



INSTYTUT FIZYKI POLSKIEJ AKADEMII NAUK
INSTITUTE OF PHYSICS, POLISH ACADEMY OF SCIENCES

02-668 WARSZAWA, AL. LOTNIKÓW 32/46
fax: + (48-22) 843-0926; <http://info.ifpan.edu.pl>

LABORATORY OF GROWTH AND PHYSICS OF LOW DIMENSIONAL CRYSTALS

Prof. dr hab. Tomasz Wojtowicz tel. +(48-22)-843-6601 ext.3123; +(48-22)-843-1331
wojto@ifpan.edu.pl www.ifpan.edu.pl/SL-3/TWojtowicz/wojtowicz.html www.ifpan.edu.pl/SL-3/

Warszawa, 5-09-2016 r

Recenzja rozprawy doktorskiej mgr. Łukasza Dusanowskiego
zatytułowanej:

„Dynamika nośników, statystyka emisji fotonów oraz dekoherencja fononowa w pojedynczych kreskach kwantowych emitujących w zakresie bliskiej podczerwieni”

Przedstawiona do recenzji rozprawa doktorska mgr. Łukasza Dusanowskiego dotyczy eksperymentalnych badań tzw. kresek kwantowych, gruntownej analizie tych wyników i opisanie ich modelami teoretycznymi. Praca ta wykonana została w Katedrze Fizyki Doświadczalnej, Wydziału Podstawowych Problemów Techniki Politechniki Wrocławskiej pod kierunkiem promotora dr hab. inż. Grzegorza Sęka oraz promotora pomocniczego dr. inż. Marcina Syperka. Wszystkie pomiary przeprowadzone zostały w laboratorium Optycznej Spektroskopii Nanostruktur Katedry Fizyki Doświadczalnej PWR.

Choć badania kropek kwantowych wytwarzanych z różnych materiałów półprzewodnikowych są prowadzone na świecie od wielu lat, to wciąż jest to tematyka bardzo aktualna. Wynika to z jednej strony z faktu, że kropki kwantowe, do których często odnosi się jako do sztucznych atomów, są nie tylko bardzo interesującym obiektem badań podstawowych ale także niosą ze sobą potencjalne zastosowania, m.in. w obszarze informatyki kwantowej. Typowe kropki kwantowe hodowane metodą Strankiego-Krastanowa (S-K) z materiałów III-V (np. kropki InAs) czy II-VI (np. kropki CdTe) przybierają kształt obiektów silnie spłaszczonych w kierunku wzrostu, zazwyczaj płasko-wypukłych soczewek bądź piramid, z porównywalnymi wymiarami w kierunkach prostopadłych do osi wzrostu. Dość unikalnym systemem są natomiast kropki kwantowe InAs z barierami InAlGaAs hodowane metodą S-K na podłożach InP, które to podłoża są lepiej dopasowane sieciowo do InAs niż podłoża GaAs. Samo-

powstające kropki są wtedy silnie wydłużone w jednym z kierunków prostopadłych do osi wzrostu, konkretnie w kierunku krystalograficznym $[1, -1, 0]$. Stosunek wymiarów w płaszczyźnie wzrostu dla tych obiektów jest typowo powyżej 5 i dlatego, dla odróżnienia ich od typowych kropek oraz drutów kwantowych, nazwano je kreskami kwantowymi. Tego typu nanoobiekty, ze względu na ich większe rozmiary w porównaniu z kropkami InAs hodowanymi na GaAs, emitują promieniowanie o długościach fal od 1.3 do 1.55 μm , a tym samym są optymalne dla zastosowań w telekomunikacji światłowodowej. Praca doktorska Pana Dusanowskiego dotyczy badań takich właśnie obiektów metodami spektroskopii optycznej.

Chciałbym zwrócić uwagę na fakt, że chociaż badania optyczne nanostruktur półprzewodnikowych, zapoczątkowane na Politechnice Wrocławskiej przez Prof. dra hab. Jana Misiewicza, prowadzone są od wielu lat, czyniąc Politechnikę Wrocławską nie tylko jednym z najsilniejszych ośrodków naukowych z tej dziedziny w Polsce, ale także ośrodkiem dobrze rozpoznawalną na świecie, to zgodnie z moją najlepszą wiedzą praca doktorska Pana Dusanowskiego jest bodaj pierwszą, która zawiera wyniki korelacyjnych badań emisji pojedynczych fotonów z kropek kwantowych. Badania te do tej pory prowadzone były w Polsce chyba jedynie na Uniwersytecie Warszawskim i to w innym obszarze spektralnym. To dzięki istotnemu wkładowi mgr. Dusanowskiego ta technika jest teraz dostępna także na PWR.

Recenzowaną rozprawę doktorską oraz przedstawione w niej wyniki naukowe oceniam bardzo wysoko i dlatego będę wnioskował o jej wyróżnienie. Moim zdaniem przeprowadzone przez mgr. Dusanowskiego badania wniosły istotny wkład do fizyki nanostruktur półprzewodnikowych jako całości, oraz szczególnie do fizyki kropek kwantowych. Poniżej przedstawię bardziej szczegółowy opis rozprawy, krótkie omówienie najważniejszych wyników oraz drobne uwagi i pytania, dotyczące jednak jedynie samej formy prezentacji wyników w rozprawie.

Rozprawa doktorska mgr. Łukasza Dusanowskiego napisana została w języku polskim, liczy 145 stron i zawiera obszerne odniesienie do literatury naukowej, obejmujące 164 pozycje bibliograficzne. Składa się ona ze wstępu, sześciu rozdziałów oraz podsumowania. Zawiera także spis publikacji oraz wystąpień konferencyjnych autora rozprawy.

Cztery pierwsze rozdziały rozprawy stanowią obszerne wprowadzenie do tematyki badań, obejmujące opis teoretyczny zjawisk zachodzących w kropkach kwantowych. W rozdziale 1-szym jest to wprowadzenie do kresek kwantowych: ich wytwarzania, kompleksów ekscytonowych i przejść optycznych z nimi związanych oraz relaksacji i dynamiki nośników; w

rozdziale 2-gim do dziedziny emisji pojedynczych fotonów i ich statystyki, obejmujące m.in. podstawowe pojęcia takie jak korelacje drugiego rzędu oraz interferometria Hanbury Brown-Twiss, służąca do eksperymentalnego badania tych korelacji, dalej w rozdziale 3-cim wprowadzenie do kwantowych emiterów światła w poczerwieni i wreszcie w rozdziale 4-tym do potencjalnych zastosowań kresek kwantowych z InAs hodowanych na podłożach InP.

W rozdziale piątym autor przedstawia najpierw obiekt swoich badań. Były nim trzy struktury zawierające kreski kwantowe o różnych średnich rozmiarach, które powstały w efekcie dostarczenia na podłoże różnych ilości materiału odpowiadającego wyhodowaniu warstw InAs o trzech nominalnych grubościach (0.7, 1.05 oraz 1.3 nm). Struktury te wytworzone zostały na Uniwersytecie Juliusza Maksymiliana w Würzburgu z użyciem techniki epitaksji z wiązek molekularnych (MBE) w modzie wzrostu Stranskiego-Krastanowa. Również w Würzburgu wyhodowane struktury poddane zostały dalszej nanostrukturyzacji (z użyciem litografii elektronowej i trawienia) w celu wytworzenia mes znacznie redukujących ilość jednocześnie mierzonych kresek, co było niezbędne ze względu na ich dużą gęstość powierzchniową. W dalszej części mgr Dusanowski dość szczegółowo opisał zarówno używane techniki eksperymentalne: mikrofotoluminescencję, czasowo-rozdzielczą mikrofotoluminescencję oraz spektroskopię korelacyjną, jak i same układy eksperymentalne przez niego używane. Z zadowoleniem stwierdzam, że opis układów jest dość szczegółowy i zawiera także nazwy producentów poszczególnych elementów aparatury. Podkreślam to, gdyż uważam, iż jest to ważne, a niestety nie często praktykowane przez doktorantów. Choć sam autor rozprawy tego nie eksponuje, wydaje mi się, że on sam wniósł wkład w rozwój układów pomiarowych. Jak autor napisał na str. 65, na potrzeby prowadzonych przez niego badań korelacji fotonów trzeba było stworzyć oprogramowanie eliminujące w trakcie rejestracji histogramów takie okresy, w których dochodziło, ze względu na zewnętrzne zakłócenia, do zaburzeń pracy detektorów nadprzewodzących. Co więcej jestem przekonany, że przedstawiony dokładniejszy opis układów świadczy także o dobrym zrozumieniu zasady ich pracy i opanowaniu przez doktoranta wspomnianych, trudnych technik eksperymentalnych, co potwierdzone zostało najdobitniej jakością uzyskanych przez niego wyników.

Uważam, że ta wstępna część rozprawy, ujęta w rozdziałach od 1 do 5 jest bardzo cenna. Ponieważ została przygotowana bardzo starannie i traktuje zagadnienia dogłębnie należy oczekiwać, że będzie chętnie czytana przez kolejne pokolenia magistrantów i doktorantów nie tylko Politechniki Wrocławskiej, ale także innych polskich jednostek naukowych zajmujących się podobną tematyką.

Przechodząc już do samych wyników naukowych uzyskanych w ramach wykonywania badań do doktoratu, to przedstawione one zostały przez mgr. Dusanowskiego w rozdziale 6-tym rozprawy. Są to moim zdaniem wyniki bardzo ciekawe i istotne. Składają się na nie tylko opracowane wyniki badań eksperymentalnych, ale także ich nadzwyczaj dogłębna analiza oraz zaawansowane modelowanie teoretyczne. Część modelowania teoretycznego opisana i wykorzystana w rozprawie, a dotycząca efektów sprzężenia ekscytonu z fononami akustycznymi, powstała we współpracy mgr. Dusanowskiego z Prof. dr. hab. Pawłem Machnikowskim oraz dr. Januszem Andrzejewskim w PWR.

Jednym z istotniejszych wyników mgr Dusanowskiego jest jednoznaczne zidentyfikowanie różnych typów kompleksów ekscytonowych w kreskach kwantowych z InAs: neutralnych ekscytonów, biexcytonów oraz naładowanych ekscytonów (trionów). W tym celu najpierw przeprowadzono pomiary intensywności linii w funkcji mocy pobudzenia, a następnie pomiary intensywności w funkcji kąta polaryzacji liniowej (we współpracy z Pawłem Mrowińskim). Ponieważ jednak wszystkie kreski są dość dobrze ułożone wzdłuż kierunku $[1,-1,0]$ pomiary polaryzacyjne, pozwalające odróżnić od siebie różne typy ekscytonów (na podstawie obserwacji rozszczepienia subtelnego), nie mogą dać odpowiedzi, które trójki CX, XX oraz X pochodzą od tej samej kreski. W celu jednoznacznej identyfikacji mgr Dusanowski zastosował standardową acz bardzo trudną metodę badań czasowej korelacji wzajemnej fotonów. Przedstawione przez niego histogramy pomiarów wzajemnej korelacji drugiego rzędu $g^{(2)}$ dla trójki wstępnie zidentyfikowanych linii X, XX i CX (tj. $g^{(2)}_{X-XX}$ oraz $g^{(2)}_{X-CX}$) jednoznacznie udowodniły, iż linie te pochodzą od jednej i tej samej kreski kwantowej.

Kolejnym istotnym wkładem autora jest przeprowadzenie badań dynamiki emisji kompleksów ekscytonowych w funkcji mocy pobudzenia. Dla neutralnych i naładowanych ekscytonów autor zaobserwował przy większych mocach początkowy wzrost a nie spadek intensywności linii w czasie. Ten wzrost mgr Dusanowski zinterpretował jako efekt kaskady XX-X (czy CXX-CX^{*}) oraz repopulacji stanu ekscytonu (czy trionu) po rekombinacji biexcytonu. Zbudowany trójpoziomowy model równań kinetycznych dobrze odtworzył wyniki eksperymentalne.

Do najciekawszych i jednocześnie najważniejszych wyników uzyskanych przez mgr. Łukasza Dusanowskiego podczas badań prowadzonych w ramach doktoratu i przedstawianych w rozprawie zaliczyłbym te dotyczące wpływu temperatury na: a) statystykę emisji fotonów; b) dynamikę emisji fotonów; c) kształt linii emisyjnych.

W ramach badań statystyki emisji fotonów mgr Dusanowski przeprowadził pomiary funkcji auto-korelacji drugiego rzędu dla naładowanych ekcytonów (trionów). Wybór tych kompleksów podyktowany był dużą intensywnością odpowiadających im linii emisyjnych. W tych trudnych badaniach autor rozprawy wykazał, że kreski kwantowe są źródłem pojedynczych fotonów aż do temperatur 80 K. W maksymalnej temperaturze wartość funkcji autokorelacji dla zerowych czasów opóźnienia $g^2(0)$ wynosi 0.34, czyli kreski spełniają kryterium źródła jednofotonowego: $g^2(0) < 0.5$ nawet bez uwzględnienia temperaturowego wzrostu intensywności tła.

Badania temperaturowej zależności dynamiki emisji fotonów autor przeprowadził również dla trionów. Zaobserwował on interesującą, niemonotoniczną zależność czasu zaniku fotoluminescencji, który najpierw rośnie ze wzrostem temperatury, osiągając maksimum w okolicy temperatury 30 K, następnie maleje osiągając minimum dla T ok. 50 K, poczym znowu rośnie, aż do maksymalnej temperatury pomiarowej 80 K. Zjawisko to mgr Dusanowski wytłumaczył rozpatrując szereg kanałów ucieczki czy relaksacji nośników ze stanu trionowego. Skonstruował pięciopoziomowy model równań kinetycznych, który bardzo dobrze odtworzył eksperymentalną zależność czasu zaniku od temperatury.

Badania wpływu temperatury na kształt linii dotyczyły ekscytonów neutralnych. Mgr Dusanowski zaobserwował dwa obszary temperatury, w których szybkość wzrostu szerokości linii PL jest istotnie różna: mniejsza w obszarze niskich temperatur i znacznie wyższa powyżej pewnej temperatury ok. 60-80 K, zależnej od rozmiarów kresek. Wyniki zinterpretowane zostały w ramach modelu teoretycznego oddziaływania ekscytonu z fononami akustycznymi uwzględniającego różne mechanizmy sprzężenia oraz różne geometrie kresek. Okazało się, że dominującym mechanizmem jest sprzężenie przez potencjał deformacyjny. Analiza wyników eksperymentalnych w ramach modelu dla kresek o średnich wymiarach $100 \times 16 \times 3 \text{ nm}^3$ wykazała istnienie kresek dla których zależność temperaturowa może być odtworzona dla pewnych linii jedynie przy założeniu, że linie te pochodzą od kresek pięciokrotnie krótszych od średnich. Ten wniosek jest w zgodzie z innymi wynikami dotyczącymi badań dynamiki emisji oraz jej stopnia polaryzacji. Co więcej wyniki potwierdziły oczekiwania autora, iż ekscytony w dłuższych kreskach słabiej oddziałują z fononami akustycznymi, a tym samym są lepiej chronione przed dekoherencją wywołaną drganiami sieci niż ekscytony w kropkach.

Chciałbym także podkreślić, że jakość redakcyjna samej rozprawy jest również nadzwyczaj wysoka i recenzent musiał włożyć sporo pracy po to, aby bardzo nieliczne i drobne uchybienia zauważyć. Z obowiązku recenzenta część z nich wymieniam poniżej wraz z nielicznymi

nasuujących się uwagami i pytaniami, w najmniejszym jednak stopniu nie umniejszającymi mojej bardzo wysokiej oceny rozprawy:

1. Na str. 9 rozprawy autor wspomina, iż wyniki eksperymentów magneto-fotoluminescencji przeprowadzone przez Pawła Mrowińskiego zostały użyte do uzupełnienia interpretacji w badaniach dynamiki nośników. Jednak w rozprawie jakoś mi ta sprawa umknęła. Na czym polegało to użyczenie?
2. W pracy podano ogromną ilość wzorów, których jako recenzent nie byłem w stanie prześledzić. Jednak pierwszy wzór (1.1) i związany z nim opis efektu rozmiarowego dla kropek kwantowych jest trochę mylący. Wzór (1.1) jest bowiem wzorem na energię prostokątnej studni kwantowej o nieskończonych barierach. Jeśliby miał z kolei dotyczyć kropki w kształcie sześciangu to brakuje w nim czynnika 3. Zresztą energie stanów w kropce są dyskutowane szczegółowo w paragrafie 6.5.2 gdzie wzór (6.21) podaje energię będącą sumą energii kwantowania w każdym z trzech kierunków przestrzennych (choć tam tylko w kierunku x zakładano potencjał prostokątny z nieskończonymi barierami, a w kierunkach y i z potencjał paraboliczny).
3. Na str. 76: Rys. 6.9 jest pomyłkowo powtórzonym rysunkiem 6.8 tj. $g^{(2)}_{X-XX}$ zamiast $g^{(2)}_{X-CX}$. Szczęśliwie wyniki korelacji drugiego rzędu ekscyton-trion pojawiają się dalej na Rys. 6.12 (b) wraz z krzywą modelu teoretycznego.
4. W opinii recenzenta trzeba uznać, że ze względu na trudności pomiarowe wynikające z małości sygnałów oraz w konsekwencji na konieczność używania szerokich okien od 128 do 512 ps, nie udało się z użyciem badań z ciągłym pobudzeniem dać definitywnej odpowiedzi na pytanie, czy szybszy jest wychwytywanie kreski ekscytonu jako całości, czy też oddzielnie elektronu i dziury. Powstaje więc pytanie dlaczego nie zastosowano pomiaru impulsowego, tak jak w Ref. 138 dla kropek CdTe wytwarzanych w laboratorium MBE IFPAN.
5. Str. 91. Nie ma informacji w jaki sposób identyfikowano pary linii X-XX, dla których przedstawiane są wyniki czasów zaniku. Czy badając w funkcji kąta polaryzacji czy na podstawie samej różnicy energii? Jak identyfikowano z kolei linie CX użyte do wykonania Rys. 6.26? Czy próbka miała najpierw robioną identyfikację linii a potem te same linie były używane w badaniach czasowo-rozdzielczych?
6. Str. 114. Wyznaczono zależność położenia linii CX od temperatury, dopasowano funkcję Varshniiego i porównano wyznaczone parametry α i β z tymi dla kryształów

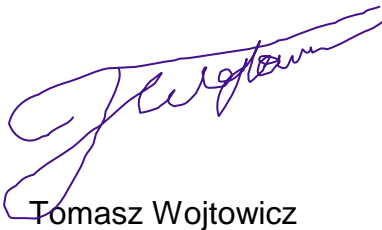
litych. A przecież na Rys. 6.30 przedstawiono zależność temperaturową położenia linii X. Czy była jakaś przyczyna dlaczego także dla neutralnych ekscytonów nie dokonano analogicznego dopasowania? I nie porównano z parametrami α i β dla CX oraz kryształów litych.

7. W pracy znalazło się kilka innych drobnych uchybień takich jak:

- a) W ref. 71 w nazwiskach pojawiły się znaki zapytania.
- b) Str. 15 wydaje się, że użycie zwrotu „ruch środka masy ekscytonu jest skwantowany” jest chyba bardziej uzasadnione od użycia terminu: „środek masy ekscytonu jest skwantowany.
- c) Str. 17: częstość nie może być równa różnicy energii, może tylko jej odpowiadać.
- d) Str. 27: na Rys. 18 (c) niepotrzebnie są dwa elektrony – powinien pozostać jeden elektron.

Na zakończenie należy też podkreślić, iż wartość wyników naukowych uzyskanych przez mgr. Łukasza Dusanowskiego w ramach doktoratu została już zweryfikowana przez międzynarodowe środowisko naukowe. Wyniki te zostały bowiem opublikowane w pięciu artykułach naukowych, które ukazały się w latach 2013-2016 w czasopiśmie z listy filadelfijskiej. Jeden z nich opublikowany został w Physical Review B, a trzy w Applied Physics Letter, czyli w priorytetowych czasopiśmie z dziedziny fizyki oraz fizyki aplikacyjnej. Pan Dusanowski jest pierwszym autorem we wszystkich tych artykułach, co wskazuje na jego wiodącą rolę przy ich tworzeniu. Co więcej wyniki prezentowane były przez Pana Dusanowskiego na szeregu konferencji międzynarodowych. Warto na koniec zauważyć, że oprócz badań objętych doktoratem mgr. Dusanowski uczestniczył też w innych badaniach prowadzonych na Uniwersytecie Wrocławskim i w związku z tym w jego dorobku naukowym znajduje się również 6 innych prac współautorskich: jednej w Physical Review Letters, trzech w Applied Physics Letters i jednej w J. of Applied Physics. W czterech z tych 6-ciu prac jest on też pierwszym autorem. Świadczy to o dużej aktywności naukowej doktoranta oraz o osiągnięciu przez niego wysokiego poziomu profesjonalizmu w optycznych badaniach nanostruktur.

W podsumowaniu stwierdzam, że przedstawiona do recenzji rozprawa doktorska pana mgr. Łukasza Dusanowskiego zawiera nowe i bardzo wartościowe wyniki naukowe dające istotny wkład do postępu w dziedzinie fizyki nanostruktur półprzewodnikowych. Zgodnie z moją wiedzą rozprawa raportuje pierwsze tak systematyczne i całościowe wyniki badań dynamicznych i korelacyjnych efektów emisji fotonów w kreskach kwantowych InAs, zarówno w obszarze niskich temperatur, jak i w funkcji temperatury. Rozprawę doktorską oceniam bardzo wysoko i stwierdzam, że spełnia ona wszystkie wymagania stawiane przez Ustawę o stopniach i tytule naukowym. Dlatego też wnioskuję o dopuszczenie jej do publicznej obrony. Co więcej, wzięwszy pod uwagę wyróżniający poziom wyników uzyskanych przez mgr. Dusanowskiego, zarówno od strony eksperymentalnej jak i od strony ich teoretycznej interpretacji, wyróżniającą formę ich prezentacji w rozprawie, a także fakt opublikowania tych wyników w szeregu pracach, które ukazały się we wiodących międzynarodowych czasopismach specjalistycznych, stawiam także wniosek o wyróżnienie tej rozprawy.



Tomasz Wojtowicz