NRC·CNRC

NRC Publications Archive
Archives des publications du CNRC

Dispersión inelástica de la luz por excitaciones electrónicas en átomos artificiales

Delgado, Alain; Gonzalez, Augusto; Lockwood, D. J.

This publication could be one of several versions: author's original, accepted manuscript or the publisher's version. / La version de cette publication peut être l'une des suivantes : la version prépublication de l'auteur, la version acceptée du manuscrit ou la version de l'éditeur.

Publisher's version / Version de l'éditeur:

Revista cubana de física, 22, 2, pp. 142-152, 2005-12-31

NRC Publications Record / Notice d'Archives des publications de CNRC:
https://nrc-publications.canada.ca/eng/view/object/?id=087dafe3-4955-4213-b157-1a844e9ea47c
https://publications-cnrc.canada.ca/fra/voir/objet/?id=087dafe3-4955-4213-b157-1a844e9ea47c

Access and use of this website and the material on it are subject to the Terms and Conditions set forth at
https://nrc-publications.canada.ca/eng/copyright
READ THESE TERMS AND CONDITIONS CAREFULLY BEFORE USING THIS WEBSITE.

L'accès à ce site Web et l'utilisation de son contenu sont assujettis aux conditions présentées dans le site
https://publications-cnrc.canada.ca/fra/droits
LISEZ CES CONDITIONS ATTENTIVEMENT AVANT D'UTILISER CE SITE WEB.

Questions? Contact the NRC Publications Archive team at PublicationsArchive-ArchivesPublications@nrc-cnrc.gc.ca. If you wish to email the authors directly, please see the first page of the publication for their contact information.

Vous avez des questions? Nous pouvons vous aider. Pour communiquer directement avec un auteur, consultez la première page de la revue dans laquelle son article a été publié afin de trouver ses coordonnées. Si vous n'arrivez pas à les repérer, communiquez avec nous à PublicationsArchive-ArchivesPublications@nrc-cnrc.gc.ca.

National Research Council Canada | Conseil national de recherches Canada

Canada

DISPERSIÓN INELÁSTICA DE LA LUZ POR EXCITACIONES ELECTRÓNICAS EN ÁTOMOS ARTIFICIALES

Alain Delgado[1], Centro de Aplicaciones Tecnológicas y Desarrollo Nuclear, Ciudad de La Habana, Cuba
Augusto González[2], Instituto de Cibernética, Matemática y Física, Ciudad de La Habana, Cuba
D.J. Lockwood[3], Institute for Microstructural Sciences, National Research Council, Ottawa, Canada

RESUMEN

En este artículo presentamos cálculos teóricos de la sección eficaz de dispersión inelástica de luz (Raman) por excitaciones electrónicas en un punto cuántico cargado con 42 electrones. Los estados multielectrónicos involucrados en el cálculo de la amplitud de transición Raman son obtenidos en la aproximación de fase aleatoria (RPA). La evaluación de las reglas de sumas pesadas por energía permitió clasificar las excitaciones electrónicas en uniparticulares (SPEs) y colectivas de carga (CDEs) y de espín (SDEs). Los espectros Raman calculados en geometría polarizada y no polarizada son mostrados en diferentes regiones de la energía del láser incidente. Se predicen teóricamente las ventajas asociadas al cálculo o medición de los espectros en régimen no resonante. Los valores calculados de las razones de polarización de las intensidades Raman demuestran el rompimiento de las reglas de selección del efecto Raman en presencia de campos magnéticos externos. La regla del salto de la intensidad Raman es propuesta como herramienta novedosa para la identificación de la naturaleza (carga o espín) de las excitaciones electrónicas. En la región de resonancia extrema, se obtienen espectros Raman dominados por picos asociados a estados excitados uniparticulares. Se argumenta cualitativamente la importancia de incorporar los tiempos de vida de los estados intermedios para la descripción de los espectros Raman en la región de energías del láser incidente 40-50 meV por encima de la brecha energética de la estructura semiconductora.

ABSTRACT

In this article we present a theoretical investigation of the inelastic light scattering by electronic excitations in a quantum dot charged with 42 electrons. The energies and wave-functions of the multielectronic states involved in the Raman process, are obtained in the framework of Random Phase Approximations (RPA). Charge-Density (CDE) and Spin-Density (SDE) excitations are identified by evaluating the multipolar energy-weighted sum rules (EWSR). We compute Raman spectra for different values of the incident laser energy in both, polarized and depolarized geometry. Calculated Raman spectra with anexcitation energy below the bandgap reveals several advantages for identifying and following individual peaks. The breakdown of Raman polarization selection rules under the influence of an external magnetic field is studied by calculating the polarization ratios. The breakdown of these selection rules under resonant excitation with the semiconductor bandgap, which we termed Raman intensity jump-rule, is found and proposed as a useful tool for identifying the character (charge or spin) of electronic excitations. We found that Raman spectra in the extreme resonance region are dominated by strong peaks associated to single-particle excitations (SPEs). The interference effects between the intermediate states in the Raman transition amplitude are evaluated. The main features of Raman spectra with excitation energy well-above the bandgap are qualitatively reproduced in terms of lifetimes of the intermediate states.

I. INTRODUCCIÓN

En la actualidad un elevado porciento de las investigaciones de la física de la materia condensada, concentran sus esfuerzos en el estudio de las propiedades físicas de heteroestructuras semiconductoras cuyas dimensiones espaciales se encuentran en la escala nanométrica. Técnicas modernas sofisticadas como la Epitaxia de Haces Moleculares (MBE) han hecho posible la obtención de gases electrónicos cuasi-bidimensionales en materiales semiconductores. Tales sistemas constituyen un punto de partida ideal para la fabricación de estructuras con dimensionalidad reducida como los hilos (cuasiunidimensionales) y los puntos (cuasicerodimensionales) cuánticos [1]. Estos últimos, conocidos también como átomos artificiales dada la cuantización coºmpleta de su espectro energético, son obtenidos por diversos métodos y con diversas geometrías [2]. El estudio de las propiedades ópticas y electrónicas de los puntos cuánticos ha tenido en los últimos años una gran fuerza [3] dado que los resultados de estas investigaciones tienen un impacto directo en el desarrollo de nuevas ramas de

E-mail: [1]gran@ceaden.edu.cu
[2]agonzale@icmf.inf.cu
[3]David.Lockwood@nrc-cnrc.gc.ca

la física aplicada. La espectroscopia de excitaciones electrónicas en átomos artificiales, o sea, puntos cuánticos que contienen un número N de electrones confinados en la banda de conducción, constituye la analogía más natural de la espectroscopia en sistemas atómicos. El espectro de estados excitados de átomos artificiales es una información básica para el desarrollo de dispositivos electrónicos cuyos principios de funcionamiento se basan en los efectos cuánticos presentes en estas nanoestructuras. La dispersión inelástica de luz (Raman) permite investigar diferentes sectores del espectro de excitaciones electrónicas de estos sistemas. En la década de los años 1990 aparecieron en la literatura los primeros trabajos experimentales sobre mediciones de espectros Raman asociados a excitaciones electrónicas en átomos artificiales que contienen cientos de electrones [4–7]. Una amplia descripción de los resultados obtenidos en estos trabajos aparece publicada en las referencias [8,9]. Recientemente se han reportado mediciones de espectros Raman de excitaciones electrónicas en puntos cuánticos notablemente pequeños que contienen como promedio entre 2 y 6 electrones confinados en las dimensiones de la estructura semiconductora [10,11].

En general las excitaciones electrónicas en puntos cuánticos pueden clasificarse en excitaciones uniparticulares (SPEs) y excitaciones colectivas de carga (CDEs) y de espín (SDEs). Los picos Raman asociados a las CDEs pueden ser medidos o calculados en la llamada configuración de geometría polarizada, en la cual los vectores de campo eléctrico del fotón dispersado e incidente son paralelos, mientras que los estados excitados del tipo SDEs son obtenidos en geometría no polarizada donde el vector de campo eléctrico del fotón dispersado es ortogonal con respecto a la misma magnitud del fotón incidente. Esta diferenciación está dada por las reglas de selección del efecto Raman [12]. Schüller y colaboradores [5,7] han mostrado experimentalmente que fuertes picos Raman asociados a SPEs aparecen en los espectros medidos como resultado de iluminar el punto con un láser cuya energía está muy cercana al valor de la brecha energética (E_{gap}) del semiconductor mientras que para energías de incidencias muy por encima de E_{gap} el espectro Raman es dominado por excitaciones de naturaleza colectiva.

La obtención de estos resultados experimentales motivó un conjunto de estudios teóricos encaminados a la descripción de la fenomenología encontrada en los citados trabajos. Estas teorías [13–17] sólo válidas en régimen no resonante, han descrito las posiciones de las excitaciones colectivas para diferentes valores del vector de onda de la radiación incidente y de campos magnéticos externos. Sin embargo, los citados formalismos presentan limitaciones inherentes a las aproximaciones usadas tales como: i) la incapacidad de describir las relaciones de intensidades entre los picos Raman asociados a SPEs y CDEs y/o SDEs obtenidas en los experimentos, ii) la incapacidad de predecir la presencia de picos Raman asociados a SPEs, iii) no consideran los estados electrónicos en la banda de valencia, los cuales juegan un papel crucial en el cálculo de la sección eficaz de dispersión Raman [18]. Este artículo tiene como objetivo fundamental enriquecer y complementar las interpretaciones discutidas en los trabajos experimentales publicados en esta temática aunque no sólo se limita a eso, dado que nuevas predicciones teóricas han emergido del análisis de los cálculos realizados.

En la próxima sección describimos de manera general el esquema de cálculo implementado para la obtención de la sección eficaz diferencial Raman. La sección III contiene la discusión y análisis de los resultados. Finalmente las conclusiones generales son brindadas en la sección IV.

II. MÉTODOS TEÓRICOS Y ESQUEMA DE CÁLCULO IMPLEMENTADO

La idea básica de la dispersión Raman es simple: un fotón con energía $h\nu_i$ el cual es dispersado inelásticamente por la materia puede ganar (procesos anti-Stoke) o perder (Stoke) energía. La teoría de perturbaciones permite obtener la expresión para el cálculo de la amplitud de transición Raman [20], A_{fi}, definida por la siguiente ecuación:

$$A_{fi} \sim \sum_{int} \frac{\left\langle f \left| \hat{H}^{+}_{e-r} \right| int \right\rangle \left\langle int \left| \hat{H}^{-}_{e-r} \right| i \right\rangle}{h\nu_i - (E_{int} - E_i) + i\Gamma_{int}} \qquad (1)$$

Una representación esquemática del proceso de dispersión Raman es mostrado en la Figura 1. $|i\rangle$ y $|f\rangle$ son los estados electrónicos inicial y final respectivamente que describen a los N-electrones confinados en el punto cuántico. En principio, la suma en la

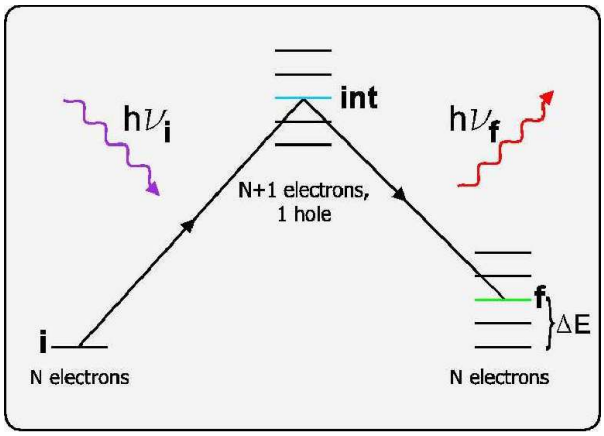

Figura 1. Amplitud de transición Raman y su interpretación en términos de transiciones virtuales.

Ecuación (1) debe incluir todos los estados electrónicos que no anulen los elementos matriciales en el numerador. En los trabajos experimentales mencionados la energía del láser incidente, $h\nu_i$, toma valores del orden de E_{gap}. Esto permite restringir la suma en la Ecuación (1) por estados intermedios que son excitaciones interbandas de la estructura semiconductora, o sea, por estados de un sistema en el cual existen (N + 1) - electrones confinados en la banda de conducción y 1 hueco confinado en la banda de valencia. $\hat{H}_{e-r}$ denota el Hamiltoniano de interacción del sistema electrónico con el campo de fotones de la radiación incidente [12]. E_i y E_{int} son las energías correspondientes a los estados iniciales e intermedios y Γ_{int} es un parámetro asociado a los tiempos de vida de estos últimos. La ley de conservación de la energía establece la ecuación,

$$h\nu_i - h\nu_f = E_f - E_i = \Delta E, \qquad (2)$$

donde $h\nu_f$ es la energía del fotón dispersado, E_f es la energía del estado excitado final y ΔE es la energía de excitación electrónica o corrimiento Raman asociado al estado $|f\rangle$. Una vez obtenida la amplitud de transición Raman podemos calcular la sección eficaz diferencial de dispersión Raman, $d\sigma$, a través de la siguiente expresión:

$$d\sigma \sim \sum_f \left| A_{fi} \right|^2 \delta(E_i + h\nu_i - Ef - h\nu_f). \qquad (3)$$

La conservación de la energía es forzada por la función delta de Dirac en la Ecuación (3). En nuestros cálculos, ésta es simulada por la función de Lorentz:

$$\delta(x) \approx \frac{\Gamma_f / \pi}{x^2 + \Gamma_f^2} \qquad (4)$$

A. Esquema computacional para la obtención de la amplitud de transición Raman

Las ecuaciones y expresiones explícitas detalladas de las diferentes aproximaciones involucradas en el cálculo de la amplitud de transición Raman, A_{fi}, pueden ser encontradas por los lectores interesados en las referencias [18,19]. En esta sección brindaremos una descripción de la metodología de cálculo implementada auxiliándonos de la Figura 2.

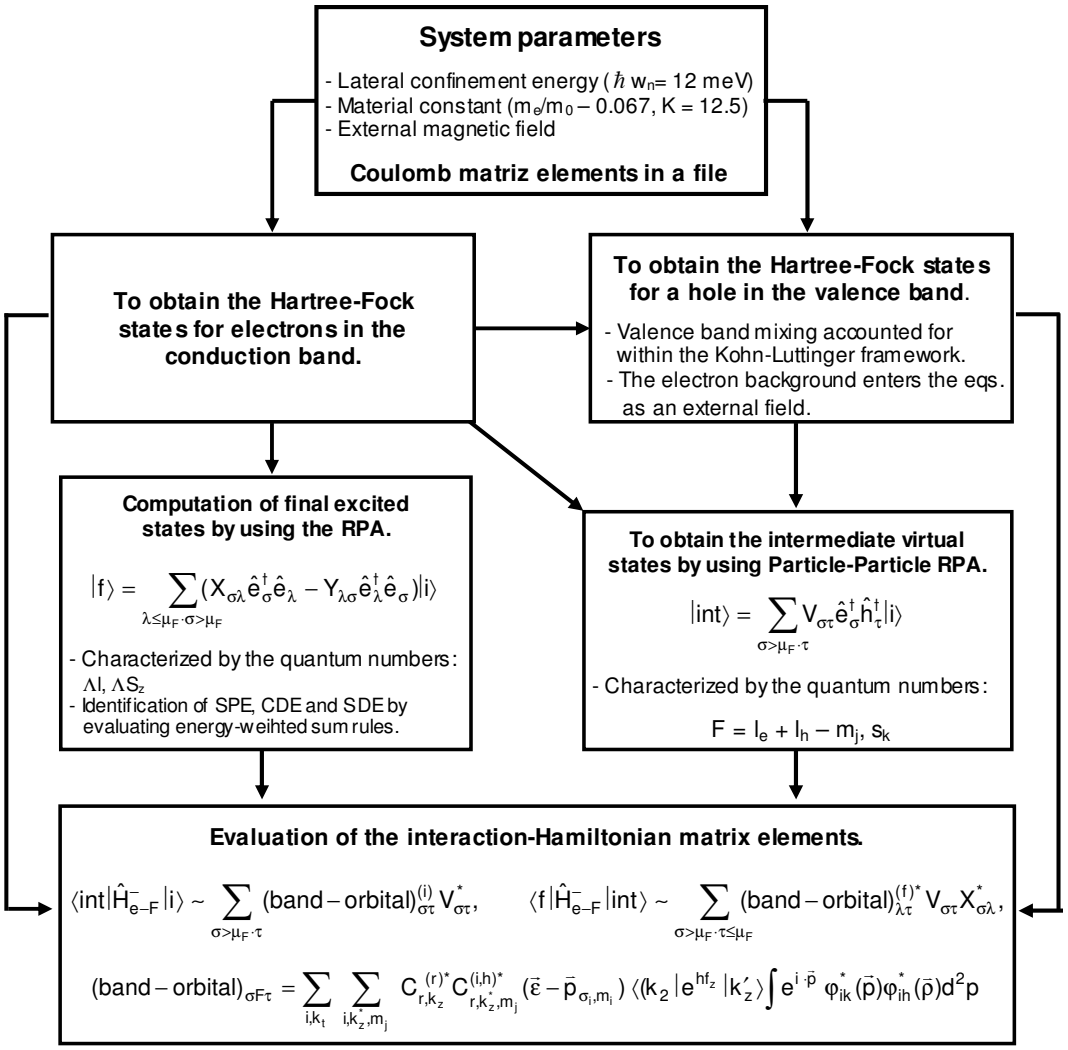

Figura 2. Esquema de cálculo implementado.

El punto cuántico en forma de disco es modelado con un potencial de paredes rígidas en la dirección z (dirección de crecimiento de la heteroestructura) y un confinamiento lateral (direcciones x, y) de tipo parabólico con una energía característica $\hbar\omega_0$ = 12 meV. La base de funciones utilizada que caracteriza los estados de una partícula están construídas como el producto de las autofunciones del oscilador bidimensional, del pozo infinito y las funciones de espín [18].

Con el objetivo de hacer eficiente el cálculo de las energías y funciones de onda de los sistemas multielectrónicos involucrados, nosotros calculamos previamente todos los valores de los elementos matriciales de la interacción de Coulomb, $\langle \alpha, \beta|1/r|\gamma, \delta\rangle$, donde α, β, γ y δ son estados arbitrarios de una partícula. Estos elementos matriciales son cargados en memoria al inicio de cada cálculo permitiéndonos resolver las ecuaciones no lineales íntegro-diferenciales de Hartree-Fock para 42 electrones en pocos minutos, o calcular todos los estados intermedios considerados (alrededor de 10,000) en la Ecuación (1) en pocos días. Las ecuaciones de Hartree-Fock para huecos incluye el campo electrostático generado por el background de electrones en el punto y considera los efectos de la mezcla de las bandas de valencia a través del Hamiltoniano de Kohn-Luttinger [18].

Los estados excitados finales e intermedios son descritos en el marco de la Aproximación de Fase Aleatoria [21] (RPA). Mediante la RPA es posible calcular las energías y funciones de onda de los estados finales en diferentes sectores del espectro de excitaciones electrónicas del punto, donde cada sector está definido por reglas de selección para la variación (respecto al valor de la magnitud en el estado base) del momentum angular ($\Delta l = 0, 1, 2, \ldots$) y la proyección del espín ($\Delta S_z = 0, \pm 1$). La evaluación de reglas de sumas pesadas por energía [21] permite identificar, de manera independiente al cálculo de la amplitud de transición Raman, los estados colectivos de carga (CDEs), de espín (SDEs) y las excitaciones uniparticulares (SPEs). Por otro lado, los estados intermedios del proceso Raman, están caracterizados por la proyección del espín del electrón añadido S_z y el momento angular total del par, $F = l_e + l_h - m_j$.

Una vez calculados los estados finales e intermedios son evaluados los elementos matriciales del Hamiltoniano de interacción del punto cuántico con el campo electromagnético en términos de los coeficientes que caracterizan las funciones de onda de los estados multielectrónicos finales e intermedios y los coeficientes de la expansión de los estados uniparticulares de Hartree-Fock de electrones y huecos en la base de funciones utilizada.

B. Aproximación para el cálculo de la amplitud de transición Raman en régimen no resonante (ORA)

La ORA (*off-resonant approximation*) es una aproximación en la cual la expresión para el cálculo de la amplitud de transición Raman, A_{fi}, involucra solamente a los estados final e inicial del punto cuántico. La suma por estados intermedios desaparece; esto significa que en los marcos de esta aproximación no es posible la explicación de efectos producto de resonancias con estados intermedios en el proceso de dispersión Raman.

La deducción de la expresión para la amplitud de transición Raman en esta aproximación puede ser consultada en la referencia [12]. Las suposiciones básicas para su derivación son: (i) la energía del láser incidente está lo suficientemente lejos de las energías de los estados intermedios, por lo que la dependencia en la Ecuación (1) con E_{int} en el denominador puede ser despreciada; (ii) existe una ventana energética de estados intermedios (40 meV por encima de E_{gap}) donde las variaciones de Γ_{int} son despreciables y la relación de completitud $\sum_{int}' |int\rangle\langle int| \approx 1$ es casi satisfecha. Bajo estas suposiciones la amplitud de transición Raman, A_{fi}^{ORA}, puede escribirse como:

$$A_{f_i}^{ORA} \sim \langle f \left| H_{e-r}^{+} H_{e-r}^{-} \right| i \rangle . \qquad (5)$$

Haciendo uso de las expresiones para H_{e-r}^{+} y H_{e-r}^{-} [12] es posible deducir la siguiente fórmula para el cálculo de la amplitud de transición Raman:

$$A_{f_i}^{ORA} \sim \sum_{\alpha,\alpha'} \left\langle \alpha \left| e^{i(\vec{q}_i - \vec{q}_f)\cdot\vec{r}} \right| \alpha' \right\rangle \left\{ \frac{2}{3}(\vec{\varepsilon}_i \cdot \vec{\varepsilon}_f) \left\langle f \left| e_{\alpha\uparrow} e_{\alpha'\uparrow} + e_{\alpha\downarrow} e_{\alpha'\downarrow} \right| i \right\rangle \right.$$

$$+ \frac{1}{3}(\vec{\varepsilon}_i \times \vec{\varepsilon}_f) \cdot \left\langle f \left| \hat{z}(e_{\alpha\uparrow} e_{\alpha'\uparrow} - e_{\alpha\downarrow} e_{\alpha'\downarrow}) + \right. \right.$$

$$\left. \left. + (\hat{x} - i\hat{y}) e_{\alpha\uparrow} e_{\alpha'\downarrow} + (\hat{x} - i\hat{y}) e_{\alpha\downarrow} e_{\alpha'\uparrow} \right| i \right\rangle \Big\}. \qquad (6)$$

Del análisis de la Ecuación (6) podemos inferir algunas conclusiones. Primero, solamente los estados finales excitados colectivos tendrán una amplitud Raman asociada diferente de cero. No es posible describir picos Raman asociados a excitaciones uniparticulares en esta aproximación. Segundo, las reglas de selección del efecto Raman asociadas a las polarizaciones de los fotones incidente y dispersado pueden ser entendidas de la Ecuación (6): el primer término, el cual no altera el número cuántico de espín del estado inicial está

multiplicado por un factor $\vec{\varepsilon}_i \cdot \vec{\varepsilon}_f$. Esto significa que los estados finales colectivos de carga aparecen en geometría polarizada. Por otro lado, los otros términos que modifican el espín del estado inicial están multiplicados por un factor $\vec{\varepsilon}_i \times \vec{\varepsilon}_f$ y consecuentemente los picos Raman asociados a estas excita-ciones aparecen en geometría no polarizada.

III. RESULTADOS

En este artículo reportamos los resultados para un punto cuántico con 42 electrones confinados en la banda de conducción. El ancho del pozo en la dirección z es L = 25 nm y la energía de confinamiento característica es $\hbar\omega_0$ = 12 meV. El número de electrones corresponde a un punto de capas cerradas. En nuestro estudio consideramos estados excitados con energías de excitación $\Delta E \leq \hbar\omega_{LO}$, siendo $\hbar\omega_{LO} \approx 30$ meV el valor de energía umbral para la emisión de fonones ópticos longitudinales en el GaAs. Esto significa que los estados finales tienen pequeños anchos para los cuales hemos tomado un valor constante Γ_f = 0.1 meV. De igual manera para los estados intermedios con energías de excitación menores que $\hbar\omega_{LO}$ escogemos el parámetro Γ_{int} =0.5 meV. Para valores superiores en energías de excitación, como resultado de la emisión de fonones LO fijamos el parámetro Γ_{int} = 10 meV. Todos los espectros Raman están calculados en la configuración de retrodispersión, donde la luz incidente y dispersada forman un ángulo de 20° respecto a la normal del punto.

A. Espectro de excitaciones electrónicas

En la Figura 3 mostramos el espectro de estados finales excitados del punto modelado, calculados en la aproximación de fase aleatoria. Las energías de excitación de estos estados es precisamente la magnitud medida en los experimentos de dispersión inelástica de luz (corrimiento Raman). En la figura se identifican los estados colectivos de carga (CDE) y espín (SDE) en todos los sectores y la contribución de cada estado colectivo a la regla de suma pesada por energía es explícitamente señalada. El resto de los estados mostrados corresponden a excitaciones uniparticulares.

La evolución del espectro de estados excitados monopolares ($\Delta I = 0$, $\Delta S_z = 0$) como función del campo magnético externo es mostrada en la Figura 4. Las excitaciones colectivas de carga y espín, cuya contribución a la regla de suma pesada por energía excede el 5%, son representadas con cuadrados y triángulos respectivamente. La contribución de cada modo es proporcional al tamaño de los símbolos usados. Las excitaciones uniparticulares de carga (SPEs(C)) y espín (SPEs(S)) son también mostradas con líneas horizontales largas y cortas respectivamente.

Con relación a las excitaciones colectivas de carga se pueden notar dos características fundamentales: (i) la energía de excitación asociada a este modo evoluciona de manera suave respecto al campo magnético externo y (ii) el tamaño de los símbolos no cambia para diferentes valores del campo, manifestándose la fuerte naturaleza colectiva de estos modos.

Los estados de bajas energías de excitación corresponden a excitaciones colectivas monopolares de espín. A diferencia de los modos colectivos de carga podemos observar, para valores de campos magnéticos B ≥ 2 T más de un estado colectivo contribuyendo a la regla de suma pesada por energía.

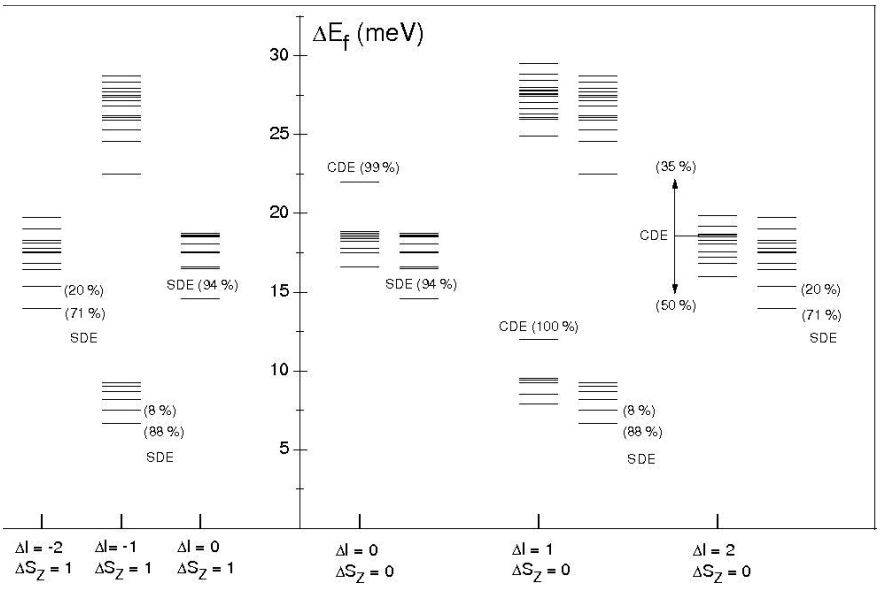

Figura 3. Espectro de excitaciones electrónicas multipolares del punto cuántico. B = 0 T.

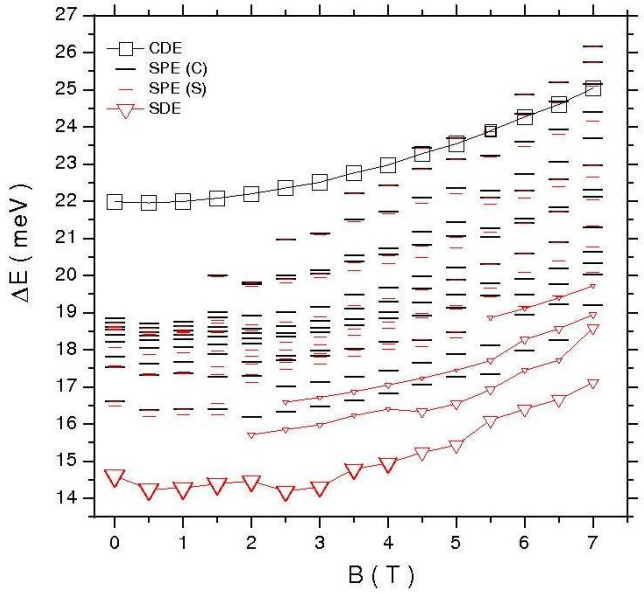

Figura 4. Espectro de excitaciones electrónicas monopolares ($\Delta l = 0$, $\Delta S_Z = 0$) vs campo magnético externo.

B. Espectros Raman en régimen no resonante ($h\nu_i < E_{gap}$)

En este régimen no existen resonancias con estados intermedios. Sin embargo, esto no implica que la física de la espectroscopia Raman pueda ser descrita en su totalidad con una aproximación que desprecie la contribución de dichos estados como la ORA. Las principales características de los espectros Raman en esta región son expuestos de manera resumida a continuación. Un análisis más amplio de los mismos puede ser consultado en la referencia [22].

1. Contribución de las excitaciones electrónicas multipolares en los espectros Raman

Espectros Raman asociados a excitaciones electrónicas en diferentes sectores de momentum angular y espín son mostrados en la Figura 5. Las intensidades Raman correspondientes a excitaciones monopolares y cuadrupolares ($\Delta l = 2$) exhiben magnitudes comparables aunque se observa un predominio de los picos Raman asociados a los modos monopolares. La contribución al espectro Raman en geometría no polarizada de las excitaciones de espín del tipo spin-flip ($\Delta S_Z = \pm 1$) es mucho más débil comparada con la contribución de los estados excitados de espín caracterizados por un cambio en el valor del espín total pero no en el valor de su proyección. Dado que ambos modos están muy cercanos en energías los picos Raman colectivos medidos en geometría no polarizada son adjudicables a estados excitados en los cuales la proyección total del espín del estado base no es modificada en el proceso de dispersión. Los espectros Raman asociados a excitaciones dipolares ($\Delta l = 1$) [18] revelan intensidades uno o dos órdenes de magnitud menores en comparación con las mostradas en la Figura 5.

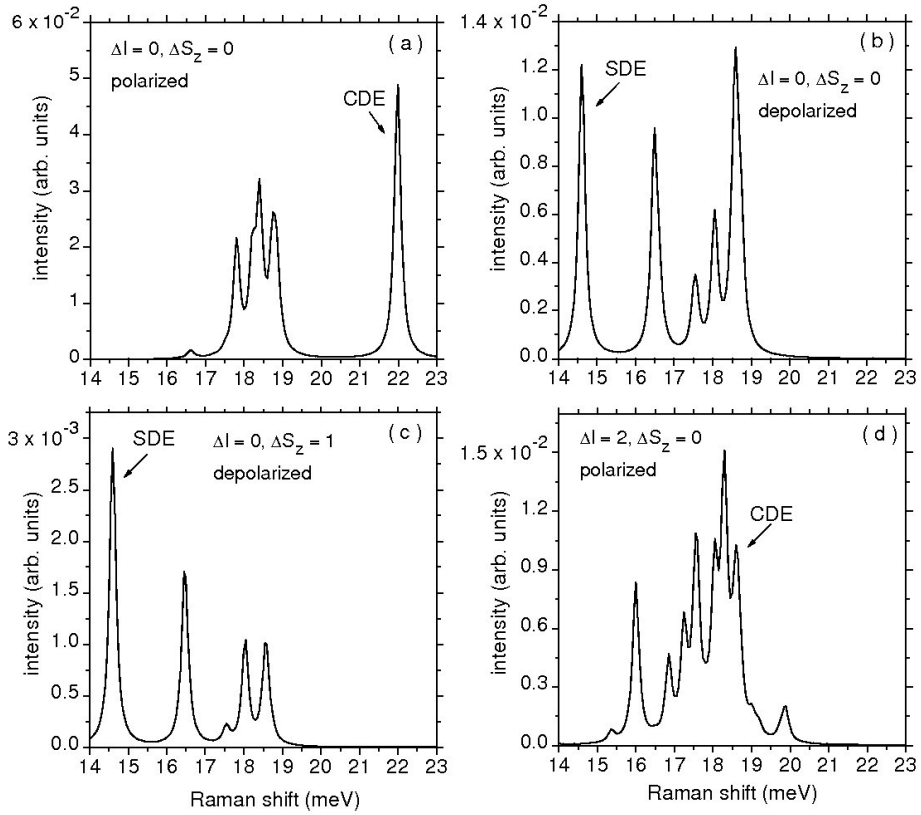

Figura 5. Espectros Raman para diferentes sectores de excitaciones electrónicas. $h\nu_i = E_{gap} - 5$ meV, B = 0 T.

2. Comportamiento de las intensidades Raman como función de la energía del láser incidente

Es posible, a partir del esquema de cálculo implementado, monitorear el valor de la intensidad Raman asociada a cualquier estado excitado del punto cuántico en la medida que se varía la energía del láser incidente. En esta región, donde la energía de la luz que incide sobre el punto es variada en el intervalo (E_{gap}-30 meV, E_{gap}), las intensidades Raman asociadas tanto a los modos SPEs como a los modos colectivos (CDEs, SDEs) muestran un comportamiento monótono creciente cuando $h\nu_i$ se incrementa. Este comportamiento se muestra en la Figura 6 donde hemos ploteado los valores de $|A_{fi}|^2$ para dos estados uniparticulares y el modo colectivo del sector monopolar de excitaciones electrónicas. Aunque no se han reportado mediciones de espectros Raman en esta región, desde el punto de vista teórico se predice un comportamiento de las intensidades Raman muy conveniente para la identificación de los picos en un experimento real. Otro aspecto a resaltar es que, efectivamente, existe un límite para el valor de energía del láser incidente, por debajo de la brecha energética del semiconductor, a partir del cual los picos más fuertes en el espectro están asociados a excitaciones colectivas. Dicho límite, a partir del cual la fenomenología del efecto Raman puede ser descrita con una aproximación del tipo de la ORA fue investigado en la referencia [12].

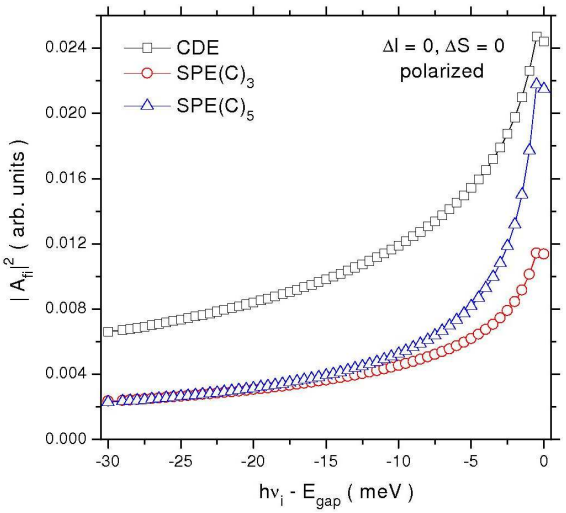

Figura 6. Comportamiento de $|A_{fi}|^2$ para el modo colectivo monopolar y dos modos uniparticulares de carga como función de la energía del láser incidente. B = 0 T.

3. Correlación entre las intensidades de los picos Raman y la densidad de estados finales

Es razonable esperar picos Raman intensos para valores de la energía de excitación donde existe una aglomeración de estados excitados finales de una partícula. Lo novedoso en este punto, mostrado para el caso de excitaciones monopolares en la Figura 7, es la estrecha correlación obtenida entre la densidad de niveles de energía de los SPEs de carga con la intensidad de los picos Raman obtenidos en la configuración de geometría polarizada y entre los SPEs de espín con la intensidad de los picos Raman obtenidos en la configuración de geometría no polarizada en ausencia de campos magnéticos externos. O sea, la correlación existente entre la intensidad de los picos Raman y la densidad de estados excitados uniparticulares está mediada también, en ausencia de campos magnéticos externos, por las reglas de selección del efecto Raman deducibles sólo para los modos colectivos.

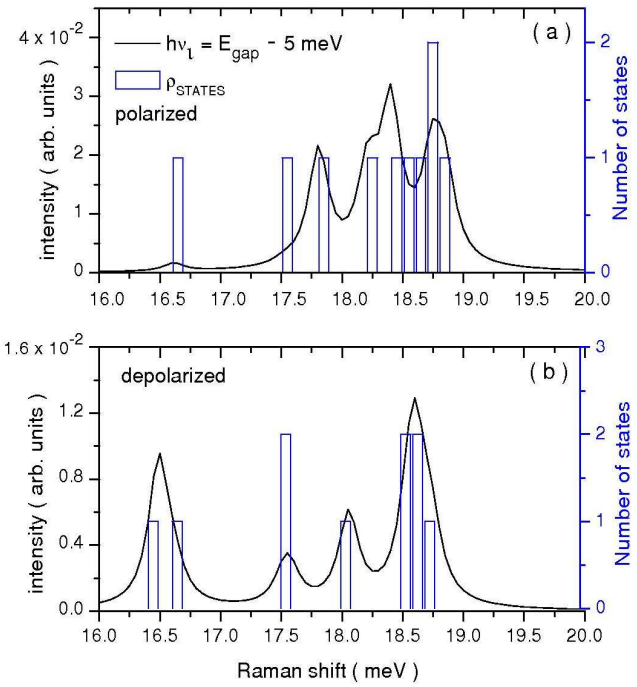

Figura 7. Espectros Raman de excitaciones monopolares en ambas geometrías. Comparación con la densidad de estados SPEs. B = 0 T.

4. Rompimiento de las reglas de selección del efecto Raman en un campo magnético externo

En presencia de un campo magnético externo perpendicular al plano de movimiento de los electrones confinados en el punto, las reglas de selección del efecto Raman se rompen parcialmente para los estados colectivos y drásticamente para las excitaciones de una partícula. Este efecto es ilustrado en la Figura 8 donde hemos ploteado los espectros Raman asociados a excitaciones monopolares para B = 0 y 1 T. Mediante el cálculo de las razones de polarización [23] de los picos Raman monopolares para B = 0, 1 T se evaluaron cuantitativamente los efectos del campo magnético en las reglas de selección de la dispersión Raman: (i) se chequearon para B = 0 las reglas de selección para las intensidades Raman asociadas a los estados colectivos, (ii) el análisis de las razones de polarización de las

intensidades Raman para cada modo uniparticular mostró que dichas excitaciones, al igual que los modos colectivos, obedecen las reglas de selección del efecto Raman en ausencia de campos magnéticos externos, (iii) la presencia de un campo magnético externo, en este caso B = 1 T, rompe las reglas de selección del efecto Raman parcialmente para los modos colectivos y drásticamente para los estados excitados uniparticulares.

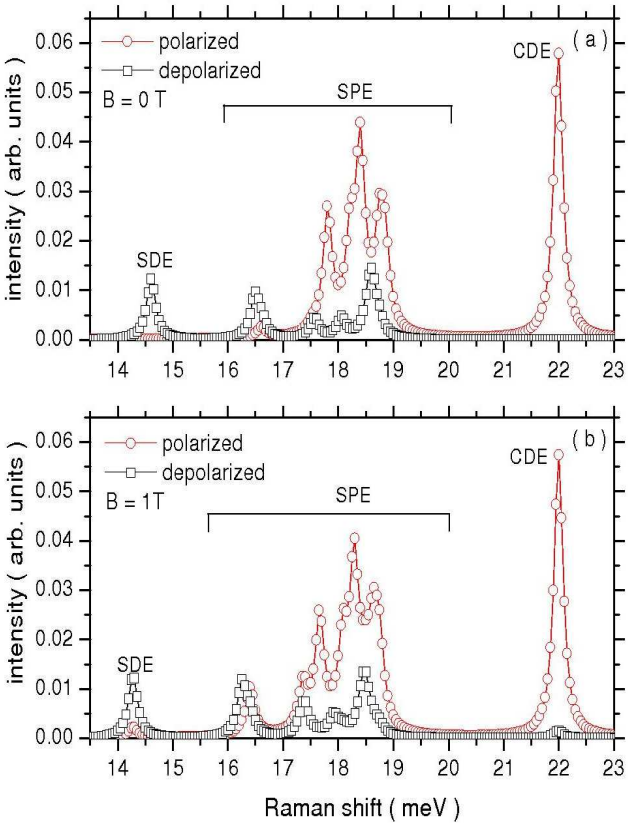

Figura 8. Espectros Raman de excitaciones monopolares para B = 0 y 1 T en ambas geometrías.

5. Regla del salto de la intensidad Raman cuando $h\nu_i = E_{gap}$

Este es un resultado bien interesante de esta investigación y está estrechamente ligado con lo explicado en la sección anterior. En presencia de un campo magnético externo si seguimos el comportamiento de la intensidad Raman correspondiente a un estado excitado de carga (espín) en geometría no polarizada (polarizada) como función de la energía del láser incidente, encontramos valores muy pequeños de las intensidades cuando $h\nu_i < E_{gap}$. Sin embargo, si $h\nu_i = E_{gap}$ la amplitud de transición Raman aumenta de manera abrupta. Este comportamiento lo denominamos la regla del salto para la intensidad Raman y es mostrado gráficamente en la Figura 9 para los modos colectivos monopolares en un campo magnético externo B = 4.5 T.

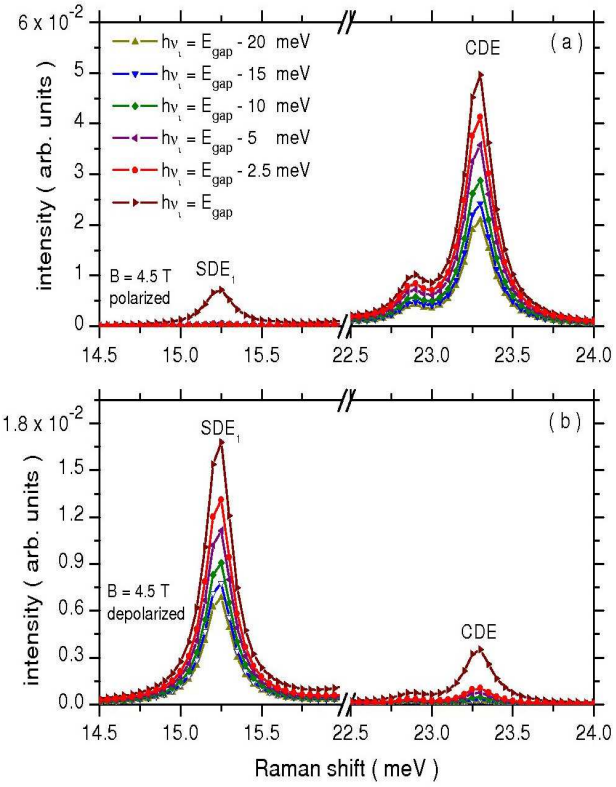

Figura 9. Espectros Raman de excitaciones monopolares en ambas geometrías para B = 4.5 T. Los picos Raman asociados a las excitaciones uniparticulares han sido substraídos de los gráficos.

El comportamiento de las intensidades Raman de estos mismos modos, en geometría polarizada para diferentes valores de $h\nu_i$ y del campo magnético externo B, es mostrado en la Figura 10. La regla del salto de la intensidad Raman es apreciable en la Figura 10 (b) para el modo colectivo de espín en todos los valores de campo excepto en los puntos B = 0 (regla de selección), 2.5, 3.0 y 5.0 T donde observamos un colapso de este comportamiento. Un análisis del mismo tipo al presentado en la Figura 10 se realizó para las excitaciones uniparticulares de bajas energías obteniéndose un resultado similar [23]. La regla del salto es obedecida por todos los modos monopolares para valores pequeños de B. Aunque esta regla no es universal respecto al campo magnético externo, constituye una herramienta útil para identificar la naturaleza de las excitaciones electrónicas en puntos cuánticos.

C. Espectros Raman en régimen de resonancia extrema ($h\nu_i \approx E_{gap}$)

Algunas de las características discutidas en la sección anterior se manifiestan también en este régimen, sin embargo, aparecen también nuevos efectos en los espectros Raman, característicos de la espectroscopia Raman en régimen de excitación resonante.

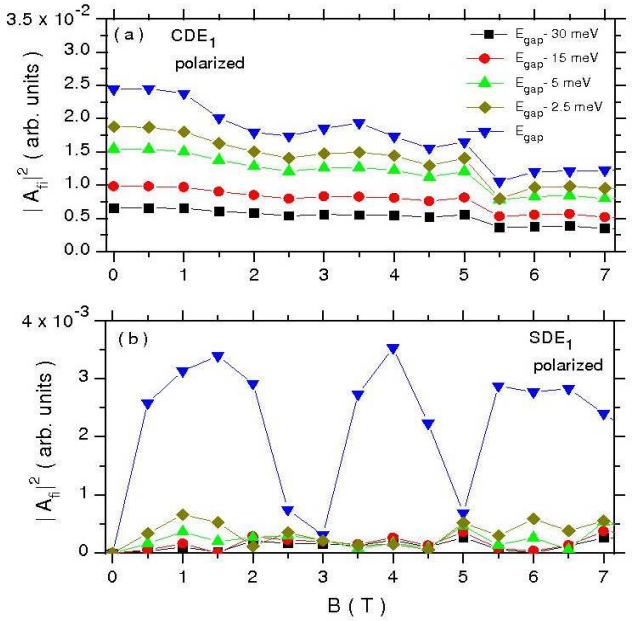

Figura 10. Comportamiento de las amplitudes de transición Raman correspondientes a CDE (a) y SDE1 (b) en geometría polarizada vs. B.

1. Predominio de los picos Raman correspondientes a excitaciones uniparticulares

Las intensidades Raman asociadas a las excitaciones uniparticulares experimentan un incremento notable en condiciones de excitación resonante. En este régimen la mayor contribución a la amplitud de transición Raman, Ecuación. (1), está dada por el estado intermedio en resonancia con la energía del láser incidente. Este estado (virtual) decae indiscriminadamente a estados excitados uniparticulares o colectivos. Como fue mostrado en las Figuras 3 y 4, existe un número grande de estados finales uniparticulares compactados en regiones estrechas de la energía de excitación (picos en la densidad de estados finales) contribuyendo esto a que los picos Raman en esta región sean mayores que aquellos correspondientes a los modos colectivos. Este resultado está ilustrado en la Figura 11, la cual muestra los espectros Raman monopolares para diferentes valores de $h\nu_i$.

2. Correlación entre las intensidades de picos Raman individuales y la densidad de niveles de energía de los estados intermedios

En la Figura 12 ploteamos los valores de $|A_{fi}|^2$ como función de hvi en el intervalo (E_{gap},E_{gap} + 30 meV) en conjunto con la densidad de niveles de energías de los estados intermedios para los mismos estados finales usados en la construcción de la Figura 6. Como resultado de las resonancias con los estados intermedios podemos observar fluctuaciones abruptas en los valores de las amplitudes de transición Raman ploteados. Los picos en los valores de $|A_{fi}|^2$ reproducen, fundamentalmente en la región donde $h\nu_i - E_{gap} \leq 15$ meV, los inicios de los conglomerados de estados intermedios.

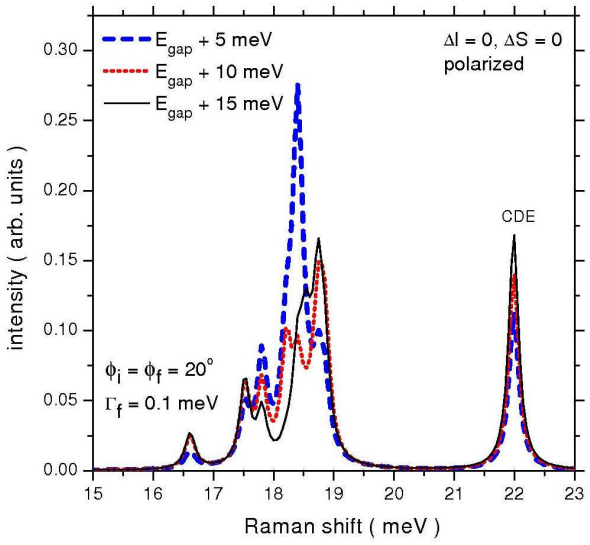

Figura 11. Espectros Raman de excitaciones monopolares en régimen de resonancia extrema. B = 0 T.

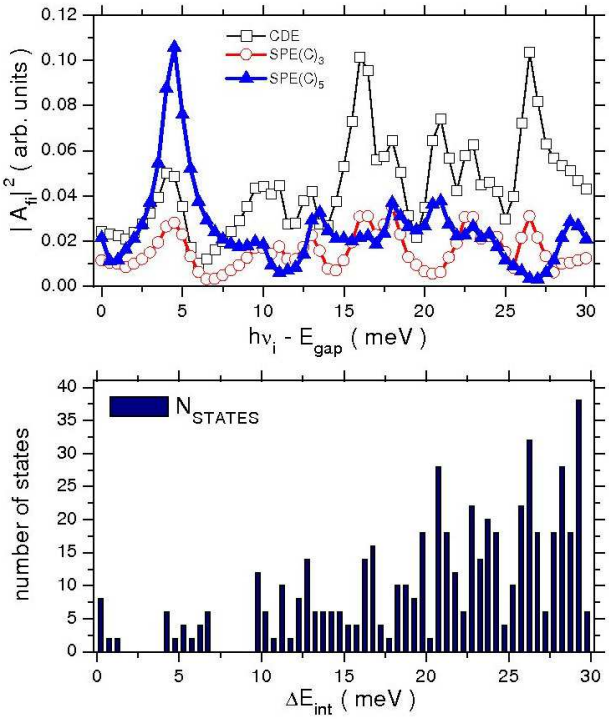

Figura 12. Comportamiento de $|A_{fi}|^2$ asociados a excitaciones monopolares en régimen resonante en conjunto con la densidad de estados intermedios. B = 0 T.

3. Efectos de interferencia en el cálculo de la amplitud de transición Raman

En la Figura 13 evaluamos la contribución de los diferentes estados intermedios que entran en la suma de la Ecuación (1). En esta figura comparamos la magnitud $|A_{fi}|^2$ asociada a un estado final (uniparticular) de espín con las contribuciones individuales del estado intermedio en resonancia con la energía del láser incidente. Como conclusión podemos extraer que

sólo aquellos estados intermedios cuyas energías están muy cercanas al valor de $h\nu_i$ contribuirán a la amplitud de transición Raman, por tanto los efectos de interferencia en el cálculo de A_{fi} son débiles.

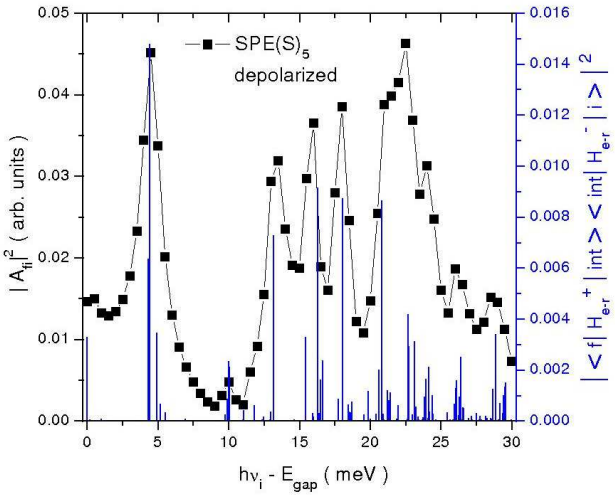

Figura 13. $|A_{fi}|^2$ asociado a una excitación uniparticular de espín en conjunto con la contribución individual de cada estado intermedio en resonancia con $h\nu_i$. B = 0 T.

D. Espectros Raman en régimen resonante en la región donde $h\nu_i \rangle\rangle E_{gap}$

Como mencionamos al inicio de la sección III, para el cálculo de la amplitud de transición Raman en este régimen asumimos que el parámetro Γ_{int}, asociado al tiempo de vida del estado intermedio |int>, experimenta un incremento abrupto cuando $E_{int} > E_{gap} + \hbar\omega_{LO}$. Como resultado, la contribución de estos estados a A_{fi} no es resonante, por lo que la intensidad de los picos Raman serán funciones suaves respecto a $h\nu_i$, en similitud a lo explicado en la sección III B2. Sin embargo, un incremento en la intensidad Raman dado un valor particular de $h\nu_i$ en este régimen no sólo puede estar dado por un incremento en el valor del producto $\langle f | \hat{H}^{+}_{e-r} | X \rangle \langle X | \hat{H}^{-}_{e-r} | i \rangle$, una disminución en el valor del parámetro Γ_{int} se manifiesta también en un aumento de la intensidad Raman. En el conjunto de estados intermedios incluidos en el cálculo de la amplitud de transición Raman pueden existir estados con propiedades físicas específicas [18] que se manifiestan en una disminución del Γint asociado. En la Figura 14 mostramos un espectro Raman calculado con $h\nu_i = E_{gap} + 40$ meV. Esta energía de incidencia la hemos escogido en resonancia con un estado intermedio cuya anchura energética ha sido fijada a $\Gamma_{int} = 2$ meV. En la figura se puede observar un espectro Raman donde el pico más intenso corresponde al modo colectivo monopolar de carga. La inclusión de los tiempos de vida de los estados intermedios [24] en el esquema de cálculo implementado podría complementar cuantitativamente la idea cualitativa expuesta en esta sección, lo cual explicaría la fenomenología observada en este régimen.

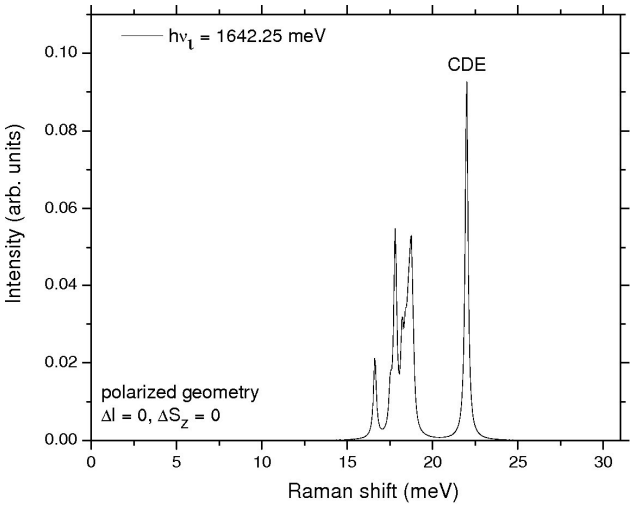

Figura 14. Espectro Raman monopolar en geometría polarizada. $h\nu_i = E_{gap} + 40$ meV. B = 0 T.

IV. CONCLUSIONES

En este trabajo hemos implementado una esquema de cálculo consistente de la amplitud de transición Raman asociada a excitaciones electrónicas en un punto cuántico cargado con 42 electrones. Los espectros Raman calculados han revelado características muy interesantes y una gran sensibilidad con respecto a la energía de la luz incidente y a la presencia o no de campos magnéticos externos. En la región de régimen no resonante, las intensidades de los picos Raman dependen suavemente de la energía del láser incidente. Para B = 0, las reglas de selección del efecto Raman, deducibles a partir de la ORA para los modos colectivos, es obedecida también por los estados excitados uniparticulares. Esto implica, que es posible obtener información del perfil de la densidad de estados finales excitados a partir de la estructura del espectro Raman medido o calculado. En presencia de campos magnéticos externos, se rompen las reglas de selección de la polarización del efecto Raman, particularmente cuando $h\nu_i$ es incrementado hasta la brecha energética del semiconductor, efecto que hemos denominado regla del salto de la intensidad Raman. En régimen de excitación resonante las intensidades Raman muestran un comportamiento de fuertes fluctuaciones con la energía de la luz incidente como resultados de las resonancias con los estados intermedios. En este régimen los picos más intensos en los espectros están en correspondencia con estados excitados uniparticulares. Se determinó que los efectos de interferencia en el cálculo de la amplitud de transición Raman son débiles, quedando el valor de esta magnitud determinado por la contribución de los estados intermedios cuasi-resonantes con la energía del láser incidente. Una

interpretación cualitativa para los espectros Raman en la región donde la energía de la radiación incidente está muy por encima de la brecha energética del semiconductor es propuesta. Estos resultados complementan las interpretaciones que se han brindado a los trabajos experimentales publicados en el tema y estimulan la realización de futuros experimentos que podrían ayudar a la comprensión de aspectos complejos de la espectroscopia Raman de excitaciones electrónicas en puntos cuánticos.

REFERENCIAS

[1] HEITMANN, D. and J.P. KOTTHAUS (1993): **Phys. Today** 46(6), 56 y referencias en ese trabajo.

[2] WOJS, A.; L. JACAK and P. HAWRYLAK (1998): **Quantum Dots**, Springer-Verlag.

[3] Proceedings of the International Conference on Quantum Dots (2004): **Physica** E 26.

[4] STRENZ, R. **et al**. (1994): **Lett**. 73, 3022.

[5] SCHÜLLER, C. **et al**. (1996): **Phys. Rev**. B 54, 17304.

[6] LOCKWOOD, D.J. **et al**. (1996): **Phys. Rev. Lett**. 77, 354.

[7] SCHÜLLER, C. **et al**. (1998): **Phys. Rev. Lett**. 80, 2673.

[8] SOTOMAYOR-TORRES, C.M.; D.J. LOCKWOOD, and P.D. WANG (2000): **J. Electron. Mater**. 29, 576.

[9] SHULLER, C.; C. STEINEBACH and D. HEITMANN (2001): **Solid State Communications** 119 323.

[10] BROCKE, T. **et al**. (2003): **Phys. Rev. Lett**. 91, 257401.

[11] PASCUAL, C. **et al**., cond-mat/0506143.

[12] GONZÁLEZ, A. and A. DELGADO (2005): **Physica** E 27, 5.

[13] REBOREDO, F.A. and C.R. PROETTO (1994): **Phys. Rev**. B 50 15174.

[14] BARATAAS, A.; A.G. MALSHOKOV; V. GUDMUNDSSON and K.A. CHAO (1996): **J. Phys. Cond. Matt**. 8 L325.

[15] STEINEBACH, C. **et al**. (1998): **Phys. Rev.** B 57 1703.

[16] SERRA, LI. **et al**. (1999): **Phys. Rev**. B 59 15290.

[17] LIPPARINI, E. (1999): **Phys. Rev**. B 60 8734.

[18] DELGADO, A.; A. GONZÁLEZ and D.J. LOCKWOOD (2004): **Phys. Rev**. B 69, 155314.

[19] DELGADO, A.; A. GONZÁLEZ and E. MENÉNDEZ-PROUPIN (2002): **Phys. Rev**. B 65 155306 .

[20] LOUDON, R. (1964): **Adv. Phys**. 13, 423.

[21] RING, P. and P. SCHUCK (1980): The Nuclear Many-Body Problem (Springer-Verlag, New-York.

[22] DELGADO, A.; A. GONZÁLEZ and D.J. LOCKWOOD (2005): **Solid State Communications** 135, 554-562.

[23] _____ (2005): **Phys. Rev**. B 71, 241311(R).

[24] ODRIAZOLA, A.; A. DELGADO y A. GONZÁLEZ: Trabajo en curso.