

Instituto de Física “Gleb Wataghin”, Departamento de Física da Matéria Condensada,
Universidade Estadual de Campinas.

TESE DE DOUTORADO

Estados eletrônicos e absorção óptica em semicondutores de baixa dimensionalidade

Autor: Gustavo Arnaldo Narvaez

Orientador: Prof. Dr. José Antônio Brum (IFGW/UNICAMP)

Co-orientador: Dr. Pawel Hawrylak (Institute for Microstructural Sciences-National Research Council of Canada)

Banca examinadora:

Prof. Dr. José Antônio Brum

Prof. Dr. Nelson Studart Filho

Profa. Dra. Luisa Maria Ribeiro Scolfaro

Prof. Dr. Eduardo Miranda

Prof. Dr. Leandro Russovski Tessler

*Este exemplar corresponde à
redação final da tese de Doutorado
defendida pelo aluno Gustavo Arnaldo
Narvaez e aprovada pela Comissão
Julgadora.*

22-12-00 JAB

**FICHA CATALOGRÁFICA ELABORADA PELA
BIBLIOTECA DO IFGW - UNICAMP**

N227e

Narvaez, Gustavo Arnaldo

**Estados eletrônicos e absorção óptica em
semicondutores de baixa dimensionalidade / Gustavo
Arnaldo Narvaez. -- Campinas, SP : [s.n.], 2000.**

**Orientador: José Antonio Brum e Pawel Hawrylak.
Tese (doutorado) - Universidade Estadual de
Campinas, Instituto de Física "Gleb Wataghin".**

**1. Teoria dos excitons. 2. Mecânica quântica. 3. Fermi,
superfície. 4. Semicondutores propriedades óticas . I. Brum,
José Antonio. II. Hawrylak, Pawel. III. Universidade Estadual
de Campinas. Instituto de Física "Gleb Wataghin".
III. Título.**

 UNICAMP	 Pós	Instituto de Física Gleb Wataghin	C.P. 6165 CEP: 13083-970 Tel. (19) 788-5305 e-mail: secpos@ifi.unicamp.br
--	--	--	--

MEMBROS DA COMISSÃO JULGADORA DA TESE DE DOUTORADO DE GUSTAVO ARNALDO NARVAEZ – RA 960758 APRESENTADA E APROVADA AO INSTITUTO DE FÍSICA “GLEB WATAGHIN”, DA UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS, EM 12/12/2000.

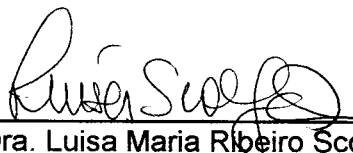
COMISSÃO JULGADORA:



Prof. Dr. José Antonio Brum (Orientador do Candidato) – IFGW/UNICAMP



Prof. Dr. Nelson Studart Filho – IF/UFSCar



Profa. Dra. Luisa Maria Ribeiro Scolfaro - IF/USP



Prof. Dr. Eduardo Miranda – IFGW/UNICAMP



Prof. Dr. Leandro Russovski Tessler – IFGW/UNICAMP

*Esta tese é dedicada à minha filha
e aos meus pais, duas gerações
diferentes com as quais aprendi e
aprendo constantemente.*

Agradecimentos

Várias foram as pessoas que me ajudaram na longa caminhada até hoje e certamente eu sou grato a todas elas. Listar todos os nomes daqueles que colaboraram comigo seria um exercício pesado para minha memória por isso eu simplesmente listarei aqueles que visivelmente participaram do dia a dia do meu trabalho e sempre estiveram dispostos a dar conselhos e apoio. Eles são: José A. Brum, pela orientação, pelo seu interesse na minha formação, pelas inúmeras ajudas nas coisas do cotidiano e pela amizade; Eduardo “*The Jedi*” Miranda pela sua incansável predisposição a discutir assuntos de física, pela forma magistral com que ele lecionou o curso de Teoria Quântica de Muitos Corpos onde aprendi a apreciar a beleza da física de muitas partículas, e, sem dúvida, pelas específicas *enlightening discussions* que fizeram ele merecedor do título de *Jedi*; Fernando Cerdeira pela orientação nos primeiros tempos aqui no Instituto de Física da Unicamp; Oscar Armando García Perez por ter sido um companheiro incansável nesta caminhada, e a Jane por sua constante dedicação, sua indescritível paciência e seu amor.

Agradeço também ao povo brasileiro pela hospitalidade representada impecavelmente pelo povo do “*Bar da Jaque*”, e pelo apoio financeiro através das agências CNPq e FAPESP.

I also acknowledge all the people that made my visit to Canada an amazing experiency: Rafa Sala, Mrs. Jensen, Paul Seringer, Mme. Purette, Agatha, Iwona, Maciek, and Muoi Tran, among many others. I also thank all the fellows of “Lunergan’s Pub” that suffered me singing in the Videoke nights.

I specially thank Pawel Hawrylak for teaching me that physics can be as exciting as you want, and for all the life lessons he gave me that showed me something that could seem simple however many people do not see it: physics makes part of something even more exciting, life.

Finalmente, agradeço à minha filha por ela me mostrar que cada minuto de esforço e sacrifício valem a pena, a toda minha família...

Resumo

Neste trabalho estudamos o efeito combinado da interação elétron-elétron e a mobilidade do buraco de valência nos estados eletrônicos e a absorção óptica em semicondutores de baixa dimensionalidade dopados com elétrons. Modelamos dois sistemas diferentes: i) pontos quânticos auto-organizados, e ii) sistemas bidimensionais. No primeiro caso calculamos a absorção óptica usando diagonalização exata para o cálculo dos estados eletrônicos finais na presença do buraco de valência. Nossos resultados mostram que o efeito combinado das interações e o recuo do buraco originam um espectro de absorção complexo que apresenta assinaturas claras do número de elétrons ocupando o ponto quântico. No caso de sistemas bidimensionais focalizamos nossa atenção em dois problemas específicos: i) o estado fundamental de um complexo de dois elétrons e um buraco de valência (tríon), e ii) os estados eletrônicos e absorção óptica de um gás de elétrons bidimensional. Por um lado, usando técnicas de diagonalização exata e o método variacional, mostramos que o efeito da mobilidade do buraco de valência no estado fundamental do tríon pode ser representado por uma interação adicional entre os elétrons. Esta nova interação modifica a correlação eletrônica e tende a diminuir a energia de ligação do complexo. Por outra parte, o estudo dos estados eletrônicos do gás de elétrons 2D foi feito na aproximação de campo médio (Hartree e funcional da densidade local) em um sistema finito. Calculamos o espectro de absorção óptica usando um modelo de uma partícula que permite a inclusão dos efeitos da interação eletrônica e do recuo do buraco.

Abstract

In this work we study the combined effect of the electron-electron interaction and the valence-hole mobility on the electronic states and optical absorption in low dimensional electron doped semiconducting systems. We model two different systems: i) self-assembled quantum dots, and ii) two-dimensional systems. In the first case we calculate the optical absorption using exact diagonalization techniques to calculate the final electronic states in the presence of the valence-hole. Our results show that the combined effect of interactions and hole recoil originate a complex absorption spectrum with clear signatures of the number of electrons charging the dot. On the case of two-dimensional systems we focused in two specific problems: i) the ground state of a complex having two electrons and a valence hole (trion), and ii) the electronic states of a two-dimensional electron gas. Using exact diagonalization techniques and a variational method we show that the effect of the valence-hole mobility may be considered as an additional interaction among electrons. This new interaction modifies the electronic correlation and tends to decrease the binding energy of the complex. On the other side, the study of the electronic states of the two-dimensional electron gas was performed within a mean-field approximation (Hartree and local density functional) on a finite system. We calculate the absorption spectrum using a single-particle model that allows us to include the effect of electronic interactions and hole recoil.

Conteúdo

1	Motivação	3
I	Sistemas zero-dimensionais	9
2	Pontos quânticos semicondutores	11
2.1	Estrutura eletrônica	12
3	Absorção óptica em pontos quânticos	17
3.1	Resultados e discussão	17
3.1.1	Absorção de um exciton em um ponto quântico não dopado	18
3.1.2	Absorção num ponto quântico carregado	18
3.1.3	Efeitos de correlação no estado eletrônico inicial	19
3.2	Conclusões	20
II	Sistemas bidimensionais	23
4	Poços quânticos semicondutores	25
5	Estado fundamental do X^- bi-dimensional	27
5.1	Modelo	27
5.1.1	Método de configuração-interação	29
5.1.2	Método variacional	30
5.2	Resultados	31
6	Absorção óptica em um gás de elétrons 2D	45
6.1	Hamiltoniana Modelo	46

CONTEÚDO

6.2	Cálculo autoconsistente dos estados eletrônicos	47
6.2.1	Aproximação de Hartree	47
6.2.2	Efeitos de troca e correlação eletrônica	50
6.2.3	Resultados e discussão	51
6.3	Absorção óptica	59
6.3.1	Limiar de absorção	59
6.3.2	Forma de linha	60
6.4	Conclusões	68
6.5	Apêndice	69
7	Conclusão	71

Lista de Figuras

2.1	Morfologia de uma amostra contendo QD auto-organizados.	12
2.2	Espectro truncado dos estados de um oscilador harmônico isotrópico bidimensional.	14
2.3	Estados de $N=4$ elétrons justificando o uso da regra de Hund	15
4.1	Possíveis formas de modulação da estrutura de bandas em uma superrede. . .	26
6.1	(a) Potencial efetivo na aproximação de Hartree para $N=57$ elétrons num disco de $R = 10a_B^X$ calculado autoconsistentemente em um número diferente de subespaços de momento angular m . (b) Comparação do nosso resultado com $n_H = 4$ e $n_H = 20$	53
6.2	Potencial efetivo na aproximação de Hartree para discos de raio $R = 10a_B^X$ e $R = 15a_B^X$ e densidade eletrônica aproximadamente $1.1 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$	54
6.3	(a) Potencial efetivo para o estado inicial e o estado final na aproximação de densidade local para um disco de raio $R = 10a_B^X$ e $N = 57$ elétrons. (b) Densidade eletrônica radial no estado final.	56
6.4	Espectro de energia do estado inicial e final para $N = 57$ elétrons e $R = 10a_B^\mu$	57
6.5	Estados eletrônicos e limiar de absorção em função do número de elétrons no estado inicial para um disco de $R = 20a_B^X$	58
6.6	Limiar de absorção em função do número de elétrons no estado inicial em duas situações qualitativamente diferente: i) polarização de spin nula(SU) e polarização de spin igual a 1(SP).	61
6.7	Espectros de absorção óptica na aproximação de densidade local para diferentes tamanhos do disco conservando fixo o número de elétrons.	64
6.8	Espectro de absorção em função do número inicial N de elétrons no disco. Painel interno: separação dos picos no espectro de absorção em função de N	65

6.9	Espectros de absorção óptica considerando os efeitos da mobilidade do buraco criado ópticamente.	67
6.10	Espectros de absorção óptica considerando os efeitos da mobilidade do buraco em ordem zero na interação V_{pp}	68

Capítulo 1

Motivação

Em um material semiconductor a absorção de um fóton promove um elétron da banda de valência para a banda de condução. A interação fóton-matéria é um dos problemas mais interessantes da matéria condensada. Este é um problema de muitas partículas uma vez que a banda de valência do material esta completamente preenchida por elétrons e a remoção de um deles cria uma lacuna chamada de buraco de valência. Este buraco interage efetivamente com o elétron que foi promovido à banda de condução. Esta interação efetiva é um fenômeno de muitos-corpos. Se imaginamos que no estado anterior ao processo de absorção temos N elétrons na banda de valência, no estado final, após a absorção, os $N - 1$ elétrons que ainda ocupam estados da banda de valência interagem entre si e com o elétron que agora ocupa estados da banda de condução. Esta interação eletrônica determina o potencial efetivo entre o buraco de valência e o elétron de condução. Após algumas aproximações, a dinâmica desta excitação eletrônica do sistema pode ser descrita em termos da dinâmica de uma partícula efetiva: o **exciton**.

A interação efetiva entre o elétron de condução e o buraco de valência é atrativa e Coulombiana. A carga das partículas envolvidas, elétron e buraco, é blindada pela constante dielétrica do meio. Assim, $V_{eh}^{eff} = -e^2/\kappa|\vec{\eta}|$ com $\vec{\eta} = \vec{r}_e - \vec{r}_h$. Pela simetria desta interação e dentro da aproximação de bandas parabólicas, o movimento do exciton pode ser separado em um movimento do centro de massa das duas partículas e de uma partícula reduzida de massa efetiva $\mu = m_e m_h / (m_e + m_h)$. Os estados excitônicos do movimento reduzido são tipo hidrogenóides e apresentam um espectro de infinitos estado ligados mais um contínuo de estado estendidos. O estado fundamental do exciton possui energiada ordem de $E_X = e^4 \mu / 2 \kappa^2 \hbar^2 = \mathcal{R}$ e extensão da ordem de $a_B^X = (\hbar / 2 \kappa \mathcal{R})^{1/2}$. $\mathcal{R}$ é o Rydberg excitônico e ele difere do Rydberg atômico devido à massa reduzida e à constante dielétrica do meio. Isto

origina-se na diferente natureza existente entre o sistema excitônico e o atômico.

Amostras de semicondutores cristalinos não dopados de alta qualidade (baixo nível de pureza) foram obtidas no fim dos anos 50. Isto permitiu observar experimentalmente os efeitos excitônicos previstos teoricamente com mais de duas décadas de antecipação por Frenkel[1] e Wannier[2], entre outros. Experimentos de refletividade, emissão e absorção óptica, em cristais de alta pureza de *Si*, *Ge*, *GaAs* e *InP*, permitiram observar assinaturas destes estados excitônicos nos espectros ópticos.

Com o avanço da tecnologia, nos anos 80 surgiu a possibilidade de preparar amostras de materiais semicondutores onde o movimento em uma das direções é confinado. Estas amostras são preparadas utilizando a técnica de crescimento epitaxial por *molecular beam epitaxy* entre outras. Este cristal sintético que apresenta os poços quânticos é crescido camada por camada. Para produzir os poços quânticos se cresce uma heteroestrutura de dois compostos com diferentes estruturas eletrônicas. Inicialmente se cresce uma camada de composto *A* e em seguida uma camada fina do composto *B* seguida por outra camada *A*. A diferença no valor do *gap* entre os dois materiais produz uma modulação das bandas de energia na direção de crescimento (epitaxial) que, devido à pequena dimensão que o material possui na direção de crescimento, leva a efeitos de confinamento quântico em um sistema tipo poço de potencial. Os estados eletrônicos estendidos tem natureza bidimensional e formam subbandas na direção perpendicular à direção de crescimento. Estes materiais sintéticos abriram a possibilidade de estudar experimentalmente os estados excitônicos em um regime de baixa dimensionalidade. Resultados experimentais de emissão e absorção confirmaram a presença destes estados excitônicos confinados, confirmando a natureza quase-bidimensional do sistema.

Analogamente ao efeito observado em metais, a presença de portadores de carga na banda de condução do poço quântico produz grandes alterações nos espectros de emissão e absorção óptica. Em particular, os efeitos de muitos corpos decorrentes da interação eletrônica são ampliados em amostras contendo poços quânticos devido ao confinamento espacial. As densidades eletrônicas que podem ser atingidas nestes materiais quase-bidimensionais, produzidas por dopantes incluídos no material hospedeiro afastados do poço, produzem energias de Fermi comparáveis com a energia típica da interação eletrônica. Esta é uma característica originada pelo confinamento espacial presente no sistema. Fenômenos como a singularidade no nível de Fermi foram observados experimentalmente nestes sistemas tanto em medidas de fotoluminescência como de absorção óptica. Do ponto de vista teórico, os efeitos da mobilidade do buraco de valência criado no processo de absorção óptica, originada na dispersão

da banda de valência, não permitem sua inclusão nos cálculos de uma forma sistemática. Somado a isto está o fato de que a interação entre partículas tem uma escala comparável com a energia de Fermi nestes sistemas. Estes dois elementos fazem o cálculo das propriedades ópticas bastante difícil. Em particular, os resultados mais recentes do espectro de absorção nestes sistemas quase-bidimensionais indicam o desaparecimento da singularidade no nível de Fermi. Esta conclusão estaria em oposição aos resultados experimentais existentes. Argumentos de localização do buraco de valência em defeitos da interface entre os materiais da heteroestrutura poderiam ser usados para justificar a existência da singularidade nos espectros experimentais. Resultados recentes indicam que mesmo em amostra de alta pureza, onde espera-se que o buraco seja móvel, as singularidades estão presentes no espectro.

Nos últimos dez anos, novos avanços tecnológicos permitiram crescer amostras de qualidade que exibem efeitos de confinamento nas três direções do espaço. Estes sistemas zero-dimensionais, conhecidos como pontos quânticos, também tem sido objeto de estudo tanto teórico como experimental. Após estes primeiros anos de trabalho, concluiu-se que os estados eletrônicos e as propriedades ópticas destes sistemas comportam-se como átomos artificiais. A principal diferença com átomos reais é o potencial de confinamento dos elétrons. Os espectros ópticos de emissão em função do campo magnético mostram uma alta complexidade devido ao efeito combinado da interação elétron-elétron, da mobilidade do buraco e da estrutura eletrônica. Os resultados obtidos por nós para o espectro de absorção na ausência do campo magnético também refletem a importância da interação eletrônica e da mobilidade do buraco fotocriado. Os avanços tecnológicos tem permitido testar experimentalmente um único ponto quântico. Os resultados obtidos mostram um grande acordo entre teoria e experimento. Embora a espectroscopia de um ponto quântico isolado esteja altamente avançada ainda não se tem feito um estudo sistemático da emissão/absorção óptica em pontos quânticos carregados com alguns elétrons. Por outro lado, não há um estudo completo dos efeitos da dopagem eletrônica em pontos quânticos, incluindo os estados eletrônicos do contínuo devido à presença da *wetting layer*. Modelos do espectro óptico de emissão e absorção ainda estão ausentes.

Os trabalhos desenvolvidos nesta tese visam entender o efeito combinado da interação elétron-elétron e a mobilidade do buraco de valência nos estados eletrônicos e na absorção óptica de estruturas semicondutoras de baixa dimensionalidade. Em particular, temos estudado em detalhe a absorção óptica em pontos quânticos semicondutores auto-organizados, e sistemas eletrônicos bidimensionais. Para modelar estes sistemas utilizamos diferentes formalismos teóricos, entre eles: diagonalização exata, método variacional e cálculo auto-

consistente. Nossos resultados mostram que a absorção óptica é uma grandeza sensível à interação entre os elétrons presentes no sistema e também é fortemente determinada pela mobilidade do buraco. Nossa conclusão principal é: interações e mobilidade do buraco atuam em forma combinada para dar um espectro de absorção óptica extremamente complexo. Ao longo desta tese tentaremos expor e fundamentar claramente esta conclusão.

A organização desta é a seguinte:

Capítulo 2: introduz os principais resultados experimentais e idéas gerais sobre pontos quânticos discutindo brevemente os estados eletrônicos de pontos quânticos auto-organizados.

Capítulo 3: apresenta os resultados obtidos teórica e experimentalmente para a absorção óptica em pontos quânticos auto-organizados. Duas situações diferentes foram investigadas: pontos quânticos i) não dopados, e ii) carregados com N elétrons. Após a inclusão de um par elétron-buraco no sistema eletrônico na absorção óptica, a parte eletrônica do exciton se acopla resonantemente com diferentes configurações eletrônicas, na presença do buraco fotocriado, através da interação direta e de troca. Estas configurações resonantes estão presentes no sistema devido à relaxação do buraco junto com excitações do sistema eletrônico. Devido a esta interação o exciton como quase-partícula bem definida deixa de existir. O espectro de absorção óptica é complexo e é determinado pelo número específico de elétrons ocupando a caixa quântica. Os resultados experimentais mostrados neste Capítulo foram obtidos pelo Dr. Manfred Bayer e colaboradores na Universidade de Würzburg na Alemanha. Os resultados mostrados neste capítulo foram publicados no *Physical Review B*[3] e no *Physical Review Letters*[4].

Capítulo 4: Introduz o conceito de superrede semicondutora e discute a formação de gases de elétrons quase-bidimensionais neste tipo de materiais sintéticos. Apresenta a técnica de crescimento destas superredes.

Capítulo 5: descreve o problema dos estados eletrônicos de um sistema semicondutor bidimensional puro constituído por dois elétrons e um buraco na banda de valência. Este conjunto de partículas forma uma entidade conhecida como exciton carregado negativamente(X^-). O estado fundamental e a energia de ligação deste complexo foi modelado utilizando a técnica de configuração-interação e também seguindo o método variacional. Dentro da aproximação parabólica para as bandas de condução e valência identificamos um Hamiltoniano efetivo para o X^- . Mostramos que a energia de ligação do exciton carregado negativamente pode ser muito bem aproximada pela energia de ligação de duas partículas com massa efetiva excitônica(reduzida) ligadas à um centro espalhador Coulombiano fixo, interagindo através de forças Coulombianas. O desvio desta aproximação nos fornece informação sobre a in-

terferência entre os efeitos da interação elétron-elétron e da massa móvel do buraco. Os resultados deste capítulo foram aceitos para publicação na revista *Physica E*.

Capítulo 6: é dedicado ao problema da absorção óptica em um gás de elétrons bi-dimensionais(2DEG) em um material semiconductor. O objetivo deste trabalho é entender o efeito da interação elétron-elétron e da mobilidade do buraco de valência na singularidade no nível de Fermi, presente nos espectros de absorção óptica deste tipo de sistemas. Para calcular o limiar e o espectro de absorção óptica do 2DEG seguimos o modelo implementado por Brum e Hawrylak[67]. O cálculo dos estados eletrônicos é feito autoconsistentemente, emulando o gás de elétrons de densidade eletrônica n_{2D} com um conjunto de N elétrons confinados em um disco bi-dimensional de raio R . O efeito de correlação e troca eletrônica é considerado dentro da aproximação de Função de Densidade Local[44, 45]. O cálculo do espectro de absorção óptica é feito utilizando o modelo de Combescot-Nozières[46]. O efeito da mobilidade do buraco de valência no espectro de absorção óptica é tratado aproximadamente, seguindo a teoria de Hawrylak[64]. Os resultados iniciais obtidos, e mostrados neste Capítulo, refletem a alta complexidade do problema. Os efeitos de confinamento introduzidos pelo disco que emula o espaço bi-dimensional são importantes. Isto dificulta enormemente o estudo da dependência da absorção óptica com a densidade eletrônica n_{2D} . Os resultados obtidos para a forma de linha da absorção óptica ,considerando o buraco de valência localizado, reproduz resultados existentes na literatura[67, 64]. A descrição do recuo(massa móvel) do buraco fotocriado não permite tirar resultados conclusivos sobre o seu efeito na singularidade no nível de Fermi. Isto sugere a necessidade de um cálculo em um melhor nível de aproximação.

Finalmente, apresentamos uma Conclusão Geral sobre os problemas abordados nesta tese contendo uma síntese dos principais resultados obtidos e as possíveis derivações de nosso trabalho.

Parte I

Sistemas zero-dimensionais

Capítulo 2

Pontos quânticos semicondutores

O desenvolvimento da tecnologia tem permitido o crescimento de microestruturas de estado sólido que exibem confinamento quântico, dos portadores de carga, nas três direções do espaço: pontos quânticos(QD)[5]. Os resultados de pesquisas teóricas e experimentais tem revelado características muito interessantes de QDs intrínsecos e dopados: estrutura eletrônica de camadas[6, 8, 7, 20, 24], bloqueio Coulombiano, [8, 7, 21] efeitos magnéticos intrínsecos, mesmo na ausência de campo magnético aplicado [22, 11, 24, 25], emissão estimulada coerente-*laser*[12] entre outras. Em todas estas características dois elementos tem um papel fundamental: geometria do ponto quântico e interações entre portadores. A forma geométrica e o tamanho determinam a natureza do confinamento quântico. Isto é refletido nos estados eletrônicos da banda de condução e de valência dos QDs. Por um lado, pontos quânticos definidos eletrostaticamente, utilizando contatos geometricamente modelados, ou resultantes de ataques químicos de heteroestruturas possuem tamanhos da ordem de $100nm$ [13][8]. No caso de pontos quânticos auto-organizados estes podem ter tamanhos em torno de $20nm$ [29]. Na próxima Seção discutiremos o método de crescimento destes pontos quânticos. A interação Coulombiana entre elétrons e elétron-buraco tem um papel "sintonizável" dependendo da magnitude desta interação comparada com a escala típica de energia de confinamento. Quando a energia típica Coulombiana é predominante frente ao confinamento, fenômenos como o bloqueio Coulombiano estão presentes no QD. No caso contrário, se a escala de energia do confinamento é maior que a da interação entre partículas as propriedades ópticas e de transporte são determinadas pela estrutura eletrônica de uma partícula do sistema. Em pontos quânticos auto-organizados a escala típica da interação Coulombiana é menor que a escala imposta pelo confinamento. Este regime é chamado de confinamento forte. Propriedades ópticas como a fotoluminescência e absorção, assim como

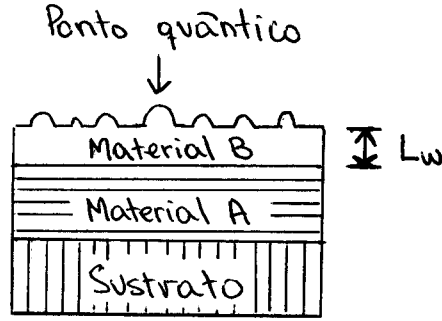


Figura 2.1: Morfologia de uma amostra contendo QD auto-organizados.

a capacitância eletrônica tem sido medidas em QDs com um número variável de elétrons. A variação do número de elétrons é conseguida colocando a heteroestrutura que contém os pontos quânticos em um capacitor e aplicando um campo elétrico variável perpendicular à superfície que contém os pontos quânticos. Experimentos sofisticados de transmissão de luz (absorção) e espectroscopia da capacitância foram relatados por Fricke *et al* [15], e Warburton *et al*. Os resultados mostram que os efeitos de carga eletrônica no espectro de absorção interbanda podem ser bem explicados assumindo que os estados eletrônicos de uma partícula formam camadas de estados degenerados e incluindo as interações elétron-elétron e elétron-buraco na aproximação de campo médio.

Nosso objetivo nesta parte da tese é estudar o efeito da interação eletrônica e a mobilidade do buraco de valência no espectro de absorção óptica destes pontos quânticos autorganizados. A evidência experimental de um número reduzido de camadas de estados eletrônicos fortemente confinados permite fazer um estudo sistemático tanto dos estados eletrônicos quanto da absorção, na presença de dopagem eletrônica. Somado a isto, a possibilidade de examinar experimentalmente um único ponto quântico faz deste sistema um laboratório para o estudo da física fundamental de muitos-elétrons.

Na próxima Seção discutimos em detalhe os estados eletrônicos nestes pontos quânticos.

2.1 Estrutura eletrônica

Os elementos que participam na determinação dos estados eletrônicos são muitos, alguns deles comum aos presentes em poços quânticos (vide Seção 4): i) descontinuidade da banda

de condução entre o material A e B , ii) largura L_{wl} da *wetting layer*, iii) tensão biaxial entre as camadas A e B , iv) diferença entre as constantes dielétricas entre os materiais A e B , e v) morfologia do ponto quântico.

Como mostrado na Figura 6.8, uma amostra contendo QD auto-organizados tem a seguinte morfologia: primeiro, um material semiconductor que atua como sustrato. Em seguida, o material semiconductor hospedeiro A crescido epitaxialmente, seguido de uma camada de largura $L_{wl} \simeq L_c$ do material semiconductor B . A largura desta camada depende do tipo de materiais A e B utilizados no crescimento dos QD. Quanto maior o descasamento ϵ^{AB} menor a largura L depositada epitaxialmente. No caso de pontos quânticos de ligas $In_xGa_{1-x}P$ crescidos sobre $GaAs$ o valor de L_{wl} varia de 50 a 150 Angstroms. Finalmente, no topo desta camada crescem os pontos quânticos auto-organizados. Na geometria de lente convexo os QD são caracterizados pela altura h e pelo diâmetro d . Como esperado, estes comprimentos típicos dependem das condições de crescimento. Mesmo assim, a seguintes relações são válidas de modo geral: $h < L_{wl}$, $d \leq L_{wl}$ e a razão h/d aproximadamente constante. camada de material B que cresceu epitaxialmente sobre o material A constitui a *wetting layer* (WL). Normalmente, após o crescimento das ilhas, uma camada do material A é crescido sobre estas ilhas. Nestas condições, os QD estariam imersos em um sistema quase-bidimensional determinado pelas camadas grossas de materiais A e B . Esta natureza mixta das amostras contendo QD faz que tanto a estrutura eletrônica quanto as propriedades ópticas possuam características muito particulares.

Estados de uma partícula simples

Usando aproximação de massa efetiva, considerando a geometria de lente convexo para os QD, e incluindo os efeitos de tensão e discontinuidade da constante dielétrica através de parâmetros efetivos para a massa do elétron m_e , a constante dielétrica κ e a descontinuidade da banda de condução ΔV_{CB} , a equação de Schrödinger, em unidades de Rydberg efetivo para a energia e raio de Bohr efetivo para o comprimento, para a função envelope do elétron na presença do ponto quântico é:

$$\left[-\nabla_e^2 + V_e(\vec{r}_e) \right] \Psi(\vec{r}_e) = E \Psi(\vec{r}_e) \quad (2.1)$$

Devido à geometria do QD utilizamos coordenadas cilíndricas: $\vec{r}_e = (r, \theta, z)$ com o eixo na direção de crescimento da heteroestrutura (z). A função de onda eletrônica é separada em uma parte axial e outra no plano (r, θ) : $\Psi(r, \theta, z) = F_{nm}(r, \theta)G(z)$ onde $F_{nm}(r, \theta) =$

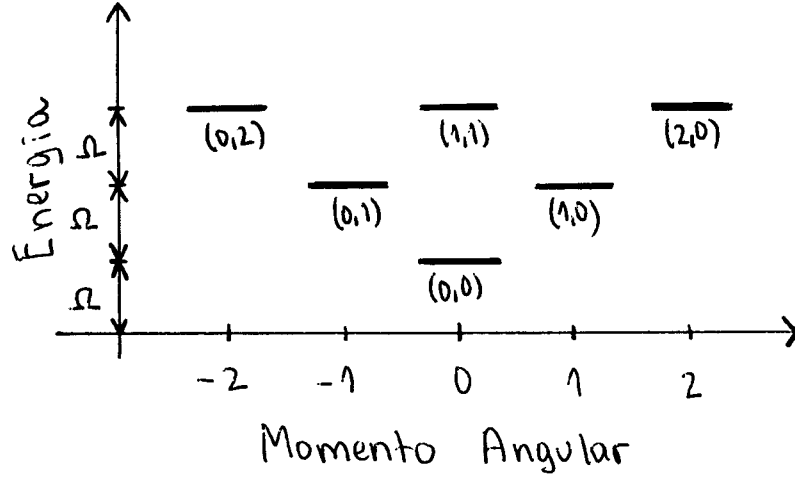


Figura 2.2: Espectro truncado dos estados de um oscilador harmônico isótropo bidimensional.

$e^{im\theta} f_{nm}(r)/\sqrt{2\pi}$. A função $G(z)$ é a função envelope na direção do poço. Esta função difere da solução de um QW simples devido à presença do ponto quântico.

A solução do movimento na direção z fornece um potencial efetivo $E(r)$ na direção radial r . Este potencial efetivo é utilizado na determinação dos estados eletrônicos no plano $f_{nm}(r)$. Os estados eletrônicos se separam em dois grupos: i) estados ligados, originados na presença do ponto quântico, e ii) estados de espalhamento, devidos à presença da WL. O método para achar estes estados eletrônicos é baseado no método da matriz transferência e foi discutido em detalhe por Wojs *et al*[20]. O aspecto mais destacável dos estados eletrônicos ligados é que eles formam camadas de estados quase-degenerados aproximadamente equiespaçados por um valor de energia constante Ω . Esta característica dos estados ligados pode ser descrita pelos estados de um oscilador harmônico bidimensional isótropo com frequência característica Ω . O espectro de energia destes estados é dado por $\mathcal{E}_{nm} = \Omega(n + m + 1)$. O momento angular de uma partícula sujeita ao potencial confinador harmônico isotrópico bidimensional(2D) é: $l = n - m$. Assim, o espectro de estados eletrônicos ligados é bem aproximado pelos estados do oscilador harmônico isótropo 2D, truncados em um número determinado de camadas eletrônicas. A Figura 2.2 mostra o espectro de estados confinados do oscilador harmônico 2D. Os valores experimentais que se encontram para a frequência típica Ω são da ordem de dezenas de meV . Este valor depende fortemente do método de crescimento dos QD e os parâmetros do material.

Assumindo uma banda parabólica com massa efetiva m_h para o buraco, os estados de buraco podem ser aproximados da mesma forma que os estados eletrônicos: estados de um oscilador

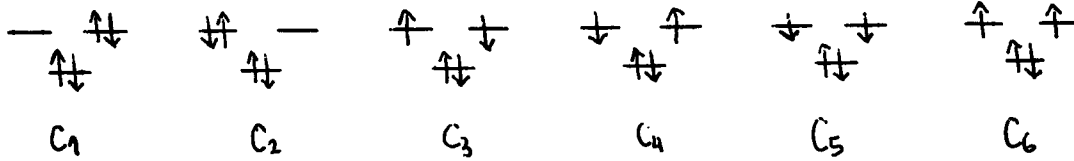


Figura 2.3: Estados de $N=4$ elétrons justificando o uso da regra de Hund

harmônico isotrópico com frequência Ω_h . Naturalmente, a frequência típica Ω_h para os buracos é diferente da frequência típica dos elétrons Ω_e . Experimentalmente, se encontra $\Omega_h/\Omega_e < 1$ independentemente do método de crescimento e/ou materiais utilizados. Isto é consequência da diferença nas massas efetivas entre elétron e buraco.

Estados de muitas partículas e regras de Hund

Até aqui discutimos os estados eletrônicos de partícula simples. No caso em que N elétrons ocupam o QD os estados eletrônicos devem ser calculados incluindo o efeito da interação Coulombiana. Como mencionamos na Seção 2, em um QD auto-organizado a escala de energia do confinamento quântico(Ω) é maior que a escala típica da interação Coulombiana(U_C). Como já discutimos, os estados eletrônicos do QD na ausência de portadores formam camadas. A modo de exemplo vamos supor que o QD possui unicamente 2 camadas(s e p). Os estados disponíveis são: $\{|00\rangle, |10\rangle, |01\rangle\}$. O problema consiste em achar o estado fundamental dos N elétrons no QD.

O caso $N = 1$ é trivial pois não há interação Coulombiana presente no problema. O estado fundamental de $N = 2$ também é trivial: consiste dos dois elétrons ocupando o estado $|00\rangle$. O estado fundamental de $N = 3$ elétrons é duplamente degenerado, um estado corresponde ao subespaço ($S_z = 1/2, R = \pm 1$) e a outra configuração ao subespaço ($S_z = -1/2, R = \pm 1$). O caso $N = 4$ é o primeiro caso não trivial. As possíveis configurações de dois elétrons com a menor energia cinética são mostradas na Figura 2.3. Neste caso, a configuração eletrônica que possui a menor energia é aquela que maximiza o spin total posto que assim a energia total da configuração é diminuída através da interação de troca eletrônica. A **regra de**

Hund atômica estabelece que: dada uma configuração eletrônica em um átomo com spin total S e momento angular total L , esta possuirá a menor energia total quando o spin total S é máximo e o momento angular total é o maior possível desde que compatível com S . As camadas eletrônicas que descrevem os estados de um elétron no QD se assemelham aquelas presentes em átomos. Por esta razão é natural pensar que a regra de Hund atômica pode ser generalizada aos estados eletrônicos de QD carregados com N elétrons. A validade desta generalização foi verificada pela primeira vez por Wojs e Hawrylak[24], usando diagonalização exata para encontrar o estado fundamental de N elétrons ocupando um QD auto-organizado.

Capítulo 3

Absorção óptica em pontos quânticos

Nosso primeiro passo para o entendimento do efeito da interação elétron-elétron e da mobilidade do buraco de valência nas propriedades ópticas de sistemas semicondutores de baixa dimensionalidade consiste em estudar o espectro de absorção óptica de pontos-quânticos semicondutores auto-organizados carregados com N elétrons. Estes pontos quânticos apresentam um espaço de Hilbert limitado, o que permite estudar de uma forma sistemática a interação elétron-elétron e elétron-buraco. Também estes sistemas oferecem a possibilidade de testar experimentalmente os resultados teóricos.

3.1 Resultados e discussão

O espectro de absorção óptica é calculado em função do número de elétrons partindo de uma única configuração eletrônica inicial, consistente com as regras de Hund generalizadas. Em todo o trabalho consideramos polarização de luz circular negativa (σ^-). O cálculo utilizando luz polarizada circularmente positiva é análogo e não traz diferenças qualitativas.

Após a absorção, os estados finais de muitos-elétrons mais o buraco de valência são expandidos em uma base de configurações de estados não interagentes. Estas diferentes configurações podem ser agrupadas segundo o número de excitações eletrônicas que possuem. Devido à presença do buraco estas excitações estão acopladas entre si através da interação Coulombiana. A forma particular em que este acoplamento se produz determina as características do espectro de absorção óptica. Consideramos três camadas de estados eletrônicos e de buraco. Como mostraremos a seguir esta é a situação mais simples que permite encontrar resultados não triviais.

3.1.1 Absorção de um exciton em um ponto quântico não dopado

Antes de iniciar o cálculo do espectro de absorção de pontos quânticos carregados de elétrons estudamos em detalhe o problema da absorção de um exciton ($N = 0$). Existem duas classes de pares elétron-buraco: brilhantes e escuros. Os pares elétron-buraco criados ópticamente possuem momento angular total $R = 0$. O exciton fundamental é formado por todos os estados de pares elétron-buraco com momento angular total zero. No nosso modelo de ponto quântico, com três camadas, temos seis pares elétron-buraco brilhantes os estados ópticamente ativos e dois estados escuros. Estas oito configurações de pares elétron-buraco com momento angular total zero formam o estado fundamental do exciton. Para explorar a simetria do problema, os estados finais utilizados no cálculo da absorção são projetados em uma base especial de estados excitônicos: os estados coerentes. Esta base permite decidir facilmente quais estados estão acoplados pela interação elétron-buraco. Adicionalmente, com esta base de estados, podemos ver que o estado coerente formado com as duas configurações de pares elétron-buraco escuros é degenerado com o estado coerente proveniente das duas configurações brilhantes. Esta degenerescência é independente dos parâmetros que caracterizam a quantização das bandas de condução e valência. A interação elétron-buraco mistura resonantemente estes estados. Como consequência os estados coerente opticamente inativos adquirem força de oscilador e podem ser observados no espectro óptico. A assinatura deste fenômeno é o desdobramento da linha p no espectro de absorção. Notar que este desdobramento é uma característica puramente excitônica. Estes resultados são apresentados e discutidos no Apêndice A. A verificação experimental destas previsões também encontra-se nesse apêndice.

3.1.2 Absorção num ponto quântico carregado

Após ter investigado a absorção óptica de um exciton na ausência de portadores de carga passamos a considerar um conjunto de N elétrons populando o ponto quântico. O cálculo do espectro de absorção é feito em diferentes níveis de aproximação. Inicialmente consideramos a configuração eletrônica do estado inicial como sendo rígida. Nesta aproximação não são permitidas excitações eletrônicas no estado final, na presença do buraco. Esta aproximação seria o equivalente à aproximação de esfera de Fermi rígida utilizada no cálculo da absorção óptica de gases de elétrons bidimensionais. Claramente, os efeitos de correlação eletrônica não são levados em conta neste nível de aproximação. Posteriormente, calculamos a absorção levando em conta possíveis excitações dos elétrons populando o ponto quântico. Com isto,

incluímos as correlações eletrônicas. Na ausência de correlação eletrônica nos estados finais, o espectro de absorção mostra efeitos de renormalização do gap, o bloqueio do espaço de fase, originado no princípio de Pauli, e a quebra em duas da linha de absorção tipo p devido à presença de estados escuros, como discutido no caso do exciton. Os espectros de absorção obtidos nestas duas aproximações são qualitativamente diferentes. A inclusão das excitações eletrônicas junto com a relaxação do buraco de valência modificam dramaticamente o espectro de absorção. Esta mudança tem sua origem no acoplamento resonante entre configurações finais de elétrons mais buraco através da interação Coulombiana direta e de troca. Como consequência deste acoplamento o exciton deixa de ser uma quase-partícula bem definida. O espectro de absorção óptica torna-se sensível ao número de elétrons ocupando o ponto-quântico. Estes resultados são apresentados e discutidos no Apêndice B.

3.1.3 Efeitos de correlação no estado eletrônico inicial

Finalmente, testamos a validade das regras de Hund no caso particular de um ponto quântico carregado com 4 elétrons. Este é o primeiro exemplo onde as regras de Hund são aplicadas. O estado fundamental inicial é constituído por todas as configurações eletrônicas não interagentes compatíveis com a energia cinética e o momento angular total da configuração originada na aplicação das regras de Hund. Este subespaço de configurações possui diferentes excitações eletrônicas que se acoplam à configuração de Hund através da interação Coulombiana. Dependendo da intensidade (V_0) desta interação comparada com o confinamento quântico (Ω_e) os efeitos de acoplamento entre configurações serão maiores ou menores. Quando o acoplamento é desprezível a configuração de Hund é uma excelente aproximação para o estado fundamental. Estes efeitos de correlação eletrônica devem ser somados aos efeitos de correlação introduzidos pela interação elétron-buraco. Embora em um caso simples como o tratado aqui, o cálculo da absorção óptica é um problema complicado. Nossos resultados mostram que para valores de $V_0 > 2.5\Omega_e$ a aproximação de uma única configuração para o estado fundamental perde a validade. O espectro de absorção reflete esta mudança. Os efeitos de redistribuição da força de oscilador são intensificados devido às correlações no estado inicial. Este estado inicial passa a ser constituído por um quadrupletto de configurações que possuem um elétron excitado. Estes resultados são apresentados e discutidos no Apêndice B.

3.2 Conclusões

Para concluir, temos examinado um problema modelo (ponto quântico auto-organizado) que permite estudar sistematicamente o efeito da interação Coulombiana no espectro de absorção óptica. Inicialmente investigamos o efeito da interação elétron-buraco em um ponto quântico sem portadores de carga adicionais ($N = 0$). Encontramos que o espectro de absorção depende dramaticamente da estrutura eletrônica embora não reflita a densidade de estados conjunta do exciton criado opticamente. A linha de absorção associada à camada tipo p é dividida em duas linhas, sendo este efeito puramente excitônico e não associado à separação dos estados de partícula simples. Por outro lado, mostramos que na presença de elétrons populando o ponto quântico o exciton deixa de ser uma partícula bem definida. Isto é consequência da interação elétron-elétron e elétron-buraco, combinadas com a mobilidade do buraco fotocriado. Com isto a absorção óptica se torna sensível ao número de elétrons presentes no ponto quântico.

Appendix A

Excitonic Absorption in a Quantum Dot

P. Hawrylak and G. A. Narvaez*

Institute for Microstructural Science, National Research Council of Canada, Ottawa, Ontario, Canada K1A 0R6

M. Bayer and A. Forchel

Technische Physik, Universität Würzburg, Am Hubland, D-97094 Würzburg, Germany

(Received 10 December 1999)

The excitonic absorption spectrum of a single quantum dot is investigated theoretically and experimentally. The spectrum is determined by an interacting electron–valence-hole complex. We show that the mixing of quantum configurations by two-body interactions leads to distinct absorption spectra controlled by the number of confined electronic shells. The theoretical results are compared with results of photoluminescence excitation spectroscopy on a series of single self-assembled $\text{In}_{0.60}\text{Ga}_{0.40}\text{As}$ quantum dots.

PACS numbers: 71.35.Cc, 73.20.Dx, 78.55.Cr, 85.30.Vw

In this Letter we determine the ground and excited states of an exciton in zero-dimensional systems [1,2]. The variation of the exciton density of states of a single self-assembled quantum dot [3,4] with size is measured by photoluminescence excitation (PLE) spectroscopy [5,6]. We find features in the absorption spectra which were not observed in spectra from large ensembles of dots [7]. These features can be understood by constructing a theoretical model of an exciton in a “coherent exciton” basis. The basis captures important symmetries of the interacting electron-hole pair. The trivial variation of the single particle shell structure is translated into a nontrivial modification of the interacting electron hole system.

The lens-shaped self-assembled quantum dots (SAD) are excellent models of zero-dimensional (0D) systems. In these structures the single particle states $|n, m\rangle$ can be well approximated by those of a pair of harmonic oscillators with quantum numbers m and n [8]. These states form a finite number of degenerate shells $S = m + n$ with degeneracies $g_S = S + 1$ and energies $E(S) = \Omega S$, where $\Omega = \Omega_{e(h)}$ for electrons and holes. The angular momentum of electrons is $l^e = n_e - m_e$. The angular momentum of holes is opposite to the electrons. The electrons and holes interact with each other via Coulomb interaction. The exciton Hamiltonian can be written in any basis of electron-hole states [8]. We focus here on the construction of a basis which captures all the symmetries of the problem and allows us not only to compute but also to understand the exciton spectrum and its dependence on the number of electronic shells. The exciton states are a superposition of a product of electron and hole states $|i\rangle|j\rangle$ (where $|i\rangle = |n_e, m_e\rangle$). Coulomb scattering conserves the total angular momentum $R = l_i - l_j$ of a pair and all states can be classified by their total angular momentum. The absorption spectrum $A(\omega)$ of a photon with frequency ω due to transitions from the initial vacuum state $|0\rangle$ of a SAD to all final states $|i\rangle$ is given by Fermi's golden rule: $A(\omega) = \sum_i |\langle i | \mathcal{F}^\dagger | 0 \rangle|^2 \delta(\omega - (E_i - E_0))$. Here E_i and E_0 are the energies of the final and initial

states of the absorption process. Initial and final states are coupled through the interband polarization operator $\mathcal{P}^\dagger |0\rangle = \sum_j |j\rangle |j\rangle$. $\mathcal{P}^\dagger$ creates electron-hole pairs in identical orbitals j , i.e., with zero total angular momentum of the pair. Let us rename orbitals in terms of their shell index S and angular momentum l as $|S, l\rangle$. We can now generate and classify electron-hole pairs with zero total angular momentum. These states fall into two classes. In each shell S , there are what appear to be optically active pairs of the form $|S, l\rangle |S, -l\rangle$. Their number equals the degeneracy of each shell $S + 1$ and the energy of each pair is $(\Omega_e + \Omega_h)S = \iota S$. Pairs in different shells have different energy. The density of states corresponding to these pairs in a dot with three shells is shown in Fig. 1a. While these pairs correspond to vertical transitions, photons do not create individual pairs but rather a linear superposition of them $\mathcal{P}^\dagger |0\rangle = \sum_S [\sum_l |S, l\rangle |S, -l\rangle]$. Hence only one “coherent” state $|S\rangle = \sum_l |S, l\rangle |S, -l\rangle$ from each $S + 1$ degenerate shell couples to photons. The remaining S states are dark. It is therefore convenient to create a coherent exciton representation which explicitly accounts for this symmetry. This is done by a transformation into Jacobi-like coordinates where one of the orthogonal basis states is the coherent state $|S\rangle$. In Jacobi coordinates one can immediately decide which states are coupled to the coherent state by Coulomb interactions and become optically active. In fact, for symmetric interactions $V_{ee} = V_{hh} = -V_{eh}$ coherent states are exact eigenstates of the interacting exciton Hamiltonian restricted to a given shell. Hence even in the presence of interactions each shell contains exactly one optically active configuration. This symmetry and procedure is analogous to Kohn's theorem for intraband transitions and can be loosely described as “Kohn's theorem for excitons” [9].

The next step is the search for other possible two-particle configurations. The most important configurations, if they exist, are those with energy resonant with coherent exciton states. At first glance the only candidates are pairs of states from different shells, e.g., $|S, l\rangle |S', -l\rangle$. The energy

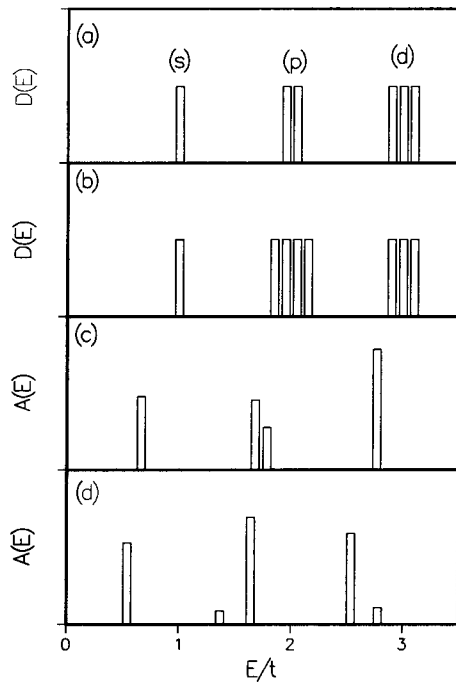


FIG. 1. (a) Density of states of optical transitions; (b) density of states of an exciton in coherent exciton representation showing degeneracies of excitonic shells; (c),(d) calculated absorption spectra showing the splitting of the p -like transition for different sets of quantum dot parameters.

of these states $\Omega_e S + \Omega_h S'$ is different from the energy of coherent exciton states. It is therefore difficult to expect these states to acquire a significant oscillator strength apart from accidental, parameter dependent, degeneracies. However, when we construct a superposition of these electron-hole states from different shells in the form

$$|S, p\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|S - p, l\rangle |S + p, -l\rangle \pm |S + p, l\rangle |S - p, -l\rangle), \quad (1)$$

we find that their energy,

$$E(S, p) = \frac{1}{2} [\Omega_e(S - p) + \Omega_h(S + p)] + [\Omega_e(S + p) + \Omega_h(S - p)], \quad (2)$$

equals the energy $(\Omega_e + \Omega_h)S$ of the coherent exciton state in shell S . What is even more important, this conclusion is valid for any ratio of the electron and hole kinetic energy. These configurations have not been constructed from Jacobi coordinates and therefore Coulomb interactions mix them with coherent exciton states. The mixing makes configurations with a $+$ sign optically active. These are precisely the nontrivial states which strongly modify the absorption spectrum. We can immediately construct degenerate shells of electron-hole states with degeneracies depending on the number of confined single particle levels (n, m) . For two shells (s, p) we have degeneracies $(1, 2)$, for three shells (s, p, d) we have $(1, 4, 3)$,

while for five shells we have $(1, 4, 9, 12, 5)$. Hence degeneracies of excitonic shells depend on the number of confined single particle levels. It is best to illustrate these constructions on a simple example of a dot with two and three shells.

For a dot with three lowest shells $S = 0, 1, 2$, there are six optically active configurations $(a-f)$: $(|00\rangle|00\rangle)$, $(|11\rangle|1-1\rangle)$, $(|1-1\rangle|11\rangle)$, $(|22\rangle|2-2\rangle)$, $(|2-2\rangle|22\rangle)$, $(|20\rangle|20\rangle)$. In addition there are two configurations (g, h) originating from different shells: $(|00\rangle|20\rangle)$, $(|20\rangle|00\rangle)$. These optically inactive states involve a hole (electron) in the zero angular momentum state $|00\rangle$ of the s shell and a hole (electron) in the zero angular momentum state $|20\rangle$ of the d shell. They are degenerate with coherent exciton states of a p shell. Hence an exciton is composed of eight states with zero total angular momentum. The next step is the transformation into coherent exciton states (Jacobi coordinates). The s shell is unchanged, $|A\rangle = |a\rangle$. The p shell contains two configurations: $|B\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|b\rangle + |c\rangle)$ and $|C\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|b\rangle - |c\rangle)$. The d shell is replaced with $|D\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}}(|d\rangle + |e\rangle + |f\rangle)$, $|E\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|d\rangle - |e\rangle)$, and $|F\rangle = \frac{1}{\sqrt{6}}(|d\rangle + |e\rangle - 2|f\rangle)$. The two configurations (g, h) are replaced with $|H\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|g\rangle + |h\rangle)$ and $|G\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|g\rangle - |h\rangle)$. The density of states of an electron-hole pair in Jacobi coordinates is shown in Fig. 1b. The key result is that there are now four degenerate states B, C, G, H in the p shell. The Jacobi coordinates allow us to separate the optically active states from the dark states in the interacting system. By expanding the interband polarization operator in the new basis $\mathcal{P}^\dagger|0\rangle = |A\rangle + \sqrt{2}|B\rangle + \sqrt{3}|D\rangle$ we see that only three coherent states, $|A\rangle$, $|B\rangle$, and $|D\rangle$, are optically active. Clearly states $|C\rangle$, $|E\rangle$, $|G\rangle$, which are the antisymmetric superpositions of pair states, cannot couple to remaining states. Therefore, there are five active states: state $|A\rangle$ from the s shell, states $|B\rangle$ and $|H\rangle$ from the p shell, and states $|D\rangle$ and $|F\rangle$ from the d shell. Hence the spectrum of SAD with three shells will consist of five peaks: one derived from the s shell, two from the p shell, and two from the d shell. The calculated absorption spectra $A(\omega)$ showing the splitting of the p -shell transition are shown in Figs. 1c and 1d. In Fig. 1c the $\Omega_e = \Omega_h$ and masses are the same. In Fig. 1d the $\Omega_e = 2\Omega_h$ and the mass of the hole is twice the mass of the electron. In addition, a small splitting of the d -shell energy levels was introduced to simulate the energy levels of lens-shaped self-assembled quantum dots. In the absence of interactions the transition energies (Fig. 1a) are equally spaced in units of electron-hole energy t . The inclusion of the $e-h$ scattering changes the absorption spectrum. The attractive electron-hole interaction renormalizes transition energies and leads to additional structures in the spectrum. The most important effect is the splitting of the p -shell absorption in Figs. 1c and 1d. The oscillator strength depends on parameters: it is almost equally distributed between the p - p -like

transition $|B\rangle$ and the s - d -like transition $|H\rangle$ in Fig. 1c but changes oscillator strength in Fig. 1d. The absorption into the d shell is also split into two lines, one strong and one weak, and the oscillator strength depends on dot parameters. It is important that the splitting of the p -shell absorption is an excitonic feature due to mixing of configurations. These configurations, and the splitting, become possible in dots with at least three electronic shells and are absent in dots with only two shells. The splitting is not related to the splitting of single particle levels due to dot asymmetries. To test these predictions experimentally we chose identical $\text{In}_{0.60}\text{Ga}_{0.40}\text{As}$ self-assembled quantum dots with different sizes: one dot with only two shells and one dot with three shells.

The single $\text{In}_{0.60}\text{Ga}_{0.40}\text{As}$ SAD have been studied by photoluminescence (PL) and PLE spectroscopy. Figure 2 shows PL spectra of mesa structures of the two samples containing millions of dots [10]. At low optical excitation emission from the ground s shell and from the wetting layer can be seen in both types of dots. With increasing excitation power, emission from higher confined shells is observed. For the first type of dots (upper panel) only two shells are confined: besides emission from the twofold degenerate s -shell emission from the first excited p shell is detected, which is fourfold degenerate (including the spin degrees of freedom). In contrast, for the second type of dots (lower panel) one more shell, the sixfold-degenerate d shell becomes confined. Thus these two samples allow

us to study the modification of the exciton states, when the number of single particle orbitals is doubled.

Spectroscopic resolution of single dots was obtained by a lithographic patterning of the as-grown samples, as described earlier. To test the theoretical predictions, quantum dots exhibiting degenerate single particle shells are required. Degeneracies could be lifted by dot shape asymmetries leading also to a splitting of the p shell [11]. The quantity which is very sensitive to asymmetries is the exciton fine structure due to the electron-hole exchange interaction. Shape asymmetries lead to a linear polarization splitting of the exciton emission. For the present studies we have selected only dots for which no such splitting is observed. This is a clear indication for a rotational symmetry of the structures around the heterostructure growth direction leading to angular momentum degeneracy.

Figure 3 shows characteristic PL (dotted traces) and PLE (solid traces) spectra of a pair of single quantum dots of type 1 (upper panel) and one of type 2 (lower panel). In the low excitation PL spectra a single sharp emission line with a half-width of about 0.1 meV is observed. For the PLE studies the detection wavelength was set to this s -shell recombination energy. The case of a type-1 dot can be easily derived from the above considerations: only the first three states of Fig. 1a need to be considered. Their transformation to Jacobi coordinates gives the states $|A\rangle$, $|B\rangle$, and $|C\rangle$. The last state is optically inactive. Therefore only two absorption lines are observed in the absorption

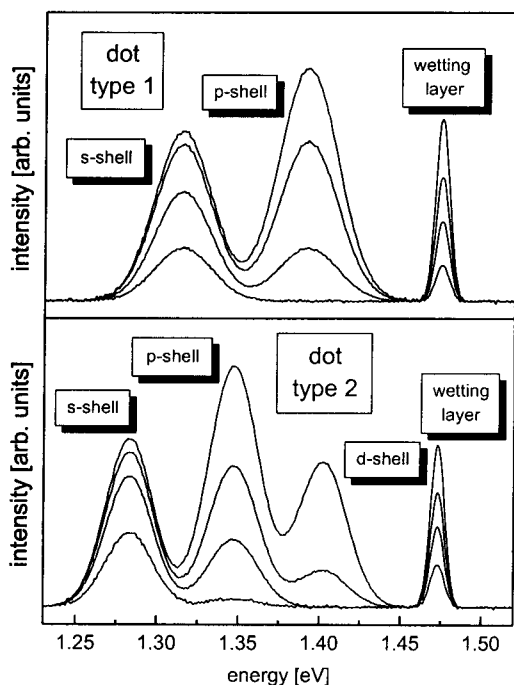


FIG. 2. Photoluminescence spectra on arrays of $\text{In}_{0.60}\text{Ga}_{0.40}\text{As}$ self-assembled dots recorded for varying excitation power by an Ar^+ laser at $T = 2$ K. In the type-1 dots sample (upper panel) only two electronic shells are confined in the dots; in the type-2 dot sample (lower panel) three shells are confined.

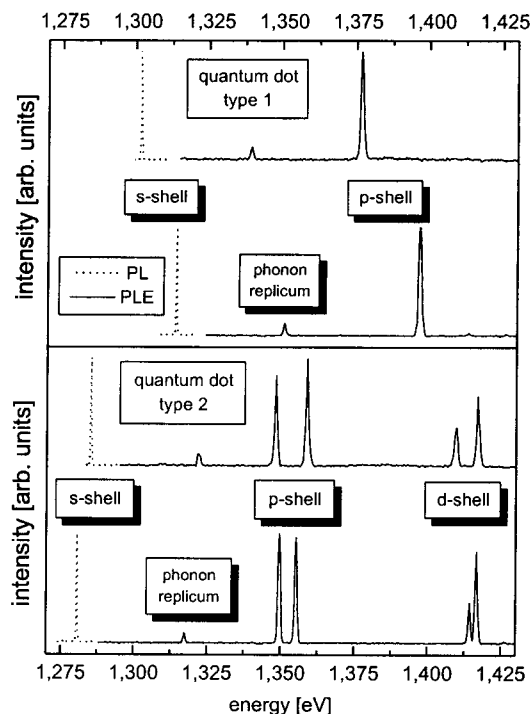


FIG. 3. Photoluminescence excitation spectra ($T = 2$ K) of single $\text{In}_{0.60}\text{Ga}_{0.40}\text{As}$ self-assembled dots of type 1 (upper panel) and of type 2 (lower panel). Excitation source was a tunable Ti-sapphire laser.

spectra as displayed in Fig. 3. For the dots of type 1 only a single sharp absorption line of strong intensity is observed between the s -shell exciton energy and the energy of the wetting layer recombination. Its energy corresponds well with the energy of the p -shell emission in Fig. 2. Note also that a phonon replicum is observed, which is located 36.7 meV above the s -shell exciton. However, its intensity is more than an order of magnitude weaker than the p -shell exciton absorption. This is an indication that the system exhibits in good approximation charge neutrality; that is to say, an exciton in the quantum dot does not have a large dipole momentum nor does the dot contain additional charges. Otherwise the phonon replica intensity would be expected to be much stronger.

The phonon replicas are also very weak for dots of type 2. However, now a doublet of strong absorption lines of comparable oscillator strength is observed for the p shell. The energy splitting between the two spectral lines is about 8.5 meV for the lower and 10.5 meV for the upper spectrum. We identify the two lines as originating from configurations $|B\rangle$ and $|H\rangle$. The calculated energy splittings are 10 meV for Fig. 1c with $t = 100$ meV and 19 meV for Fig. 1d with $t = 70$. The actual values do of course depend on the parameters of the dot and a choice of different effective masses can achieve a superficial quantitative agreement with the experiment. In the d shell a doublet of emission lines appears with a much smaller splitting of about 2 meV. Furthermore, the higher lying feature has a considerably larger oscillator strength than the lower energy feature. The number of features in the d shell is consistent with those predicted by calculations. We note that for all selected symmetrical quantum dots of types 1 and 2 the same principal behavior was observed in PLE. It can be also observed for asymmetric dots, but in this case, e.g., the p -shell splitting due the asymmetry and the Coulomb induced configuration mixing cannot be distinguished.

In summary, we have studied theoretically and experimentally the evolution of the excitonic absorption spectrum of a single self-assembled quantum dot with its size. It was shown that the absorption spectrum of the p shell splits into two lines when higher electronic shells in the

dot appear. The splitting was shown to be an example of the nontrivial mixing of resonant configurations in the interacting electron-hole complex. This experiment demonstrates the high degree of control and tunability of interacting electronic systems in quantum dots.

G.A.N. thanks FAPESP-Brazil for financial support. The work was supported by the State of Bavaria.

*Permanent address: Instituto de Física "Gleb Wataghin"-DFESCM, Universidade Estadual de Campinas, CP 6165 Campinas 13083-970, São Paulo, Brazil.

- [1] G. W. Bryant, Phys. Rev. B **37**, 8763 (1988); Y. Z. Hu *et al.*, Phys. Rev. B **42**, 1713 (1990); V. Halonen *et al.*, Phys. Rev. B **45**, 5980 (1992); W. Que, Phys. Rev. B **45**, 11 036 (1992); U. Bockelmann, Phys. Rev. B **48**, 17 637 (1993); Selvakumar V. Nair and Toshihide Takagahara, Phys. Rev. B **55**, 5153 (1997); Alberto Franceschetti and Alex Zunger, Phys. Rev. Lett. **78**, 915 (1997).
- [2] P. Hawrylak *et al.*, Physica (Amsterdam) **2E**, 652 (1998).
- [3] L. Jacak, P. Hawrylak, and A. Wojs, *Quantum Dots* (Springer-Verlag, Berlin, 1998); T. Chakraborty, Comments Condens. Matter Phys. **16**, 35 (1992).
- [4] P. Hawrylak, S. Fafard, and Z. Wasilewski, Condens. Matter News **7**, 16 (1999).
- [5] K. Brunner *et al.*, Phys. Rev. Lett. **69**, 3216 (1992); A. Zrenner *et al.*, Phys. Rev. Lett. **72**, 3382 (1994); D. Gammon *et al.*, Science **273**, 87 (1996); **277**, 85 (1997); Phys. Rev. Lett. **76**, 3005 (1996); M. Bayer *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 1748 (1999); A. Kuther *et al.*, Phys. Rev. B **58**, 7508 (1998); L. Landin *et al.*, Science **280**, 262 (1998); E. Dekel *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 4991 (1998).
- [6] A. Zrenner *et al.*, J. Electron. Mater. **28**, 542 (1999).
- [7] R. J. Warburton *et al.*, Phys. Rev. Lett. **79**, 5282 (1997).
- [8] A. Wojs, P. Hawrylak, S. Fafard, and L. Jacak, Phys. Rev. B **54**, 5604 (1996); P. Hawrylak, Phys. Rev. B **60**, 5597 (1999).
- [9] R. Rinaldi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **77**, 342 (1996).
- [10] S. Raymond *et al.*, Phys. Rev. B **54**, 11 548 (1996).
- [11] L. W. Wang, A. J. Williamson, A. Zunger, H. Jiang, and J. Singh, Appl. Phys. Lett. **76**, 339 (2000).

Appendice B

Effects of electron-electron interactions on excitonic absorption in charged self-assembled quantum dots

Gustavo A. Narvaez

*Institute for Microstructural Sciences National Research Council of Canada, Ottawa, Canada K1A 0R6
and Instituto de Física "Gleb Wataghin" - DFESCM, Universidade Estadual de Campinas,
Caixa Postale 6165 Campinas 13083-970, São Paulo Brazil*

Pawel Hawrylak

Institute for Microstructural Sciences National Research Council of Canada, Ottawa, Canada K1A 0R6

(Received 22 November 1999)

We investigate theoretically the effects of electron-electron interactions on excitonic absorption in charged, lens-shaped, self-assembled quantum dots (SAD). The electronic shells of SAD are filled with N electrons according to generalized Hund's rules. In absorption, an exciton is added to the electronic system. The electronic part of the exciton couples in a nontrivial way to resonant electronic configurations of SAD through direct and exchange interaction while the mobile valence hole contributes through the entanglement of many-electron configurations. The two processes result in an excitonic absorption spectrum that reflects the filling of electronic shells. These processes are illustrated by detailed calculations of absorption spectra for few-electron complexes.

I. INTRODUCTION

The absorption of a photon in a semiconductor creates an electron in the conduction band and a hole in the valence band. An electron and a hole bind to form an exciton and the absorption spectrum is proportional to the density of states of this composite particle. When free carriers are present in the conduction band the absorption is quickly modified.¹ For a localized valence hole the absorption spectrum evolves from excitoniclike to a Fermi edge singularity (FES).^{1,2} Much has been understood about the FES because the problem of non-interacting electrons coupled to a localized valence hole is exactly solvable.² However, in quasi-two-dimensional semiconductor systems neither electron-electron interactions nor the finite hole mass can be neglected and our understanding of the effect of free carriers on optical absorption is limited.³⁻⁶ We can further our understanding of the effect of electron-electron interaction on excitonic absorption by studying simpler systems with limited Hilbert space where electron-electron and electron-hole interactions can be treated in a systematic way. A quantum dot⁷ filled with electrons not only offers such an opportunity but is also an interesting electronic system in its own right. An ability to control, and hence detect, individual charges in self-assembled quantum dots (SAD) is essential for a wide range of applications, from single electron transistors and memories to quantum gates.⁸ For these reasons interband optical properties of quantum dots charged with electrons have been investigated experimentally⁹⁻¹² and theoretically.¹³⁻¹⁷ In this work we focus on excitonic absorption in charged self-assembled quantum dots. Emission spectra and excitons in charged quantum dots have already been investigated using exact diagonalization techniques.^{15,17} The emission spectra showed spectral features related to the filling of electronic shells. In particular, partially filled shells led to a splitting of the emission line due to mixing of resonant final-state con-

figurations. The splitting can be traced to spin polarization of half-filled shells. Recent experiments by Schmidt *et al.*¹¹ confirmed only some of the theoretically predicted features like band-gap renormalization. Other features due to correlations remained obscured by inhomogeneous broadening. In a related recent work, Warburton *et al.*¹² measured absorption spectra of ensembles of charged quantum dots as a function of the number of electrons N in the dot. His experiments nicely demonstrated the Pauli exclusion principle, i.e., that once electronic shells are fully occupied the absorption process into these shells is blocked. Simple mean-field calculations of a few-electron and single-hole configuration reasonably well described the energetic shifts of the inhomogeneously broadened absorption spectrum as a function of the number of carriers.¹⁶ Detailed calculations that would address the role of electron-electron, electron-hole, and finite-hole mass on the absorption spectrum have not been carried out yet. Recent progress in optical spectroscopy of individual quantum dots¹⁸⁻²³ where spectra are no longer obscured by inhomogeneous broadening, warrants such a calculation.

In this work we calculate optical absorption spectra in charged lens-shaped self-assembled quantum dots. The single-particle levels of electrons and of holes form degenerate electronic shells. Electrons fill up the dot according to generalized Hund's rules.¹⁵ We calculate absorption spectra using different approximate schemes and compare with exact calculations. We find that when an exciton is added to a partially filled shell it is resonant with many-electron and a hole configurations with the same energy. The resonant configurations are generated by a valence hole relaxation combined with excitation in the electron system. The interaction with resonant configurations breaks up the exciton and it ceases to be a well-defined quasiparticle. In this case the results of approximate calculations are not trustworthy. When the shell is full the absorption is blocked and only

absorption to higher empty shells is possible. Detailed calculations of the absorption spectra as a fingerprint of the number of carriers N establish interband spectroscopy as a sensitive probe of the number of electrons and the electronic structure of the dot.

II. SINGLE-PARTICLE STATES

Single-particle states in self-assembled quantum dots depend on growth conditions that control facetting, alloy composition, size, and shape. We focus here on a model of lens-shaped quantum dots that is sufficiently general to be applicable to a wide class of zero-dimensional systems. In lens-shaped self-assembled quantum dots the single-particle states $|n, m\rangle$ for electrons in the conduction band and holes in the valence band can be well approximated by those of a pair of harmonic oscillators with quantum numbers n and m .²⁴ The energy spectrum is given by $\varepsilon_{n,m} = \Omega(n + m + 1)$. The single-particle states form degenerate shells with energy separation Ω whenever $n + m = 0, 1, 2, \dots$. Here $\Omega = \Omega_{e(h)}$ is the electronic shell spacing for electrons and for holes. We identify these shells as $s, p, d, e, f, \dots$. The angular momentum of single particle states is $r^e = n_e - m_e$ and $r^h = -n_h + m_h$ for electrons and holes, respectively.

In the literature, different values for energies Ω_e and Ω_h for self-assembled dots have been reported. Reference 25 found $\Omega_e = 12.4$ meV and $\Omega_h = 3.7$ meV as good parameters to model their experiment. On the other hand, authors of Ref. 26 found $\Omega_e \sim 30$ meV and $\Omega_h \sim 15$ meV as being good effective parameters, while Ref. 27 reported $\Omega_e \sim 50$ meV and $\Omega_h \sim 27$ meV. Hence, depending on fabrication method and growth condition quantum dots show ratios of the valence- and conduction-band energy spacing $\Omega_h/\Omega_e \leq 1$.

III. MODEL HAMILTONIAN

The Hamiltonian describing the interband optical absorption process in modulation-doped self-assembled quantum dots involves many electrons and a single valence hole. Using composite indices $i = \{n_i, m_i\}$ to describe orbital quantum numbers and σ_i to describe spin, the Hamiltonian in second quantized notation reads

$$\begin{aligned} \mathcal{H} = & \sum_{i\sigma_i} \varepsilon_i^e c_{i\sigma_i}^\dagger c_{i\sigma_i} + \sum_{i\sigma_i} \varepsilon_i^h h_{i\sigma_i}^\dagger h_{i\sigma_i} \\ & + \frac{1}{2} \sum_{i,j,k,l,\sigma_i,\sigma_j} \langle ij | v_{ee} | kl \rangle c_{i\sigma_i}^\dagger c_{j\sigma_j}^\dagger c_{k\sigma_k} c_{l\sigma_l} \\ & - \sum_{i,j,k,l,\sigma_i,\sigma_j} \langle ij | v_{eh} | kl \rangle c_{i\sigma_i}^\dagger h_{j\sigma_j}^\dagger h_{k\sigma_k} c_{l\sigma_l}. \end{aligned} \quad (1)$$

The operators $c_{i\sigma_i}^\dagger (c_{i\sigma_i})$ and $h_{i\sigma_i}^\dagger (h_{i\sigma_i})$ create (annihilate) an electron and valence hole in the state $|i\sigma_i\rangle$ with single particle energy ε_i .

The first two terms on the right-hand side of Eq. (1) describe the kinetic energy of electrons and a single hole. The third term accounts for Coulomb interactions among electrons and the fourth term describes the interaction of electrons with the valence hole. The interactions are given by the two-particle Coulomb matrix elements

$\langle i\sigma_i, j\sigma_j | v_{ee} | k\sigma_k, l\sigma_l \rangle$ for electron-electron and $\langle i\sigma_i, j\sigma_j | v_{eh} | k\sigma_k, l\sigma_l \rangle$ for electron-hole scattering.²⁸ These quantities are measured in units of $V_0 = \sqrt{\pi}(a_B/l_{eff})Ry^*$ $= \sqrt{\pi}(a_B\sqrt{2\Omega_e m_e^*})Ry^*$, with a_B the effective Bohr radius, Ry^* the effective Rydberg, and $l_{eff} = 1/\sqrt{2\Omega_e m_e^*}$ the characteristic length scale of the SAD. Although the electron-electron and electron-hole Coulomb matrix elements depend on the detailed form of the single-particle states and the form of the interaction, the best starting point is the case of symmetric interactions: $\langle i, j | v_{ee} | k, l \rangle = \langle i, j | v_{hh} | k, l \rangle$ and $\langle i, j | v_{eh} | k, l \rangle = \langle i, k | v_{eh} | j, l \rangle$. As discussed in Ref. 29 one can choose the symmetric interactions characterized by a single value of V_0 . Therefore, we are left with the smallest possible number of parameters in the theory, the ratio of Coulomb to electron kinetic energy V_0/Ω_e and the ratio of the hole kinetic energy to the kinetic energy of the electron Ω_h/Ω_e . Capacitance and photoluminescence experiments in InAs/GaAs quantum dots give the charging energy of the ground state as $E_C \approx V_0 \approx 20$ meV (Ref. 27) and kinetic energy ratios $\Omega_h/\Omega_e \approx 0.5$.

IV. MANY-PARTICLE STATES AND HUND'S RULES IN QUANTUM DOTS

In the initial ground state the total spin of a partially filled shell is maximized while the total angular momentum is minimized in accordance with Hund's rule generalized to SAD. The generalized Hund's rule has been predicted and verified numerically in Ref. 15. We calculate the electron number dependence of the absorption spectra starting from a single configuration consistent with Hund's rules. The applicability of this approximation and breakdown of Hund's rule are tested by a detailed calculation of the absorption spectrum to a correlated $N=4$ ground state as a function of the strength of Coulomb interactions.

The interacting, final many-particle states $|v_f\rangle$ are expanded in the basis of the noninteracting configurations of $N+1$ electrons and a single valence hole: $|j; i_1, \dots, i_{N+1}\rangle = h_j^\dagger c_{i_1}^\dagger \dots c_{i_{N+1}}^\dagger |vac\rangle$, where $|vac\rangle$ denotes vacuum. These configurations can be also written in a more physically transparent way by emphasizing the optically created electron-hole pair $h_i^\dagger c_i^\dagger$ and enumerating different many-particle processes.¹⁴

$$|v_f\rangle = \sum_i A_i^f h_i^\dagger c_i^\dagger |v_G\rangle + \sum_{j,k,l} B_{j,k,l}^f h_{j+k}^\dagger c_j^\dagger c_{l+k}^\dagger c_l |v_G\rangle + \dots \quad (2)$$

The first set of processes corresponds to injecting an optically active electron-hole pair to empty states $|i\rangle$ above the ground state with amplitude A_i^f . These processes correspond to absorption in the presence of a frozen Fermi sea (frozen ground state). The second series of processes corresponds to indirect electron-hole pairs $h_{j+k}^\dagger c_j^\dagger$ with momentum $-k$ coupled to what appears to be a one pair excitation $c_{l+k}^\dagger c_l$ with momentum $+k$. This one pair excitation is, however, coupled to an additional photoexcited electron. The photoexcited electron can be turned into a well-defined excitation of the $N+1$ electron system by adding an extra electron at the Fermi level $|F\rangle$. Redefining our ground state $|v_G'\rangle_{N+1}$

$=c_F^\dagger|v_G\rangle$ allows us to write our final states in terms of excitations of the $N+1$ electron state:

$$|v_f\rangle = \sum_i A_i^f h_i^\dagger (c_i^\dagger c_F) |v_G\rangle_{N+1} + \sum_{j,k,l} B_{j,k,l}^f h_{j+k}^\dagger (c_j^\dagger c_{l+k}^\dagger c_l c_F) |v_G\rangle + \dots \quad (3)$$

This way of defining our final states¹⁴ emphasizes the fact that the photoexcited electron is an indistinguishable particle in the final $N+1$ electronic system. It enters as part of an excitation of the system. The first and the second contributions can now be viewed on the same footing as one pair and two pair excitations of the $N+1$ electron systems. The valence hole clearly entangles these excitations. Obviously there are many other excitations besides the ones listed here. In exact diagonalization of small systems all excited states are taken into account. The states are labeled by the total angular momentum R , the z component of the total spin of electrons S_z^i , and the hole's spin σ_h . The Hamiltonian (1) is diagonalized numerically in each eigensubspace (R, S_z^i, σ_h) . Equation (3) and exact diagonalization helps us to identify important processes that play a role in extended systems.

V. OPTICAL ABSORPTION SPECTRUM

The absorption spectrum $A(\omega)$ of a photon with frequency ω due to transitions from an exact ground state $|v_G\rangle$ of a charged SAD to all final states $|v_f\rangle$ is given by the Fermi's golden rule:

$$A(\omega) = \sum_f |\langle v_f | \mathcal{P}^\dagger | v_G \rangle|^2 \delta(\omega - [\mathcal{E}_f(N+1) - \mathcal{E}_G(N)]). \quad (4)$$

The summation is over many-body $N+1$ electron and one hole final states $|v_f\rangle$ with energy $\mathcal{E}_f(N+1)$. The ground state of the charged dot before absorption is $|v_G\rangle$ and its energy is $\mathcal{E}_G(N)$. The initial ground and final states are coupled through the interband polarization operator $\mathcal{P}^\dagger = \sum_{j\sigma} c_{j\sigma}^\dagger h_{j-\sigma}^\dagger$. The magnitude of this coupling is the oscillator strength of the optical transition between the ground and the final state. This operator adds an electron hole pair into the ground state of the system. It can be decomposed into two operators $\mathcal{P}_{+(-)}^\dagger = \sum_j c_{j\uparrow(1)}^\dagger h_{j\downarrow(1)}^\dagger$, with definite circular polarization of light: σ_+ or σ_- .

The final states $|v_f\rangle$ are written in the basis of the product of the $N+1$ electron states $|v\rangle$ with total angular momentum R_l^e and a single valence-hole state $h_s^\dagger|\text{vac}\rangle$ with angular momentum r_s^h . Addition of an electron-hole pair does not change the total angular momentum. Hence the angular momentum of the final state $R_l^e + r_s^h$ is equal to the angular momentum of the initial state R_G^e . Then, we can write $|v_f\rangle = \sum_{l,s} B_{l,s}^f h_{l,s}^\dagger |v\rangle_{N+1}$. Amplitudes $B_{l,s}^f$ are determined by e-h scattering between these many-particle electron hole states. The optical absorption spectrum can now be expressed in terms of only electronic degrees of freedom as

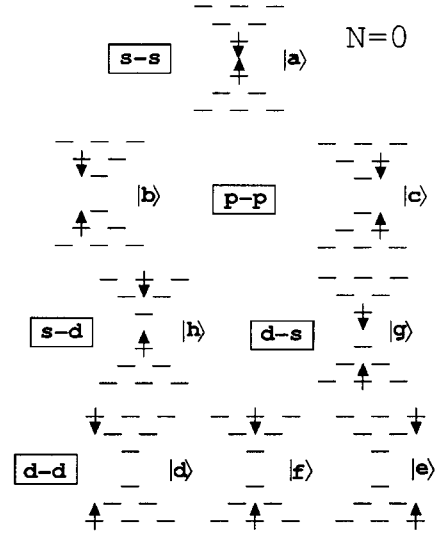


FIG. 1. All possible configurations of an electron-hole pair with total angular momentum $R=0$ on three lowest shells in the conduction and valence band.

$$A(\omega) = \sum_f \left| \sum_{ls} B_{ls}^f (N+1) \langle v_l | c_{ls}^\dagger | v_G \rangle_N \right|^2 \times \delta(\omega - [\mathcal{E}_f(N+1) - \mathcal{E}_G(N)]). \quad (5)$$

We see that the oscillator strength of the optical transition has contributions coming from electronic configurations belonging to different electronic Hilbert spaces. This kind of interference effect is responsible for the Fermi edge singularity in the optical absorption of two-dimensional electron gases, even in the absence of $e-e$ interactions.⁵ In this work, we focus on the effect of electron-electron interactions on the absorption spectrum.

VI. RESULTS AND DISCUSSION

We now turn to the results of calculations of the absorption spectrum as a function of the number of carriers.

A. Excitonic absorption in undoped SAD

To understand the absorption spectra of charged SAD's, we must first understand the excitonic ($N=0$) absorption case.²⁴ There are two classes of electron-hole pairs: bright and dark. To introduce these classes it is enough to consider only the three lowest s , p , and d shells with a total of six orbitals, as shown in Fig. 1. All calculations will be carried out in this simple model of SAD. In the optical absorption process only direct transitions are allowed, creating electron-hole pairs with zero angular momentum. However, an exciton is composed of all pairs with total angular momentum zero. In addition to the six optically active configurations there are two other configurations. They involve a hole (electron) in the zero angular momentum state $|00\rangle$ of the s shell and a hole (electron) in the zero angular momentum state $|11\rangle$ of the d shell.

Hence an exciton is composed of eight states with zero total angular momentum:

$$\begin{aligned}
|a\rangle &= h_{00\uparrow}^\dagger c_{00\downarrow}^\dagger |\text{vac}\rangle, \\
|b\rangle &= h_{01\uparrow}^\dagger c_{01\downarrow}^\dagger |\text{vac}\rangle, \quad |c\rangle = h_{10\uparrow}^\dagger c_{10\downarrow}^\dagger |\text{vac}\rangle, \\
|d\rangle &= h_{02\uparrow}^\dagger c_{02\downarrow}^\dagger |\text{vac}\rangle, \quad |e\rangle = h_{20\uparrow}^\dagger c_{20\downarrow}^\dagger |\text{vac}\rangle, \\
|f\rangle &= h_{11\uparrow}^\dagger c_{11\downarrow}^\dagger |\text{vac}\rangle, \\
|g\rangle &= h_{11\uparrow}^\dagger c_{00\downarrow}^\dagger |\text{vac}\rangle, \quad |h\rangle = h_{00\uparrow}^\dagger c_{11\downarrow}^\dagger |\text{vac}\rangle.
\end{aligned} \tag{6}$$

Figure 1 shows both the six optically active and two dark electron-hole configurations. In optically active configurations charge distribution of an electron and a hole is identical and they do not interact with other charges. Dark s - d and d - s configurations involve different orbitals of an electron and a hole. This leads to a spatial imbalance in the charge distribution of the electron and the hole. The repulsion of an electron by other electrons is not compensated by the attraction of the hole and these pairs interact with charges. In this sense we can call them charged electron-hole pairs. The energy of each dark configuration appears to be very different from any of the bright configurations even in the absence of e - h interaction. For example, the p - p configuration has kinetic energy $2\Omega_e + 2\Omega_h$ while the energy of the s - d configuration is $\Omega_e + 3\Omega_h$. However, when we form a new state $|H\rangle$ as a linear superposition of s - d and d - s configurations $|H\rangle = (1/\sqrt{2})(|g\rangle + |h\rangle)$ we generate a state with energy $\frac{1}{2}(\Omega_e + 3\Omega_h) + \frac{1}{2}(\Omega_h + 3\Omega_e) = 2\Omega_e + 2\Omega_h$. Even more surprisingly these configurations are degenerate when e - e and e - h interactions are switched on. This rather counterintuitive result implies that irrespective of the quantization of electron and hole kinetic energy the dark exciton is always degenerate with optically active transition involving electrons and holes on p orbitals. The interaction between these configurations will make both these states optically active and leads to a splitting of the exciton transition into the p shell without the breaking of geometrical symmetry.

To gain further insight into the structure of an exciton let us make a transformation into a basis of coherent exciton states for each shell.³⁰ The coherent exciton states are equivalent to Jacobi coordinates for two and three particles:

$$|A\rangle = |a\rangle, \tag{7}$$

$$|B\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|b\rangle + |c\rangle),$$

$$|C\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|b\rangle - |c\rangle), \tag{8}$$

$$|D\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}}(|d\rangle + |e\rangle + |f\rangle),$$

$$|E\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|d\rangle - |e\rangle),$$

$$|F\rangle = \frac{1}{\sqrt{6}}(|d\rangle + |e\rangle - 2|f\rangle), \tag{9}$$

$$|H\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|g\rangle + |h\rangle),$$

$$|G\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|g\rangle - |h\rangle). \tag{10}$$

Only states $|A\rangle$, $|B\rangle$, and $|D\rangle$ have finite oscillator strength. This is seen by expanding the interband polarization operator in this new basis: $\mathcal{P}^\dagger |\text{vac}\rangle = |a\rangle + |b\rangle + |c\rangle + |d\rangle + |e\rangle + |f\rangle = |A\rangle + \sqrt{2}|B\rangle + \sqrt{3}|D\rangle$. The three states can be identified with the three available shells within our model. State $|A\rangle$ corresponds to the s shell, state $|B\rangle$ to the p shell, and state $|D\rangle$ to the d shell. One can show that in Jacobi coordinates the exciton Hamiltonian separates into two blocks: one 5×5 block and one 3×3 block. The five coupled states involve the three optically active states: $|A\rangle$, $|B\rangle$, $|D\rangle$, and two dark states: $|F\rangle$ and $|H\rangle$. Denoting the kinetic energy of the e - h pair as $t = \Omega_e + \Omega_h$, the matrix representation of $\mathcal{H}_f$ in the subspace $\{|A\rangle, |B\rangle, |H\rangle, |D\rangle, |F\rangle\}$ is

$$\begin{vmatrix}
t - V_0 & -\sqrt{2}(0.25V_0) & +\sqrt{2}(0.25V_0) & \sqrt{2}(0.375V_0) & \sqrt{\frac{2}{3}}(0.0938V_0) \\
-\sqrt{2}(0.25V_0) & 2t - 0.875V_0 & -0.125V_0 & -\sqrt{\frac{2}{3}}(0.4688V_0) & -\frac{1}{\sqrt{3}}(0.1406V_0) \\
+\sqrt{2}(0.25V_0) & -0.125V_0 & 2t - 0.875V_0 & \sqrt{\frac{2}{3}}(0.0938V_0) & -\frac{1}{\sqrt{3}}(0.2344V_0) \\
\frac{1}{\sqrt{3}}(0.375V_0) & -\sqrt{\frac{2}{3}}(0.4688V_0) & \sqrt{\frac{2}{3}}(0.0938V_0) & 3t - 0.7969V_0 & \sqrt{2}(0.0117V_0) \\
\sqrt{\frac{2}{3}}(0.0938V_0) & -\frac{1}{\sqrt{3}}(0.1406V_0) & -\frac{1}{\sqrt{3}}(0.2344V_0) & \sqrt{2}(0.0117V_0) & 3t - 0.7715V_0
\end{vmatrix} \tag{11}$$

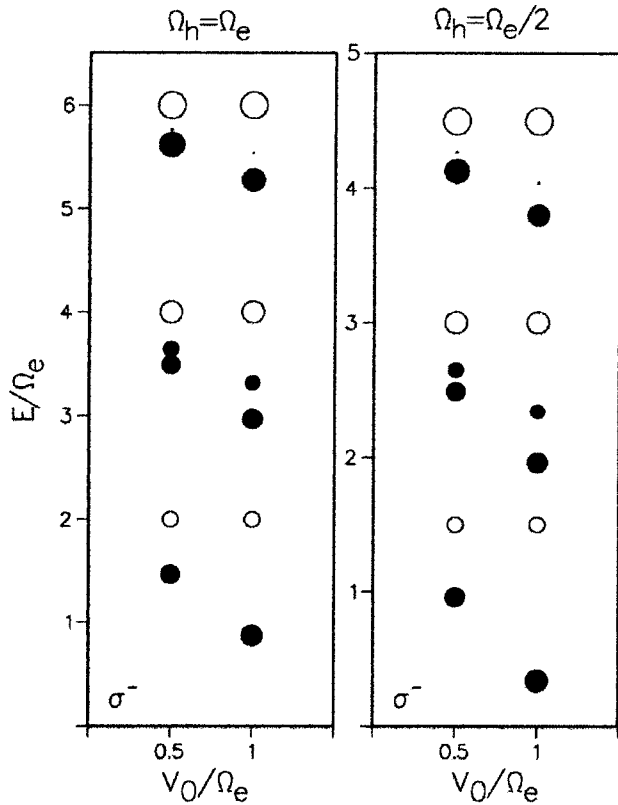


FIG. 2. Excitonic optical absorption in the SAD for different e - h interaction strength, and quantization of electron and hole energy.

We see immediately that there are two relevant states with kinetic energy $2t$ for a p shell and two relevant states with kinetic energy $3t$ for a d shell. The coupling of states in a p shell is an order of magnitude stronger than the coupling of states in a d shell. The d shell states do not include dark excitons. The five final optically active excitonic states $|v_f\rangle$ are written as a linear combination of the basis states: $|v_f\rangle = C_A^f|A\rangle + C_B^f|B\rangle + C_D^f|D\rangle + C_F^f|F\rangle + C_H^f|H\rangle$. Amplitudes C_i^f are the eigenstates of the exciton Hamiltonian (11). All five states contribute to the absorption spectrum $A(\omega) = \sum_f |C_A^f + \sqrt{2}C_B^f + \sqrt{3}C_D^f|^2 \delta(\omega - E_f)$. The absorption spectrum $A(\omega)$ is shown in Fig. 2. Empty circles correspond to a noninteracting and dark circles to an interacting exciton. The different spectra were calculated for different SAD parameters: $\Omega_h/\Omega_e = \{1, 0.5\}$ and different e - h interaction strengths $V_0 = \{1, 0.5\}\Omega_e$. In the absence of interactions the transition energies are equally spaced in units of $\Omega_h + \Omega_e = 2\Omega_e$. The oscillator strength of the spectral lines increases linearly with the photon energy, reproducing the joint density of states of an empty dot. The inclusion of the e - h scattering changes the absorption spectrum. The attractive electron-hole interaction redshifts transition energies and leads to additional structures in the spectrum. The oscillator strength in the p -shell absorption is almost equally distributed between the p - p -like transition $|B\rangle$ and the s - d -like transition $|H\rangle$. We wish to emphasize that the splitting of the p -shell transition is an exciton feature not related to the splitting of single particle levels but to the presence of higher-energy shells.

Absorption into the d shell is also split into two lines, one

strong and one weak. The ratio of the oscillator strength of this transitions is due to the weak coupling between the coherent exciton state $|D\rangle$ and state $|F\rangle$. If a higher energy shell e was included the d shell transitions would be further split due to dark p - e transitions. To conclude this section, the optical excitonic absorption of an empty SAD is strongly modified by the combined effect of the shell structure of the conduction and valence band, and the interaction between excitonic configurations.

B. Absorption in charged SAD-frozen ground-state approximation

We now move to the optical absorption spectrum as a function of the number of electrons N . We focus mainly on σ_- polarization of light, the σ_+ calculations can be done following the same procedure. The σ_- polarization is chosen to inject electrons with spin down, parallel to the arbitrarily chosen spin-down polarization of the ground state. Warburton *et al.*¹⁶ calculated absorption spectra by assuming that the initial state is given by a single electronic configuration. The final state consisted also of a single $N+1$ electron and a valence-hole configuration. The next level of approximation often used in the study of absorption in semiconductors is to include the electron-hole scattering of the photoexcited electron-hole pair in the presence of a frozen Fermi sea. The electrons in the Fermi sea block the states available to the photoexcited pair. This results in a bound state below the Fermi level, the so-called "Mahan exciton." We, therefore, start our investigation of the carrier dependence of the absorption process by approximating the ground state by a single configuration consistent with the generalized Hund's rules. The final states consist of configurations corresponding to a photoexcited electron-hole pair and a frozen ground state. This frozen ground-state approximation (FGSA) is tested against exact diagonalization studies in the last section.

We start with just one electron $N=1$ in the SAD. The ground state $|v_G\rangle = c_{00,\downarrow}^\dagger|\text{vac}\rangle$ corresponds to an electron in the lowest single-particle level $|00\rangle$, with spin down. The energy, the total spin projection, and the angular momentum of the ground state are $\mathcal{E}_G(1) = \Omega_e$, $S_z = -1/2$, and $R=0$, respectively. In the σ_- polarization we inject an electron with spin parallel to the spin of the electron in the ground state. We construct final states of two electrons and a hole by keeping one of the electrons in the ground state $|00\rangle$. To make contact with low-lying bright and dark exciton states described previously and with the notation used in the expansion of the final state wave function, let us write our wave functions as

$$\begin{aligned} |b\rangle &= h_{01,\downarrow}^\dagger c_{01,\uparrow}^\dagger |v_G\rangle, & |c\rangle &= h_{10,\downarrow}^\dagger c_{10,\uparrow}^\dagger |v_G\rangle, \\ |d\rangle &= h_{02,\uparrow}^\dagger c_{02,\downarrow}^\dagger |v_G\rangle, & |e\rangle &= h_{20,\uparrow}^\dagger c_{20,\downarrow}^\dagger |v_G\rangle, \\ |f\rangle &= h_{11,\uparrow}^\dagger c_{11,\downarrow}^\dagger |v_G\rangle, \\ |h\rangle &= h_{00,\downarrow}^\dagger c_{11,\uparrow}^\dagger |v_G\rangle = h_{00,\downarrow}^\dagger c_{00,\uparrow}^\dagger (c_{11,\uparrow}^\dagger c_{00,\uparrow}) |v_G\rangle. \end{aligned} \quad (12)$$

A comparison with states of an exciton shows that the state $|a\rangle$ is missing due to the Pauli exclusion principle and absorption into the s shell is blocked. The two transitions $|b\rangle$

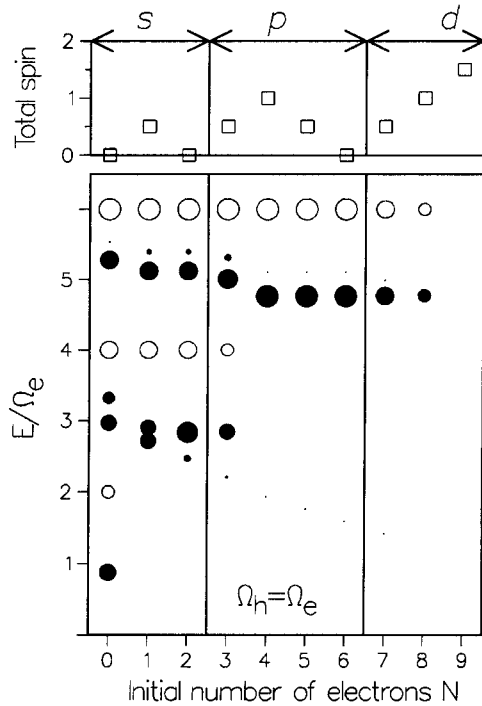


FIG. 3. Optical absorption spectra of the self-assembled quantum dot calculated within the frozen ground-state approximation, as a function of the number of electrons in the dot. The total spin of the ground state as a function of the number of electrons is indicated. σ_- polarization.

and $|c\rangle$ into the p shell, and transitions $|d\rangle$, $|e\rangle$, and $|f\rangle$ into the d shell are present. In addition, there is a dark configuration $|h\rangle$, but no configuration $|g\rangle$, which is now identical to configuration $|e\rangle$. Configuration $|h\rangle$ can be also viewed as excitation of electron-hole pairs with angular momentum compensated by the excitation from the ground state. This configuration can no longer be combined with configuration $|g\rangle$ to form a resonant configuration $|H\rangle$, and its energy and oscillator strength are sensitive to the presence of an electron. The calculation proceeds in a similar fashion to the calculation of an exciton. We define coherent exciton coordinates and diagonalize the Hamiltonian in this basis. The p -shell configurations $|B\rangle$ and $|H\rangle$ mix and the p -shell absorption peak splits into two peaks. The $N=1$ absorption spectrum is shown in Fig. 3. The oscillator strength of the two peaks depends on the ratio of Ω_h/Ω_e .

Let us now increase the number of electrons to $N=2$. The ground state $|\nu_G\rangle$ is a doubly occupied $|00\rangle$ orbital $|\nu_G\rangle = c_{00,1}^\dagger c_{00,1}^\dagger |\text{vac}\rangle$. The total angular momentum is $R=0$ and the total spin projection is $S_z=0$. The final state configurations are the same as in the previous case $N=1$. The only difference is the charge of the ground state. Because the dark configuration $|h\rangle$ contains an electron and a hole in different orbitals, its energy is sensitive to the charge in the dot. The bright configuration $|B\rangle$ is not sensitive to the charge so the energies of two configurations become different, and the two configurations are no longer in resonance. The oscillator strength of optical transitions in the p shell is much stronger than the dark one, as shown in Fig. 3. Absorption in the d shell resembles the case of $N=1$.

Charging the dot with $N=3$ electrons leads to the popu-

lation of the p shell with one electron. We can choose the ground state to be $|\nu_G\rangle = c_{10,1}^\dagger c_{00,1}^\dagger c_{00,1}^\dagger |\text{vac}\rangle$, with total angular momentum and total spin projection: $R=1$ and $S_z = -1/2$. The one state of the p shell is occupied and the photoexcited electron has only one state to go into. There is no mixing of final state configurations by e - h scattering. In the absence of an electron, the mixing lowered the energy of the p -shell exciton. The lack of e - h scattering is, however, compensated by the exchange of the photoexcited electron with the electron already present in a partially filled shell. The compensation leads to the energy of the absorption line being insensitive to the filling of the shell, in contrast to mean-field results.¹⁶ The second line due to the dark s - d exciton configuration has a very small oscillator strength because the dark exciton energy is far from resonance with the bright exciton configuration. The same principles operate for a larger number of electrons. Figure 3 shows the total spin of the ground state as a function of the number of electrons and calculated absorption spectra in the frozen ground state approximation for up to $N=12$ electrons. These calculations illustrate the blocking of phase space available to transitions, the renormalization of energy due to direct and exchange interactions, and the cancellation of excitonic and band-gap renormalization effects due to phase space filling in partially filled shells.

C. Correlation effects in the optical absorption spectra

Optical absorption spectra obtained so far were calculated in the FGSA, which assumes that an exciton remains a well-defined quasiparticle in the presence of extra electrons. The results capture some of the effects like energy renormalization, phase space blocking, and phase space filling, and appear interesting and convincing. Unfortunately, we will show that the concept of an exciton as a well-defined quasiparticle fails in the interacting electron system. In this section we discuss the effect of electron-electron and electron-hole interactions, and the entangling of electronic configurations by the mobile valence hole beyond the FGSA. We first study the regime of strong confinement where the ground state is very well approximated by the single configuration consistent with Hund's rules. In the second part we study the breakdown of Hund's rules and its manifestation in the absorption spectra.

1. Breakdown of FGSA

We start to relax the requirement of having an electron in the frozen ground state in the simplest case of $N=1$ electron. The ground state $|\nu_G\rangle = c_{00,1}^\dagger |\text{vac}\rangle$ corresponds to an electron in the lowest single-particle level $|00\rangle$, with spin down. The angular momentum of the ground state is $R=0$. We construct the two electron and one hole states of a charged exciton as products of electron and hole occupied states with total angular momentum $R=0$. There is a total of 16 states. We list them and their kinetic energies measured from the noninteracting s - s transition in Table I.

All states separate into groups corresponding to main optical transitions with energies $n\Omega_e + n\Omega_h$ plus transitions to excited electronic states $n\Omega_e + n\Omega_h + 2\Omega_e$, which form replicas of main transitions. Because the s shell is occupied there are no transitions to the s shell. For $\Omega_e = \Omega_h$ transitions

TABLE I. Configurations of two electrons and one hole.

R_e	R_h	2 Electron states	1 Hole states	Energy	Energy for $\Omega_e = \Omega_h$
0	0	$ 11,00\rangle$	$ 00\rangle$	$2\Omega_e$	2
0	0	$ 10,01\rangle$	$ 00\rangle$	$2\Omega_e$	2
0	0	$ 20,02\rangle$	$ 00\rangle$	$4\Omega_e$	4
0	0	$ 11,00\rangle$	$ 11\rangle$	$2\Omega_e + 2\Omega_h$	4
0	0	$ 10,01\rangle$	$ 11\rangle$	$2\Omega_e + 2\Omega_h$	4
0	0	$ 20,02\rangle$	$ 11\rangle$	$4\Omega_e + 2\Omega_h$	6
1	-1	$ 10,00\rangle$	$ 10\rangle$	$1\Omega_e + 1\Omega_h$	2
1	-1	$ 10,11\rangle$	$ 10\rangle$	$3\Omega_e + 1\Omega_h$	4
1	-1	$ 01,20\rangle$	$ 10\rangle$	$3\Omega_e + 1\Omega_h$	4
-1	1	$ 01,00\rangle$	$ 01\rangle$	$1\Omega_e + 1\Omega_h$	2
-1	1	$ 01,11\rangle$	$ 01\rangle$	$3\Omega_e + 1\Omega_h$	4
-1	1	$ 10,02\rangle$	$ 01\rangle$	$3\Omega_e + 1\Omega_h$	4
2	-2	$ 20,00\rangle$	$ 20\rangle$	$2\Omega_e + 2\Omega_h$	4
2	-2	$ 20,11\rangle$	$ 20\rangle$	$4\Omega_e + 2\Omega_h$	6
-2	2	$ 02,00\rangle$	$ 02\rangle$	$2\Omega_e + 2\Omega_h$	4
-2	2	$ 02,11\rangle$	$ 02\rangle$	$4\Omega_e + 2\Omega_h$	6

to the p shell with energy $2\Omega_e$ are fourfold degenerate. To make contact with low-lying states described previously in the FGSA we write the fourfold degenerate subspace as

$$\begin{aligned}
 |b\rangle &= h_{01,\uparrow}^\dagger c_{01,\downarrow}^\dagger |v_G\rangle, & |c\rangle &= h_{10,\uparrow}^\dagger c_{10,\downarrow}^\dagger |v_G\rangle, \\
 |h\rangle &= h_{00,\uparrow}^\dagger c_{00,\downarrow}^\dagger (c_{11,\uparrow}^\dagger c_{00,\uparrow}) |v_G\rangle, \\
 |i\rangle &= h_{00,\uparrow}^\dagger c_{10,\downarrow}^\dagger (c_{01,\uparrow}^\dagger c_{00,\uparrow}) |v_G\rangle
 \end{aligned} \tag{13}$$

These configurations are shown in Fig. 4. A comparison with states of an exciton shows that the state $|a\rangle$ is missing due to

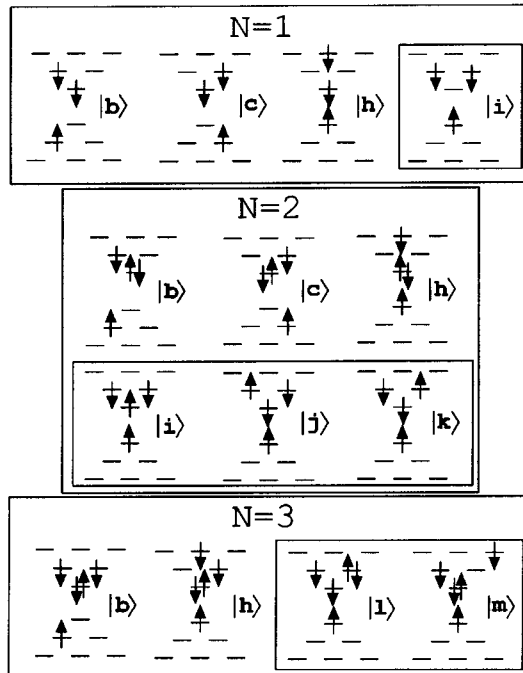


FIG. 4. Final-state configurations for $N=1,2,3$ electrons and a photoexcited electron and valence hole. Configurations shown in boxes are beyond the frozen ground-state approximation. σ_- polarization.

the Pauli exclusion principle and absorption into the s shell is blocked. The two transitions $|b\rangle$ and $|c\rangle$ into the p shell are present. There is a dark configuration $|h\rangle$ that has an electron frozen in the ground state. However, a new configuration $|i\rangle$ appears. This new configuration does not have an electron in the initial ground state and was not included in the FGSA. The configurations $|h\rangle$ and $|i\rangle$ can be viewed as indirect excitation of electron-hole pairs with angular momentum compensated by the excitation from the ground state. Neither configuration $|h\rangle$ nor $|i\rangle$ is optically active. However, through $e-e$ and $e-h$ interactions the optically active configuration $|B\rangle = (1/\sqrt{2})(|b\rangle + |c\rangle)$ acquires a spectral weight at energies corresponding to all three configurations. For $\Omega_e = \Omega_h$ the oscillator strength is divided among only two configurations and the absorption peak is split into two main peaks. The spectrum, shown in Fig. 5, looks similar to the spectrum of an exciton and to the spectrum in FGSA. However, its dependence on the ratio of kinetic energies and on interaction strength is quite different. For example, the oscillator strength of each of the three transitions is independent of the strength of Coulomb interactions but does depend on the ratio of Ω_e/Ω_h .

We follow the same procedure for $N=2,3,4$. The relevant low-lying configurations for $N=1-3$ are shown in Fig. 4. In each case, new configurations clearly marked with a box in Fig. 4, appear. These configurations involve electrons excited from the initial state, and were not included in FGSA. A closer inspection of these new configurations reveals a simple principle. We excite an optically active electron-hole pair, e.g., $p-p$. We next search for all possible states that have the same energy and total momentum as the optically excited one. These pairs can be generated by relaxing the valence hole to the lower-energy state while simultaneously exciting an electron that absorbs both the energy and momentum. Due to many electronic degrees of freedom there can be many states that satisfy this condition. For $N=2$ we find a band of $n=4$ additional states, with hole relaxed to the top of the valence band, as shown in Fig. 4. The states $|b\rangle$, $|c\rangle$, $|h\rangle$, and $|i\rangle$ are familiar from the $N=1$ case. The new states

32

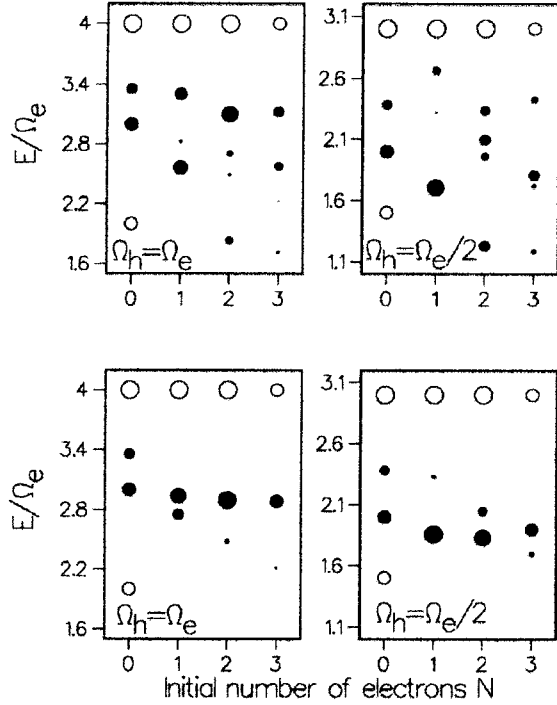


FIG. 5. (a) Exact and (b) FGSA absorption spectrum for SAD with $N=1,2,3$ electrons for different values of kinetic energy for holes and for electrons. σ_- polarization.

$|j\rangle$ and $|k\rangle$ are obtained by rotating the minority spin electron in state $|i\rangle$ among the three orbitals.¹⁷ The single optically active configuration interacts strongly with the band of states and the absorption spectrum breaks into a band of peaks. The interaction of this band of dark states with bright ones, and the absorption spectrum, depends strongly on the ratio Ω_e/Ω_h but is independent of the strength of Coulomb interactions. The calculated absorption spectra are shown in Fig. 5 for two representative values of Ω_h . The same analysis follows for $N=3$ for which resonant configurations are shown in Fig. 4 and absorption spectra in Fig. 5. The same principles apply to higher number of electrons. The $N=4$ spectra are discussed in the next section.

The conclusion from these calculations is that neither the mean field nor the FGSA works in the description of the absorption spectra. This is because the photoexcited electron-hole pair is resonant with many electronic configurations and an exciton is no longer a well-defined quasiparticle.

2. Correlations in the initial state

Here we study the effect of correlations in the initial state and the effect of the breakdown of Hund's rules on the absorption spectra. The ground state of the N electron system $|\nu_G\rangle$ is a linear combination of many-body states belonging to the same Hilbert space. The Hilbert space is determined by the total angular momentum $R_{N,H}^e$ of the lowest kinetic energy configuration compatible with Hund's rules. This leads to: $|\nu_G\rangle = \sum_{i; R_i^e = R_{N,H}^e} A_i^G |\nu_i\rangle_N$. As we can see, all the excited configurations have finite amplitudes A_i^G determined by the $e-e$ interaction.

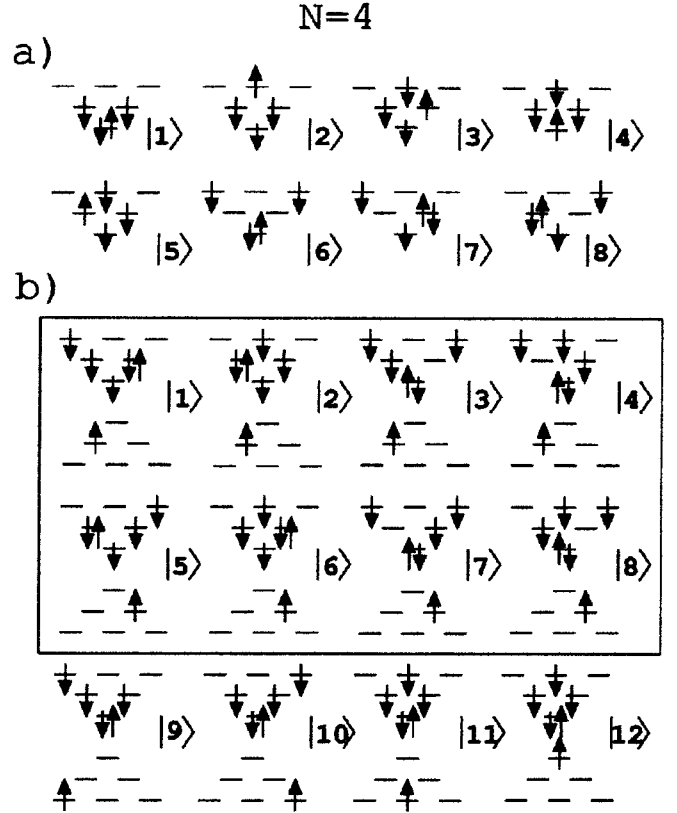


FIG. 6. (a) Electronic configurations for $N=4$ electrons in the lowest kinetic energy state compatible with Hund's rule and low-lying excitations. (b) Low-lying states for $N+1=5$ electrons plus a valence-hole.

The absorption spectrum [Eq. (5)] is modified due to the entanglement of the electronic configurations in the initial state, namely,

$$A(\omega) = \sum_f \left| \sum_{l,s,i} B_{ls}^f A_i^G \langle l | c_{s\sigma_s}^\dagger | i \rangle_N \right|^2 \times \delta(\omega - [\mathcal{E}_f(N+1) - \mathcal{E}_G(N)]). \quad (14)$$

The oscillator strength of the optical transitions has contributions coming from all the possible many-electron configurations in the initial state. Hence many of the final states, which do not couple to the single configuration given by the Hund's rules, now have a finite overlap with the correlated electron state. To the interference effects due to $e-h$ scattering in the transition matrix element we need to add the interference effects coming from the $e-e$ entanglement of configurations in the initial state.

The first application of Hund's rules takes place for $N=4$. We, therefore, illustrate the effect of correlations in the initial state by calculating the absorption spectrum for a partially polarized p shell $N=4$. The lowest kinetic energy state with energy $\epsilon = 6\Omega_e$, and the first excited states, having an excess of kinetic energy equal to $\Delta = 2\Omega_e$, are both shown in Fig. 6(a). Excited $N=4$ electronic states separate into two groups: (i) four configurations 2–5 with singly occupied orbitals, and (ii) three configurations 6–8 with doubly occupied orbitals. Configurations in group (i) differ only by the position of the spin-up electron. Alternatively, we can think

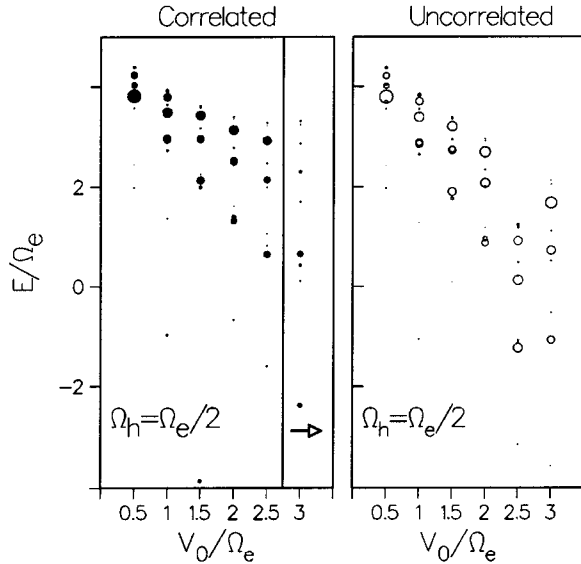


FIG. 7. Optical absorption for $N=4$ electrons in the SAD with σ_- polarized light. Left: correlated initial state. Right: ground state given by a single configuration. σ_- polarization.

of these states as generated by the hopping of the spin-up electron on a four orbital plaquette.

The Hamiltonian of $N=4$ interacting electrons was diagonalized within the Hilbert space shown in Fig. 6 for different ratios of Coulomb to kinetic energy V_0/Ω_e . The ground state for $V_0/\Omega_e=0.5$ is very well approximated by the lowest kinetic energy configuration $|1\rangle$ with $|A_1^G|^2=0.985$. Increasing the strength of Coulomb interactions to $V_0/\Omega_e=1$ gives $|A_1^G|^2=0.895$. Configurations $|2\rangle$, $|7\rangle$, and $|8\rangle$ have a small contribution to the ground state: $|A_2^G|^2=0.011$, $|A_7^G|^2=0.042$, and $|A_8^G|^2=0.042$. Increasing the value of Coulomb interactions penalizes doubly occupied configurations and favors singly occupied configurations. The quadruplet configuration composed of configurations $|2\rangle$ – $|5\rangle$ becomes the lowest energy configuration for $V_0>2.5\Omega_e$.

We now turn to the absorption spectrum. In Fig. 6(b) we show all final-state configurations built from configurations shown in Fig. 6(a) by the addition of an electron-hole pair. These configurations can be viewed as excitations of the ground state in the presence of the photoexcited electron-hole pair. They are allowed because valence hole recoils and absorbs energy and momentum. In Fig. 6 state $|1\rangle$ can be obtained from the optically created configuration $|9\rangle$, exciting a spin-up electron from state $|00\rangle$ to state $|10\rangle$. This new configuration corresponds to an electron-hole pair excitation of the ground state coupled with the relaxation of valence

hole. All other states can be regarded as one electron-hole pair excitations: $|3\rangle$ being an excitation of state $|9\rangle$; $|2\rangle$, $|4\rangle$, and $|6\rangle$ are excited states of configuration $|11\rangle$; $|5\rangle$, $|7\rangle$, and $|8\rangle$ are excited states of $|10\rangle$.

Figure 7 shows the optical absorption spectrum obtained for correlated ground state (left panel) for different values of the ratio V_0/Ω_e . For comparison, the optical absorption neglecting correlations are also shown in the right panel. The absorption spectrum for a correlated ground state shows a band of peaks corresponding to initial and final states in Fig. 6. New optical transitions appear due to the interference effects in the optical matrix element. These transitions slightly broaden main peaks. Up to $V_0/\Omega_e\leq 2.5$, the effects of correlations is small. The ground state is dominated by configuration $|1\rangle$ consistent with Hund's rules and neglecting correlations in the ground state does not lead to significant changes in the absorption spectrum.

For $V_0/\Omega_e>2.5$ the ground state is no longer described by Hund's rules and is a quadruplet. The absorption spectrum changes drastically at this point to reflect the changes in the ground state.

VII. SUMMARY

We investigated the effects of electron-electron interactions on excitonic absorption in charged, lens-shaped, SAD. The electronic shells of SAD were filled with N electrons according to generalized Hund's rules. In absorption, an exciton was added to the electronic system. The electronic part of the exciton coupled in a nontrivial way to resonant electronic configurations through direct and exchange interaction. The mobile valence hole contributed through the entanglement of many-electron configurations. For partially filled shells the valence hole relaxation coupled with spin related excitations of the electronic system led to a breakdown of exciton as a meaningful quasiparticle.

The resulting complex absorption spectra are specific to the number of electrons and their interaction in a quantum dot.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors thank G. Aers (NRC), M. Bayer (Wuerzburg), and A. Wojs (Tennessee) for discussions. G.A.N. thanks the Institute for Microstructural Sciences for hospitality and Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo (FAPESP-Brazil) for financial support.

¹G. D. Mahan, *Many-Particle Physics*, 2nd ed. (Plenum, New York, 1990).

²M. Combescot and P. Nozières, *J. Phys. (Paris)* **32**, 913 (1971).

³P. Hawrylak, *Phys. Rev. B* **44**, 3821 (1991).

⁴S. A. Brown, J. F. Young, J. A. Brum, P. Hawrylak, and Z. Wasilewski, *Phys. Rev. B* **54**, R11 082 (1996).

⁵J. A. Brum and P. Hawrylak, *Comments Condens. Matter Phys.* **18**, 135 (1997).

⁶G. A. Narvaez, J. A. Brum, and P. Hawrylak, in *Proceedings of the 24th International Conference on the Physics of Semiconductors, Jerusalem, 1998*, edited by D. Gershoni (World Scientific, Singapore, 1999).

⁷L. Jacak, P. Hawrylak, and A. Wojs, *Quantum Dots* (Springer-Verlag, Berlin, 1998); R. C. Ashoori, *Nature (London)* **379**, 413 (1996); P. M. Petroff and S. P. Denbaars, *Superlattices Microstruct.* **15**, 15 (1994); M. Kastner, *Phys. Today* **46** (1), 24

- (1993); T. Chakraborty, *Comments Condens. Matter Phys.* **16**, 35 (1992).
- ⁸P. Hawrylak, S. Fafard, and Z. Wasilewski, *Condens. Matter News* **7**, 16 (1999).
- ⁹D. J. Lockwood, P. Hawrylak, P. D. Wang, C. M. Sotomayor-Torres, A. Pinczuk, and B. S. Dennis, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 354 (1996).
- ¹⁰S. Patel, A. S. Plaut, P. Hawrylak, H. Lage, P. Grambow, D. Heitmann, K. von Klitzing, J. P. Harbison and L. T. Florez, *Solid State Commun.* **101**, 865 (1997).
- ¹¹K. H. Schmidt, G. Medeiros-Ribeiro, and P. M. Petroff, *Phys. Rev. B* **58**, 3597 (1998).
- ¹²R. J. Warburton, C. S. Dür, K. Karrai, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, and P. M. Petroff, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5282 (1997).
- ¹³P. Hawrylak and D. Pfannkuche, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 485 (1993).
- ¹⁴A. Wojs and P. Hawrylak, *Phys. Rev. B* **51**, 10 880 (1995).
- ¹⁵P. Hawrylak, A. Wojs, and J. A. Brum, *Phys. Rev. B* **54**, 11 397 (1996).
- ¹⁶A. Wojs and P. Hawrylak, *Phys. Rev. B* **55**, 13 066 (1997).
- ¹⁷R. J. Warburton, B. T. Miller, C. S. Dür, C. Bödefeld, K. Karrai, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, P. M. Petroff, and S. Huan, *Phys. Rev. B* **58**, 16 221 (1998).
- ¹⁸P. Hawrylak, in *Proceedings of NATO Advanced Research Workshop, Optical Properties of Semiconductor*, edited by M. Sadowski, M. Potemski, and M. Gryuberg (Kluwer, Dordrecht, 2000), p. 319.
- ¹⁹A. Zrenner *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 3382 (1994).
- ²⁰D. Gammon *et al.*, *Science* **273**, 87 (1996); **277**, 85 (1997); *Phys. Rev. Lett.* **76**, 3005 (1996).
- ²¹M. Bayer *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1748 (1999); A. Kuther *et al.*, *Phys. Rev. B* **58**, 7508 (1998).
- ²²L. Landin *et al.*, *Science* **280**, 262 (1998).
- ²³E. Dekel *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4991 (1998).
- ²⁴A. Zrenner *et al.*, *J. Electron. Mater.* **28**, 542 (1999).
- ²⁵A. Wojs, P. Hawrylak, S. Fafard, and L. Jacak, *Phys. Rev. B* **54**, 5604 (1996).
- ²⁶H. Lipsanen, M. Sopanen, and J. Ahopelto, *Phys. Rev. B* **51**, 13 868 (1995).
- ²⁷S. Raymond, S. Fafard, P. J. Poole, A. Wojs, P. Hawrylak, S. Charbonneau, D. Leonard, R. Leon, P. M. Petroff, and J. L. Merz, *Phys. Rev. B* **54**, 11 548 (1996).
- ²⁸K. H. Schmidt, G. Medeiros-Ribeiro, M. Oestreich, P. M. Petroff, and G. H. Döhler, *Phys. Rev. B* **54**, 11 346 (1996).
- ²⁹P. Hawrylak, *Phys. Rev. B* **60**, 5597 (1999).
- ³⁰A. Wojs and P. Hawrylak, *Solid State Commun.* **100**, 487 (1996).

Parte II

Sistemas bidimensionais

Capítulo 4

Poços quânticos semicondutores

No início dos anos 70, Esaki e Tsu sugeriram um mecanismo para modular a estrutura de banda do material semicondutor. Neste caso, o material é sintético e formado por dois materiais semicondutores diferentes(heteroestrutura): A e B de largura L_A e L_B possuindo gap E_A e E_B . Dependendo da posição relativa em energia do fundo da banda de condução e o topo da banda de valência dos materiais A e B a modulação espacial das bandas fica determinada. A Figura 4.1 mostra algumas possibilidades para a modulação das bandas. A repetição desta heteroestrutura produz o cristal que Esaki e Tsu chamaram de superrede. O objetivo da sintetização de tal material era de estudar efeitos quânticos nas propriedades de transporte eletrônico destes materiais.

As primeiras tentativas de crescimento de heteroestruturas foram feitas usando ligas de $GaAs - GaAs_{0.5}P_{0.5}$ e ligas de $Ge_{1-x}Si_x$ e $Cd_{1-x}Hg_xTe$. Porém a primeira evidência de efeitos de quantização foi observado em uma superrede de $GaAs - GaAl_{0.5}As_{0.5}$ com larguras $L_{GaAlAs} = 10\text{\AA}$ e $L_{GaAs} = 60\text{\AA}$ repetidos periodicamente em torno de 100 vezes. O resultado experimental mostrava a característica I-V da superrede exibindo uma região de resistencia diferencial era negativa a partir de uma voltagem V_0 . A resistência diferencial negativa era uma evidência de que o transporte eletrônico era determinado pela estrutura eletrônica de mini-bandas originadas no dobramento múltiple da primeira zona de Brillouin do cristal, devido à construção da superrede.

Diferentes combinações de materiais A e B e larguras L_A e L_B foram utilizados na construção de superredes. Experiencias de transporte e de propriedades ópticas permitiram estudar efeitos que até então não tinham sido observados: bandas de Kronig-Penney, estados de Tamm, e oscilações de Bloch entre outros. A modulação das bandas eletrônicas introduzia um potencial unidimensional na direção da modulação. As experiências ópticas mostraram

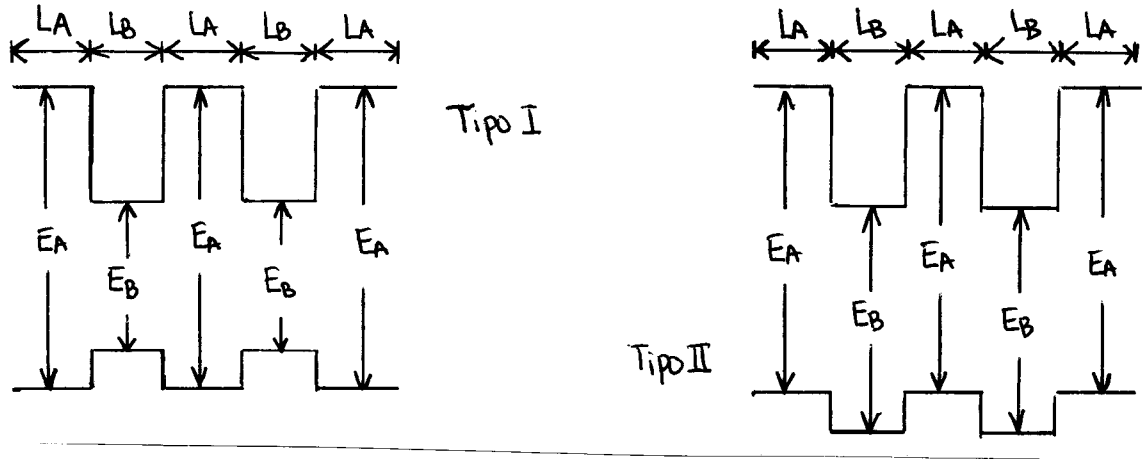


Figura 4.1: Possíveis formas de modulação da estrutura de bandas em uma superrede.

que os efeitos excitônicos estavam presentes no material porém exibiam características quase-bidimensionais. As técnicas de dopagem modulada combinada com a modulação da estrutura de bandas permitiu estudar as propriedades eletrônicas de transporte e ópticas de gases de elétrons quase-bidimensionais. Novos efeitos surgiram, como o efeito Hall quântico inteiro e fracionário, (prêmio Nobel de 1985 e 1998, respectivamente). Outros fenômenos de muitos corpos foram observados: renormalização do gap, singularidade no nível de Fermi, complexos excitônicos ligados (X^- e X^+), entre outros.

Como ponto de partida, nesta segunda parte da tese, consideraremos um gás de elétrons quase-bidimensional (2D). A partir deste ponto modelaremos os estados eletrônicos e a absorção óptica do gás de elétrons quase-2D *desconsiderando* completamente toda a complexidade da estrutura de bandas do material introduzida pela heteroestrutura (a Ref. [32] aborda este assunto em detalhe). Simplesmente consideraremos a existência de duas bandas parabólicas com massa efetiva m_e (condução) e m_h (valência) devido ao caráter semiconductor da heteroestrutura. Devido à técnica de dopagem modulada introduziremos no nosso modelo os doadores ionizados. Certamente estas simplificações são drásticas porém, como discutimos no Capítulo 1, nosso objetivo é entender qualitativamente o efeito combinado da baixa dimensionalidade do sistema eletrônico, da interação eletrônica, e a mobilidade do buraco fotocriado. Obviamente, uma vez entendidos os fenômenos físicos do problema podemos fazer a tentativa de descrever quantitativamente o sistema, introduzindo toda a complexidade das bandas de condução e valência. Isto, no entanto, não será feito nesta tese.

Capítulo 5

Estado fundamental do X^- bi-dimensional

Nosso primeiro contacto com sistemas bidimensionais(2D) semicondutores é o estudo do estado fundamental de um complexo constituído por dois elétrons e um buraco de valência. Este complexo é conhecido como exciton carregado negativamente(X^-) ou trion negativo. Sua existencia em sistemas semicondutores tri-dimensionais(3D) foi proposta nos anos 50[34] e e inicialmente observado, experimentalmente, por Thomas e Hopfield em CdS[43]. A estabilidade deste complexo em estruturas 2D foi examinada por Stebé e Ainane[35]. Os resultados mostraram que a energia de ligação do elétron adicionado ao exciton neutro era várias vezes maior que no sistema 3D. Este trion é o sistema estendido mais simples onde efeitos como a interação eletrônica e a mobilidade do buraco podem ser estudados. O papel de estes dois efeitos nos estados eletrônicos e propriedades ópticas de sistemas bidimensionais não tem sido completamente entendido ainda. Experimentos recentes[36, 37] em poços quânticos semicondutores mostram que este tipo de complexo excitônico é de grande importância na determinação destas propriedades.

Neste Capítulo investigamos o efeito da massa móvel do buraco de valência e da interação elétron-elétron na energia de ligação do X^- em sistemas 2D.

5.1 Modelo

Em nosso cálculo as bandas de condução e de valência são tratadas na aproximação parabólica. Assim, o Hamiltoniano do X^- é:

$$H_{X^-} = \frac{(\vec{p}_{e1})^2}{2m_e} + \frac{(\vec{p}_{e2})^2}{2m_e} + \frac{(\vec{p}_h)^2}{2m_h} - V_{eh}(|\vec{r}_1 - \vec{r}_h|) - V_{eh}(|\vec{r}_2 - \vec{r}_h|) + V_{ee}(|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|). \quad (5.1)$$

Os três graus de liberdade de elétrons mais buraco são substituídos por duas coordenadas relativas ao buraco mais a coordenada do centro de massa do sistema: $\vec{\eta}_i = \vec{\rho}_i - \vec{\rho}_h$; $i = 1, 2$ e $\vec{R} = \frac{m_h}{M}\vec{\rho}_h + \frac{m_e}{M}(\vec{\rho}_1 + \vec{\rho}_2)$ com $M = 2m_e + m_h$. Utilizando este sistema de coordenadas, mostramos que a dinâmica das três partículas ($2e + h$) pode ser reduzido a um problema de duas partículas internas mais o movimento do centro de massa do sistema:

$$H_{X^-} = \frac{(\vec{P}_{CM})^2}{2M} + \frac{(\vec{p}_1)^2}{2\mu^*} + \frac{(\vec{p}_2)^2}{2\mu^*} - V_{eh}(|\eta_1|) - V_{eh}(|\eta_2|) + V_{ee}(|\eta_1 - \eta_2|) + \frac{(\vec{p}_1 \cdot \vec{p}_2)}{m_h}. \quad (5.2)$$

As partículas reduzidas possuem massa excitônica $\mu = m_e m_h / (m_e + m_h)$, interagindo através de forças de Coulomb mais uma nova interação de dois-corpos $V_{pp} = (\vec{p}_1 \cdot \vec{p}_2) / m_h$ originada na mobilidade do buraco de valência (vide Apêndice). O Hamiltoniano deste sistema é análogo ao do problema de uma impureza doadora carregada negativamente (D^-) [39], onde os portadores de carga possuem massa efetiva μ , mais a interação V_{pp} . O movimento do centro de massa é desacoplado do movimento interno.

Para demonstrar a Eq. 5.2 notamos que a transformação de coordenadas impõe as seguintes regras de transformação para os momentos $\vec{p}_h$, $\vec{p}_{e1}$, e $\vec{p}_{e2}$:

$$\begin{aligned} \vec{p}_h &= m_h \vec{P}_{CM} / M - \vec{p}_1 - \vec{p}_2 \\ \vec{p}_{e1} &= m_e \vec{P}_{CM} / M + \vec{p}_1 \\ \vec{p}_{e2} &= m_e \vec{P}_{CM} / M + \vec{p}_2 \end{aligned} \quad (5.3)$$

Usando as relações da Eq. 5.3 a energia cinética total se transforma em:

$$\begin{aligned} T &= (\vec{p}_{e1})^2 / 2m_e + (\vec{p}_{e2})^2 / 2m_e + (\vec{p}_h)^2 / 2m_h \\ &= m_h (\vec{P}_{CM})^2 / 2M^2 + 2m_e (\vec{P}_{CM})^2 / 2M^2 + \\ &\quad + [(\vec{p}_1)^2 / 2m_h + (\vec{p}_1)^2 / 2m_e] + \\ &\quad + [(\vec{p}_2)^2 / 2m_h + (\vec{p}_2)^2 / 2m_e] + \vec{p}_1 \cdot \vec{p}_2 / m_h \\ &= (\vec{P}_{CM})^2 / 2M + (\vec{p}_1)^2 / 2\mu + (\vec{p}_2)^2 / 2\mu + \vec{p}_1 \cdot \vec{p}_2 / m_h \end{aligned} \quad (5.4)$$

Finalmente, transformamos os potenciais como: $V_{eh}(|\vec{r}_i - \vec{r}_h|) = V_{eh}(\eta_i)$ ($i=1,2$), e $V_{ee}(|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|) = V_{ee}(|\vec{\eta}_1 - \vec{\eta}_2|)$ e obtemos a Eq. 5.2.

Usando o Rydberg excitônico: $Ry^\mu = e^4\mu/2\kappa\hbar^2$ como unidade de energia, e o raio de Bohr excitônico: $a_B^\mu = e^2\hbar^2/\mu\kappa^2$ como unidade de comprimento, o Hamiltoniano das partículas relativas se reduz a:

$$H_{X^-}^{rel} = -\nabla_1^2 + \nabla_2^2 - \frac{2}{|\eta_1|} - \frac{2}{|\eta_2|} + \frac{2}{|\vec{\eta}_1 - \vec{\eta}_2|} + \frac{2\sigma}{1+\sigma}(\vec{p}_1 \cdot \vec{p}_2). \quad (5.5)$$

Para calcular a energia de ligação do X^- utilizamos dois métodos diferentes: i) configuração-interação, e ii) variacional.

5.1.1 Método de configuração-interação

O método de configuração-interação é um método geral que pode ser aplicado a uma grande variedade de problemas de duas-partículas interagentes. Inicialmente se escolhe uma base de estados de uma partícula e depois se constroem todos os estados possíveis de duas-partículas devidamente simetrizados. Estes estados são as diferentes configurações e formam a base na qual o hamiltoniano interagente é projetado. Em nosso trabalho este método foi utilizado de uma forma restrita no intuito de analisar qualitativamente a física do problema. Devido à forma do Hamiltoniano que descreve o movimento interno utilizamos estados ligados de um exciton para montar as configurações de duas partículas. Estes estados são caracterizados pelo número quântico principal n e o momento angular m . Pela simetria do Hamiltoniano do exciton a função se separa em uma parte radial e uma parte angular. A função de onda radial vem dada pelos polinomios de generalizados de Laguerre[40], entanto que a parte angular é representada por uma fase dependente do ângulo. A energia destes estados é: $\varepsilon_{nm} = -E_0/(2n+1)^2$ onde $n = |m|, |m|+1, |m|+2, \dots$, e $E_0 = 4Ry^\mu = 4e^4\mu/2\kappa\hbar^2$ é o Rydberg excitônico 2D. Estes estados formam camadas de estados degenerados. No nosso cálculo consideramos como subespaço de estados de uma partíocula o estado fundamental do exciton e a primeira camada de estados excitados. A energia do estado fundamental do exciton é $\varepsilon_{00} = -E_0$ e a função de onda associada é: $\Psi_{00}(\eta, \theta) = 4exp(-2\eta)/\sqrt{2\pi}$. A primeira camada de estados excitados tem energia $\varepsilon_{10} = -E_0/9$ e o subespaço de funções de onda é:

$$\begin{cases} \Psi_{10}(\eta, \theta) = (4/27)(1 - 4\eta/3)e^{-2\eta/3}/\sqrt{2\pi} \\ \Psi_{01}(\eta, \theta) = (2/\sqrt{189})[4\eta/3(16\eta^2/9 - 32\eta/3 + 12)]e^{-2\eta/3}e^{i\theta}/\sqrt{2\pi} \\ \Psi_{0-1}(\eta, \theta) = (2/\sqrt{189})[4\eta/3(16\eta^2/9 - 32\eta/3 + 12)]e^{-2\eta/3}e^{-i\theta}/\sqrt{2\pi} \end{cases} \quad (5.6)$$

Com estes quatro estados construímos as configurações de duas partículas, com momento angular total $R = 0$ no subespaço do singlete, para diagonalizar o problema:

$$\begin{cases} \Phi_a(1, 2) = \phi_{00}(\vec{\eta}_1)\phi_{00}(\vec{\eta}_2) \\ \Phi_b(1, 2) = \frac{1}{\sqrt{2}}(\phi_{00}(\vec{\eta}_1)\phi_{10}(\vec{\eta}_2) + \phi_{10}(\vec{\eta}_1)\phi_{00}(\vec{\eta}_2)) \\ \Phi_c(1, 2) = \frac{1}{\sqrt{2}}(\phi_{1+1}(\vec{\eta}_1)\phi_{1-1}(\vec{\eta}_2) + \phi_{1-1}(\vec{\eta}_1)\phi_{1+1}(\vec{\eta}_2)) \\ \Phi_d(1, 2) = \phi_{10}(\vec{\eta}_1)\phi_{10}(\vec{\eta}_2) \end{cases} \quad (5.7)$$

5.1.2 Método variacional

O segundo método é o método variacional e foi utilizado para obter uma melhor descrição quantitativa do problema. A metodologia é muito mais simples: propomos uma função de onda de prova $|\Phi\rangle$ e calculamos o valor esperado da energia $\mathcal{E} = \langle \Phi | H | \Phi \rangle / \langle \Phi | \Phi \rangle$, onde H é a Hamiltoniana do movimento relativo do X^- . A função de prova possui um conjunto de parâmetros variacionais $\{a_1, a_2, a_3, \dots\}$ que são devidamente ajustados para minimizar o valor esperado da energia. Este valor mínimo representa o valor estimado para a energia total do estado fundamental do sistema de partículas. A função variacional escolhida para descrever o estado fundamental das duas partículas reduzidas é a função de Chandrasekhar:

$$\Phi(1, 2) = \Phi_0(1, 2)(1 + c|\vec{\eta}_1 - \vec{\eta}_2|) \quad (5.8)$$

onde $\Phi_0(1, 2) = \frac{C_a^b}{\sqrt{2}}(e^{-\eta_1/a}e^{-\eta_2/b} + e^{\eta_1/b}e^{-\eta_2/a})$, e a , b e c são parâmetros variacionais. Esta função variacional foi utilizada com sucesso na descrição da energia de ligação do átomo de hidrogênio carregado negativamente (H^-) [38]. Esta função incorpora os efeitos da interação direta e de troca-correlação Coulombiana entre os elétrons. O efeito de troca-correlação é incluído através de segundo termo, de Jastrow [33], na Eq. 5.8. Generalizações de esta função de Chandrasekhar, incluindo termos de Jastrow de ordem superior, com até 35 parâmetros variacionais, tem sido utilizadas no cálculo da energia de ligação de doadores carregados 2D e 3D, na ausência de campo magnético e com campo aplicado. Os resultados obtidos com a versão simplificada utilizada por nós permitem obter até 98% do valor da energia de ligação calculada com funções mais sofisticadas. Para fins de comparação colocamos o valor obtido por Larsen, empregando uma função de prova com 35 parâmetros variacionais: $E_{D-}^b = 0.12E_0$ (Refs. [41] e [42]), e aquele obtido por nós, e Sandler anteriormente: $E_{D-}^b = 0.11E_0$ (Ref. [39]).

5.2 Resultados

Os detalhes do cálculo e discussão do problema encontram-se no Apêndice A deste capítulo. Em resumo, nossos resultados mostram que o trion 2D pode ser aproximado por duas partículas de massa reduzida μ ligadas a um centro Coulombiano fixo, interagindo através de forças de Coulomb. Ou seja, a energia de ligação pode ser bem aproximada pela energia de ligação de uma impureza doadora carregada negativamente renormalizando a escala de energia Ry^μ com a massa reduzida do exciton. O desvio deste comportamento é pequeno e se deve estritamente à interferência entre a correlação eletrônica entre as partículas e a interação V_{pp} cuja origem esta na mobilidade da buraco de valência.

The role of finite hole mass in the negatively charged exciton in two dimensions

Gustavo A. Narvaez^{1,2}, Pawel Hawrylak¹ and José A. Brum²

¹*Institute for Microstructural Sciences National Research Council of Canada,
Ottawa, Canada K1A 0R6.*

²*Instituto de Física “Gleb Wataghin” - DFESCM, Universidade Estadual de Campinas,
Cx.P. 6165 Campinas 13083-970, São Paulo, Brazil*

(December 16, 2000)

Abstract

The role of finite hole mass on the ground and excited states of the negatively charged exciton in two dimensions is discussed. We present results of configuration-interaction calculation using exact excitonic states and results of a variational calculation of the ground-state energy to elucidate the interplay of finite hole mass and electron-electron interactions.

PACS numbers: 73.20Dx, 73.23.Hk, 73.40Hm, 75.10.Jm

Keywords: semiconductors, two-dimensional systems, charged excitons.

The main theoretical difficulties in treating the absorption and emission of light by semiconductors containing free carriers are due to finite valence hole mass and electron-electron interactions.¹⁻³ The simplest problem where these difficulties appear is the problem of negatively charged exciton X^- . The negatively charged exciton consists of two electrons in a conduction band and a hole in a valence band. This complex appears in optical spectra of low density two-dimensional electron gas(2DEG) and was extensively investigated experimentally⁴⁻¹¹ and theoretically.¹²⁻²⁰

In this work we focus on the interplay of hole recoil and electron-electron interactions in the ground state state of X^- . In particular, we discuss the dependence of the binding energy on the mass of the valence hole.

In the effective mass approximation the Hamiltonian of X^- is that of two electrons with effective masses m_e , charge $-e$, and coordinates $\vec{r}_i$ ($i = 1, 2$), and one hole with effective mass m_h , charge $+e$, and coordinates $\vec{r}_h$:

$$H = \frac{\vec{p}_1^2}{2m_e} + \frac{\vec{p}_2^2}{2m_e} + \frac{\vec{p}_h^2}{2m_h} - V_{eh}(|\vec{r}_1 - \vec{r}_h|) - V_{eh}(|\vec{r}_2 - \vec{r}_h|) + V_{ee}(|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|). \quad (1)$$

Here, $V_{eh}(|\vec{r}_i - \vec{r}_h|)$ and $V_{ee}(|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|)$ are the electron-hole and electron-electron Coulomb interactions.

The transformation into a set of relative coordinates $\vec{\eta}_i = \vec{r}_i - \vec{r}_h$ and a center-of-mass(CM) coordinate $\vec{R} = [m_h\vec{r}_h + m_e(\vec{r}_1 + \vec{r}_2)]/M$ with $M = 2m_e + m_h$, transforms this Hamiltonian into a sum of Hamiltonians for the center-of-mass particle $H_{CM} = \vec{P}_{CM}^2/2M$ and two relative particles H_{rel} .¹

$$H_{rel} = H_X(1) + H_X(2) + V_{ee}(|\vec{\eta}_1 - \vec{\eta}_2|) + \frac{1}{m_h}(\vec{p}_1 \cdot \vec{p}_2). \quad (2)$$

Here $H_X(i) = \vec{p}_i^2/2\mu - V_{eh}(\eta_i)$ is a single exciton Hamiltonian and $\mu = \frac{m_e m_h}{m_e + m_h}$ is the reduced mass of the exciton. The relative Hamiltonian can also be thought of as a sum of the Hamiltonian of the D^- complex $H_{D^-} = H_X(1) + H_X(2) + V_{ee}(|\vec{\eta}_1 - \vec{\eta}_2|)$ and a pairwise

momentum interaction term $V_{pp} = (\vec{p}_1 \cdot \vec{p}_2)/m_h$. In this case, the D^- complex consists of two particles with mass μ instead of the mass of an electron m_e . The pairwise interaction term is inversely proportional to the hole mass and can be treated as a perturbation when hole is heavy. In this approach the X^- Hamiltonian depends on two masses, the exciton mass μ and the hole mass m_h , as relevant masses in the problem. It is hence natural to measure energy in excitonic Rydberg $Ry^\mu = e^4\mu/2\kappa^2\hbar^2$ and length in excitonic Bohr radius $a_B^\mu = \kappa\hbar^2/\mu e^2$. The dimensionless Hamiltonian for relative particles now reads:

$$H_{rel} = -\nabla_1^2 - \frac{2}{\eta_1} - \nabla_2^2 - \frac{2}{\eta_2} + \frac{2}{|\vec{\eta}_1 - \vec{\eta}_2|} - \frac{2\mu}{m_h}(\vec{\nabla}_1 \cdot \vec{\nabla}_2). \quad (3)$$

Before proceeding with states of the X^- complex we discuss the states of a single exciton. These states will be used to implement a configuration-interaction calculation to solve the two-body X^- problem. The single exciton problem can be solved exactly by expressing the Hamiltonian H_X in two-dimensional parabolic coordinates to avoid the divergence of the Coulomb potential at the origin. The regularization of the Hamiltonian maps the bound spectrum of the Coulomb problem into the spectrum of two harmonic oscillators.²¹ However, the calculation of two-body matrix elements turns out to be more convenient in real space.^{22,23} Following MacDonald and Ritchie²³, the real space exciton wavefunctions in cylindrical polar coordinates($\vec{\eta} = (\eta, \theta)$) can be written as:

$$\phi_{nm}(\vec{\eta}) = \frac{N_{nm}}{\sqrt{2\pi}} (2\eta/(n+1/2))^{|m|} L_{n+|m|}^{2|m|}(2\eta/(n+1/2)) e^{-\eta/(n+1/2)} e^{im\theta} \quad (4)$$

where $L_l^\alpha(x)$ is a generalized Laguerre polynomial²⁴ and N_{nm} is a normalization constant. The exciton energy spectrum is then given by $E(n, m) = -4/(2n+1)^2$, where $n = n(m) = |m|, |m|+1, |m|+2, \dots$. It is convenient at this point to introduce the 2D Rydberg which is 4 times the bulk Rydberg and measure energy in $E_0 = 4Ry^\mu$. The exciton states $|n, m\rangle$ form shells of degenerate levels. The first shell corresponds to state $|0, 0\rangle$, with energy $E(0) = -1$. The second shell, consisting of states $|1, -1\rangle$, $|1, +1\rangle$ and $|1, 0\rangle$, is triple degenerate with

energy $E(1) = -1/9$. The degeneracy of the second zero angular momentum level $|1, 0\rangle$ with finite angular momentum states $|1, \pm 1\rangle$ is a consequence of dynamical symmetries of the Coulomb potential, which are apparent in the harmonic oscillator picture. The third shell is a 5-fold degenerate shell with energy $E(2) = -1/25$, etc. This process continually enumerates all states of an exciton and describes the formation of excitonic shells. The first excited shell is separated from the ground state by 90% of the total exciton binding energy and so the ground state is well separated from a band of excited states. There are infinitely many excited states in the energy range of only 10% of exciton binding energy. In order to get a qualitative description of the physics of X^- we restrict the one-particle Hilbert space to the two lowest shells. Therefore, following a configuration-interaction scheme, we expand the X^- singlet wavefunction in the basis of low energy states: $\Phi_a(1, 2) = \phi_{00}(\vec{\eta}_1)\phi_{00}(\vec{\eta}_2)$, $\Phi_b(1, 2) = \frac{1}{\sqrt{2}}(\phi_{00}(\vec{\eta}_1)\phi_{10}(\vec{\eta}_2) + \phi_{10}(\vec{\eta}_1)\phi_{00}(\vec{\eta}_2))$, $\Phi_c(1, 2) = \frac{1}{\sqrt{2}}(\phi_{1+1}(\vec{\eta}_1)\phi_{1-1}(\vec{\eta}_2) + \phi_{1-1}(\vec{\eta}_1)\phi_{1+1}(\vec{\eta}_2))$, and $\Phi_d(1, 2) = \phi_{10}(\vec{\eta}_1)\phi_{10}(\vec{\eta}_2)$. As will be shown later the X^- problem cannot be reduced to less than three classes of states represented by states (a) – (c). In a two-particle state Φ_a two electrons occupy an identical zero angular momentum state, while in state Φ_b one electron occupies the tightly bound orbital, e.g. $|0, 0\rangle$, while the second electron occupies a less bound orbital, e.g. $|1, 0\rangle$. This configuration attempts to move electrons apart to reduce the electron-electron repulsion at the expense of binding energy of the second electron. The third configuration Φ_c involves two particles in finite and opposite angular momentum states. This class of states will prove crucial in accounting for the finite hole mass. The fourth configuration Φ_d does not contribute a qualitatively new term and can be omitted. The effective X^- hamiltonian can therefore be essentially represented by a 3×3 matrix $H_{i,j}$. A rather cumbersome evaluation of matrix elements of the X^- Hamiltonian of Eq. 3 gives the H_{D-} :

$$H_{D-} = \begin{bmatrix} -1 + (-1 + 1.1781) & 0.1793 & 0.1100 \\ 0.1793 & -1 + (-1/9 + 0.2160) & 0.0012 \\ 0.1100 & 0.0012 & -1/9 + (-1/9 + 0.0957) \end{bmatrix} \quad (5)$$

Let us first examine the diagonal elements. We see that the Coulomb repulsion of $+1.1781$ for configuration Φ_a i.e. the repulsion of the second particle by the first one already occupying this orbital exceeds the gain in energy of -1 . Hence the second particle is not bound in configuration Φ_a . In configuration Φ_b the second particle occupies orbital $|1, 0\rangle$. This orbital is less concentrated in the center of the attractive potential and the repulsion with the particle on the $|0, 0\rangle$ orbital is significantly reduced from $+1.1781$ to $+0.2160$. However, the gain in binding energy is only $-1/9 = -0.1111$, and the second particle is not bound again. In fact, all configurations involving two particles, one on $|0, 0\rangle$ orbital and the second one on the $|n, 0\rangle$ orbital are unbound. Hence the finite binding of the complex comes only from mixing of configurations, and we find that already with two shells the second particle is bound, with binding energy of $E_b^{D-} = 0.0467$. Such a small number of configurations cannot give a trustworthy binding energy (which will be obtained below by variational methods) but gives a good insight into relevant processes.

The total Hamiltonian is the sum of the D^- Hamiltonian and the γV_{pp} term, $H_{X-} = H_{D-} + \gamma V_{pp}$, where $\gamma = \mu/m_h$ and $V_{pp} = -\frac{1}{2}(\vec{\nabla}_1 \cdot \vec{\nabla}_2)$. Calculation of matrix V_{pp} within the subspace of relevant configurations (a) – (c) gives:

$$V_{pp} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & -0.0213 \\ 0 & 0 & 0 \\ -0.0213 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (6)$$

We see that the finite mass of the valence hole enters only through mixing of configurations (a) with configuration (c). This is a consequence of the symmetry of exciton states. Configuration (c) involves both particles in states with finite but opposite angular momentum. Configurations (a) and (c) are already coupled by Coulomb interaction. The mixing of

configurations (a), (b), and (c) is responsible for the binding of X^- . Hence any process which interferes with this mixing has a significant effect on the binding energy. An advantage of our simple approach is that one can explicitly write down the form of the X^- wavefunction. We first write down the form of the three configurations (a, b, c) which form our basis as:

$$\begin{aligned}\Phi_a^*(\eta_1, \eta_2) &= \left(\frac{N_{00}}{\sqrt{2\pi}} \right)^2 e^{-2\eta_1} e^{-2\eta_2} \\ \Phi_b^*(\eta_1, \eta_2) &= \frac{N_{00}N_{10}}{(\sqrt{2\pi})^2} \left(\frac{1}{\sqrt{2}} \right) e^{-2/3\eta_1} e^{-2/3\eta_2} (e^{-4/3\eta_1}(1 - 4\eta_2/3) + e^{-4/3\eta_2}(1 - 4\eta_1/3)) \\ \Phi_c^*(\eta_1, \eta_2) &= \left(\frac{N_{11}}{\sqrt{2\pi}} \right)^2 \left(\frac{256\sqrt{2}}{729} \right) \eta_1 \eta_2 e^{-2/3\eta_1} e^{-2/3\eta_2} (27 - 24\eta_1 + 4\eta_1^2)(27 - 24\eta_2 + 4\eta_2^2), \quad (7)\end{aligned}$$

where we have explicitly separated the radial and angular dependence. Now the wavefunction of the X^- depends explicitly only on two radial (η_1, η_2) and one angular ($\theta_1 - \theta_2$) variables. It can be written as:

$$\Phi(\eta_1, \eta_2, \theta_1 - \theta_2) = A\Phi_a^*(\eta_1, \eta_2) + B\Phi_b^*(\eta_1, \eta_2) + C \cos[\theta_1 - \theta_2]\Phi_c^*(\eta_1, \eta_2). \quad (8)$$

The coefficients A , B , and C are obtained from the diagonalization of the Hamiltonian. The finite hole mass changes the dependence on the angular variable. While the explicit dependence $\cos[\theta_1 - \theta_2]$ is an approximation to the dependence of the true ground state, the form of the wavefunction does not change qualitatively by going from X^- to X^+ . The X^- binding energy for a given hole mass can now be readily calculated. We anticipate that while the actual binding energy is poorly approximated at present by our three level Hamiltonian, the effect of finite hole mass can be captured reasonably well. To capture this dependence we measure the X^- binding energy in units of the binding energy of the D^- complex. In Figure 1 we show the effect of the finite hole mass (measured in electron mass) on the binding energy of X^- when m_h/m_e changes from 1 to 100. The X^- binding energy approaches the binding energy of D^- when mass of the hole approaches infinity. When the hole mass decreases, the binding energy decreases monotonically. This behavior can be

understood as a reduction of the mixing between two-particle configurations responsible for the binding energy by the finite hole mass term V_{pp} .

To emphasize this we show in Figure 1 the effect of the finite hole mass on the X^- binding energy without electron-electron interaction(dashed-line). Without Coulomb repulsion the second particle is strongly bound(binding energy of D^- is $E_b^{D^-} = E_0$), and the effect of valence hole mass is negligible. Of course, it changes the excitonic Rydberg via the reduced mass but does not affect correlations among particles.

Once the energy of the excitonic D^- complex has been calculated and measured in excitonic Rydberg, the effect of the finite hole mass is small. For $m_h = 2m_e$, the binding energy is 0.985 binding energy of D^- . For a light hole, $m_h = 1/2m_e$, the binding energy is 0.972 binding energy of D^- . To summarize these results, we have identified the effective Hamiltonian of the X^- . The matrix elements of this Hamiltonian, obtained here from a limited number of exact orbitals, can be improved upon by perturbative methods. The effective Hamiltonian sheds light on quantum interference effects responsible for the binding of X^- .

In order to get a better quantitative estimate of the binding energy we now turn to a variational approach. In a variational calculation we optimize charge density of the two relative particles using the Chandrasekhar trial wavefunction.²⁵ The wavefunction (charge density) is build out of two non-orthogonal s -like orbitals, one tightly bound to the Coulomb center and the second one weakly bound. The first orbital plays the role of the $|0, 0\rangle$ orbital and the second one of the $|1, 0\rangle$ state. The two different orbitals attempt to separate electrons to reduce their repulsion at the expense of binding energy. The properly symmetrized trial wavefunction has the form $\Phi_0(1, 2) = \frac{1}{\sqrt{2}}(e^{-\eta_1/a}e^{-\eta_2/b} + e^{-\eta_1/b}e^{-\eta_2/a})$ where a , and b are variational parameters. This wavefunction does not however account properly for the electron-electron repulsion which diverges as $|\vec{\eta}_1 - \vec{\eta}_2|^{-1}$. The total wavefunction is therefore a sum of the Hartree and Jastrow^{25,26} terms

$$\Phi(1, 2) = A\Phi_0(1, 2) + B|\vec{\eta}_1 - \vec{\eta}_2|\Phi_0(1, 2), \quad (9)$$

where A and B are variational parameters. Correlations are included through the second, Jastrow, term.

The X^- energy is obtained by minimizing the total energy $E = \int d1d2\Phi(1, 2)^*[H_{D^-} + \gamma V_{pp}]\Phi(1, 2) / \int d1d2\Phi(1, 2)^*\Phi(1, 2)$. The total energy can be split into two parts (we neglect the denominator for brevity): $E_{D^-} = \int d1d2\Phi(1, 2)^*[H_{D^-}]\Phi(1, 2)$ and $E_{pp} = \int d1d2\Phi(1, 2)^*[\gamma V_{pp}]\Phi(1, 2)$. The first part is just the D^- energy. The second part, due to finite hole mass, we now examine closely:

$$\begin{aligned} E_{pp} &= \int d1d2[A\Phi_0(1, 2) + B|\vec{\eta}_1 - \vec{\eta}_2|\Phi_0(1, 2)]^*[\gamma V_{pp}][A\Phi_0(1, 2) + B|\vec{\eta}_1 - \vec{\eta}_2|\Phi_0(1, 2)] = \\ &= \int d1d2[A\Phi_0(1, 2)]^*[\gamma V_{pp}][B|\vec{\eta}_1 - \vec{\eta}_2|\Phi_0(1, 2)] \\ &+ \int d1d2[B|\vec{\eta}_1 - \vec{\eta}_2|\Phi_0(1, 2)]^*[\gamma V_{pp}][A\Phi_0(1, 2)] \\ &+ \int d1d2[B|\vec{\eta}_1 - \vec{\eta}_2|\Phi_0(1, 2)]^*[\gamma V_{pp}][B|\vec{\eta}_1 - \vec{\eta}_2|\Phi_0(1, 2)] \end{aligned} \quad (10)$$

We see that the finite hole mass only contribution to the binding energy is through the Jastrow term in the variational wavefunction. The Jastrow term involves states with finite angular momentum and therefore plays the same role as configuration (c) in configuration-interaction approach. Alternatively, we can say that hole recoil interferes with electron-electron correlations.

Neglecting the pairwise momentum coupling between the two reduced particles V_{pp} gives a binding energy of the charged D^- complex of $E_b^{D^-} = 0.108$ (in units of E_0). Other calculations using more sophisticated trial wave functions slightly improve the binding energy to 0.120.^{27,28} In Figure 2 we show the dependence of the binding energy of X^- on the hole mass. As in Figure 1, energy is measured in binding energy of D^- and m_h/m_e changes from 1 to 100. Solid line shows the behavior of the interacting system, dashed line shows the behavior in the absence of electron-electron interactions. The behavior is similar to the

one obtained by configuration-interaction method. The inset shows the X^- binding energy measured in electronic Rydberg ($Ry = (1 + m_e/m_h)Ry^\mu$) as a function of the hole mass. On this scale the dependence of the binding energy on the mass of the hole is mostly the dependence of the reduced mass on the mass of the hole.

In summary, we discussed the interplay of finite hole mass and electron-electron interactions on the energy of the charged exciton using both the configuration-interaction and variational methods. We have identified an effective Hamiltonian of the X^- which sheds light on quantum interference effects responsible for the binding of X^- . The charged exciton binding energy was found to be well described by the binding energy of two particles with reduced (exciton) mass bound to a rigid Coulomb center and interacting via Coulomb forces. The deviations from this dependence were found to carry information about the interference between the finite hole mass and electron-electron interactions.

ACKNOWLEDGEMENTS

G. A. Narvaez thanks the Institute for Microstructural Sciences for hospitality, Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo (FAPESP-Brazil) for financial support, and N. P. Sandler and C. R. Proetto for discussions. J. A. Brum is grateful to L. C. O Dacal for helpful discussions.

REFERENCES

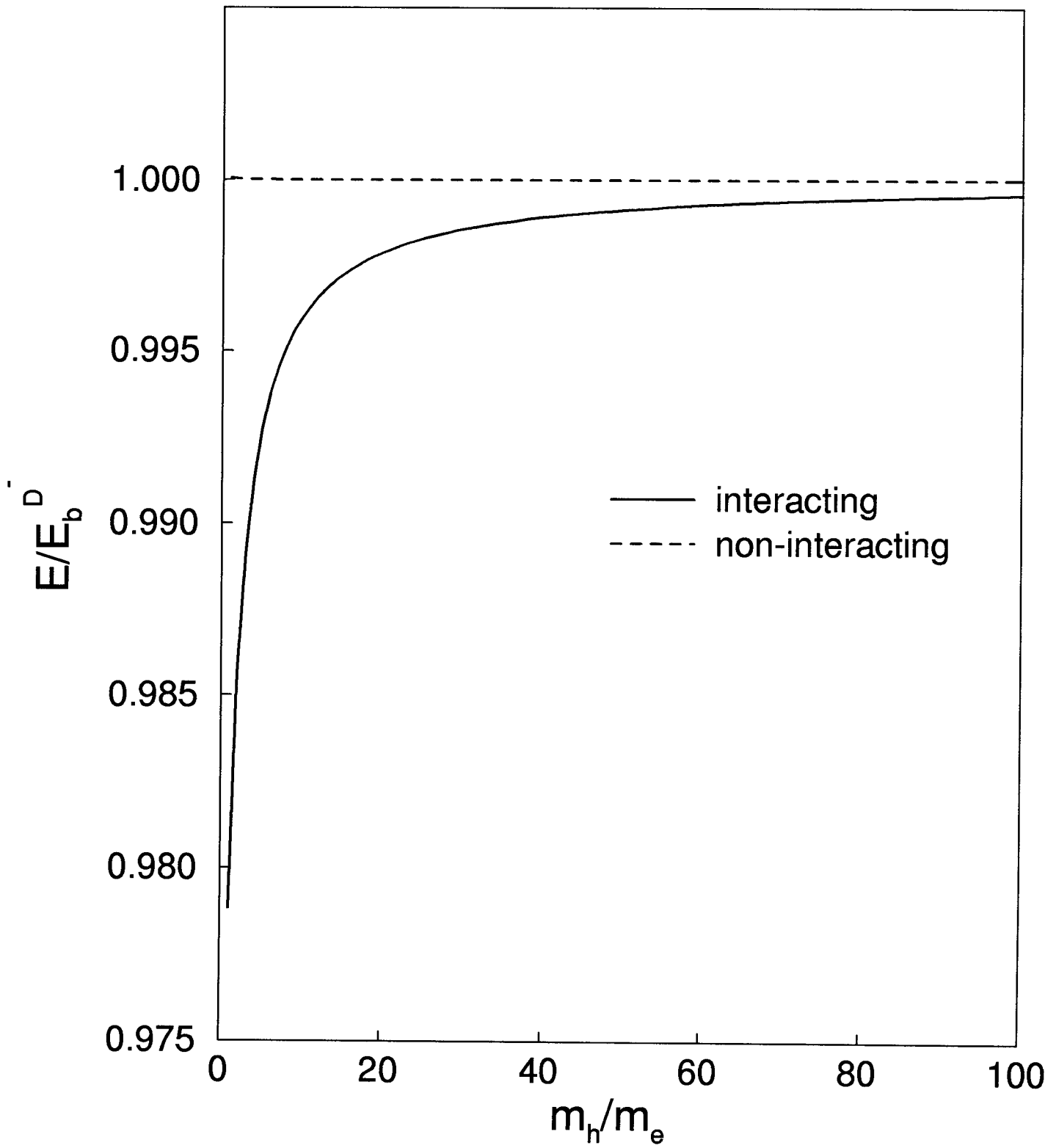
- ¹ J. A. Brum and P. Hawrylak, Comments Condens. Matter Phys. **18**, 135 (1997); G. A. Narvaez, J. A. Brum, and P. Hawrylak, in *Proceedings of the 24th International Conference on the Physics of Semiconductors, Jerusalem, 1998*, edited by D. Gershoni, (World Scientific, Singapore, 1999)
- ² P. Hawrylak, Phys. Rev. B**44**, 3821 (1991)
- ³ T. Uenoyama, and L. J. Sham, Phys. Rev. Lett. **65**, 1048 (1990)
- ⁴ K. Kheng *et al.*, Phys. Rev. Lett. **71**, 1752 (1993)
- ⁵ G. Finkelstein, H. Shtrikman, and I. Bar-Joseph, Phys. Rev. Lett. **74**, 976 (1995)
- ⁶ H. Buhmann *et al.*, Phys. Rev. B**51**, 7969 (1995)
- ⁷ A. J. Shields *et al.*, Phys. Rev. B**51**, 18 049 (1995)
- ⁸ A. J. Shields, M. Pepper, M. Y. Simmons, and D. A. Ritchie, Phys. Rev. B**52**, 7841 (1995)
- ⁹ D. Gekhtman, E. Cohen, A. Ron, and L. N. Pfeiffer, Phys. Rev. B**54**, 10 320 (1996)
- ¹⁰ S. Glasberg, G. Finkelstein, H. Shtrikman, and I. Bar-Joseph, Phys. Rev. B**59**, R10 425 (1999)
- ¹¹ M. Hayne, C. L. Jones, R. Bogaerts, C. Riva, A. Usher, F. M. Peeters, F. Herlach, V. V. Moshchalkov, and M. Henini, Phys. Rev. B**59**, 2927 (1999)
- ¹² M. Lampert, Phys. Rev. Lett. **1**, 450 (1958)
- ¹³ B. Stébé, and A. Ainane, Superlattices and Microstructures **5**, 545 (1989)
- ¹⁴ A. Thilagam, Phys. Rev. B**55**, 7804 (1997)
- ¹⁵ J. Usukura, Y. Suzuki, and K. Varga, Phys. Rev. B**59**, 5652 (1999)

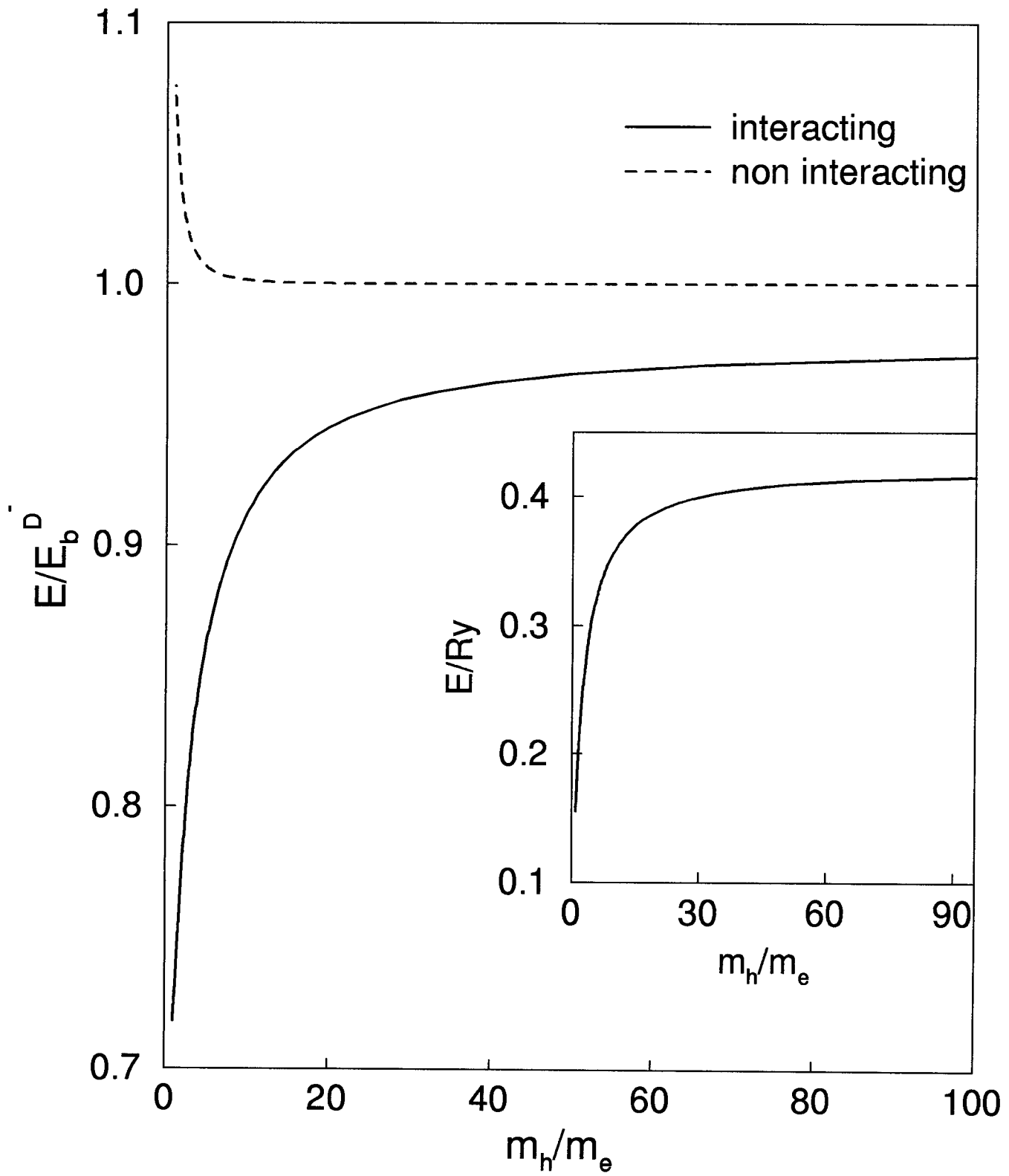
- ¹⁶ E. Esser, E. Runge, R. Zimmermann, and W. Langbein, *phys. stat. sol. (a)* **178**, 489 (2000); C. Riva, F. M. Peeters, and K. Varga, *Phys. Rev. B* **61**, 13 873 (2000)
- ¹⁷ A. Wojs, and P. Hawrylak, *Phys. Rev. B* **51**, 10 880 (1995)
- ¹⁸ J. J. Palacios, D. Yoshioka, and A. H. MacDonald, *Phys. Rev. B* **54**, R2296 (1996)
- ¹⁹ D. M. Whittaker, and A. J. Shields, *Phys. Rev B* **56**, 15 185 (1997)
- ²⁰ B. Stéb  , and A. Moradi, *Phys. Rev. B* **61**, 2888 (2000)
- ²¹ P. Hawrylak, and M. Grabowski, *Phys. Rev. B* **49**, 8174 (1994)
- ²² M. Shinada, and S. Sugano, *J. Phys. Soc. Jpn.* **21**, 1936 (1966)
- ²³ A. H. MacDonald, and D. S. Ritchie, *Phys. Rev. B* **33**, 8386 (1986)
- ²⁴ I. M. Gradshteyn and I. M. Ryzhik, *Tables of Integrals, Series, and Products* edited by Alan Jeffrey, (Academic Press, 1994)
- ²⁵ S. Chandrasekhar, *Astrophys. J.* **100**, 176 (1944); N. P. Sandler and C. R. Proetto, *Phys. Rev. B* **46**, 7707 (1992)
- ²⁶ G. D. Mahan, *Many-particle Physics* (Plenum, New York, 1981); and references therein.
- ²⁷ D. E. Phelps, and K. K. Bajaj, *Phys. Rev. B* **27**, 4883 (1983)
- ²⁸ D. M. Larsen and S. Y. McCann, *Phys. Rev. B* **45**, 3485 (1992); *Phys. Rev. B* **46**, 3966 (1992)

FIGURES

FIG. 1. Dependence of the binding energy of the X^- complex on the ratio m_h/m_e from configuration-interaction approach. Solid line: electron-electron interaction included. Dashed line: no electron-electron interaction. Energy is measured in units of the binding energy of D^- (see text).

FIG. 2. Dependence of the binding energy of the X^- complex on the ratio m_h/m_e from variational calculation. Solid line: electron-electron interaction included. Dashed line: no electron-electron interaction. Energy is measured in units of the binding energy of D^- . Inset: binding energy in units of electronic Rydberg (see text).





Apêndice B

Valor esperado da energia

Nesta Seção mostramos em detalhe como é calculado o valor esperado da energia total das duas partículas internas $\mathcal{E}$. Partimos da definição:

$$\mathcal{E} = \frac{\langle \Psi(1, 2) | H_{X^-}^{rel} | \Psi(1, 2) \rangle}{\langle \Psi(1, 2) | \Psi(1, 2) \rangle} = \frac{1}{N} \times (T + U + H_{12} + \langle V_{pp} \rangle) \quad (5.9)$$

onde $|\Psi(1, 2)\rangle$ é a função de prova definida na Eq. 5.8. N é a normalização da função de onda, T é o valor esperado da energia cinética das duas partículas reduzidas, U é o valor esperado do espalhamento das duas partículas com o centro Coulombiano, H_{12} é o valor esperado da interação Coulombiana entre partículas, e $\langle V_{pp} \rangle$ é o valor esperado da interação entre pares de momentos.

Normalização de $\Psi(1, 2)$

A normalização da função variacional $\Psi = \Psi(1, 2)$ é definida como:

$$N = \langle \Psi | \Psi \rangle = \int d\vec{\rho}_1 \int d\vec{\rho}_2 \Psi^* \Psi = \int d\vec{\rho}_1 \int d\vec{\rho}_2 \Psi_0^2(1, 2)(1 + 2c\rho_{12} + c^2\rho_{12}^2) \quad (5.10)$$

Usando coordenadas polares escrevemos:

$$N = \frac{(C_a^b)^2}{2} \int_0^{2\pi} d\theta_1 \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^{2\pi} d\theta_2 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \left(e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a} \right)^2 \times \\ \times (1 + 2c\rho_{12} + c^2\rho_{12}^2) \quad (5.11)$$

Podemos separar a integral na Eq.5.11 em três integrais mais simples: I_1 , I_2 e I_3 . A primeira destas integrais é:

$$I_1 = \frac{(C_a^b)^2}{2} \int_0^{2\pi} d\theta_1 \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^{2\pi} d\theta_2 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \left(e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a} \right)^2 \quad (5.12)$$

O cálculo desta integral é direto e fornece:

$$I_1 = 1 + \frac{16a^2b^2}{(a+b)^4} \quad (5.13)$$

A segunda integral (I_2) é:

$$I_2 = 2c \times \frac{(C_a^b)^2}{2} \int_0^{2\pi} d\theta_1 \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^{2\pi} d\theta_2 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \left(e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a} \right)^2 \times \rho_{12} \quad (5.14)$$

Antes de seguir com o cálculo de I_2 resolvemos as integrais angulares em θ_1 e θ_2 . Para isso escolhemos como eixo principal aquele determinado pelo ângulo θ_1 para medir o ângulo θ_2 . Assim:

$$\int_0^{2\pi} d\theta_1 \int_0^{2\pi} d\theta_2 \sqrt{\rho_1^2 + \rho_2^2 - 2\rho_1\rho_2 \cos(\theta_2 - \theta_1)} = 2\pi \int_0^{2\pi} d\gamma \sqrt{\rho_1^2 + \rho_2^2 - 2\rho_1\rho_2 \cos \gamma} \quad (5.15)$$

Usando os resultados da Ref. [40] obtemos:

$$\int_0^\pi dx \sqrt{a - b \cos x} = 2\sqrt{a+b} \mathbf{E} \left(\sqrt{\frac{2b}{a+b}} \right) \quad (5.16)$$

onde $\mathbf{E}(x)$ é a integral elíptica completa do segundo tipo [40]. Então, Eq.5.15 se torna:

$$2\pi \int_0^{2\pi} d\gamma \sqrt{\rho_1^2 + \rho_2^2 - 2\rho_1\rho_2 \cos \gamma} = 8\pi(\rho_1 + \rho_2) \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{\rho_1\rho_2}}{\rho_1 + \rho_2} \right) \quad (5.17)$$

Voltando à Eq.5.14 escrevemos:

$$\begin{aligned} I_2 &= 2c \times \frac{(C_a^b)^2}{2} \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \left(e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a} \right)^2 \times \\ &\quad \times 8\pi(\rho_1 + \rho_2) \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{\rho_1\rho_2}}{\rho_1 + \rho_2} \right) \\ &= 16\pi c \times \frac{(C_a^b)^2}{2} \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \left[\int_0^{\rho_1} d\rho_2 \rho_2 \left(e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a} \right)^2 (\rho_1 + \rho_2) \times \right. \\ &\quad \left. \times \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{\rho_1\rho_2}}{\rho_1 + \rho_2} \right) + \int_{\rho_1}^\infty d\rho_2 \rho_2 \left(e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a} \right)^2 (\rho_1 + \rho_2) \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{\rho_1\rho_2}}{\rho_1 + \rho_2} \right) \right] \quad (5.18) \end{aligned}$$

Na integral radial em ρ_2 , entre 0 e ρ_1 , mudamos as coordenadas de tal forma de ficarmos com uma única variável adimensional k que varia entre 0 e 1. Primeiro definimos $k = \rho_2/\rho_1$ com $dk = d\rho_2/\rho_1$, tal que k pertence ao intervalo $[0,1]$ quando ρ_2 varia entre 0 e ρ_1 . Na outra integral entre ρ_1 e ∞ definimos $k' = \rho_1/\rho_2$ com $dk' = -\frac{(k')^2}{\rho_1} d\rho_2$. Após a mudança de variáveis obtemos:

$$\begin{aligned}
& \int_0^{\rho_1} d\rho_2 \rho_2 \left(e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a} \right)^2 \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{\rho_1 \rho_2}}{\rho_1 + \rho_2} \right) = \\
& = \int_0^1 (\rho_1 dk) (\rho_1 k) \rho_1 (1+k) \left(e^{-\rho_1(1/a+k/b)} + e^{-\rho_1(1/b+k/a)} \right)^2 \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{k}}{1+k} \right) \quad (5.19)
\end{aligned}$$

e

$$\begin{aligned}
& \int_{\rho_1}^{\infty} d\rho_2 \rho_2 \left(e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a} \right)^2 \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{\rho_1 \rho_2}}{\rho_1 + \rho_2} \right) = \\
& = \int_1^0 \left(\frac{-\rho_1}{k'^2} dk' \right) \left(\frac{\rho_1}{k'} \right)^2 (1+k') \left(e^{-\rho_1(1/a+1/(k'b))} + e^{-\rho_1(1/b+1/(k'a))} \right)^2 \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{k'}}{1+k'} \right) \quad (5.20)
\end{aligned}$$

Eq.5.18 pode ser escrita como:

$$\begin{aligned}
I_2 = & 16\pi c \times \frac{(C_a^b)^2}{2} \int_0^1 dk(1+k) \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{k}}{1+k} \right) \left[k \int_0^{\infty} d\rho_1 \rho_1^4 \left(e^{-\rho_1(1/a+k/b)} + e^{-\rho_1(1/b+k/a)} \right)^2 + \right. \\
& \left. + \frac{1}{k^4} \int_0^{\infty} d\rho_1 \rho_1^4 \left(e^{-\rho_1(1/a+1/(kb))} + e^{-\rho_1(1/b+1/(ka))} \right)^2 \right] \quad (5.21)
\end{aligned}$$

Agora desenvolvemos a integral na varável ρ_1 e deixamos somente a integração na variável universal k entre 0 and 1:

$$\begin{aligned}
I_2 = & 16\pi c \times \frac{(C_a^b)^2}{2} \int_0^1 dk(1+k) \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{k}}{1+k} \right) \left[k \times 3a^5 b^5 \left(\frac{1}{4(a+bk)^5} + \frac{1}{4(b+ak)^5} + \right. \right. \\
& \left. \left. + \frac{16}{(a+b)^5(1+k)^5} \right) + \frac{1}{k^4} \times 3a^5 b^5 k^5 \left(\frac{1}{4(a+bk)^5} + \frac{1}{4(b+ak)^5} + \right. \right. \\
& \left. \left. + \frac{16}{(a+b)^5(1+k)^5} \right) \right] \\
= & 32\pi c \times \frac{(C_a^b)^2}{2} \int_0^1 dk(1+k) k \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{k}}{1+k} \right) \times 3a^5 b^5 \left(\frac{1}{4(a+bk)^5} + \frac{1}{4(b+ak)^5} + \right. \\
& \left. + \frac{16}{(a+b)^5(1+k)^5} \right) \quad (5.22)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
= & \frac{3072}{\pi} \frac{a^3 b^3}{(a+b)^5} \int_0^1 dk \frac{k}{(1+k)^4} \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{k}}{1+k} \right) + \\
& + \frac{48}{\pi} a^3 b^3 c \int_0^1 dk k(1+k) \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{k}}{1+k} \right) [(a+bk)^{-5} + (ak+b)^{-5}] \quad (5.23)
\end{aligned}$$

A terceira integral é:

$$\begin{aligned}
 I_3 &= \frac{(C_a^b)^2}{2} \int_0^{2\pi} d\theta_1 \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^{2\pi} d\theta_2 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \left(e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a} \right)^2 \times \\
 &\quad \times c^2 \rho_{12}^2 \\
 &= \frac{(C_a^b)^2}{2} \int_0^{2\pi} d\theta_1 \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^{2\pi} d\theta_2 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \left(e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a} \right)^2 \times \\
 &\quad \times c^2 [\rho_1^2 + \rho_2^2 - 2\rho_1 \rho_2 \cos(\theta_1 - \theta_2)] \quad (5.24)
 \end{aligned}$$

A integração nos ângulos é imediata e fornece a seguinte integral dupla nas variáveis radiais:

$$I_3 = 4\pi^2 c^2 \times \frac{(C_a^b)^2}{2} \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \left(e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a} \right)^2 (\rho_1^2 + \rho_2^2) \quad (5.25)$$

O cálculo de I_3 não é difícil. Neste caso obtemos:

$$I_3 = \frac{3}{2}(a^2 + b^2)c^2 + 192 \frac{a^4 b^4}{(a+b)^6} \quad (5.26)$$

A expressão final para a normalização da função de onda é:

$$\begin{aligned}
 N &= 1 + 16 \frac{a^2 b^2}{(a+b)^4} + \frac{3}{2}(a^2 + b^2)c^2 + 192 \frac{a^4 b^4}{(a+b)^6} c^2 + \\
 &\quad + \frac{3072}{\pi} \frac{a^3 b^3}{(a+b)^5} \int_0^1 dk \frac{k}{(1+k)^4} \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{k}}{1+k} \right) + \\
 &\quad + \frac{48}{\pi} a^3 b^3 c \int_0^1 dk k(1+k) \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{k}}{1+k} \right) [(a+bk)^{-5} + (ak+b)^{-5}] \quad (5.27)
 \end{aligned}$$

Valor esperado da energia cinética

Devido que a função de prova representa um estado ligado, o valor esperado da energia cinética do sistema de duas partículas se calcula como:

$$T = \langle \Psi | \frac{\vec{p}_1^2}{2\mu^*} + \frac{\vec{p}_2^2}{2\mu^*} | \Psi \rangle = \int d\vec{\rho}_1 \int d\vec{\rho}_2 [|\nabla_1 \Psi|^2 + |\nabla_2 \Psi|^2] \quad (5.28)$$

Começamos calculando o gradiente da função de prova $\Psi(1, 2)$ com respeito às variáveis (ρ_1, θ_1) : $\nabla_1 \Psi(1, 2)$. Em seguida, calculamos o módulo ao quadrado: $|\nabla_1 \Psi(1, 2)|^2$. Finalmente,

calculamos as integrais nas variáveis $\vec{\rho}_1$ e $\vec{\rho}_2$. O mesmo procedimento é seguido para as variáveis (ρ_2, θ_2) .

Antes de integrar nas variáveis (ρ_1, θ_1) e (ρ_2, θ_2) , separamos a Eq.?? em três grupos:

$$\begin{aligned}
 T_1 &= (1 + c\rho_{12})^2 \left(\frac{\partial}{\partial_1} \Psi_0 \right)^2 \\
 &= (1 + 2c\rho_{12} + c^2\rho_{12}^2) \frac{1}{2} \left(\frac{1}{a^2} e^{-2\rho_1/a} e^{-2\rho_2/b} + \frac{1}{b^2} e^{-2\rho_1/b} e^{-2\rho_2/a} + \frac{1}{ab} e^{-(1/a+1/b)(\rho_1+\rho_2)} \right) \\
 T_2 &= 2c(1 + c\rho_{12}) \left(\frac{\partial}{\partial_1} \Psi_0 \right) \Psi_0 \times \frac{(\rho_1 - \rho_2 \cos \gamma)}{\rho_{12}} \\
 &= -(2c + 2c^2\rho_{12}) \frac{1}{2} \left(\frac{1}{a} e^{-2\rho_1/a} e^{-2\rho_2/b} + \frac{1}{b} e^{-2\rho_1/b} e^{-2\rho_2/a} + \frac{a+b}{ab} e^{-(1/a+1/b)(\rho_1+\rho_2)} \right) \times \\
 &\quad \times \frac{(\rho_1 - \rho_2 \cos(\theta_1 - \theta_2))}{\rho_{12}} \tag{5.30}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 T_3 &= c^2 \Psi_0^2 \\
 &= c^2 \frac{1}{2} \left(e^{-2\rho_1/a} e^{-2\rho_2/b} + e^{-2\rho_1/b} e^{-2\rho_2/a} + e^{-(1/a+1/b)(\rho_1+\rho_2)} \right) \tag{5.31}
 \end{aligned}$$

Integrar T_1 and T_3 é simples uma vez usados os procedimentos discutidos acima. Para integrar T_2 precisa-se da seguinte identidade:

$$\int_0^{2\pi} d\theta_1 \int_0^{2\pi} d\theta_2 \frac{\cos(\theta_1 - \theta_2)}{\rho_{12}} = 4\pi^2 \int_0^\infty dq J_1(q\rho_1) J_1(q\rho_2) \tag{5.32}$$

Este procedimento é mais complicado desde o ponto do vista do cálculo do que conceitualmente. O resultado final obtido é:

$$\begin{aligned}
 T &= \frac{1}{a^2} + \frac{1}{b^2} + \frac{32ab}{(a+b)^4} + \\
 &+ \frac{48}{\pi} ab(a^2 + b^2)c \int_0^1 dk k(1+k) \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{k}}{1+k} \right) \left[(a+bk)^{-5} + (ak+b)^{-5} \right] \\
 &+ \frac{6144}{\pi} \frac{a^2 b^2}{(a+b)^5} \int_0^1 dk \frac{k}{(1+k)^4} \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{k}}{1+k} \right) + \frac{3}{2} \frac{(a^2 + b^2)^2}{a^2 b^2} c^2 + 384 \frac{a^3 b^3}{(a+b)^6} c^2 - \\
 &- 32 \frac{a^2 b^2}{(a+b)^4} c^2 - 2c^2 - 6\pi \frac{ab}{(a+b)^3} c + 192c \int_0^\infty \frac{(qb)^2}{(4 + (qb)^2)^{5/2} (4 + (qa)^2)^{3/2}} \\
 &+ 192c \int_0^\infty \frac{(qa)^2}{(4 + (qa)^2)^{5/2} (4 + (qb)^2)^{3/2}} - 64 \int_0^\infty \frac{8 - (qa)^2}{(4 + (qa)^2)^{5/2} (4 + (qb)^2)^{3/2}} \\
 &- 64 \int_0^\infty \frac{8 - (qb)^2}{(4 + (qb)^2)^{5/2} (4 + (qa)^2)^{3/2}} \tag{5.33}
 \end{aligned}$$

Valor esperado da interação Coulombiana de uma partícula

O valor esperado da interação Coulombiana é:

$$U = \langle \Psi | V_{eh}(1) + V_{eh}(2) | \Psi \rangle = \frac{(C_a^b)^2}{2} \int d\vec{\rho}_1 \int d\vec{\rho}_2 (e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a})^2 \times \\ \times \left(\frac{-2}{\rho_1} + \frac{-2}{\rho_2} \right) (1 + 2c\rho_{12} + c^2\rho_{12}^2) \quad (5.34)$$

Podemos separar esta integral em três termos:

$$J_1 = \frac{(C_a^b)^2}{2} \int d\vec{\rho}_1 \int d\vec{\rho}_2 (e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a})^2 \left(\frac{-2}{\rho_1} + \frac{-2}{\rho_2} \right) \\ = -2 \times 4\pi^2 \frac{(C_a^b)^2}{2} \int_0^\infty d\rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 (e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a})^2 (\rho_1 + \rho_2) \\ = - \left(\frac{4}{a} + \frac{4}{b} + 64 \frac{ab}{(a+b)^3} \right) \quad (5.35)$$

$$J_2 = \frac{(C_a^b)^2}{2} \int d\vec{\rho}_1 \int d\vec{\rho}_2 (e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a})^2 \left(\frac{-2}{\rho_1} + \frac{-2}{\rho_2} \right) \times 2c\rho_{12} \\ = -4c \times \frac{(C_a^b)^2}{2} \int_0^\infty d\rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 (e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a})^2 \times \\ \times (\rho_1 + \rho_2) \int_0^{2\pi} d\theta_1 \int_0^{2\pi} d\theta_2 \rho_{12} \quad (5.36)$$

Para integrar J_2 utilizamos o mesmo procedimento para o cálculo de I_2 : i) integramos nos ângulos θ_1 e θ_2 , ii) dividimos a integral em ρ_2 em duas integrais entre 0 e ρ_1 , e ρ_1 e ∞ , então mudamos à variável adimensional k , que varia entre 0 e 1, e iii) integramos em ρ_1 deixando somente a integração em k . Assim, obtemos:

$$J_2 = \frac{1536}{\pi} \frac{a^2 b^2}{(a+b)^4} \int_0^1 dk \frac{1}{(1+k)^2} \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{k}}{1+k} \right) + \\ + \frac{48}{\pi} a^2 b^2 c \int_0^1 dk (1+k)^2 \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{k}}{1+k} \right) \left[(a+bk)^{-4} + (ak+b)^{-4} \right] \quad (5.37)$$

$$J_3 = -2c^2 \times 4\pi^2 \frac{(C_a^b)^2}{2} \int d\vec{\rho}_1 \int d\vec{\rho}_2 (e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a})^2 \left(\frac{-2}{\rho_1} + \frac{-2}{\rho_2} \right) \times c^2 \rho_{12}^2$$

$$\begin{aligned}
&= -8\pi^2 c^2 \times \frac{(C_a^b)^2}{2} \int_0^\infty d\rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 (e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a})^2 (\rho_1 + \rho_2)(\rho_1^2 + \rho_2^2) \\
&= 2c^2(a+b) + 6c^2 \frac{a^3 + b^3}{ab} + 512c^2 \frac{a^3 b^3}{(a+b)^5}
\end{aligned} \tag{5.38}$$

Juntando os termos obtemos a expressão final:

$$\begin{aligned}
U &= \frac{4}{a} + \frac{4}{b} + 64 \frac{ab}{(a+b)^3} + 6 \frac{(a^3 + b^3)}{ab} c^2 + 512 \frac{a^3 b^3}{(a+b)^5} c^2 + 2c^2(a+b) + \\
&+ \frac{48}{\pi} a^2 b^2 c \int_0^1 dk (1+k)^2 \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{k}}{1+k} \right) \left[(a+bk)^{-4} + (ak+b)^{-4} \right] + \\
&+ \frac{1536}{\pi} \frac{a^2 b^2}{(a+b)^4} \int_0^1 dk \frac{1}{(1+k)^2} \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{k}}{1+k} \right)
\end{aligned} \tag{5.39}$$

Valor esperado da interação elétron-elétron

O valor esperado da interação elétron-elétron é:

$$\begin{aligned}
H_{12} &= \langle \Psi | V_{ee}(1,2) | \Psi \rangle = \frac{(C_a^b)^2}{2} \int d\vec{\rho}_1 \int d\vec{\rho}_2 (e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a})^2 \times \\
&\times \frac{2}{\rho_{12}} (1 + 2c\rho_{12} + c^2\rho_{12}^2)
\end{aligned} \tag{5.40}$$

Mais uma vez separamos a integral principal em três integrais auxiliares. A primeira delas é:

$$L_1 = \frac{(C_a^b)^2}{2} \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \int_0^{2\pi} d\theta_1 \int_0^{2\pi} d\theta_2 (e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a})^2 \frac{2}{\rho_{12}} \tag{5.41}$$

Primeiramente, calculamos a integral em ângulo. Para fazer isto utilizamos a expansão de $(\rho_{12})^{-1}$ em termos de funções de Bessel $J_\nu(x)$:

$$\frac{1}{\rho_{12}} = \sum_{m=-\infty}^{\infty} e^{im(\theta_1 - \theta_2)} \int_0^\infty dq J_m(q\rho_1) J_m(q\rho_2) \tag{5.42}$$

A integral angular é trivial e fornece:

$$\int_0^{2\pi} d\theta_1 \int_0^{2\pi} d\theta_2 \frac{2}{\rho_{12}} = 8\pi^2 \int_0^\infty dq J_0(q\rho_1) J_0(q\rho_2) \tag{5.43}$$

Agora escrevemos L_1 como:

$$L_1 = 8\pi^2 \times \frac{(C_a^b)^2}{2} \int_0^\infty dq \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 (e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a})^2 J_0(q\rho_1) J_0(q\rho_2) \quad (5.44)$$

O seguinte passo é expandir $(e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a})^2$ e calcular as integrais radiais usando a seguinte identidade [40]:

$$\int_0^\infty e^{-\alpha x} J_\nu(\beta x) x^{\mu-1} dx = (\alpha^2 + \beta^2)^{-\frac{1}{2}\mu} \Gamma(\nu + \mu) P_{\mu-1}^{-\nu} \left(\frac{\alpha}{\sqrt{\alpha^2 + \beta^2}} \right) \quad (5.45)$$

onde $\alpha, \beta > 0$, $\text{Re}(\nu + \mu) > 0$, $\Gamma(y)$ é a função Gamma e $P_{\mu-1}^{-\nu}(y)$ é a função associada do primeiro tipo de Legendre. Após algumas contas obtemos:

$$L_1 = 128 \int_0^\infty dq \frac{1}{(4 + (qa)^2)^{3/2}} \frac{1}{(4 + (bq)^2)^{3/2}} + 6\pi \frac{ab}{(a+b)^3} \quad (5.46)$$

A segunda integral é:

$$L_2 = 4c \times \frac{(C_a^b)^2}{2} \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \int_0^{2\pi} d\theta_1 \int_0^{2\pi} d\theta_2 (e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a})^2 \quad (5.47)$$

e a terceira integral é:

$$L_3 = c^2 \times \frac{(C_a^b)^2}{2} \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \int_0^{2\pi} d\theta_1 \int_0^{2\pi} d\theta_2 (e^{-\rho_1/a} e^{-\rho_2/b} + e^{-\rho_1/b} e^{-\rho_2/a})^2 \frac{2}{\rho_{12}} \rho_{12} \quad (5.48)$$

As integrais L_2 e L_3 já tem sido calculadas a menos de alguns fatores multiplicativos quando calculamos a normalização da função de onda.

O resultado final para H_{12} é:

$$\begin{aligned} H_{12} = & 128 \int_0^\infty dq \frac{1}{(4 + (aq)^2)^{3/2} (4 + (bq)^2)^{3/2}} + 6\pi \frac{ab}{(a+b)^3} + 4c + 64 \frac{a^2 b^2}{(a+b)^4} c + \\ & + \frac{48}{\pi} a^3 b^3 c \int_0^1 dk k(1+k) \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{k}}{1+k} \right) \left[(a+bk)^{-5} + (ak+b)^{-5} \right] + \\ & + \frac{3072}{\pi} \frac{a^3 b^3}{(a+b)^5} \int_0^1 dk \frac{k}{(1+k)^4} \mathbf{E} \left(\frac{2\sqrt{k}}{1+k} \right) \end{aligned} \quad (5.49)$$

Valor esperado da interação de pares de momento

Para o trión X^- , em coordenadas excitônicas, o operador $\frac{1}{m_h^*} \mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2$ em coordenadas cilíndricas (ρ, ϕ) é:

$$\begin{aligned} \frac{1}{m_h^*} \mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2 = & -\frac{2\sigma}{(1+\sigma)} \left\{ \cos(\theta_1 - \theta_2) \left[\frac{\partial^2}{\partial \rho_1 \partial \rho_2} + \frac{1}{\rho_1 \rho_2} \frac{\partial^2}{\partial \theta_1 \partial \theta_2} \right] \right. \\ & \left. + \sin(\phi_1 - \phi_2) \left[\frac{1}{\rho_2} \frac{\partial^2}{\partial \rho_1 \partial \phi_2} - \frac{1}{\rho_1} \frac{\partial^2}{\partial \phi_1 \partial \rho_2} \right] \right\} \end{aligned} \quad (5.50)$$

onde $\sigma = m_e^*/m_h^*$ é a razão entre as massas do elétron e do buraco. Claramente, este operador depende da diferença de fases $(\theta_1 - \theta_2)$ das partículas reduzidas.

O valor esperado da interação, no estado $|\Phi\rangle$ é:

$$\begin{aligned} \langle \Psi | \vec{p}_1 \cdot \vec{p}_2 | \Psi \rangle = & \int d\vec{\rho}_1 \int d\vec{\rho}_2 \Psi_0 \times (\vec{p}_1 \cdot \vec{p}_2 \Psi_0) + \\ & + 2c \int d\vec{\rho}_1 \int d\vec{\rho}_2 \Psi_0 \rho_{12} \times (\vec{p}_1 \cdot \vec{p}_2 \Psi_0) + \\ & + c^2 \int d\vec{\rho}_1 \int d\vec{\rho}_2 \Psi_0 \rho_{12} \times [\vec{p}_1 \cdot \vec{p}_2 (\Psi_0 \rho_{12})] \end{aligned} \quad (5.51)$$

Após a ação do operador $\vec{p}_1 \cdot \vec{p}_2$ obtemos:

$$\vec{p}_1 \cdot \vec{p}_2 (\Psi_0) = -\cos(\theta_1 - \theta_2) \frac{\partial^2}{\partial \rho_1 \partial \rho_2} (\Psi_0) = -\frac{1}{ab} \cos(\theta_1 - \theta_2) \Psi_0 \quad (5.52)$$

$$\begin{aligned} \vec{p}_1 \cdot \vec{p}_2 (\Psi_0 \rho_{12}) = & \cos(\theta_1 - \theta_2) \left[\frac{\partial^2}{\partial \rho_1 \partial \rho_2} (\Psi_0 \rho_{12}) + \frac{1}{\rho_1 \rho_2} \frac{\partial^2}{\partial \rho_1 \partial \rho_2} (\Psi_0 \rho_{12}) \right] + \\ & + \sin(\theta_1 - \theta_2) \left[\frac{1}{\rho_2} \frac{\partial^2}{\partial \rho_1 \partial \theta_2} (\Psi_0 \rho_{12}) - \frac{1}{\rho_1} \frac{\partial^2}{\partial \theta_1 \partial \rho_2} (\Psi_0 \rho_{12}) \right] \end{aligned} \quad (5.53)$$

onde as seguintes identidades são válidas:

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2}{\partial \rho_1 \partial \rho_2} (\Psi_0 \rho_{12}) = & \left(\frac{\partial^2}{\partial \rho_1 \partial \rho_2} \Psi_0 \right) \rho_{12} + \frac{1}{\rho_{12}} \left[\left(\frac{\partial \Psi_0}{\partial \rho_2} \right) (\rho_1 - \rho_2 \cos(\theta_1 - \theta_2)) + \right. \\ & \left. + \left(\frac{\partial \Psi_0}{\partial \rho_1} \right) (\rho_2 - \rho_1 \cos(\theta_1 - \theta_2)) \right] + \\ & \frac{\Psi_0}{\rho_{12}^2} [-\cos(\theta_1 - \theta_2) \rho_{12} - (\rho_2 - \rho_1 \cos(\theta_1 - \theta_2))(\rho_1 - \rho_2 \cos(\theta_1 - \theta_2))] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{1}{\rho_1 \rho_2} \frac{\partial^2}{\partial \rho_1 \partial \rho_2} (\Psi_0 \rho_{12}) &= -\frac{1}{\rho_{12}^2} \Psi_0 \left(\cos(\theta_1 - \theta_2) \rho_{12} - \frac{\rho_1 \rho_2}{\rho_{12}} \sin^2(\theta_1 - \theta_2) \right) \\
\frac{1}{\rho_2} \frac{\partial^2}{\partial \rho_1 \partial \theta_2} (\Psi_0 \rho_{12}) &= -\sin(\theta_1 - \theta_2) \left[\left(\frac{\partial \Psi_0}{\partial \rho_1} \right) \frac{\rho_1}{\rho_{12}} + \frac{\Psi_0}{\rho_{12}^2} \left(\rho_{12} - \frac{\rho_1}{\rho_{12}} (\rho_1 - \rho_2 \cos(\theta_1 - \theta_2)) \right) \right] \\
\frac{1}{\rho_1} \frac{\partial^2}{\partial \theta_1 \partial \rho_2} (\Psi_0 \rho_{12}) &= -\sin(\theta_1 - \theta_2) \left[\left(\frac{\partial \Psi_0}{\partial \rho_2} \right) \frac{\rho_2}{\rho_{12}} + \frac{\Psi_0}{\rho_{12}^2} \left(\rho_{12} - \frac{\rho_2}{\rho_{12}} (\rho_2 - \rho_1 \cos(\theta_1 - \theta_2)) \right) \right]
\end{aligned}$$

O valor esperado fica:

$$\begin{aligned}
\langle \Psi | \vec{p}_1 \cdot \vec{p}_2 | \Psi \rangle &= -2c \times \frac{2\pi}{ab} \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \Psi_0^2 \int_0^{2\pi} \cos \gamma \sqrt{\rho_1^2 + \rho_2^2 - 2\rho_1 \rho_2 \cos \gamma} + \\
&\quad -c^2 \int d\vec{\rho}_1 \int d\vec{\rho}_2 \Psi_0 \rho_{12} \times \left[\Psi_0 \cos(\theta_1 - \theta_2) \frac{\rho_{12}}{ab} + \right. \\
&\quad \left. + \Psi_0 \times \frac{\cos(\theta_1 - \theta_2)}{\rho_{12}} \left(\rho_1 \frac{\partial \Psi_0}{\partial \rho_2} + \frac{\partial \Psi_0}{\partial \rho_1} \rho_2 \right) - \right. \\
&\quad \left. - \Psi_0 \times \frac{1}{\rho_{12}} \left(\rho_1 \frac{\partial \Psi_0}{\partial \rho_1} + \rho_2 \frac{\partial \Psi_0}{\partial \rho_2} \right) - \Psi_0 \frac{1}{\rho_{12}} \right] \\
&= -\frac{2\pi c}{ab} \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \Psi_0^2 \int_0^{2\pi} \cos \gamma \sqrt{\rho_1^2 + \rho_2^2 - 2\rho_1 \rho_2 \cos \gamma} + \\
&\quad -c^2 \int d\vec{\rho}_1 \int d\vec{\rho}_2 \left[\Psi_0^2 \cos(\theta_1 - \theta_2) \frac{\rho_{12}^2}{ab} + \Psi_0 \times \cos(\theta_1 - \theta_2) \left(\rho_1 \frac{\partial \Psi_0}{\partial \rho_2} + \rho_2 \frac{\partial \Psi_0}{\partial \rho_1} \right) \right. \\
&\quad \left. - \Psi_0 \times \left(\rho_1 \frac{\partial \Psi_0}{\partial \rho_2} + \rho_2 \frac{\partial \Psi_0}{\partial \rho_1} \right) - \Psi_0^2 \right] \tag{5.54}
\end{aligned}$$

Agora, desenvolvemos a integral angular na Eq.5.54. Assim:

$$\begin{aligned}
\langle \Psi | \vec{p}_1 \cdot \vec{p}_2 | \Psi \rangle &= -\frac{2\pi c}{ab} \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \Psi_0^2 \int_0^{2\pi} \cos \gamma \sqrt{\rho_1^2 + \rho_2^2 - 2\rho_1 \rho_2 \cos \gamma} + \\
&\quad + 4\pi^2 c^2 \times \left[\int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \frac{\rho_1 \rho_2}{ab} \Psi_0^2 + \right. \\
&\quad \left. + \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \Psi_0 \times \left(\rho_1 \frac{\partial \Psi_0}{\partial \rho_1} + \rho_2 \frac{\partial \Psi_0}{\partial \rho_1} \right) \right. \\
&\quad \left. + \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \Psi_0^2 \right] \tag{5.55}
\end{aligned}$$

As integrais entre colchetes na Eq.5.55 dão o seguinte resultado:

$$M_1 = \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \times \frac{\rho_1 \rho_2}{ab} \Psi_0^2$$

$$\begin{aligned}
&= \frac{(C_a^b)^2}{2} \times \frac{1}{ab} \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \times \rho_1 \rho_2 (e^{-\rho_1/a - \rho_2/b} + e^{-\rho_1/b - \rho_2/a})^2 \\
&= \frac{(C_a^b)^2}{2} \times \frac{2}{ab} \left[\frac{a^3 b^3}{16} + \frac{4a^6 b^6}{(a+b)^6} \right] \\
&= \frac{1}{4\pi^2} \left[1 + 64 \frac{a^3 b^3}{(a+b)^6} \right] \tag{5.56}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
M_2 &= \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \Psi_0 \times \left(\rho_1 \frac{\partial \Psi_0}{\partial \rho_1} + \rho_2 \frac{\partial \Psi_0}{\partial \rho_2} \right) \\
&= \frac{C_a^b}{\sqrt{2}} \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \Psi_0 \times \\
&\quad \times \left[\rho_1 \left(\frac{-1}{a} e^{-\rho_1/a - \rho_2/b} + \frac{-1}{b} e^{-\rho_1/b - \rho_2/a} \right) + \rho_2 \left(\frac{-1}{b} e^{-\rho_1/a - \rho_2/b} + \frac{-1}{a} e^{-\rho_1/b - \rho_2/a} \right) \right] \\
&= \frac{(C_a^b)^2}{2} \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 (e^{-\rho_1/a - \rho_2/b} + e^{-\rho_1/b - \rho_2/a}) \times \\
&\quad \times \left[\rho_1 \left(\frac{-1}{a} e^{-\rho_1/a - \rho_2/b} + \frac{-1}{b} e^{-\rho_1/b - \rho_2/a} \right) + \rho_2 \left(\frac{-1}{b} e^{-\rho_1/a - \rho_2/b} + \frac{-1}{a} e^{-\rho_1/b - \rho_2/a} \right) \right] \\
&= \frac{(C_a^b)^2}{2} \times 2 \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 (e^{-\rho_1/a - \rho_2/b} + e^{-\rho_1/b - \rho_2/a}) \times \\
&\quad \times \left[\rho_1 \left(\frac{-1}{a} e^{-\rho_1/a - \rho_2/b} + \frac{-1}{b} e^{-\rho_1/b - \rho_2/a} \right) \right] \\
&= -\frac{(C_a^b)^2}{2} \times 2 \left[2 \frac{a^2 b^2}{16} + 2 \frac{a^4 b^4}{(a+b)^4} \right] \\
&= -\frac{1}{4\pi^2} \left[2 + 32 \frac{a^2 b^2}{(a+b)^4} \right] \tag{5.57}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
M_3 &= \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \Psi_0^2 \\
&= \frac{(C_a^b)^2}{2} \times \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \times (e^{-\rho_1/a - \rho_2/b} + e^{-\rho_1/b - \rho_2/a})^2 \\
&= \frac{1}{4\pi^2} \left[1 + 16 \frac{a^2 b^2}{(a+b)^4} \right] \tag{5.58}
\end{aligned}$$

Finalmente:

$$\begin{aligned}
\langle \Psi | \vec{p}_1 \cdot \vec{p}_2 | \Psi \rangle &= -\frac{4\pi c}{ab} \int_0^\infty d\rho_1 \rho_1 \int_0^\infty d\rho_2 \rho_2 \Psi_0^2 \int_0^{2\pi} \cos \gamma \sqrt{\rho_1^2 + \rho_2^2 - 2\rho_1 \rho_2 \cos \gamma} - \\
&\quad - 16c^2 \times \frac{a^2 b^2 (a-b)^2}{(a+b)^6} \tag{5.59}
\end{aligned}$$

Capítulo 6

Absorção óptica em um gás de elétrons 2D

Absorção óptica e emissão em poços quânticos semicondutores dopados tipo- n tem sido objeto de um intenso trabalho de pesquisa tanto experimental[49, 50, 51, 52, 53, 54, 55, 56, 57] como teórico[58, 59, 60, 61, 62, 63, 64, 65, 66, 67]. A combinação da baixa dimensionalidade do sistema, a presença da interação elétron-elétron e a mobilidade do buraco de valência fotocriado, fazem do cálculo da absorção óptica uma tarefa bastante complicada. Paralelamente, o crescimento de amostras de poços quânticos semicondutores de alta qualidade é um desafio de porte considerável.

Tentativas recentes de incluir a interação eletrônica no cálculo do espectro de absorção tem sido feitas dentro da aproximação de fase aleatória (RPA), incluindo efeitos de troca e correlação através da renormalização da energia dos estados de partícula simples[65]. Cálculos autoconsistentes dentro da aproximação de Hartree também encontram-se na literatura[68]. Embora estes cálculos tenham contribuído para o entendimento do efeito das interações no espectro de absorção e emissão o problema ainda esta longe de ser resolvido. Por exemplo, um tratamento apropriado dos efeitos de troca e correlação é inexistente. Existem também poucos trabalhos modelando a combinação destes efeitos de troca com o efeito da mobilidade do buraco de valência. Em particular, o efeito da mobilidade do buraco tem gerado controvérsia entre os resultados teóricos existentes e experimentos recentes. Cálculos do espectro de absorção incluindo a mobilidade do buraco fotocriado prevêm o desaparecimento da singularidade no nível de Fermi(FES) no espectro de absorção[65]. Resultados experimentais de absorção e emissão óptica em poços quânticos de alta qualidade revelam a presença de um aumento da força de oscilador das transições ópticas em torno do nível de

Fermi. Este aumento evidenciaria a presença da FES nos espectros ópticas.

Neste Capítulo procuramos entender o efeito combinado da interação elétron-elétron e a mobilidade do buraco fotocriado na absorção óptica de um gás de elétrons bidimensional. A interação eletrônica é tratada dentro da aproximação do funcional de densidade local[45]. O efeito da massa móvel do buraco de valência foi incluído de forma aproximada. Nossos resultados refletem a complexidade do problema e sugerem a necessidade de um nível de aproximação superior ao utilizado atualmente.

6.1 Hamiltoniana Modelo

O cálculo do espectro de absorção óptica, limiar de absorção e forma de linha, requer o conhecimento dos estados eletrônicos antes(estado inicial) e depois(estado final) da absorção de um fóton. O Hamiltoniano $\mathcal{H}_i$ do estado inicial descreve N elétrons na banda de condução com massa efetiva m_e , interagindo através de forças de Coulomb. O estado final é descrito pelo Hamiltoniano de $N+1$ elétrons mais um buraco móvel na banda de valência, com massa efetiva m_h .

Para encontrar os estados eletrônicos finais seguimos o modelo implementado por Brum e Hawrylak[68]. O 2DEG de densidade n_{2D} é emulado por um conjunto de N elétrons ocupando um disco bidimensional de raio R com barreiras de potencial infinitas na borda. A neutralidade de carga é garantida com um conjunto de N partículas fixas carregadas positivamente, simulando os doadores ionizados positivamente que dão origem ao gás de elétrons. O Hamiltoniano do estado final é:

$$\mathcal{H}_f = \sum_{i=1}^{N+1} \frac{\vec{p}_i^2}{2m_e} + \sum_{i < j}^{N+1} V_{ee}(|\vec{r}_i - \vec{r}_j|) + \frac{\vec{p}_h^2}{2m_h} + \sum_{i=1}^{N+1} V_{eh}(|\vec{r}_i - \vec{r}_h|) + \sum_{i=1}^{N+1} V_d(\vec{r}_i) + V_{conf}(\vec{r}) \quad (6.1)$$

onde a interação elétron-elétron($e-e$) e elétron-buraco($e-h$) é descrita pelo potencial $V_{ee}(|\vec{r}_i - \vec{r}_j|) = e^2/\kappa|\vec{r}_i - \vec{r}_j|$ e $V_{eh}(|\vec{r}_i - \vec{r}_h|) = -e^2/\kappa|\vec{r}_i - \vec{r}_h|$, respectivamente. O potencial de um-corpo V_d é devido à presença dos N doadores ionizados. V_{conf} é o potencial de confinamento imposto pelo disco.

Devido à forma da interação $e-e$ e $e-h$ mudamos o sistema de coordenadas absolutas $r_i (i = 1, 2, \dots, N+1)$ e r_h para um sistema de coordenadas relativas $\vec{\eta}_i = \vec{r}_i - \vec{r}_h$ e do centro de massa $\vec{R}_{cm} = (m_e \sum_{i=1}^N \vec{r}_i + m_h \vec{r}_h)/M$ onde $M = (N+1)m_e + m_h$. O Hamiltoniano da Eq. 6.1 se transforma em uma soma do Hamiltoniano do centro de massa $H_{cm} = \vec{P}_{cm}^2/2M$ e do Hamiltoniano das $N+1$ partículas relativas H_{rel} [68]:

$$\mathcal{H}_{rel} = \sum_{i=1}^{N+1} H_X(i) + \sum_{i<j} V_{ee}(|\vec{\eta}_i - \vec{\eta}_j|) + \frac{1}{m_h} \sum_{i<j} \vec{p}_i \cdot \vec{p}_j + \sum_{i=1}^{N+1} V_d(\eta_i) \quad (6.2)$$

Aqui $H_X(i) = \vec{p}_i^2/2\mu - V_{eh}(\eta_i)$ é o Hamiltoniano de um exciton com massa reduzida $\mu = m_e m_h / (m_e + m_h)$. O Hamiltoniano do movimento relativo descreve $N + 1$ partículas excitônicas acopladas por interações de duas partículas. Estas interações tem duas origens: i) a interação elétron-elétron, e ii) a mobilidade do buraco fotocriado. O acoplamento originado na massa móvel do buraco é descrito por uma interação de pares de momento, dividida pela massa efetiva do buraco: $V_{pp} = \frac{1}{m_h} \sum_{i<j} \vec{p}_i \cdot \vec{p}_j$. Esta interação pode ser tratada perturbativamente quando a massa do buraco é pesada. Como discutimos no Capítulo 2, esta interação modifica a correlação entre as partículas reduzidas[31]. Neste ponto, introduzimos o Rydberg excitônico $Ry^\mu = e^4 \mu / 2\kappa \hbar^2$ como unidade de energia e o raio de Bohr excitônico $a_B^\mu = \kappa \hbar^2 / \mu e^2$ como unidade de comprimento. O Hamiltoniano das partículas reduzidas em unidades excitônicas fica:

$$\mathcal{H}_{rel} = \sum_{i=1}^{N+1} \left(-\nabla_i^2 - \frac{2}{\eta_i} \right) + \sum_{i<j} \frac{2}{|\vec{\eta}_i - \vec{\eta}_j|} - \frac{2\mu}{m_h} \sum_{i<j} \vec{\nabla}_i \cdot \vec{\nabla}_j + \sum_{i=1}^N V_d(\eta_i) \quad (6.3)$$

Para concluir, encontramos um Hamiltoniano efetivo para a dinâmica dos $N + 1$ elétrons na presença de um buraco de valência fotocriado. O recuo do buraco esta presente neste Hamiltoniano efetivo como uma correlação adicional à interação Coulombiana entre as partículas excitônicas. A nova interação é um acoplamento entre pares de partículas dependente do momento das partículas reduzidas.

6.2 Cálculo autoconsistente dos estados eletrônicos

Nesta Seção discutimos o cálculo autoconsistente dos estados eletrônicos nos estados inicial e final. Discutimos a aproximação de Hartree e a inclusão de efeitos de troca e correlação eletrônica dentro da aproximação de densidade local.

6.2.1 Aproximação de Hartree

A aproximação de Hartree é a forma mais simples de tratar a interação Coulombiana em um sistema de N elétrons. Neste nível de aproximação se considera que cada elétron se movimenta em um potencial efetivo gerado pela presença dos elétrons restantes sem incluir efeitos de troca e correlação. O campo efetivo é um campo central que é calculado resolvendo

a equação de Poisson considerando uma densidade de carga livre igual à densidade de carga eletrônica. Aqui se associa a cada elétron uma densidade de carga determinada pela função de onda de partícula simples $\Phi_i(\vec{r})$ desse elétron. A natureza fermiônica dos elétrons é levada em conta na ocupação dos níveis de uma partícula $\Phi_i(\vec{r})$ através do princípio de exclusão de Pauli.

De forma geral, o potencial de Hartree efetivo devido à presença do gás de elétrons é escrito como:

$$V_H(\vec{\eta}) = v(\vec{\eta}) + \int d\vec{\eta}' \frac{e^2 n(\vec{\eta}')}{\kappa |\vec{\eta} - \vec{\eta}'|} \quad (6.4)$$

$v(\vec{\eta})$ é um potencial externo aplicado. No nosso caso, este potencial corresponde ao potencial eletrostático $V_d(\eta)$ gerado pelas cargas positivas que neutralizam a carga negativa do gás de elétrons, mais o potencial do buraco fotocriado após a absorção óptica $V_h = -\frac{e^2}{\kappa\eta}$. Obviamente o potencial de buraco não está presente no potencial de Hartree, no estado anterior à absorção.

Uma vez determinado o potencial $V_H(\vec{\eta})$ resolvemos autoconsistentemente as equações de Hartree:

$$\left\{ -\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2\mu} + V_H(\vec{\eta}) + V_{conf}(\vec{\eta}) \right\} \Phi_i(\vec{\eta}) = \epsilon_i \Phi_i(\vec{\eta}) \quad (6.5)$$

Os orbitais de Hartree $\Phi_i(\vec{\eta})$ podem ser expandidos numa base de estados de partícula simples $\phi_{nm}(\vec{\eta})$: $\Phi_i(\vec{\eta}) = \sum_{nm} \alpha_{nm}^i \phi_{nm}(\vec{\eta})$. Estes estados que formam a base são caracterizados por um número quântico principal n e momento angular m . Seguindo o modelo usado para simular o gás de elétrons, o cálculo autoconsistente dos estados eletrônicos foi desenvolvido em um disco de radio R , sem espessura, e com um potencial de confinamento perfeito ($V_c = \infty$) na borda do disco. A base de estados utilizada, usando unidades excitônicas de comprimento, é formada pelos estados cilíndricos confinados neste disco:

$$\phi_{nm}(\eta, \theta) = \frac{e^{im\theta}}{\sqrt{2\pi}} f_{nm}(\eta) = \frac{e^{im\theta}}{\sqrt{2\pi}} \frac{\sqrt{2}}{R |J_{m+1}(k_n^m R)|} J_m(k_n^m \rho) \quad (6.6)$$

O momento angular é m , e n é o numero quântico principal do estado $|nm\rangle$. A função $J_l(x)$ é a função de Bessel do primeiro tipo de ordem inteira l [40]. A grandeza $z = k_n^m R$ é o n -ésimo zero de $J_m(x)$. O espectro de energia dos estados da base, em unidades de Ry^μ , é dado por $E_n^m = (k_n^m)^2$.

Por representar um campo central, a interação de Hartree não mistura estados com diferente momento angular. Então, os coeficientes α_{nm}^i satisfazem a seguinte equação secular de uma partícula em cada subespaço de momento angular m :

$$E_n^m \alpha_{nm}^i + \sum_{n'} \langle nm | V_H(\eta) | n'm \rangle \alpha_{n'm}^i = E_m^i \alpha_{nm}^i \quad (6.7)$$

Os elementos de matriz do potencial de Hartree, em um determinado subespaço de momento angular m , se calculam da seguinte forma. Expandimos no espaço recíproco a interação Coulombiana, em duas dimensões, em termos de funções de Bessel do primeiro tipo $J_l(x)$:

$$\frac{1}{|\vec{\eta} - \vec{\eta}'|} = 2 \sum_{m=-\infty}^{\infty} e^{im(\theta-\theta')} \int_0^{\infty} dq J_m(q\eta) J_m(q\eta') \quad (6.8)$$

Desta forma, o potencial de Hartree pode ser expresso como:

$$V_H(\eta) = 2 \int d\eta' n(\eta') \sum_{m=-\infty}^{\infty} e^{im(\theta-\theta')} \int dq J_m(q\eta) J_m(q\eta') + V_d(\rho) = V_{ee}(\eta) + V_d(\eta) \quad (6.9)$$

A densidade de carga eletrônica $n(\eta') = \sum_{n,m} g_{nm} |\phi_{nm}(\eta')|^2$, onde g_{nm} é a degenerescência do estado $|n, m\rangle$, é expressa em termos dos estados da base:

$$n(\eta') = \sum_{\sigma} \sum_{k, m_k} \sum_{ii'} g_{\sigma, k, m_k} A_{i, m_k}^k A_{i', m_k}^k \phi_{i, m_k}(\eta') \phi_{i', m_k}(\eta') \quad (6.10)$$

A densidade eletrônica de carga é uma função com suaves oscilações e não apresenta singularidades. Por esta razão, após efetuarmos a integral angular na Eq.6.9 é conveniente definir a função: $G(q) = 2\pi \int_0^R d\eta' J_0(q\eta') n(\eta')$. Esta função atua como o kernel no espaço recíproco da interação Coulombiana entre elétrons:

$$V_{ee}(\eta) = \int_0^{\infty} dq J_0(q\eta) G(q) \quad (6.11)$$

Este é o potencial efetivo de uma partícula que descreve a interação elétron-elétron. Com este potencial calculamos os elementos de matriz na base de estados pertencentes ao subespaço de momento angular m .

6.2.2 Efeitos de troca e correlação eletrônica

Para incluir os efeitos de troca e correlação eletrônica utilizamos o formalismo de funcional de densidade local(LDA), desenvolvido por Kohn, Hohenberg e Sham. Nesta aproximação, análogamente à aproximação de Hartree, consideramos que os elétrons se movimentam em um campo efetivo. A diferença entre este método e a aproximação de Hartree consiste em que os efeitos de troca e correlação se encontram presentes através de um potencial de uma partícula. Este potencial depende unicamente da densidade eletrônica local do gás e, eventualmente, da polarização de spin destes elétrons. Agora, a equação efetiva de uma partícula que devemos resolver autoconsistentemente neste caso é:

$$\left\{ -\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m} + V_H(\vec{\eta}) + \mu_{xc}(\vec{\eta}) - \frac{e^2}{\kappa \eta} + V_{conf}(\vec{\eta}) \right\} \Psi_i(\vec{\eta}) = \epsilon_i \Psi_i(\vec{\eta}) \quad (6.12)$$

onde $V_{eff}(\eta) = V_H(\eta) + \mu_{xc}(\eta)$. As contribuições ao potencial efetivo são: i) o potencial efetivo de Hartree $V_H(\vec{r})$, como discutimos na Seção anterior, e ii) o potencial efetivo de troca e correlação μ_{xc} , definido na teoria de Kohn-Hohenberg-Sham[45].

O potencial de uma partícula que contém os efeitos de troca e correlação eletrônica se obtém da derivada funcional $\delta(n \times \epsilon(n, \zeta))/\delta n$ [45], onde n é a densidade eletrônica bi-dimensional e $\epsilon(n, \zeta)$ é a energia de troca e correlação por partícula do gás de elétrons. Esta energia depende do grau de polarização de spin $\zeta = (n^\uparrow - n^\downarrow)/n$ dos elétrons.

A energia de troca e correlação eletrônica por partícula para uma determinada polarização de spin do gás de elétrons pode ser escrita como[74]:

$$\epsilon_{xc}(n, \zeta) = \epsilon_{xc}(n, 0) + f(\zeta)(\epsilon_{xc}(n, 1) - \epsilon_{xc}(n, 0)) \quad (6.13)$$

onde $f(\zeta) = ((1 + \zeta)^{3/2} + (1 - \zeta)^{3/2} - 2)/2(\sqrt{2} - 1)$ [75]. As energias de troca e correlação no gas de elétrons não polarizado e completamente polarizado são: $\epsilon_{xc}(n, 0)$ and $\epsilon_{xc}(n, 1)$, respectivamente. No caso de elétrons em duas dimensões, à temperatura zero, estas energias tem sido parametrizadas em função da densidade eletrônica por Tanatar e Ceperley[73], utilizando técnicas variacionais e de Monte Carlo. Utilizando estes resultados escrevemos a Eq. 6.13 como:

$$\epsilon_{xc}(n, \zeta) = \frac{-4\sqrt{2}}{3\sqrt{\pi}} n^{1/2} [(1 + \zeta)^{3/2} + (1 - \zeta)^{3/2}] + \epsilon_c(n, 0) + f(\zeta)(\epsilon_c(n, 1) - \epsilon_c(n, 0)) \quad (6.14)$$

onde a energia de correlação por partícula $\epsilon_c(n, i)$ ($i = 0, 1$) é parametrizada por um aproximante de Padé:

$$\epsilon(n, i) = -a_0(i) \frac{1 + a_1(i)\gamma}{1 + a_1(i)\gamma + a_2(i)\gamma^2 + a_3(i)\gamma^3} \quad (6.15)$$

Aqui introduzimos o parâmetro $\gamma = \sqrt{r_s}$, onde $r_s = 1/\sqrt{\pi n}$ é o raio do círculo que contém, em média, um único elétron. Os valores dos parâmetros $a_j(i)$; $j = 1, 2, 3$ são os seguintes:

$$\begin{aligned} a_0(0) &= -0.3568, & a_1(0) &= 1.1300, & a_2(0) &= 0.9052, & a_3(0) &= 0.4165 \\ a_0(1) &= -0.0515, & a_1(1) &= 340.5813, & a_2(1) &= 75.2293, & a_3(1) &= 37.0170 \end{aligned} \quad (6.16)$$

O potencial de troca e correlação é obtido como a derivada funcional $\delta[n \times \epsilon(n, \zeta)]/\delta n$.

Como o potencial de troca e correlação tem simetria axial resolvemos separadamente o problema em cada subespaço de diferente momento angular m .

$$E_n^m \alpha_{nm}^i + \sum_{n'} \langle nm | V_{eff}(\eta) | n'm \rangle \alpha_{n'm}^i = E_m^i \alpha_{nm}^i \quad (6.17)$$

onde os coeficientes α_{nm}^i são aqueles definidos na Seção 6.2.1.

6.2.3 Resultados e discussão

Para resolver autoconsistentemente as equações efetivas de Hartree e Kohn-Sham utilizamos o método de relaxação. Este método foi implementado inicialmente por Stern[72]. A técnica consiste em substituir o potencial efetivo calculado após a i -ésima iteração $V_H^{out,i}(x)$ por um potencial relaxado da forma: $V_H^{in,i+1}(x) = (1 - f)V_H^{in,i}(x) + fV_H^{out,i}(x)$, que é utilizado no cálculo dos estados eletrônicos na iteração $i + 1$. O potencial $V_H^{in,i}(x)$ é o potencial efetivo utilizado no início do cálculo na i -ésima iteração. O parâmetro de relaxação f encontra-se entre 0 e 1, e determina a fração do potencial efetivo $V_H^{out,i}(x)$ que entra no cálculo. Valores de f próximos de 1 embora ajudem a convergir rapidamente o cálculo produzem instabilidades numéricas com certa facilidade. Por outro lado, valores pequenos de f demoram a convergência e, devido ao número grande de iterações necessárias para convergir o cálculo, produzem uma propagação de erros apreciável nos resultados. Os valores de f utilizados no nosso cálculo estiveram em torno de $f_c = 0.15$. Embora este método facilite a convergência do cálculo a escolha do parâmetro de relaxação é feita ‘a mão’ sem nenhum critério *a priori*. A forma de combinarmos os potenciais $V_H^{in,i}(x)$ e $V_H^{out,i}(x)$ utilizada aqui não é a única escolha possível[72].

Por questões de simplicidade assumimos que as cargas positivas(doadores ionizados) que neutralizam a carga do gás de elétrons estão distribuídas no que chamamos um ‘Disco de

Bessel'. Nesta aproximação, a densidade de carga $n_d(\eta')$ coincide com a densidade de carga de N elétrons distribuídos nos níveis de partícula simples de um disco de raio R (vide Eq.6.6). Outras escolhas para esta distribuição de cargas são possíveis[71].

Em todos os cálculos dos estados eletrônicos desconsideramos a interação V_{pp} entre as partículas reduzidas. O número de estados utilizados na base de estados de uma-partícula foi tal que para todos os tamanhos de disco examinados o valor do estado fundamental do exciton no disco foi $E_X = -3.5Ry^\mu$.

Antes de apresentar os resultados dos estados eletrônicos discutiremos os resultados de Brum e Hawrylak[68]. Nesse trabalho Brum e Hawrylak calcularam os estados eletrônicos de um gás de elétrons 2D utilizando o modelo que discutimos nas seções anteriores onde o disco tinha raio $R = 10a_B^X$. O cálculo foi feito na aproximação de Hartree. Os efeitos de troca e correlação foram incluídos utilizando a energia própria de troca blindada e a energia própria do buraco de Coulomb. O limiar de absorção foi calculado incluindo os efeitos de troca e correlação neste nível de aproximação. O efeito da massa móvel do buraco foi incluído aproximadamente. O espectro de absorção óptica foi calculado somente na aproximação de Hartree. Também não foi considerado o efeito da massa móvel do buraco no espectro de absorção. Os resultados mostraram que o limiar de absorção depende fortemente com a densidade eletrônica uma vez incluído o recuo do buraco. Isto é esperado uma vez que no caso de elétrons não interagentes a interação V_{pp} desloca a energia do estado fundamental em uma quantidade proporcional a $(\vec{k}_F)^2$. O espectro de absorção apresenta uma estrutura fraca que poderia ser associada a singularidades adicionais à singularidade no limiar de absorção, fortemente atenuadas pela interação Coulombiana entre as partículas. Na Seção 6.3 voltaremos sobre este ponto. Estas singularidades adicionais se devem à ionização do estado ligado na presença do potencial de buraco no estado final.

Começamos pelos resultados obtidos para os estados eletrônicos finais na aproximação de Hartree. A principal restrição para o cálculo é o grande número de elétrons necessários para emular densidades eletrônicas da ordem de $10^{11}cm^{-2}$ quando o disco é grande. Por esta razão o cálculo autoconsistente da Ref. [68] foi feito em um disco de raio $R = 10a_B^X$. O potencial do buraco age como um centro espalhador Coulombiano fixo na origem do sistema de coordenadas relativas. Assim, esperamos que os estados finais apenas sejam modificados aprecialmente próximos da origem. Com isto, esperamos que os canais com pequeno valor de momento angular sejam relevantes no cálculo. Para verificar isto calculamos o potencial efetivo de Hartree no estado final para um disco $R = 10a_B^X$ e $N = 57$ utilizando um número total de M canais para distribuir os N elétrons mas calculando autoconsistentemente os

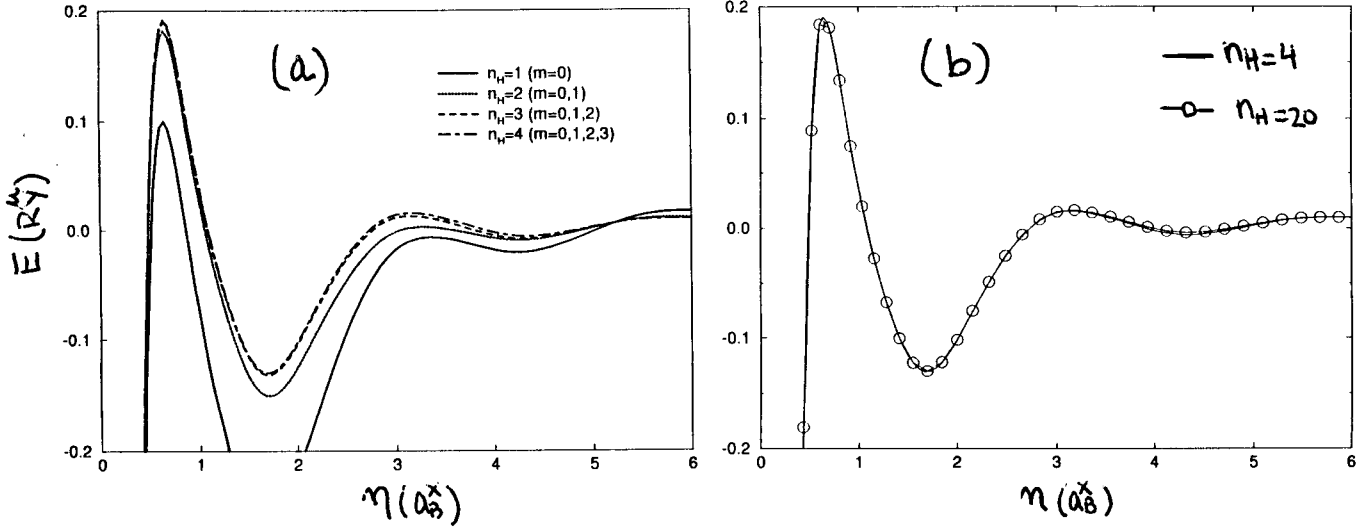


Figura 6.1: (a) Potencial efetivo na aproximação de Hartree para $N=57$ elétrons num disco de $R = 10a_B^X$ calculado autoconsistentemente em um número diferente de subespaços de momento angular m . (b) Comparação do nosso resultado com $n_H = 4$ e $n_H = 20$

estados eletrônicos em um conjunto $n_H \ll M$ de canais. Os estados eletrônicos nos $M - n_H$ canais restantes coincidem com os estados da base (partícula livre confinada num disco). A Figura 6.1a mostra o potencial efetivo de buraco para $n_H = 1, 2, 3, 4$. Vemos que o potencial tem convergido aceitavelmente para $n_H = 4$. O potencial obtido nestas condições é comparado com o potencial obtido por Brum e Hawrylak com $n_H = M = 20$ na Figura 6.1b. Claramente vemos que o resultado obtido com 4 canais fornece um resultado confiável. Utilizando somente o número suficiente de canais para convergir o cálculo obtivemos os potenciais efetivos do buraco para discos de $R = 15a_B^X$ e $R = 20a_B^X$. Notemos que quanto maior o radio do disco melhor a simulação do gás de elétrons de densidade n_{2D} . A Figura 6.2 mostra os potenciais efetivos para $R/a_B^X = 10, 15$ para concentrações próximas de $n_{2D} = 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Podemos ver que o comportamento qualitativo é o mesmo independentemente do tamanho do disco. Como discutido na Ref. [68] os potenciais efetivos apresentam um pico repulsivo na região próxima da origem e oscilações de Friedel que decrescem em amplitude conforme a distância à origem aumenta. Este pico repulsivo é consequência de termos um estado ligado

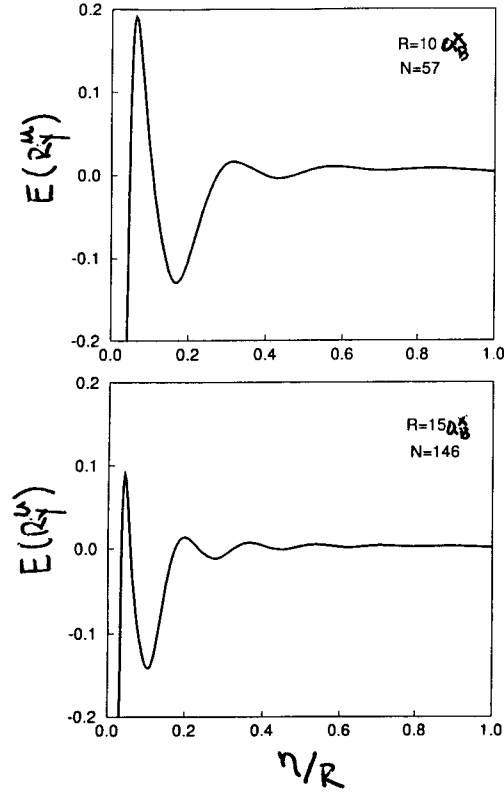


Figura 6.2: Potencial efetivo na aproximação de Hartree para discos de raio $R = 10a_B^X$ e $R = 15a_B^X$ e densidade eletrônica aproximadamente $1.1 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$.

duplamente ocupado. Este estado ligado é devido ao potencial atrativo introduzido pelo buraco fotocriado, e esta sempre presente em sistemas bidimensionais[79, 80]. Este estado duplamente ocupado representa o X^- na presença do gás de elétrons. Pequenas variações da intensidade máxima do pico próximo da origem devem-se a efeitos de preenchimento de camada. Este efeito é consequência da simetria axial dos estados discretos que constituem a base de estados para implementar o cálculo. Notemos que um aumento r no raio do disco requer um aumento do número de elétrons em um fator $(1 + r/R)^2$. Infelizmente, o cálculo autoconsistente não é muito estável numericamente. Por esta razão não conseguimos calcular os potenciais efetivos para diferentes raios mantendo exatamente a mesma densidade eletrônica.

O seguinte passo é a inclusão dos efeitos de troca e correlação. Na aproximação de Hartree os estados iniciais coincidem com os estados da base uma vez que as cargas positivas(doadores ionizados) estão distribuídas no “disco de Bessel”. Assim, o potencial das cargas positivas $V_d(\vec{r})$ cancela exatamente o potencial da carga eletrônica(potencial de Hartree/interação direta) e o problema se reduz ao problema de uma partícula livre confinada no disco. Con-

siderando a interação de troca e correlação o cancelamento do potencial efetivo da carga eletrônica é parcial. Com isto, o estado eletrônico inicial deve ser encontrado autoconsistentemente. Os potenciais efetivos de $N = 57$ elétrons num disco de raio $R = 10a_B^X$ para os estados inicial e final são mostrados na Figura 6.3a. Dois efeitos surgem da inclusão da troca-correlação eletrônica: i) o deslocamento do potencial para energias menores (renormalização do gap) e ii) o aumento da intensidade das oscilações de Friedel. Devido à aproximação de densidade local para incluir os efeitos de troca e correlação e ao fato de confinar o sistema eletrônico a um disco de raio R , o potencial eletrônico efetivo vai a zero na fronteira do disco de uma forma não suave. O vale intenso no potencial efetivo próximo da borda do disco é consequência destas aproximações. O potencial de troca-correlação é nulo para densidades eletrônicas nulas e isto acontece na borda do disco devido ao confinamento perfeito imposto na mesma. Na Figura 6.3b mostramos a densidade eletrônica no estado final. O pico próximo da origem é uma assinatura do estado ligado formado pela presença do buraco de valência. Claramente, a densidade eletrônica apresenta oscilações devido à presença do disco e se anula em $\rho = R$.

Para enfatizar o efeito do potencial do buraco de valência e a troca-correlação eletrônica mostramos na Figura 6.4 o espectro de partícula livre (painel superior), o espectro do estado inicial (painel meio), e o espectro do estado final (painel inferior). Claramente os espectros de energia iniciais e finais estão deslocados para energias menores. Isto se deve à interação de troca, presente nas duas situações, introduzida através do potencial $\mu_{xc}(\eta)$. No estado final (painel inferior), vemos que os estados com momento angular diferente de zero se modificam levemente devido à presença do buraco. Os estados com $m = 0$ se alteram sensivelmente. Em particular, vemos a aparição de um estado ligado (indicado com uma seta na Figura 6.4) claramente distinguível do resto dos estados. Estes estados simulam os estados da banda de condução.

Agora nos concentraremos nos estados eletrônicos de um disco de raio $R = 20$. O cálculo dos estados eletrônicos é feito na aproximação de densidade local. A Figura 6.5 mostra os níveis eletrônicos característicos do gás de elétrons na presença do buraco de valência: potencial químico μ^f , fundo da banda de condução (primeiro estado ocupado acima do estado ligado) ε_c , e estado ligado ε_0 , em função do número N de elétrons no estado inicial. A energia de ligação do estado ligado corresponde à diferença $\varepsilon_B = \varepsilon_c - \varepsilon_0$. Esta diferença permanece relativamente inalterada em $\varepsilon_B \simeq 0.15E_X$ quando o número de elétrons é variado. A estrutura presente nas curvas dos níveis de energia é devida à efeitos de preenchimento de camadas[77].

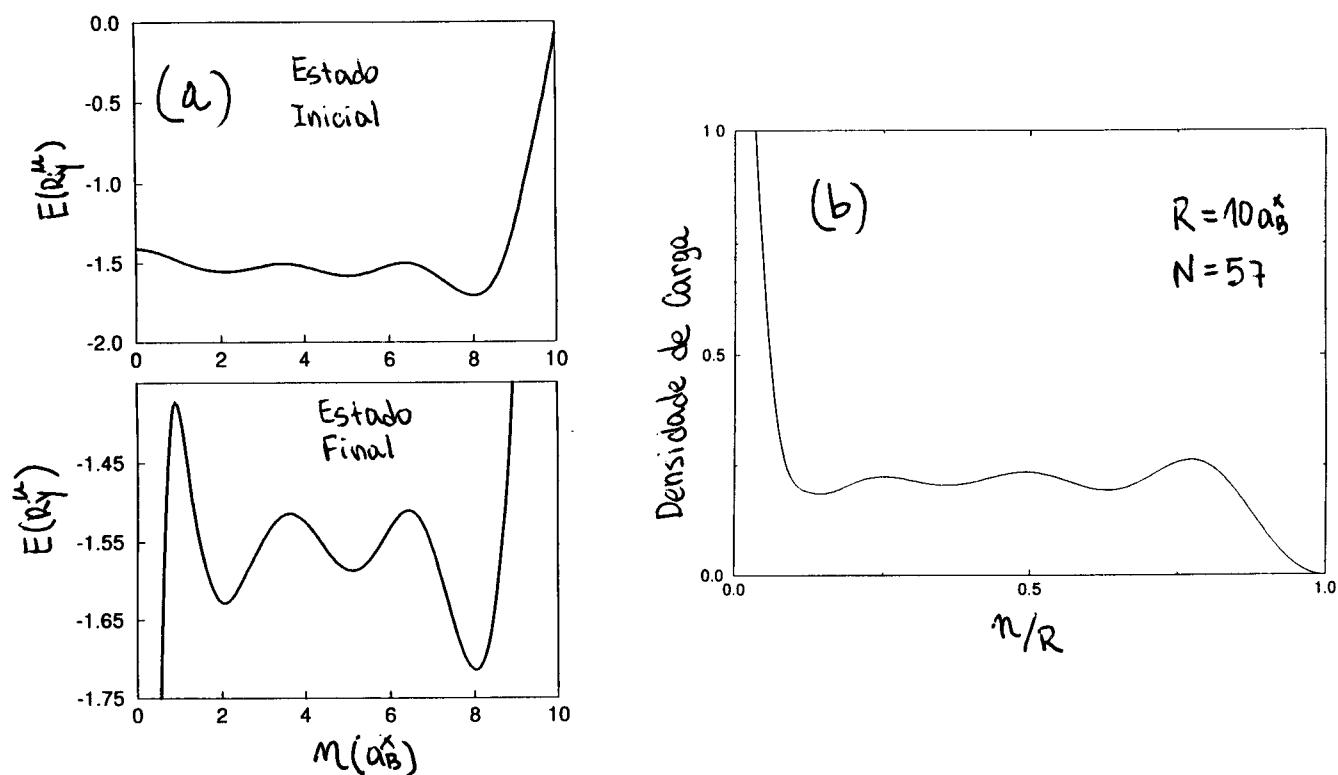


Figura 6.3: (a) Potencial efetivo para o estado inicial e o estado final na aproximação de densidade local para um disco de raio $R = 10a_B^*$ e $N = 57$ elétrons. (b) Densidade eletrônica radial no estado final.

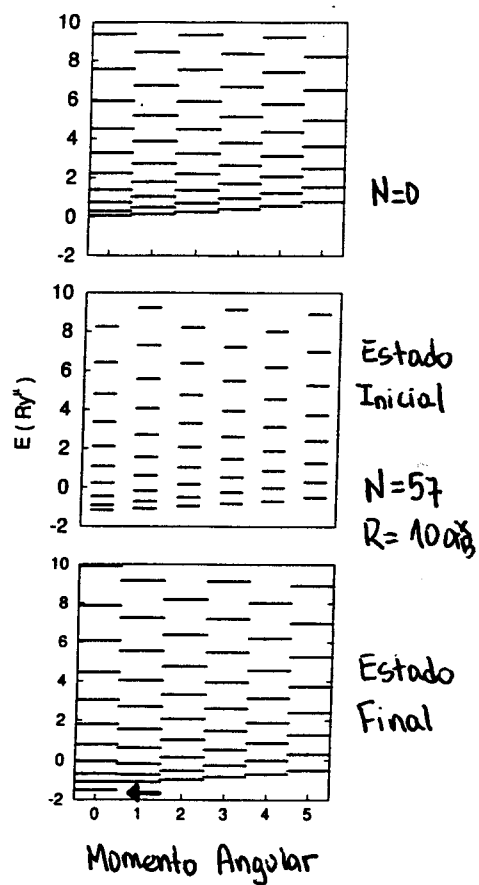


Figura 6.4: Espectro de energia do estado inicial e final para $N = 57$ elétrons e $R = 10a_B$

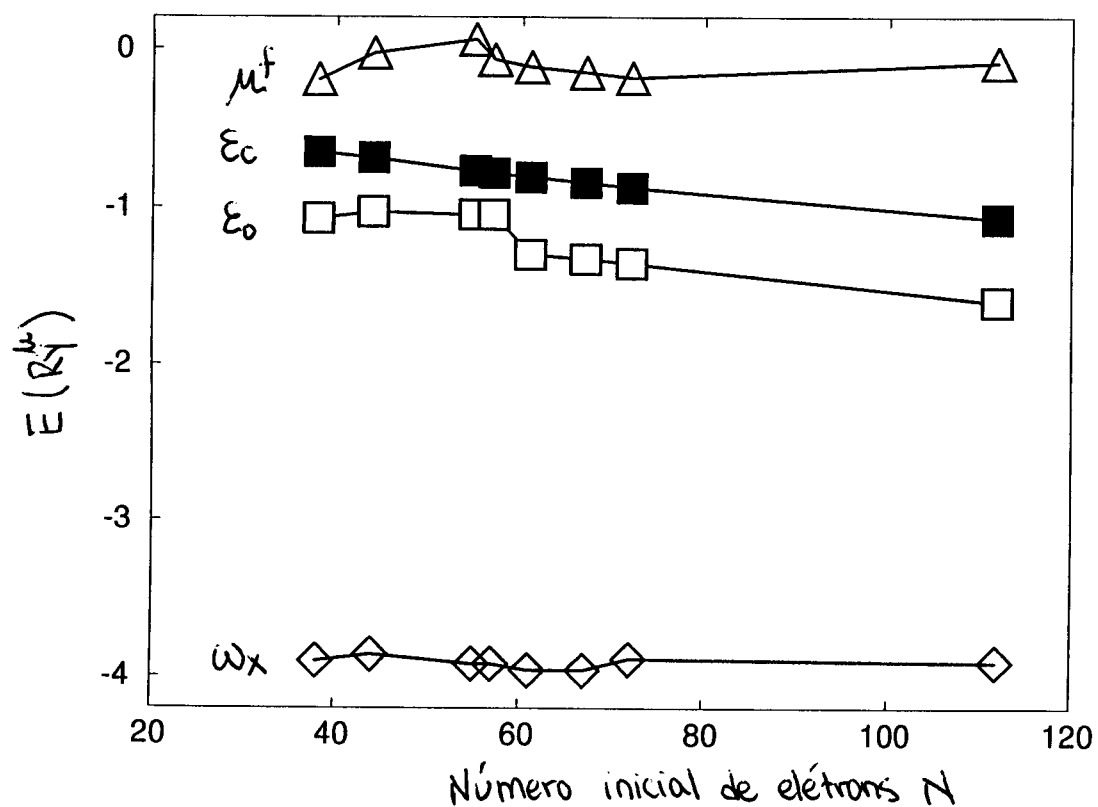


Figura 6.5: Estados eletrônicos e limiar de absorção em função do número de elétrons no estado inicial para um disco de $R = 20a_B^X$.

Concluimos esta parte com um sumário dos resultados obtidos. Modelamos o estado fundamental de um gás de elétrons 2D antes e depois da absorção de um fóton. O problema de muitos-elétrons foi reduzido a um problema efetivo de uma partícula dentro das aproximações de Hartree e de densidade local. A existência de um estado ligado na presença do gás de elétrons 2D é consequência do potencial do buraco criado opticamente. Este estado ligado é duplamente ocupado e isto confere características especiais ao potencial efetivo do buraco na presença do gás.

6.3 Absorção óptica

Uma vez obtidos os estados eletrônicos iniciais e finais estamos em condições de calcular a absorção óptica do gás de elétrons 2D. Dividimos o problema da absorção óptica em duas etapas: i) o limiar de absorção, e ii) o cálculo da forma de linha do espectro de absorção. A seguir discutimos em detalhe estes dois problemas.

6.3.1 Limiar de absorção

O limiar de absorção óptica ω_X é definido como a energia necessária para adicionar um par elétron-buraco no gás de elétron bidimensional. Esta energia é igual à diferença entre a energia total do estado fundamental do gás de elétrons na ausência do par elétron-buraco, e a energia total do estado fundamental do gás de elétrons no estado final, após a absorção óptica.

Dentro da aproximação de densidade local, a energia total do estado fundamental antes da absorção óptica é calculada como:

$$\mathcal{E}_0 = \sum_{i < i_F^0} \varepsilon_i^0 - \frac{1}{2} \int d\vec{\eta} n^0(\eta) \int d\vec{\eta}' \frac{n^0(\eta')}{|\vec{\eta} - \vec{\eta}'|} + \int d\vec{\eta} n^0(\eta) [E_{xc}(n^0, \zeta) - \mu_{xc}(n^0, \zeta)] \quad (6.18)$$

O primeiro termo é a soma da energia dos orbitais de Kohn-Sham ocupados pelos elétrons. Estas energias são calculadas autoconsistentemente da forma discutida na Seção anterior. O segundo termo é incluído para eliminar o excesso de energia Coulombiana contida no cálculo do primeiro termo. O terceiro termo resulta da troca e correlação eletrônica. Este termo é aproximado e formalmente surge da aproximação de densidade local[45]. Notar que no cálculo da energia total o efeito do potencial da carga positiva(doadores ionizados) presente no problema é incluído através das energias dos orbitais de Kohn-Sham.

A energia total do estado fundamental no estado final se calcula de forma semelhante. A única diferença procede da presença do buraco fotocriado. Este buraco interage com o conjunto de cargas positivas que neutralizam a carga do gás de elétrons. Esta interação deve ser incluída no cálculo. Assim, a energia total dos $N + 1$ elétrons mais o buraco fotocriado é:

$$\mathcal{E}_f = \sum_{i < i_F} \varepsilon_i - \frac{1}{2} \int d\vec{\eta} n(\eta) \int d\vec{\eta}' \frac{n(\eta')}{|\vec{\eta} - \vec{\eta}'|} + \int d\vec{\eta} n(\eta) [E_{xc}(n, \zeta) - \mu_{xc}(n, \zeta)] + V_d(0) \quad (6.19)$$

A contribuição eletrônica à energia total é a mesma que no estado inicial, com a diferença que a energia ε_i dos orbitais de Kohn-Sham é calculada na presença do buraco(estado final). O termo $V_d(0)$ inclui o efeito da interação do buraco de valência com as cargas positivas de fundo.

O limiar de absorção é calculado como $\omega_X = \mathcal{E}_f - E_0$. Neste trabalho nos concentramos no cálculo do limiar de absorção desconsiderando o efeito da interação V_{pp} . Assim, o efeito da mobilidade do buraco entra no problema através da massa reduzida das partículas. O limiar de absorção em função do número inicial N de elétrons é mostrado na Figura 6.5. Claramente, a variação de ω_X em função de N é pequena.

Adicionalmente, estudamos o limiar de absorção em duas situações qualitativamente diferentes. O gás de elétrons sem polarização de spin $\zeta = 0$, e totalmente polarizado $\zeta = 1$. Não discutiremos em detalhe os estados eletrônicos no caso totalmente polarizado. Somente diremos que existe um estado ligado na presença do gás devido ao potencial do buraco de valência, cuja energia de ligação é maior que a do estado ligado no caso $\zeta = 0$. Obviamente, pela polarização de spin, o estado ligado esta ocupado por um único elétron. A Figura 6.6 mostra o limiar de absorção em função do número de elétrons no estado inicial em um disco de raio $R = 10a_B^X$. Claramente a diferença qualitativa entre os dois tipos de sistemas eletrônicos é refletido no limiar de absorção. Enquanto no sistema não polarizado ω_X varia fracamente com o número de elétrons, esta variação é aproximadamente linear no caso completamente polarizado. Atualmente não entendemos o origem deste comportamento.

6.3.2 Forma de linha

Procedemos agora ao cálculo da forma de linha do espectro de absorção usando o modelo de Combescot e Nozières. Neste formalismo os elétrons são considerados não interagentes e o buraco fotocriado assume-se localizado(massa infinita). No estudo da absorção óptica

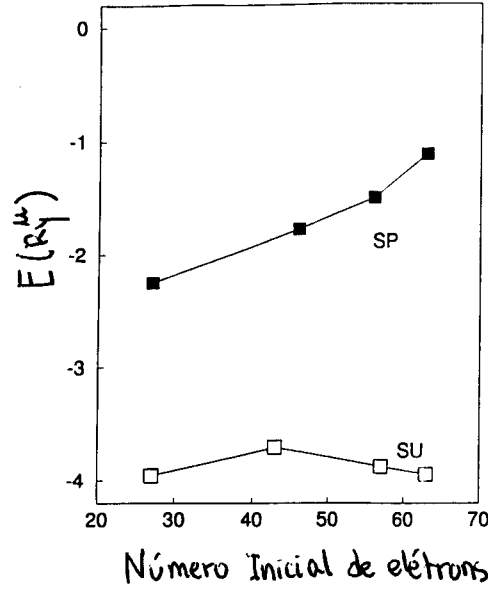


Figura 6.6: Limiar de absorção em função do número de elétrons no estado inicial em duas situações qualitativamente diferente: i) polarização de spin nula(SU) e polarização de spin igual a 1(SP).

de semicondutores, este modelo foi estendido para incluir aproximadamente o efeito da mobilidade do buraco por Uenoyama e Sham[63]. Hawrylak implementou o modelo de CN no estudo da evolução do espectro de absorção de excitons à singularidade no nível de Fermi, incluindo os efeitos de recuo do buraco de valência[65]. O mesmo modelo de CN foi utilizado por Brum e Hawylak na Ref. [68] para estudar o efeito da interação elétron-elétron dentro da aproximação de Hartree. Nosso trabalho consiste em calcular a forma de linha da absorção usando o modelo de CN e levando em conta a interação elétron-elétron e a massa móvel do buraco fotocriado.

A absorção óptica pode ser calculada como a transformada de Fourier da função de correlação[65]:

$$A(t) = e^{i\mathcal{E}_0 t} \sum_{\vec{q}, \vec{q}'} M_{\vec{q}} M_{\vec{q}'}^* \langle \Psi_{\vec{q}'} | e^{-i\mathcal{H}_f t} \mathcal{S}(t) | \Psi_{\vec{q}} \rangle \quad (6.20)$$

A inclusão do operador $\mathcal{S}(t)$ é consequência da massa finita do buraco de valência. Este operador $\mathcal{S}(t) = e^{it\mathcal{H}_f} e^{-it(\mathcal{H}_f + V_{pp})}$ satisfaz a seguinte equação de movimento:

$$\partial_t \mathcal{S}(t) = -i e^{it\mathcal{H}_f} V_{pp} e^{-it\mathcal{H}_f} \mathcal{S}(t) \quad (6.21)$$

Caso 1: Buraco de valência com massa infinita

Como discutido anteriormente, existe uma solução exata para o problema da absorção óptica quando o buraco é localizado (massa infinita). Neste caso a interação V_{pp} desaparece do Hamiltoniano do estado final e o operador $\mathcal{S}(t)$ se reduz à identidade.

Numericamente, para calcular $A(t)$ consideramos somente estados de partícula simples com momento angular $m = 0$ (estados- s), obtidos autoconsistentemente como discutido anteriormente. A função de correlação é calculada em um intervalo de tempo finito $[0, T_{Max}]$. O espectro de absorção é calculado através da expressão:

$$A(\omega) = 2\mathcal{R}e \int_0^{T_{Max}} dt A_{E_a}(t) e^{i(\omega_+ - E_a)t} \quad (6.22)$$

onde $A_{E_a}(t) = e^{iE_a t} A(t)$, e $\omega_+ = \omega + i\gamma$ é uma frequência complexa que contém um pequeno parâmetro de amortecimento γ , incluído para garantir a convergência do cálculo. A energia $E_a = \sum_{i < i_F} \varepsilon_i$ é a soma das energias dos orbitais s . Sua ‘extração’ da energia total em $A(t)$ ajuda a amortecer as fortes oscilações presentes na função de correlação. O valor de T_{Max} encontra-se em torno de $25(Ry^\mu)^{-1}$. O parâmetro de amortecimento varia fortemente com o tamanho do disco. Para um disco de $R = 10a_B^\mu$ usamos $\gamma = 0.4$ enquanto que para um disco de $R = 20a_B^\mu$ usamos $\gamma = 0.1$.

Inicialmente estudamos o efeito do tamanho do disco no espectro de absorção para algumas concentrações específicas. Antes de mostrar nossos resultados mencionaremos os resultados obtidos por Hawrylak para a absorção óptica de um gás de elétrons 2D [65]. Nesse trabalho a interação elétron-elétron é tratada dentro da aproximação RPA. A interação Coulombiana direta e troca assim como os efeitos de correlação eletrônica são incluídos no cálculo através da renormalização da energia de partícula livre do gás. Os estados finais, na presença do buraco de valência, são calculados resolvendo uma equação de Wannier com o potencial de buraco V_{eh} . Os espectros de absorção calculados possuem dois picos bem definidos. O primeiro deles no limiar de absorção ω_X e o segundo deslocado em energia uma quantidade igual à $\Delta = \mu + \varepsilon_B$. Este pico secundário tem origem na existência de um estado ligado originado por V_{eh} . Como discutido anteriormente, este pico secundário deve-se à resposta do gás de elétrons à ionização deste estado. Quando a blindagem da interação Coulombiana é levada em conta de uma forma mais completa é esperado que este pico secundário seja suavizado pelo espalhamento Coulombiano entre elétrons.

Nós calculamos os espectros de absorção em dois níveis diferentes de aproximação: i) Hartree e ii) Hartree mais efeitos de troca e correlação. À luz dos resultados obtidos para os

estados eletrônicos finais esperamos três picos(singularidades) no espectro de absorção: i) ω_X =singularidade no nível de Fermi, ii) ω_1 =remoção de um dos elétrons no estado ligado, e iii) ω_2 =ionização do estado ligado. Recentemente, os picos correspondentes a ω_X e ω_1 têm sido observados em amostras de poços quânticos dopados tipo-*n* de compostos III-V e II-VI. Finalmente, os espectros obtidos para $R = 10a_B^X$ na aproximação de Hartree reproduzem aqueles calculados por Brum e Hawrylak no mesmo nível de aproximação. Um pico principal largo no limiar de absorção ω_X sem a presença de picos secundários. A presença do disco produz uma forte discretização do contínuo de estados o que obriga a introduzir um alargamento γ dos níveis de quasi-partícula muito grande. Por outra parte, o número de estados *s* ocupados é muito pequeno. A Figura 6.7 mostra os resultados obtidos na aproximação de densidade local para diferentes raios do disco e diferente número de elétrons no estado inicial. A escala de energia tem a origem no limiar de absorção. Após a inclusão de efeitos de troca e correlação, para o mesmo número de elétrons e o mesmo tamanho do disco, ainda não se observam claramente picos secundários no espectro.

O aumento do tamanho do disco produz a diminuição dos efeitos de confinamento. Consequentemente, o valor de γ utilizado no cálculo diminui. Também o número de estados *s* que fazem parte do mar de Fermi aumenta. A Figura 6.7a e 6.7b mostram os espectros de absorção para $(N = 57, R = 10a_B^X)$ e $(N = 57, R = 15a_B)$, respectivamente. No disco de $R = 15a_B^X$ o espectro de absorção exibe um ombro(indicado com uma seta) acompanhando o pico principal. Embora fraca esta estrutura corresponde ao pico secundário ω_1 .

Aumentando disco para $R = 20a_B^X$ o espectro obtido para $N = 57$ elétrons na aproximação de densidade local a Figura 6.7c mostra claramente a presença de um pico secundário. Este pico secundário está presente em todos os espectros calculados entre $N = 30$ e $N = 110$ como mostrado na Figura 6.8. Este resultado está de acordo com os resultados de Hawrylak. Nosso cálculo inclui autoconsistentemente a interação Coulombiana: direta+troca+correlação, mesmo assim a singularidade associada à remoção de um dos elétrons do estado ligado está presente no espectro. Ou seja, a singularidade não é suavizada totalmente pela blindagem. A diminuição da intensidade deste pico secundário com o aumento do número de elétrons (densidade do gás) é um efeito da interação Coulombiana. A separação em energia entre o pico principal e o pico secundário está graficada no painel interno da Figura 6.8. Vemos que a separação entre eles é bem descrita pela relação $\omega_X - \omega_1 = \mu + \varepsilon_B$, válida na ausência de interação elétron-elétron, para $N \geq 60$ e falha para $N < 60$.

Como conclusão, vemos que o efeito de tamanho introduzido pelo disco no espectro de absorção é importante. No caso em que $R = 20a_B^X$ podemos considerar que a física do problema

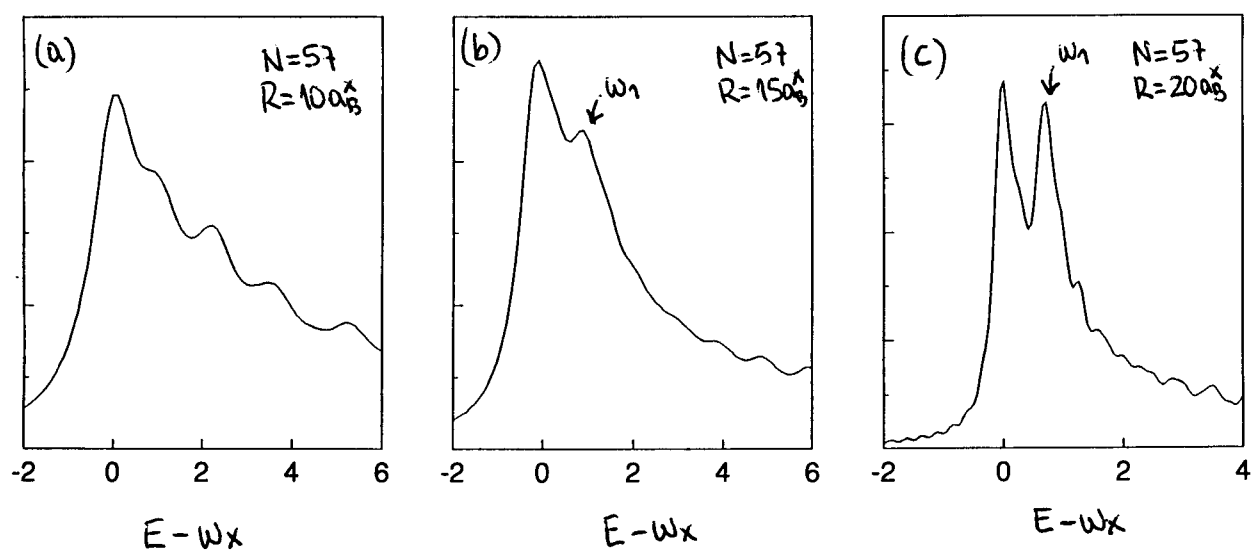


Figura 6.7: Espectros de absorção óptica na aproximação de densidade local para diferentes tamanhos do disco conservando fixo o número de elétrons.

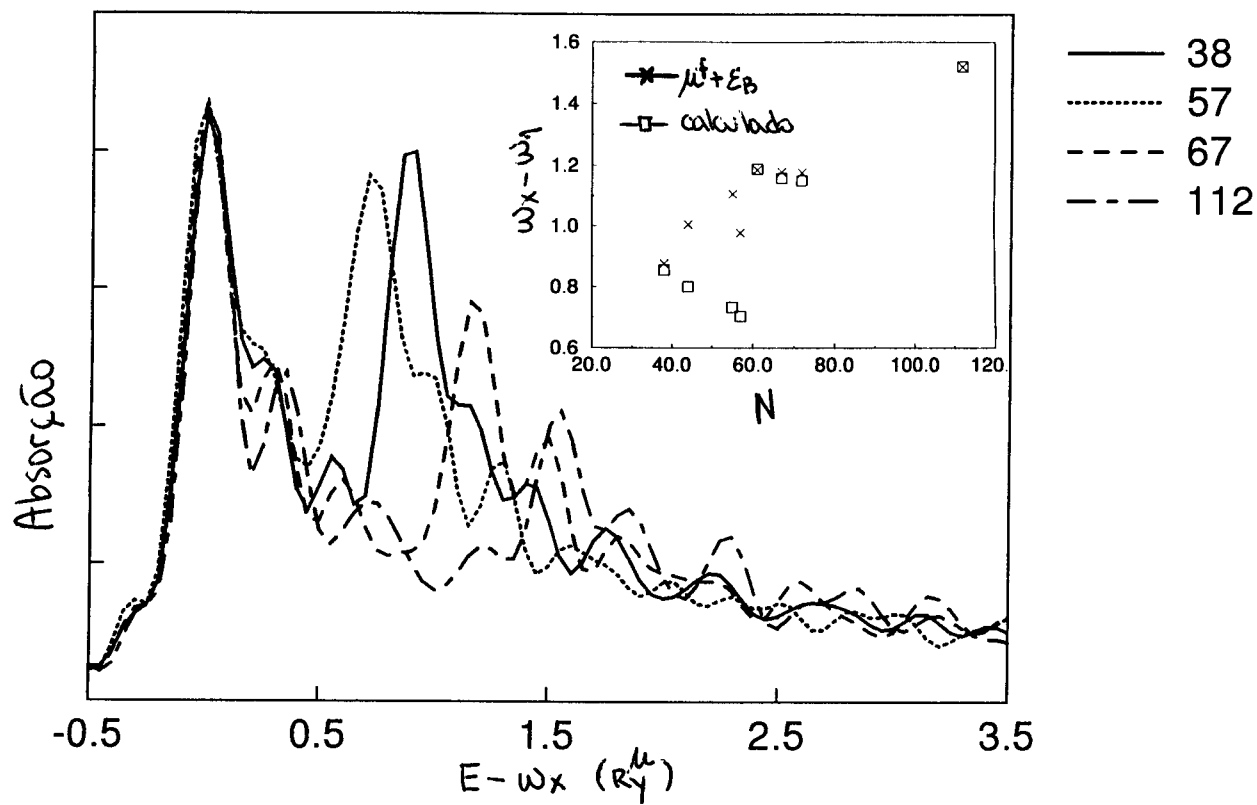


Figura 6.8: Espectro de absorção em função do número inicial N de elétrons no disco. Painei interno: separação dos picos no espectro de absorção em função de N .

é descrita corretamente. Assim, observamos que o nível de aproximação no tratamento da interação Coulombiana altera sensivelmente o espectro de absorção. A diferença em energia entre a singularidade em ω_X e em ω_1 é bem descrita pela relação $\Delta = \mu + \varepsilon_B$ introduzida na aproximação de partícula independente para $N \geq 60$. Resultados experimentais em amostras de GaAs/GaAlAs dopadas com baixas concentrações de elétrons não obedecem esta relação para Δ uma vez que o espectro é dominado pela absorção triônica(exciton+elétron).

Caso 2: Inclusão do recuo do buraco

Como discutimos anteriormente, dentro do modelo de Combescot-Nozières a inclusão dos efeitos do recuo do buraco no espectro de absorção óptica de gases de elétrons 2D requer a inclusão do operador de evolução temporal do buraco $\mathcal{S}(t)$ na função de correlação $A(t)$:

$$A(t) = \sum_{q,q'} M_q \langle \Psi^{q'} | e^{-i\mathcal{H}_f t} \mathcal{S}(t) | \Psi^q \rangle M_q e^{i\varepsilon^0 t} \quad (6.23)$$

A primeira tentativa de inclusão do recuo do buraco consistiu no cálculo da função de correlação da Eq. 6.23 no subespaço de excitações de um par elétron-buraco do sistema de $N + 1$ elétrons. O tratamento da interação Coulombiana desconsidera os efeitos de troca e correlação. O tamanho do disco utilizado no cálculo foi $R = 10a_B^X$. Os detalhes do cálculo encontram-se no Apêndice deste Capítulo. Por clareza, na Figura 6.9 reproduzimos o resultado obtido para a absorção óptica considerando a mobilidade do buraco fotocriado.

Obviamente, os resultados não são conclusivos. Como mostramos na Seção anterior os efeitos de tamanho introduzidos pelo disco mascaram a física do problema. Mesmo os efeitos robustos são modificados pela presença do disco. Adicionalmente, os efeitos de troca e correlação são cruciais para descrever a física do problema e neste caso foram completamente desprezados. Finalmente, a restrição do subespaço de estados intermediários $|\Psi_\alpha\rangle$ utilizados no cálculo é muito dramática. Embora esta aproximação tenha sido utilizada na teoria de Hawrylak no nosso caso parece ser insuficiente para elucidar os efeitos da massa móvel no espectro de absorção.

Como discutimos no problema do X^- bidimensional, grande parte do efeito da mobilidade do buraco encontra-se na renormalização da energia imposta pela massa reduzida do exciton, enquanto que a interação V_{pp} tem um efeito menor. Obviamente, no caso do gás de elétrons 2D interagentes o efeito do termo V_{pp} deve ser mais importante. Isto é esperado porque, como já mostramos no caso do X^- e Brum e Hawrylak sugeriram para o gás de elétrons 2D, a mobilidade do buraco, através da interação V_{pp} modifica os efeitos de troca e correlação

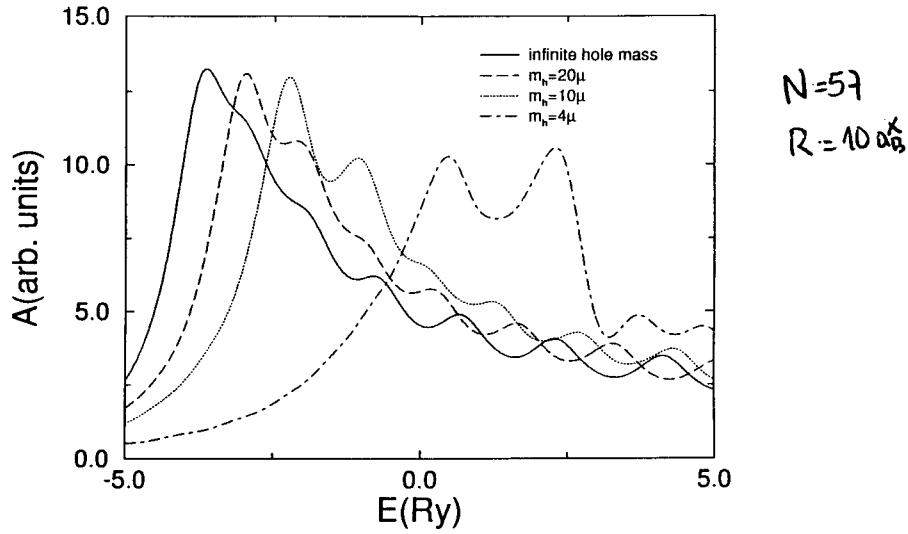


Figura 6.9: Espectros de absorção óptica considerando os efeitos da mobilidade do buraco criado ópticamente.

eletrônica que dependem fortemente com a densidade eletrônica. Assim, dois primeiros resultados podem ser extraídos a partir desta discussão. Na aproximação de Hartree o efeito da massa móvel é embutido somente na renormalização da escala de energia através da massa reduzida do exciton. Por outro lado, na aproximação de densidade local, que inclui efeitos de troca e correlação, as mudanças no espectro de absorção introduzidas pela massa reduzida são um efeito de ordem zero na mobilidade do buraco. A Figura 6.10 mostra o efeito da massa reduzida no espectro de absorção para $N = 57$ elétrons e raio de $20a_B^X$, na aproximação de de densidade local.

Dois efeitos decorrentes da renormalização da energia são visíveis: i) O deslocamento do limiar de absorção e do pico secundário, e ii) o alargamento dos picos em ω_X e ω_1 . O pico secundário é mais sensível ao efeito da mobilidade do buraco.

Como conclusão podemos dizer que a inclusão da mobilidade do buraco no espectro de absorção é uma tarefa computacional muito grande. Dentro do nosso modelo e nesta fase do trabalho somente podemos afirmar que o recuo do buraco introduz um alargamento na forma de linha e um deslocamento para maiores energias. De nossos resultados especulamos que o efeito da mobilidade do buraco seja mais dramático no pico secundário que no limiar de absorção.

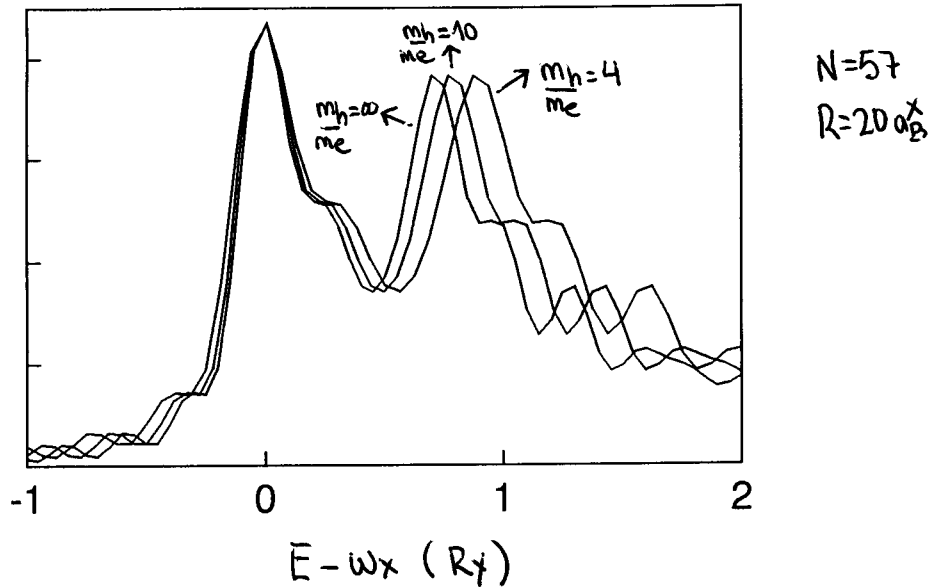


Figura 6.10: Espectros de absorção óptica considerando os efeitos da mobilidade do buraco em ordem zero na interação V_{pp} .

6.4 Conclusões

Neste trabalho estendemos o modelo proposto por Brum e Hawrylak para o cálculo dos estados eletrônicos de um gás de elétrons bidimensional em um material semiconductor. Este modelo constitui a base para o cálculo do espectro de absorção óptica do gás e o estudo da singularidade no nível de Fermi na presença de um buraco de valência móvel. Embora tenhamos estudado o efeito da interação Coulombiana no espectro de absorção ainda não foi resolvido o problema do recuo do buraco. Nossos cálculos preliminares nesta direção não são conclusivos e somente permitem especular sobre os possíveis efeitos da mobilidade do buraco no espectro de absorção óptica. Um resultado imediato que podemos obter com nosso modelo é o alargamento das singularidades presentes no espectro de absorção. Esperamos que em um nível superior de aproximação o efeito da mobilidade do buraco seja suavizar estas singularidades.

The effect of the mobile photocreated-valence hole on the optical absorption of semiconductor quantum wells in the presence of a two-dimensional electron gas

Gustavo A. Narvaez, José A. Brum

Instituto de Física "Gleb Wataghin", DESCM-UNICAMP, Campinas 13083-970, São Paulo, Brazil

Pawel Hawrylak

Institute for Microstructural Sciences, National Research Council of Canada, Ottawa K1A 0R6, Canada

In this work we investigate the optical absorption spectra of semiconductor quantum wells (QWs) in the presence of a two-dimensional electron gas (2DEG). The calculations are performed in a relative coordinates frame. The effects of the finite hole mass are replaced by a momentum pair-wise interaction which is treated perturbatively. These effects strongly modify the absorption spectra.

Modulation-doped semiconductor quantum wells with a two-dimensional electron gas with varying carrier concentration have provided a natural frame for the study of the effects of many-body interactions in the optical transitions. The observation by Skolnick et al.¹ of the enhancement of the interband emission in the vicinity of the Fermi level of a 2DEG has lead to considerable theoretical and experimental work. Despite many efforts, the effects of finite hole mass and electron-electron interactions are far from understood. Calculations of the optical spectra of such systems have been performed for the photocreated-holes either localized (infinite mass approximation) or mobile (finite mass)². For localized holes the results show the evolution of absorption from excitonic to Fermi edge singularities. In the finite-photocreated-hole-mass case the singularities seem to broaden until they completely disappear for hole/electron mass ratio typical of GaAs². Recent experimental data, both in absorption³ and luminescence⁴, however, show evidence of Fermi edge singularity in high mobility GaAs/AlGaAs modulation doped quantum wells where the photocreated-hole is expected to be mobile. These results further motivate the investigation of the effects of a mobile hole in the optical spectra.

We describe the system within special coordinates in the final state Hamiltonian after the photon absorption:

$$\vec{\eta}_i = \vec{r}_i - \vec{r}_h ; \quad \vec{R} = \frac{1}{M} \left[\sum_{i=1}^{N+1} m_e \vec{r}_i + m_h \vec{r}_h \right] \quad (1)$$

where $\mathcal{N}$ is the number of electrons before excitation, m_e (m_h) are the effective electron (hole) mass and $M = \sum_{i=1}^{\mathcal{N}+1} m_e + m_h$ is the total mass of the system. The final Hamiltonian after the coordinate transformation reads as:

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_t &= \frac{P^2}{2M} + \left[\sum_i^{\mathcal{N}+1} \frac{p_i^2}{\mu} + \sum_{i<j}^{\mathcal{N}+1} v_{ij}^{e-e} + \sum_i^{\mathcal{N}+1} v_i^c \right] + \frac{1}{m_h} \sum_{i<j}^{\mathcal{N}+1} \vec{p}_i \cdot \vec{p}_j \\ &= \mathcal{H}_{CM} + \mathcal{H}_f + v_{pp} \end{aligned} \quad (2)$$

where μ is the reduced mass $1/\mu = 1/m_e + 1/m_h$.

This rigorous transformation of coordinates leaves the Coulombic electron-hole interaction as a fixed scattering center, v_i^c . The effects of the valence-photocreated-hole kinetics are replaced by pairwise momentum dependent interactions inversely proportional to the valence hole mass. These interactions are treated perturbatively. The finite mass correction is responsible for the blue-shift in the optical absorption⁵.

The absorption spectrum is obtained by calculating the Fourier transform of the time dependent absorption^{2,6}, which reads as²:

$$A(t) = \sum_{q, q' > q_F} M_{q'} \langle \Psi_{q'}^i(\mathcal{N}+1) | \exp(-i\mathcal{H}_f t) \mathcal{S}(t) | \Psi_q^i(\mathcal{N}+1) \rangle M_q \quad (3)$$

where the states $|\Psi_q^i\rangle$ are Slater determinants constructed from the initial set of single-particle states before the absorption. These states have the Fermi sea completely filled and an electron optically added to a single particle state ϕ_q . M_q is the single particle optical matrix elements which we assume as 1.

The operator $\mathcal{S}(t) = e^{i\mathcal{H}_f t} e^{-i(\mathcal{H}_f + v_{pp})t}$ describes the propagation of the finite valence hole mass in the relative-particles system, that is, the pairwise momentum dependent interaction. It is described by the equation of motion:

$$\frac{\partial}{\partial t} \mathcal{S}(t) = e^{i\mathcal{H}_f t} v_{pp} e^{-i\mathcal{H}_f t} \mathcal{S}(t) \quad (4)$$

with $\mathcal{S}(0)=1$. The main difficulty in treating the effect of the finite valence hole mass is caused by the momentum dependent pairwise interaction, v_{pp} , which does not commute with the rest of the Hamiltonian, $\mathcal{H}_f$. To solve $\mathcal{S}(t)$ we introduce a complete set of $\mathcal{N} + 1$ relative particle states $|\Psi_\alpha\rangle$ which are the solution of the initial many-body Hamiltonian:

$$\frac{\partial}{\partial t} S_{\alpha}^{q'}(t) = \sum_{\beta} H_{\alpha}^{\beta}(t) S_{\beta}^{q'}(t) \quad (5)$$

$$H_{\alpha}^{\beta}(t) = \sum_{\gamma\delta} \mathcal{F}_{\alpha}^{\gamma}(-t) v_{\gamma\delta} \mathcal{F}_{\delta}^{\beta}(t) \quad (6)$$

The absorption spectra reads now as:

$$A(t) = \sum_{q,q' > q_F} M_q M_{q'} \sum_{\alpha} \mathcal{F}_q^{\alpha}(t) S_{\alpha}^{q'}(t) \quad (7)$$

$\mathcal{F}_q^{\alpha}(t) (= \langle \Psi_q | e^{-i\mathcal{H}_f t} | \Psi_{\alpha} \rangle)$ is responsible for the absorption spectra in the case of an infinite hole mass^{2,5}, when $S_{\alpha}^{q'}(t) (= \langle \Psi_q | \mathcal{S}(t) | \Psi_{\alpha} \rangle) = \delta_{\alpha q'}$.

We model the 2DEG by a disc in the relative coordinates with infinite barriers at $\eta = R$. The Coulombic interaction between the relative particles is solved in the Hartree approximation, screening the rigid attractive potential, $v_h(\eta_i)$. To calculate the absorption spectra we limited the many-particle basis that intermediate the evolution of the propagator $\mathcal{S}(t)$ to single excitations of the $(\mathcal{N} + 1)$ relative particle above the Fermi level. The momentum dependent pairwise interaction matrix is, then:

$$\begin{aligned} v_{\gamma\delta} = \langle \Psi_{\gamma} | v_{pp} | \Psi_{\delta} \rangle &= \frac{-2Ry}{m_h} \sum_{k_0, k_1 < k_F} |\langle \phi_{k_0}^0 | \vec{p} | \phi_{k_1}^1 \rangle|^2 \delta_{\gamma,\delta} \\ &+ \frac{-2Ry}{m_h} \sum_{k_1 < k_F} \langle \phi_{\gamma}^0 | \vec{p} | \phi_{k_1}^1 \rangle * \langle \phi_{k_1}^{-1} | \vec{p} | \phi_{\delta}^0 \rangle \end{aligned} \quad (8)$$

where ϕ_i^m are the i_{th} state of angular momentum m of the single-particle-initial states in the disc. Figure 1 shows the absorption spectra for infinite hole mass and several values of finite hole mass for a disc with $R = 10$ Bohr radius and 58 electrons in the disc before excitation. The oscillations in the spectra are a consequence of the finite size of the disc. The energy shift is due to the mobile hole and has been discussed before⁵. For the infinite hole mass case we observe an enhancement at the threshold of the absorption. As the hole mass decreases, this peak is modified. It evolves into a large peak while the higher energy transitions are weaken. These features are different from previous results obtained from the effects of the mobile hole in the 2DEG absorption spectra^{2,7} when the smearing out of the absorption enhancement

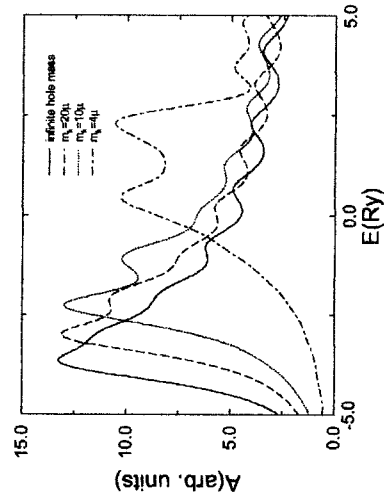


Figure 1: Optical absorption spectra for different photocreated-valence hole masses for a two-dimensional disc of radius $R = 10$ Bohr radius and 58 electron in the disc before excitation.

was observed. The effects of the size of the disc which emulates the 2DEG may be influencing the effects of the mobile hole in the absorption. Further work is necessary before a comparison between the different approaches can be made. In particular, it will be interesting to extend the basis introduced to describe the evolution of the operator $\mathcal{S}(t)$.

We acknowledge E. Miranda for fruitful discussions. This work was partially supported by CNPq and FAPESP, Brazil. One of us (GAN) is a doctoral fellow of FAPESP, under contract 97/03312-9.

References

1. M.S. Skolnick, J.M. Rorison, K.J. Nash, D.J. Mowbray, P.R. Tapster, S.J. Bass, and A.D. Pitt, Phys. Rev. Lett. **58** 2130 (1987).
2. P. Hawrylak, Phys. Rev. B **44**, 3821 (1991).
3. S.A. Brown, J.F. Young, J.A. Brum, P. Hawrylak, and Z. Wasilewski, Phys. Rev. B **54** R11082 (1996).
4. S.A. Brown, J.F. Young, Z. Wasilewski, and P.T. Coleridge, Phys. Rev. B **56**, 3937 (1997).
5. J.A. Brum and P. Hawrylak, Comments Cond. Mat. Phys. **18**, 135 (1997).
6. M. Combescot and P. Nozières, Le Journal de Phys. **32**, 913 (1971).
7. T. Uenoyama and L.J. Sham, Phys. Rev. Lett. **65**, 1048 (1990).

Capítulo 7

Conclusão

Nesta tese examinamos o efeito combinado da interação Coulombiana entre portadores de carga e a mobilidade do buraco de valência no espectro de absorção e os estados eletrônicos de sistemas semicondutores de baixa dimensionalidade. Nossos resultados mostram que a absorção óptica é sensível a estes dois efeitos e que eles devem ser tratados no mesmo nível de aproximação. Embora isto acontece naturalmente quando o problema é tratado com técnicas de diagonalização exata, no caso de sistemas zero-dimensionais, não é verdade no caso de sistemas estendidos, onde o número de elétrons envolvido no cálculo faz necessária a implementação de técnicas de campo médio.

Nossa investigação em pontos quânticos(sistemas zero-dimensionais) semicondutores auto-organizados mostrou que o espectro de absorção é altamente complexo devido às interações entre portadores: elétron-elétron e elétron-buraco, somado à mobilidade do buraco. A estrutura eletrônica particular destes pontos quânticos é responsável pelo forma que o efeito das interações e o recuo do buraco se acoplam. Os resultados obtidos mostram que o exciton na presença de elétrons ocupando o ponto quântico deixa de ser uma partícula bem definida.

Como nos pontos quânticos, esperamos que em sistemas semicondutores estendidos a interação eletrônica e o recuo do buraco de valência tenham um efeito combinado. Por esta razão estudamos sistemas semicondutores bidimensionais(2D). Nosso trabalho nesta área visou entender o efeito da interação elétron-elétron e a mobilidade do buraco na absorção óptica.

Como discutimos nesta tese, a absorção de um fóton cria um elétron na banda de condução e um buraco na banda de valência. Na presença das interações eletrônicas esta excitação é descrita em termos de uma partícula neutra, composta pelo elétron e buraco, interagindo com um centro espalhador Coulombiano. Esta partícula é o **exciton**. Logo após a introdução do

conceito de exciton no processo de absorção em semicondutores foi mostrado que é possível ligar um elétron adicional neste complexo elétron-buraco. Assim, o exciton dá origem a um trión de carga negativa. A energia de ligação do elétron adicional é pequena comparada com a energia de ligação(estado fundamental) do exciton. Em sistemas semicondutores 2D também é possível formar o exciton carregado negativamente. Este sistema tem sido intensamente observado em medidas de absorção óptica em poços quânticos dopados com elétrons. O trión negativo 2D constitui o primeiro, e mais simples, exemplo onde a interação elétron-elétron e a mobilidade do buraco estão presentes. Por esta razão estudamos o estado eletrônico fundamental deste sistema. Nossos resultados mostraram que a mistura dos efeitos da interação eletrônica e o recuo do buraco determina o estado fundamental do trión. Porém, o efeito da mobilidade do buraco é pequeno e a energia de ligação do complexo pode ser bem aproximada pela energia de ligação de uma impureza doadora carregada negativamente onde a massa dos elétrons na impureza é trocada pela massa reduzida do exciton.

Também estudamos o problema da singularidade no nível de Fermi em sistemas semicondutores 2D. Este problema é o análogo à singularidade no limiar de absorção de raios-X em metais. Existem certas diferenças entre os dois problemas que fazem do caso semicondutor 2D um problema muito mais complexo. As duas diferenças mais marcantes são a mobilidade do buraco de valência criado opticamente, e a escala típica da interação eletrônica que é comparável à energia de Fermi nestes sistemas. Outro fato importante é que em duas dimensões qualquer potencial atrativo, como o do buraco fotocriado, cria um estado ligado mesmo na presença de um gás de elétrons. Com isto, em semicondutores 2D o papel do trión carregado, discutido nesta tese, é crucial na determinação do espectro de absorção. Isto foi recentemente confirmado experimentalmente. Os resultados de nossa investigação não estão completos. Embora tenhamos entendido alguns aspectos da interação elétron-elétron, o efeito da mobilidade do buraco ainda representa um problema em aberto. Nossos resultados nesta direção não são conclusivos e ainda devem ser estudados em outros níveis de aproximação mais elaborados. A principal limitação é a impossibilidade de incluir um grande número de estados intermediários, de muitas partículas, que determinam a absorção óptica.

Existe um grande número de problemas a ser ainda desenvolvidos em direção ao entendimento dos efeitos de muitos-corpos na absorção óptica de semicondutores de baixa dimensionalidade. Por exemplo: inclusão da largura finita do poço quântico no cálculo da absorção e, conseqüentemente, a inclusão da complexidade da banda de valência. Estes dois aspectos do problema foram completamente desprezados ao longo de nosso trabalho. Também é preciso incluir os efeitos originados na polarização de spin do elétron foto injetado, quando for pre-

ciso. Outro problema interessante que ainda deve ser resolvido é o cálculo da absorção óptica em ponto-quânticos no caso em que a dopagem eletrônica é alta. Neste caso a incorporação dos estados estendidos, provenientes da *wetting layer*, é necessária.

Bibliografia

- [1] J. Frenkel, Phys. Rev. **37**, 1276 (1931)
- [2] G. H. Wannier, Phys. Rev. **52**, 191 (1937)
- [3] G. A. Narvaez and P. Hawrylak, Phys. Rev. **B61**, 13 753 (2000)
- [4] P. Hawrylak, G. A. Narvaez, M. Bayer and A. Forchel, Phys. Rev. Lett. **85**, 389 (2000)
- [5] For reviews and references, see S. Fafard, Z. R. Wasilewski, C. Ni, D. Picard, M. Spanner, J. P. McCaffrey, and P. G. Piva, Phys. Rev. **B59**; L. Jacak, P. Hawrylak and A. Wojs, *Quantum Dots* (Springer-Verlag, Berlin, 1998); R. C. Ashoori, Nature **379**, 413 (1996); P. M. Petroff and S. P. Denbaars, Superlattices and Microstructures **15**, 15 (1994); M. Kastner, Physics Today **46**, 24 (1993); T. Chakraborty, Comments Condens. Matter Phys. **16**, 35 (1992)
- [6] D. J. Lockwood, P. Hawrylak, P. D. Wang, C. M. Sotomayor-Torres, A. Pinczuk, and B. S. Dennis, Phys. Rev. Lett. **77**, 354 (1996); MaccuciPRB1999
- [7] R. C. Ashoori, H. L. Stormer, J. S. Weiner, L. N. Pfeiffer, K. W. Baldwin, and K. W. West, Phys. Rev. Lett. **71**, 613 (1993)
- [8] S. Tarucha, D. G. Austing, T. Honda, R. J. van der Hage, and L. P. Kouwenhoven, Phys. Rev. Lett. **77**, 3613 (1996)
- [9] P. Hawrylak, C. Gould, A. Sachrajda, Y. Feng, and Z. Wasilewski, Phys. Rev. **B59**, 2801 (1999)
- [10] P. Hawrylak, Phys. Rev. Lett. **71**, 3347 (1993)
- [11] P. Hawrylak, A. Wojs and J. A. Brum, Phys. Rev. B **54**, 11397 (1996)

- [12] N. Kirstaedter, N. N. Ledenstov, M. Grundmann, D. Bimberg, V. M. Ustinov, S. S. Ruvimov, M. V. Maximov, P. S. Kop'ev, Zh. I. Alferov, U. Richter, P. Werner, U. Gösele, and J. Heydenreich, *Electron. Lett.* **30**, 1446 (1994); M. Grundmann, J. Christen, N. N. Ledenstov, J. Bohrer, D. Bimberg, P. Werner, S. S. Ruvimov, U. Richter, U. Gösele, J. Heydenreich, V. M. Ustinov, A. Yu. Egorov, A. E. Zhukov, P. S. Kop'ev, and Zh. I. Alferov, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 4043 (1995); S. Fafard, K. Hinzer, S. Raymond, M. M. Dion, J. P. McCaffrey, Y. Feng, and S. Charbonneau, *Science* **274**, 1350 (1996)
- [13] D. Heitmann, and J. P. Kotthaus, *Phys. Today* **46**, 56 (1993)
- [14] M. Eto, *Jpn. Journal Appl. Phys. Part 1* **36**, 3924 (1997)
- [15] M. Fricke, A. Lorke, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, and P. M. Petroff, *Europhys. Lett.* **36**, 197 (1996)
- [16] R. J. Warburton, C. S. Dür, K. Karrai, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, and P. M. Petroff, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5282 (1997)
- [17] B. T. Miller, W. Hansen, S. Manus, R. J. Luyken, A. Lorke, J. P. Kotthaus, S. Huant, G. Medeiros-Ribeiro, and P. M. Petroff, *Phys. Rev. B* **56**, 6764 (1997)
- [18] R. J. Warburton, B. T. Miller, C. S. Dür, C. Bödefeld, K. Karrai, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, P. M. Petroff, and S. Huant, *Phys. Rev. B* **58**, 16221 (1998)
- [19] A. Wojs, P. Hawrylak, S. Fafard, and L. Jacak, *Physica E* **2**, 603 (1998)
- [20] A. Wojs, P. Hawrylak, S. Fafard, and L. Jacak, *Phys. Rev. B* **54**, 5604 (1996)
- [21] P. Hawrylak, *Phys. Rev. B* **60**, 5797 (1999)
- [22] P. Hawrylak, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 3347 (1993)
- [23] A. Wojs and P. Hawrylak, *Phys. Rev. B* **53**, 10841 (1996)
- [24] A. Wojs and P. Hawrylak, *Phys. Rev. B* **55**, 13066 (1997)
- [25] M. Koskinen, M. Manninen, and S. M. Reinmann, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 1389 (1997)
- [26] This spin polarization attributes a ferromagnetic nature to the quantum dot, even in the absence of magnetic field.

- [27] H. Lipsanen, M. Sopanen, and J. Apohelto, Phys. Rev. **B51**, 13868 (1995)
- [28] K. H. Schmidt, G. Medeiros-Ribeiro, M. Oestreich, P. M. Petroff, and G. H. Döhler, Phys. Rev. **B54**, 11346 (1996)
- [29] S. Fafard, R. Leon, D. Leonard, J. L. Merz, and P. M. Petroff, Phys. Rev. **B52**, 5752 (1995)
- [30] S. Raymond, S. Fafard, P. J. Poole, A. Wojs, P. Hawrylak, S. Charbonneau, D. Leonard, R. Leon, P. M. Petroff, and J. L. Merz, Phys. Rev. **B54**, 11548 (1996)
- [31] G. A. Narvaez, P. Hawrylak and J. A. Brum, Physica E, (aceito para publicação)
- [32] G. Bastard, Wave mechanics applied to semiconductors, Les editions de physique, 19algo.
- [33] G. D. Mahan, *Many-particle Physics* (Plenum, New York, 1981); and references therein
- [34] M. Lampert, Phys. Rev. Lett. **1**, 450 (1958)
- [35] B. Stébé and A. Ainane, Superlattices and Microstructures **5**, 545 (1989)
- [36] K. Kheng *et al.*, Phys. Rev. Lett. **71**, 1752 (1993)
- [37] S. Glasberg, G. Finkelstein, H. Shtrikman, and I. Bar-Joseph, Phys. Rev. **B59**, R10 425 (1999)
- [38] S. Chandrasekar, Astrophys. J. **100**, 176 (1944)
- [39] N. P. Sandler and C. R. Proetto, Phys. Rev. **B46**, 7707 (1992)
- [40] *Table of Integrals Series and Products*, I. S. Gradshteyn and I. M. Ryzhik, Academic Press (1965)
- [41] D. M. Larsen and S. Y. McCann, Phys. Rev. **B45**, 3485 (1992)
- [42] D. M. Larsen and S. Y. McCann, Phys. Rev. **B46**, 3966 (1992)
- [43] D. G. Thomas and J. J. Hopfield, Phys. Rev. Lett. **7**, 316 (1961)
- [44] J. A. Brum and P. Hawrylak, Comments Cond. Mat. Phys. **18**,135 (1997)

- [45] W. Kohn and L. J. Sham, Phys. Rev. **140**, A1133 (1965)
- [46] L. J. Sham and W. Kohn, Phys. Rev. **145**, 561 (1966)
- [47] M. Combescot and P. Nozières, Le Journal de Phys. **32**, 913 (1971)
- [48] P. Hawrylak, Phys. Rev. **B44**, 3821 (1991)
- [49] M. S. Skolnick, J. M. Rorison, K. J. Nash, D. J. Mowbray, P. R. Tapster, S. J. Bass, and A. Pitt, Phys. Rev. Lett. **58**, 2130
- [50] C. Delalande, G. Bastard, J. Orgonasi, J. A. Brum, H. W. Liu, and M. Voos, Phys. Rev. Lett. **59**, 2690 (1987)
- [51] R. Cingolani, W. Stolz, and K. Ploog, Phys. Rev. **B40**, 2950 (1989)
- [52] W. Chen, M. Fritze, W. Walecki, A. V. Nurmikko, D. Ackley, J. M. Hong, and L. L. Chang, Phys. Rev. **B45**, 8464 (1992)
- [53] A. K. Geim, P. C. Main, N. La Scala Jr., L. Eaves, T. J. Foster, P. H. Beton, J. W. Sakai, F. W. Sheard, M. Henini, G. Hill, and M. A. Pate, Phys. Rev. Lett. **72**, 2061 (1994)
- [54] T. Mélin and F. Laruelle, Phys. Rev. Lett. **76**, 4219 (1996)
- [55] S. A. Brown, J. F. Young, J. A. Brum, P. Hawrylak, and Z. Wasilewski, Phys. Rev. **B54**, R11 082 (1996)
- [56] S. A. Brown, J. F. Young, Z. Wasilewski, and P. T. Coleridge, Phys. Rev. **B56**, 3937 (1997)
- [57] V. Huard, R. T. Cox, K. Saminadayar, A. Arnoult, S. Tatarenko, Phys. Rev. Lett. **84**, 187 (2000)
- [58] K. Ohtaka and Y. Tanabe, Phys. Rev. **B28**, 6833 (1983)
- [59] G. E. Bauer and T. Ando, Phys. Rev. **B31**, 8321 (1985)
- [60] A. E. Ruckenstein and S. Schmitt-Rink, Phys. Rev. **B35**, 7551 (1987)
- [61] T. Uenoyama and L. J. Sham, Phys. Rev. **B39**, 11 044 (1989)