

Polarization and Manipulation of a Mesoscopic Nuclear Spin Ensemble Using a Single Confined Electron Spin

Patrick Maletinsky

2008

DISS. ETH NO. 17815

Polarization and Manipulation
of a Mesoscopic Nuclear Spin Ensemble
Using a Single Confined Electron Spin

A dissertation submitted to the
SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY ZURICH

for the degree of
Doctor of Natural Sciences

presented by
PATRICK MALETINSKY

Dipl. Phys.
ETH Zürich

born 3rd of June 1979

citizen of Obersiggenthal, AG

Accepted on the recommendation of:

Prof. Atac Imamoglu, examiner
Prof. Thierry Amand, co-examiner

Summary

The present thesis is devoted an all-optical study of the physical properties of the mesoscopic ensemble of nuclear spins contained in an individual, self-assembled quantum dot (QD). QDs are artificial entities that allow for the trapping of individual charge carriers in all three spatial dimensions. The trapping length scales are thereby small enough to require a quantum mechanical treatment of the QD charge carrier confinement. The QDs studied here are self-assembled InAs nano-crystals which contain roughly 10^5 nuclei, all of nonzero nuclear spin. The nuclear spins can be manipulated and measured by using the spin of a trapped QD electron as an agent which couples to the nuclei via the hyperfine interaction. Electron spins can be optically oriented due to selection rules of optical interband transitions in the QD semiconductor material. This electron spin orientation is then transferred to the nuclear spins via the hyperfine interaction, leading to a dynamical nuclear spin polarization (DNSP). At the same time, the hyperfine interaction causes a shift of the energy of the electron in contact with spin polarized nuclei. This fact is exploited here to measure the degree of DNSP through the corresponding spectral features in the light which is emitted upon recombination of the optically generated QD electrons.

This thesis starts with a description of the steady state behavior of optically generated DNSP. It is shown that the transfer of spin information between the electron and the nuclei depends strongly on the degree of the nuclear spin polarization itself. The corresponding feedback of DNSP on the electrons takes the form of an effective magnetic field which can be on the order of a few Tesla and renders the coupled electron-nuclear spin system highly nonlinear. In particular, experimental evidence for a hysteretic behavior of the coupled electron-nuclear spin system in an external magnetic field is presented and explained with a classical rate equation model.

The focus of the second part of the thesis lies on the dynamics of DNSP which is studied using a time-resolved photoluminescence technique. In addition to measuring the timescales for buildup and decay, this experiment revealed an unexpected aspect of the dynamics of DNSP: while an optically pumped electron spin can be used to polarize the nuclear spins, the electron can also be very efficient in destroying an established DNSP in the absence of optical excitation. In this case, the electron spin is randomly fluctuating, thereby causing relaxation of the nuclear spins. This electron mediated decay of DNSP is discussed in detail as a function of the electron spin correlation time and of external magnetic fields. If the electron spin fluctuations become too fast, the lifetime of DNSP can increase again due to an effect called motional narrowing which is observed experimentally. Furthermore, the nonlinear behavior of DNSP in the presence of external magnetic fields leads to the observation of DNSP decay curves which are highly non-exponential.

The presented results give new insights into the dynamics of nuclear spins in semiconductor QDs and show possibilities of manipulating the QD nuclear spin ensemble. The results of this thesis could enable a tailoring of the properties of the nuclear spin system with the aim to prolong the coherence time of the QD electron spin. In self-assembled QDs, this time is limited by the slow fluctuations of the nuclear magnetic field which happen on the same timescale as the decay of DNSP which was determined in this work.

Zusammenfassung

Diese Arbeit behandelt eine rein optische Studie der physikalischen Eigenschaften des mesoskopischen Kernspinsystems in einem einzelnen Quantenpunkt (QP). QPe sind künstliche Objekte, welche es erlauben, Ladungsträger in drei Raumdimensionen zu lokalisieren. Die entsprechenden Längenskalen sind dabei so klein, dass eine quantenmechanische Behandlung des resultierenden Fallenpotentials notwendig wird. Die hier untersuchten QPe sind selbstorganisierte InAs Nanokristalle, welche ca. 10^5 Kerne mit nichtverschwindendem Spin enthalten. Aufgrund der Hyperfeinwechselwirkung, welche Elektron- und Kernspins koppelt, können Kernspins mit Hilfe des lokalisierten QP-Elektrons manipuliert und gemessen werden. Die optischen Auswahlregeln im Halbleitermaterial des QPe erlauben es, den Spin des Elektrons mit optischen Mitteln zu orientieren. Diese Spinorientierung wird anschliessend mittels der Hyperfeinwechselwirkung auf die Kernspins übertragen, was zu einer dynamischen Kernspinpolarisation (DKSP) führt. Gleichzeitig beinhaltet die Hyperfeinwechselwirkung Terme, welche zu einer Verschiebung der Energie des Elektrons führen, wenn es im Kontakt mit spinpolarisierten Kernen steht. Diese Tatsache wird ausgenützt um den Grad der DKSP mittels entsprechender optischer Signaturen im vom QP ausgesandten Licht zu ermitteln.

Im ersten Teil dieser Dissertation wird eine Beschreibung des Gleichgewichtszustands der optisch generierten DKSP gegeben. Es wird gezeigt, dass der Übertrag von Spininformation vom Elektron auf die Kerne stark vom Grad der DKSP abhängt. Die entsprechende Rückkopplung der Kernspins auf das Elektron nimmt die Form eines effektiven Magnetfeldes von der Grössenordnung einiger Tesla an und führt zu starken Nichtlinearitäten im gekoppelten Spinsystem des Elektrons und der Kerne. Insbesondere wird der experimentelle Beweis erbracht, dass DKSP in einem externen Magnetfeld ein hysteretisches Verhalten zeigen kann, welches mittels einer klassischen Ratengleichung beschrieben werden kann.

Der Schwerpunkt des zweiten Teils dieser Arbeit liegt in der Dynamik der DKSP, welche mit Hilfe einer zeitaufgeösten Photolumineszenztechnik studiert wird. Nebst der Messung der relevanten Zeitskalen für den Aufbau und den Zerfall der DKSP wird ein überraschender Aspekt der Kernspindynamik aufgedeckt: während ein optisch gepumptes Elektron genutzt werden kann um eine DKSP zu erzeugen, führt dasselbe Elektron zu einer sehr effizienten Depolarisation der Kerne, wenn die optische Anregung fehlt. In diesem Fall dominieren zufällige Fluktuationen des Elektronspins seine Evolution und führen zu einer Relaxation der Kernspins. Dieser Elektronmedierte Zerfall der DKSP und die Rolle der Elektron-Spinkerrelationszeit sowie externer Magnetfelder werden im Detail diskutiert. Wenn die Fluktuationen des Elektronspins zu schnell werden, kann sich der Kernspinzerfall wieder verlangsamen, was experimentell nachgewiesen wird. Ausserdem wird gezeigt, dass die oben

genannten Nichtlinearitäten in starken externen Magnetfeldern zu einem nichtexponentiellen Zerfall der DKSP führen.

Die hier präsentierten Resultate werfen ein neues Licht auf die physikalischen Eigenschaften des mesoskopischen Kernspinsystems eines einzelnen QPes und eröffnen neue Möglichkeiten zur Manipulation dieses Systems. Diese Resultate dieser Doktorarbeit könnten eine gezielte Manipulation des Kernspinsystems zur Verlängerung der Kohärenzzeit des QP Elektrons erlauben. Diese Kohärenzzeit ist durch die langsamen Fluktuationen des Kernspinmagnetfeldes limitiert, welche dieselben typischen Zeitskalen wie der hier gemessene Kernspinzerfall aufweist.