

## Propiedades universales en el espectro de energías de puntos cuánticos semiconductores

Alexander Odriazola<sup>a</sup>, Alain Delgado<sup>b†</sup>, Augusto González<sup>a</sup>

a) Instituto Cibernética, Matemática y Física, Ciudad de La Habana

b) Centro de Aplicaciones Tecnológicas y Desarrollo Nuclear, Ciudad de la Habana, gran@icmf.inf.cu

Recibido el 6/04/2009. Aprobado en versión final el 18/06/09

**Sumario.** En un punto cuántico bidimensional con  $N$  electrones en la banda de conducción, confinados lateralmente por un potencial parabólico, la teoría de Thomas-Fermi predice que la energía del estado básico satisface la relación:  $E_{gs}/(\hbar\omega) \approx N^{3/2}f_{gs}(N^{1/4}\beta)$ , donde la constante de acoplamiento,  $\beta$ , es la razón entre las energías características de Coulomb y de oscilador ( $\hbar\omega$ ) y  $f_{gs}$  es una función universal. Cálculos extensivos mediante el método de Interacción de Configuraciones son llevados a cabo para obtener las energías y funciones de ondas multielectrónicas del estado base y las excitaciones intrabandas e interbandas (excitónicas y biexcitónicas) en puntos cuánticos con decenas de electrones. Verificamos en los sistemas estudiados la predicción del método de Thomas-Fermi para las energías del estado base. Adicionalmente, mostramos que el número de niveles de energía en los espectros de excitaciones intrabandas e interbandas sigue una dependencia exponencial simple con la energía de excitación, cuyo exponente,  $1/\Theta$ , satisface también una ley de escala *à la* Thomas-Fermi,  $\Theta/(\hbar\omega) \approx N^{-\gamma}g(N^{1/4}\beta)$ . Del análisis de los espectros calculados y basándonos en argumentos físicos formulamos expresiones para las funciones universales  $f_{gs}$  y  $g$ . La estructura de la biblioteca numérica Libqdot, es presentada y descrita en términos de los módulos Fortran 90 que la componen.

**Abstract.** In a two-dimensional parabolic quantum dot charged with  $N$  electrons, Thomas-Fermi theory states that the ground-state energy satisfies the following non-trivial relation:  $E_{gs}/(\hbar\omega) \approx N^{3/2}f_{gs}(N^{1/4}\beta)$ , where the coupling constant,  $\beta$ , is the ratio between Coulomb and oscillator ( $\hbar\omega$ ) characteristic energies, and  $f_{gs}$  is a universal function. We perform extensive Configuration Interaction calculations in order to verify that the exact energies of relatively large quantum dots approximately satisfy the above relation. In addition, we show that the number of energy levels for intraband and interband (excitonic and biexcitonic) excitations of the dot follows a simple exponential dependence on the excitation energy, whose exponent,  $1/\Theta$ , satisfies also an approximate scaling relation *à la* Thomas-Fermi,  $\Theta/(\hbar\omega) \approx N^{-\gamma}g(N^{1/4}\beta)$ . We provide an analytic expression for  $f_{gs}$ , based on two-point Padé approximants, and two-parameter fits for the  $g$  functions. The structure of the numerical library Libqdot, as well as the role of each Fortran 90 module is explained.

**Palabras clave.** puntos cuánticos 73.21.La, excitaciones electrónicas 73.20.Mf, teoría y modelación 73.43.Cd

## 1 Introducción

En la década del 80 el progreso alcanzado en las tecnologías de crecimiento de materiales y en el estudio de la física de las heteroestructuras semiconductoras bidimensionales y sus aplicaciones prácticas, motivó en gran parte de la comunidad científica el estudio de sistemas con una dimensionalidad aun más reducida: alambres cuánticos (*quantum wires*) y puntos cuánticos (*quantum dots*). A diferencia de los pozos cuánticos, donde los portadores están confinados en la dirección de crecimiento y pueden moverse libremente en un plano, los electrones en un alambre cuántico están confinados en dos direcciones espaciales y su movimiento libre es sólo posible a lo largo del eje del alambre<sup>1</sup>. Los puntos cuánticos son, en efecto, “átomos artificiales” donde las partículas cargadas están confinadas en las tres direcciones espaciales y por tanto, están caracterizados por un espectro de energía completamente discreto<sup>2</sup>.

Existen diversos métodos para la fabricación de estas nanoestructuras semiconductoras. Uno de los primeros, el método de ataque químico, permite obtener arreglos de puntos cuánticos a partir de una heteroestructura semiconductor que contiene un gas electrónico bidimensional mediante la combinación de técnicas litográficas de alta resolución y posteriormente, un ataque químico llevado a cabo con el uso de soluciones especiales. Mediante este procedimiento se obtienen muestras altamente homogéneas de puntos con simetría cilíndrica y dimensiones radiales entre 100 y 400 nm.<sup>3</sup> Otro método consiste en la creación de electrodos microscópicos los cuales son depositados sobre la superficie de un pozo cuántico mediante técnicas litográficas. La aplicación de voltajes adecuados a estos electrodos produce un campo eléctrico espacialmente modulado que localiza los electrones dentro de un área sumamente pequeña<sup>4</sup>. Es posible también crear puntos cuánticos en la forma de microcristales semiconductores inmersos en matrices dieléctricas de vidrio<sup>5</sup>. Durante los últimos años se ha demostrado que un método ventajoso para la obtención de arreglos ordenados de átomos artificiales, es aquel que utiliza el fenómeno de la auto-organización o auto-ensamblaje sobre una superficie cristalina. Cuando la constante de la red del sustrato y el material cristalizado difieren considerablemente, solos las primeras monocapas cristalizan de forma epitaxial. Cuando cierto espesor crítico es excedido, la aparición de tensiones significativas en la capa conduce a un rompimiento de la estructura ordenada y a la creación espontánea de islotes distribuidos aleatoriamente con formas y tamaños similares. Esta transición de fase es conocida como transición de Stranski-Krastanow<sup>6</sup>. Los puntos cuánticos auto-ensamblados son nanoestructuras considerablemente pequeñas. Sus dimensiones típicas están en el orden de 20 nm en la dirección lateral y entre 2 y 5 nm en la dirección de crecimiento<sup>7</sup>.

Los procedimientos actuales implementados para la síntesis de estos “átomos artificiales” brindan la posibilidad

de controlar sus dimensiones, su geometría, la estructura de sus niveles de energía así como el número de partículas confinadas en su interior. En ese sentido estas nanoestructuras constituyen mini-laboratorios que permiten la evaluación de métodos y formalismos de la Mecánica Cuántica. Por otra parte, sus posibles aplicaciones tecnológicas, han despertado un gran interés. Es conocido que los láseres diseñados sobre la base de puntos cuánticos muestran características superiores en comparación con los láseres que basan su funcionamiento en las propiedades ópticas de los pozos cuánticos<sup>8,9,10</sup>. En las investigaciones en el área de la denominada computación cuántica estos sistemas físicos han sido estudiados con el objetivo de diseñar la unidad elemental de memoria (*qbit*) de un computador cuántico<sup>11</sup>.

Numerosos esfuerzos, tanto teóricos como experimentales, se han hecho para la caracterización del espectro de excitación de sistemas multielectrónicos en puntos cuánticos. Esto último constituye una información necesaria para las investigaciones básicas y la concepción de nuevas aplicaciones basadas en estas nanoestructuras. Existen distintas técnicas ópticas para investigar las excitaciones electrónicas en puntos cuánticos. Entre las más usadas podemos mencionar la fotoluminiscencia (PL)<sup>3</sup>, experimentos de absorción intrabanda<sup>12</sup>, interbanda<sup>13</sup>, absorción de dos fotones<sup>14</sup>, la espectroscopia Raman<sup>15</sup>, entre otras. Por otra parte, la modelación teórica de estas propiedades ópticas implica necesariamente conocer tanto las energías como las funciones de ondas asociadas a los estados multielectrónicos involucrados en el cálculo de las amplitudes de transición asociadas a los procesos ópticos mencionados.

En el presente trabajo llevamos a cabo cálculos extensivos mediante el Método de Interacción de Configuraciones (CI) para puntos cuánticos cargados con decenas de electrones ( $20 \leq N \leq 90$ ). A partir de los resultados obtenidos mostramos que la energía del estado base escala como función de una variable definida en términos del número de electrones  $N$  confinados en el punto y la constante de acoplamiento coulombiano  $\beta$ . Además, demostramos que relaciones de escala similares son válidas para el número de estados excitados en los espectros de excitaciones intrabandas e interbandas. En este sentido proponemos parametrizaciones universales para la densidad de niveles de energía de estas nanoestructuras.

## 2 Escalamiento de la energía del estado base

En lo adelante consideraremos un punto cuántico cuasi-bidimensional en forma de disco con radio  $R$ , espesor  $L$  y poblado con  $N$  electrones en la banda de conducción. El confinamiento de los portadores en el plano del punto estará dado por un potencial parabólico con energía característica  $\hbar\omega$ . El Hamiltoniano multielectrónico en unidades de oscilador está dado por la siguiente ecuación

ción,

$$\frac{H}{\hbar\omega} = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \{p_i^2 + r_i^2\} + \beta \sum_{i < j} \frac{1}{r_{ij}}, \quad (1)$$

donde  $\beta = e^2/(\epsilon \ell \hbar\omega)$  es la relación entre la energía característica de Coulomb y la energía característica del punto,  $\ell = \sqrt{\hbar/(m_e \omega)}$  es la longitud característica de oscilador,  $\epsilon$  la constante dieléctrica del medio y  $m_e$  la masa efectiva del electrón en la banda de conducción.

Es posible demostrar en los marcos de la aproximación de Tomas-Fermi<sup>16</sup> que la energía del estado base puede escribirse como:

$$\frac{E_{gs}}{(\hbar\omega)} = N^{3/2} f_{gs}(N^{1/4} \beta). \quad (2)$$

Nótese que en la Ec. (2) la energía del estado base depende de un solo parámetro,  $z = N^{1/4} \beta$ , el cual combina la constante de acoplamiento y el número de electrones. González y colaboradores propusieron en la Ref. [17] una expresión analítica para  $f_{gs}$  usando el Método de los Aproximantes de Padé en el límite de  $N$  grande,

$$\frac{E_{gs}}{\hbar\omega N^{3/2}} \approx \frac{2}{3} + \frac{0.698z + 1.5z^{4/3} + 2.175z^{5/3}}{1 + 2.149z^{1/3} + 1.5z^{2/3} + 2.175z}, \quad (3)$$

mostrando que el escalamiento predicho por la teoría de Thomas-Fermi es bastante general y compatible con los efectos cuánticos reales. Básicamente, la Ec. (3) interpola entre los casos límites  $\beta \rightarrow 0$  (teoría de perturbaciones) y  $\beta \rightarrow \infty$  (cristal de Wigner). Con el objetivo de verificar la relación universal (3) realizamos cálculos extensivos mediante el Método de Interacción de Configuraciones (CI) para puntos cuánticos cargados.

El punto de partida es la solución del problema de Hartree-Fock (HF) para los  $N$  electrones en la banda de conducción. La función de onda de un estado dado la escribimos como:

$$|f\rangle = \alpha^f |HF\rangle + \sum_{\sigma,\mu} X_{\sigma\mu}^f e_{\sigma}^{\dagger} e_{\mu} |HF\rangle + \sum_{\sigma,\rho,\mu,\lambda} Z_{\sigma\rho\mu\lambda}^f e_{\sigma}^{\dagger} e_{\rho}^{\dagger} e_{\mu} e_{\lambda} |HF\rangle. \quad (4)$$

En la ecuación anterior  $\sigma < \rho$  son estados de HF por encima del nivel de Fermi y  $\mu < \lambda$  son estados por debajo del nivel de Fermi. Por tanto, el primer término en la Ec. (4) representa el determinante de Slater solución del problema de HF, el segundo término corresponde a las configuraciones  $1p1h$  en las cuales un electrón es aniquilado por debajo del nivel de Fermi y creado por encima del mismo y el segundo da cuenta de todas las configuraciones  $2p2h$  conformes con los operadores  $e_{\sigma}^{\dagger} e_{\rho}^{\dagger} e_{\mu} e_{\lambda}$ .

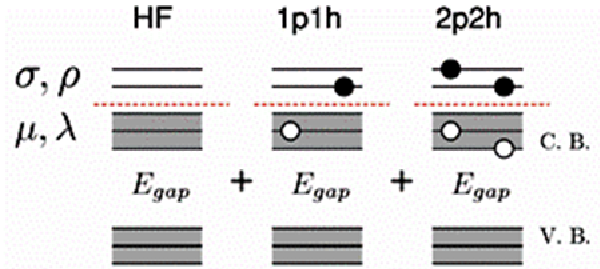
Una representación esquemática de las diferentes contribuciones a la función de onda (4) es ilustrada en la Fig. 1. En el subespacio de Hilbert con los mismos nú-

meros cuánticos que el estado de HF, las energías  $E_f$  y los coeficientes  $\alpha^f$ ,  $X^f$  y  $Z^f$  son encontrados resolviendo el problemas de autovalores,

$$\begin{pmatrix} E_{HF} & 0 & D \\ 0 & A & B \\ D^{\dagger} & B^{\dagger} & C \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \alpha^f \\ X^f \\ Z^f \end{pmatrix} = E_f \begin{pmatrix} \alpha^f \\ X^f \\ Z^f \end{pmatrix}, \quad (5)$$

donde  $E_{HF} = \langle HF|H|HF\rangle$  es la energía de Hartree-Fock,  $A_{\sigma\mu',\sigma\mu} = \langle HF|e_{\mu'}^{\dagger} e_{\sigma} e_{\mu} |HF\rangle$  es la matriz de Tamm-Dankoff,  $D_{HF,\sigma\rho\mu\lambda} = \langle HF|He_{\sigma}^{\dagger} e_{\rho}^{\dagger} e_{\mu} e_{\lambda} |HF\rangle$ ,  $B_{\sigma\mu',\sigma\rho\mu\lambda} = \langle HF|e_{\mu'}^{\dagger} e_{\sigma} e_{\rho}^{\dagger} e_{\mu} e_{\lambda} |HF\rangle$  y la matriz  $C_{\sigma\rho\mu'\lambda',\sigma\rho\mu\lambda} = \langle HF|e_{\lambda'} e_{\mu'} e_{\rho}^{\dagger} e_{\sigma}^{\dagger} e_{\rho} e_{\mu} e_{\lambda} |HF\rangle$ .  $D^{\dagger}$  y  $B^{\dagger}$  son respectivamente las matrices transpuestas de  $D$  y  $B$ . Los elementos matriciales explícitos pueden encontrarse en el apéndice A de la Ref. [18]. En sectores con números cuánticos diferentes con respecto al estado de HF la primera fila y columna de la matriz (5) deben ser excluidas.

Nosotros calculamos la energía del estado básico para puntos con  $N = 20, 30, 42, 56, 72$  y  $90$  y energías características de confinamiento  $\hbar\omega = 6, 12$  y  $18$  meV.



**Figura 1.** Diferentes contribuciones a la función de onda  $|f\rangle$  en el método de Interacción de Configuraciones.

Los puntos calculados corresponden a sistemas de capas cerradas con números cuánticos de momentum angular y espín  $L = S = 0$ . Un corte energético de  $3\hbar\omega$  en la energía de excitación asociada a las configuraciones usadas para construir la función de onda definida en la Ec. (4), es usado para controlar las dimensiones de la matriz Hamiltoniana. El error estimado para la energía del estado base es inferior al 0.2 %. Por otra parte, en nuestros cálculos estudiamos puntos de GaAs crecidos entre barreras simétricas de GaAlAs y consideramos la masa efectiva de los electrones  $m_e = 0.067m_0$  y la constante dieléctrica  $\epsilon = 12.8$ . Llevamos a cabo cálculos para puntos tridimensionales en los cuales el confinamiento en la dirección de crecimiento ( $z$ ) es modelado con un potencial de paredes duras con un ancho  $L = 25$  nm.

La constante  $E_z = \hbar^2 \pi^2 / (2m_e L_z^2)$  fue removida de la

energía del estado base.

Los cálculos obtenidos son mostrados en la Figura 2 (puntos) y comparados con los valores estimados por el método de los Aproximantes de Padé (línea). El escalamiento de la energía del estado base es evidente y la máxima desviación respecto a los valores estimados por la Ec. (3) es inferior al 10 %. Nótese que para los parámetros usados en nuestros cálculos, la variable escalada  $N^{1/4}\beta$  toma valores alrededor de 1, o sea, en el intervalo de transición de acoplamiento débil a fuerte<sup>17</sup>. Con el objetivo de verificar el escalamiento en todo el intervalo usamos dos casos adicionales de control: uno de ellos en régimen de acoplamiento fuerte ( $N = 42$ ,  $\hbar\omega = 2$  meV) y el otro en régimen de acoplamiento débil ( $N = 20$ ,  $\hbar\omega = 50$  meV), ajustándose ambos de forma excelente a la línea definida por los Padé.

### 3 Excitaciones intrabandas

En esta sección concentraremos nuestra discusión en las excitaciones intrabandas. Por simplicidad, consideraremos los estados excitados de puntos cuánticos de capa cerrada. El análisis estará restringido a los sectores del espectro con los mismos números cuánticos que el estado fundamental,  $L = 0$ ,  $S = 0$  y por tal razón de los cálculos realizados para la energía del estado base obtenemos también los estados excitados. Sin embargo, debemos enfatizar que la metodología descrita en la Sección 2 es aplicable al cálculo de excitaciones electrónicas en cualquier sector del momentum angular y el espín.

Un conjunto de los resultados obtenidos es mostrado en la Fig. 3(a) para 42 electrones en el punto con  $\hbar\omega = 6$  meV. Primero, nótese que el gap de excitación, el cual sería  $2\hbar\omega$  en el límite de electrones no interactuantes  $\beta \rightarrow 0$ , es renormalizado por la interacción de Coulomb a un valor cercano a 6 meV, o sea,  $1\hbar\omega$ . En el límite opuesto,  $\beta \rightarrow \infty$ , el espectro de excitación es el correspondiente al de una molécula grande de Wigner cuyas frecuencias de pequeñas oscilaciones son independientes de  $\beta$ .<sup>17</sup> El valor mínimo de estas frecuencias, la cual determina el gap del sistema, tiende a cero en el límite de  $N$  grande conforme a las relaciones de dispersión de los fonones acústicos de la red de Wigner. Basándonos en estos argumentos físicos podemos proponer la siguiente fórmula de interpolación con el objetivo de ajustar la data numérica para el gap al primer estado excitado,

$$\frac{\Delta E_1}{\hbar\omega} = \frac{2 + a_1\beta}{1 + b_1N^\gamma\beta}. \quad (6)$$

El mejor ajuste es obtenido para  $\gamma = 1/4$ . Los resultados se muestran en la figura 3(b) como función de  $z = N^{1/4}\beta$ .

De la ecuación (6) se puede observar que la magnitud  $\Delta E_1$  no escala estrictamente en términos de la variable  $z$ .

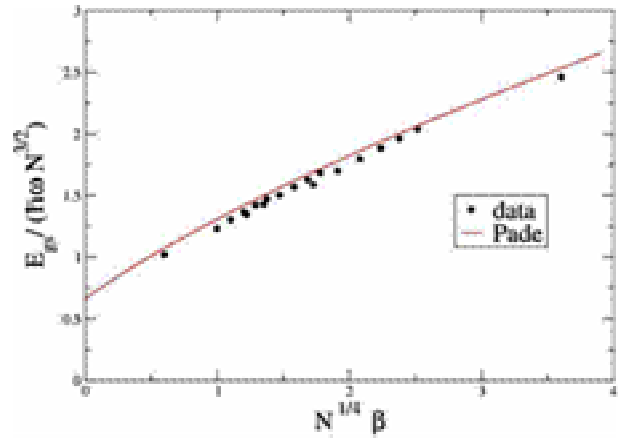


Figura 2. Escalamiento de la energía del estado base en puntos cuánticos de tamaño medio.

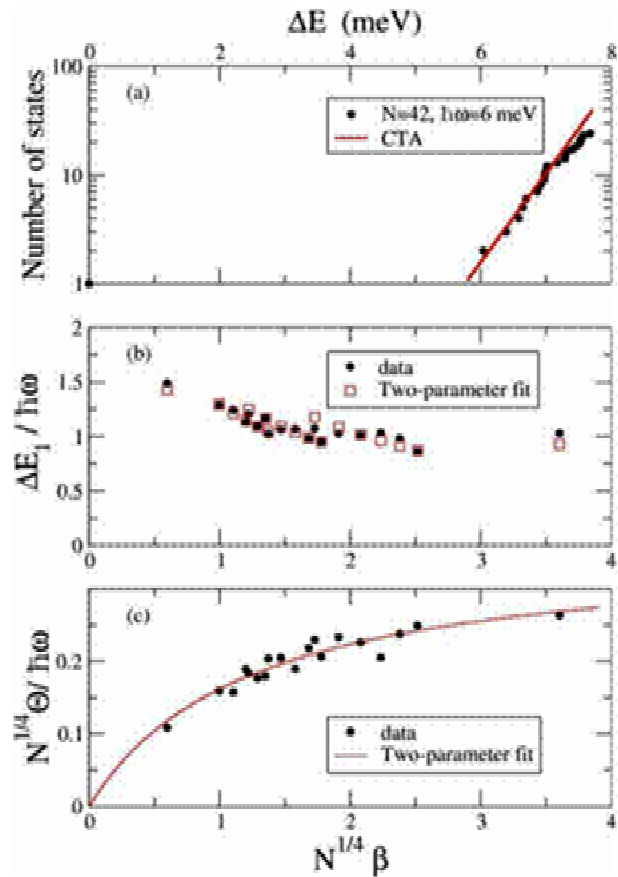


Figura 3. (a) Número de estados excitados en un punto cuántico con 42 electrones como función de la energía de excitación. El confinamiento lateral es  $\hbar\omega = 6$  meV. (b) Gap al primer estado excitado como función de la variable escalada  $z = N^{1/4}\beta$ . (c) Parámetro de temperatura,  $\Theta$ , en variables escaladas. Los ajustes en (b) y (c) corresponden a las ecuaciones (6) y (8).

Sin embargo, la Fig. 3(b) muestra un comportamiento universal para el gap al primer estado excitado del punto para los casos calculados (acoplamiento intermedio). Pa-

ra los parámetros  $a_1$  y  $b_1$  tomamos los valores  $a_1 = 3.659$  y  $b_1 = 1.878$ . El resultado del ajuste es excelente con una desviación máxima inferior al 10 %, similar a lo obtenido para la energía del estado básico. Nótese también, que  $N^{1/4} \Delta E_1 / (\hbar\omega)$  toma un valor universal,  $a_1/b_1$ , en el límite de acoplamiento fuerte,  $\beta \rightarrow \infty$ . Expresiones similares a la Ec. (6) para el gap al primer estado excitado deben ser válidas en otros sectores del momentum angular y el espín y también para las energías de los estados colectivos (excitaciones de densidad de carga y espín).

Un segundo punto a destacar en la Fig. 3(a) es el crecimiento exponencial del número de estados para energías de excitación mayores que 6 meV. Esta dependencia exponencial simple con la energía de excitación es conocida en la Física Nuclear como Aproximación de Temperatura Constante (CTA) (Ref. 19);

$$N_{\text{estados}} = N_0 \exp\left(\frac{\Delta E}{\Theta}\right). \quad (7)$$

Este comportamiento en el número de estados excitados parece ser una propiedad del espectro de excitaciones de sistemas cuánticos. Se ha verificado, por ejemplo, en el espectro energético de puntos cuánticos pequeños bajo la influencia de campos magnéticos fuertes.<sup>20</sup>

Para extraer el parámetro de temperatura,  $\Theta$ , en la Ec. (7), ajustamos la data numérica correspondiente a los primeros 25 estados excitados correspondientes a los puntos cuánticos calculados. Tomando como referencia energética al primer estado excitado en cada espectro procesado, los próximos 24 estados se encuentran a unos pocos (1-4) meV por encima del primer estado excitado.

Con el objetivo de deducir las propiedades universales de  $\Theta$  recordemos los regímenes asintóticos de  $\beta \rightarrow 0$  y  $\beta \rightarrow \infty$ . En el límite  $\beta \rightarrow \infty$  suponemos un comportamiento similar al de  $\Delta E_1$ , o sea,  $N^{1/4} \Theta / (\hbar\omega)$  debe tender a un valor universal. Por otra parte, en el límite  $\beta \rightarrow 0$  las energías de excitación (respecto al primer estado excitado) son proporcionales con  $\beta$ ; por tanto, podemos escribir una fórmula de interpolación simple para el parámetro de temperatura;

$$\frac{N^{1/4} \Theta}{\hbar\omega} = \frac{a_2 z}{b_2 + z}, \quad (8)$$

donde  $a_2 = 0.360$  y  $b_2 = 1.226$ . EL ajuste, como se puede apreciar en la Fig. 3(c) es muy bueno. Nótese además, que los casos de control calculados para la comprobación de las parametrizaciones propuestas se posicionan prácticamente sobre la curva definida por la Ec. (8).

## 4 Excitaciones interbandas: estados excitónicos

En esta sección investigaremos las excitaciones interbandas excitónicas de puntos cuánticos cargados. Una excitación interbanda, en general, tiene lugar cuando un electrón en la banda de valencia transita a un estado de la banda de conducción de la estructura semiconductor. La vacancia electrónica originada en la banda de valencia es tratada en términos de una nueva cuasipartícula, el hueco, y los estados ligados de un par electrón-hueco en un material semiconductor son denominados estados excitónicos. En nuestro caso, investigaremos las excitaciones interbandas de un punto cuántico cargado con  $N$  electrones en la banda de conducción. En este contexto, entenderemos los estados “excitónicos” del punto como estados multielectrónicos de la nanoestructura con  $N+1$  electrones en la banda de conducción y 1 hueco en la banda de valencia. El cálculo de las energías y funciones de ondas de estos estados lo haremos, al igual que en la sección anterior mediante el método de interacción de configuraciones. Calcularemos las excitaciones interbandas excitónicas para puntos cuánticos con  $N = 20, 30$  y  $42$  y  $\hbar\omega = 6, 12$  y  $18$  meV. Los dos casos de control en los regímenes de acoplamiento coulombiano fuerte y débil también serán incluidos.

El punto de partida es la solución de HF para los  $N$  electrones en la banda de conducción del punto. La función de onda del sistema con  $N+1$  electrones en la banda de conducción y 1 hueco en la banda de valencia la escribimos como,

$$|X\rangle = \left( \sum_{\sigma,\tau} V_{\sigma\tau}^X e_{\sigma}^{\dagger} h_{\tau}^{\dagger} + \sum_{\sigma,\rho,\tau,\mu} W_{\sigma\rho\tau\mu}^X e_{\sigma}^{\dagger} e_{\rho}^{\dagger} h_{\tau}^{\dagger} e_{\mu} \right) |HF\rangle. \quad (9)$$

Los índices  $\sigma$  y  $\rho$  denotan estados electrónicos de HF por encima del nivel de Fermi en la banda de conducción. En la segunda suma de la Ec. (9) es restringida según la condición  $\sigma > \rho$  para evitar la repetición de configuraciones. El índice  $\mu$  corre por los estados electrónicos de HF por debajo del nivel de Fermi y  $\tau$  se refiere a los estados de HF de huecos en la banda de valencia. Dichos estados, son obtenidos a partir de diagonalizar el Hamiltoniano  $4 \times 4$  de Kohn-Luttinger incluyendo en la diagonal un término que da cuenta del potencial electrostático generado por los  $N$  electrones en la banda de conducción<sup>21, 22</sup>.

La base de funciones (Ec. (9)) que usaremos para diagonalizar el Hamiltoniano está conformada por configuraciones que definen excitaciones sobre el estado base de HF para  $N$  electrones. El primer término, el cual representa el conjunto de excitaciones más simples, crea un electrón adicional en la banda de conducción (CB) y un hueco en la banda de valencia (VB) y es usualmente denominado en el lenguaje de la Física Nuclear como aproximación partícula-partícula Tamm-Dankoff (pp-TDA).<sup>23</sup> Dado que el hueco en la banda de valencia es tratado como una cuasi-partícula con su propia relación de dispersión, los estados excitónicos son estados con dos “partículas” adicionales por encima de la solución de HF. Por otra parte, el segundo término de la Ec. (9) in-

cluye, además del par electrón-hueco adicional, configuraciones electrónicas  $1p1h$  en la banda de conducción. A estas configuraciones nos referiremos como configuraciones  $ppph$ . Una representación esquemática de las contribuciones  $pp$ -TDA y  $ppph$  a la función de onda de los estados excitónicos es ilustrada en la Fig. 4.

Debido a las peculiaridades de la interacción de Coulomb, el Hamiltoniano de Kohn-Luttinger y el potencial central de confinamiento las excitaciones interbandas están caracterizadas por dos números cuánticos,  $F$  y  $S_z$ . Esto significa que los estados uniparticulares que entran en la primera y segunda sumas de la Ec. (9) deben satisfacer respectivamente la primera y segunda filas de las siguientes igualdades:

$$\begin{aligned} F &= l_\sigma + l_\tau - m_j \\ &= l_\sigma + l_\rho - l_\mu + l_\tau - m_j, \end{aligned} \quad (10)$$

$$\begin{aligned} S_z &= S_\sigma \\ &= S_\sigma + S_\rho - S_\mu. \end{aligned} \quad (11)$$

En las ecuaciones anteriores  $l$  denota el número cuántico de momentum angular (orbital),  $m_j$  se refiere al momentum angular (banda) del hueco y  $S$  al número cuántico del espín electrónico. Todas estas magnitudes corresponden a la proyección a lo largo del eje  $z$ . Los coeficientes  $V^X$ ,  $W^X$  y las energías de excitación referidas al estado de HF son obtenidos tras resolver el siguiente problema de autovalores,

$$\begin{pmatrix} A & C \\ C^\dagger & B \end{pmatrix} \begin{pmatrix} V \\ W \end{pmatrix} = \Delta E_x \begin{pmatrix} V \\ W \end{pmatrix}. \quad (12)$$

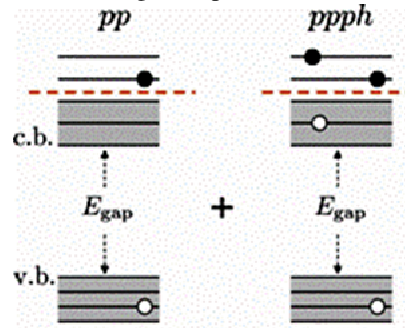
En la Ec. (12)  $A$  es la matriz  $pp$  de Tamm-Dankoff<sup>21</sup>. Las expresiones explícitas de los elementos matriciales de las matrices  $C$  y  $B$  se encuentran en la Ref. [24].

En la Fig. 5 mostramos el espectro de excitaciones interbandas para un punto con 42 electrones y  $\hbar\omega=12$  meV. Los estados representados en dicha figura corresponden al juego de números cuánticos  $F=-3/2$ ,  $S_z=1/2$ . En la medida que se incrementa la energía observamos primero un par de estados seguido por un grupo de cuatro estados y posteriormente un cuasi-continuo de excitaciones. Esta secuencia puede ser entendida en términos del espectro no interactuante de electrones y huecos, representado en la parte izquierda de la citada figura. 42 electrones en el punto ocupan seis capas de estados de oscilador y un par electrón-hueco debe ser añadido para dar lugar a una excitación interbanda. El electrón debe ser añadido en la capa séptima. Los posibles valores para el momentum angular son  $l_c = -6, -4, \dots, 6$ . Por otra parte, el hueco puede ser colocado en el primer estado de oscilador con  $l_h = 0$ . Dado que estamos refiriéndonos al valor a estados con  $F=-3/2$ , sólo tenemos dos posibilidades:

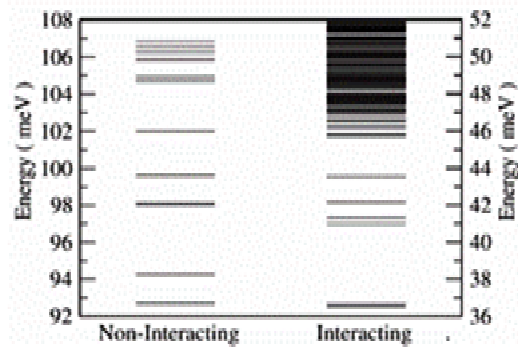
$$l_c = 0, m_j = 3/2 \text{ y } l_c = -2, m_j = -1/2.$$

O sea, un excitón de hueco pesado y un excitón de

hueco ligero los cuales debido al ancho del pozo asumido (25 nm) están muy cercanos en energía (1.5 meV). Los próximos cuatro estados constituyen excitaciones del hueco, en otras palabras, el hueco ocupando estados de oscilador de la segunda capa. Nosotros tomamos la frecuencia de confinamiento del hueco de tal forma que la longitudes características para electrones y huecos es la misma, significando que ambos portadores están confinados en la misma región espacial.



**Figura 4.** Representación esquemática de las contribuciones  $pp$ -TDA y  $ppph$  a la función de onda de los estados excitónicos.



**Figura 5.** Excitaciones interbandas de bajas energías en un punto cuántico con 42 electrones y  $\hbar\omega=12$  meV. Estados con  $F=-3/2$ ,  $S_z=1/2$  son representados.

Para huecos pesados, por ejemplo, esto significa que  $\omega_{hh} = m_c \omega / m_{hh}$ . Como resultado, las energías de excitación para huecos son pequeñas, alrededor de 5 meV. Posteriormente, encontramos un grupo numeroso de estados que aparecen como resultado de una excitación electrónica de  $1\hbar\omega$  o una excitación de hueco de  $2\hbar\omega$ . Siguiendo el cuadro no interactuante descrito anteriormente podemos decir que los dos primeros estados en la Fig. 5 corresponden a un excitón de hueco pesado y un excitón de hueco ligero, los próximos cuatro estados son básicamente excitaciones de hueco a la segunda capa de oscilador y el cuasi-continuo podemos relacionarlo a excitaciones de electrones a la octava capa y excitaciones de hueco a la tercera capa. Los efectos de la interacción de Coulomb son claros en la Fig. 5: los estados del sistema interactuante son empujados a una región de menores energías, los gaps energéticos se reducen significati-

vamente y un cuasi-continuo de estados aparece a partir de una energía de excitación por debajo de  $\hbar\omega=12$  meV.

En la Fig. 6(a) mostramos una figura análoga a la Fig. 3(a) para el caso de las excitaciones interbandas excitónicas de un punto con 42 electrones y  $\hbar\omega=18$  meV. Las energías de excitación en el eje x están referenciadas al primer estado excitado. Los 40 estados de menor energía siguen dos ajustes del tipo del tipo CTA, el primero en la región de  $\Delta E < 12$  meV y el segundo en el intervalo  $12 < \Delta E < 16$  meV. La discontinuidad en la pendiente aparenta ser una característica general<sup>20</sup> relacionada a los mecanismos de formación de los estados.

En este caso, usamos los 10 estados de menor energía con el objetivo de encontrar el parámetro de temperatura en los puntos estudiados y una ley como la descrita por la Ec. (8) para ajustar los cálculos numéricos. Los parámetros encontrados fueron  $a_3 = 1.373$  y  $b_3 = 0.559$ . Un aspecto interesante es que el ajuste propuesto muestra una excelente concordancia con los datos graficados según se muestra en la Fig. 6(b) evidenciando que el *background* electrónico determina las propiedades globales del espectro de excitación excitónico. A diferencia de las excitaciones intrabandas, uno espera que los parámetros  $a_3$  y  $b_3$  dependan débilmente del material semiconductor del punto (GaAs en este caso) a través de los parámetros del Hamiltoniano de Kohn-Luttinger involucrado en el cálculo de los estados excitónicos. Deberá ser investigado en el futuro en que medida se manifiesta dicha dependencia.

## 5 Excitaciones interbandas: estados biexcitónicos

En esta sección nos referiremos a las excitaciones interbandas biexcitónicas de los puntos estudiados. Para ello calcularemos las energías y las funciones de ondas correspondientes a un punto cuántico con  $N+2$  electrones en la banda de conducción y dos huecos en la banda de valencia. La función de onda de un estado biexcitónico dado la escribimos como sigue:

$$|XX\rangle = \sum_{\sigma,\rho,\tau,\eta} C_{\sigma\rho\tau\eta}^{XX} e_{\sigma}^{\dagger} e_{\rho}^{\dagger} h_{\tau}^{\dagger} h_{\eta}^{\dagger} |HF\rangle. \quad (13)$$

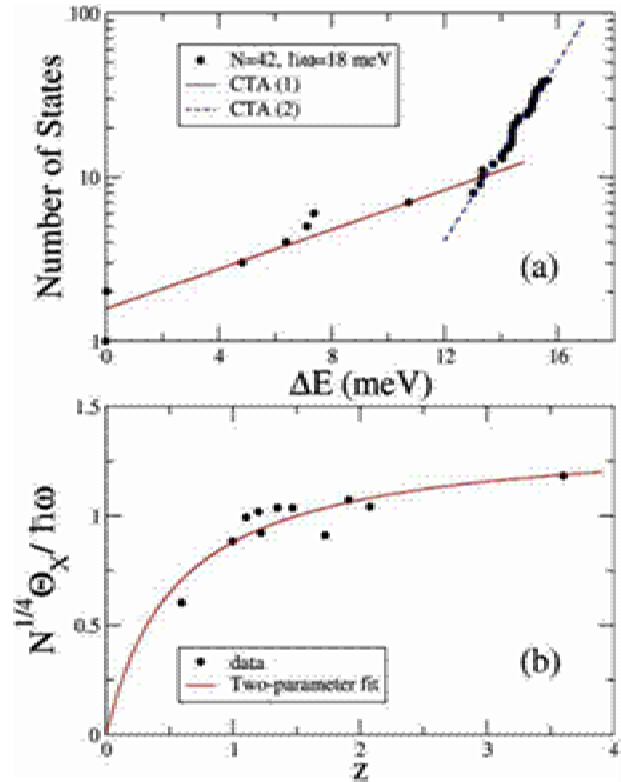
Los índices  $\sigma < \rho$  corren por los estados de HF electrónicos por encima del nivel de Fermi y  $\tau < \eta$  corresponden a los estados de HF de huecos en la banda de valencia. Una representación esquemática de las configuraciones generadas según la Ec. (13) aparece en la Fig. 7.

Los coeficientes  $C^{XX}$  y las energías de excitación se calculan resolviendo el siguiente problema de autovalores,

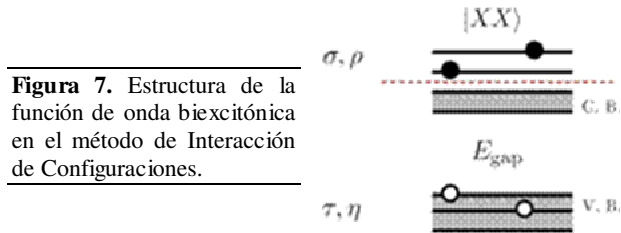
$$MC^{XX} = E_{XX} C^{XX}. \quad (14)$$

Los elementos matriciales de la matriz M se calculan como,

$$\langle HF | h_{\eta} h_{\tau} e_{\rho} e_{\sigma} (H + T_h + V_{hh} + V_{eh}) | HF \rangle. \quad (15)$$



**Figura 6.** (a) Excitaciones interbandas (excitónicas) en un punto cuántico con 42 electrones. En el eje x la referencia de energía es el primer estado excitado. (b) Escalamiento del parámetro de temperatura.



**Figura 7.** Estructura de la función de onda biexcitónica en el método de Interacción de Configuraciones.

En la Ec. (15) H es el Hamiltoniano definido en la Ec. (1),  $T_h$  es el operador de una partícula asociado al movimiento de los huecos en la banda de valencia y  $V_{hh}$  y  $V_{eh}$  dan cuenta de la interacción de Coulomb hueco-hueco y electrón-hueco respectivamente.

Con una energía de corte en la energía de excitación de  $2\hbar\omega$  las dimensiones de las matrices Hamiltonianas diagonalizadas son del orden de 3000. En la Fig. 8(a) mostramos el espectro de excitaciones biexcitónicas de un punto con 42 electrones y  $\hbar\omega=6$  meV. Los números cuánticos de los estados mostrados en dicha figura son  $F=0$  y  $S=0$ . Nótese que con un solo ajuste del tipo CTA podemos describir los primeros 35 estados. Estos primeros estados son utilizados para la determinación del parámetro de temperatura. El escalamiento de  $\Theta_{XX}$  es mostrado en la parte inferior de la Fig. 8. Nótese que a

diferencia de las excitaciones excitónicas y las excitaciones intrabandas, en este caso la potencia de  $N$  es  $1/2$  en lugar de  $1/4$  lo cual se evidencia en una reducción notable de la desviación de los puntos respecto al ajuste propuesto. Por tanto, ajustamos los datos calculados mediante la expresión,

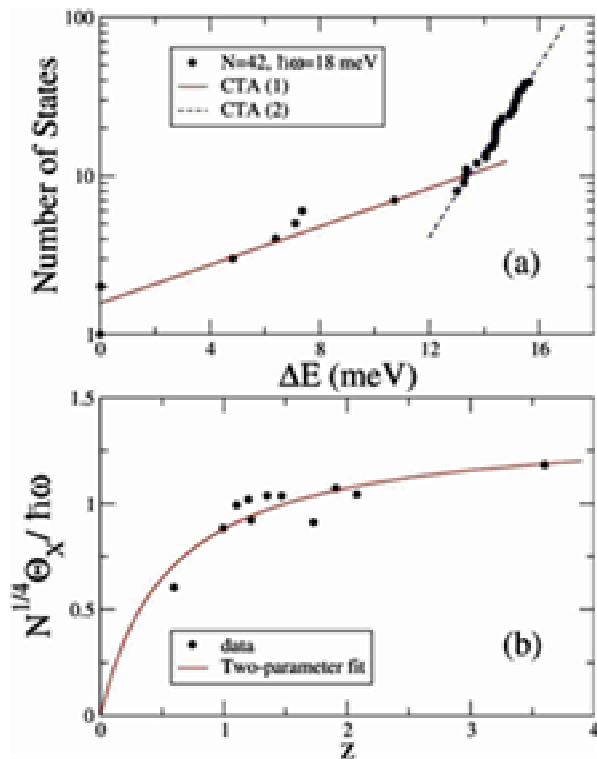
$$\frac{N^{1/2}\Theta_{XX}}{\hbar\omega} = \frac{a_4 z}{b_4 + z}, \quad (16)$$

donde  $a_4 = 3.230$  y  $b_4 = 5.503$ . De la figura se ve que el ajuste es muy bueno.

## 6 Biblioteca numérica Libqdot

Finalmente, en esta sección describimos de forma general la estructura de la biblioteca numérica Libqdot desarrollada en nuestro grupo y que agrupa un total de diez módulos escritos en Fortran 90. Todos los cálculos mostrados en las secciones anteriores fueron realizados empleando ésta biblioteca. Una representación esquemática en orden de la estructura de Libqdot es mostrada en la Fig. 9. Las flechas verdes (sólidas) marcan diferentes etapas de desarrollo. Inicialmente se desarrollaron cinco objetos, como se aprecia en el esquema. El módulo *portability.f90* garantiza la misma precisión numérica para todos los cálculos independientemente de la arquitectura de los recursos computacionales empleados. O sea, el compilador escogerá la representación más eficiente (tipo de las variables) de todas las variables usadas en los módulos y el programa vinculado a la biblioteca garantizando la portabilidad numérica de nuestra herramienta. *locations.f90* es un módulo que contiene las variables de cadena con las rutas del directorio de trabajo y para acceder los elementos matriciales de la interacción de Coulomb involucrados en todos nuestros cálculos. Además, el nombre del directorio de trabajo es construido en este objeto en términos del número de electrones en el punto, el potencial de confinamiento lateral y el material semiconductor de la nanoestructura (e.g. *N\_020\_hw0\_12.6\_GaAs*). Esto último evita, máxime si se hacen cálculos extensivos la sobre escritura de los resultados y elimina las posibilidades de errores del tipo entrada-salida. La definición de los números cuánticos de los estados de oscilador para electrones y huecos y la asignación de todas las constantes asociadas a la estructura de bandas del material semiconductor así como los principales parámetros del punto se realizan en los módulos *levels.f90* y *qdot\_model.f90* respectivamente. Todas las funciones y subrutinas necesarias para la lectura y el cálculo de los elementos matriciales de Coulomb han sido encapsulados en el módulo *coulomb.f90*. Con el objetivo de reducir los tiempos de cálculo de las energías y funciones de ondas multielectrónicas del punto, calculamos todos los elementos matriciales de Coulomb en 20 capas de oscilador ( $\sim 12000000$ ) y los almacenamos en un fichero (*coulomb.dat*  $\sim 447$  MB). Al inicio de cada cálculo los elementos matriciales son cargados en

memoria RAM ( $\sim 120$  MB) lo cual permite resolver las ecuaciones integro-diferenciales no lineales de Hartree-Fock para decenas de electrones en pocos minutos, o calcular las energías y funciones de ondas del punto mediante el método de Interacción de Configuraciones en pocas horas.



**Figura 8.** (a) Excitaciones interbandas (biexcitónicas) para un punto con 42 electrones y  $\hbar\omega = 6$  meV. (b) Escalamiento del parámetro de temperatura para los estados biexcitónicos.

En una segunda etapa tres nuevos subprogramas fueron implementados. En el módulo *hartree\_fock.f90* las subrutinas encapsuladas permiten: a) resolver las ecuaciones de HF para  $N$  electrones en la banda de conducción del punto cuántico; b) resolver las ecuaciones de HF para  $N_e$  electrones y  $N_h$  huecos en un punto cuántico; c) calcular los estados de hueco en la banda de valencia según el formalismo de Kohn-Luttinger; d) cálculo de las propiedades del estado base en la aproximación de HF tales como la energía, el momentum angular total, la proyección de espín total y la densidad electrónica en el punto. Las energías y funciones de ondas de excitaciones intrabandas en la Aproximación de Fase Aleatoria (RPA) pueden ser calculadas con la ayuda del módulo *rpa.f90*. Una subrutina para el cálculo de las amplitudes de transición multipolares ha sido encapsulada en ese objeto también. Esto permite identificar en los espectros calculados, las excitaciones colectivas de carga (CDE) y de espín (SDE). En el módulo *pp\_tda.f90* hemos implementado el cálculo de los estados de un punto cuántico, en la aproximación de Tamm-Dankoff, con  $N+1$  electrones en



la banda de conducción y 1 hueco en la banda de valencia.

En la última etapa de desarrollo de la biblioteca se han incluido dos módulos más, *beyond\_rpa.f90* y *optical.f90*. El primero contiene las subrutinas para el cálculo de las excitaciones intrabandas e interbandas (excitónicas y biexcitónicas) de puntos cuánticos de tamaño medio mediante el método de Interacción de Configuraciones, descrito a lo largo de este artículo. Por otra parte, *optical.f90*, actualmente en desarrollo, permitirá el cálculo de las amplitudes de transición de diferentes procesos ópticos investigados en puntos cuánticos como la fotoluminiscencia, la absorción intra e interbandas, la dispersión Raman, la absorción de dos fotones, etc. Para resolver los problemas de autovalores y autovectores la biblioteca invoca subrutinas de las bibliotecas LAPACK y BLAS. Para la construcción de Libqdot es necesario compilar todos los módulos con un compilador de Fortran 90. Este procedimiento ha sido probado con los siguientes compiladores: *Portland Group Compiler pgf90*, *Compaq Digital Fortran 6.6*, *Intel ifort 11.0.69*. Los mejores rendimientos de la biblioteca se han obtenido con el compilador ifort y usando las bibliotecas MKL (Math Kernel Libraries) de Intel.

## 7 Conclusiones

Hemos implementado el método de Interacción de Configuraciones para llevar a cabo cálculos extensivos en puntos cuánticos de tamaño medio. Del análisis de los resultados numéricos obtenidos hemos encontrado relaciones universales para la energía del estado básico y para la densidad de niveles en los espectros de excitación intrabandas e interbandas (excitónico y biexcitónico). Los coeficientes de la parte derecha de las ecuaciones (3), (6) y (8) son independientes de las constantes del material semiconductor del punto cuántico. Por otra parte, pensamos que los coeficientes  $a_3$ ,  $b_3$ ,  $a_4$  y  $b_4$  son específicos para el GaAs pero independiente de  $N$  y  $\hbar\omega$ .

La biblioteca numérica Libqdot, la cual encapsula un conjunto de módulos Fortran 90 fue implementada. Esto es de gran utilidad dado que la implementación de cálculos diferentes o adicionales para puntos cuánticos puede ser llevada a cabo fácilmente. Además, el diseño de la misma permite su ampliación, enriquecimiento y el uso de la misma por otros usuarios.

El trabajo puede ser extendido en muchas direcciones. Se podría parametrizar de una manera universal la energía de correlación electrónica, las energías de enlace excitónica y biexcitónica, los gaps de excitación en diferentes sectores del momento angular y el espín, la energía de los modos colectivos (plasmónicos). Por otra parte, las aproximaciones implementadas, las cuales están por encima de la RPA, brindan las energías y funciones de ondas para el estudio de diversas propiedades ópticas como la fotoluminiscencia, la absorción intra- e interbandas, la dispersión Raman, la absorción de dos fo-

tones. Otra perspectiva es investigar la dinámica de las excitaciones electrónicas en estas nanoestructuras.

## Agradecimientos

Parte de este trabajo se llevó a cabo usando los recursos computacionales del Centro Internacional de Física Teórica Abdus Salam (ICTP) de Trieste. Los autores agradecen también al apoyo obtenido a través de la Red Caribeña de Mecánica Cuántica, Partículas y Campos (ICTP) y al Programa Nacional de Ciencias Básicas del Ministerio de Ciencia, Tecnología y Medio Ambiente de Cuba.

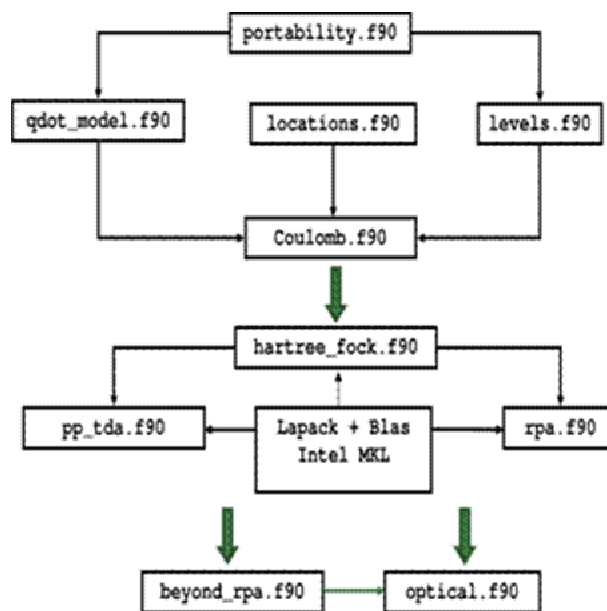


Figura 9. Estructura de la biblioteca numérica Libqdot.

## Referencias

1. M.P. Petroff, C.A. Gossard, A.R. Logan, W. Wiegmann, "Toward quantum well wire: Fabrication and optical properties", *Appl. Phys. Lett.* 41, 635 (1982).
2. C.R. Ashoori, "Electrons in artificial atoms", *Nature* 379, 413 (1996).
3. Sokratis Kalliakos, César Pascual García, Vittorio Pellegrini, Marian Zamfirescu, Lucia Cavigli, Massimo Gurioli, Anna Vinattieri, Aron Pinczuk, "Photoluminescence of individual doped GaAs/AlGaAs nanofabricated quantum dots", *Appl. Phys. Lett.* 90, 181902 (2007).
4. W.G. van der Wiel, S. De Franceschi, J.M. Elzerman, T. Fujisawa, S. Tarucha, L.P. Kouwenhoven, "Electron transport through double quantum dots" *Rev. Mod. Phys.* 75, 1 (2003).
5. I.A. Ekimov, L.A. Efros, A.A. Onushchenko, "Quantum size effect in semiconductor microcrystals", *Sol. Stat. Comm.* 56, 921 (1985).
6. N.I. Stranski, L. Von Krastanow, *Akad. Wiss. Let. Mainz Math. Natur K1 11b* 146, 797 (1939).
7. Y. Masumoto, T. Takagahara, "Semiconductor Quantum Dots", (Springer, Berlin, 2002).
8. Y. Arakawa and H. Sakaki, "Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current", *Appl. Phys. Lett.* 40, 939 (1982).

- 
9. S. Fafard, K. Hinzer, S. Raymond, M. Dion, J. McCaffrey, Y. Feng, and S. Charbonneau, "Red-Emitting Semiconductor Quantum Dot Lasers", *Science* 274, 1350 (1996).
  10. D. Bimberg, M. Grundmann, N. N. Ledentsov, M. H. Mao, Ch. Ribbat, R. Sellin, V. M. Ustinov, A. E. Zhukov, Zh. I. Alferov, and J. A. Lott, "Novel Infrared Quantum Dot Lasers: Theory and Reality", *Phys. Stat. Sol. (b)* 224, 787 (2001).
  11. J.-I. Cirac and P. Zoller, "Quantum Computations with Cold Trapped Ions", *Phys. Rev. Lett.* 74, 4091 (1995).
  12. A. Delgado, L. Lavin, R. Capote and A. Gonzalez, "Far-infrared giant dipole resonances in neutral quantum dots", *Physica E* 8 342 (2000).
  13. G. Allan and C. Delerue, "Confinement effects in PbSe quantum wells and nanocrystals", *Phys. Rev. B* 70, 245321 (2004).
  14. L. A. Padilha, J. Fu, D. J. Hagan, E. W. Van Stryland, C. L. Cesar, L. C. Barbosa, C. H. Cruz, D. Buso, and A. Mar-tucci, "Frequency degenerate and nondegenerate two -photon absorption spectra of semiconductor quantum dots", *Phys. Rev. B* 75, 075325 (2007).
  15. C. Schüller, K. Keller, G. Biese, E. Ulrichs, L. Rolf, C. Steinebach, D. Heitmann, and K. Eberl, "Quasiatomic Fine Structure and Selection Rules in Quantum Dots ", *Phys. Rev. Lett.* 80, 2673 (1998).
  16. E. H. Lieb, J. P. Solovej, and J. Yngvason, "Ground states of large quantum dots in magnetic fields", *Phys. Rev. B* 51, 10646 (1995).
  17. A. Gonzalez, B. Partoens, and F. M. Peeters, "Padé approximants for the ground-state energy of closed-shell quantum dots", *Phys. Rev. B* 56, 15740 (1997).
  18. A. Odriazola, A. Delgado, and A. González, "Universality in the energy spectrum of medium-sized quantum dots", *Phys. Rev. B* 78, 205320 (2008).
  19. T. Ericson, "Compound-nucleus decay via the emission of heavy nuclei", *Adv. Phys.* 9, 425 (1960).
  20. A. Gonzalez and R. Capote, "Discontinuities in the level density of small quantum dots under strong magnetic fields", *Phys. Rev. B* 66, 113311 (2002).
  21. A. Delgado, A. Gonzalez, and D. J. Lockwood, "Semi-quantitative theory of electronic Raman scattering from medium-size quantum dots", *Phys. Rev. B* 69, 155314 (2004).
  22. A. Delgado, "Dispersión inelástica de luz por excitaciones electrónicas en átomos artificiales", Ph.D. thesis, Inst. of Cybernetics, Mathematics and Physics, La Habana, 2006.
  23. P. Ring and P. Schuck, "*The Nuclear Many-Body Problem*", (Springer-Verlag, New York, 1980).
  24. A. Odriazola, A. Delgado, and A. Gonzalez, "Theory of excitonic states in medium-sized quantum dots", *Phys. Rev. B* 78, 035329 (2008).