dr hab. Łukasz Cywiński, prof. IF PAN
Instytut Fizyki Polskiej Akademii Nauk
Al. Lotników 32/46
02-668 Warszawa
lcyw@ifpan.edu.pl

Warszawa, 21 VIII 2020

Recenzja pracy doktorskiej
mgr. Adama Mielnika-Pyszczorskiego
p.t.:"Dynamika elektronów i fononów w sprzężonych nanostrukturach półprzewodnikowych"

Rozprawa doktorska magistra Adama Mielnika-Pyszczorskiego poświęcona jest teoretycznemu opisowi dynamiki elektronów oddziałujących z fononami w realistycznie opisywanych nanostrukturach półprzewodnikowych – dokładnie w kropkach kwantowych oraz w sprzężonych układach studni i kropki kwantowej. Pierwszym teoretycznym motywem przewodnim jest stosowanie ośmiopasmowej metody ***kp*** oraz realistycznego rozkładu naprężeń w strukturze (uzyskanego przez minimalizację energii sprężystej dla danej struktury opisanej w przybliżeniu ośrodka ciągłego) do modelowania stanów elektronowych i ich sprzężenia do drgań sieci, oraz próby dogłębnego zbadania tego, na ile uproszczone (i o wiele mniej kosztowne numerycznie) metody są w stanie odtworzyć wyniki uzyskane dużym wysiłkiem w ramach modelu ośmiopasmowego. W pracy zbadane są dwa zagadnienia fizyczne: pierwsze dotyczy prawidłowego opisu nieeleastycznego transferu elektronu ze studni kwantowej do znajdującej się w pobliżu kropki kwantowej, zaś drugie dotyczy relaksacji spinu elektronu uwięzionego w kropce kwantowej. Drugim motywem przewodnim pracy jest więc badanie dynamiki elektronu (dokładniej jego przestrzennego stopnia swobody, czyli lokalizacji w studni lub w kropce, lub spinowego stopnia swobody) wywołanej jego oddziaływaniem z otoczeniem składającym się z bozonów (fononów, czyli kwantów drgań sieci). Tematyka pracy znajduje się więc na pograniczu teorii nanostruktur półprzewodnikowych oraz dynamiki otwartych układów kwantowych.

Motywacją dla podjęcia tych dogłębnych badań teoretycznych stanowią trwające od lat prace doświadczalne nad laserami wykorzystującymi kropki kwantowe, dla których wykorzystanie studni kwantowej jako źródła nośników wstrzykiwanych do kropki zwiększa efektywność tego procesu, oraz nad wykorzystaniem spinu elektronu w kropce kwantowej jako kwantowego bitu (kubitu). W przypadku pierwszego zagadnienia, istnieje tylko kilka wcześniejszych prac teoretycznych, z których większość opiera się na uproszczonych modelach funkcji falowych. Wyniki przedstawione w pierwszej części rozprawy uzupełniają więc znaczną lukę w stanie wiedzy na temat dynamiki nośników w układzie studnia-kropka. Co do drugiego zagadnienia – relaksacji spinu elektronu w kropce – poświęcono mu wiele prac teoretycznych, i przyznam, iż dopiero lektura rozprawy uświadomiła mi, że szczegóły mikroskopowego mechanizmu odpowiedzialnego za relaksację spinu w silnie naprężonych kropkach samozorganizowanych nie były wcześniej zrozumiane. Wcześniejsze prace, które znałem, wykorzystywały modele stosowalne do opisu kropek wytwarzanych przez bramkowanie dwuwymiarowego gazu elektronowego (w strukturze bez naprężeń), i choć ich *jakościowe* przewidywania (takie jak potęgowy charakter zależności czasu relaksacji od pola magnetycznego) zgadzały się z pomiarami dynamiki spinu w kropkach samozorganizowanych, to ich *ilościowe* wyniki mogły pasować do tych obserwacji wyłącznie przez przypadek. Oba nurty badań opisane w rozprawie stanowią więc ciekawy wkład do stanu wiedzy o dynamice ładunku i spinu elektronu wywołanej jego oddziaływaniem z fononami.

Praca mgr. Mielnika-Pyszczorskiego oparta jest na trzech publikacjach, dwie z kórych ukazały się w Phys. Rev. B, a jedna w Scientific Reports. Współautorami wszystkich z nich było promotor oraz promotor pomocniczy. Każdy rozdział zawierający omówienie oryginalnych wyników Autora zawartych w danej publikacji został poprzedzony wyczerpującą informacją o indywidualnych wkładach wszystkich współautorów do opublikowanego artykułu. Wyniki zawarte w obszernym rozdziale czwartym nie zostały jeszcze opublikowane.

Pierwszy rozdział zawiera omówienie celu naukowego i znaczenia podjętych badań. Zarysowane są w nim też możliwe kierunki dalszej pracy, oraz omówiona jest metodologia i najważniejsze wyniki. Jedyną uwagą, którą mogę mieć do tego rozdziału, jest niepotrzebne powtórzenie kilku stwierdzeń, które sprawia, iż ten rozdział wstępny jest troszkę za długi, co nieco utrudnia jego czytanie. Po lekkim skróceniu byłby to idealny wstęp do rozprawy.

Drugi rozdział oparty jest na pracy opublikowanej w 2015 r. w Phys. Rev. B. Zawiera on opis procesu wstrzykiwania elektronów znajdujących się w pobliżu dna studni kwantowej do kropki poprzez emisję fononów akustycznych. Stany elektronowe w układzie sprzężonej studni i kropki zostały obliczone przy użyciu ośmiopasmowej metody ***kp***. Należy podkreślić, iż ze względu na różną wymiarowość studni i kropki, obliczenia te są bardzo kosztowne (wymagają wiele czasu oraz pamięci komputera): studni kwantowej nie można traktować jako nieskończonego układu dwuwymiarowego, gdyż ważne jest uwzględnienie *lokalnej* modyfikacji pasm w studni wywołanej naprężeniami materiałów obecnymi w pobliżu kropki. Konieczne jest więc diagonalizowanie problemu w geometrii cylindra o promieniu wystarczająco dużym, aby wiernie odtworzyć stany elektronowe w pobliżu dna studni. Wyniki dotyczące współczynnika wychwytu elektronu przez kropkę osiągają zbieżności dla promienia cylindra większego niż około 100 nm. Ważnym jest też uwzględnienie realistycznego rozkładu naprężeń dla danej geometri struktury (z uwzględnieniem grubości warstwy materiału przykrywającego kropkę, jako że ma ona wpływ na relaksację naprężeń w układzie). Dynamika transferu elektronu wywołanego emisją fononów akustycznych może być opisana w przybliżeniu Markowa, a typowe czasy transfery są rzędu nanosekundy. Wynik ten nie jest zgodny z doświadczeniem, ale wynika to z faktu, iż w typowych warunkach doświadczalnych nieelastyczny transfer zdominowany jest przez procesy z udziałem fononów optycznych (i oczywiście dotyczy on elektronów ze studni, których energie są większe od energii stanu w kropce o co najmniej jeden kwant energii fononu optycznego). Przedstawiona teoria dotycząca transferu przy udziale fononów akustycznych ma jednak znaczenie poznawcze. Domyślam się, że można ja również zastosować do opisu doświadczeń w których fonony optyczne nie mogą uczestniczyć ze względu na niedopasowanie energetyczne obsadzonych stanów w studni i energii stanów w kropce (ten reżim jest pewnie niezbyt obiecujący dla laserów kropkowych).

W rozdziale trzecim znajdujemy opis efektywnego modelu stanów elektronowych w sprzężonym układzie studnia-kropka, który jest o wiele mniej wymagający numerycznie od pełnej metody ***kp***, a który dobrze opisuje stany w studni znajdujące się kilkanaście meV od dna studni – czyli te stany, które powinny być wzięte pod uwagę, gdy rozważany będzie proces transferu elektronu połączonego z emisją fononu optycznego o energii ~30 meV. W rozdziale tym brakuje mi porównania wyników nowej metody z wynikami z ośmiopasmowych obliczeń ***kp***. Domyślam się, iż porównanie takie nie jest łatwe, jako że metoda ***kp*** zastosowana nawet do cylindra o dość dużym promieniu nie odtwarza prawidłowej gęstości stanów elektronowych w studni dla energii ~20 meV powyżej dna pasma (jak pokazano na rysunku 3.1), ale ciekawie byłoby coś więcej na ten temat przeczytać. Zgadzam się jednakże z Autorem, iż zaproponowane przybliżenie jest jak najbardziej rozsądnym i fizycznie dobrze umotywowanym podejściem do problemu.

Obszerny rozdział czwarty zawiera wiele ciekawych i nietrywialnych wyników dotyczących transferu studnia-kropka wywołanego emisją fononu optycznego. Ze względu na płaską dyspersję fononów optycznych nie można tu zastosować Złotej Reguły Fermiego / przybliżenia Markowa dla dynamiki elektronu oddziałującego z fononami, i konieczne jest zastosowanie metody rozwinięcia równań ruchu układu sprzężonych elektronów i fononów na hierarchię opisującą korelacje wielociałowe coraz wyższych rzędów. Technika ta od lat rozwijana jest w grupie prof. Axta w Bayreuth, gdzie mgr. Mielnik-Pyszczorski odbył staż w ramach grantu Etiuda. W rozdziale znajdujemy wyprowadzenie i przejrzyste omówienie hierachii równań kinetycznych, oraz przybliżeń które pozwalają zamknąć układ równań poprzez (fizycznie uzasadnione) zaniedbanie korelacji wyższego rzędu, lub ich faktoryzację na korelacje niższych rzędów. Rozważano również zastosowanie tych równań do opisu uproszczonych, często ściśle rozwiązywalnych modeli: model jednego elektronu i zerowej temperatury w podrozdziale 4.2.4, model stałego sprzężenia elektron-fonon i początkowego braku fononów w 4.3, granica pełnego pasma w 4.8, przypadek pojedynczego elektronu w 4.9. Wszystkie te dyskusje są bardzo ciekawe poznawczo i pokazują one naukową dojrzałość młodego teoretyka: w rozdziale tym opisanym jest nie tylko nietrywialne rozwiązanie pewnego problemu z kwantowej fizyki nanostruktur, ale znajdujemy też w nim dogłębną dyskusję fizyki opisywanej w ramach modelu, oraz nawiązania do pokrewnych problemów pojawiających się w innych dziedzinach (n.p. w optyce kwantowej).

W rozdziale piątym Autor włącza wpływ fononów akustycznych na dynamikę opisaną w poprzednim rozdziale. Efekty redystrybucji nośników w studni wywołane przez ich oddziaływanie z tymi fononami, jak i anharmonizm fononowy prowadzący do rozpadu fononu optycznego na dwa fonony akustyczne, nie mają widocznego wpływu na dynamikę elektronu. W drugim przypadku podane jest ciekawe wytłumaczenie tego faktu.

W drugiej części rozprawy Autor skupia się na problemie relaksacji spinu elektronu w kropce wywołanej przez emisję fononów akustycznych. Rozdział szósty zawiera opis nietrywialnej próby wyprowadzenia z pełnej ośmiopasmowej metody ***kp*** dwupasmowego (tzn. zależnego od spinu) równania masy efektywnej dla elektronu w kropce. W przypadku objętościowego kryształu, zastosowanie metody typu Loewdina pozwala wyprowadzić z Hamiltonianu ośmiopasmowego efektywny Hamiltonian dwupasmowy opisujący z dobrą dokładnością stan elektronu w pobliżu dna pasma przewodnictwa. Jest to możliwe oczywiście ze względu na to, iż podstawowa przerwa energetyczna jest o wiele większa od skal energetycznych wszystkich pozadiagonalnych wyrazów w oryginalnym Hamiltonianie. W literaturze można znaleźć też uproszczone wyprowadzenia Hamiltonianu dwupasmowego dla elektronu w kropce, ale opierają się one na założeniu pewnego modelowego kształtu funkcji obwiedni elektronu, i na prostym uśrednieniu parametrów objętościowego modelu dwupasmowego. W rozprawie podjęto za to próbę systematycznego wyprowadzenia dwupasmowego równania masy efektywnej dla elektronu uwięzionego w stanie podstawowym realistycznej kropki kwantowej, tzn. układu z nietrywialną przestrzenną zależnością naprężeń oraz składu. Problem ten jest trudny, i w rozdziale znajdujemy opis całej hierarchii przybliżeń, w której włączanie kolejnych, coraz bardziej skomplikowanych elementów teoretycznego opisu, powinno prowadzić do coraz większej zgodności pomiędzy wynikami modelu efektywnego i pełnego modelu ośmiopasmowego. Wniosek z tych złożonych obliczeń jest jednak negatywny: bardzo trudno jest uzyskać zadowalającą zgodność pomiędzy obliczeniami w modelu masy efektywnej a wynikami modelu ośmiopasmowego (dla wielkości powiązanych ze spinem, np. dla g-czynnika) bez uwzględniania skomplikowanych poprawek i samouzgodnionej renormalizacji parametrów Hamiltonianu (tzn. po uzyskaniu wstępnego rozwiązania w modelu dwupasmowym wynik tego rozwiązania jest wykorzystywany do wyprowadzenia korekt do pewnych członów w efektywnym Hamiltonianie, i procedura ta jest iterowana). Uważam, iż wyniki z tego rozdziału stanowią pokazują w bardzo ciekawy sposób, iż teoria masy efektywnej jest ciągle żywym zagadnieniem w fizyce nanostruktur.

Częściowo negatywny (z punktu widzenia chęci uproszczenia obliczeń) wynik opisany w rozdziale szóstym jest przyczyną, dla której w rozdziale siódmym relaksacja spinu elektronu w kropce kwantowej zbadana jest przy użyciu pełnego ośmiopasmowego modelu ***kp***. Sam problem relaksacji pomiędzy dwoma stanami dubletu Zeemanowskiego dla elektronu w kropce kwantowej został jakościowo rozwiązany 20 lat temu, gdy Khaetskii i Nazarov pokazali znaczenie starych wyników Van Vlecka dla dynamiki spinu w kropkach kwantowych, i pokazali, że dla mechanizmu relaksacji aktywowanego przez oddziaływanie spin-orbita, które powoduje domieszanie do stanu o danym nominalnym kierunku spinu niezerowej amplitudy stanu o przeciwnym spinie, prawdopodobieństwo spin-flipu skaluje się z polem magnetycznym jak B^5 (B^7) dla oddziaływania piezoelektrycznego (przez potencjał deformacyjny) z fononami. Lektura tego rozdziału uświadomiła a mi jednak, iż w literaturze brak było porządnego *ilościowego* obliczenia czasu relaksacji dla realistycznie modelowanej kropki samozorganizowanej. W rozprawie opisano wszystkie możliwe mechanizmy relaksacji, wynikające zarówno z mieszania stanów spinowych, jak i z bezpośredniego sprzężenia spin-fonon wywołanego przez to, iż fonon jest źródłem dodatkowej deformacji sieci, która w modelu ośmiopasmowym (w którym stany pasm przewodnictwa i walencyjnych są sprzężone, a naprężenia nietrywialnie wpływają na spinową strukturę stanów walencyjnych, ze względu na silne oddziaływanie spin-orbita aktywne dla tych pasm) prowadzi do sprzężenia stanów elektronu o przeciwnych spinach. Pokazano, iż to mechanizm „mieszania spinów" przez człony Hamiltonianu bez fononów daje dominujący wkład do relaksacji, ale w przeciwieństwie do wyniku Khaetskiego i Nazarova, którzy dla kropek bramkowanych oszacowali, iż sprzężenie Dresselhausa powinno być najważniejszym mechanizmem mieszającym spiny, w przypadku silnie naprężonej kropki samozorganizowanej najważniejszy mechanizm mieszający stany elektronu o przeciwnym spinie wynika z istnienia naprężeń. Powodują one pojawienie się członów pozadiagonalnych w modelu dwupasmowym (który ilościowo jest nie do końca wiarygodny, ale przydaje się do jakościowej analizy fizyki mającej znaczenie), jak i silnie modyfikują strukturę pasm walencyjnych, silnie wpływając na efektywny g-czynnik elektronu. Jest to wynik ciekawy i mający znaczenie dla prób wytworzenia kropek kwantowych w których elektron będzie miał długi czas relaksacji spinowej.

Mam tutaj kilka pytań dotyczące interpretacji wyników. Powiązane są one z fizyczną interpretacją zależności B^n prawdopodobieństwa relaksacji. Jak niezwykle przejrzyście opisano w rozdziale VIIA pracy przeglądowej R. Hanson et al., Rev. Mod. Phys. **79**, 1217, można jasno pokazać, jakie przyczyny fizyczne składają się na daną wartość wykładnika n.

Na stronie 138 czytamy, że „wkład C_2 a bardzo niskich polach zachowuje tendencję B^5, jednak w okolicy B=0.3 T jego charakter zmienia się na B^7". Czy da się podać fizyczną interpretację tej zmiany charakteru?

Jaka jest przyczyna wysycenia się współczynnika relaksacji dla dużych pól na rysunku 7.3? Czy dla jeszcze większych pól należy się spodziewać utrzymania tego współczynnika na poziomie wysycenia, czy też jego spadku?

Kilkakrotnie wspominane jest, iż we wcześniejszych pracach zależność B^5 wiązana była z mechanizmem domieszkowym przez sprzężenie Dresselhausa. To nie jest do końca prawda: n=5 obowiązuje dla sprzężenia piezoelektrycznego, małych kropek (w porównaniu do długości fali fononu), oraz obecności efektu Van Vlecka („Van Vleck cancellation"), który jest prostym wynikiem symetrii odwrócenia w czasie: gdy jest ona zachowana (czyli dla B=0), żaden operator zachowujący tą symetrię (n.p. operator odpowiadający za jednofononowe przejścia między stanami elektronowymi) nie może mieć niezerowego elementu macierzowego pomiędzy stanami z dubletu Zeemanowskiego. Zależność typu B^2 dla elementu macierzowego odpowiedniego operatora sprzęgającego stany jest wtedy wymagana dla każdego mechanizmu „domieszki spinowej", niezależnie od tego, jaki typ tego mechanizmu dominuje. Tak więc zależność B^5 nie daje sama w sobie informacji o tym, jaki mechanizm domieszkowy dominuje.

Podsumowując, uważam rozprawę za bardzo ciekawe oryginalne rozwiązanie problemu naukowego (dokładniej: co najmniej dwóch problemów), i wnoszę a dopuszczenie mgr. Adama Mielnika-Pyszczorskiego do dalszych etapów przewodu doktorskiego. Ze względu na to, iż rozprawa zawiera dogłębnie przeanalizowane bardzo ciekawe wyniki dotyczące zarówno realistycznego opisu stanów elektronowych w nanostrukturach, jak i nietrywialnej dynamiki elektronów oddziałujących z kąpielą fononową, wnoszę również o jej wyróżnienie.

Łukasz Cywiński

dr hab. Łukasz Cywiński, prof. IF PAN