

Efeito Polarônico em Pontos Quânticos Semicondutores Compostos de GaAs-AlGaAs

Solemar S. Oliveira & Eduardo M. Toledo

Neste trabalho apresentamos as correções na estrutura de estados (espectro de energia e densidade de estados) eletrônicos, presente em pontos quânticos semicondutores compostos de GaAs-AlGaAs, devido aos efeitos causados pela interação do elétron (efeito polarônico) com os modos de fônons Longitudinais Ópticos (LO) presentes no material. Utilizaremos o formalismo da função de Green e um método matemático não-perturbativo, baseado no procedimento de ortogonalização de Gram-Schmidt, para avaliar o espectro de energia e a densidade de estados na presença do efeito polarônico. Consideramos um sistema com apenas dois níveis eletrônicos de energia e avaliamos os efeitos da temperatura e do confinamento lateral.

Palavras-chave: *GaAs-AlGaAs, pontos quânticos, efeito polarônico.*

In this work we present the corrections in the structure of states (energy spectrum and density of states) electronic, present in compound semiconductor quantum dots of GaAs-AlGaAs due to the effects caused by the interaction of the electron (polaron effect) with the Longitudinal Optical phonon modes (LO) present in the material. We use the formalism of Green's function and a non-perturbative mathematical method, based on the procedure for Gram-Schmidt, to evaluate the energy spectrum and density of states in the presence of the polaron effect. We consider a system with only two electronic energy levels and evaluate the effects of temperature and lateral confinement.

Keywords: *GaAs-AlGaAs, quantum dots, polaron effect.*

Introdução

Atualmente a indústria tecnológica de dispositivos eletrônicos, optoeletrônicos e fotônicos, tem se beneficiado fortemente dos estudos de física básica em semicondutores. O grande volume de trabalhos científicos, com qualidade comprovada, visando entender e explicar propriedades de nanoestruturas semicondutoras, fornece condições para diversas aplicações na construção de transistores, diodo retificador e diodo emissor de luz (LED), fotodetectores (fotodiodo, fototransistor) e Laser, que são altamente aplicáveis em bens de consumo geral que se traduzem em melhoria na qualidade de vida das pessoas¹.

Os pontos quânticos são estruturas com promissora aplicação no desenvolvimento de computadores quânticos. O bit de um computador clássico, que é representado por um componente eletrônico dentro do chip, baseado em materiais semicondutores, pode ser substituído por um q-bit (quantum bit) onde os candidatos podem ser relacionados entre íons aprisionados por armadilhas eletrônicas, átomos e fóton armazenados em cavidades supercondutoras, átomos em vales da rede cristalina na matéria condensada e pontos quânticos. Nestes últimos os elétrons são confinados em dimensões nanométricas e apresentam propriedades físicas extremamente interessantes, especialmente para a produção de q-bits.

A partir da proposta teórica pioneira de Esaki e Tsu², em 1969, intencionada em criar super redes, o interesse por heteroestruturas capazes de restringir espacialmente os graus de liberdade de um gás de elétrons aumentou. As estruturas obtidas pela diminuição das dimensões dos materiais semicondutores são chamadas de estruturas de baixa dimensionalidade³. Se uma das dimensões do cristal é reduzida à escala nanométrica obtemos uma estrutura bidimensional (2D) conhecida como poço quântico. Para restrição em duas dimensões temos uma estrutura unidimensional (1D), o fio quântico. E em um caso mais extremo, zero-dimensional (0D), quanto às três dimensões do cristal são reduzidas, obtemos o ponto quântico⁴. A Figura 1 representa um esquema de estruturas de baixa dimensionalidade.

A redução das dimensões espaciais de um cristal, para valores abaixo do comprimento de onda de De Broglie para o elétron ($\approx 10\text{nm}$), modifica o seu espectro

de energia, isto é, sua densidade de estados⁵, o que ocorre no caso dos pontos quânticos. Neste caso dizemos que a partícula está confinada numa região zero dimensional. Na prática, as larguras nas direções x , y e z são extremamente pequenas. Esse confinamento altera o espectro de energia da estrutura, que deixa de ser um contínuo como no caso do tridimensional (bulk), representado na Figura 1 (a). A energia cinética da partícula passa a ter valores discretos permitidos na direção de confinamento⁶.

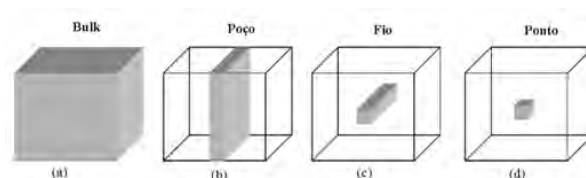


Figura 1. Esquema de estruturas de baixa dimensionalidade. (a) material Bulk (volume) (3D), (b) poço quântico (2D), (c) fio quântico (1D) e (d) ponto quântico (0D)⁴

PONTOS QUÂNTICOS: ÁTOMOS ARTIFICIAIS

Um ponto quântico é uma estrutura resultante do confinamento tridimensional⁷. Para obtermos um ponto quântico, em um material semicondutor, devemos reduzir as três dimensões deste cristal, a valores da ordem do comprimento de onda de De Broglie para elétron⁶. Se, após a obtenção do ponto quântico, reduzirmos ainda mais as suas três direções espaciais do ponto, os portadores de cargas estarão submetidos a um confinamento ainda maior, o que causará um aumento no gap de energia⁸. O regime de confinamento altera fortemente as propriedades físicas da estrutura.

No caso do ponto quântico, esse regime, torna a energia cinética dos portadores de carga (elétrons e buracos) quantizada e a banda de valência e a banda de condução, que antes eram representadas por uma faixa contínua, desdobram-se num conjunto discretos de energia semelhantes aos níveis de energia de um átomo. Por esse motivo, os pontos quânticos também são conhecidos como átomos artificiais⁹.

Entretanto, foi a partir do desenvolvimento de técnicas mais sofisticadas, para o crescimento de materiais, que o conhecimento teórico sobre nanoestruturas semicondutoras pode realmente ser aproveitado. Dentre as técnicas utilizadas para crescimento e caracterização de materiais semicondutores podemos citar: Epitaxia por

Feixe Molecular (Molecular Beam Epitaxy - MBE) e Deposição por Vapor Químico-Organometálico (Metal-Organic Chemical Vapour Deposition - MOCVD)^{6,10}.

A técnica MBE consegue produzir camadas monocristalinas, pela deposição de substância com propriedade semicondutora sobre uma base cristalina (substrato) em condições de ultra-alto vácuo. O ambiente de ultra-alto vácuo é fundamental para garantir a integridade dos feixes durante o crescimento e para minimizar os níveis de impurezas não intencionadas que podem ser incorporadas na amostra durante o processo de fabricação do filme. Esta técnica possui precisão atômica, sendo por isso uma das técnicas mais utilizadas no crescimento de heteroestruturas semicondutoras. A forma do ponto quântico e suas propriedades físicas dependem da maneira e da técnica experimental utilizada na sua fabricação^{9,10,11}.

Pode-se obter o confinamento geométrico em três dimensões através de diversas maneiras e por isso muitas estruturas são denominadas pontos quânticos. Hoje em dia, diversos modelos teóricos e técnicas experimentais são desenvolvidos para o estudo destas estruturas. Experimentalmente a forma mais utilizada para confeccionar pontos quânticos é, inicialmente, a produção de estrutura bidimensional (2D), como um poço quântico utilizando o método de epitaxia e em seguida a definição do confinamento lateral através da definição física das bordas da estrutura. Após o crescimento, utiliza-se a técnica de litografia de alta resolução para fazer um desenho geométrico para as laterais da estrutura da amostra. Em seguida, um ataque químico corrói a amostra até a camada bidimensional produzindo a nanoestrutura desejada^{5,6,10}.

Método

FUNÇÃO DE ONDA E AUTO-ENERGIA

O Hamiltoniano não perturbado de um elétron confinado ponto quântico pode ser escrito da seguinte forma

$$H_0 = \frac{p^2}{2m^*} + V(x, y, z) \quad (1)$$

onde $V(x,y,z)$ é o potencial de confinamento quântico e m^* é a massa de banda do elétron. A função de onda do elétron obtida da equação de autovalor $H\Psi = E\Psi$, pode ser escrita como $\Psi_{m,n,k}(x, y, z)$ com $m,n,k=0,1,2,\dots$. Os níveis de energia do elétron confinado no ponto quântico

são dados por $E_{n,m,k}(\omega) = \varepsilon_m + \varepsilon_n + \varepsilon_k$.

A INTERAÇÃO ELÉTRON-FÔNONS LONGITUDINAIS ÓPTICOS (LO)

O Hamiltoniano de um elétron interagindo com o sistema de fônons (LO) tridimensionais do bulk, ou Hamiltoniano de Fröhlich¹², pode ser escrito da seguinte maneira,

$$H_{ep} = \sum_{\vec{q}} \frac{M_0}{\sqrt{V}} \frac{e^{i\vec{q}r}}{|\vec{q}|} (b_{\vec{q}} + b_{-\vec{q}}^+) \quad (2)$$

onde $b_{\vec{q}}$ e $b_{-\vec{q}}^+$ são os operadores de criação e destruição de fônons e $M_0 = 4\pi\alpha\hbar(\hbar\omega_{LO})^2 / (2m^*)^{\frac{1}{2}}$ onde $\hbar\omega_{LO}$ é a energia de um fônon LO e α é a constante de acoplamento da interação elétron-fônon LO, ou simplesmente, constante de Fröhlich, sendo dada por $\alpha = (e^2/\hbar)(m^*/2\hbar\omega_{LO})^2 (1/\varepsilon_\infty - 1/\varepsilon_0)^{-1/2}$.

O Hamiltoniano de Fröhlich descreve a interação do elétron com um campo de polarização macroscópico médio originado por uma polarização que o mesmo elétron cria. Durante a dedução deste Hamiltoniano obtêm-se que as oscilações transversais não sentem a presença do elétron, isto se deve principalmente ao fato de que os fenômenos de indução são desprezados devido às baixas velocidades dos íons e dos elétrons. Disto podemos concluir que apenas as contribuições longitudinais participam na interação. Em nossos cálculos estamos usando a expressão para o Hamiltoniano de Fröhlich para fônons volumétricos (bulk) e inserimos as propriedades de um ponto quântico quando usamos a função de onda para calcular o elemento de matriz da interação elétron-fônons LO.

FORMALISMO DA FUNÇÃO DE GREEN

Para a obtenção da densidade de estados utilizamos a expressão para auto-energia do elétron interagindo com o sistema de fônons, calculada a partir do formalismo da função de Green, esta função por sua vez depende da densidade de estados^{13,14,15}. Para isso utilizamos inicialmente uma expressão para a densidade de estados que se aproxima do comportamento em um poço quântico, e obtida a auto-energia calculamos a correção para densidade de estados e assim conduzimos os cálculos auto-consistentemente até obtermos um bom resultado para a densidade de estados.

A auto-energia do elétron interagindo com os fônons

é dada por

$$\Sigma(E) = \frac{V}{2\pi^2} \sum_i \int_{-\infty}^{\infty} ds D_i(s) \sum_{\vec{q}} |M_{\vec{q}i}|^2 d^3q \left(\frac{N_q + n_F(\epsilon')}{E + \hbar\omega_q - s + i0^+} + \frac{N_q + 1 - n_F(\epsilon')}{E - \hbar\omega_q - s + i0^+} \right) \quad (3)$$

onde V é o volume do sistema, i e l indicam os índices dos níveis do elétron no ponto quântico, \vec{q} indica o vetor de onda dos fônons longitudinais ópticos (LO), ω_q é a frequência do fônon com vetor de onda q, N_q é a função de distribuição dos fônons dada pela expressão $N_q = 1/(e^{\hbar\omega_q/kT} - 1)$, e a densidade de estados $D_l(E)$ para o nível l é obtida a partir da expressão

$$D_l(E) = -2 \text{Im} \left[E - E_l - \sum_i (E) \right]^{-1} \quad (4)$$

O termo $M_{\vec{q}il}^{(a)}$ é o elemento de matriz da interação elétron-fônon LO dado por $M_{\vec{q}il} = \beta_q \langle i | e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} | j \rangle$ com $\beta_q^{LO} = M/q\sqrt{V}$. M está relacionado com a constante de acoplamento de Fröhlich e tem a seguinte expressão $M = \sqrt{2\pi\hbar\omega_{LO}} (1/\epsilon_{\infty} - 1/\epsilon_0)$.

Para facilitar, vamos reescrever a auto-energia da seguinte forma $\sum_i (E) = \text{Im} \sum_i (E) + \text{Re} \sum_i (E)$, com

$$\text{Im} \sum_i (E) = -\pi K_{\alpha} \sum_j [(N_j + n_F(E+1))D_j(E+1) + (N_j + 1 - n_F(E-1))D_j(E-1)] I'_{i,j} \quad (5)$$

onde $I'_{i,l}$ é a integral do módulo quadrado do elemento de matriz da interação elétron-fônon LO e $K_{\alpha} = \sqrt{2}/(2\pi)^3 \alpha (\Omega/\omega_{LO})^{1/2}$. A parte real da auto-energia fica

$$\text{Re} \sum_i (E) = -\frac{1}{\pi} \int \left\{ \text{Im} \sum_i (E - \zeta) - \text{Im} \sum_i (E + \zeta) \right\} \frac{d\zeta}{\zeta} \quad (6)$$

Utilizamos o método de Kramers-Kröning para obter a parte real a partir da parte imaginária da auto-energia¹⁴.

O MODELO NÃO-PERTURBATIVO

O Hamiltoniano do sistema para dois estados eletrônicos discretos com energias $\epsilon_0=0$ e $\epsilon_1=\Omega_x$, acoplados com M modos de fônons LO com vetores de onda $\vec{q}_1, \dots, \vec{q}_M$ e com energia igual a ω_{LO} é dado por

$$H = \epsilon_0 c_0^\dagger c_0 + \epsilon_1 c_1^\dagger c_1 + \sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{LO} b_{\vec{q}}^\dagger b_{\vec{q}} + \sum_{i,j=0,1;\vec{q}} M_{ij}(\vec{q}) (b_{\vec{q}} + b_{-\vec{q}}^\dagger) (c_i^\dagger c_j) \quad (7)$$

onde c_i^\dagger e c_j são respectivamente os operadores de criação e destruição de elétrons e $b_{\vec{q}}^\dagger$ e $b_{\vec{q}}$ são os operadores de criação e destruição de fônons. A matriz de interação elétron-fônon LO é dada $M_{ij} = V(q) \langle i | e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} | j \rangle = V(q) \langle n_x, n_y, l | e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} | n'_x, n'_y, l' \rangle$. Onde $V(q)$ é o potencial de acoplamento da interação elétron-fônon LO dado por

Com base no procedimento de ortogonalização

de Gram-Schmidt¹⁶ utiliza-se uma combinação linear de operadores $b_{\vec{q}}$ escritos como A_{ζ} , onde $\zeta = 1, 2, \dots, M$, assim temos

$$\tilde{B}_{\zeta} = A_{\zeta} - \sum_{\theta=1}^{\zeta-1} [A_{\zeta}, B_{\theta}^\dagger] B_{\theta}, \quad B_{\theta} = \frac{B_{\theta}}{\sqrt{|B_{\theta}, B_{\theta}^\dagger|}} \quad (8)$$

Os novos operadores B_{ζ} e B_{ζ}^\dagger , obedecem relações de comutação canônicas de bósons. O número de modos bosônicos que se acoplam com N estados fermiônicos no espaço de Hilbert são apenas $\frac{N(N+1)}{2}$. Escolhendo a combinação linear $A_{\zeta}^{(i,j)} = \sum_{\vec{q}} M_{ij}(\vec{q}) b_{\vec{q}}$, onde $\zeta(i,j)$ representa o índice de soma sobre os $\frac{N(N+1)}{2}$ pares (i,j) com $i \geq j$. A escolha de $A_{\zeta}^{(i,j)}$ pode ser arbitrária desde que as escolhas sejam linearmente independentes. A seqüência $\zeta(i,j)$ dos novos operadores bosônicos é o índice dos modos de interação elétron-fônon mapeados através de $A_{\zeta}^{(i,j)}$.

O Hamiltoniano pode ser escrito da seguinte forma¹⁷

$$H = (\epsilon_0 - E_p^{(N)}) c_0^\dagger c_0 + (\tilde{\epsilon}_1^{(N)} - E_p^{(N)}) c_1^\dagger c_1 + B_1^\dagger B_1 + B_2^\dagger B_2 + B_3^\dagger B_3 + (9) + C_1 B_1 + C_1 B_1^\dagger + C_2 c_0^\dagger c_1 + c_0^\dagger c_1$$

onde $B_2 = B_2 - \eta N + \gamma c_1^\dagger c_1$ e $B_3 = B_3 - \kappa N$, com $N = c_0^\dagger c_0 + c_1^\dagger c_1$ o operador número de partículas. As constantes nas equações acima são dadas por: $\gamma^2 = |C_2 - C_3|^2 + |C_n|^2$, $\eta = \frac{C_1(C_1 - C_3)}{\gamma}$ e $\kappa = \frac{C_2 C_3}{\gamma}$. As constantes C_i estão relacionadas ao acoplamento elétron-fônon LO, obtidas a partir do elemento de matriz desta interação.

As energias presentes na expressão (9) são dadas por

$$\tilde{\epsilon}_1^{(N)} = \epsilon_1 + 2\text{Re}(\gamma\eta^*)N - \gamma \quad (10)$$

e

$$E_p^{(N)} = (|\eta|^2 + |\kappa|^2)N \quad (11)$$

A expressão (10) é o primeiro nível de energia renormalizado e depende do número de partículas e a expressão (11) é a energia devido ao efeito polarônico.

Os operadores b_2 e b_3 são operadores deslocados que dependem de b_1 e b_1^\dagger . Os números de fônons n_1 , n_2 e n_3 e possuem bases que descrevem osciladores harmônicos deslocados.

Os auto-estados dos fônons são representados pelos operadores de oscilador harmônico deslocados (denominados estados coerentes)

$$|n_\lambda\rangle_\xi \equiv (n_\lambda!)^{-1/2} (B_\lambda^\dagger - \xi)^{n_\lambda} |0\rangle_\xi, \quad (12)$$

onde o vácuo dos fônons é definido por $(B_\lambda^\dagger - \xi)^{n_\lambda} |0\rangle_\xi$ com $|0\rangle_\xi = |0\rangle = \sum_{m=0}^{\infty} e^{-\frac{\xi^2}{2m}} e^{\frac{\xi m}{\sqrt{m}}} |m\rangle$.

Os estados coerentes possuem a seguinte propriedade: $\langle n_k | n_k \rangle_{\xi+\gamma} = \langle n_k | n_k \rangle_{\gamma}$, onde quando $\gamma=0$ temos que $\langle n_k | n_k \rangle_0 = \lambda_{n_k, n_k}$.

DIAGONALIZAÇÃO EXATA

O Hamiltoniano apresentado em (9) será resolvido exatamente. Usamos as seguintes bases para os estados eletrônicos $|1\rangle = |V\rangle = |0,0\rangle$, $|2\rangle = c_0^\dagger |V\rangle = |1,0\rangle$, $|3\rangle = c_1^\dagger |V\rangle = |0,1\rangle$ e $|4\rangle = c_1^\dagger c_0^\dagger |V\rangle = |1,1\rangle$, onde $|V\rangle$ é o vácuo de elétrons. E para os fônons, usamos as bases $|\{n_1\}\rangle_\gamma$, $|\{n_2\}\rangle_\gamma$ e $|\{n_3\}\rangle_\zeta$ para os três modos considerados. A base completa, combinando elétron e fônons, pode ser escrita como

$$|\phi_{\alpha_i}\rangle = |N_0, N_1, n_1, n_2, n_3\rangle = |N_0\rangle_0 |N_1\rangle_1 |n_1\rangle_0 |n_2\rangle_\lambda |n_3\rangle_\zeta \quad (13)$$

onde $N_0, N_1 = 0, 1$ e $n_1, n_2, n_3 = 0, 1, 2, \dots, n_{max}$ com n_{max} o número de fônons suficiente para fazer convergir os cálculos numéricos e λ e ζ são os deslocamentos do oscilador harmônico para n_2 e n_3 .

No espaço de Hilbert de $N=0$, a matriz é diagonal usando a base $|\phi_{\alpha_i}\rangle = |0, 0, n_1, n_2, n_3\rangle \equiv |V\rangle |n_1\rangle_0 |n_2\rangle_0 |n_3\rangle_0$. Os auto-estados serão representados por $|\Psi_{\beta_i}\rangle = \delta_{\beta_i, \alpha_i} |0\rangle_0 |0\rangle_1 |n_1\rangle_0 |n_2\rangle_0 |n_3\rangle_0$, onde $\beta_i = 1, 2, \dots, n_{max}^3$ e os autovalores de energia são dados por $E_{\beta_i} = n_1 + n_2 + n_3$.

No espaço de Hilbert de $N=2$, a matriz é diagonal usando a base $|\phi_{\alpha_i}\rangle = |1, 1, n_1, n_2, n_3\rangle \equiv c_1^\dagger c_0^\dagger |V\rangle |n_1\rangle_0 |n_2\rangle_{-2\eta+\gamma} |n_3\rangle_{-2\kappa}$. E agora, os auto-estados serão representados por $|\Psi_{\beta_i}\rangle = \delta_{\beta_i, \alpha_i} |1\rangle_0 |1\rangle_1 |n_1\rangle_0 |n_2\rangle_{-2\eta+\gamma} |n_3\rangle_{-2\kappa}$, onde $\beta_i = 1, 2, \dots, n_{max}^3$ e os autovalores de energia são dados por $E_{\beta_i} = \epsilon_0 + \epsilon_1 - \epsilon_1^{(2)} + n_1 + n_2 + n_3$.

No sub-espaço de $N=1$, a solução é mais complicada pois envolve termos cruzados que relacionam transições entre os dois níveis eletrônicos de energia e adiciona um acoplamento ressonante do polaron. Isto ocorre devido ao fato de existir a possibilidade do elétron no primeiro estado excitado decair para o estado fundamental emitindo um fônon, ou saltar para o primeiro estado excitado absorvendo um fônon. Para este subespaço usaremos as bases $|\phi_{\alpha_i}\rangle = |1, 0, n_1, n_2, n_3\rangle \equiv c_0^\dagger |V\rangle |n_1\rangle_0 |n_2\rangle_{-\eta} |n_3\rangle_{-\kappa}$ e $|\phi_{\alpha_i}\rangle = |0, 1, n_1, n_2, n_3\rangle \equiv c_1^\dagger |V\rangle |n_1\rangle_0 |n_2\rangle_{-\eta+\gamma} |n_3\rangle_{-\kappa}$. Os auto-estados serão representados pela base diagonal $|\Psi_{\beta_i}\rangle = \sum_{\alpha_i} \alpha_{\beta_i, \alpha_i} |1\rangle_0 |0\rangle_1 |n_1\rangle_0 |n_2\rangle_{-\eta} |n_3\rangle_{-\kappa} + \sum_{\alpha_i} \alpha_{\beta_i, \alpha_i} |0\rangle_0 |1\rangle_1 |n_1\rangle_0 |n_2\rangle_{-\eta+\gamma} |n_3\rangle_{-\kappa}$ onde $\beta_i = 1, 2, \dots, 2n_{max}^3$. Os valores da energia são obtidos a partir da diagonalização da matriz neste subespaço.

Na diagonalização temos os termos $\langle n | m \rangle_\gamma$

denominados fatores de Franck-Condon e são obtidos por

$$\langle n | m \rangle_\gamma = \langle n | \left(\frac{b^\dagger - \gamma}{\sqrt{m!}} \right)^m | 0 \rangle_\gamma \quad (14)$$

Para $N=1$, o Hamiltoniano pode ser escrito de tal forma que apareçam apenas as transições ressonantes $0 \rightarrow 1$ com absorção de um fônon e $1 \rightarrow 0$ com a emissão de um fônon, o Hamiltoniano fica

$$H^{RW} = \epsilon_0 c_0^\dagger c_0 + \epsilon_1 c_1^\dagger c_1 + B_1^\dagger B_1 + B_2^\dagger B_2 + B_3^\dagger B_3 + C_1 B_1 c_1^\dagger c_0 + C_1^\dagger B_1^\dagger c_0^\dagger c_1 \quad (15)$$

obtido da aproximação conhecida como “rotating-wave (RW) approximation” como no modelo óptico de Jaynes-Cummings¹⁸. Os autovalores de energia relacionados ao Hamiltoniano acima são

$$E_{n_1, n_2}^\pm = \frac{1}{2}(\epsilon_0 + \epsilon_1) + n_1 + n_2 - \frac{1}{2} \pm \frac{R_{n_1, n_2}}{2} \quad (16)$$

onde o termo $R_{n_1, n_2}^2 = \Delta^2 + 4n_1 | \langle n | m \rangle_\gamma C_1 |^2$ está relacionado ao acoplamento elétron-fônon LO e é conhecido como deslocamento de Rabi.

A FUNÇÃO DENSIDADE ESPECTRAL

A função densidade espectral do elétron é definida por

$$A_{ij}(E) = \frac{1}{\pi} \text{Re} \int_0^\infty dt e^{iEt} \text{Tr} \{ \rho [c_i(t), c_j^\dagger(0)]_+ \} \quad (17)$$

onde ρ é a matriz densidade dada por $\rho = e^{-\frac{T_0}{T}(H-\mu N)} / Z$ com $T_0 = \omega_{LO} / k_B$, onde k_B é a constante de Boltzmann,

ϵ é o potencial químico do sistema, $Z = \text{Tr} (e^{-\frac{T_0}{T}(H-\mu N)})$ é a normalização da matriz densidade e $c_i(t)$ é o operador de destruição de férmions dependente do tempo, dado por $c_i(t) = e^{Ht} c_i(0) e^{-Ht}$.

IMPLEMENTAÇÃO NUMÉRICA

Os cálculos da densidade de estados serão realizados numericamente a partir da implementação de um programa FORTRAN para os cálculos das funções de onda e dos níveis eletrônicos.

Resultados e Discussão

FORMALISMO DA FUNÇÃO DE GREEN

O formalismo Físico-Matemático da função de Green permite calcular correções de energia por inclusão de um número arbitrário de níveis de energia no sistema. Em nossos cálculos consideramos apenas dois níveis de energia do elétron no ponto quântico. Fizemos um cálculo comparativo, para uma estrutura simplificada, de dois níveis e de quatro níveis eletrônicos. Considerando

um potencial isotrópico, $\Omega_x = \Omega_y = \Omega_z = W$ no plano x - y e na direção z . Consideramos os níveis $(0,0,0)$, $(0,1,0)$, $(1,0,0)$ e $(1,1,0)$. Fizemos cálculos para os níveis $(0,0,0)$ e $(0,1,0)$ e adicionamos os níveis $(1,0,0)$ e $(1,1,0)$ e analisamos os resultados. Os cálculos foram realizados auto-consistentemente. A inclusão de dois níveis acima dos dois primeiros níveis provoca a renormalização dos níveis mais baixos. Observamos, a partir da Figura 2, que os efeitos qualitativos são pequenos, o que nos permite tratar o sistema com apenas dois níveis. Estes cálculos foram realizados para uma temperatura $T=100K$.

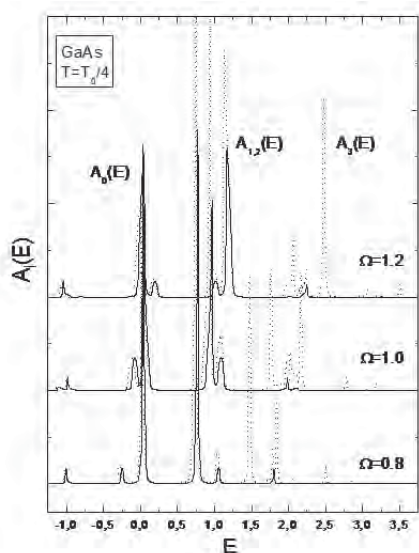


Figura 2. Comparação entre o resultado da densidade de estados do elétron acoplado com os fônons LO em um ponto quântico com largura zero na direção considerando dois níveis de energia $(0,0,0)$ ($j=0$) e $(1,0,0)$ ($j=1$) (curva sólida) com o resultado para quatro níveis $(0,0,0)$ ($j=0$), $(1,0,0)$ ($j=1$), $(0,1,0)$ ($j=2$) e $(1,1,0)$ ($j=3$) (curva pontilhada). ($T_0=400K$).

Consideramos um confinamento parabólico no plano x - y com diferentes frequências de confinamento. Consideramos a frequência de confinamento fixa na direção z . Esta situação foi escolhida no sentido de evitar que o terceiro nível fique degenerado com o segundo. Consideramos o confinamento anisotrópico parabólico em x e y com $\Omega_y = 1,5\Omega_x$. Calculamos a densidade de estados para o elétron interagindo com os fônons LO em um ponto quântico de GaAs para os dois primeiros estados eletrônicos $(0,0,0)$ e $(1,0,0)$ em função de várias frequências de confinamento lateral para uma temperatura

de 300K (temperatura ambiente) e interagindo com os fônons LO. Consideramos Ω_x variando de 0,6 a 1,4 (adimensional em termos da frequência dos fônons LO), conforme mostra a Figura 3. A largura do pico está relacionada à parte imaginária da auto-energia. Variamos a frequência de confinamento lateral e observamos o surgimento de picos relacionados às réplicas de fônons em valores de energia iguais a um múltiplo inteiro da energia de um fônon. À medida que aumentamos a frequência de confinamento, as réplicas se aproximam da energia dos picos do estado fundamental e do primeiro estado excitado definindo o acoplamento. Na ressonância, a separação de energia entre dois estados é igual ao valor da energia de um fônon. O acoplamento ressonante provoca o deslocamento dos níveis de energia. Na presença da interação elétron-fônon LO os níveis de energia eletrônicos são deslocados, este efeito está relacionado à parte real da auto-energia. Fizemos os mesmo cálculos para uma temperatura mais baixa, de 100K. Observamos que temperaturas mais altas provocam um alargamento nos picos da densidade de estados.

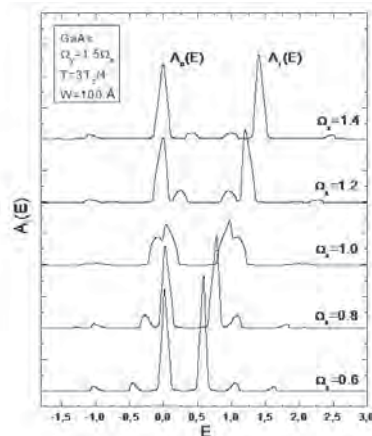


Figura 3. Densidade de estados do elétron interagindo com os fônons LO em um ponto quântico com largura de 100 Å e um confinamento lateral $\Omega_y = 1,5\Omega_x$. Consideramos cinco valores da frequência de confinamento Ω_x . A temperatura é $T=300K$. ($T_0=400K$)

MODELO NÃO-PERTURBATIVO

O efeito polarônico modifica os níveis de energia do elétron. O estado fundamental e o primeiro estado excitado do sistema sofrem correção devido a renormalização causada por este efeito. A Figura 4 mostra os níveis de

energia de um elétron confinado em um ponto quântico com estrutura definida na introdução. As frequências de confinamento são Ω_x e Ω_y (considerando $\Omega_y=1,5\Omega_x$) e um poço de largura $W=100\text{\AA}$. O estado fundamental permanece fixo com energia $\varepsilon_0-E_p^1$, para $\alpha=0,07$ temos que $E_p^1 \approx 0,06$. Incluindo um grande número de fônons no sistema as energias que surgem devido a estes fônons desdobram os níveis superiores. O estado fundamental acopla com o primeiro estado excitado. O mesmo acontece com os outros estados superiores. Os desdobramentos mais altos poderiam chegar próximo de um contínuo de níveis de energia dependendo do número de fônons adicionado ao sistema.

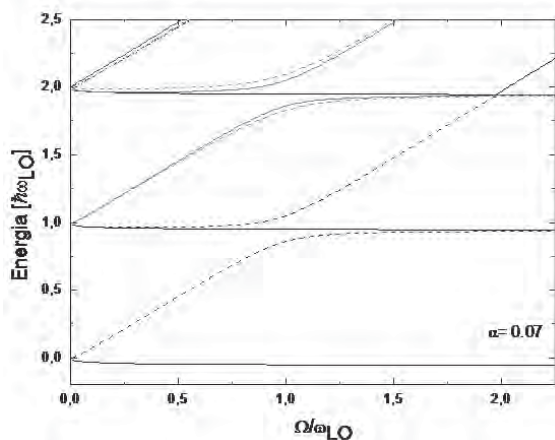


Figura 4. Níveis de energia de um elétron confinado em um ponto quântico com estrutura definida na introdução. As frequências de confinamento são Ω_x e Ω_y (considerando $\Omega_y=1,5\Omega_x$) e um poço de largura $W=100\text{\AA}$.

A Figura 5 mostra a densidade espectral para vários valores de confinamento e para uma temperatura $T=300K$. Entendendo que o potencial químico assume o valor $(\varepsilon_0+\varepsilon_1)/2$, entre os dois níveis mais baixos, podemos observar que as estruturas que surgem junto ao pico principal do estado fundamental e dos picos do primeiro estado excitado, desdobrado devido ao efeito polarônico, são provenientes do termo de transição do Hamiltoniano, que envolve o operador fonônico B_1 e a constante de acoplamento C_1 , ou seja, os termos não-diagonais da matriz de autovalores num subespaço $N=1$. Estes termos determinam os picos extras da densidade. Os picos menores que aparecem no lado direito e no lado esquerdo das Figuras 5 são chamados *réplicas fonônicas*. Estas surgem devido aos modos de fônons n_2 e n_3 . As réplicas tem um estrutura muito parecida com a dos picos

principais. As réplicas possuem valores de energia iguais a um múltiplo inteiro da energia de um fônon LO. O mesmo vale para o primeiro estado excitado.

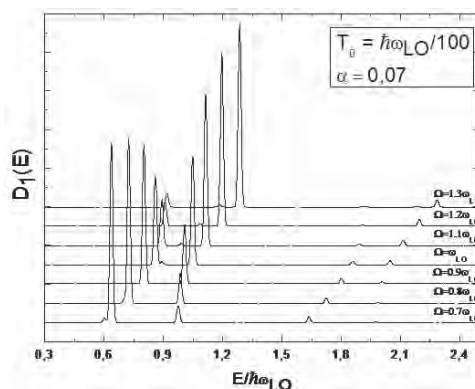


Figura 5. Densidade espectral para vários valores de confinamento e para uma temperatura $T=300K$.

COMPARAÇÃO ENTRE O MODELO DA FUNÇÃO DE GREEN E O MÉTODO NÃO-PERTURBATIVO

Os resultados mostrados são para um elétron confinado em um ponto quântico de dois níveis a partir de dois métodos distintos. Existem diferenças básicas entre os dois métodos e praticamente impossível dizer qual dos dois qual dos dois métodos representa melhor o sistema estudado. Segundo Stauber e seus colaboradores¹⁷ o modelo da função de Green não pode dar resultados corretos visto que o ponto quântico é um sistema que possui níveis discretos de energia enquanto o modelo da função de Green é aplicado para sistemas cujas energias são essencialmente contínuas. O conjunto de picos que surge na densidade espectral, utilizando o modelo não-perturbativo, que compõe a estrutura dos picos do estado fundamental e do primeiro estado excitado, na região fora da ressonância, tem um contorno parecido com a forma dos picos da função de Green. No caso do modelo não-perturbativo, não temos certeza do que aconteceria com os níveis mais baixos caso incluíssemos mais níveis de energia nos cálculos. No caso da função de Green, o cálculo auto-consistente inclui um grande ordem de diagramas de Feynmann de interação elétron-fônon que renormalizam a densidade espectral dos dois níveis considerados. O modelo não-perturbativo exibe uma estrutura de picos que são funções delta de Dirac. Todos os picos, inclusive das estruturas próximas dos

picos principais, são funções delta. Enquanto a função de Green, devido aos N diagramas irreduzíveis, apresenta uma largura. Por isso dizemos que a curva da densidade espectral utilizando a função de Green é contínua.

À medida que os fônons são adicionados ao sistema, estados de energia mais altos, como por exemplo, a energia do estado fundamental mais um fônon, mais dois fônons, e assim por diante, poderemos ter níveis mais altos desdobrando em mais níveis de energia. NO modelo não-perturbativo, esta é uma indicação de que se considerarmos este modelo para um sistema com mais níveis eletrônicos, estes níveis poderiam se desdobrar em mais estados de energia quando interagissem com os fônons, formando, para muitos níveis de energia, um espectro praticamente contínuo e o pico da densidade de estado poderia ter uma largura diferente de zero. Assim o modelo não-perturbativo e a função de Green poderiam levar ao mesmo resultado.

MODIFICAÇÕES NOS ORBITAIS ELETRÔNICOS EM UMA MOLÉCULA ARTIFICIAL

Em dois pontos quânticos acoplados (molécula artificial) existe uma transferência de carga efetiva de um ponto quântico para outro acompanhada de modificações na topologia dos orbitais eletrônicos, que afetam as regras de seleção ópticas, pelo menos no regime de acoplamento ressonante. Tais modificações aparecem através da hibridização dos níveis eletrônicos quando ocorre o acoplamento ressonante do elétron com os fônons. Podemos calcular a densidade eletrônica através do módulo ao quadrado da função de onda do sistema.

$$\left| \Psi_{n_x, n_y, l; n_q}(\vec{r}) \right|^2 = \text{constante} \quad (18)$$

Em um sistema simplificado, por questões de facilidade nos cálculos, de apenas dois níveis, com simetria cilíndrica considerando a razão entre as larguras dos dois poços na direção z como $W_2/W_1=0,85$, o estado fundamental e o primeiro estado excitado do ponto quântico são do tipo s ($n_x=0, n_y=0$) e do tipo p ($n_x=1, n_y=0$), respectivamente como mostrado na Figura 6 (a)-(b). Quando a interação elétron-fônon LO é incluída, diferentes canais de transferência de carga entre os pontos quânticos são abertos. Ocorre uma modificação muito particular do estado fundamental apenas para temperaturas suficientemente altas e mediada pela absorção de fônon. Num processo de tunelamento assistido

por fônon, uma transferência de carga efetiva ocorre sob a condição de polaron ressonante do estado excitado (0,0,1), mais localizado no ponto quântico estreito W_2 , para o estado fundamental (0,0,0), mais localizado no ponto quântico largo W_1 . Isto leva a um crescimento do orbital do estado fundamental em W_2 , como mostra a Figura 6 (c), balanceando a densidade de carga entre os dois lados, W_1 e W_2 . Consequentemente, o sistema responde a excitações externas, tais como luz e combinações de campos externos, sendo influenciado pela redistribuição da densidade de carga entre os dois pontos quânticos.

O acoplamento elétron-fônon LO ressonante também modifica os níveis de energia mais altos. Neste caso ocorre uma transferência de carga efetiva do ponto quântico mais largo para o mais estreito através da emissão de fônon a baixas temperaturas. Na Figura 6 (d) a forma do orbital do primeiro estado excitado (0,0,1) muda no limite de acoplamento ressonante. Juntamente com a transferência de carga efetiva, que aumenta a nuvem de densidade no ponto quântico com W_1 , levando a uma modificação topológica dos orbitais eletrônicos, Figura 6 (e). As modificações do estado excitado tipo-s (0,0,1) é um resultado de sua hibridização com o estado tipo-p (0,1,0) na ressonância.

Conclusões

Considerando um ponto quântico simples com uma geometria parabólica tridimensional cilíndrico com dois e quatro níveis de energia, calculamos a densidade de estados. Pudemos observar o efeito da interação elétron-fônon na renormalização dos níveis de energia. As funções delta de Dirac que representam a densidade de estados de um elétron num ponto quântico, na ausência da interação polarônica, ganha uma largura e as funções gaussianas demonstram a perturbação causada pela interação, que é relevante. Os dois níveis mais baixos de energia são renormalizados pelos níveis mais altos e não provoca modificações qualitativas significativas. Calculamos a densidade de estados para o ponto quântico com confinamento anisotrópico nas três direções x, y e z. Verificamos que ocorre um desdobramento no estado fundamental e no primeiro estado excitado devido à absorção e emissão de fônons. Representações qualitativas e quantitativas da ressonância do polaron foram obtidas para o ponto quântico a diferentes

temperaturas. O Modelo da função de Green com auto-energia do elétron calculada auto-consistentemente foi utilizado para renormalizar a densidade de estados.

Verificamos que o modelo não-perturbativo apresenta uma estrutura de picos determinados por funções delta de Dirac para a função espectral. Tratamos o potencial químico como um parâmetro de ajuste. Mostramos que a distribuição do elétron em função da energia quando este está presente no sistema no caso de $\mu = (\epsilon_0 - \epsilon_1)/2$ é a função densidade espectral.

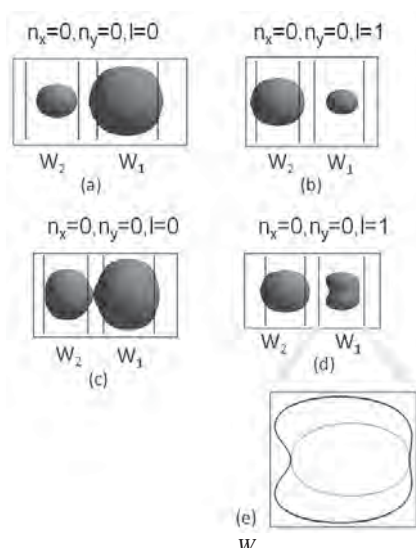


Figura 6. Orbitais eletrônicos para $\frac{W_1}{W_2}=0.85$. Os orbitais do elétron sem acoplamento mostrados na em (a) $(0,0,0)$ e (b) $(0,0,1)$. Os orbitais eletrônicos renormalizados devido ao efeito polarônico são mostrados em (c) $(0,0,0)$ e (e) $(0,0,1)$. Em (e) a curva interna (externa) representa parte do contorno do orbital dos estados $(0,0,1)$ no ponto quântico de largura W_1 com (sem) os efeitos polarônicos.

Comparamos o resultado para a função espectral, obtido através do formalismo da função de Green e observamos que este modelo nos fornece a possibilidade de estudar um sistema mais complexo, com mais níveis de energia. Enquanto o modelo exato torna-se muito complicado quando tentamos incluir mais que dois níveis de energia.

A topologia dos orbitais de pontos quânticos acoplados é fortemente modificada pelo tunelamento induzido por fônons entre os pontos quânticos.

Referências

1. Esaki, L. e Tsu, R. IBM Res. Note, RC-2418.

2. Bimberg, D.; Grundmann, M.; Ledentsov, N.N. Quantum Dot Heterostructures. John Wiley and Sons Ltd., **1999**.

3. Král, K.; Khás, Z. Phys. Rev. B 57, P. R2061, **1998**.

4. Lello Di, B. C. Síntese de pós de nitreto de gálio por reação gás-sólido utilizando carbono como agente redutor. Tese de Doutorado, PUC-RJ (**2002**).

5. Peeters, F. M. e Devreese, J. T., Statistical properties of polarons in a magnetic field. II. Numerical results and discussion on the phase transition, Phys. Rev. B 25, 7302, (**1982**).

6. Peeters, F. M. e Devreese, J. T., Impedance function of large polarons: An alternative derivation of the Feynman-Hellwarth-Iddings-Platzman theory, Phys. Rev. B 28, 6051, (**1983**).

7. Oliveira, S. S. Ressonância de Cicloton de polarons em heteroestruturas semicondutoras. Dissertação de Mestrado, UFG (**2000**).

8. Colossi, M. L. Estudo teórico da estabilidade e propriedades eletrônicas de defeitos em nanotubos de GaN, Dissertação de Mestrado, UFSM (**2008**).

9. Guarnieri, L. C. Espalhamento Raman de Sistemas Dopados a base de GaN. Dissertação de Mestrado, UFJF (**2007**).

10. Nobrega, R. V. T. Aspectos de modelagem numéricas de transistores de fios quânticos. Dissertação de mestrado, USP (**2010**).

11. Lello Di, B. C. Síntese de pós de nitreto de gálio por reação gás-sólido utilizando carbono como agente redutor. Tese de Doutorado, PUC-RJ (**2002**).

12. Fröhlich, H. Introduction to the theory of the polaron. Scottish Universities' Summer School. Oliver and Boyd, Edinburgh and London. 1, (**1962**).

13. Oliveira, S. S. Ressonância de Cicloton de polarons em heteroestruturas semicondutoras. Dissertação de Mestrado, UFG (**2000**).

14. Lopez-Richard, V.; Oliveira, S. S. ; Hai, G.-Q., Phonon assisted tunneling in coupled semiconductor quantum dots. Physical Review. B, Condensed Matter and Materials Physics, The American Physical Society, v. 71, p. 75329, (**2005**).

15. Mahan, G. Many-particle Physics. New York: Plenum, **1981**.

16. Coimbra, A.L. Espaços vetoriais – Lições e exemplos. Editora Edgard Blücher LTDA. (**1994**).

17. Stauber, T.; Zimmerman, R.; Castella, H. Phys. Rev. B 62, p. 7336, (**2000**).

18. Jaynes, E.T.; Cummings, F.W. Proc. IEEE 51. P. 89, (**1963**).

Solemar S. Oliveira* & Eduardo M. Toledo

Ciências Exatas e Tecnológicas, Univesidade Estadual de Goiás (UEG)

*e-mail: solemar@ueg.br