

Doctoral Thesis ETH NO. 17478

Optical Investigations of Coherently Coupled Quantum Dots

A dissertation submitted to the
SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY ZURICH

for the degree of
Doctor of Sciences

presented by

Stefan FÄLT

Civilingenjör i teknisk fysik
Lunds Tekniska Högskola, Lunds Universitet

born 12.09.1978

citizen of Sweden

Prof. Atac Imamoglu, examiner
Prof. Klaus Ensslin, co-examiner

19. März 2008

Abstract

In this dissertation, electronic coupling of self-assembled InAs/GaAs quantum dots are investigated by optical means. The quantum dots are stacked in pairs in the growth direction, with a spacing small enough to allow coherent coupling mediated by electron tunneling events. These quantum dot stacks are epitaxially grown with molecular beam epitaxy and are incorporated close to the n-doped back contact of a Schottky diode structure. This device enables an external electric field to be applied to the quantum dots, allowing injection of electrons into the quantum dots in a controllable fashion and detune the energy levels in the two quantum dots of a pair relative to each other.

Emission and absorption spectra of several different charge configurations in a quantum dot stack are studied as the relative tuning is changed. Signatures of the coupling manifest themselves in the fine structure of the transitions as intricate patterns of crossing and anti-crossing lines. Several unique effects were observed with increasing complexity of the charge configuration.

First, focus lies on the simplest excited state configuration, corresponding to a single electron in a double-well potential. This is realized in the regime where two holes form a closed shell. It is demonstrated that molecule-like states are formed as evidenced by a simple avoided crossing. Next, molecular spin interaction is investigated with the injection of a second electron and inter-dot electron-electron exchange interaction leads to the formation of singlet and triplet combinations of the electrons.

In another device, with increased spacing between the quantum dots, the inter-dot tunneling rate is reduced and the intra-dot interactions show a more prominent role. With a charge configuration that is unambiguously determined to consist of two potentially delocalized electrons and one hole, it is found that the coherent coupling is in a previously unexplored regime. In this regime, the electron-hole exchange interaction is dominating and the description of the electron configurations in the singlet-triplet basis is not any more a good basis. Instead, a basis of dark and bright excitons with a spectator electron provides a better picture of the optical signatures of the coupling.

Adding a second hole to the system allows the formation of a hole spin singlet in one of the quantum dots. In this configuration, the electron-hole exchange vanishes and the inter-dot electron-electron exchange is found to be once more the dominant spin-interaction.

Additionally, it is shown that in all cases, Coulomb interaction leads to appreciable shifts in the exciton emission conditional on the charge of the other quantum dot. This provides a venue to use quantum dots as a all-optical charge sensors.

Kurzfassung

In dieser Dissertation wird mit optischen Methoden die elektronische Kopplung selbstorganisierter InAs/GaAs Quantenpunkte untersucht. Die Quantenpunkte wurden entlang der Wachstumsrichtung paarweise gestapelt, wobei der Abstand klein genug gewählt wurde, um kohärente Kopplung durch Elektronen-Tunneln zwischen den beiden Quantenpunkten zu ermöglichen. Diese Quantenpunktstapel wurden epitaktisch durch Molekularstrahlepitaxie gewachsen und nahe dem n-dotierten rückseitigen Kontakt in eine Schottky-Diode integriert. Diese Struktur ermöglicht es, ein elektrisches Feld an die Quantenpunkte anzulegen, um somit sowohl kontrolliert Elektronen in die Quantenpunkte zu injizieren als auch die Lage der energetischen Niveaus der zwei Quantenpunkte relativ zueinander verstimmen zu können.

Für zahlreiche verschiedene Ladungskonfigurationen werden die Emissions- und Absorptionsspektren als Funktion der relativen Verstimmung untersucht. Die Signaturen für die Kopplung erscheinen in der Feinstruktur als ein komplexes Muster aus kreuzenden und antikreuzenden Linien. Mit zunehmender Komplexität der Ladungskonfiguration können zahlreiche einzigartige Effekte beobachtet werden.

Der erste Schwerpunkt liegt auf der einfachsten Konfiguration des angeregten Zustands, dem eines einzelnen Elektrons in einem Doppeltopf-Potential. In diesem Regime bilden die beiden Löcher eine abgeschlossene Schale. Es wird anhand eines einfachen Antikreuzens der Niveaus gezeigt dass sich molekulartige Zustände ausbilden. In einem weiteren Schritt wird ein extra Elektron injiziert um die molekulare Spin-Wechselwirkung zu untersuchen. Elektron-Elektron-Austauschwechselwirkung zwischen den beiden Quantenpunkten führt zur Bildung von Singulett- und Triplettkombinationen der Elektronen.

In einer weiteren untersuchten Struktur wurde der Abstand zwischen den Quantenpunkten vergrößert, sodass sich eine reduzierte Rate für das Elektron-Tunneln zwischen den beiden Quantenpunkten ergab und somit die Wechselwirkungen im Quantenpunkt eine wichtigere Rolle spielten. Der Ladungszustand, der unzweifelhaft als zwei (in Resonanz delokalisierte) Elektronen und ein Loch identifiziert werden konnte, befindet sich in einem bisher unerforschten Regime. In diesem Regime überwiegt die Elektron-Loch-Austauschwechselwirkung, so dass die Singulett- und Triplettzustände der Elektronen keine gute Basis mehr bilden. Ein besseres Verständnis der beobachteten optischen Signaturen vermittelt eine Basis aus dunklen und hellen Exzitonen mit einem Beobachter-Elektron.

Injiziert man ein zweites Loch in das System, so bildet sich ein Loch-Singulett-Zustand in einem der Quantenpunkte. In dieser Konfiguration verschwindet der Elektron-Loch-Austausch; hier ist der Elektron-Elektron-Austausch zwischen den beiden Quantenpunkten die dominante Spin-Wechselwirkung.

Weiterhin wird gezeigt, dass in allen Konfigurationen Coulombwechselwirkung zu beträchtlichen energetischen Verschiebungen der exzitonischen Emission führt, de-

f

ren Betrag vom Ladungszustand des jeweils anderen Quantenpunkts abhängt. Dies ermöglicht die Nutzung von Quantenpunkten als rein optische Ladungssensoren.