pomiaru efektu Hanlego.

Dla komplementarności analizy danych wyznaczono stałe przesunięcia diamagnetycznego γ oraz g -czynniki dla wszystkich czterech kompleksów ekscytonowych z badanej kropki kwantowej. Wyniki zebrano w tabeli 5.1. Otrzymane wartości γ są niewielkie i, w granicach niepewności pomiarowych, porównywalne dla wszystkich kompleksów ekscytonowych. Wskazuje to na niewielki rozmiar przestrzenny funkcji falowych nośników w płaszczyźnie prostopadłej do kierunku pola magnetycznego²⁰ oraz na podobne ograniczenie przestrzenne ruchu nośników w badanych kompleksach. Uzyskane wartości stałych diamagnetycznych γ oraz g -czynnika są zgodne z przewidywaniami teoretycznymi dla podobnych kropek kwantowych InAs/InP¹¹⁶ oraz z wcześniejszymi wynikami eksperymentalnymi uzyskanymi dla nich.²⁵

Do obserwacji efektu Hanlego w kropkach kwantowych konieczne jest wzbudzenie no-

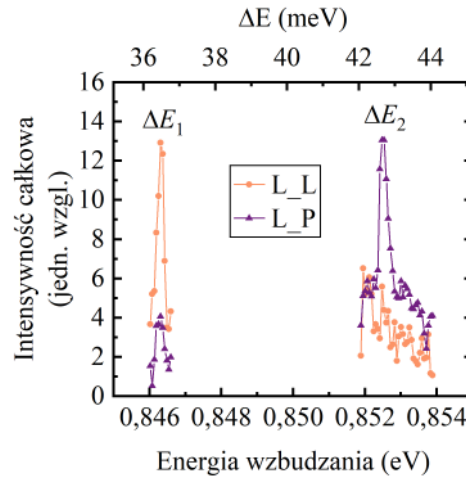


Rysunek 5.5: Fotoluminescencja wzbudzeniowa dla trionu CX1 — próbka MBE. (a) Mapa PLE dla badanej kropki kwantowej. Panel po prawej: intensywność w maksimum w funkcji różnicy energii między energią lasera wzbudzającego a energią emisji dla linii CX1. (b) Widma fotoluminescencji dla różnicy energii między wzbudzeniem a emisją o wartościach $\Delta E_1 = 43$ meV (górny panel) oraz $\Delta E_2 = 37$ meV (dolny panel). Rysunek zaadaptowany z ref. [81].

śników do wyższych stanów energetycznych w danej kropce kwantowej, dla których procesy relaksacji zachowują spin lub, jak wyjaśniono w rozdziale 2.3, powodują tylko jednorazowy obrót spinu. W celu wyznaczenia optymalnych energii wzbudzenia nośników przeprowadzono pomiar PLE dla długości fali światła lasera pracy ciągłej w zakresie od 1429 do 1493 nm, z krokiem 0,5 nm (co odpowiada energii między 0,865 a 0,830 eV i krokowi energetycznemu ~ 150 μ eV), a wynik przedstawiono na rys. 5.5(a). Widoczne są rezonanse tylko dla linii CX1 oraz X. Panel po prawej stronie pokazuje intensywność w maksimum w funkcji różnicy energii ΔE między energią pobudzenia a energią emisji. Na rys. 5.5(b) pokazano widma fotoluminescencji dla dwóch energii wzbudzenia (o różnicy energii między pobudzeniem a emisją $\Delta E_1 = 43$ meV oraz $\Delta E_2 = 37$ meV), dla których intensywność trionu CX1 była największa.

Rezonanse te zostały wybrane do wzbudzenia nośników w pomiarze efektu Hanlego, również ze względu na wyniki pomiarów PLE rozdzielcze polaryzacyjnie w bazie polaryzacji kołowych, pokazane na rys. 5.6. Kropkę kwantową wzbudzano światłem lasera spolaryzowanym kołowo lewoskrętnie, natomiast emisję detektowano oddzielnie dla polaryzacji kołowej lewoskrętnej (L_L) i prawoskrętnej (L_P). Intensywność emisji o danej polaryzacji jest silnie zależna od schematu pobudzenia. Linia emisyjna wykazuje niezerowy stopień polaryzacji kołowej $P_\sigma \neq 0$, co stanowi podstawę do obserwacji zaniku P_σ w zewnętrznym polu magnetycznym. Dla rezonansu ΔE_1 dominuje emisja spolaryzowana kołowo lewoskrętnie, a dla rezonansu ΔE_2 dominuje emisja spolaryzowana kołowo prawoskrętnie, co oznacza ujemny stopień polaryzacji kołowej, którego mechanizm został opisany w podrozdziale 2.3. Obserwowany jest on dla trionów ujemnych, co dodatkowo potwierdza prawidłową identyfikację kompleksu ekscytonowego. Zatem w pierwszym schemacie wzbudzenia preferowana jest relaksacja do stanu podstawowego trionu z zachowaniem orientacji spinów nośników, podczas gdy w drugim schemacie wzbudzenia dominują procesy odpowiedzialne za obrót spinów nośników.

Stopień polaryzacji kołowej dla rezonansu ΔE_1 wyniósł $P_{\sigma,1} = 52\%$, a dla rezonansu ΔE_2 — $P_{\sigma,2} = 40\%$. Jego wartość świadczy o efektywności inicjalizacji spinu o określonej orientacji, o czym więcej w podsumowaniu wyników efektu Hanlego.



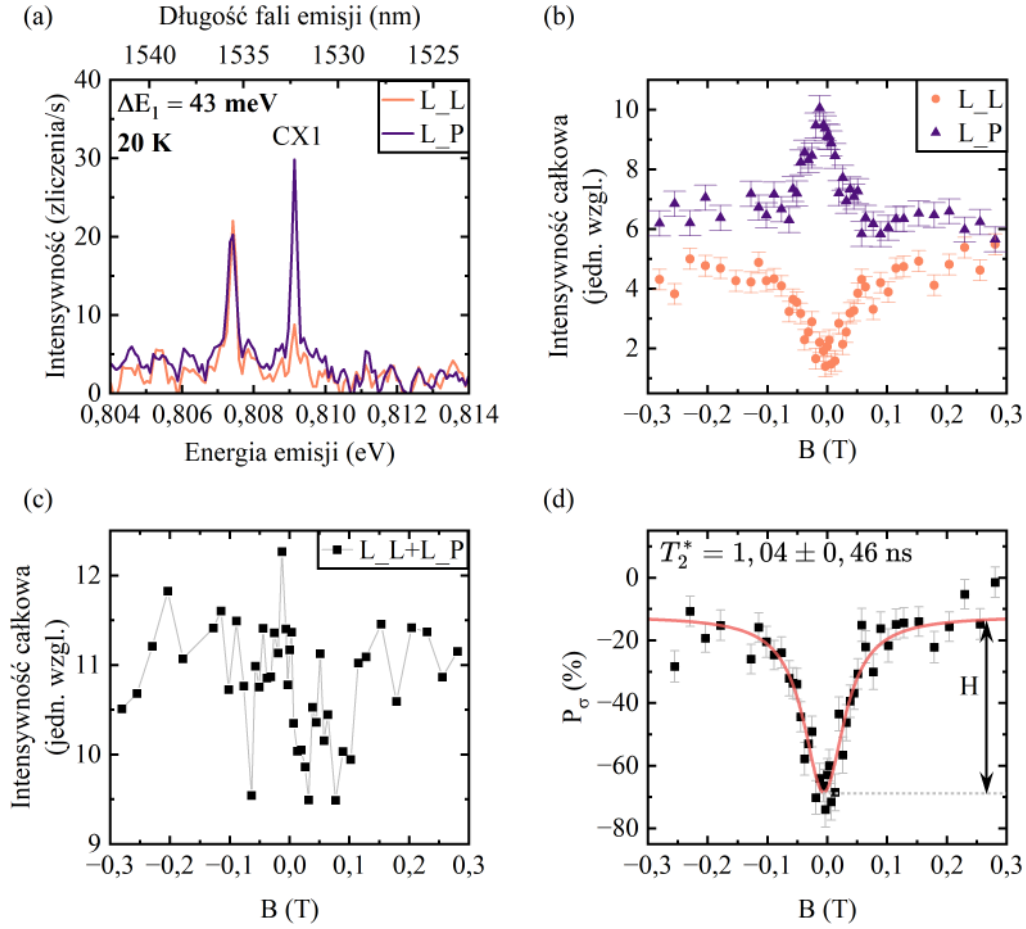
Rysunek 5.6: Fotoluminescencja wzbudzeniowa rozdzielcza polaryzacyjnie w bazie polaryzacji kołowych dla trionu CX1 — próbka MBE. L_L (L_P) oznacza pobudzenie światłem lasera spolaryzowanym kołowo lewoskrętnie i detektowanie emisji o polaryzacji kołowej lewoskrętnej (prawoskrętnej).

5.1.2 Efekt Hanlego

Pomiary efektu Hanlego przeprowadzono dla najwyższej mocy wzbudzenia dostępnej w układzie pomiarowym. Odpowiada ona intensywności linii bliskiej, ale nieosiągającej nasycenia. Dla badanej kropki kwantowej, dla której wyniki wstępnych pomiarów optycznych przedstawiono w poprzednim podrozdziale, minimalna temperatura próbki w układzie do pomiaru efektu Hanlego wyniosła 20 K.

Wyniki pomiarów w tej temperaturze dla mocy wzbudzenia 600 μ W przedstawiono na rys. 5.7 i 5.8 odpowiednio dla rezonansów $\Delta E_1 = 43$ meV oraz $\Delta E_2 = 37$ meV. Panele (a) przedstawiają widma fotoluminescencji dla dwóch detektowanych polaryzacji kołowych emisji. Ponownie widoczna jest zależność polaryzacji emisji linii CX1 od energii wzbudzenia, w przeciwieństwie do niezidentyfikowanej linii emisyjnej obecnej w widmie, dla której nie występuje przewaga intensywności dla żadnej polaryzacji kołowej. Panele (b) pokazują intensywności całkowite oddzielnie dla obu polaryzacji, w funkcji pola magnetycznego. Widoczna jest silna zależność intensywności linii emisyjnych od pola magnetycznego, przy czym dla różnych polaryzacji emisji ta zależność jest odmienna. W przypadku $\Delta E_1 = 43$ meV przeważa emisja spolaryzowana kołowo prawoskrętnie dla całego zakresu pola magnetycznego użytego w pomiarze, z kolei dla $\Delta E_2 = 37$ meV przeważa intensywność emisji spolaryzowanej kołowo lewoskrętnie dla wartości pola $|B| \approx 100$ mT, a dla wyższych pól intensywności dla obu polaryzacji emisji są sobie równe (w granicach dokładności pomiaru). Całkowita intensywność (suma intensywności dla obu polaryzacji) przedstawiona jest na panelach (c). Brak jest wyraźnej zależności sumarycznej intensywności od B , przy czym warto mieć na uwadze, że bezwzględna intensywność emisji jest czuła na niestabilności w układzie. W pomiarze efektu Hanlego dla każdej wartości B mierzono widma dla obu polaryzacji detekcji z jak najkrótszym odstępem czasu między nimi, pilnując jednocześnie, aby stale wzbudzano dokładnie to samo miejsce na próbce. Pomimo to nie udało się uniezależnić od niestabilności mechanicznych, a także termicznych obecnych w układzie. Bezwzględne wartości intensywności w funkcji B były narażone na dużą niedokładność ze względu na długi czas trwania pomiaru.

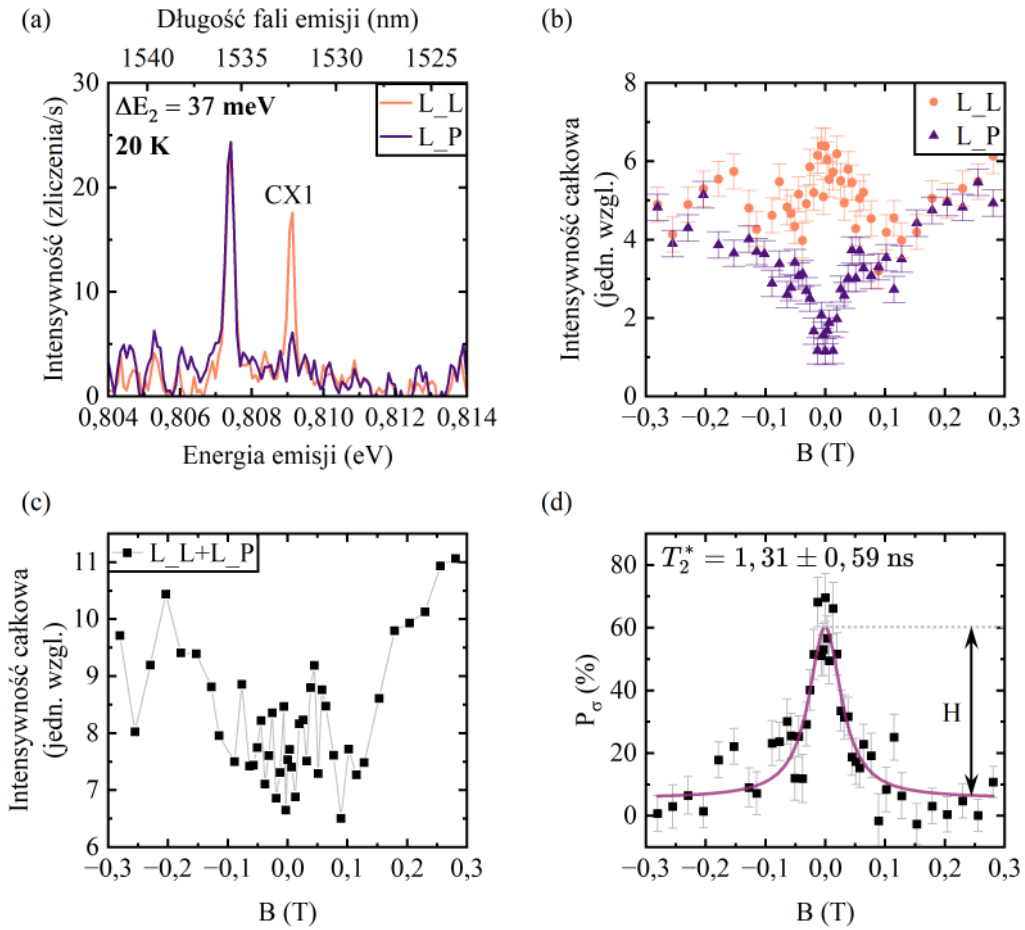
Niepewność wartości P_σ zależy wyłącznie od chwilowej niestabilności w trakcie pomiaru dwóch widm o różnych polaryzacjach dla danej wartości B . Na panelach (d) widoczne są zależności P_σ od B dla każdego z rezonansów, ukazując charakterystyczne krzywe Han-



Rysunek 5.7: Efekt Hanlego dla rezonansu ΔE_1 zmierzony w temperaturze 20 K przy wzbudzeniu mocą $600 \mu\text{W}$ — próbka MBE. (a) Widma fotoluminescencji dla dwóch polaryzacji kołowych detektowanej emisji. (b) Intensywność całkowita linii emisyjnej w funkcji indukcji pola magnetycznego dla dwóch polaryzacji kołowych emisji. (c) Suma intensywności całkowitej dla dwóch polaryzacji kołowych emisji w funkcji indukcji pola magnetycznego. (d) Wartość stopnia polaryzacji kołowej w funkcji indukcji pola magnetycznego (krzywa Hanlego) z wyznaczonym czasem defazowania spinu elektronu $T_2^* = 1,04 \pm 0,46 \text{ ns}$. Wartość H oznacza względną wysokość krzywej Hanlego.

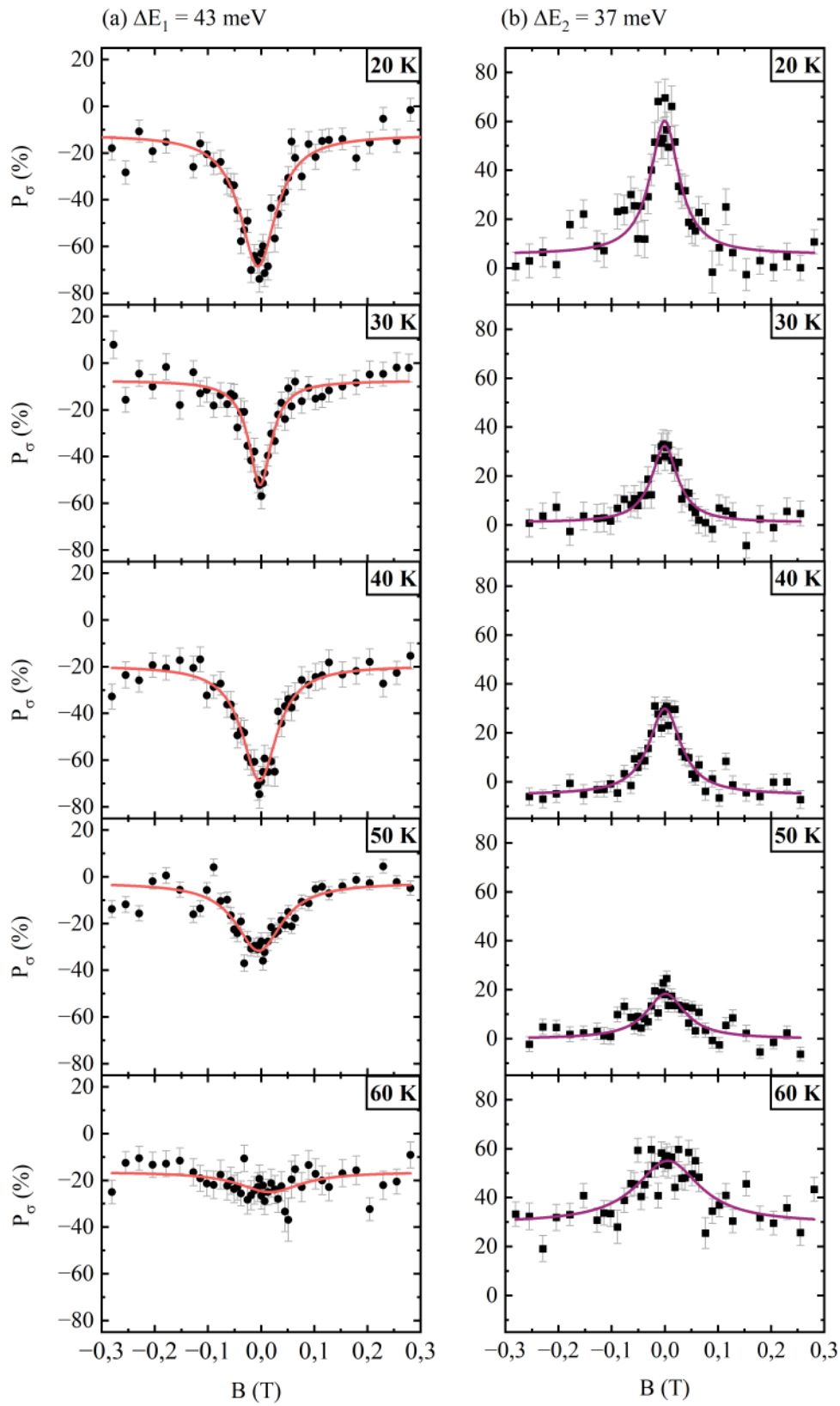
lego dopasowane funkcją Lorentza. Szerokości krzywych Hanlego wyniosły $B_{1/2} = 84 \text{ mT}$ i $B_{1/2} = 66,8 \text{ mT}$ odpowiednio dla rezonansów ΔE_1 i ΔE_2 . Na podstawie zależności $T_2^* = \hbar/(|g_e|\mu_B B_{1/2})$ i znając $|g_e| = 0,26 \pm 0,11$, wyznaczono wartości czasów defazowania niejednorodnego dla elektronu pozostałego po rekombinacji trionu. Dla wzbudzenia ΔE_1 czas defazowania wyniósł $T_2^* = 1,04 \pm 0,46 \text{ ns}$, a dla rezonansu ΔE_2 wyniósł $T_2^* = 1,31 \pm 0,59 \text{ ns}$. Duże niepewności wynikają głównie z niepewności w wyznaczeniu g -czynnika elektronu. Wyznaczono również wartości $P_\sigma(B = 0)$ oraz H określoną jako względną wysokość krzywej Hanlego. Wyniosły one odpowiednio $P_\sigma(B = 0) = (-68,5 \pm 3,4)\%$ i $H = (-56,3 \pm 4,0)\%$ dla pierwszego rezonansu oraz $P_\sigma(B = 0) = (60,2 \pm 4,5)\%$ i $H = (54,7 \pm 2,9)\%$ dla drugiego rezonansu. Dla różnych rezonansów otrzymane bezwzględne wartości są do siebie zbliżone w ramach wyznaczonych niepewności. Świadczy to o podobnej wydajności orientacji spinów w przypadku obu rezonansów, przy czym jeden prowadzi do obrotu spinu i obserwacji NCP. Zależność orientacji spinu od schematu wzbudzenia może służyć do selektywnej inicjalizacji stanu kubitu spinowego w kropkach kwantowych.

Utrzymanie kubitów spinowych w temperaturze parowania ciekłego helu (czy nawet w tem-



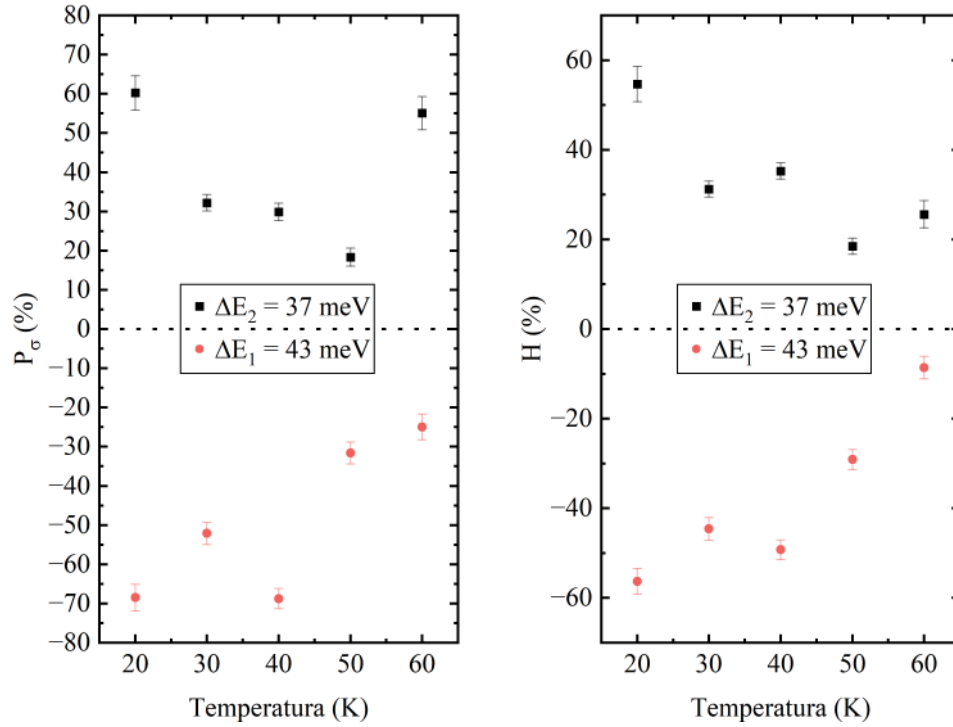
Rysunek 5.8: Efekt Hanlego dla rezonansu ΔE_2 zmierzony w temperaturze 20 K przy wzbudzeniu mocą 600 μW — próbka MBE. (a) Widma fotoluminescencji dla dwóch polaryzacji kołowych detektowanej emisji. (b) Intensywność całkowita linii emisyjnej w funkcji indukcji pola magnetycznego dla dwóch polaryzacji kołowych emisji. (c) Suma intensywności całkowitej dla dwóch polaryzacji kołowych emisji w funkcji indukcji pola magnetycznego. (d) Wartość stopnia polaryzacji kołowej w funkcji indukcji pola magnetycznego (krzywa Hanlego) z wyznaczonym czasem defazowania spinu elektronu $T_2^* = 1,31 \pm 0,59$ ns. Wartość H oznacza względną wysokość krzywej Hanlego.

peraturze 20 K) jest kosztowne i niepraktyczne w realnych zastosowaniach, dlatego istotne jest osiągnięcie odpowiednich układów fizycznych działających w podwyższonych temperaturach, a w idealnym przypadku nawet w temperaturze pokojowej. Zbadano zatem wpływ temperatury na czas defazowania elektronu w badanej kropce kwantowej. Rys. 5.9 przedstawia kolejne krzywe Hanlego dla temperatur od 20 do 60 K, co 10 K, dla obu rezonansów. Uwzględniono ponownie wyniki dla 20 K w celu prostego porównania temperaturowej zależności efektu Hanlego. Zaobserwowano charakterystyczne krzywe Hanlego aż do temperatury 60 K dla obu rezonansów. W całym zakresie temperatur P_σ pozostaje ujemne dla rezonansu ΔE_1 i dodatnie dla rezonansu ΔE_2 . Oprócz tego, widoczna różnica między krzywymi dla różnych rezonansów polega na braku całkowitej depolaryzacji nawet dla wartości $B \approx 300$ mT w przypadku pierwszego z nich. Wartości P_σ dla wysokich wartości B mieszczą się w zakresie od -20 do 0% . Dla drugiego rezonansu wartość P_σ wyraźnie zbiega do 0 dla najwyższych wartości B w przypadku temperatur 30 K i 50 K oraz jest bliska zera dla temperatur 20 K i 40 K. Natomiast w przypadku temperatury 60 K wartość $P_\sigma(B = 0)$ jest porównywalna z (20 K) lub znacznie wyższa (> 30 K) w porównaniu z krzywymi dla innych temperatur.



Rysunek 5.9: Efekt Hanlego dla dwóch rezonansów w funkcji temperatury — próbka MBE. (a) Krzywe Hanlego dla rezonansu (a) $\Delta E_1 = 43$ meV oraz (b) $\Delta E_2 = 37$ meV dla kolejnych temperatur próbki.

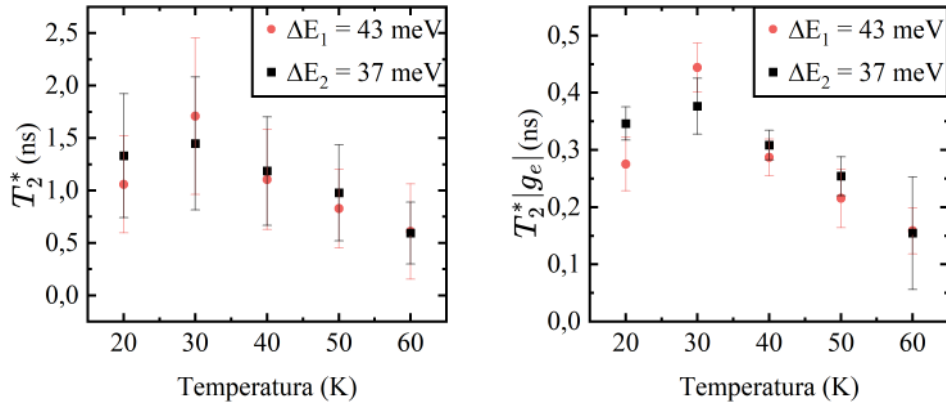
Ponadto dla wysokich B w tej temperaturze wartość zbiega do około 30%, zatem polaryzacja emisji pozostaje wysoka nawet przy maksymalnej zmierzonej wartości B . W funkcji temperatury widoczna jest również zmiana szerokości krzywych Hanlego. Wszystkie krzywe zostały dopasowane niezależnie funkcją Lorentza, co doprowadziło do wyznaczenia wartości $P_\sigma(0)$, H oraz czasu defazowania T_2^* przy założeniu braku (lub pomijalnie małej) zmiany wartości g -czynnika elektronu w tym zakresie temperatur.



Rysunek 5.10: Temperaturowa zależność polaryzacji emisji — próbka MBE. (a) Zależność stopnia polaryzacji kołowej w zerowym polu magnetycznym $P_\sigma(B = 0 \text{ T})$ od temperatury dla dwóch rezonansów. (b) Zależność parametru H od temperatury dla dwóch rezonansów.

Wyznaczone wartości $P_\sigma(0)$ i H w funkcji temperatury przedstawiono odpowiednio na rys. 5.10(a) i (b). Zależność $P_\sigma(T)$ informuje o najwyższej osiągniętej polaryzacji emisji w danej temperaturze T . W przypadku obu rezonansów widoczne jest zachowanie niemonotoniczne. Dla rezonansu ΔE_1 początkowo obserwowany jest spadek P_σ między temperaturą 20 K a 30 K, następnie bezwzględna wartość P_σ gwałtownie rośnie i ponownie spada dla temperatur > 30 K. Z kolei w przypadku rezonansu ΔE_2 wartość P_σ maleje aż do temperatury 50 K, by wzrosnąć w temperaturze 60 K do wartości zbliżonej do wartości uzyskanej w temperaturze 20 K. Ze względu na to niemonotoniczne zachowanie i brak jego uzasadnienia, porównano wartości H , które odzwierciedlają jedynie wpływ pola magnetycznego (w zakresie od -300 do 300 mT) na depolaryzację emisji. W przypadku obu rezonansów wartość $|H|$ zanika z temperaturą, z wyraźnym wzrostem dla temperatury 40 K. W przypadku rezonansu ΔE_2 , dla którego obserwuje się dodatnią polaryzację, widoczny jest wyższy stopień polaryzacji kołowej w temperaturze 60 K, w porównaniu z rezonansem ΔE_1 . Jednak w temperaturze 70 K nie zaobserwowano $P_\sigma \neq 0$ dla żadnego z rezonansów.

Na rys. 5.11(a) przedstawiono zmianę wyznaczonych czasów T_2^* w funkcji temperatury. Spadek czasu defazowania, poprzedzony wzrostem pomiędzy temperaturami 20 K a 30 K, występuje dla obu rezonansów. Duże niepewności wynikające z niepewności g -czynnika elektronu mogą sugerować brak początkującego wzrostu czasu defazowania, dlatego porównano



Rysunek 5.11: Temperaturowa zależność czasu defazowania spinu elektronu — próbka MBE. (a) Zależność czasu defazowania spinu elektronu T_2^* od temperatury. Widoczne duże niepewności związane głównie z niepewnością wyznaczonego g -czynnika. (b) Zależność iloczynu $T_2^*|g_e|$ od temperatury.

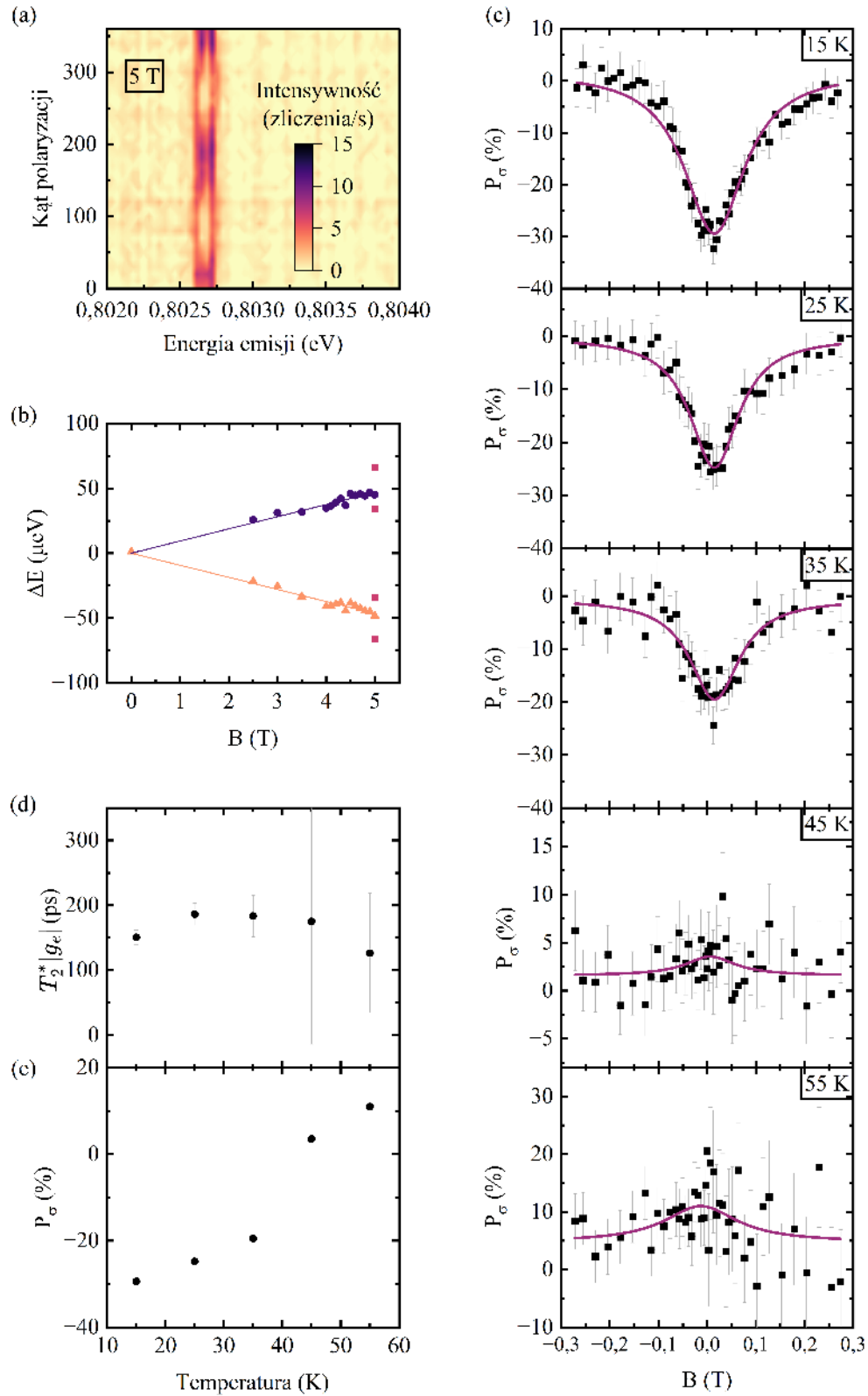
iloczyn $T_2^*|g_e|$ (rys. 5.11(b)). Jest on zależny wyłącznie od szerokości krzywej Hanlego, a jego niepewność — od jakości dopasowania funkcją Lorentza. Założono, że g -czynniki elektronu w danym stanie nie zależą od temperatury. W tym przypadku wzrost czasu defazowania w temperaturze 30 K jest porównywalny (rezonans ΔE_2) lub większy (rezonans ΔE_1) od wartości niepewności, co potwierdza, że wzrost czasu defazowania ma źródło fizyczne i nie jest artefaktem eksperymentalnym. Różnice między wyznaczonymi czasami dla różnych rezonansów są w skali niepewności nieznaczne, co oznacza, że czas defazowania nie zależy silnie od energii wzbudzenia. Sugeruje to, że defazowanie zachodzi wyłącznie w stanie podstawowym, wzmacniając założenie, że zmierzono czas defazowania rezydentnego elektronu.

Różne przypadki efektu Hanlego

W ramach przeprowadzonych pomiarów efektów Hanlego na próbce MBE, temperaturową zależność zmierzono również dla innego trionu z kropki kwantowej umieszczonej w innej mezie. Zależność polaryzacyjną emisji w zewnętrznym polu magnetycznym ($B = 5$ T) przedstawiono na rys. 5.12(a). Widać emisję dla czterech przejść optycznych, z których pary spolaryzowane są ortogonalnie względem siebie, co jest charakterystyczne dla emisji z trionu. Zależność energii emisji od wartości B pokazano na rys. 5.12(b). Zaobserwowano początkowe poszerzenie linii, a następnie jej rozszczepienie na dwie składowe (fioletowe i pomarańczowe punkty). Pomiar rozdzielczy polaryzacyjnie uwydatnił cztery przejścia optyczne (różowe punkty). Dopasowanie liniowe służy do wyznaczenia zależności rozszczepienia Zeemana w funkcji pola magnetycznego. Jednak brak wiedzy o dokładnym kierunku pola magnetycznego w płaszczyźnie próbki nie pozwala wyznaczyć dokładnych wartości g -czynników nośników związanych w danej kropce kwantowej. Na podstawie wartości średniego nachylenia prostych w dopasowaniu liniowym wyznaczono jedynie:

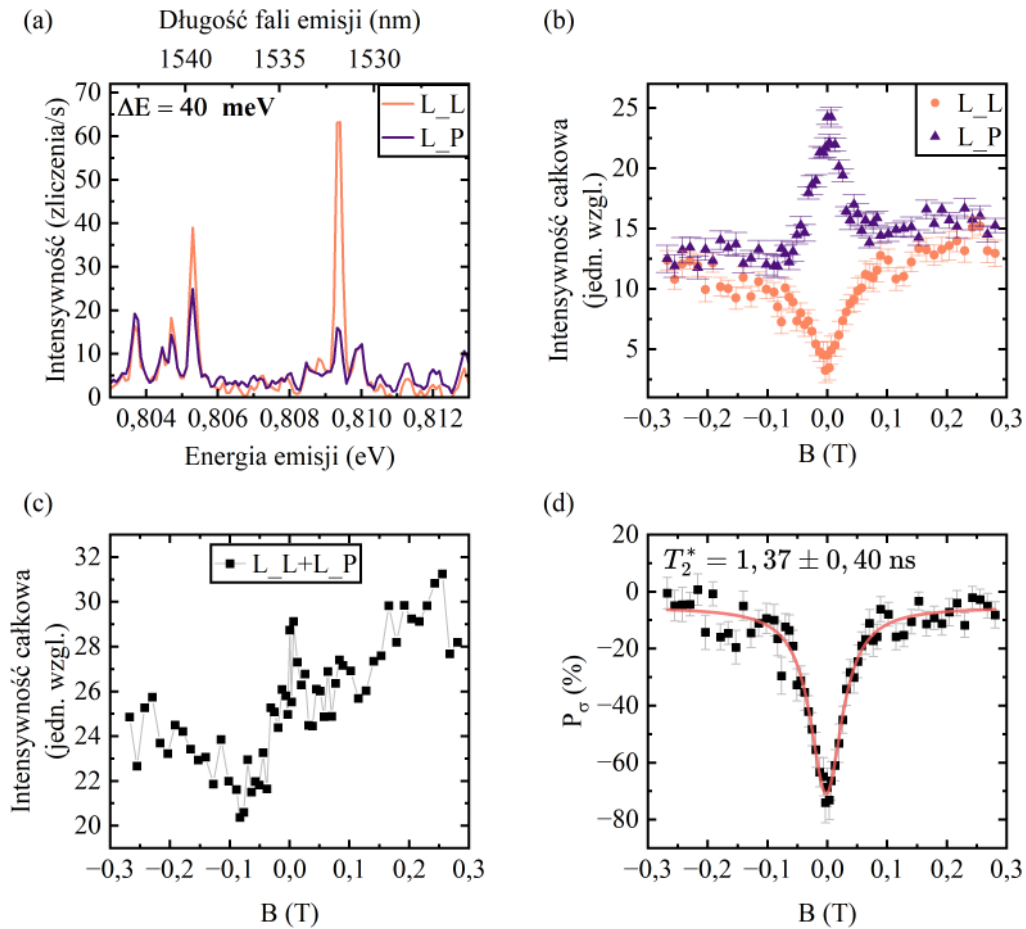
$$\begin{aligned}
 |g_e| = 0,35 \quad \wedge \quad |g_h| = 0,11 \\
 \vee \\
 |g_e| = 0,11 \quad \wedge \quad |g_h| = 0,35.
 \end{aligned}
 \tag{5.3}$$

Efekt Hanlego dla danego trionu zmierzono w zakresie od 15 K do 55 K, z krokiem 10 K, przy wzbudzeniu energią o $\Delta E = 48$ meV wyższą od energii emisji. Na rys. 5.12(c) kolejne



Rysunek 5.12: Temperaturowa zależność efektu Hanlego — próbka MBE. (a) Polaryzacyjna zależność emisji badanego trionu w zewnętrznym polu magnetycznym $B = 5$ T. (b) Zależność energii emisji trionu od B . (c) Krzywe Hanlego dla temperatur w zakresie 15–55 K wraz z dopasowaniem funkcją Lorentza. Wyznaczona z dopasowań zależność (d) $T_2^*|g_e|$ oraz (e) P_σ od temperatury.

panele przedstawiają otrzymane krzywe Hanlego dla różnych temperatur. W temperaturach 15–35 K zaobserwowano ujemny stopień polaryzacji kołowej. W przypadku temperatur 45 K i 55 K, większość punktów pomiarowych leży po dodatniej stronie osi P_σ . Duże niepewności wynikają ze spadku stosunku sygnału do szumu w podwyższonych temperaturach, dlatego trudno jednoznacznie wnioskować, że istnieje mechanizm temperaturowy, który odwraca znak polaryzacji. Otrzymane dane sugerują jednak, że w podwyższonej temperaturze zanika mechanizm obrotu spinu podczas relaksacji do stanu podstawowego będący przyczyną powstawania NCP, jak opisano w podrozdziale 2.3. Rys. 5.12(e) przedstawia zależność maksymalnej polaryzacji P_σ od temperatury. W zakresie temperatur 15–35 K widoczny jest wyraźny zanik polaryzacji wraz ze wzrostem temperatury, podobnie jak w przypadku trionu CX1.

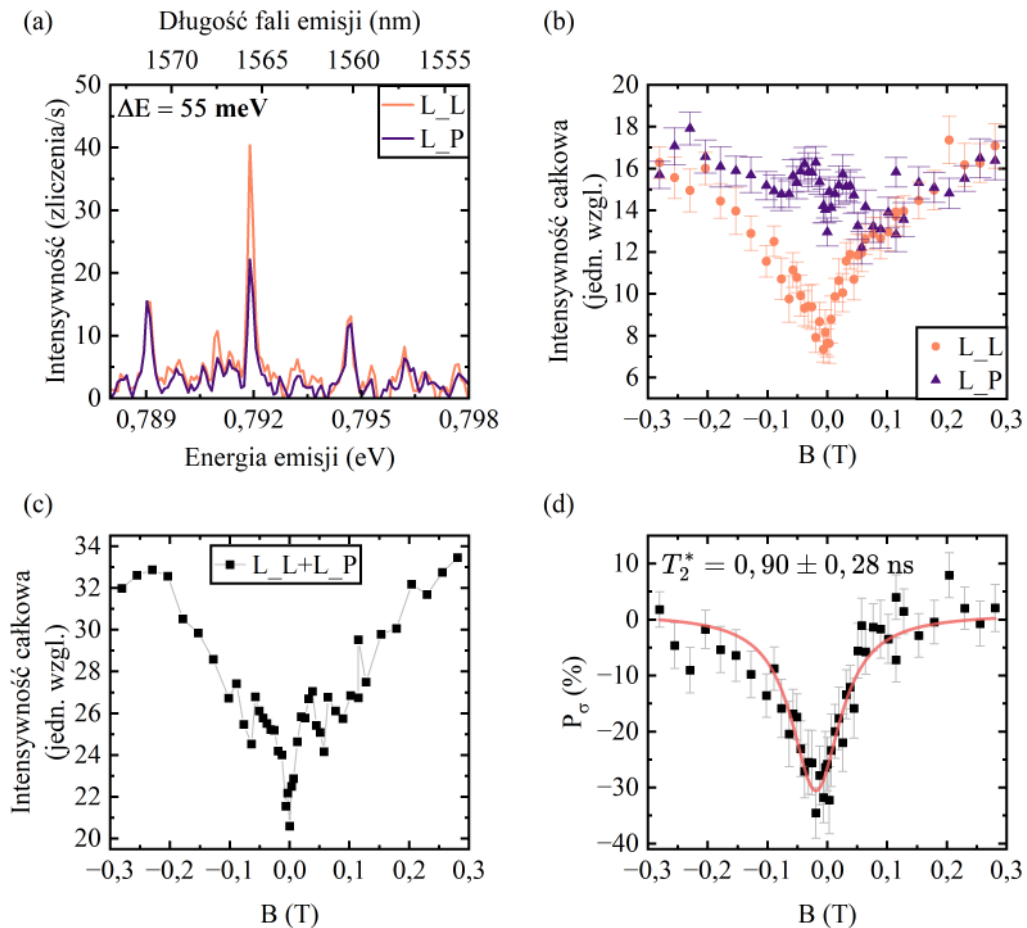


Rysunek 5.13: Przypadek 1. efektu Hanlego — próbka MBE. (a) Widma fotoluminescencji dla dwóch polaryzacji kołowych detektowanej emisji. (b) Intensywność całkowita linii emisyjnej w funkcji indukcji pola magnetycznego dla dwóch polaryzacji kołowych emisji. (c) Suma intensywności całkowitej dla dwóch polaryzacji kołowych emisji w funkcji indukcji pola magnetycznego. (d) Krzywa Hanlego z wyznaczonym czasem defazowania spinu elektronu $T_2^* = 1,37 \pm 0,40$ ns.

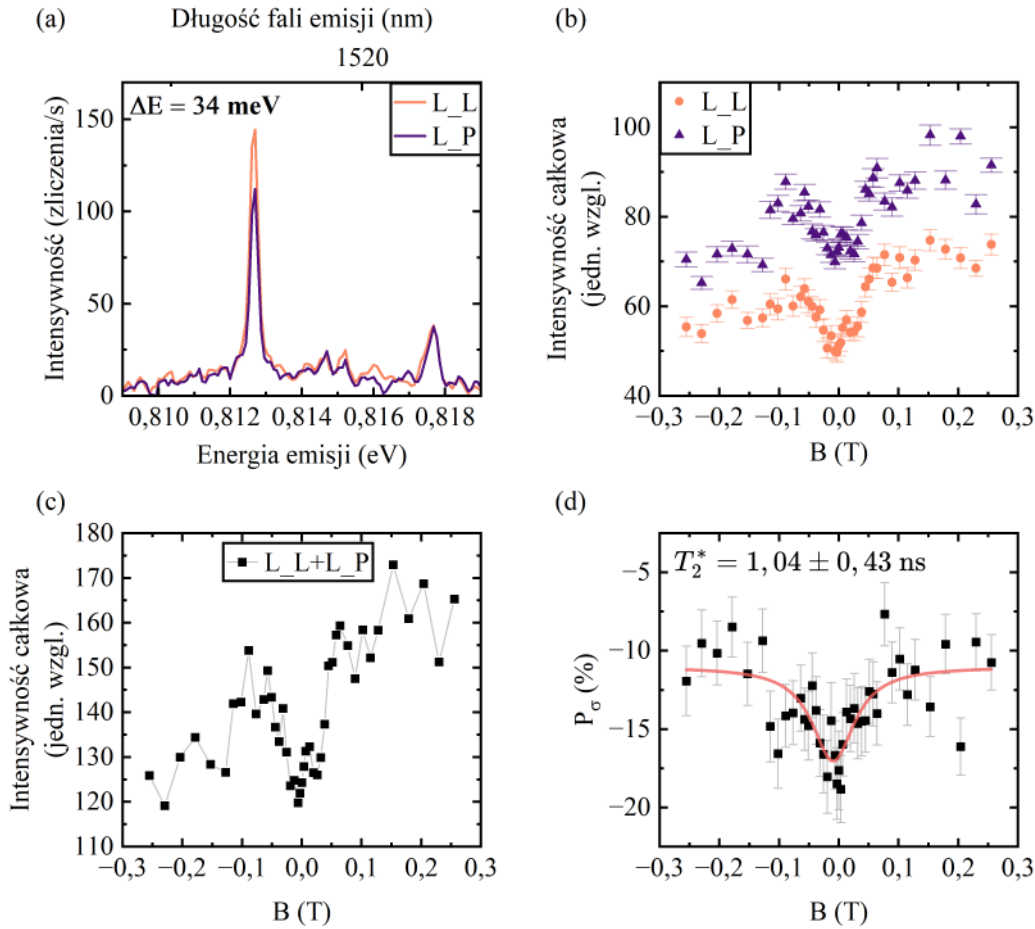
Wyznaczone wartości czasu $T_2^*|g_e|$ dla kolejnych temperatur przedstawiono na rys. 5.12(d). Ze względu na brak pewności co do wartości g -czynnika elektronu, pozostawiono iloczyn $T_2^*|g_e|$, reprezentujący szerokość krzywej Hanlego. Podobnie jak w przypadku trionu CX1, widoczny jest początkowy wzrost do temperatury 25 K, a następnie systematyczny spadek wartości. Mimo niskiej jakości dopasowania krzywych Hanlego funkcją Lorentza dla dwóch najwyższych temperatur, obserwowany wzrost czasu defazowania między temperaturami 15 K

a 25 K nie jest artefaktem eksperymentalnym. Dla obu przypadków trionów z próbki MBE, zmierzony efekt Hanlego ma podobną zależność temperaturową.

Pośród badanych trionów w próbce MBE zaobserwowano różne zależności intensywności dla danej polaryzacji kołowej. Dla 70% badanych linii zaobserwowano podobną zależność jak w przypadku trionu CX1. Intensywność dla jednej z polaryzacji emisji była maksymalna w zerowym polu magnetycznym i malała wraz z jego wzrostem; z kolei dla drugiej polaryzacji emisji sytuacja była odwrotna. W rezultacie intensywności dla obu polaryzacji zbiegały do podobnej wartości przy wysokich polach magnetycznych. Kolejny przykład takiej linii emisyjnej pochodzącej z rekombinacji trionu pokazano na rys. 5.13. Panel (a) przedstawia widmo fotoluminescencji przy wzbudzeniu kwazirezonsanowym o różnicy energii między wzbudzeniem a emisją równej $\Delta E = 40$ meV. Panel (b) przedstawia zależność intensywności dla każdej z polaryzacji kołowych emisji od B , obserwowaną w większości przypadków w zmierzonych krzywych Hanlego. Na panelu (c) pokazano zależność sumy intensywności od B . Ponownie dla sumy intensywności nie zaobserwowano jednoznacznej zależności. Krzywa Hanlego, będąca wynikiem ilorazu różnicy i sumy intensywności emisji dla różnych polaryzacji, jest widoczna na panelu (d). Została ona dopasowana funkcją Lorentza, a na podstawie jej szerokości użytkano czas defazowania $T_2^* = 1,37 \pm 0,40$ ns.



Rysunek 5.14: Przypadek 2. efektu Hanlego — próbka MBE. (a) Widma fotoluminescencji dla dwóch polaryzacji kołowych detektowanej emisji. (b) Intensywność całkowita linii emisyjnej w funkcji indukcji pola magnetycznego dla dwóch polaryzacji kołowych emisji. (c) Suma intensywności całkowitej dla dwóch polaryzacji kołowych emisji w funkcji indukcji pola magnetycznego. (d) Krzywa Hanlego z wyznaczonym czasem defazowania spinu elektronu $T_2^* = 0,90 \pm 0,28$ ns.



Rysunek 5.15: Przypadek 3. efektu Hanlego — próbka MBE. (a) Widma fotoluminescencji dla dwóch polaryzacji kołowych detektowanej emisji. (b) Intensywność całkowita linii emisyjnej w funkcji indukcji pola magnetycznego dla dwóch polaryzacji kołowych emisji. (c) Suma intensywności całkowitej dla dwóch polaryzacji kołowych emisji w funkcji indukcji pola magnetycznego. (d) Krzywa Hanlego z wyznaczonym czasem defazowania spinu elektronu $T_2^* = 1,04 \pm 0,43$ ns.

Rys. 5.14 i 5.15 przedstawiają analogiczne panele dla drugiego i trzeciego charakterystycznego przypadku zależności intensywności od B obserwowanej na próbce MBE. W drugim przypadku (rys. 5.14(b)) zależność intensywności emisji o polaryzacji L_P od B charakteryzuje się dodatkowym minimum, w rezultacie dla wąskiego zakresu B (od -25 do 25 mT) zależności dla obu polaryzacji zachowują się podobnie. W konsekwencji suma intensywności silnie zależy od B , z minimum dla $B = 0$, przypominając w ten sposób krzywą Hanlego. Z kolei kształt krzywej Hanlego dobrze przybliża kształt funkcji Lorentza. Na podstawie dopasowania wyznaczono czas defazowania elektronu równy $T_2^* = 0,90 \pm 0,28$ ns. Istnieje również możliwość, że drobne artefakty widoczne w zależności intensywności od B nie są obserwowalne w przebiegu krzywej Hanlego ze względu na ograniczoną dokładność pomiarów.

Rys. 5.15 przedstawia ostatnią zaobserwowaną zależność intensywności od wartości B . W tym przypadku dla obu polaryzacji zależność intensywności od B ma ten sam kształt, przypominający literę W. Jest on też widoczny w zależności sumy intensywności od B . Z kolei dla zależności P_σ od B nie obserwuje się wyraźnego kształtu W, co najprawdopodobniej jest spowodowane odjęciem od siebie poszczególnych intensywności, skutkującym wzajemnym zniesieniem tego charakterystycznego kształtu. Chociaż dopasowanie funkcją Lorentza nie

oddaje doskonale otrzymanego kształtu Hanlego, widać pewne cechy charakterystyczne, tzn. maksimum polaryzacji P_σ dla małych wartości B oraz jej spadek wraz ze wzrostem B . Pomimo nieścisłości, podjęto próbę wyznaczenia czasu defazowania $T_2^* = 1,04 \pm 0,43$ ns na podstawie dopasowania funkcją Lorentza.

W literaturze brakuje danych dotyczących zależności intensywności emisji dla poszczególnych polaryzacji kołowych od wartości indukcji pola magnetycznego. Natomiast zaobserwowano różne kształty krzywej Hanlego, w tym kształt o literze W (lub M). [80, 85] W ref. [80] złożony kształt krzywej Hanlego zinterpretowano jako sumę trzech Lorentzianów o różnych amplitudach i szerokościach, które powiązano z trzema osobnymi procesami. Zidentyfikowano czas relaksacji związany z jednoczesnym obrotem spinów elektronu i dziury podczas relaksacji do stanu podstawowego (51 ps), czas relaksacji spinu dziury w stanie wzbudzonym (29,2 ps) oraz czas defazowania rezydentnego elektronu powiązany z najwęźszą krzywą Lorentza (1,7 ns).

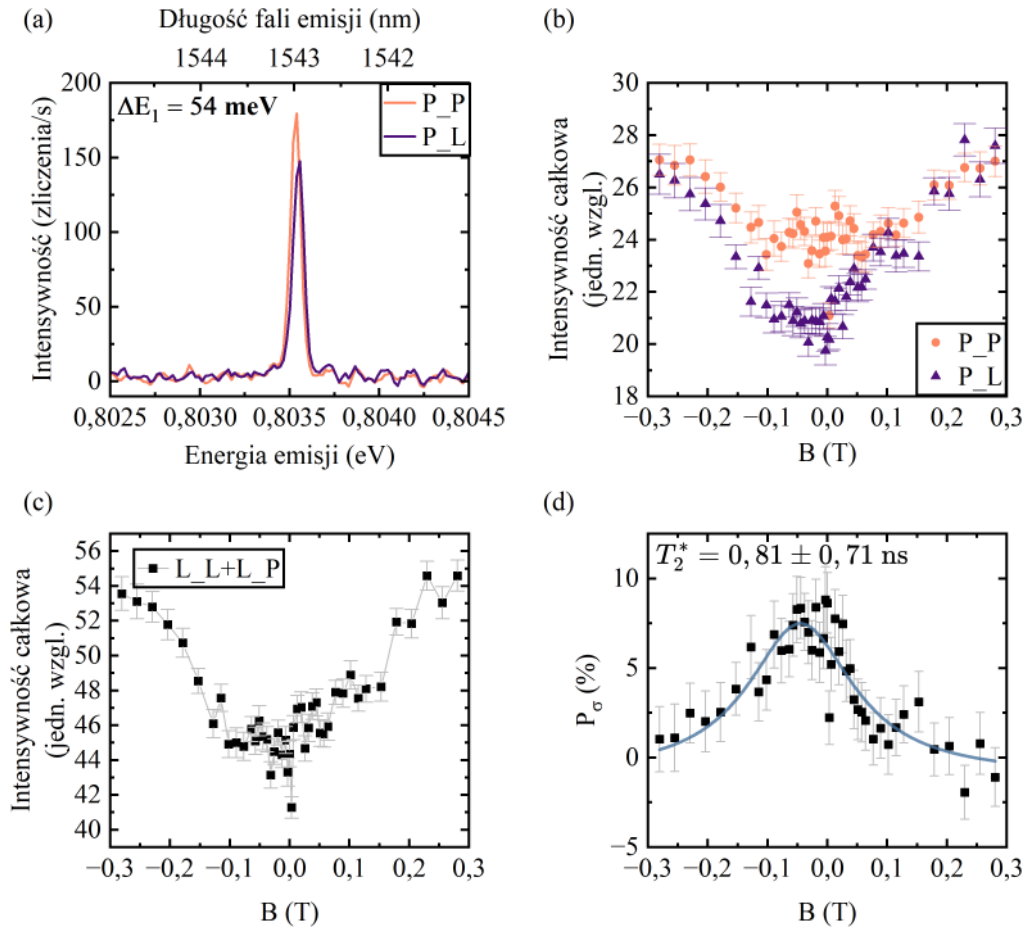
Powyżej przedstawiono różne przypadki zależności intensywności emisji oraz stopnia polaryzacji P_σ od pola magnetycznego B . Ich dokładna interpretacja nie jest jednak trywialna. W literaturze brakuje pełnego opisu teoretycznego wszystkich zależności obserwowanych w przedstawionych wynikach. Złożoność zachodzących procesów oraz wpływ ich wzajemnej dynamiki na kształt krzywej Hanlego sprawiają, że szczegółowa analiza wymagałaby opracowania modelu teoretycznego uwzględniającego parametry konkretnej kropki kwantowej. Jest to szczególnie istotne ze względu na znaczny rozrzut wyników obserwowany nawet w obrębie tej samej grupy struktur. Rozwój takiego opisu teoretycznego jest poza zakresem tej pracy, zatem zanalizowano jedynie poszerzenie krzywych Hanlego, które oddają kształt funkcji Lorentza, natomiast pozostałe uzyskane wyniki pozostawiono jako obserwacje eksperymentalne. Natomiast uzyskane wyniki eksperymentalne służą do rozwijania opisu teoretycznego efektu Hanlego przez dr. Michała Gawelczyka z Instytutu Fizyki Teoretycznej Politechniki Wrocławskiej.

5.2 Kropki kwantowe InAs(P)/InP wzrastane metodą MOVPE

Dla próbki MOVPE przeprowadzono wstępne pomiary optyczne na czterech trionach z czterech różnych mezostruktur, z czego efekt Hanlego, prowadzący do wyznaczenia czasu defazowania elektronu, zaobserwowano w dwóch przypadkach. Dla jednej linii przeprowadzono pomiary dla dwóch rezonansów, z których jeden zbadano w serii w różnych temperaturach.

Naładowane kompleksy ekscytonowe zidentyfikowano analogicznie jak w przypadku próbki MBE, na podstawie serii pomiarów fotoluminescencji w funkcji mocy wzbudzania oraz rozdzielczej polaryzacyjnie, w bazie polaryzacji liniowych. Poniżej przedstawiono wyniki pomiaru efektu Hanlego dla trionu, dla którego przeprowadzono eksperyment interferencji dwufotonowej (patrz podrozdział 4.2). Nośniki wzbudzano do poziomów energetycznych odległych od stanu, z którego następuje emisja, o energię $\Delta E_1 = 54$ meV oraz $\Delta E_2 = 29$ meV, jak w pomiarze HOM (wynik PLE pokazany na rys. 4.9).

Wyniki pomiarów Hanlego dla rezonansu $\Delta E_1 = 54$ meV przy wzbudzaniu mocą równą 100 μ W przedstawiono na rys. 5.16. Na panelu (a) widoczne są widma fotoluminescencji dla dwóch polaryzacji kołowych emisji przy wzbudzaniu światłem lasera spolaryzowanym kołowo prawoskrętnie. Zaobserwowano niewielką różnicę w intensywności emisji o różnych polaryzacjach kołowych, z nieznaczną przewagą dla emisji o polaryzacji kołowej prawoskrętnej, co świadczy o dodatnim stopniu polaryzacji kołowej i zachowaniu orientacji spinów nośników podczas relaksacji do stanów podstawowych. Zależności intensywności od B pokazano na panelu (b). Suma tych intensywności silnie zależy od wartości B (panel (c)). Otrzymaną

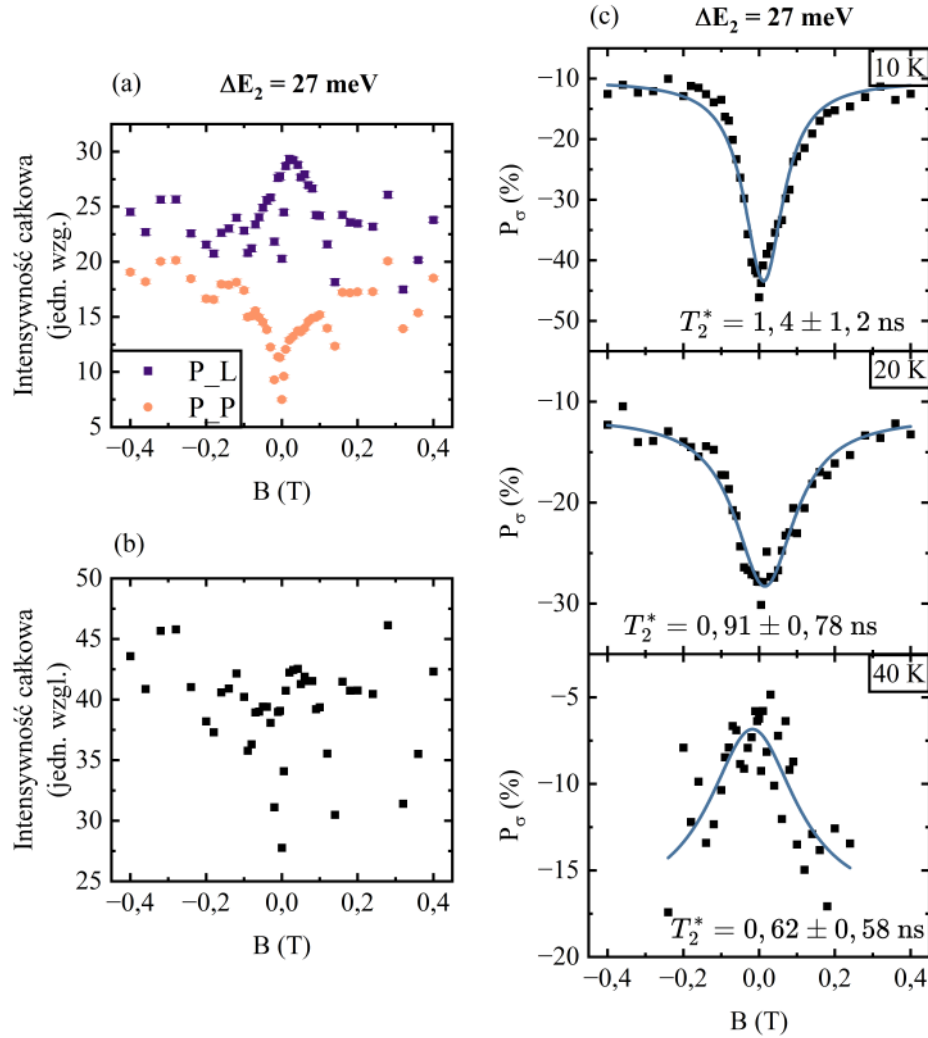


Rysunek 5.16: Efekt Hanlego dla rezonansu ΔE_1 zmierzony w temperaturze 10 K przy wzbudzeniu mocą 100 μ W — próbka MOVPE. (a) Widma fotoluminescencji dla dwóch polaryzacji kołowych detektowanej emisji. (b) Intensywność całkowita linii emisyjnej w funkcji indukcji pola magnetycznego dla dwóch polaryzacji kołowych emisji. (c) Suma intensywności całkowitej dla dwóch polaryzacji kołowych emisji w funkcji indukcji pola magnetycznego. (d) Krzywa Hanlego z dopasowaniem funkcją Lorentza. Wyznaczony czas defazowania spinu elektronu $T_2^* = 0,81 \pm 0,71$ ns.

krzywą Hanlego zaprezentowano na panelu (d). Na podstawie szerokości dopasowanej krzywej Lorentza wyznaczono czas defazowania elektronu równy $T_2^* = 0,81 \pm 0,71$ ns. Pomiary g -czynnika nośników w danej kropce kwantowej przeprowadzono w taki sam sposób, jak na próbce MBE, otrzymując $|g_e| = |g_h| = 0,13 \pm 0,11$. Dokładność wyznaczenia $|g_e|$ jest ograniczona rozdzielczością układu oraz maksymalną dostępną wartością indukcji pola magnetycznego. Niepewność g -czynnika porównywalna z jego wartością skutkowałą dużą niepewnością przy wyznaczaniu czasu T_2^* . Maksymalna polaryzacja wyznaczona z dopasowania wyniosła jedynie $P_\sigma = 7,5\%$.

W celu sprawdzenia wpływu energii wzbudzenia na obserwowany efekt Hanlego oraz czas defazowania, przeprowadzono analogiczne pomiary dla rezonansu $\Delta E_2 = 27$ meV. Ponadto dla tego wzbudzenia zmierzono efekt Hanlego w funkcji temperatury. Na rys. 5.17(a) i (b) pokazano odpowiednio intensywność emisji dla różnych polaryzacji oraz ich sumę w funkcji B dla temperatury 10 K. Dla całego zakresu użytego pola magnetycznego przeważa emisja o polaryzacji kołowej lewoskrętnej, co oznacza ujemny stopień polaryzacji kołowej, w przeciwieństwie do rezonansu ΔE_1 , dla którego stopień polaryzacji kołowej był dodatni. Całkowita intensywność nie wykazuje natomiast żadnej zależności od pola magnetycznego. Na panelu (c)

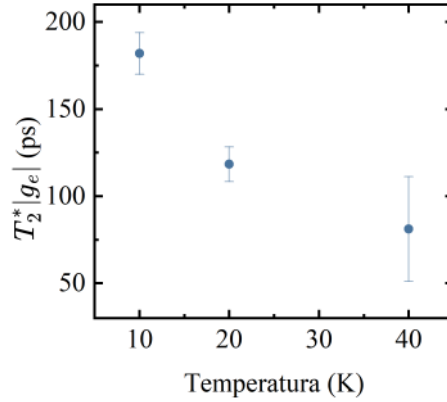
pokazano krzywe Hanlego wraz z dopasowaniem funkcją Lorentza dla kolejnych temperatur próbki. Wraz ze wzrostem temperatury zaobserwowano poszerzenie krzywej Hanlego oraz spadek stopnia polaryzacji kołowej w warunkach braku zewnętrznego pola magnetycznego.



Rysunek 5.17: Efekt Hanlego dla rezonansu ΔE_2 przy wzbudzaniu kropki kwantowej nr 2 mocą 100 μ W zmierzony w temperaturach 10 K, 20 K i 40 K — próbka MOVPE. (a) Intensywność całkowita linii emisyjnej w funkcji indukcji pola magnetycznego dla dwóch polaryzacji kołowych emisji. (b) Suma intensywności całkowitej dla dwóch polaryzacji kołowych emisji w funkcji indukcji pola magnetycznego. (c) Wartość stopnia polaryzacji kołowej w funkcji indukcji pola magnetycznego (krzywa Hanlego) z wyznaczonym czasem defazowania spinu elektronu $T_2^* = 0,81 \pm 0,71$ ns. dla trzech temperatur, odpowiednio od góry: 10 K, 20 K i 40 K.

Dla każdej z krzywych Hanlego przy wzbudzaniu w rezonans $\Delta E_2 = 27$ meV wartości P_σ leżą po dodatniej stronie osi. Mimo to, zmienił się kształt krzywej Hanlego i dla wartości $B = 0$ T bezwzględna wartość P_σ jest najmniejsza, a następnie rośnie wraz ze wzrostem B . Uzyskane z dopasowania czasy defazowania elektronu T_2^* w funkcji temperatury pokazano na rys. 5.18. Widoczny jest spadek czasu defazowania bez początkowego narostu, w przeciwieństwie do linii emisyjnych badanych na próbce MBE. Możliwe przyczyny takich zależności temperaturowych zostały omówione w następnym podrozdziale. Podobnie jak dla próbki MBE, analiza intensywności emisji o poszczególnych polaryzacjach oraz ich sumy, nie jest

przedmiotem tej rozprawy, gdyż w literaturze brakuje opisu teoretycznego obserwowanych zależności.



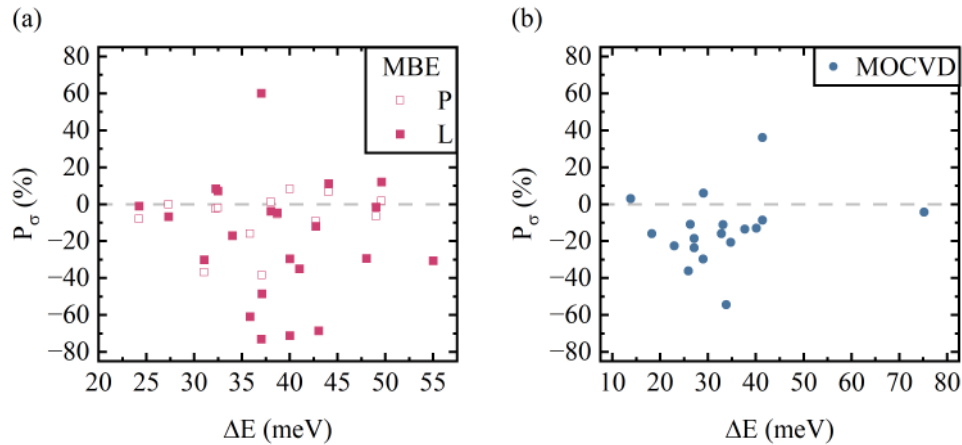
Rysunek 5.18: Temperaturowa zależność ilorazu czasu defazowania spinu i g -czynnika elektronu — próbka MOVPE.

5.3 Podsumowanie wyników pomiaru efektu Hanlego

Efekt Hanlego zmierzono dla pojedynczych spinów elektronów związanych w kropkach kwantowych InAs(P)/InP. Wstępne pomiary optyczne, w tym pomiary PLE, przeprowadzono na ponad dwudziestu mezach zawierających w sumie nawet kilkadziesiąt kropek kwantowych. Pomiary w zewnętrznym polu magnetycznym w konfiguracji Voigta, prowadzące do wyznaczenia g -czynnika elektronów, przeprowadzono dla 9 trionów. Pomiary depolaryzacji emisji w zewnętrznym polu magnetycznym pozwoliły na obserwację charakterystycznych krzywych Hanlego dla 7 trionów z próbki MBE oraz 2 trionów z próbki MOVPE. Każda ze zbadanych linii wykazywała ujemny stopień polaryzacji kołowej, co potwierdzało, że pochodziły z rekombinacji ujemnych trionów. Przy czym dla dwóch z nich (po jednej z każdej próbki), znaleziono także rezonans, po wzbudzeniu którego linia cechowała się dodatnim stopniem polaryzacji kołowej.

Zależność stopnia polaryzacji kołowej P_σ od różnicy między energią wzbudzenia a energią emisji ΔE zbadano dla kilkunastu trionów z próbki MBE oraz czterech trionów z próbki MOVPE. Wyniki dla najsilniejszych rezonansów w badanych liniach emisyjnych przedstawiono na rys. 5.19. W zależności od energii emisji danego trionu zakres dostępnych wartości ΔE się zmieniał. Przedział między 10 a 80 meV był maksymalny ze względu na zakres przestrajania używanego lasera oraz dostępne filtry spektralne, co nie wyklucza istnienia poziomów energetycznych bliższych i dalszych energii emisji w badanych kropkach kwantowych.

W zakresie badanych ΔE uzyskano niezerowy stopień polaryzacji kołowej dla większości energii wzbudzania świadczący o możliwości efektywnej inicjalizacji stanu spinowego. W przypadku próbki MBE, największą wartość $|P_\sigma|$ otrzymano dla ΔE w przedziale 35 meV–45 meV, podczas gdy dla próbki MOVPE, największe ujemne wartości P_σ uzyskano dla ΔE między 25 meV a 35 meV, natomiast największe dodatnie również dla przedziału 39–45 meV. Zależność znaku P_σ od energii wzbudzania została już zaobserwowana w literaturze. Występowanie NCP powiązano z relaksacją z udziałem fononów (zarówno optycznych, jak i akustycznych).^{80,79} Energia podłużnego fononu optycznego w InP wynosi $E_{LO} = 42,2$ meV, co jest porównywalne z energią rezonansu $\Delta E_1 = 43$ meV dla trionu CX1 z próbki MBE, dla którego uzyskano wysoką wartość NCP, potwierdzającą to założenie. Ponadto dla innego



Rysunek 5.19: Zależność stopnia polaryzacji kołowej od różnicy między energią wzbudzenia a energią emisji. (a) Dane dla trionów z próbki MBE dla wzbudzenia światłem spolaryzowanym kołowo prawoskrętnie (otwarte kwadraty) i lewoskrętnie (zamknięte kwadraty). (b) Dane dla trionów z próbki MOVPE (niebieskie kółka).

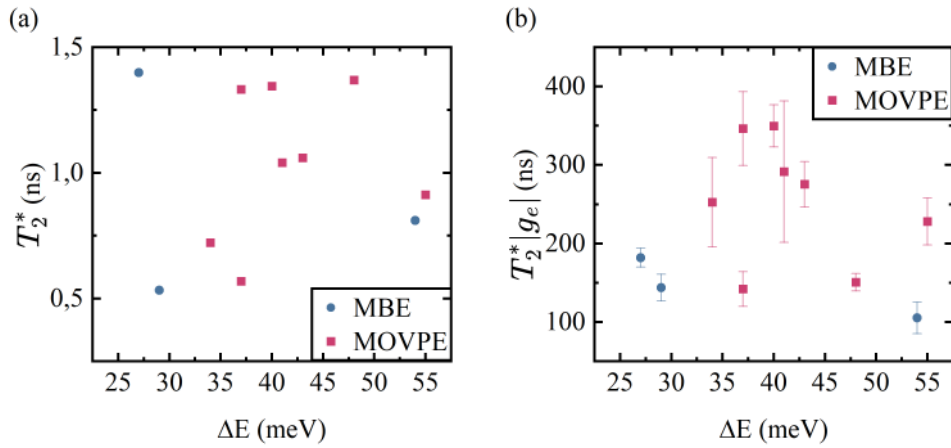
rezonansu ($\Delta E_2 = 37$ meV) zaobserwowano dodatnie P_σ . Pokazano również, że obserwacja NCP jest możliwa przy relaksacji z udziałem dwóch fononów (w wyniku jednoczesnej emisji podłużnego fononu optycznego i absorpcji (lub emisji) jednego z fononów akustycznych), co obejmuje cały zakres ΔE wynoszący 25–45 meV.⁷⁹ Mimo to, dla niektórych energii z tego zakresu obserwowano dodatni stopień polaryzacji kołowej, co tylko potwierdza istnienie warunków energetycznych, które muszą być spełnione, aby zapewnić wydajny proces obrotu spinu.

Zmianę stopnia polaryzacji w funkcji indukcji pola magnetycznego o wyraźnym kształcie funkcji Lorentza zaobserwowano tylko dla 9 trionów, w tym dla dwóch przy różnych energiach wzbudzenia. Wyznaczone na podstawie szerokości krzywych Hanlego wartości czasów defazowania elektronów w funkcji ΔE przedstawiono na rys. 5.20(a). Wartości wyznaczonych czasów mieszczą się w zakresie od 0,5 do 1,5 ns. Ze względu na duże niepewności wyznaczenia T_2^* zrezygnowano z ich przedstawienia na wykresie, gdyż wymagałoby to zmiany skali na osi P_σ , a w konsekwencji zmniejszyłoby przejrzystość rysunku. Tak duże niepewności wynikają z niskiej dokładności wyznaczenia g -czynnika. W wielu przypadkach niepewność przekraczała wartość g -czynnika, która stanowiła tym samym zgrubne oszacowanie. Z tego względu zdecydowano się porównać również wartości iloczynu $T_2^*|g_e|$. Chociaż statystyka pomiaru jest niewielka, najwyższe wartości uzyskano ponownie dla ΔE w przedziale 35–45 meV, co wskazuje na to, że wysoka wydajność inicjalizacji spinu wydaje się wiązać z dłuższym czasem defazowania.

Oddziaływanie nadsubtelne zostało niejednokrotnie wskazane jako najsilniejszy mechanizm defazowania spinów elektronów związanych w kropkach kwantowych.^{61,80} Czas defazowania spinu elektronu spowodowany oddziaływaniem z fluktuującym polem Overhausera jest opisany zależnością:

$$T_\Delta = \frac{\hbar}{\mu_B |g_e| \Delta_B} = \hbar \sqrt{\frac{3N_L}{16 \sum_j I^j (I^j + 1) (A^j)^2}}, \quad (5.4)$$

gdzie Δ_B określa szerokość rozkładu pola pochodzącego od spinów jąder, N_L jest liczbą jąder atomowych oddziałujących ze spinem elektronu, A^j jest stałą oddziaływania nadsubtelnego,

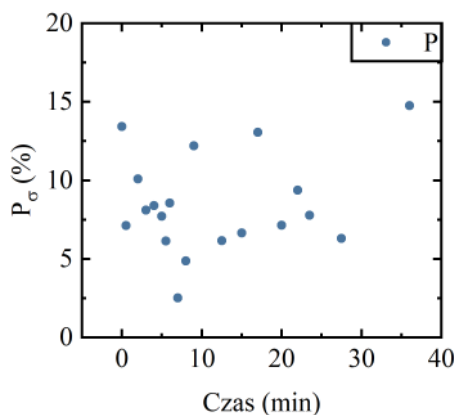


Rysunek 5.20: Zależność czasu defazowania elektronu od różnicy między energią wzbudzenia a energią emisji. (a) Zależność czasu defazowania spinu elektronu T_2^* od ΔE . (b) Zależność iloczynu $T_2^*|g_e|$ od ΔE .

I^j jest spinem j -tego jądra. Sumowanie zachodzi po liczbie jąder w komórce elementarnej.

W ramach innych badań prowadzonych w Laboratorium Optycznej Spektroskopii Nanostruktur oszacowano, że badane kropki kwantowe MBE mają kształt soczewek o średnicy 55 ± 15 nm i wysokości 15 nm. Na tej podstawie oszacowano liczbę jąder w kropce kwantowej na $N_L = 10^6$. Bezpośrednie osadzenie kropek kwantowych w materiale InP powoduje mieszanie się atomów As i P i wymianę nawet 25% atomów As na atomy P. Wartości spinów I i stałych oddziaływania nadsubtelnego A dla pierwiastków In, As i P wynoszą odpowiednio $I^{\text{In}} = 9/2$, $I^{\text{As}} = 3/2$ i $I^{\text{P}} = 1/2$ oraz $A^{\text{In}} = 47$ μeV , $A^{\text{As}} = 44$ μeV i $A^{\text{P}} = 36$ μeV .^{62,63} Na podstawie tych wartości i równania (5.4) oszacowano czas defazowania elektronu spowodowany fluktuacjami pola Overhausera na $T_\Delta = 0,84$ ns. Jest to wartość zbliżona do otrzymanych dla badanych kropek kwantowych czasów defazowania niejednorodnego T_2^* , potwierdzając że dominującym mechanizmem defazowania spinu elektronu jest oddziaływanie nadsubtelne. Na wyznaczony z równania (5.4) czas (5.4) silnie wpływa rozmiar danej kropki kwantowej, gdyż czas ten rośnie proporcjonalnie do pierwiastka z jej objętości ($\sqrt{N_L}$). Spodziewane są więc różnice w wyznaczonym czasie defazowania dla różnych kropek kwantowych. Z kolei wpływ wymiany atomów As i P na czas defazowania związany z oddziaływaniem nadsubtelnym jest pomijalnie mały, ponieważ spiny i stałe nadsubtelne jąder atomów P i As są porównywalne. Zmiana zawartości atomów P od 0% do 100% powoduje nieznaczny wzrost T_Δ (o około 0,03 ns). Ponadto atomy P znajdują się blisko krawędzi kropki kwantowej, gdzie funkcja falowa elektronu zanika. Brak jest natomiast dokładnych danych na temat rozmiaru i kształtu kropek kwantowych MOVPE; jednak ten sam nominalny skład, zbliżone energia emisji oraz energie wyższych stanów kompleksów ekscytonowych w porównaniu do próbki MBE sugerują, że zarówno dokładny skład, jak i geometria obu grup struktur są do siebie podobne. Zakłada się zatem porównywalną wartość T_Δ dla kropek kwantowych w obu grupach struktur.

Podczas ciągłego wzbudzenia kropki kwantowej światłem laserowym o określonej polaryzacji kołowej, w obecności zewnętrznego pola magnetycznego, może dochodzić do dynamicznej polaryzacji spinów jądrowych. Proces ten może prowadzić do zwiększenia uporządkowania populacji stanów spinowych jąder, określanego w literaturze anglojęzycznej jako *spin-cooling*. Efekt ten może spowodować wydłużenie czasu defazowania w porównaniu z pomiarem bez jego występowania. Możliwości techniczne nie pozwoliły na pomiar efektu Hanlego z modulowaną polaryzacją światła wzbudzającego oraz synchronizacją detekcji emisji

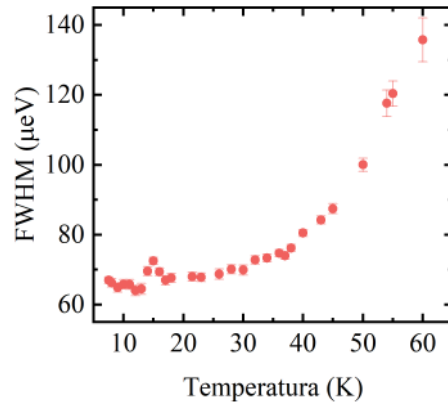


Rysunek 5.21: Zależność stopnia polaryzacji kołowej P_σ od czasu oświetlania próbki umieszczonej w zewnętrznym polu magnetycznym $B = 300$ mT.

o odpowiednich polaryzacjach. Doniesienia literaturowe pokazują, że przejście od modulacji do jej braku powoduje poszerzenie krzywej Hanlego. W przypadku zbioru kropek kwantowych InP/InGaP/GaAs było to 3-krotne poszerzenie krzywej Hanlego,¹¹⁷ z kolei dla pojedynczych kropek kwantowych InAs/GaAs poszerzenie krzywej Hanlego wzrosło nawet 20-krotnie; co więcej, obserwowano gwałtowną depolaryzację dla $B > 0,5$ T.¹¹⁸ Szersza krzywa Hanlego prowadzi do wyznaczenia krótszych czasów defazowania. Z tego powodu wyznaczone w tej pracy czasy można traktować jako dolną granicę czasu defazowania, a ograniczenie fluktuacji spinów jądrowych mogłoby wydłużyć mierzone czasy T_2^* . Co więcej, uzyskane w tej pracy krzywe Hanlego doprowadziły do wyznaczenia czasów defazowania spinów elektronów spodziewanych dla danych kropek kwantowych i zgodnych z teoretycznym przewidywaniem wpływu oddziaływania nadsubtelnego, zgodnie ze wzorem (5.4).

W przypadku występowania dynamicznej polaryzacji spinów jąder może również dochodzić do stopniowej zmiany orientacji polaryzacji spinu elektronu, obserwowanej jako narastanie P_σ w czasie trwania pomiaru w skutek sprzężenia pomiędzy polaryzacją spinów elektronów i jąder. Żeby zweryfikować, czy w przeprowadzonych eksperymentach obecny był obecny ten efekt, zbadano wpływ długotrwałego oświetlania próbki światłem o stałej polaryzacji kołowej w obecności zewnętrznego pola magnetycznego ($B = 300$ mT) na polaryzację emisji. Wyniki dla linii emisyjnej z próbki MOVPE przedstawiono na rys. 5.21. Kropkę kwantową wzbudzaną polaryzacją kołową prawoskrętną i mierzono intensywności dla dwóch polaryzacji kołowych emisji prowadzące do wyznaczenia P_σ . Pomiar powtarzano przez 40 min, co odpowiada czasowi pomiaru połowy krzywej Hanlego (dla jednego zwrotu pola magnetycznego). Nie zaobserwowano wyraźnej zależności P_σ od czasu wzbudzania próbki. Otrzymane wyniki sugerują zatem, że w badanej kropce kwantowej dynamiczna polaryzacja spinów jąder nie występuje w stopniu istotnym dla mierzonego P_σ , lub jej wpływ na wyniki pomiarów jest pomijalny. Obserwowany rozrzut wartości P_σ przypisano niestabilności układu oraz dużej niepewności zmierzonych intensywności emisji dla poszczególnych polaryzacji.

Pomiar efektu Hanlego w funkcji temperatury dla trzech trionów pozwolił na obserwację różnych zależności. W przypadku trionu CX1 zaobserwowano wzrost szerokości krzywej Hanlego, poprzedzony jej spadkiem (wzrostem czasu defazowania), przy czym nie zaobserwowano odwrócenia jej kształtu. Podobną zależność zaobserwowano dla dwóch energii wzbudzania, z dokładnością do znaku P_σ . Z kolei dla drugiego trionu z próbki MBE również zaobserwowano początkowy spadek szerokości krzywej, natomiast dla najwyższych temperatur (45 K i 55 K) krzywa Hanlego zmieniła kształt względem osi P_σ . Podobną sytuację zaobserwowano



Rysunek 5.22: Temperaturowa zależność poszerzenia linii emisyjnej CX1 — próbka MBE.

dla jednego trionu z próbki MOVPE, gdzie krzywa odwróciła się, natomiast same wartości P_σ pozostały ujemne. Dodatkowo, w tym przypadku szerokość krzywej jedynie rosła wraz ze wzrostem temperatury.

W celu identyfikacji mechanizmu powodującego wzrost czasu defazowania między temperaturą 20 K a 30 K, zmierzono widma fotoluminescencji dla trionu CX1 z próbki MBE przy wzbudzaniu nierezonansowym, w zakresie temperatur 7–60 K, z gęstym krokiem (1–5 K w zależności od zakresu temperatury). Wyznaczona szerokość linii emisyjnej CX1 w połowie wysokości (FWHM) w funkcji temperatury została przedstawiona na rys. 5.22. W zakresie temperatur 20–60 K zaobserwowano jedynie wzrost poszerzenia linii, świadczący o wpływie fononów na poszerzenie niejednorodne. Brak obserwacji lokalnego minimum w okolicy temperatury 30 K świadczy o tym, że lokalny wzrost czasu defazowania nie jest związany ze zmianą oddziaływania z fononami w tej temperaturze. Natomiast dla temperatur > 30 K, fonony zaczynają być dominującym mechanizmem defazowania spinu elektronu. Inną przyczyną wzrostu czasu defazowania może być zjawisko związane ze zwężeniem efektywnego rozkładu pola magnetycznego pochodzącego od spinów jąder atomowych (z ang. *motional narrowing*).^{119,120} Zjawisko to polega na dynamicznym uśrednianiu lokalnego pola magnetycznego w wyniku jego szybkich fluktuacji, co może prowadzić do wydłużenia czasu defazowania wraz ze wzrostem temperatury. Koncepcja ta wywodzi się ze spektroskopii rezonansu magnetycznego i opisuje zachowanie spinów doświadczających lokalnego pola magnetycznego zmiennego w czasie. W rozważanym przypadku jest nim spin rezydentnego elektronu, którego stan jest inicjalizowany w każdym procesie wzbudzenia trionu. Spin elektronu doświadcza fluktuującego pola nadsubtelnego pochodzącego od spinów jąder atomowych. Wraz ze wzrostem temperatury fluktuacje tego pola mogą zachodzić w krótszej skali czasowej, co prowadzi do jego efektywnego uśredniania w czasie. W rezultacie maleje efektywny rozrzut wartości pola Δ_B doświadczanego przez spin elektronu, co ogranicza jego defazowanie i prowadzi do wydłużenia czasu T_Δ , zgodnie z równaniem (5.4).

Zmiana kształtu krzywej w funkcji temperatury była obserwowana dla zbioru kropek kwantowych InP/InGaP/GaAs. Dla tych kropek krzywa Hanlego była złożeniem trzech Lorentzianów, których szerokość i amplituda zależały od oddzielnych procesów dekoherencji, przy czym najwcześniejsza krzywa dotyczyła defazowania spinu elektronu niebiorącego udziału w rekombinacji. Wywnioskowano, że wraz ze wzrostem temperatury zanikały kolejne mechanizmy, a relaksacja związana z obrotem spinów (powodująca NCP) została zdominowana przez defazowanie spowodowane oddziaływaniem nośników z fononami. W przypadku zaprezentowanych tutaj wyników nie obserwuje się dodatkowych składowych, sugerujących obecność

dodatkowych mechanizmów dekoherencji. Istnieje możliwość, że ich obserwacja wymagałaby zastosowania wyższych pól magnetycznych, niedostępnych w tej konfiguracji pomiaru, lub wyższej dokładności pomiaru, gdy zmiany zachodzą dla pola magnetycznego bliskiego zera.

Czas defazowania spinu elektronów obserwowany dla obu badanych próbek z kropkami kwantowymi InAs(P)/InP jest porównywalny z wartościami otrzymanymi dla innych kropek kwantowych z grupy półprzewodników III-V. Jak pokazano w tabeli 2.3, zarówno dla kropek emitujących fotony o długości fali $< 1 \mu\text{m}$, jak i w zakresie III okna telekomunikacyjnego, czasy defazowania są zwykle rzędu 1 ns. Jak pokazano w niniejszej pracy, głównym czynnikiem powodującym defazowanie elektronów w badanych kropkach kwantowych w niskich temperaturach jest oddziaływanie nadsubtelne. Jak wynika z równania (5.4), czas defazowania spowodowany tym oddziaływaniem zależy silnie od materiału kropki kwantowej. Duży spin atomów In powoduje silniejszy mechanizm defazowania. Oprócz składu kropki kwantowej, dużą rolę odgrywa jej geometria, a dokładniej liczba spinów jądrowych, z którymi oddziałuje elektron. Kropki kwantowe emitujące w podczerwieni telekomunikacyjnej cechują się większymi rozmiarami w porównaniu z kropkami kwantowymi emitującymi fale o długości $< 1 \mu\text{m}$. Zatem pomimo obecności atomów In w składzie badanych kropek kwantowych, stosunkowo duży rozmiar kropki kwantowej pozytywnie wpłynął na obserwowany czas defazowania, w konsekwencji czego otrzymano czasy defazowania zbliżone do tych dla kropek kwantowych opartych na GaAs. Badania temperaturowe pokazały, że dominujące dla niskich temperatur defazowanie spowodowane oddziaływaniem nadsubtelnym zostaje zdominowane przez oddziaływanie z fononami dla temperatur $> 30 \text{ K}$.

6. Podsumowanie

Przedmiotem rozprawy doktorskiej było zbadanie mechanizmów dekoherencji zachodzących w pojedynczych kropkach kwantowych emitujących w zakresie trzeciego okna telekomunikacyjnego. Do realizacji celów pracy wymagane było uruchomienie nowych stanowisk badawczych w Laboratorium Optycznej Spektroskopii Nanostruktur. Zaprojektowano i zbudowano układ do interferencji dwufotonowej oraz układ do pomiaru efektu Hanlego. Zbadano dwie grupy kropek kwantowych emitujących w zakresie III okna telekomunikacyjnego i wzrastanych w trybie Straskiego-Krastanowa: jedne metodą MBE, a drugie metodą MOVPE. **Uzyskane wyniki potwierdziły postawione tezy rozprawy, co przedstawiono w dalszej części podsumowania.**

Przeprowadzono wstępne pomiary optyczne służące do wyznaczenia podstawowych właściwości linii emisyjnych, tj. energii emisji, intensywności w nasyceniu oraz szerokości spektralnej. Przyporządkowano również emisję do odpowiednich kompleksów ekscytonowych. Na podstawie tych pomiarów wybrano odpowiednich kandydatów do badań nad koherencją nośników i ich spinów. Wstępne pomiary optyczne przeprowadzono przy wzbudzaniu nierezonansowym, czyli przy generowaniu nośników w materiale bariery potencjału. Pomiary fotoluminescencji wzbudzeniowej, służące do wyznaczania odpowiedniej energii wzbudzania w eksperymentach korelacji pojedynczych fotonów i pomiaru efektu Hanlego, zostały przeprowadzone w schemacie wzbudzania kwazirezonansowego do wyższych stanów wzbudzonych w kropkach kwantowych. Efektywne wzbudzanie nośników występowało dla ΔE w zakresie od 10 meV do 80 meV, przy czym zakres ten był ograniczony głównie zakresem przestrajania użytego lasera oraz dostępnością filtrów spektralnych.

W pomiarach korelacyjnych zbadano linię pochodzącą z rekombinacji kompleksu o charakterze bieksytonowym z próbki MBE oraz trionu z próbki MOVPE. Dla linii z próbki MBE wybrano wzbudzanie kwazirezonansowe o różnicy między energią wzbudzania a energią emisji równą $\Delta E = 32,5$ meV. Wartość prawdopodobieństwa emisji wielofotonowej, przy tym schemacie wzbudzania mocą odpowiadającą nasyceniu intensywności emisji, wyniosła $g_{\text{raw}}^{(0)}(0) = 0,0758(6)$. Pomiary interferencji dwufotonowej przeprowadzono dla dwóch różnych odległości czasowych między impulsami wzbudzającymi nośniki. Dla opóźnienia równego 13,1 ns widoczność interferencji wyniosła $V = 9,4(4)\%$, podczas gdy dla opóźnienia 5,3 ns, wartość ta wyniosła $V = 10,6(5)\%$, co oznacza 13-procentowy wzrost wartości przy przejściu do mniejszej odległości czasowej między impulsami wzbudzającymi. Na podstawie tej obserwacji stwierdzono, że jednym z efektów ograniczających widoczność interferencji jest rozmycie widmowe spowodowane fluktuacjami otoczenia ładunkowego zachodzącymi w skali nanosekund. Co więcej, w otrzymanych histogramach zaobserwowano grupowanie fotonów w skali kilkudziesięciu nanosekund, związane z migotaniem źródła, którego przyczyną jest obecność pułapek ładunkowych w otoczeniu kropki kwantowej, przechwytyjących wzbudzone nośniki. Warto zauważyć, że w literaturze brakuje wyników interferencji dwufotonowej dla kropek kwantowych wzrastanych metodą MBE w układzie materiałowym InAs(P)/InP. Zgodnie ze

stanem wiedzy autorki, jest to pierwsze doniesienie literaturowe dotyczące takich struktur i zostało zawarte również w manuskrypcie artykułu z ref. [98].

Dla badanego trionu z próbki MOVPE zarówno pomiar autokorelacji II rzędu, jak i interferencji dwufotonowej, przeprowadzono przy wzbudzaniu mocą odpowiadającą nasyceniu intensywności emisji oraz mocą 50-krotnie słabszą, światłem lasera o energii oddalonej od energii emisji o $\Delta E = 29$ meV. **Zmiana mocy promieniowania wzbudzającego wpłynęła na dynamikę nośników, potwierdzając jedną z postawionych tez.** Obniżenie mocy spowodowało spadek prawdopodobieństwa emisji wielofotonowej z $g_{\text{raw}}^{(2)}(0) = 0,220(60)$ do $g_{\text{raw}}^{(2)}(0) = 0,150(12)$ oraz nieznaczny wzrost widoczności interferencji z $V = 3,6(4)\%$ do $V = 5,6(6)\%$. Z jednej strony obniżenie mocy wzbudzania ograniczyło mechanizmy ponownego wychwytywania nośników (widoczne jako grupowanie fotonów w obrębie środkowego piksu), co wpłynęło pozytywnie na zmierzoną wartość $g_{\text{raw}}^{(2)}(0)$. Z drugiej strony niewielki wpływ obniżenia mocy na wyznaczoną wartość V sugeruje, że można zwiększać moc wzbudzenia do poziomu nasycenia bez istotnego pogorszenia stopnia nierozróżnialności, uzyskując tym samym możliwie wysoką częstość emisji nierozróżnialnych fotonów, istotną do praktycznych zastosowań. Wylimitowanie wpływu pułapek ładunkowych poprzez kontrolę otoczenia kropki kwantowej oraz skuteczniejsze filtrowanie emisji z danego stanu mogłoby wyraźnie poprawić uzyskany stopień nierozróżnialności pojedynczych fotonów, nawet przy wzbudzaniu w reżimie nasycenia intensywności linii emisyjnej.

Wartość V otrzymana dla linii z próbki MBE jest niemal 3-krotnie wyższa niż dla próbki MOVPE. Natomiast skorygowana wartość stopnia nierozróżnialności M_s , uwzględniająca niezerową wartość funkcji $g_{\text{raw}}^{(2)}(0)$, odwraca tę zależność. Dla próbki MBE otrzymano $M_s = 18,4(9)\%$, natomiast dla próbki MOVPE — $M_s = 33(11)\%$. Wynika z tego, że dla obu próbek $g_{\text{raw}}^{(2)}(0) > 0$ powoduje zawyżenie mierzalnego stopnia nierozróżnialności pojedynczych fotonów, przy czym dla linii z próbki MOVPE efekt ten był silniejszy (z powodu wyższej wartości $g_{\text{raw}}^{(2)}(0)$). Wyznaczony czas koherencji T_2 jest trzykrotnie dłuższy dla linii z próbki MOVPE ($T_2 = 389(94)$ ns) niż dla linii z próbki MBE ($T_2 = 108(25)$ ns). Jest to kolejny argument sugerujący, że badany stan bieksytonowy w próbce MOVPE może mieć większy potencjał jako źródło nierozróżnialnych fotonów, pod warunkiem ograniczenia prawdopodobieństwa emisji wielofotonowej oraz emisji tła. Obecność pułapek ładunkowych w otoczeniu badanych kropek kwantowych przejawiała się inaczej. W przypadku próbki MBE widoczne było grupowanie fotonów w skali kilkudziesięciu nanosekund, spowodowane migotaniem źródła, natomiast w przypadku próbki MOVPE grupowanie fotonów zachodziło w krótkiej skali czasowej, rzędu ~ 1 ns, i spowodowane było mechanizmem ponownego wychwytywania nośników. **Zatem potwierdzono tezę, że czas dekoherencji nośników w kropkach kwantowych jest determinowany zarówno przez ich oddziaływanie z otoczeniem, jak i przez dynamikę tego oddziaływania.**

Niestety, niewielka liczba uzyskanych wyników, brak danych dla tych samych kompleksów ekscytonowych oraz brak wyraźnej przewagi jednej z dwóch zmierzonych linii emisyjnych, nie pozwalają na wyciągnięcie jednoznacznych wniosków dotyczących wpływu metody wzrostu na koherencję stanów ekscytonowych w badanych kropkach kwantowych. Jednocześnie nie można wykluczyć, że właściwości wspólne dla obu próbek, takie jak skład materiałowy oraz tryb wzrostu Stranskiego-Krastanowa, mają większy wpływ na obserwowaną koherencję niż sama metoda epitaksji. **Potwierdzono tezę, że na podstawie pomiarów interferencji Honga–Ou–Mandela możliwe jest wyznaczenie czasów dekoherencji nośników w kropkach kwantowych InAs(P)/InP wzrastanych metodami epitaksji.**

Badania nad koherencją spinów nośników rozpoczęto ponownie od wstępnych pomiarów optycznych, służących zidentyfikowaniu trionów w widmie fotoluminescencji oraz określeniu

g -czynniki elektronów, a także optymalnych energii wzbudzenia kwazirezonansowego. Zaobserwowano ujemny stopień polaryzacji kołowej dla większości linii emisyjnych pochodzących z rekombinacji trionów. Dokładne badania P_σ w funkcji energii wzbudzenia pokazały, że dla trionów z obu próbek obserwuje się zależność znaku P_σ od energii wzbudzenia. Daje to możliwość optycznej orientacji spinu rezydentnego elektronu w ujemnym trionie poprzez kontrolę wzbudzenia nośników do odpowiednich stanów wyższych w kropce kwantowej. Procesy prowadzące do obrotu spinu zachodzą dla ΔE odpowiadającej energii podłużnego fononu optycznego bariery, a także sumy (lub różnicy) energii tego fononu i innych fononów (optycznych i akustycznych).⁷⁹ **Zatem potwierdzono, że energia promieniowania wzbudzającego wpływa na dynamikę spinów nośników oraz na ich dekoherencję.**

W pomiarach efektu Hanlego zaobserwowano różne kształty krzywej depolaryzacji emisji, z przewagą krzywych odzwierciedlających funkcję Lorentza, na podstawie których wyznaczono czasy defazowania spinów elektronów T_2^* . Niestandardowe krzywe Hanlego posłużyły jako obserwacje eksperymentalne, a ich wnikliwa interpretacja wymaga rozwinięcia opisu teoretycznego wykraczającego poza założenia tej rozprawy. Dla obu próbek wyznaczono zbliżone wartości czasów T_2^* , mieszczące się w zakresie od 0,5 do 1,5 ns, co jest zgodne z przewidywaniami teoretycznymi dla badanych kropek kwantowych dotyczącymi czasów defazowania spinów elektronów spowodowanych oddziaływaniem nadsubtelnym (~ 1 ns). Ponownie, na podstawie uzyskanej statystyki wywnioskowano, że metoda epitaksji nie wpłynęła na charakterystyczne czasy defazowania spinów elektronów w kropkach kwantowych InAs(P)/InP. Obecność atomów In, powodujących wzrost oddziaływania nadsubtelnego, jest zbalansowana przez duży rozmiar kropek kwantowych emitujących w zakresie podczerwieni telekomunikacyjnej. Dlatego, mimo obecności atomów In o dużym spinie jądrowym (9/2), otrzymane wartości T_2^* są porównywalne z tymi uzyskiwanymi dla kropek kwantowych na bazie GaAs. Daje to potencjał do realizacji protokołów inicjalizacji, kontroli i odczytu stanów spinowych dla spinów nośników w badanych kropkach kwantowych, które są skutecznie realizowane dla kropek w innych układach materiałowych. Pomiary efektu Hanlego na pojedynczych spinach nośników związanych w kropkach kwantowych emitujących w zakresie III okna telekomunikacyjnego zostały po raz pierwszy zreportowane w publikacji z ref. [81], powiązanej z tą rozprawą. **Efekt Hanlego umożliwił zatem wyznaczenie czasu defazowania spinu pojedynczego nośnika w kropce kwantowej emitującej w zakresie telekomunikacyjnym, co potwierdza jedną z postawionych tez.**

Pomiary temperaturowej zależności efektu Hanlego wykazały spadek czasu defazowania wraz ze wzrostem temperatury. Natomiast w przypadku trionu z próbki MBE zaobserwowano początkowy wzrost wartości T_2^* pomiędzy temperaturą 20 a 30 K. Przyporządkowano to efektowi *motional narrowing*, oznaczającemu zwężeniem efektywnego rozkładu pola magnetycznego pochodzącego od spinów jąder atomowych. Tę samą zależność T_2^* zaobserwowano dla obu trionów, dla których zbadano efekt Hanlego w funkcji temperatury. Oznacza to, że dla spinów nośników w kropkach kwantowych temperatura około 30 K może być bardziej optymalna od temperatury wrzenia ciekłego helu. Natomiast spadek T_2^* w wyższych temperaturach powiązano z oddziaływaniem z fononami prowadzącym do defazowania spinów.

Nawet o rząd krótsze czasy defazowania stanu ekscytonowego w porównaniu do czasu defazowania spinu są spodziewanym wynikiem. Do zachowania koherencji stanu ekscytonowego wymagana jest koherencja spinów nośników tworzących ten stan. Większa liczba stopni swobody może skrócić mierzony czas koherencji stanu ekscytonowego w porównaniu z czasem koherencji pojedynczego spinu nośnika. Uzyskano niezerowy stopień nierozróżnialności pojedynczych fotonów, przy pobudzaniu kwazirezonansowym oraz bez zastosowań struktur fotonicznych powodujących efekt Purcella. Z kolei, w przypadku spinów nośników uzyskano czasy defazowania porównywalne z tymi uzyskiwanymi dla kropek kwantowych

wzrastanych w innych układach materiałowych. Obie obserwacje potwierdziły tezę, że badane kropki kwantowe, emitujące w trzecim oknie telekomunikacyjnym, stanowią obiecującą platformę dla zastosowań w kwantowym przetwarzaniu informacji. Ponadto, potwierdzono, że rodzaj zastosowanej metody epitaksjalnego wzrostu w trybie Stranskiego-Krastanowa nie determinuje jednoznacznie właściwości badanych kropek kwantowych w zakresie ich parametrów optycznych i spinowych.

Bibliografia

- [1] Y. Arakawa i H. Sakaki, „Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current”, *Applied Physics Letters* **40**, s. 939–941 (1982), DOI: 10.1063/1.92959.
- [2] P. M. Petroff. „Epitaxial Growth and Electronic Structure of Self-Assembled Quantum Dots”. *Single Quantum Dots: Fundamentals, Applications, and New Concepts*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2003, s. 1–24. DOI: 10.1007/978-3-540-39180-7_1.
- [3] M. Z. M. Khan, T. K. Ng i B. S. Ooi, „Self-assembled InAs/InP quantum dots and quantum dashes: Material structures and devices”, *Progress in Quantum Electronics* **38**, s. 237–313 (2014), DOI: 10.1016/J.PQUANTELEC.2014.11.001.
- [4] D. Mowbray. „Inorganic Semiconductor Nanostructures”. *Nanoscale Science and Technology*. Red. R. W. Kelsall, I. W. Hamley i M. Geoghegan. John Wiley & Sons, Ltd, 2005, s. 130–202. DOI: 10.1002/0470020873.CH3.
- [5] J. Z. Zhang. „Optical Properties of Semiconductor Nanomaterials”. *Optical Properties and Spectroscopy of Nanomaterials*. World Scientific, 2009, s. 117–180. DOI: 10.1142/9789812836663_0005.
- [6] A. Mittelstädt, A. Schliwa i P. Klenovský, „Modeling electronic and optical properties of III–V quantum dots—selected recent developments”, *Light: Science & Applications* **11**, s. 17 (2022), DOI: 10.1038/s41377-021-00700-9.
- [7] O. Stier, M. Grundmann i D. Bimberg, „Electronic and optical properties of strained quantum dots modeled by 8-band k·p theory”, *Physical Review B* **59**, s. 5688 (1999), DOI: 10.1103/PhysRevB.59.5688.
- [8] N. Vukmirovi i L.-W. Wang, „Quantum Dots: Theory”, *Lawrence Berkeley National Laboratory, Materials Sciences* (2010).
- [9] P. Hawrylak i M. Korkusiński. „Electronic Properties of Self-Assembled Quantum Dots”. *Single Quantum Dots: Fundamentals, Applications, and New Concepts*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2003, s. 25–92. DOI: 10.1007/978-3-540-39180-7_2.
- [10] E. L. Ivchenko. *Optical spectroscopy of semiconductor nanostructures*. Harrow, U.K : Alpha Science, 2005, s. 1–427.
- [11] D. Bimberg, M. Grundmann i N. N. Ledentsov. „Modeling of Ideal and Real Quantum Dots”. *Quantum Dot Heterostructures*. Wiley, 1999, s. 95–197.
- [12] D. Shi, Z. Guo i N. Bedford. „Semiconductor Quantum Dots”. *Nanomaterials and Devices*. Micro and Nano Technologies. Oxford: William Andrew Publishing, 2015, s. 83–104. DOI: <https://doi.org/10.1016/B978-1-4557-7754-9.00004-4>.

-
- [13] 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. Klopfer i F. Schäfer, „Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots”, *Physical Review B* **65**, s. 195315 (2002), DOI: 10.1103/PhysRevB.65.195315.
- [14] A. Tartakovskii. „Spin Phenomena in Self-assembled Quantum Dots”. *Self-Assembled Quantum Dots*. Red. Z. M. Wang. New York, NY: Springer New York, 2008, s. 165–215. DOI: 10.1007/978-0-387-74191-8_6.
- [15] F. Adler, M. Geiger, A. Bauknecht, F. Scholz, H. Schweizer, M. H. Pilkuhn, B. Ohnesorge i A. Forchel, „Optical transitions and carrier relaxation in self assembled InAs/GaAs quantum dots”, *Journal of Applied Physics* **80**, s. 4019–4026 (1996), DOI: 10.1063/1.363361.
- [16] J. Sandmann, S. Grosse, H. Lipsanen, M. Sopanen i J. Ahopelto, „Recombination Processes in Strain-Induced InGaAs Quantum Dots”, *Il Nuovo Cimento D* **17**, s. 1699–1703 (1995), DOI: 10.1007/BF02457266.
- [17] T. K. Bracht, M. Cosacchi, T. Seidelmann, M. Cygorek, A. Vagov, V. M. Axt, T. Heindel i D. E. Reiter, „Swing-Up of Quantum Emitter Population Using Detuned Pulses”, *PRX Quantum* **2**, s. 040354 (2021), DOI: 10.1103/PRXQuantum.2.040354.
- [18] Y. Karli, F. Kappe, V. Remesh, T. K. Bracht, J. Münzberg, S. Covre Da Silva, T. Seidelmann, V. M. Axt, A. Rastelli, D. E. Reiter i G. Weihs, „SUPER Scheme in Action: Experimental Demonstration of Red-Detuned Excitation of a Quantum Emitter”, *Nano Letters* **22**, s. 6567–6572 (2022), DOI: 10.1021/acs.nanolett.2c01783.
- [19] P. Pereyra i S. Ulloa, „Magnetic-field and quantum confinement asymmetry effects on excitons”, *Physical Review B* **61**, s. 2128 (2000), DOI: 10.1103/PhysRevB.61.2128.
- [20] S. Walck i T. Reinecke, „Exciton diamagnetic shift in semiconductor nanostructures”, *Physical Review B* **57**, s. 9088 (1998), DOI: 10.1103/PhysRevB.57.9088.
- [21] K. L. Janssens, F. M. Peeters i V. A. Schweigert, „Magnetic-field dependence of the exciton energy in a quantum disk”, *Physical Review B* **63**, s. 205311 (2001), DOI: 10.1103/PhysRevB.63.205311.
- [22] Y. Léger, L. Besombes, L. Maingault i H. Mariette, „Valence-band mixing in neutral, charged, and Mn-doped self-assembled quantum dots” (), DOI: 10.1103/PhysRevB.76.045331.
- [23] A. V. Koudinov, I. A. Akimov, Y. G. Kusrayev i F. Henneberger, „Optical and magnetic anisotropies of the hole states in Stranski-Krastanov quantum dots”, *Physical Review B* **70**, s. 241305 (2004), DOI: 10.1103/PhysRevB.70.241305.
- [24] N. I. Cade, H. Gotoh, H. Kamada, H. Nakano i H. Okamoto, „Fine structure and magneto-optics of exciton, trion, and charged biexciton states in single InAs quantum dots emitting at 1.3 μm ”, *Physical Review B* **73**, s. 115322 (2006), DOI: 10.1103/PhysRevB.73.115322.
- [25] W. Rudno-Rudziński, M. Burakowski, J. P. Reithmaier, A. Musiał i M. Benyoucef, „Magneto-optical characterization of trions in symmetric InP-based quantum dots for quantum communication applications”, *Materials* **14**, s. 1–15 (2021), DOI: 10.3390/ma14040942.

-
- [26] A. J. Bennett, M. A. Pooley, Y. Cao, N. Sköld, I. Farrer, D. A. Ritchie i A. J. Shields, „Voltage tunability of single-spin states in a quantum dot”, *Nature Communications* **4**, s. 1522– (2013), DOI: 10.1038/ncomms2519.
- [27] G. Burkard, T. D. Ladd, A. Pan, J. M. Nichol i J. R. Petta, „Semiconductor spin qubits”, *Reviews of Modern Physics* **95**, s. 025003 (2023), DOI: 10.1103/RevModPhys.95.025003.
- [28] C. H. Bennett i G. Brassard, „Quantum cryptography: Public key distribution and coin tossing”, *Theoretical Computer Science* **560**, s. 7–11 (2014), DOI: 10.1016/J.TCS.2014.05.025.
- [29] A. K. Ekert, „Quantum cryptography based on Bell’s theorem”, *Physical Review Letters* **67**, s. 661 (1991), DOI: 10.1103/PhysRevLett.67.661.
- [30] H. K. Lo, X. Ma i K. Chen, „Decoy State Quantum Key Distribution”, *Physical Review Letters* **94**, s. 230504 (2005), DOI: 10.1103/PhysRevLett.94.230504.
- [31] H.-J. Briegel, W. Dür, J. I. Cirac i P. Zoller, „Quantum Repeaters: The Role of Imperfect Local Operations in Quantum Communication”, *Physical Review Letters* **81**, s. 5932–5935 (1998), DOI: 10.1103/PhysRevLett.81.5932.
- [32] L. Schweickert, K. D. Jöns, K. D. Zeuner, S. F. Covre Da Silva, H. Huang, T. Lettner, M. Reindl, J. Zichi, R. Trotta, A. Rastelli i V. Zwiller, „On-demand generation of background-free single photons from a solid-state source”, *Applied Physics Letters* **112**, s. 93106 (2018), DOI: 10.1063/1.5020038/36016.
- [33] Ł. Dusanowski, S. H. Kwon, C. Schneider i S. Höfling, „Near-Unity Indistinguishability Single Photon Source for Large-Scale Integrated Quantum Optics”, *Physical Review Letters* **122**, s. 173602 (2019), DOI: 10.1103/PhysRevLett.122.173602.
- [34] J. Clarke i F. K. Wilhelm, „Superconducting quantum bits”, *Nature* **453**, s. 1031–1042 (2008), DOI: 10.1038/nature07128.
- [35] J. I. Cirac i P. Zoller, „Quantum Computations with Cold Trapped Ions”, *Physical Review Letters* **74**, s. 4091 (1995), DOI: 10.1103/PhysRevLett.74.4091.
- [36] H. Häffner, C. F. Roos i R. Blatt, „Quantum computing with trapped ions”, *Physics Reports* **469**, s. 155–203 (2008), DOI: 10.1016/J.PHYSREP.2008.09.003.
- [37] M. Saffman, T. G. Walker i K. Mølmer, „Quantum information with Rydberg atoms”, *Reviews of Modern Physics* **82**, s. 2313 (2010), DOI: 10.1103/RevModPhys.82.2313.
- [38] J. A. Jones, „Quantum computing with NMR”, *Progress in Nuclear Magnetic Resonance Spectroscopy* **59**, s. 91–120 (2011), DOI: 10.1016/J.PNMRS.2010.11.001.
- [39] J. L. O’Brien, „Optical quantum computing”, *Science* **318**, s. 1567–1570 (2007), DOI: 10.1126/SCIENCE.1142892.
- [40] J. Wang, F. Sciarrino, A. Laing i M. G. Thompson, „Integrated photonic quantum technologies”, *Nature Photonics* **14**, s. 273–284 (2019), DOI: 10.1038/s41566-019-0532-1.
- [41] D. Karamitros, T. McKelvey i A. Pilaftsis, „Quantum coherence of critical unstable two-level systems”, *Physical Review D* **108**, s. 016006 (2023), DOI: 10.1103/PhysRevD.108.016006.
- [42] B. Vest i L. Jacubowicz, „Two-photon interference and the Hong-Ou-Mandel effect”, *Photoniques* **125**, s. 24–28 (2024), DOI: 10.1051/photon/202312524.

- [43] S. M. Barnett, J. Jeffers, D. Pegg, O. Jedrkiewicz i R. Loudon, „Quantum retrodiction”, *IQEC, International Quantum Electronics Conference Proceedings*, s. 1 (2000), DOI: 10.1007/978-3-319-04063-9_1.
- [44] H. Fearn i R. Loudon, „Theory of two-photon interference”, *Journal of the Optical Society of America B* **6**, s. 917 (1989), DOI: 10.1364/JOSAB.6.000917.
- [45] C. K. Hong, Z. Y. Ou i L. Mandel, „Measurement of subpicosecond time intervals between two photons by interference”, *Phys. Rev. Lett.* **59**, s. 2044–2046 (1987), DOI: 10.1103/PhysRevLett.59.2044.
- [46] C. Santori, D. Fattal, J. Vučković, G. S. Solomon i Y. Yamamoto, „Indistinguishable photons from a single-photon device”, *Nature* **419**, s. 594–597 (2002), DOI: 10.1038/nature01086.
- [47] S. F. C. da Silva, G. Undeutsch, B. Lehner, S. Manna, T. M. Krieger, M. Reindl, C. Schimpf, R. Trotta i A. Rastelli, „GaAs quantum dots grown by droplet etching epitaxy as quantum light sources”, *Applied Physics Letters* **119** (2021), DOI: 10.1063/5.0057070/1065095.
- [48] Y. J. Wei, Y. M. He, M. C. Chen, Y. N. Hu, Y. He, D. Wu, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, C. Y. Lu i J. W. Pan, „Deterministic and robust generation of single photons from a single quantum dot with 99.5% indistinguishability using adiabatic rapid passage”, *Nano Letters* **14**, s. 6515–6519 (2014), DOI: 10.1021/NL503081N.
- [49] P. Holewa, D. A. Vajner, E. Zięba-Ostój, M. Wasiluk, B. Gaál, A. Sakanas, M. Burakowski, P. Mrowiński, B. Krajnik, M. Xiong, K. Yvind, N. Gregersen, A. Musiał, A. Huck, T. Heindel, M. Syperek i E. Semenova, „High-throughput quantum photonic devices emitting indistinguishable photons in the telecom C-band”, *Nature Communications* **15** (2024), DOI: 10.1038/s41467-024-47551-7.
- [50] K. Takemoto, Y. Nambu, T. Miyazawa, Y. Sakuma, T. Yamamoto, S. Yorozu i Y. Arakawa, „Quantum key distribution over 120 km using ultrahigh purity single-photon source and superconducting single-photon detectors”, *Scientific Reports* **5**, s. 1–7 (2015), DOI: 10.1038/srep14383.
- [51] N. Hauser, M. Bayerbach, J. Kaupp, Y. Reum, G. Peniakov, J. Michl, M. Kamp, T. Huber-Loyola, A. T. Pfenning, S. Höfling i S. Barz, „Deterministic and highly indistinguishable single photons in the telecom C-band”, *Nature Communications* **17**, s. 537– (2026), DOI: 10.1038/s41467-026-68336-0.
- [52] R. Behrends, M. v. Helversen, P. K. Saha, L. Rickert, K. Kaymazlar, M. Lach, N. D. Kewitz, J. Kaupp, Y. Reum, T. Huber-Loyola, S. Höfling, A. Pfenning i T. Heindel, „Highly-Indistinguishable Single-Photons at 1550 nm from a Two-photon Resonantly Excited Purcell-enhanced Quantum Dot”, *arXiv:2602.06140* (2026).
- [53] J. Kim, J. Kaupp, Y. Reum, G. Peniakov, J. Michl, F. Kohr, M. Emmerling, M. Kamp, Y. H. Cho, T. Huber-Loyola, S. Höfling i A. T. Pfenning, „Two-Photon Interference from an InAs Quantum Dot Emitting in the Telecom C-Band”, *Advanced Quantum Technologies* **8**, e2500069 (2025), DOI: 10.1002/qute.202500069.
- [54] R. Joos, S. Bauer, C. Rupp, S. Kolatschek, W. Fischer, C. Nawrath, P. Vijayan, R. Sittig, M. Jetter, S. L. Portalupi i P. Michler, „Coherently and Incoherently Pumped Telecom C-Band Single-Photon Source with High Brightness and Indistinguishability”, *Nano Letters* **24**, s. 8626–8633 (2024), DOI: 10.1021/ACS.NANOLETT.4C01813.

-
- [55] D. A. Vajner, P. Holewa, E. Zięba-Ostój, M. Wasiluk, M. von Helversen, A. Sakanas, A. Huck, K. Yvind, N. Gregersen, A. Musiał, M. Syperek, E. Semenova i T. Heindel, „On-Demand Generation of Indistinguishable Photons in the Telecom C-Band Using Quantum Dot Devices”, *ACS Photonics* **11**, s. 339–347 (2024), DOI: 10.1021/acsp Photonics.3c00973.
- [56] C. Nawrath, R. Joos, S. Kolatschek, S. Bauer, P. Pruy, F. Hornung, J. Fischer, J. Huang, P. Vijayan, R. Sittig, M. Jetter, S. L. Portalupi i P. Michler, „Bright Source of Purcell-Enhanced, Triggered, Single Photons in the Telecom C-Band”, *Advanced Quantum Technologies* **6** (2023), DOI: 10.1002/qute.202300111.
- [57] C. Nawrath, H. Vural, J. Fischer, R. Schaber, S. L. Portalupi, M. Jetter i P. Michler, „Resonance fluorescence of single In(Ga)As quantum dots emitting in the telecom C-band”, *Applied Physics Letters* **118** (2021), DOI: 10.1063/5.0048695/238987.
- [58] E. M. Purcell, H. C. Torrey i R. V. Pound, „Resonance Absorption by Nuclear Magnetic Moments in a Solid”, *Physical Review* **69**, s. 37 (1946), DOI: 10.1103/PhysRev.69.37.
- [59] J. Fischer, M. Trif, W. A. Coish i D. Loss, „Spin interactions, relaxation and decoherence in quantum dots”, *Solid State Communications* **149**, s. 1443–1450 (2009), DOI: 10.1016/J.SSC.2009.04.033.
- [60] R. Hanson, L. P. Kouwenhoven, J. R. Petta, S. Tarucha i L. M. Vandersypen, „Spins in few-electron quantum dots”, *Reviews of Modern Physics* **79**, s. 1217 (2007), DOI: 10.1103/RevModPhys.79.1217.
- [61] I. A. Merkulov, A. L. Efros i M. Rosen, „Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots”, *Physical Review B* **65**, s. 2053091–2053098 (2002), DOI: 10.1103/PhysRevB.65.205309.
- [62] B. Gotschy, G. Denninger, H. Obloh, W. Wilkening i J. Schneider, „Overhauser shift and dynamic nuclear polarization in InP”, *Solid State Communications* **71**, s. 629–632 (1989), DOI: 10.1016/0038-1098(89)90551-6.
- [63] E. A. Chekhovich, M. N. Makhonin, J. Skiba-Szymanska, A. B. Krysa, V. D. Kulakovskii, M. S. Skolnick i A. I. Tartakovskii, „Dynamics of optically induced nuclear spin polarization in individual InP/Ga_xIn_{1-x}P quantum dots”, *Physical Review B* **81**, s. 245308 (2010), DOI: 10.1103/PhysRevB.81.245308.
- [64] E. A. Chekhovich, M. M. Glazov, A. B. Krysa, M. Hopkinson, P. Senellart, A. Lemaitre, M. S. Skolnick i A. I. Tartakovskii, „Element-sensitive measurement of the hole–nuclear spin interaction in quantum dots”, *Nature Physics* **9**, s. 74–78 (2012), DOI: 10.1038/nphys2514.
- [65] J. Fischer, W. A. Coish, D. V. Bulaev i D. Loss, „Spin decoherence of a heavy hole coupled to nuclear spins in a quantum dot”, *Physical Review B* **78**, s. 155329 (2008), DOI: 10.1103/PhysRevB.78.155329.
- [66] J. Hübner i M. Oestreich. „Time-Resolved Spin Dynamics and Spin Noise Spectroscopy”. *Springer Series in Solid-State Sciences*. T. 157. Springer Science i Business Media Deutschland GmbH, 2017, s. 131–154. DOI: 10.1007/978-3-319-65436-2_5.
- [67] D. Heiss, S. Schaeck, H. Huebl, M. Bichler, G. Abstreiter, J. J. Finley, D. V. Bulaev i D. Loss, „Observation of extremely slow hole spin relaxation in self-assembled quantum dots”, *Physical Review B* **76**, s. 241306 (2007), DOI: 10.1103/PhysRevB.76.241306.

- [68] G. Peniakov, J. M. Michl, M. Helal, R. Joos, M. Jetter, S. L. Portalupi, P. Michler, S. Höfling i T. Huber-Loyola, „Initialization of neutral and charged exciton spin states in a telecom-emitting quantum dot”, *Physical Review B* **112**, s. 085422 (2025), DOI: 10.1103/3qh7-b696.
- [69] I. A. Yugova, M. M. Glazov, E. L. Ivchenko i A. L. Efros, „Pump-probe Faraday rotation and ellipticity in an ensemble of singly charged quantum dots”, *Physical Review B* **80**, s. 104436 (2009), DOI: 10.1103/PhysRevB.80.104436.
- [70] M. Cizauskas, E. M. Sala, J. Heffernan, A. M. Fox, M. Bayer i A. Greilich, „Spin properties in droplet epitaxy grown telecom quantum dots”, *Physical Review B* **112**, s. 165412 (2025), DOI: 10.1103/bm22-smcp.
- [71] S. Michaelis De Vasconcellos, S. Gordon, M. Bichler, T. Meier i A. Zrenner, „Coherent control of a single exciton qubit by optoelectronic manipulation”, *Nature Photonics* **4**, s. 545–548 (2010), DOI: 10.1038/nphoton.2010.124.
- [72] J. M. Michl, R. Hekmati, M. Helal, G. Peniakov, Y. Reum, J. Kaupp, Q. Buchinger, J. Kim, A. T. Pfenning, Y.-H. Cho, S. Höfling i T. Huber-Loyola, „A Spin-Photon Interface in the Telecom C-Band with Long Hole Spin Dephasing Time”, *arXiv:2512.19561* (2025).
- [73] Y. Serov, A. Galimov, D. S. Smirnov, M. Rakhlin, N. Leppenen, G. Klimko, S. Sorokin, I. Sedova, D. Berezina, Y. Salii, M. Kulagina, Y. Zadiranov, S. Troshkov, T. V. Shubina i A. A. Toropov, „Hidden anisotropy controls spin-photon entanglement in a charged quantum dot”, *Physical Review Applied* **23**, s. 044019 (2025), DOI: 10.1103/PhysRevApplied.23.044019.
- [74] A. N. Kosarev, H. Rose, S. V. Poltavtsev, M. Reichelt, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, M. Bayer, T. Meier i I. A. Akimov, „Accurate photon echo timing by optical freezing of exciton dephasing and rephasing in quantum dots”, *Communications Physics* **3**, s. 228– (2020), DOI: 10.1038/s42005-020-00491-2.
- [75] R. Stockill, C. Le Gall, C. Matthiesen, L. Huthmacher, E. Clarke, M. Hugues i M. Atatüre, „Quantum dot spin coherence governed by a strained nuclear environment”, *Nature Communications* **7**, s. 12745 (2016), DOI: 10.1038/ncomms12745.
- [76] W. Hanle, „Über magnetische Beeinflussung der Polarisation der Resonanzfluoreszenz”, *Zeitschrift für Physik* **30**, s. 93–105 (1924), DOI: 10.1007/BF01331827.
- [77] M. Ikezawa, B. Pal, Y. Masumoto, I. V. Ignatiev, S. Y. Verbin i I. Y. Gerlovin, „Sub-millisecond electron spin relaxation in InP quantum dots”, *Physical Review B* **72**, s. 153302 (2005), DOI: 10.1103/PhysRevB.72.153302.
- [78] I. V. Ignatiev, S. Y. Verbin, I. Y. Gerlovin, R. V. Cherbunin i Y. Masumoto, „Negative circular polarization of InP QD luminescence: Mechanism of formation and main regularities”, *Optics and Spectroscopy* **106**, s. 375–387 (2009), DOI: 10.1134/S0030400X09030114.
- [79] P. Podemski, M. Gawelczyk, P. Wyborski, H. Salamon, M. Burakowski, A. Musiał, J. P. Reithmaier, M. Benyoucef i G. Sk, „Spin memory effect in charged single telecom quantum dots”, *Optics Express* **29**, s. 34024 (2021), DOI: 10.1364/oe.438708.
- [80] Y. Masumoto, S. Oguchi, B. Pal i M. Ikezawa, „Spin dephasing of doped electrons in charge-tunable InP quantum dots: Hanle-effect measurements”, *Physical Review B* **74**, s. 205332 (2006), DOI: 10.1103/PhysRevB.74.205332.

-
- [81] M. Wasiluk, H. Janowska, A. Musiał, J. P. Reithmaier, M. Benyoucef i W. Rudno-Rudziński, „Probing electron spin dynamics in single telecom InAs(P)/InP quantum dots using the Hanle effect”, *Applied Physics Letters* **127** (2025), DOI: 10.1063/5.0291044/3373029.
- [82] M. Kroutvar, Y. Ducommun, D. Heiss, M. Bichler, D. Schuh, G. Abstreiter i J. J. Finley, „Optically programmable electron spin memory using semiconductor quantum dots”, *Nature* **432**, s. 81–84 (2004), DOI: 10.1038/nature03008.
- [83] L. C. Camenzind, L. Yu, P. Stano, J. D. Zimmerman, A. C. Gossard, D. Loss i D. M. Zumbühl, „Hyperfine-phonon spin relaxation in a single-electron GaAs quantum dot”, *Nature Communications* **9**, s. 3454– (2018), DOI: 10.1038/s41467-018-05879-x.
- [84] R. J. Epstein, D. T. Fuchs, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff i D. D. Awschalom, „Hanle effect measurements of spin lifetimes in InAs self-assembled quantum dots”, *Applied Physics Letters* **78**, s. 733–735 (2001), DOI: 10.1063/1.1344565.
- [85] M. S. Kuznetsova, K. Flisinski, I. Y. Gerlovin, I. V. Ignatiev, K. V. Kavokin, S. Y. Verbin, D. R. Yakovlev, D. Reuter, A. D. Wieck i M. Bayer, „Hanle effect in (In,Ga)As quantum dots: Role of nuclear spin fluctuations”, *Physical Review B* **87**, s. 235320 (2013), DOI: 10.1103/PhysRevB.87.235320.
- [86] D. S. Smirnov, E. A. Zhukov, D. R. Yakovlev, E. Kirstein, M. Bayer i A. Greilich, „Spin polarization recovery and Hanle effect for charge carriers interacting with nuclear spins in semiconductors”, *Physical Review B* **102** (2020), DOI: 10.1103/PhysRevB.102.235413.
- [87] 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 i I. A. Merkulov, „Optical pumping of the electronic and nuclear spin of single charge-tunable quantum dots”, *Physical Review Letters* **94** (2005), DOI: 10.1103/PhysRevLett.94.047402.
- [88] A. V. Mikhailov, V. V. Belykh, D. R. Yakovlev, P. S. Grigoryev, J. P. Reithmaier, M. Benyoucef i M. Bayer, „Electron and hole spin relaxation in InP-based self-assembled quantum dots emitting at telecom wavelengths”, *Physical Review B* **98** (2018), DOI: 10.1103/PhysRevB.98.205306.
- [89] P. Laccotripes, J. Huang, G. Shooter, A. Barbiero, M. S. Winnel, D. A. Ritchie, A. J. Shields, T. Müller i R. Mark Stevenson, „An entangled photon source for the telecom C-band based on a semiconductor-confined spin”, *arXiv:2507.01648* (2025).
- [90] L. Zavorski, N. Shofer, J. H. Bodey, S. Manna, G. Gillard, M. H. Appel, C. Schimpf, S. F. Covre da Silva, J. Jarman, G. Delamare, G. Park, U. Haeusler, E. A. Chekhovich, A. Rastelli, D. A. Gangloff, M. Atatüre i C. Le Gall, „Ideal refocusing of an optically active spin qubit under strong hyperfine interactions”, *Nature Nanotechnology* **18**, s. 257–263 (2023), DOI: 10.1038/s41565-022-01282-2.
- [91] G. N. Nguyen, C. Spinnler, M. R. Hogg, L. Zhai, A. Javadi, C. A. Schrader, M. Erbe, M. Wyss, J. Ritzmann, H. G. Babin, A. D. Wieck, A. Ludwig i R. J. Warburton, „Enhanced Electron-Spin Coherence in a GaAs Quantum Emitter”, *Physical Review Letters* **131**, s. 210805 (2023), DOI: 10.1103/PhysRevLett.131.210805.
- [92] Ł. Dusanowski, C. Nawrath, S. L. Portalupi, M. Jetter, T. Huber, S. Klemmt, P. Michler i S. Höfling, „Optical charge injection and coherent control of a quantum-dot spin-qubit emitting at telecom wavelengths”, *Nature Communications* **13**, s. 748– (2022), DOI: 10.1038/s41467-022-28328-2.

- [93] A. Thoma, P. Schnauber, M. Gschrey, M. Seifried, J. Wolters, J.-H. Schulze, A. Strittmatter, S. Rodt, A. Carmele, A. Knorr, T. Heindel i S. Reitzenstein, „Exploring Dephasing of a Solid-State Quantum Emitter via Time- and Temperature-Dependent Hong-Ou-Mandel Experiments”, *Physical Review Letters* **116**, s. 033601 (2016), DOI: 10.1103/PhysRevLett.116.033601.
- [94] M. Benyoucef, M. Yacob, J. P. Reithmaier, J. Kettler i P. Michler, „Telecom-wavelength ($1.5\ \mu\text{m}$) single-photon emission from InP-based quantum dots”, *Applied Physics Letters* **103** (2013), DOI: 10.1063/1.4825106/25714.
- [95] M. Yacob, J. P. Reithmaier i M. Benyoucef, „Low-density InP-based quantum dots emitting around the $1.5\ \mu\text{m}$ telecom wavelength range”, *Applied Physics Letters* **104**, s. 022113 (2014), DOI: 10.1063/1.4861940.
- [96] A. Kors, J. P. Reithmaier i M. Benyoucef, „Telecom wavelength single quantum dots with very small excitonic fine-structure splitting”, *Applied Physics Letters* **112**, s. 172102 (2018), DOI: 10.1063/1.5023184.
- [97] P. Holewa, A. Sakanas, U. M. Gür, P. Mrowiński, A. Huck, B. Y. Wang, A. Musiał, K. Yvind, N. Gregersen, M. Syperek i E. Semenova, „Bright Quantum Dot Single-Photon Emitters at Telecom Bands Heterogeneously Integrated on Si”, *ACS Photonics* **9**, s. 2273–2279 (2022), DOI: 10.1021/ACSPHOTONICS.2C00027.
- [98] M. Wasiluk, A. Musiał, P. Mrowiński, J. P. Reithmaier, M. Benyoucef, W. Rudno-Rudziński, M. Wasiluk, A. Musiał, P. Mrowiński, W. Rudno-Rudziński, J. P. Reithmaier i M. Benyoucef, „Two-photon interference from as-grown InAsP/InP quantum dots under detuned excitation”, *arXiv:2607.26957* (2026).
- [99] G. Sęk, A. Musiał, P. Podemski i J. Misiewicz, „On the applicability of a few level rate equation model to the determination of exciton versus biexciton kinetics in quasi-zero-dimensional structures”, *Journal of Applied Physics* **108** (2010), DOI: 10.1063/1.3467002/372297.
- [100] C. C. Ruiz Madera, P. Holewa, P. Wyborski, M. Xiong, B. Munkhbat i E. Semenova, „Telecom-band site-controlled quantum dots with engineered low fine-structure splitting”, *arXiv:2606.26060* (2026).
- [101] F. Hu, Z. Cao, C. Zhang, X. Wang i M. Xiao, „Defect-Induced Photoluminescence Blinking of Single Epitaxial InGaAs Quantum Dots”, *Scientific Report* **5**, s. 8898 (2015), DOI: 10.1038/srep08898.
- [102] C. Santori, M. Pelton, G. Solomon, Y. Dale i Y. Yamamoto, „Triggered Single Photons from a Quantum Dot”, *Physical Review Letters* **86**, s. 1502 (2001), DOI: 10.1103/PhysRevLett.86.1502.
- [103] M.-E. Pistol, P. Castrillo, D. Hessman, J. A. Prieto i L. Samuelson, „Random telegraph noise in photoluminescence from individual self-assembled quantum dots”, *Physical Review B* **59**, s. 10725 (1999), DOI: 10.1103/PhysRevB.59.10725.
- [104] H. D. Robinson i B. B. Goldberg, „Light-induced spectral diffusion in single self-assembled quantum dots”, *Physical Review B* **61**, R5086(R) (2000), DOI: 10.1103/PhysRevB.61.R5086.
- [105] M. Sugisaki, H.-W. Ren, K. Nishi i Y. Masumoto, „Fluorescence Intermittency in Self-Assembled InP Quantum Dots”, *Physical Review Letters* **86**, s. 4883–4886 (2001), DOI: 10.1103/PhysRevLett.86.4883.

-
- [106] P. Mudi, A. Barua, K. Gaur, S. Wilksen, A. Steinhoff, S. Wijitpatima, S. Tripathi, J. Ritzmann, A. D. Wieck, S. Rodt, C. Gies, A. Ludwig i S. Reitzenstein, „Enhancement of Indistinguishable-Photon Emission from a GaAs Quantum Dot via Charge-Noise Suppression”, *Physical Review Letters* **136**, s. 066903 (2026), DOI: 10.1103/cxvv-1v4b.
- [107] A. Carmele i S. Reitzenstein, „Non-Markovian features in semiconductor quantum optics: Quantifying the role of phonons in experiment and theory”, *Nanophotonics* **8**, s. 655–683 (2019), DOI: 10.1515/NANOPH-2018-0222/XML.
- [108] K. E. Dorfman i S. Mukamel, „Indistinguishability and correlations of photons generated by quantum emitters undergoing spectral diffusion”, *Scientific Reports* **4**, s. 3996– (2014), DOI: 10.1038/srep03996.
- [109] P. H. Borchers, G. F. Alfrey, A. D. Woods i D. H. Saunderson, „Phonon dispersion curves in indium phosphide”, *Journal of Physics C: Solid State Physics* **8**, s. 2022 (1975), DOI: 10.1088/0022-3719/8/13/011.
- [110] T. Smółka, K. Posmyk, M. Wasiluk, P. Wyborski, M. Gawęlczyk, P. Mrowiński, M. Mikulicz, A. Zielińska, J. P. Reithmaier, A. Musiał i M. Benyoucef, „Optical Quality of InAs/InP Quantum Dots on Distributed Bragg Reflector Emitting at 3rd Telecom Window Grown by Molecular Beam Epitaxy”, *Materials* **14**, s. 6270 (2021), DOI: 10.3390/MA14216270.
- [111] P. Holewa, M. Gawęlczyk, C. Ciostek, P. Wyborski, S. Kadkhodazadeh, E. Semenova i M. Syperek, „Optical and electronic properties of low-density InAs/InP quantum-dot-like structures designed for single-photon emitters at telecom wavelengths”, *Physical Review B* **101**, s. 195304 (2020), DOI: 10.1103/PhysRevB.101.195304.
- [112] H. Ollivier, S. E. Thomas, S. C. Wein, I. M. De Buy Wenniger, N. Coste, J. C. Loredó, N. Somaschi, A. Harouri, A. Lemaitre, I. Sagnes, L. Lanco, C. Simon, C. Anton, O. Krebs i P. Senellart, „Hong-Ou-Mandel Interference with Imperfect Single Photon Sources”, *Physical Review Letters* **126**, s. 063602 (2021), DOI: 10.1103/PhysRevLett.126.063602.
- [113] M. Müller, S. Bounouar, K. D. Jöns, M. Glässl i P. Michler, „On-demand generation of indistinguishable polarization-entangled photon pairs”, *Nature Photonics* **8**, s. 224–228 (2014), DOI: 10.1038/nphoton.2013.377.
- [114] C. R. Menyuk, „Nonlinear Pulse Propagation in Birefringent Optical Fibers”, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **23**, s. 174–176 (1987), DOI: 10.1109/JQE.1987.1073308.
- [115] Y. Takushima, S. Yamashita, K. Kikuchi i K. Hotate, „Polarization-stable and single-frequency fiber lasers”, *Journal of Lightwave Technology* **16**, s. 661–668 (1998), DOI: 10.1109/50.664080.
- [116] J. van Bree, A. Y. Silov, P. M. Koenraad, M. E. Flatté i C. E. Pryor, „G-factors and diamagnetic coefficients of electrons, holes, and excitons in InAs/InP quantum dots”, *Physical Review B* **85**, s. 165323 (2012), DOI: 10.1103/PhysRevB.85.165323.
- [117] R. I. Dzhoiev i V. L. Korenev, „Stabilization of the electron-nuclear spin orientation in quantum dots by the nuclear quadrupole interaction”, *Physical Review Letters* **99** (2007), DOI: 10.1103/PhysRevLett.99.037401.

- [118] O. Krebs, P. Maletinsky, T. Amand, B. Urbaszek, A. Lemaître, P. Voisin, X. Marie i A. Imamoglu, „Anomalous Hanle Effect due to Optically Created Transverse Overhauser Field in Single InAs/GaAs Quantum Dots”, *Physical Review Letters* **104**, s. 056603 (2010), DOI: 10.1103/PhysRevLett.104.056603.
- [119] K. E. Rönnburg, E. Mohler, H. G. Roskos, K. Ortner, C. R. Becker i L. W. Molenkamp, „Motional-Narrowing-Type Dephasing of Electron and Hole Spins of Itinerant Excitons in Magnetically Doped II-VI Bulk Semiconductors”, *Physical Review Letters* **96**, s. 117203 (2006), DOI: 10.1103/PhysRevLett.96.117203.
- [120] R. de Sousa i S. Das Sarma, „Theory of nuclear-induced spectral diffusion: Spin decoherence of phosphorus donors in Si and GaAs quantum dots”, *Physical Review B* **68**, s. 115322 (2003), DOI: 10.1103/PhysRevB.68.115322.

Spis rysunków

1.1	Schemat wzrostu epitaksjalnego w trzech trybach	2
1.2	Funkcje gęstości stanów nośników dla układów o różnych wymiarowościach.	4
1.3	Schemat kropki kwantowej w różnych konfiguracjach nośników	8
1.4	Schemat stanów ekscytonu z podziałem na stany jasne i ciemne	10
1.5	Kaskada rekombinacji promienistej biekscyton-ekscyton.	11
1.6	Reguły wyboru przejść optycznych dla trionu ujemnego i dodatniego	11
1.7	Typowe schematy wzbudzania nośników w kropkach kwantowych	12
1.8	Schematycznie przedstawiona zmiana rozszczepienia Zeemana ekscytonu neutralnego w funkcji zewnętrznego pola magnetycznego przyłożonego w konfiguracji Faradaya i Voigta	15
1.9	Rozszczepienia Zeemana trionu w konfiguracji Faradaya i Voigta	16
2.1	Reprezentacja kubitów na sferze Blocha.....	22
2.2	Podział źródeł światła ze względu na przebieg funkcji $g^{(2)}(\tau)$	25
2.3	Schemat pomiaru funkcji autokorelacji drugiego rzędu	25
2.4	Schemat pomiaru interferencji dwufotonowej oraz obrazowe przedstawienie efektu HOM	27
2.5	Przykładowy histogram HOM dla częściowo rozróżnialnych fotonów.....	30
2.6	Spin elektronu oddziałujący ze spinami jądrowymi w kropce kwantowej.....	32
2.7	Ewolucja spinu na sferze Blocha.....	36
2.8	Mechanizm tworzenia ujemnego stopnia polaryzacji kołowej.....	38
2.9	Schemat ilustrujący wpływ precesji Larmora i defazowania na rzut wektora spinu na oś z	40
3.1	Układ do interferencji dwufotonowej.....	44
3.2	Układ do pomiaru efektu Hanlego	46
3.3	Zdjęcia przedstawiające elementy dorobione do kriostatu.	47
3.4	Zdjęcie rozwiązania umożliwiającego ruch obiektywu względem płaszczyzny próbki.....	48
3.5	Schemat struktury zawierającej kropki kwantowe InAs(P)/InP wzrastanej metodą MBE.	49
3.6	Schemat struktury zawierającej kropki kwantowe InAs(P)/InP wzrastanej metodą MOVPE.	50
4.1	Widma fotoluminescencji wzbudzeniowej — próbka MBE	54
4.2	Zależność emisji od gęstości mocy wzbudzania przy wzbudzaniu nierezonansowym — próbka MBE.....	55
4.3	Widma fotoluminescencji rozdzielczej polaryzacyjnie — próbka MBE.	56
4.4	Histogram funkcji $g^{(2)}(\tau)$ — próbka MBE.....	58
4.5	Zanik fotoluminescencji w funkcji czasu.....	59

4.6	Histogram interferencji dwufotonowej dla opóźnienia między impulsami laserowymi równego 13,1 ns — próbka MBE.	61
4.7	Opóźnienia między parami impulsów wzbudzających 13,1 ns, z opóźnieniem między impulsami w ramach jednej pary 5,3 ns.	63
4.8	Histogram interferencji dwufotonowej dla opóźnienia między impulsami laserowymi równego 5,3 ns — próbka MBE.	64
4.9	Widma fotoluminescencji wzbudzeniowej — próbka MOVPE.	67
4.10	Wzbudzanie nierezonansowe w funkcji mocy wzbudzania — próbka MOVPE.	68
4.11	Histogram funkcji $g^{(2)}$ dla mocy wzbudzania $P = P_{\text{sat}}$ — próbka MOVPE.	69
4.12	Histogram funkcji $g^{(2)}$ dla mocy wzbudzania $P = 0,02P_{\text{sat}}$ — próbka MOVPE.	69
4.13	Histogram interferencji dwufotonowej dla mocy wzbudzania $P = P_{\text{sat}}$ — próbka MOVPE.	71
4.14	Histogram interferencji dwufotonowej dla mocy wzbudzania $P = 0,02P_{\text{sat}}$ — próbka MOVPE.	73
5.1	Emisja w funkcji mocy wzbudzania nierezonansowego — próbka MBE.	82
5.2	Widma fotoluminescencji rozdzielczej polaryzacyjnie przy wzbudzaniu nierezonansowym — próbka MBE.	82
5.3	Widma fotoluminescencji rozdzielczej polaryzacyjnie w polu magnetycznym $B = 5$ T — próbka MBE.	83
5.4	Fotoluminescencja w funkcji wartości indukcji zewnętrznego pola magnetycznego przyłożonego w konfiguracji Voigta — próbka MBE.	84
5.5	Fotoluminescencja wzbudzeniowa dla trionu CX1 — próbka MBE.	86
5.6	Fotoluminescencja wzbudzeniowa rozdzielcza polaryzacyjnie w bazie polaryzacji kołowych dla trionu CX1 — próbka MBE.	87
5.7	Efekt Hanlego dla rezonansu ΔE_1 zmierzony w temperaturze 20 K — próbka MBE.	88
5.8	Efekt Hanlego dla rezonansu ΔE_2 zmierzony w temperaturze 20 K — próbka MBE.	89
5.9	Efekt Hanlego dla dwóch rezonansów w funkcji temperatury — próbka MBE.	90
5.10	Temperaturowa zależność polaryzacji emisji — próbka MBE.	91
5.11	Temperaturowa zależność czasu defazowania spinu elektronu — próbka MBE.	92
5.12	Temperaturowa zależność efektu Hanlego — próbka MBE.	93
5.13	Przypadek 1. efektu Hanlego — próbka MBE.	94
5.14	Przypadek 2. efektu Hanlego — próbka MBE.	95
5.15	Przypadek 3. efektu Hanlego — próbka MBE.	96
5.16	Efekt Hanlego dla rezonansu ΔE_1 zmierzony w temperaturze 10 K — próbka MOVPE.	98
5.17	Efekt Hanlego dla rezonansu ΔE_2 zmierzony w temperaturach 10 K, 20 K i 40 K — próbka MOVPE.	99
5.18	Temperaturowa zależność czasu defazowania spinu elektronu — próbka MOVPE.	100
5.19	Zależność stopnia polaryzacji kołowej od różnicy między energią wzbudzania a energią emisji.	101
5.20	Zależność czasu defazowania elektronu od różnicy między energią wzbudzania a energią emisji.	102
5.21	Zależność stopnia polaryzacji kołowej P_σ od czasu oświetlania próbki.	103
5.22	Temperaturowa zależność poszerzenia linii emisyjnej CX1 — próbka MBE.	104

Spis tabel

1.1	Właściwości fotonów i nośników niezbędne w wybranych zastosowaniach w technologiach kwantowych	18
2.1	Zestawienie najważniejszych wyników eksperymentu interferencji dwufotonowej	31
2.2	Efektywne stałe oddziaływania A dla elektronów oraz wartości spinów jądrowych I dla wybranych pierwiastków	34
2.3	Najważniejsze wyniki pomiaru czasu defazowania spinu T_2^*	42
4.1	Parametry dopasowania histogramu $g^{(2)}(\tau)$ — próbka MBE	59
4.2	Parametry dopasowania histogramu HOM dla opóźnienia 13,1 ns — próbka MBE	62
4.3	Parametry dopasowania histogramu HOM dla opóźnienia 5,3 ns — próbka MBE	65
4.4	Parametry dopasowania histogramów $g^{(2)}(\tau)$ dla dwóch mocy wzbudzenia — próbka MOVPE	70
4.5	Parametry dopasowania histogramów HOM dla dwóch polaryzacji względnych przy mocy wzbudzenia $P = P_{\text{sat}}$ — próbka MOVPE	72
4.6	Parametry dopasowania histogramów HOM dla dwóch polaryzacji względnych przy mocy wzbudzenia $P = 0,02P_{\text{sat}}$ — próbka MOVPE	74
4.7	Najważniejsze parametry wyznaczone dla badanych linii emisyjnych z obu próbek	76
5.1	Wyznaczone stałe diamagnetyczne oraz g -czynniki dla badanych kompleksów ekscytonowych — próbka MBE	85

Lista publikacji

Publikacje bezpośrednio powiązane z rozprawą doktorską:

1. M. Wasiluk, A. Musiał, P. Mrowiński, J. P. Reithmaier, M. Benyoucef, W. Rudno-Rudziński, „Two-photon interference from as-grown InAsP/InP quantum dots under detuned excitation”, arXiv:2607.26957, *Nanophotonics* — w recenzji.
2. M. Wasiluk, H. Janowska, A. Musiał, J.P. Reithmaier, M. Benyoucef, W. Rudno-Rudziński, „Probing electron spin dynamics in single telecom InAs(P)/InP quantum dots using the Hanle effect”, *Applied Physics Letters* **127**, 204001 (2025), DOI: 10.1063/5.0291044.

Publikacje niepowiązane ściśle z rozprawą doktorską:

1. H. Janowska, W. Charaszkiewicz, M. Wasiluk, M. Peil, T. Taskinen, J. Hilska, A. Chellu, T. Hakkarainen, A. Musiał, „Temperature Dependence of the Refractive Index for AlAsGaSb”, arXiv:2608.30547, *Optics Express* — w recenzji.
2. M. Peil, M. Wasiluk, Z. Olinkiewicz, T. Przychodni, R. Matysiak, T. Taskinen, J. Salonen, A. Chellu, M. Patli, J. Hilska, A. Musiał, M. Gawęłczyk, M. Guina, T. Hakkarainen, „Predictive wavelength tailoring of uniform GaSb-based quantum dots for emission at 1.55 μm ”, arXiv:2608.30628, *Nanophotonics* — w recenzji.
3. A. Musiał, M. Wasiluk, K. Roszak, M. Gawęłczyk, W. Rudno-Rudziński, P. Wyborski, J.P. Reithmaier, M. Benyoucef, G. Sęk, „Generation of C-band entangled photon pairs by biexciton-exciton cascade from symmetric InAs/InP quantum dots”, arXiv:2509.24500, *Advanced Quantum Technologies* — w recenzji.
4. P. Holewa, E. Zięba-Ostój, D. A. Vajner, M. Wasiluk, B. Gaál, A. Sakanas, M. Burakowski, P. Mrowiński, B. Krajnik, M. Xiong, A. Huck, K. Yvind, N. Gregersen, A. Musiał, T. Heindel, M. Syperek, E. Semenova, „High-throughput quantum photonic devices emitting indistinguishable photons in the telecom C-band”, *Nature Communications* **15**, 3358 (2024). DOI: 10.1038/s41467-024-47551-7.

5. D. A. Vajner, P. Holewa, E. Zięba-Ostój, M. Wasiluk, M. von Helversen, A. Sakanas, A. Huck, K. Yvind, N. Gregersen, A. Musiał, M. Syperek, E. Semenova, T. Heindel, „On-demand Generation of Indistinguishable Photons in the Telecom C-Band using Quantum Dot Devices”, *ACS Photonics* **11**, 339-347 (2024). DOI: 10.1021/acsphotonics.3c00973.

6. A. Musiał, M. Wasiluk, M. Gawelczyk, J. P. Reithmaier, M. Benyoucef, G. Sęk, W. Rudno-Rudziński, „Distributed Bragg reflector-mediated excitation of InP-substrate-based quantum dots emitting in the telecom C-band”, *Physica Status Solidi RRL* **17**, 2300063 (2023). DOI: 10.1002/pssr.202300063.

Lista wystąpień konferencyjnych

Wystąpienia ustne:

1. „Spin Dephasing in Single InAs(P)/InP Quantum Dots Probed via Hanle Effect”,
3rd International GaAs Quantum Dot Workshop,
07-09.05.2025, Wrocław
2. „Determination of the spin coherence time of carriers confined within single InAs/InP quantum dots using the Hanle effect”,
2nd International workshop on telecom quantum dot non-classical light sources for quantum communication (QDotCom 2024),
12-14.06.2024, Wrocław
3. „Quantifying spin coherence: Hanle effect measurements in single InAs/InP quantum dots”,
PhoBiA Annual Nanophotonics International Conference 2024 (PANIC 2024),
16-17.05.2024, Wrocław

Wystąpienia plakatowe

1. „Temperature-dependent electron spin coherence and depolarization in InAs(P)/InP quantum dots”,
3rd International workshop on telecom quantum dot non-classical light (QDotCom 2026),
06-08.05.2026, Wrocław
2. „Temperature study on the single carrier spin dynamics in telecom InAsP/InP quantum dots”,
International workshop on Engineering of quantum emitter properties (EQEP 2025),
18-19.12.2025, Grenoble, Francja
3. „Long Spin Coherence Times in Single Telecom Quantum Dots studied via Hanle Effect”,
international Nano-Optoelectronics Workshop (iNOW 2025),
21-31.07.2025, Wrocław
4. „Single electron spin dephasing in the InAs(P)/InP quantum dot studied by the Hanle effect”,
International Conference on Optics of Excitons in Confined Systems (OECS 19),
14-18.07.2025, Warszawa

5. „Optical and Theoretical Study of (In)GaSb/AlGaSb Quantum Dots Grown by Nano-hole Droplet Etching Technique”,
International Workshop on “Engineering of Quantum Emitter Properties (EQEP 2024),
28-29.11.2024, Innsbruck, Austria
6. „Electronic Structure and Optical Properties of Nanohole Droplet-Etched (In)GaSb/AlGaSb Quantum Dots for Telecommunication Spectral Range”,
Single Photon Workshop (SPW 2024),
18-22.11.2024, Edinburgh, Szkocja
7. „Spin Coherence Time of Carriers Confined Within Single InAs/InP Quantum Dots Emitting in the Telecom C-band”,
NATO Advanced Study Institute "Nanotechnological Advances in Environmental, Cyber and CBRN Security",
14-22.09.2024, Sozopol, Bułgaria
8. „Hanle Effect in Single InAs/InP Quantum Dots Emitting in the Telecom C-band”,
52nd International School & Conference on the Physics of Semiconductors „Jaszowiec 2024”,
15-21.06.2024, Szczyrk
9. „InAs(P)/InP QDs as sources of single indistinguishable photons at 1.55 μm ”,
12th International Conference on Quantum Dots (QD2024),
18–22.03.2024, Monachium, Niemcy
10. „Magneto-Optical Properties of Single InAs/InP Quantum Dots Emitting at 1.55 μm ”,
12th International Conference on Quantum Dots (QD2024),
18-22.03.2024, Monachium, Niemcy
11. „Single indistinguishable photons emitted at 1.55 μm by InAs(P)/InP QD”,
7th International Workshop on the Optical Properties of Nanostructures (OPON),
14-16.02.2024, Wrocław
12. „Magneto-Optical Properties of Single Symmetric InAs/InP Quantum Dots Emitting in the Telecom C-band”,
51st International School & Conference on the Physics of Semiconductors „Jaszowiec 2023”,
17-23.06.2023, Szczyrk
13. „Experimental Evaluation of the Indistinguishability of Single Photons at 1.55 μm Generated by InAs(P)/InP Quantum Dots”,
51st International School & Conference on the Physics of Semiconductors „Jaszowiec 2023”,
17-23.06.2023, Szczyrk
14. „Study on energy structure of single InAs/InP quantum dots via photoluminescence excitation spectroscopy”,
8th international workshop on Engineering of Quantum Emitter Properties (EQEP 2022),
15-16.12.2022, Stuttgart, Niemcy

15. „Influence of relative energy of quantum well and quantum dots transitions on carrier transfer efficiency in tunnel injection structures”,
Workshop on Physics and Technology of Semiconductor Lasers,
02–06.10.2022, Kraków