

**CENTRO DE APLICACIONES TECNOLOGICAS Y  
DESARROLLO NUCLEAR**

**DISPERSION INELASTICA DE LUZ  
POR EXCITACIONES ELECTRONICAS  
EN ATOMOS ARTIFICIALES**

Tesis en opción al grado de Doctor en Ciencias Físicas

Autor: M.C. Alain Delgado Gran  
Tutor: Dr.Cs. Augusto de Jesús González García

La Habana, Cuba, 2006



*con todo mi amor para Verónica y Alejandro*

•

## Agradecimientos

A mi tutor y amigo Augusto González García quién ha dedicado 6 años a mi formación profesional y ética.

A mis amigos de siempre César y Guido, en quienes encontré a críticos severos y entusiastas, dispuestos a discutir mis resultados y hacer este trabajo permanentemente perfectible. A Luis Baly por sus innumerables dudas. A mis colegas todos del departamento de Física del Centro de Aplicaciones Tecnológicas y Desarrollo Nuclear.

A los integrantes del grupo de Física Teórica del Instituto de Cibernética, Matemática y Física del cual me siento parte. A Hugo Pérez, Alejandro Cabo y a Aurora Pérez por ese amor por la ciencia en el que me han involucrado. A mis compañeros de estudio, Zochil, Elizabeth, Alexander, el Danny, David y Alain Ulacia quienes han hecho, de la jornada laboral, un espacio de tiempo añorado.

A mis compañeros de curso, Manuel Ballester, Maykel Ballester, Neyvi López, Carlos Trallero y Onexis Alfonso quiénes a lo largo de estos años han estado al tanto de mi vida personal y profesional.

A mis profesores del Instituto Superior de Ciencias y Tecnología Nucleares quiénes me prepararon para iniciar este viaje por la ciencia.

Quisiera agradecer también a mis colegas Roberto Capote, Ricardo Pérez, Boris Rodríguez y Eduardo Menéndez por compartir, sin recato, sus conocimientos y experiencias.

Al Instituto de las Ciencias Microestructurales de Canadá, del Consejo Nacional de Investigaciones de ese país. A los profesores David Lockwood y Pawel Hawrylak, por propiciar mi interacción con grupos científicos de excelencia y facilitar la presentación de nuestros resultados en eventos internacionales.

A Jaime, Patricia y Vanessa por haberme permitido ser un miembro más de tan maravillosa familia.

A Julieta y Noel por poner su talento en función de mis intereses.

A mi abuelo Moris quién es el responsable de mi vocación por la física. A mi abuelo Edesio quién me dio su sabiduría y cariño. A mis abuelas Nena y Marta quiénes me han dado tanto amor y cuidado. A mi padre por su ejemplo y valores. A mi madre por su luz. A mis hermanos por sus sonrisas. A mi familia.

A Cuba, donde nací, crecí y me eduqué.



## Resumen

El estudio de las propiedades electrónicas y ópticas de los puntos cuánticos semiconductores define una de las áreas más investigadas en los últimos años. Considerables esfuerzos, tanto teóricos como experimentales, se han dedicado a la caracterización del espectro de excitaciones electrónicas de estas nanoestructuras. Entre las técnicas experimentales más ventajosas para el estudio de los estados excitados en puntos cuánticos se encuentra la dispersión inelástica de luz (Raman), temática en la cual se han publicado ya, algunos trabajos experimentales y teóricos. En la presente tesis llevamos a cabo, por primera vez, cálculos teóricos de la sección eficaz de dispersión Raman en puntos cuánticos poblados con decenas de electrones (puntos cargados) o pares electrón-hueco (puntos neutros). La expresión para el cálculo de la amplitud de transición Raman es obtenida a segundo orden de teoría de perturbaciones dependiente del tiempo. La implementación del método de Hartree-Fock (HF), la Aproximación de Fase Aleatoria (RPA) y la Aproximación partícula-partícula Tamm-Dancoff (pp-TDA) ha permitido conformar un esquema de cálculo para la amplitud de transición Raman en términos de las energías y funciones de onda de los estados multielectrónicos en el punto. El espectro de excitaciones electrónicas del punto es obtenido de forma independiente al cálculo de la sección eficaz Raman. Los estados excitados del medio dispersor son clasificados como excitaciones colectivas o uniparticulares a través del cálculo de los elementos de matriz de los operadores multipolares. Los estados intermedios del proceso de dispersión contienen un par electrón-hueco adicional. Los estados uniparticulares que describen el hueco en la banda de valencia son tratados según el formalismo de Kohn y Luttinger. Además, en nuestro modelo consideramos la presencia de un campo magnético externo perpendicular al plano del punto. Los espectros de excitaciones electrónicas multipolares, calculados mediante la RPA, para un punto cuántico en forma de disco cargado con 42 electrones, son estudiados para diferentes valores del campo magnético en el intervalo entre 0 y 7 T. Los espectros Raman correspondientes a dichas excitaciones son calculados en diferentes regiones de la energía del láser incidente. Los espectros Raman obtenidos en régimen no resonante revelan un conjunto de ventajas para la identificación y seguimiento de picos individuales. Para  $B = 0$  los picos Raman correspondientes a las excitaciones de carga son obtenidos cuando la polarización de los fotones dispersados es paralela a la polarización de los fotones incidentes (polarización paralela) mientras que los picos asociados a las excitaciones de espín son observados cuando los vectores de polarización de los fotones incidentes y dispersados son ortogonales entre si (polarización cruzada). El cálculo de las razones de polarización de los diferentes picos Raman en presencia de un campo magnético externo, demuestra un rompimiento de las reglas de selección de la dispersión Raman electrónica. Mostramos además, que el rompimiento de dichas reglas de selección bajo condiciones de resonancia con la brecha energética del punto puede constituir una herramienta efectiva para identificar la naturaleza (carga o espín) de las excitaciones electrónicas calculadas. Los espectros Raman calculados en régimen de resonancia extrema exhiben un predominio de los picos correspondientes a las excitaciones uniparticulares. Las principales características observadas experimentalmente para los espectros Raman medidos en régimen resonante donde la energía del láser incidente se encuentra notablemente por encima de la brecha del punto, son modeladas teóricamente en términos de los tiempos de vida de los estados intermedios del proceso de dispersión. Finalmente presentamos algunos espectros calculados para un punto cuántico neutro con 42 pares electrón-hueco. En general, los resultados obtenidos son discutidos haciendo referencia a los principales resultados experimentales publicados en la literatura.



# Índice general

<b>1. INTRODUCCION</b>	<b>15</b>
<b>2. ESTADOS UNIPARTICULARES EN LA APROXIMACION DE HARTREE-FOCK EN PUNTOS CUANTICOS</b>	<b>23</b>
2.1. Estructura de bandas del GaAs . . . . .	23
2.2. Estados uniparticulares de electrones en la banda de conducción en un punto cuántico parabólico . . . . .	28
2.3. Ecuaciones de Hartree-Fock para $N_e$ electrones confinados en un punto cuántico	30
2.4. Estados uniparticulares de un hueco en la banda de valencia en presencia de $N_e$ electrones . . . . .	33
2.5. Ecuaciones de Hartree-Fock en sistemas neutros ( $N_e = N_h$ ) . . . . .	37
2.6. Conclusiones parciales . . . . .	40
<b>3. EXCITACIONES ELECTRONICAS EN PUNTOS CUANTICOS</b>	<b>41</b>
3.1. Excitaciones intrabandas . . . . .	41
3.1.1. Aproximación de la fase aleatoria (RPA) . . . . .	43
3.1.2. Ecuaciones de la RPA para un punto cuántico cargado . . . . .	45
3.1.3. Elemento de matriz de los operadores multipolares. . . . .	48
3.1.4. Ecuaciones de la RPA en sistemas neutros . . . . .	52
3.2. Excitaciones interbandas . . . . .	56
3.2.1. Aproximación de Tamm-Dancoff (pp-TDA) . . . . .	56
3.3. Conclusiones parciales . . . . .	61
<b>4. DISPERSION INELASTICA DE LUZ (RAMAN) POR EXCITACIONES ELECTRONICAS EN PUNTOS CUANTICOS: CONCEPTOS Y FORMALISMO</b>	<b>63</b>
4.1. Definiciones básicas . . . . .	64
4.2. Configuración del experimento Raman . . . . .	66
4.3. Amplitud de transición y sección eficaz diferencial de dispersión Raman . . . . .	68

4.4. Esquema computacional para evaluar la amplitud de transición Raman . . . . .	72
4.4.1. Puntos cuánticos cargados . . . . .	73
4.4.2. Puntos cuánticos neutros . . . . .	77
4.5. Expresión aproximada para la amplitud de transición Raman en régimen no resonante . . . . .	79
4.6. Conclusiones parciales . . . . .	81
<b>5. ANALISIS DE LOS RESULTADOS</b>	<b>83</b>
5.1. Espectros de excitaciones electrónicas para un punto cuántico cargado . . . . .	83
5.2. Espectros Raman calculados para un punto cuántico cargado . . . . .	89
5.2.1. Régimen no resonante . . . . .	89
5.2.2. Régimen de resonancia extrema . . . . .	99
5.2.3. Espectros Raman en régimen resonante en la región donde la energía del láser incidente está notablemente por encima de la brecha energética de la estructura semiconductor . . . . .	103
5.3. Espectros Raman calculados para puntos cuánticos neutros . . . . .	106
5.4. Conclusiones parciales . . . . .	109
<b>6. CONCLUSIONES Y PERSPECTIVAS</b>	<b>111</b>
<b>A. ELEMENTO MATRICIAL DE LA INTERACCION DE COULOMB</b>	<b>115</b>
<b>B. ELEMENTOS MATRICIALES DEL HAMILTONIANO DE KOHN-LUTTINGER</b>	<b>119</b>
<b>C. VALORES MEDIOS INVOLUCRADOS EN LAS ECUACIONES DE LA RPA</b>	<b>121</b>
C.1. PUNTOS CUANTICOS CARGADOS . . . . .	121
C.1.1. Primer valor medio en la ecuación (3.21) ( $A_{\sigma\lambda,\tau\mu}$ ) . . . . .	122
C.1.2. Segundo valor medio en la ecuación (3.21) ( $B_{\sigma\lambda,\mu\tau}$ ) . . . . .	122
C.1.3. Primer valor medio en la ecuación (3.22) ( $-B_{\lambda\sigma,\tau\mu}$ ) . . . . .	122
C.1.4. Segundo valor medio en la ecuación (3.22) ( $-A_{\lambda\sigma,\mu\tau}$ ) . . . . .	123
C.2. PUNTOS CUANTICOS NEUTROS . . . . .	123
C.2.1. Primer valor medio en la ecuación (3.61) ( $A_{\sigma\lambda,\tau\mu}^{ee}$ ) . . . . .	123
C.2.2. Segundo valor medio en la ecuación (3.61) ( $A_{\sigma\lambda,\tau\mu}^{eh}$ ) . . . . .	124
C.2.3. Tercer valor medio en la ecuación (3.61) ( $B_{\sigma\lambda,\mu\tau}^{ee}$ ) . . . . .	124
C.2.4. Cuarto valor medio en la ecuación (3.61) ( $B_{\sigma\lambda,\mu\tau}^{eh}$ ) . . . . .	125

C.2.5. Valores medios en la ecuación (3.62) . . . . .	125
C.2.6. Primer valor medio en la ecuación (3.63) ( $-B_{\lambda\sigma,\tau\mu}^{ee}$ ) . . . . .	126
C.2.7. Segundo valor medio en la ecuación (3.63) ( $-B_{\lambda\sigma,\tau\mu}^{eh}$ ) . . . . .	126
C.2.8. Tercer valor medio en la ecuación (3.63) ( $-A_{\lambda\sigma,\mu\tau}^{ee}$ ) . . . . .	126
C.2.9. Cuarto valor medio en la ecuación (3.63) ( $-A_{\lambda\sigma,\mu\tau}^{eh}$ ) . . . . .	127
C.2.10. Valores medios en la ecuación (3.64) . . . . .	127
<b>D. ELEMENTOS DE MATRIZ DE LOS OPERADORES MULTIPOLARES</b>	<b>129</b>
<b>Bibliografía</b>	<b>131</b>

# Índice de figuras

2.1. Configuración de la red cristalina de la blenda de zinc. . . . .	24
2.2. Primera zona de Brillouin correspondiente a la blenda de zinc. $\Gamma$ , $X$ y $L$ son puntos y $\Delta$ y $\Lambda$ son ejes caracterizados por su alta simetría. . . . .	25
3.1. Representación esquemática de las excitaciones electrónicas intrabandas e interbandas en un punto cuántico cargado (a) y neutro (b). $\xi_f^e$ y $\xi_f^h$ denotan los niveles de Fermi para los electrones y huecos respectivamente. . . . .	42
4.1. Experimento Raman imaginario. . . . .	64
4.2. Espectro de la luz dispersada. . . . .	65
4.3. Configuración del experimento Raman: (a) polarización paralela, (b) polarización cruzada u orthogonal. . . . .	67
4.4. Componentes de los vectores de polarización del campo eléctrico de la radiación incidente y dispersada en el plano del punto cuántico: (a) polarización paralela, (b) polarización cruzada. . . . .	68
4.5. Amplitud de transición Raman y su interpretación en términos de transiciones virtuales para el caso de puntos cuánticos cargados. . . . .	73
5.1. Espectro de excitaciones electrónicas en el punto cuántico modelado. $B = 0$ T. .	84
5.2. Espectro de excitaciones monopolares para diferentes valores del campo magnético externo en el intervalo $B = [0, 7$ T]. . . . .	85
5.3. Espectro de excitaciones dipolares en presencia de un campo magnético externo perpendicular al plano del punto cuántico. . . . .	87
5.4. Espectro de excitaciones cuadrupolares en presencia de un campo magnético externo perpendicular al plano del punto cuántico. . . . .	88
5.5. Espectros Raman calculados en diferentes sectores de $\Delta l$ y $\Delta s_z$ . La energía del láser incidente es $h\nu_i = E'_{\text{gap}} - 5$ meV. $B = 0$ T. . . . .	90
5.6. Comportamiento de $ A_{fi} ^2$ para las excitaciones electrónicas monopolares CDE, SPE(C) <sub>3</sub> y SPE(C) <sub>5</sub> con energías de excitación $\Delta E_f = 21.99$ , $17.8$ y $18.4$ meV, respectivamente, como función de $h\nu_i$ . . . . .	92

5.7. Espectros Raman monopulares calculados en polarización paralela y ortogonal. Comparación con la densidad de estados finales SPE <sub>s</sub> . . . . .	93
5.8. Espectros Raman monopulares calculados en polarización paralela y ortogonal para $B = 0$ (a) y 1 T (b). . . . .	95
5.9. Comportamiento de los picos Raman colectivos para $B = 4.5$ T en la medida en que $h\nu_i$ se aproxima al valor de $E'_{\text{gap}}$ . . . . .	96
5.10. Valores calculados de $ A_{fi} ^2$ correspondientes a los modos monopulares CDE y SDE <sub>1</sub> como función del campo magnético externo. . . . .	97
5.11. Valores calculados de $ A_{fi} ^2$ correspondientes a los modos monopulares SPE(C) <sub>1</sub> y SPE(S) <sub>1</sub> como función del campo magnético externo. . . . .	98
5.12. Espectros Raman en el sector $\Delta l = 0$ , $\Delta s_z = 0$ calculados en polarización paralela en la región de resonancia extrema para $B = 0$ . . . . .	100
5.13. (a) Comportamiento de $ A_{fi} ^2$ para las mismas excitaciones electrónicas mostradas en la figura 5.6 como función de $h\nu_i$ , (b) histograma de estados intermedios. . . . .	101
5.14. Valores de $ A_{fi} ^2$ calculados en polarización ortogonal correspondientes al estado SPE(S) <sub>5</sub> con energía de excitación $\Delta E_f = 18$ meV y la contribución individual de los estados intermedios a la suma (4.33). $B = 0$ . . . . .	102
5.15. Representación esquemática de las resonancias de entrada y salida en el efecto Raman. . . . .	104
5.16. Intensidad del pico Raman asociado al modo colectivo de carga monopolar CDE como función de $h\nu_i$ . $B = 0$ . . . . .	105
5.17. Espectro Raman monopolar calculado en polarización paralela. $B = 0$ . . . . .	106
5.18. Espectros Raman calculados en polarización paralela bajo condiciones de incidencia normal en la región de resonancia extrema. La contribución a la regla de suma ha sido superpuesta en la figura mediante barras verticales. . . . .	107
5.19. Espectros Raman calculados en los sectores $\Delta l = -2$ (a) y (b) $\Delta l = +2$ . $\phi_i = \phi_f = \pi/6$ . . . . .	108

## Índice de cuadros

# Capítulo 1

## INTRODUCCION

Resulta muy difícil en la actualidad imaginar la Física del Estado Sólido sin las heteroestructuras semiconductoras. El estudio de las propiedades físicas de las heteroestructuras semiconductoras, especialmente de las heteroestructuras dobles como los pozos cuánticos, alambres cuánticos y puntos cuánticos, constituye actualmente el objeto de estudio de las dos terceras partes de todos los grupos de investigación en la física de los semiconductores.

El inicio de los años 70 marcó una nueva etapa en la investigación de la estructura electrónica de sistemas con dimensionalidad reducida con la aparición de las heteroestructuras semiconductoras bidimensionales, denominadas pozos cuánticos [1, 2]. Un pozo cuántico se origina cuando una capa muy fina de un material semiconductor es depositada entre dos capas de otro material semiconductor con un valor más grande de la energía de la banda de conducción. Esta diferencia entre las energías de las bandas provoca un confinamiento de los electrones en la capa intermedia. Por tanto, el movimiento de los electrones enlazados en dicha capa es bidimensional y las excitaciones en la dirección perpendicular al plano de movimiento se encuentran cuantizadas (excitaciones inter-subbandas). Las propiedades de los sistemas bidimensionales han sido extensivamente estudiadas y los pozos cuánticos han sido usados para la implementación de numerosos dispositivos electrónicos [3].

En la década del 80 el progreso alcanzado en las tecnologías de crecimiento de materiales y en el estudio de la física de las heteroestructuras bidimensionales y sus aplicaciones prácticas, motivó en gran parte de la comunidad científica el estudio de sistemas con una dimensionalidad aun más reducida: alambres cuánticos (*quantum wires*) y puntos cuánticos (*quantum dots*). A diferencia de los pozos cuánticos, donde los portadores están confinados en la dirección de crecimiento y pueden moverse libremente en un plano, los electrones en un alambre cuántico están confinados en dos direcciones espaciales y su movimiento libre es sólo posible a lo largo del eje del alambre [4]. Dichos sistemas pueden ser obtenidos, por ejemplo, en forma de tiras miniaturizadas construidas a partir de una muestra que contiene un pozo cuántico. En puntos cuánticos tenemos, en efecto, “átomos artificiales” donde los portadores de carga están confinados en las tres direcciones espaciales y por tanto, están caracterizados por un espectro de energía completamente discreto [5].

Los puntos cuánticos semiconductoros constituyen el objeto de estudio de esta tesis. Existen dos factores fundamentales que han motivado el creciente ritmo de investigación en estas nanoestructuras semiconductoras. El primero, de origen científico, está dado por la posibilidad que encontramos en estos sistemas de crear potenciales artificiales de confinamiento para los

electrones y huecos en el material semiconductor con longitudes comparables o menores que la longitud de onda de De Broglie. En consecuencia con esto, los efectos cuánticos del confinamiento no sólo son visibles en su máxima expresión sino que, a su vez, pueden ser controlados a priori. Los procedimientos actuales implementados para la síntesis de estos “átomos artificiales” brindan la posibilidad de controlar sus dimensiones, su geometría, la estructura de sus niveles de energía así como el número de partículas confinadas en su interior. En ese sentido estas nanoestructuras constituyen también mini-laboratorios que permiten la evaluación de métodos y formalismos teóricos de la física de muchos cuerpos. Un segundo aspecto importante está dado por el hecho de que los puntos cuánticos han permitido ampliar considerablemente el rango de aplicaciones de los formalismos y leyes que conforman la mecánica cuántica.

Existen diversos métodos para la fabricación de puntos cuánticos en materiales semiconductores. Uno de los primeros, denominado método de ataque químico, fue implementado por Reed y colaboradores [6]. En esta técnica los puntos cuánticos son obtenidos a partir de una heteroestructura semiconductor que contiene un gas electrónico bidimensional mediante la combinación de técnicas litográficas de alta resolución y posteriormente, un ataque químico llevado a cabo con el uso de soluciones especiales [7]. Mediante este procedimiento se obtienen puntos típicamente con simetría cilíndrica y dimensiones radiales entre 10 y 250 nm. Otro método consiste en la creación de electrodos microscópicos los cuales son depositados sobre la superficie de un pozo cuántico mediante técnicas litográficas. La aplicación de voltajes adecuados a estos electrodos produce un campo eléctrico espacialmente modulado que localiza los electrones dentro de un área sumamente pequeña [8]. Una ventaja de este método radica en que el potencial de confinamiento lateral creado de esta manera se encuentra exento de los efectos de bordes característicos de las estructuras obtenidas por el método químico. Con el uso de estos electrodos es posible estudiar tanto puntos cuánticos aislados [9, 10] como grandes arreglos de estos [11, 12, 13].

Es posible también crear puntos cuánticos en la forma de microcristales semiconductores inmersos en matrices dieléctricas de vidrio. El primer experimento basado en esta idea fue llevado a cabo por Ekimov [14] en el cual, un vidrio de Silicato que contenía aproximadamente un 1 % de los compuestos CdS, CuCl, CdSe, CuBr en fase semiconductor, fue calentado durante varias horas a una temperatura de cientos de grados centigrados. Este proceso dio lugar a la formación de microcristales cuyos radios oscilaban en un rango entre 1.2 y 38 nm.

Durante los últimos años se ha demostrado que uno de los métodos más ventajosos para la obtención de arreglos ordenados de puntos cuánticos, es aquel que utiliza el fenómeno de la auto-organización o auto-ensamblaje sobre una superficie cristalina. Cuando la constante de la red del sustrato y el material cristalizado difieren considerablemente (7 % para el caso del GaAs y InAs) solamente las primeras monocapas cristalizan de forma epitaxial. Cuando cierto espesor crítico es excedido, la aparición de tensiones significativas en la capa conduce a un rompimiento de la estructura ordenada y a la creación espontánea de islotes distribuidos aleatoriamente con formas y tamaños similares. Esta transición de fase es conocida como transición de Stranski-Krastanow [15]. La formación espontánea de nanoestructuras sobre superficies cristalinas ha sido objeto de rigurosas investigaciones teóricas [16, 17]. Recientemente se han reportado arreglos de puntos cuánticos muy uniformes como resultado de depositar InAs sobre GaAs mediante una técnica conocida como Epitaxia de Haces Moleculares (MBE) [18, 19]. En general, las formas y tamaños de los puntos cuánticos auto-ensamblados (SAQDs) dependen fundamentalmente de factores tales como: la intensidad de las tensiones en la capa del material semiconductor depositado dependiente, lógicamente, del parámetro de desajuste de las constantes de la red, la temperatura

bajo la cual es llevado a cabo el proceso de crecimiento y de la velocidad de crecimiento, o sea, del número de monocapas depositadas por unidad de tiempo (*growth rate*). Las observaciones de líneas de luminiscencia ultrafinas ( $\text{FWHM} < 0.15 \text{ meV}$ ) [18, 20] provenientes de muestras construidas bajo este procedimiento, las cuales no exhiben ningún ensanchamiento como función de la temperatura [21], constituyen una prueba de la formación de puntos cuánticos sumamente uniformes donde los portadores de carga están sometidos a fuertes confinamientos. Los SAQDs son nanoestructuras considerablemente más pequeñas con respecto a los puntos obtenidos según los métodos mencionados anteriormente. Sus dimensiones típicas están en el orden de 20 nm en la dirección lateral y 7 nm en la dirección de crecimiento [20].

Los átomos artificiales han despertado un gran interés por sus aplicaciones tecnológicas. Es conocido que los láseres diseñados sobre la base de puntos cuánticos muestran características superiores en comparación con los láseres que basan su funcionamiento en las propiedades ópticas de los pozos cuánticos. Los láseres de puntos cuánticos exhiben una ganancia diferencial superior, valores pequeños de la densidad de corriente umbral y una gran estabilidad del valor de esta corriente como función de la temperatura [22]. Los puntos cuánticos “enterrados” *in situ* en un semiconductor localizan espacialmente los portadores lo cual impide la recombinación no radiativa en los espejos de la cavidad. Esto evita el calentamiento de dichos espejos lo cual constituye uno de los problemas más serios de los láseres de alta potencia y alta eficiencia. Avances en este sentido están dados por la fabricación de láseres basados en estos dispositivos con longitudes de onda que varían desde el infrarrojo hasta el visible [23, 24].

Una de las áreas más investigadas por los físicos en los últimos años es la denominada computación cuántica [25], en la cual se construyen modelos teóricos que permiten, en principio, diseñar máquinas computadoras cuyos algoritmos de cómputo se basan en los principios de la mecánica cuántica. Diferentes sistemas físicos han sido estudiados con el objetivo de diseñar la unidad elemental de memoria (qbit) de un computador cuántico [26]. Los átomos artificiales son uno de los candidatos más fuertes para la implementación de tales sistemas dada la posibilidad de controlar sus parámetros fundamentales. Por ejemplo, en uno de los trabajos más citados en esta área, D. Loss [27] muestra teóricamente la posibilidad de implementar compuertas lógicas diseñadas sobre la base de dos puntos cuánticos acoplados. Estrechamente relacionados con la computación cuántica y con el desarrollo de novedosos dispositivos electrónicos, se investigan e implementan diferentes métodos para el control y la manipulación de los espines electrónicos en sistemas del estado sólido agrupados bajo la denominación de espintrónica o electrónica de espín [28].

Las posibles aplicaciones de los puntos cuánticos han demandado estudios sistemáticos experimentales que nos permitan crear teorías basadas en la formulación de modelos físicos para la descripción de estos sistemas. Con este objetivo se han desarrollado y perfeccionado métodos experimentales sofisticados que permiten caracterizar estos dispositivos mediante el análisis de sus propiedades de transporte, ópticas y el estudio de sus variaciones en presencia de campos externos. Por ejemplo, los experimentos de espectroscopía de capacitancia muestran la estructura de los niveles electrónicos uniparticulares en puntos cuánticos [29, 30]. Existe un conjunto bastante amplio de técnicas experimentales que involucran la interacción de los portadores de carga confinados en el punto con la radiación electromagnética. Entre las más usadas se encuentra la fotoluminiscencia mediante la cual se han podido estudiar, por ejemplo, los estados básicos y excitados de complejos multiexcitonicos [31]. Técnicas como la detección óptica de resonancias (ODR) han permitido el estudio de fenómenos de absorción de la radiación con longitudes de onda que varían desde las microondas [32] hasta el infrarrojo [33, 34].

En general, las investigaciones experimentales han estado acompañadas por el desarrollo de modelos teóricos que han contribuido a la interpretación de los resultados obtenidos y la planificación de nuevos experimentos. Un punto clave de todos es modelar el potencial de confinamiento lateral de los electrones en el punto. Uno de los modelos más utilizados es el de puntos cuánticos parabólicos en el cual se supone que el confinamiento lateral de los portadores viene dado por un potencial parabólico [7, 35]. Otro hecho que ha revelado su importancia a la hora de construir modelos de aplicación práctica, es tener en cuenta la estructura de bandas del material semiconductor [36, 37]. En este sentido la aproximación de la función de onda envolvente ha sido de gran utilidad [38, 39]. Esta aproximación se fundamenta en el hecho de que, al ser grandes las dimensiones espaciales de los puntos cuánticos con respecto a las constantes de la red de los semiconductores involucrados, la estructura de bandas del sistema nanométrico presenta sólo pequeñas variaciones con respecto al material masivo.

Uno de los tópicos que más ha estimulado la investigación teórica en puntos cuánticos está dado por las dificultades que impone la fortaleza de la interacción entre los portadores confinados en el interior de tales sistemas. Esto hace que cuando estudiamos sistemas multielectrónicos o multiexcitonicos, una descripción basada en estados uniparticulares no es suficiente y es necesario el estudio de lo que conocemos como sistemas cuánticos finitos. Bajo determinadas condiciones el problema de muchos cuerpos dado por la presencia de  $N_e$  electrones en un punto cuántico puede ser tratado como un problema de partículas independientes las cuales se mueven bajo la influencia de un potencial medio generado por el conjunto de los  $N_e$  electrones. Ejemplo de tales aproximaciones son los métodos de Hartree, Hartree-Fock y funcionales de la densidad [40]. El desarrollo de las máquinas computadoras ha permitido la implementación de métodos más exactos. Un ejemplo de ello es el desarrollo de un conjunto de algoritmos de naturaleza aleatoria agrupados bajo el nombre genérico de método de Monte Carlo. Entre las variantes más usadas está el método de Monte Carlo variacional, el de difusión, entre otros. También basados en la gran potencia de cálculo alcanzada en la actualidad se han implementado métodos que permiten llevar a cabo la diagonalización exacta del Hamiltoniano multielectrónico [41, 42]. Básicamente, la función de onda del sistema en estudio es tomada como una combinación lineal de determinantes de Slater y es hallada mediante la diagonalización numérica, mediante el método de Lanczos [43], de la matriz Hamiltoniana. Sin embargo, se conoce también que esta técnica es sólo aplicable a sistemas muy pequeños dado que las dimensiones de las matrices alcanzan rápidamente valores prohibitivos con el aumento del número de partículas.

En el estudio de los puntos cuánticos se han dedicado numerosos esfuerzos, tanto teóricos como experimentales, a la caracterización del espectro de excitaciones electrónicas de sistemas multielectrónicos y multiexcitonicos. Es posible hoy en día estudiar experimentalmente como se modifica el espectro de excitaciones electrónicas de un punto cuántico en la medida en que éste es cargado electrón por electrón [44]. También existen trabajos en los cuales se calculan los efectos del confinamiento sobre los tiempos de vida de los estados excitados en estos sistemas [45, 46]. En otras palabras, el conocimiento del espectro de estados excitados de puntos cuánticos semiconductores constituye una información básica para el estudio y la aplicación de las propiedades físicas de estas nanoestructuras.

La analogía más directa de la espectroscopía de átomos en la física de la materia condensada es la espectroscopía de excitaciones electrónicas, o sea, excitaciones que se producen por transiciones electrónicas entre niveles en la banda de conducción, en un punto cuántico semiconductor cargado con  $N_e$  electrones. La dispersión inelástica de luz brinda un acceso directo a sectores del espectro de estados excitados los cuales no pueden ser estudiados mediante experimentos

de fotoluminiscencia, absorción, etc. La idea básica de la dispersión Raman, una variante de la dispersión inelástica de luz, es simple: un fotón con frecuencia  $\nu_i$  y vector de onda  $\vec{q}_i$  el cual es dispersado inelásticamente por el punto cuántico, ganará (proceso anti-Stoke) o perderá (proceso Stoke) energía. La luz dispersada tendrá un valor de frecuencia  $\nu_f$ . Usualmente los experimentos llevados a cabo en puntos cuánticos se realizan a temperaturas inferiores a la del Helio líquido. Por tal razón, el sistema en su interacción con la luz transitará del estado básico (inicial) a un estado excitado (final) y, por ende, las energías de los fotones dispersados serán menores que las energías de los fotones incidentes.

Los principales estados electrónicos en semiconductores exhiben fuertes líneas en los experimentos de fotoluminiscencia las cuales, en ocasiones, hacen que la señal Raman sea indetectable. Para llevar a cabo un experimento de dispersión Raman resonante es necesario seleccionar los valores de energías correspondientes a las excitaciones resonantes. Estos pueden ser determinados, por ejemplo, a partir de un espectro de fotoluminiscencia de excitación de alta resolución. En la Ref. [47] Pinczuk y colaboradores estudiaron el espectro de excitaciones electrónicas inter-subbandas en pozos cuánticos de GaAs-AlGaAs. Los autores observaron en este trabajo, además de las excitaciones colectivas de carga (CDE) y de espín (SDE), un conjunto de excitaciones prácticamente no renormalizadas por la interacción las cuales denominaron excitaciones uniparticulares (SPEs). Los primeros reportes de mediciones de espectros Raman en puntos cuánticos fueron publicados en el año 1994 [48, 49]. En estos resultados los autores estudian el comportamiento de las principales líneas Raman como función de la energía del láser incidente. Además observaron un corrimiento al azul de las posiciones de los picos más prominentes con la disminución del diámetro de los puntos estudiados. En el año 1996 Lockwood reportó la medición de espectros Raman en puntos cuánticos de GaAs-AlGaAs en forma de disco con valores de radios entre 50 y 100 nm [50]. Dichos espectros, obtenidos en una configuración de retrodispersión, fueron medidos para diferentes valores de un campo magnético externo, perpendicular al plano del punto, entre 0 y 12 T. Los resultados fueron interpretados en términos del espectro de excitaciones uniparticulares calculadas en la aproximación de Hartree. Posteriormente, en una serie de trabajos experimentales más refinados, el grupo de la Universidad de Hamburgo liderado por el Prof. D. Heitmann estudió los espectros Raman asociados a las excitaciones electrónicas en puntos de GaAs-AlGaAs que contenían aproximadamente 200 electrones [51, 52, 53, 54, 55]. Las dimensiones de los puntos estudiados en las direcciones de crecimiento y lateral son 25 nm y 240 nm respectivamente. Los estados colectivos de carga y espín fueron identificados en los espectros medidos mediante las reglas de selección de la dispersión Raman electrónica. Los picos Raman asociados a los estados CDE son observados si las polarizaciones de la luz incidente y dispersada son paralelas entre sí (polarización paralela), mientras que los estados SDE son detectados en una configuración donde la luz dispersada es observada en un plano de polarización perpendicular al de los fotones incidentes (polarización cruzada). Las mediciones de los espectros reportados en estos trabajos, fueron llevadas a cabo en dos regiones de la energía del láser incidente. Fuertes picos Raman asociados a las excitaciones SPEs fueron obtenidos en ambas polarizaciones para valores de la energía del láser incidente muy cercanos a la brecha energética del punto cuántico. Esta región es denominada región de resonancia extrema. Por otra parte, los modos colectivos CDE y SDE son observados en una región donde la energía de la luz incidente es notablemente mayor que la brecha del semiconductor. En la Ref. [54] los autores dan seguimiento a las posiciones de los picos Raman SDE y CDE como función del valor del campo magnético externo en el intervalo entre 0 y 7 T. Algunos efectos como el rompimiento de las reglas de selección de la dispersión Raman electrónica para

determinados modos son observados en las intensidades medidas. Una discusión más ampliada de los trabajos experimentales de dispersión Raman electrónica en puntos cuánticos cargados llevados a cabo en la década de los 90 puede consultarse en las referencias [56, 57]. Los trabajos experimentales para la medición de los espectros Raman no han sido solamente realizados en puntos cuánticos grandes que contienen cientos de electrones confinados en la banda de conducción. Recientemente Brocke y colaboradores [44] reportaron las primeras observaciones de excitaciones colectivas de carga en puntos cuánticos auto-ensamblados de InGaAs poblados con pocos electrones ( $2 \leq N_e \leq 6$ ) mediante la medición del espectro de luz inelásticamente dispersada. En este trabajo los autores estudian la evolución del espectro Raman del punto como función del número de electrones confinados en el sistema. Como resultado observaron un corrimiento hacia el rojo de las principales líneas Raman en la medida en que el punto es cargado con electrones.

Este conjunto de trabajos experimentales en el tema de la espectroscopía Raman de excitaciones electrónicas en puntos cuánticos motivaron algunos trabajos teóricos que han ayudado en la interpretación de los resultados observados. Los primeros cálculos teóricos de la sección eficaz Raman en puntos cuánticos fueron reportados por Govorov [58] quién estudió los efectos de la interacción de Coulomb para dos electrones confinados en un punto cuántico parabólico. Muchos de los trabajos teóricos realizados para la descripción de los espectros Raman medidos en puntos se han basado en expresiones para el cálculo de la amplitud de transición Raman deducidas para régimen no resonante [59, 60, 61, 62, 63, 64, 65]. Dichas teorías son útiles para describir las posiciones de las excitaciones colectivas así como la dependencia de las intensidades Raman asociadas a dichos modos como función del vector de onda de la luz incidente y el campo magnético externo. En la Ref. [66] los autores describen las posiciones de los modos colectivos de los puntos estudiados en la Ref. [54] mediante cálculos teóricos del factor de estructura basados en el método del funcional de la densidad dependiente del tiempo. Sin embargo, es conocido que tales aproximaciones fallan a la hora de describir las intensidades Raman relativas correspondientes a diferentes tipos de excitaciones electrónicas. Tampoco es posible en los marcos de una aproximación para régimen no resonante describir el comportamiento de los espectros Raman resonantes como función de la energía del láser incidente. Otra deficiencia importante de estas aproximaciones radica en su incapacidad para describir la existencia de picos Raman correspondientes a excitaciones uniparticulares, para lo cual es necesario la inclusión de los estados electrónicos en la banda de valencia como estados intermedios del proceso de dispersión [67]. En el artículo [68] Steinebach y colaboradores reportan cálculos de espectros Raman en puntos cuánticos de GaAs-AlGaAs para 12 electrones. Los electrones en la banda de conducción son tratados mediante una aproximación local de la densidad dependiente del tiempo. La amplificación de las intensidades Raman en los espectros calculados en la región de resonancias es modelada mediante la inclusión de los estados electrónicos uniparticulares en la banda de valencia en la aproximación de Hartree. Los efectos de la mezcla de bandas no son considerados. Recientemente se han reportado también cálculos de espectros Raman en puntos cuánticos con pocos electrones ( $2 \leq N_e \leq 6$ ) [69].

En general debemos decir que los trabajos teóricos sobre la espectroscopía Raman de excitaciones electrónicas en puntos cuánticos semiconductores se concentran en pocos grupos a nivel internacional. Los cálculos reportados para la amplitud de transición Raman se han llevado a cabo para sistemas pequeños. Además, en muchas ocasiones los resultados obtenidos se limitan al estudio de regiones particulares del espectro de excitaciones del punto y de la energía de la radiación incidente. Existen aun numerosas interrogantes que requieren la realización de tra-

bajos teóricos adicionales. Por ejemplo, no se ha estudiado con suficiente profundidad el rol de los tiempos de vida de los estados multielectrónicos involucrados en el cálculo de la amplitud de transición Raman.

En la presente tesis llevamos a cabo cálculos teóricos extensivos de la sección eficaz de dispersión Raman por excitaciones electrónicas en puntos cuánticos semiconductores de GaAs-AlGaAs cargados y neutros. Los principales resultados están contenidos en los artículos [70, 71, 72, 73, 74, 75, 76]. Las dimensiones de los puntos tratados, 25 nm en la dirección de crecimiento y 100 nm en la dirección lateral, son típicamente las dimensiones de los puntos construidos mediante el método de ataque químico. Además, consideramos decenas de electrones (sistemas cargados) o pares electrón-hueco (sistemas neutros) confinados en su interior. La expresión para el cálculo de la amplitud de transición Raman es obtenida a segundo orden de teoría de perturbaciones dependiente del tiempo. En el esquema de cálculo implementado dicha expresión es evaluada en términos de las funciones de onda y energías de los estados multielectrónicos inicial (básico), finales (excitados) e intermedios (virtuales). Los estados excitados e intermedios son calculados en el marco de la Aproximación de Fase Aleatoria (RPA) de forma independiente con respecto al cálculo de la amplitud de transición Raman. Los estados uniparticulares de electrones y huecos involucrados en la construcción de los estados multielectrónicos, finales e intermedios, son descritos en la aproximación de Hartree-Fock. Los efectos de la mezcla de bandas para los estados de huecos son considerados según el formalismo de Kohn y Luttinger. Los formalismos usados en esta tesis son presentados al estilo de la Teoría Microscópica del Núcleo. Ya se han publicado en la actualidad cálculos en puntos cuánticos mediante métodos tradicionalmente aplicados a sistemas nucleares [77, 78, 79, 80].

Como objetivo general nos hemos propuesto modelar teóricamente el proceso de dispersión Raman de luz por excitaciones electrónicas en puntos cuánticos semiconductores poblados con decenas de electrones o pares electrón-hueco. Como objetivos específicos nos hemos planteado los siguientes:

- Obtener mediante la RPA los espectros de excitaciones electrónicas multipolares para un punto cuántico cargado con 42 electrones para diferentes valores de un campo magnético externo perpendicular al plano del punto.
- Identificar en el conjunto de estados excitados las excitaciones colectivas de carga (CDE), de espín (SDE) y las excitaciones uniparticulares (SPEs) mediante el cálculo de las amplitudes de transición de los operadores multipolares.
- Calcular las energías y funciones de onda de los estados intermedios del proceso de dispersión Raman, mediante la implementación de la aproximación partícula-partícula Tamm-Dancoff (pp-TDA).
- Calcular y comparar las intensidades Raman correspondientes a las excitaciones electrónicas en diferentes sectores del momentum angular y el espín.
- Calcular las intensidades Raman en régimen no resonante para valores de la energía del láser incidente inferiores a la brecha de la nanoestructura semiconductora.
- Demostrar la correlación entre las intensidades de los picos Raman calculados y la densidad de estados excitados SPEs.

- Describir cualitativamente y cuantitativamente los efectos de un campo magnético externo sobre las reglas de selección de la dispersión Raman electrónica observadas a  $B = 0$  T.
- Calcular los espectros Raman en régimen de resonancia extrema. Mostrar los efectos de las resonancias con estados intermedios en los valores calculados de la amplitud de transición Raman.
- Evaluar los efectos de interferencia entre estados intermedios en el cálculo de la amplitud de transición Raman resonante.
- Modelar teóricamente los espectros Raman calculados en la región donde la energía del láser incidente está notablemente por encima de la brecha del punto en términos de los tiempos de vida de los estados intermedios involucrados en el proceso de dispersión.
- Calcular los espectros Raman correspondientes a las excitaciones electrónicas mutlipolares para un punto cuántico con  $N$  pares electrón-hueco.

La forma en que ha sido estructurada la tesis coincide, precisamente, con el esquema de cálculo implementado para la obtención de la sección eficaz de dispersión Raman en puntos cuánticos semiconductores. En el capítulo 2 presentamos los aspectos principales de la estructura de bandas del GaAs y se describen los estados uniparticulares de electrones en un punto cuántico parabólico. Las ecuaciones para el cálculo de las energías y funciones de ondas de Hartree-Fock (HF) para los electrones en un punto cuántico cargado son obtenidas en dicho capítulo. Además, los estados de HF para un hueco en la banda de valencia de un punto cargado son calculados mediante la diagonalización del Hamiltoniano de Kohn-Luttinger. También obtenemos las ecuaciones de Hartree-Fock para  $N$  pares electrón-hueco en el punto cuántico. En el capítulo 3 obtenemos las ecuaciones de la RPA a partir de las cuales calculamos las energías y funciones de onda de las excitaciones electrónicas en puntos cargados y neutros. Además, obtenemos las expresiones para los elementos matriciales de los operadores multipolares entre el estado base y los estados excitados calculados. Las ecuaciones para el cálculo de las energías y funciones de onda de los estados intermedios involucrados en el proceso de dispersión Raman, son obtenidas mediante la aproximación partícula-partícula Tamm-Dancoff en este capítulo. El capítulo 4 está dedicado a la descripción conceptual y teórica de la dispersión Raman. En él obtenemos las expresiones usadas para el cálculo de las amplitud de transición y la sección eficaz Raman. Además describimos de forma detallada el esquema de cálculo implementado para la obtención de dichas magnitudes en puntos cargados y neutros. Los principales resultados obtenidos en esta investigación son discutidos en el capítulo 5. Los aspectos fundamentales abordados en cada capítulo son destacados a manera de conclusiones parciales. En el capítulo 6 se dan las conclusiones generales del trabajo y una pequeña discusión de las perspectivas futuras. También hemos incluido cuatro apéndices que complementan los desarrollos teóricos llevados a cabo en el cuerpo de la tesis.

# Capítulo 2

## ESTADOS UNIPARTICULARES EN LA APROXIMACION DE HARTREE-FOCK EN PUNTOS CUANTICOS

### 2.1. Estructura de bandas del GaAs

La estructura cristalina de los compuestos III-V como el GaAs es conocida como la blenda de zinc. Dicha estructura está constituida por dos redes cúbicas centradas en las caras (f.c.c.) formadas por los átomos de Galio (Ga) y Arsénico (As), las cuales están desplazadas una respecto a la otra una distancia de un cuarto de la longitud de la diagonal principal del cubo como se muestra en la figura 2.1. La red cristalina de la blenda de zinc no es una red de Bravais dado que la celda elemental contiene dos átomos, uno localizado en el origen y el otro en las coordenadas  $(\frac{a}{4}; \frac{a}{4}; \frac{a}{4})$  donde  $a$  es la longitud de las aristas del cubo.

La red recíproca de esta estructura cristalina es del tipo cúbica centrada en el cuerpo (b.c.c.) y la primera zona de Brillouin está dada por un octaedro con los vértices truncados, figura 2.2.

Dentro de esta zona existen puntos y ejes de alta simetría los cuales han sido denotados como  $\Gamma$ ,  $X$ ,  $L$  y  $\Delta$ ,  $\Lambda$  respectivamente.

En el compuesto binario GaAs existen 8 electrones externos por celda unitaria que contribuyen a los enlaces químicos. El resto de los electrones de cada tipo de átomo se encuentran “congelados” en una configuración de capas cerradas y sus funciones de onda se encuentran fuertemente localizadas alrededor de los núcleos de Ga ó As. La contribución de estos electrones a los fenómenos de transporte eléctrico así como a las propiedades ópticas estudiadas en estos materiales es prácticamente nula. Los 8 electrones más externos, 3 correspondientes al Ga y 5 correspondientes al As, son compartidos, dando lugar a enlaces químicos entre un átomo de Ga y los 4 átomos más cercanos de As. Básicamente se puede afirmar que los orbitales de cada átomo ( $s$  ó  $p$ ) se mezclan con los orbitales de un átomo vecino dando lugar a dos niveles, uno enlazado y uno no enlazado. Dichos niveles, debido a la existencia de un gran número de celdas unitarias, son enzanchados dando lugar a las bandas del sólido. Los niveles enlazados  $s$  están fuertemente enlazados y siempre ocupados por 2 electrones por celda unitaria. Los 6

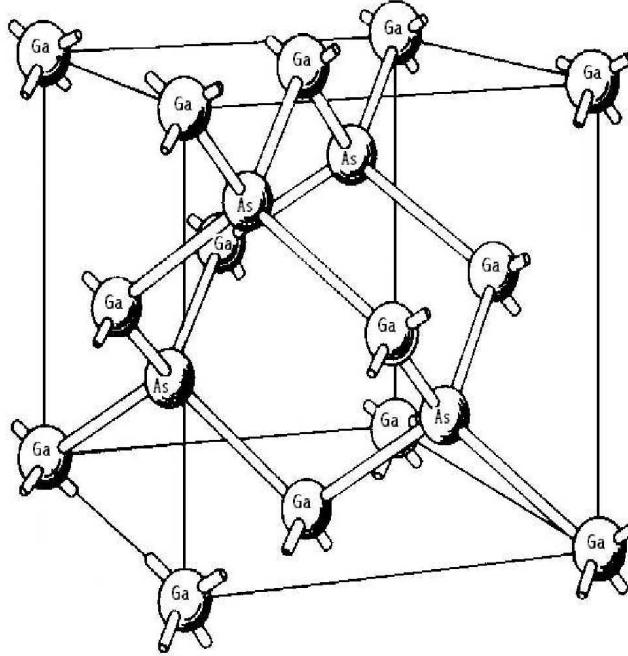


Figura 2.1: Configuración de la red cristalina de la blenda de zinc.

electrones restantes por celda unitaria ocupan completamente los tres orbitales  $p$  enlazados. Las bandas originadas a partir de los orbitales no enlazados están desocupadas. Aquella de menor energía forma la banda de conducción del material semiconductor. En todos los compuestos binarios III-V el tope de la banda de valencia se encuentra en el centro de la zona de Brillouin (punto  $\Gamma$ ). En ausencia del acoplamiento espín-orbital, las tres bandas de valencia, originadas a partir de orbitales enlazados  $p$ , son degeneradas en el punto  $\Gamma$ . El acoplamiento espín-orbital da lugar a la aparición de dos bandas. La primera, con degeneración de orden 4 y simetría  $\Gamma_8$ , corresponde a un valor del momentum angular total  $J = 3/2$  y constituye el tope de la banda de valencia. La segunda, doblemente degenerada con simetría  $\Gamma_7$  corresponde a un valor del momentum angular total  $J = 1/2$ . La separación energética entre dichas bandas, para el GaAs, es  $\Delta = 0.314$  eV [81]. El borde de la banda de conducción de los materiales III-V puede encontrarse lo mismo en el punto  $\Gamma$  o cerca de los puntos  $L$  ó  $X$ . En general mientras más pesado sea el catión del compuesto binario, Ga para el caso de GaAs, mas probable será encontrar el borde de la banda de conducción en el punto  $\Gamma$  (materiales de brecha directa). Para el GaAs la banda de conducción es doblemente degenerada con momentum angular total  $J = 1/2$ . Esta se encuentra separada del tope de la banda de valencia en una energía denominada brecha energética del semiconductor  $E_{\text{gap}} = 1.5192$  eV [81].

En un cristal volumétrico la ecuación de Schrödinger que describe el movimiento de un electrón toma la siguiente forma:

$$\left[ \frac{\hat{\vec{p}}^2}{2m_0} + V(\vec{r}) + \frac{\hbar}{4m_0^2c^2} (\hat{\vec{\sigma}} \times \vec{\nabla}V) \cdot \hat{\vec{p}} \right] \Psi_{n\vec{k}}(\vec{r}) = \epsilon_{n\vec{k}} \Psi_{n\vec{k}}(\vec{r}), \quad (2.1)$$

donde  $m_0$  es la masa del electrón libre y  $V(\vec{r})$  es el potencial periódico de la red cristalina e

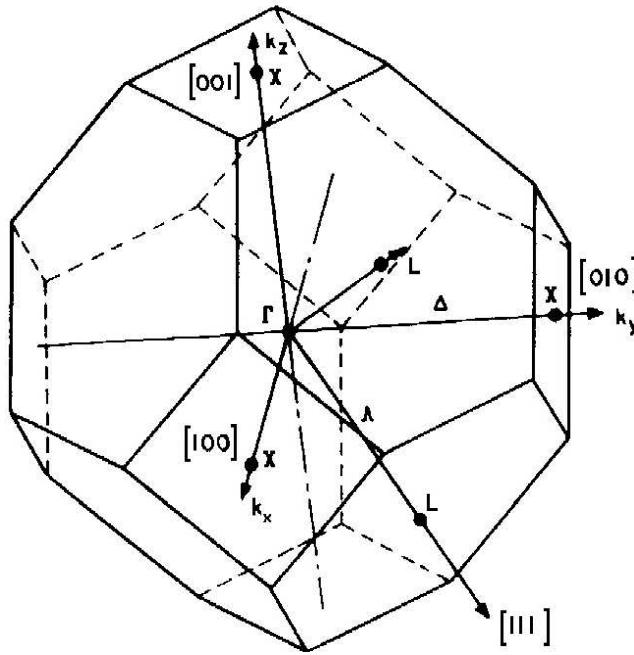


Figura 2.2: Primera zona de Brillouin correspondiente a la blenda de zinc.  $\Gamma$ ,  $X$  y  $L$  son puntos y  $\Delta$  y  $\Lambda$  son ejes caracterizados por su alta simetría.

incluye la interacción del electrón con los corazones iónicos y el resto de los electrones en la red. El tercer término da cuenta del acoplamiento espín-orbital, en el cual  $\hat{\vec{\sigma}}$  está dado en términos de las matrices de Pauli  $\hat{\vec{\sigma}} = (\hat{\sigma}_x, \hat{\sigma}_y, \hat{\sigma}_z)$ , donde:

$$\hat{\sigma}_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \hat{\sigma}_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \hat{\sigma}_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}. \quad (2.2)$$

El potencial  $V(\vec{r})$  en la ecuación 2.1 tiene simetría de traslación y, por tanto, satisface la siguiente ecuación:

$$V\left(\vec{r} + \sum_{i=1}^3 n_i \vec{a}_i\right) = V(\vec{r}), \quad (2.3)$$

para cualquier  $\vec{r}$  y enteros relativos  $n_i$ .  $\vec{a}_i$  denota a tres vectores bases de la red de Bravais. Esto implica que las autofunciones del Hamiltoniano en 2.1 son autofunciones también del operador de traslación  $\mathcal{T}_{\vec{d}}$  siendo  $\vec{d} = \sum_{i=1}^3 n_i \vec{a}_i$ :

$$\mathcal{T}_{\vec{d}} \psi(\vec{r}) = \psi(\vec{r} + \vec{d}) = e^{i\vec{k}\cdot\vec{d}} \psi(\vec{r}). \quad (2.4)$$

En equivalencia, las soluciones de las ecuaciones (2.1) y (2.4) se escriben según el teorema de Bloch [82] como:

$$\psi_{n\vec{k}}(\vec{r}) = N e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} u_{n\vec{k}}(\vec{r}), \quad (2.5)$$

donde  $N$  es un coeficiente de normalización y  $u_{n\vec{k}}(\vec{r})$  es una función periódica de  $\vec{r}$  con la periodicidad de la red. Si normalizamos  $\psi_{n\vec{k}}$  sobre todo el cristal de volumen  $\Omega$  constituido por  $N$  celdas elementales con volumen  $\Omega_0$  y asumimos que  $\vec{k}$  es real, obtenemos que  $N = \Omega^{-1/2}$ . Un estado de Bloch  $|n\vec{k}\rangle$  es denotado por un índice discreto de banda  $n$  y un vector de onda  $\vec{k}$  el cual puede ser restringido a la primera zona de Brillouin de la red recíproca. Aplicando la condición de periodicidad al cristal macroscópico,

$$\psi_{n\vec{k}}(\vec{r} + N_i \vec{a}_i) = \psi_{n\vec{k}}(\vec{r}), \quad N_i \rightarrow \infty, \quad (2.6)$$

encontramos que los valores de  $\vec{k}$  son reales tales que:

$$\vec{k} \cdot N_i \vec{a}_i = 2\pi p_i, \quad i = 1, 2, 3, \quad (2.7)$$

donde  $p_i$  son números enteros. O sea, los valores permitidos de  $\vec{k}$  forman un cuasicontinuo.

Existen descripciones globales de las bandas, aquellas que dan las relaciones de dispersión para cualquier valor de  $\vec{k}$ , dadas por teorías como la de enlace fuerte (*tight binding*) o las de pseudopotenciales. Sin embargo, estas raramente brindan expresiones explícitas para las magnitudes de uso común en la física de semiconductores: masas efectivas, funciones de onda, etc. De hecho, para muchos aspectos relacionados con las propiedades electrónicas de los semiconductores, tales descripciones globales de las relaciones de dispersión en toda la zona de Brillouin son innecesarias. Lo que se necesita fundamentalmente es conocer las relaciones  $\epsilon_{n\vec{k}}$  en un pequeño intervalo de valores de  $\vec{k}$  alrededor de los extremos de las bandas. Una de las descripciones locales más usadas es el método  $\vec{k} \cdot \hat{\vec{p}}$ , el cual permite obtener expresiones analíticas para las relaciones de dispersión, funciones de onda, y masas efectivas de un electrón en una banda de interés. Veamos de forma breve como se aplica el método.

La parte periódica de las funciones de Bloch  $u_{n\vec{k}}(\vec{r})$  son soluciones de la ecuación,

$$\left[ \frac{\hat{\vec{p}}^2}{2m_0} + V(\vec{r}) + \frac{\hbar}{4m_0^2 c^2} (\hat{\vec{\sigma}} \times \vec{\nabla} V) \cdot \hat{\vec{p}} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} + \frac{\hbar \vec{k}}{m_0} \cdot \left\{ \hat{\vec{p}} + \frac{\hbar}{4m_0 c^2} \hat{\vec{\sigma}} \times \vec{\nabla} V \right\} \right] u_{n\vec{k}}(\vec{r}) = \epsilon_{n\vec{k}} u_{n\vec{k}}(\vec{r}). \quad (2.8)$$

La ecuación 2.8 puede ser reescrita formalmente como,

$$[\hat{H}(\vec{k} = 0) + \hat{W}(\vec{k})] u_{n\vec{k}}(\vec{r}) = \epsilon_{n\vec{k}} u_{n\vec{k}}(\vec{r}), \quad (2.9)$$

donde  $\hat{H}(\vec{k} = 0)$  es el Hamiltoniano del cristal cuyas autofunciones son  $\psi_{n0}$  (o equivalentemente  $u_{n0}$ ):

$$\hat{H}(\vec{k} = 0) u_{n0}(\vec{r}) = \epsilon_{n0} u_{n0}(\vec{r}). \quad (2.10)$$

Por otra parte, el operador  $\hat{W}(\vec{k})$  desaparece cuando  $\vec{k} = 0$  y conmuta con el operador de traslación  $\mathcal{T}_{\vec{d}}$ . Por tanto, las funciones  $u_{n\vec{k}}$  pueden expresarse como combinación lineal de las funciones  $u_{n0}$ ,

$$u_{n\vec{k}}(\vec{r}) = \sum_m C_m(\vec{k}) u_{m0}(\vec{r}). \quad (2.11)$$

Insertando la ecuación (2.11) en (2.9), multiplicando por la izquierda por  $u_{n0}^*$  e integrando sobre todo el volumen de la celda elemental, obtenemos:

$$\sum_m \left\{ \left( \epsilon_{n0} - \epsilon_{n\vec{k}} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} \right) \delta_{nm} + \frac{\hbar \vec{k}}{m_0} \cdot \langle n0 | \hat{\vec{p}} + \frac{\hbar}{4m_0 c^2} (\hat{\vec{\sigma}} \times \vec{\nabla} V) | m0 \rangle \right\} C_m(\vec{k}) = 0. \quad (2.12)$$

El método  $\vec{k} \cdot \hat{\vec{p}}$  consiste precisamente en resolver la ecuación (2.12) mediante un desarrollo perturbativo de los términos lineales en  $\vec{k}$  una vez resuelto el problema dado por la ecuación (2.10). De este análisis resulta, por ejemplo, que la corrección al valor de energía  $\epsilon_{n0}$ , a segundo orden, está dado por la siguiente expresión:

$$\epsilon_{n\vec{k}} = \epsilon_{n0} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_0} + \frac{\hbar^2}{m_0^2} \sum_{m \neq n} \frac{|\hat{\vec{\Pi}}_{nm} \cdot \vec{k}|^2}{\epsilon_{n0} - \epsilon_{m0}}, \quad (2.13)$$

donde el vector  $\hat{\vec{\Pi}}$  es definido como,

$$\hat{\vec{\Pi}} = \hat{\vec{p}} + \frac{\hbar}{4m_0 c^2} (\hat{\vec{\sigma}} \times \vec{\nabla} V). \quad (2.14)$$

Por tanto, siguiendo la ecuación (2.13), mientras que  $k$  sea pequeño, o lo que es igual, mientras que  $\epsilon_{n\vec{k}} - \epsilon_{n0}$  sea mucho menor que todos los valores de la diferencia  $\epsilon_{n0} - \epsilon_{m0}$ , las relaciones de dispersión de las bandas no degeneradas son parabólicas en  $\vec{k}$  en la vecindad del punto  $\Gamma$ .

La expresión (2.13) para  $\epsilon_{n\vec{k}}$  puede transformarse de la siguiente manera:

$$\begin{aligned} \epsilon_{n\vec{k}} &= \epsilon_{n0} + \frac{\hbar^2}{2} \sum_{\alpha, \beta} k_\alpha \left[ \frac{\delta_{\alpha\beta}}{m_0} + \frac{2}{m_0^2} \sum_{m \neq n} \frac{\hat{\Pi}_{nm}^\alpha \hat{\Pi}_{mn}^\beta}{\epsilon_{n0} - \epsilon_{m0}} \right] k_\beta \\ &= \epsilon_{n0} + \frac{\hbar^2}{2} \sum_{\alpha, \beta} k_\alpha \frac{1}{\mu_n^{\alpha\beta}} k_\beta, \quad \alpha, \beta = x, y, z, \end{aligned} \quad (2.15)$$

donde,

$$\frac{1}{\mu_n^{\alpha\beta}} = \frac{\delta_{\alpha\beta}}{m_0} + \frac{2}{m_0^2} \sum_{m \neq n} \frac{\hat{\Pi}_{nm}^\alpha \hat{\Pi}_{mn}^\beta}{\epsilon_{n0} - \epsilon_{m0}}, \quad (2.16)$$

es el tensor de masa efectiva que describe la cinemática de los portadores en la vecindad del centro de la zona de Brillouin y para energías cercanas al borde de la enésima banda. Si la energía de la partícula es tal que la ecuación (2.15) es válida, los efectos de la estructura de

banda son incorporados mediante el uso de una masa efectiva en lugar de la masa del electrón libre. Un tratamiento semicásico completo de la masa efectiva en sólidos puede encontrarse en la Ref. [83]. La ecuación (2.16) muestra que el signo y la magnitud de una masa efectiva están dados por dos factores: i) los valores de los elementos matriciales del operador  $\hat{\Pi}$  calculados entre las funciones de Bloch para  $\vec{k} = 0$  y ii) los signos y los valores de las brechas energéticas en el punto  $\Gamma$  que separan la banda de interés del resto consideradas en la expresión (2.17).

Las relaciones de dispersión de las bandas  $\epsilon_{n\vec{k}}$  que se obtienen como resultado de la aplicación del método  $\vec{k} \cdot \hat{\vec{p}}$  son cuadráticas en las componentes de  $\vec{k}$ . Una forma de ir mas allá de los resultados anteriores es mediante la implementación del modelo de Kane [84, 39] cuyo análisis se encuentra fuera de los marcos de esta tesis.

## 2.2. Estados uniparticulares de electrones en la banda de conducción en un punto cuántico parabólico

En lo adelante nos referiremos a puntos cuánticos de GaAs con forma de disco de altura  $L$ , crecidos en la dirección cristalina [0,0,1] entre barreras simétricas de otro semiconductor,  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ , donde Al se refiere al Aluminio y  $x$  es el porcentaje de átomos de Aluminio que sustituyen a los átomos de Galio en la red cristalina. Al variar  $x$  entre 0 y 1 la estructura de banda del semiconductor cambia de forma continua pasando de la estructura correspondiente al GaAs a la del AlAs. Por ejemplo, para valores de  $x < 0.385$  el mínimo de la banda de conducción se encuentra en el punto  $\Gamma$  de la primera zona de Brillouin, mientras que para valores mayores que este se encuentra en el punto X [85, 86]. También las brechas de energías ( $E_{\text{gap}}$ ) definidas en los distintos puntos de la zona de Brillouin varían con  $x$  [87].

Cuando se crecen dos semiconductores uno a continuación de otro para formar lo que conocemos como heterojunturas semiconductoras, en la zona de transición entre los dos materiales las bandas se modifican de manera complicada al pasar de un material a otro. Estas modificaciones permiten la aparición de potenciales que confinan a los portadores de carga en cierta región espacial. Nótese que si el GaAs es crecido entre dos barreras simétricas de  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  con  $x$  en la zona de brecha directa, entonces se crean pozos de potencial que confinan en la misma región espacial, en nuestro caso el material GaAs, a los electrones y a los huecos. A las estructuras que permiten confinar los portadores de carga en la configuración anterior son denominadas heteroestructuras de tipo I.

En nuestro modelo supondremos que los potenciales que confinan a los portadores de carga dentro del pozo cuántico son pozos cuadrados de potencial. Además, supondremos que la concentración  $x$  de átomos de Aluminio es lo suficientemente grande como para considerar el confinamiento en la dirección de crecimiento como un pozo potencial de paredes rígidas. El considerar pozos de potenciales de paredes rígidas es ciertamente una aproximación. Por ejemplo, según los resultados experimentales reportados en la Ref. [86] la altura de los pozos de potencial para los electrones y los huecos son de  $V_e = 289$  meV y  $V_h = 128$  meV respectivamente, medidos a una temperatura de 10 K.

Perpendicular a la dirección de crecimiento, supondremos la presencia de un potencial parabólico de confinamiento para ambos tipos de portadores de carga, el cual modela el confinamiento real que da origen al punto cuántico. El origen del confinamiento en el plano de los puntos

estudiados no es generado mediante la aplicación de voltajes a microelectrodos previamente depositados sobre un pozo cuántico. En dicho caso, se confinarían los electrones pero sería un potencial repulsivo para los huecos. Adicionalmente supondremos la existencia de un campo magnético constante y uniforme en la dirección de crecimiento dado en la calibración simétrica  $\vec{B} = \frac{1}{2}\vec{A} \times \vec{\rho}$ .

En nuestros cálculos consideraremos la banda de conducción como perfectamente parabólica y doblemente degenerada en ausencia de un campo magnético. La masa efectiva del electrón en dicha banda la consideraremos isotrópica y será denotada como  $m_e$ . En el GaAs la banda de conducción está dada por orbitales de tipo  $s$ . Por tanto, en ella no hay acoplamiento espín-orbital. La función de onda que describe el movimiento del electrón en el punto es construida en la aproximación de la función envolvente [39]:

$$\psi_{sn}^{(e)}(\vec{r}) = \phi_s^{(e)}(\vec{r})u_{n0}^{(e)}(\vec{r}). \quad (2.17)$$

En la ecuación (2.17),  $u_{n0}^{(e)}(\vec{r})$  es la función de banda del electrón en el punto  $\Gamma$  y  $\phi_s^{(e)}(\vec{r})$  es una función que varía lentamente en las dimensiones de la celda elemental del cristal y es denominada función envolvente. Dicha función describe el movimiento del electrón en el punto cuántico y es solución de la siguiente ecuación:

$$\hat{h}^e|\phi_s^{(e)}\rangle = \epsilon_s^{(e)}|\phi_s^{(e)}\rangle, \quad (2.18)$$

donde  $\hat{h}^e$  es el operador Hamiltoniano dado por la expresión:

$$\hat{h}^e = \frac{\hat{p}_z^{e2}}{2m_e} + V(z) + \hbar\Omega_e \left( \frac{\hat{\vec{p}}_\rho^e}{2} + \frac{\rho^2}{2} \right) + \frac{\hbar\omega_{ce}}{2}\hat{l}_z^e + g^e\mu_B B\hat{s}_z^e. \quad (2.19)$$

El Hamiltoniano (2.19) está escrito en variables adimensionales  $\vec{r} = (\vec{\rho}, z)$ , las unidades de longitud en la dirección de crecimiento están dadas con respecto al ancho del pozo  $L$  y en el plano del punto por la longitud característica del oscilador  $\ell_e = \sqrt{\hbar/m_e\Omega_e}$  donde  $\Omega_e = \sqrt{\frac{\omega_{ce}^2}{4} + \omega_0^2}$  es la frecuencia efectiva producto del confinamiento y del campo magnético,  $\hbar\omega_0$  es la energía característica del potencial de confinamiento en el plano,  $\omega_{ce}$  es la frecuencia ciclotrónica,  $\mu_B$  es el magnetón de Bohr y  $\hat{s}_z$  es la componente en la dirección  $z$  del operador de espín del electrón. El potencial de confinamiento en la dirección de crecimiento  $V(z)$  es cero para  $0 \leq z \leq L$  e infinito fuera de este intervalo. Nos referiremos al último término en la expresión (2.19) como energía de Zeeman en el cual  $g^e$  denota el factor giromagnético para el electrón.

La solución de la ecuación de Schrödinger (2.18) son los estados de Fock-Darwin [7] cuyas funciones de onda y energías están dadas por:

$$|\phi_{k,l,k_z}^{(e)}\rangle = A_{k,l}\rho^{|l|}e^{-\rho/2}L_k^{|l|}(\rho^2)e^{il\theta}\sin\frac{k_z\pi}{L}z, \quad (2.20)$$

$$\epsilon_{k,l,k_z,s_z}^{(e)} = \frac{\hbar^2\pi^2}{2m_eL^2}k_z^2 + \hbar\Omega_e(2k + |l| + 1) + \frac{\hbar\omega_{ce}}{2}l + g^e\mu_B s_z B. \quad (2.21)$$

La constante de normalización es  $A_{k,l} = \sqrt{\frac{2k!}{L\pi(k+|l|)!}}$ . Aquí  $k$  es el número cuántico principal y  $l$  cuantiza el momentum angular orbital del electrón en su movimiento bidimensional. El número cuántico  $k_z$  enumera la subbanda de energía producto del confinamiento en el pozo. A partir de la expresión (2.21) para las energías uniparticulares de los electrones podemos observar que para una subbanda dada en ausencia de campo magnético los estados cuánticos caracterizados por los índices  $(k, l, s_z)$  conforman una estructura de capas. El número de orden asociado a cada capa es  $\Lambda = 2k + l + 1$ . También es sencillo demostrar que el número de estados incluidos en  $\Lambda$  capas puede calcularse como  $\Lambda(\Lambda + 1)$ .

### 2.3. Ecuaciones de Hartree-Fock para $N_e$ electrones confinados en un punto cuántico

En esta sección obtenemos las ecuaciones de Hartree-Fock (HF) para un punto cuántico cargado con  $N_e$  electrones en la banda de conducción. El método de HF es un método variacional y en este se asume que los electrones se mueven independientemente en un potencial promedio producido por el resto de los electrones presentes en el sistema. El método de HF en esencia permite extraer tal potencial fuera de la suma que considera la interacción entre dos partículas cualesquiera:

$$V(1 \dots N_e) = \sum_{i < j}^{N_e} V(i, j) \simeq \sum_{i=1}^{N_e} V(i). \quad (2.22)$$

La aproximación en los métodos variacionales consiste en el hecho de que la función de onda exacta del sistema es usualmente restringida a un conjunto de funciones de prueba matemáticamente simples. Debido a que la función de onda exacta no se encuentra en este intervalo se puede mostrar para cualquier función de prueba  $|\Phi\rangle$  la siguiente relación:

$$E[\Phi] = \frac{\langle \Phi | \hat{H} | \Phi \rangle}{\langle \Phi | \Phi \rangle} \geq E_0, \quad (2.23)$$

donde  $E_0$  denota la energía exacta del estado base del sistema y constituye siempre el límite inferior para la energía obtenida mediante el cálculo variacional.

El Hamiltoniano que caracteriza a los  $N_e$  electrones en el punto se puede escribir como:

$$\hat{H}^e = \sum_{i=1}^{N_e} \hat{h}^e(i) + \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \sum_{i < j}^{N_e} \frac{1}{|\vec{r}_{ie} - \vec{r}_{je}|}, \quad (2.24)$$

donde  $\hat{h}^e(i)$  es el Hamiltoniano electrónico de una partícula dado por la ecuación (2.19). El segundo término de la ecuación (2.24) considera la interacción Coulombiana entre los electrones en el punto cuántico.  $\kappa$  denota la constante dieléctrica relativa del GaAs.

Para la deducción de las ecuaciones de HF asumiremos la existencia del operador de una partícula (Hamiltoniano de HF),

$$\hat{H}_e^{\text{HF}} = \sum_{i=1}^{N_e} \hat{h}_e^{\text{HF}}(i), \quad (2.25)$$

cuya autofunción dando el valor mínimo de la energía  $E_0^{\text{HF}}$  es una aproximación a la función de onda exacta del estado básico. Dicha autofunción  $\Phi(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_{N_e})$  será considerada un determinante de Slater el cual definimos como:

$$|\text{HF}\rangle = |\Phi(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_{N_e})\rangle = \prod_{\mu=1}^{N_e} \hat{e}_\mu^\dagger |0\rangle. \quad (2.26)$$

En la ecuación (2.26)  $\hat{e}_\mu^\dagger$  se refiere al operador de creación de electrones en el estado uniparticular  $\varphi_\mu^{(e)}$  autofunción del Hamiltoniano de una partícula  $\hat{h}_e^{\text{HF}}$ :

$$\hat{h}_e^{\text{HF}}(i)\varphi_\mu^{(e)}(i) = \varepsilon_\mu^e \varphi_\mu^{(e)}(i) \quad , \quad i = \{\vec{r}_i, s_i\}. \quad (2.27)$$

Si ahora consideramos que los autoestados de  $\hat{h}_e^{\text{HF}}$  son ortogonales y constituyen un sistema completo, podemos escribir el Hamiltoniano (2.24) en el formalismo de la segunda cuantización utilizando como base las funciones  $\varphi_k^{(e)}$ :

$$\hat{H}^e = \sum_{\alpha, \beta} \langle \alpha | \hat{h}^e | \beta \rangle \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta + \frac{1}{2} \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \sum_{\alpha, \beta, \gamma, \delta} \langle \alpha, \beta | \frac{1}{r} | \gamma, \delta \rangle \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta^\dagger \hat{e}_\delta \hat{e}_\gamma, \quad (2.28)$$

donde,

$$\langle \alpha, \beta | \frac{1}{r} | \gamma, \delta \rangle = \int \int d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \varphi_\alpha^{(e)*}(\vec{r}_1) \varphi_\beta^{(e)*}(\vec{r}_2) \frac{1}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} \varphi_\gamma^{(e)}(\vec{r}_1) \varphi_\delta^{(e)}(\vec{r}_2), \quad (2.29)$$

son los elementos matriciales de la interacción de Coulomb entre estados uniparticulares de HF. Un determinante de Slater puede ser representado mediante la matriz densidad de una partícula asociada al mismo, la cual definimos como:

$$\rho_{\beta\alpha}^e = \langle \text{HF} | \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta | \text{HF} \rangle = \begin{cases} \delta_{\alpha\beta} & \alpha, \beta \leq \xi_f^e \\ 0 & \alpha, \beta > \xi_f^e \end{cases}, \quad (2.30)$$

donde  $\xi_f^e$  denota el nivel de Fermi de los  $N_e$  electrones en la banda de conducción. Nótese que la matriz  $\rho$  es diagonal en la base  $\hat{e}_\mu^\dagger, \hat{e}_\mu$  con autovalores 1 si  $\mu \leq \xi_f^e$  y 0 si  $\mu > \xi_f^e$ . Esto último implica que la traza de  $\rho$  es igual al número de electrones  $N_e$  confinados en el punto. El método de HF bajo estas condiciones puede definirse de la siguiente manera. Nosotros usamos un conjunto de determinantes de Slater  $\{\Phi\}$  definidos según (2.26), conformados por  $N_e$  funciones de onda uniparticulares  $\varphi_i^{(e)}$  ortogonales, como funciones de prueba y minimizamos la energía del sistema dentro de este conjunto. En términos de la matriz densidad el método de HF consiste en minimizar el valor de la energía del sistema usando como funciones de prueba el conjunto de

todas las funciones de onda  $\{\Phi\}$  cuyas matrices densidad de una partícula tienen la propiedad  $\rho^2 = \rho$  y por tanto,  $\text{Tr}\rho = N_e$ .

Tomando el valor medio del Hamiltoniano (2.28) en el estado base del punto cuántico cuya función de onda es el determinante de Slater  $|\text{HF}\rangle$ , haciendo uso del teorema de Wick [88] para el cálculo de los valores medios del producto de operadores de creación y aniquilación de electrones y considerando la definición (2.30) para la matriz densidad, obtenemos:

$$\begin{aligned} E_0^{\text{HF}}[\rho] &= \langle \text{HF} | \hat{H}^e | \text{HF} \rangle \\ &= \sum_{\alpha, \beta} \langle \alpha | \hat{h}^e | \beta \rangle \rho_{\beta \alpha}^e + \frac{1}{2} \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \sum_{\alpha, \beta, \gamma, \delta} \langle \alpha, \beta | \frac{1}{r} | \gamma, \delta \rangle \{ \rho_{\gamma \alpha}^e \rho_{\delta \beta}^e - \rho_{\delta \alpha}^e \rho_{\gamma \beta}^e \}. \end{aligned} \quad (2.31)$$

Si ahora resolvemos el problema de extremo condicionado,

$$\frac{\partial}{\partial \rho_{\beta' \alpha'}^e} \left\{ E_0^{\text{HF}}[\rho] - \lambda \sum_{\alpha} \rho_{\alpha \alpha} \right\} = 0, \quad (2.32)$$

donde hemos introducido el multiplicador de Lagrange  $\lambda$ , obtenemos:

$$\langle \alpha | \hat{h}^e | \beta \rangle + \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \sum_{\mu \leq \xi_f^e} \left( \langle \alpha, \mu | \frac{1}{r} | \beta, \mu \rangle - \langle \alpha, \mu | \frac{1}{r} | \mu, \beta \rangle \right) = \lambda \delta_{\alpha \beta}. \quad (2.33)$$

Nótese que la ecuación anterior puede ser vista como la representación matricial del Hamiltoniano  $h_e^{\text{HF}}$  que describe el movimiento de un electrón bajo la influencia de un campo medio (segundo término) generado por el resto de las partículas en la base de funciones  $\varphi_k^{(e)}$ . La suma en la ecuación (2.33) contiene los términos de interacción directa e intercambio y es denominado campo medio autoconsistente de HF. El índice  $\mu$  corre por todos los estados ocupados de HF. Los elementos diagonales de la matriz Hamiltoniana (2.33) están dados por la expresión:

$$\langle \alpha | \hat{h}^e | \alpha \rangle + \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \sum_{\mu \leq \xi_f^e} \left( \langle \alpha, \mu | \frac{1}{r} | \alpha, \mu \rangle - \langle \alpha, \mu | \frac{1}{r} | \mu, \alpha \rangle \right) = \varepsilon_{\alpha}^e, \quad (2.34)$$

donde el multiplicador de Lagrange  $\lambda$  ha adquirido el sentido de la energía  $\varepsilon_{\alpha}^e$  correspondiente al estado uniparticular de HF  $\varphi_{\alpha}^{(e)}$ . Usualmente resulta más conveniente resolver las ecuaciones de HF en un espacio de configuración basado en un conjunto completo y ortonormal de funciones de onda para las cuales, por ejemplo, podemos obtener expresiones analíticas para los elementos matriciales de la interacción de Coulomb. Por tal razón, en nuestro caso los estados uniparticulares de HF son expresados como combinación lineal de los estados de Fock-Darwin definidos en la ecuación (2.20),

$$\varphi_{\alpha}^{(e)}(\vec{r}) = \sum_s C_s^{\alpha(e)} \phi_s^{(e)}(\vec{r}) \chi_s^{(e)}(\sigma), \quad (2.35)$$

donde  $\chi_s^{(e)}(\sigma)$  son las funciones de espín. Los coeficientes  $C_s^{\alpha(e)}$  y la energía  $\varepsilon_{\alpha}^e$  son obtenidos, tras sustituir la ecuación (2.35) en (2.33), resolviendo el siguiente sistema de ecuaciones:

$$\sum_t \left\{ \epsilon_s^{(e)} \delta_{st} + \beta_{\text{int}} \sum_{\mu \leq \xi_f^e} \sum_{u,v} \left[ \langle s, u | \frac{1}{r} | t, v \rangle - \langle s, u | \frac{1}{r} | v, t \rangle \right] C_u^{\mu(e)} C_v^{\mu(e)} \right\} C_t^{\alpha(e)} = \varepsilon_\alpha^e C_s^{\alpha(e)}. \quad (2.36)$$

En la ecuación (2.36)  $\epsilon_s^{(e)}$  denota la energía correspondiente al estado  $\phi_s^{(e)}$  cuya expresión ha sido dada en la ecuación (2.21). Los elementos matriciales de la interacción de Coulomb, involucrados en el segundo término de (2.36), son calculados en dos dimensiones según la ecuación (A.11) deducida en el anexo A de esta tesis. Esto implica que dichos elementos matriciales son diagonales con respecto al índice de subbanda  $k_z$ . Además hemos definido el parámetro

$$\beta_{\text{int}} = \beta' \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \quad (2.37)$$

donde, el factor  $\beta'$  ha sido usado con el objetivo de simular el efecto de la tercera dimensión ( $z$ ) en la interacción de Coulomb. Este coeficiente toma valores entre 0.6 para  $L = 25$  nm y 0.8 para  $L = 8$  nm [89].

Las ecuaciones de HF (2.36) son ecuaciones no lineales. Estas son resueltas iterativamente. Para ello consideramos una aproximación inicial para los coeficientes  $C_s^{\alpha(e)} = \delta_{as}$  los cuales son sustituidos en la ecuación (2.36). Los nuevos coeficientes, obtenidos a partir de diagonalizar la matriz,

$$(\hat{h}_e^{\text{HF}})_{st} = \epsilon_s^{(e)} \delta_{st} + \beta_{\text{int}} \sum_{\mu \leq \xi_f^e} \sum_{u,v} \left[ \langle s, u | \frac{1}{r} | t, v \rangle - \langle s, u | \frac{1}{r} | v, t \rangle \right] C_u^{\mu(e)} C_v^{\mu(e)}, \quad (2.38)$$

son sustituidos nuevamente en (2.36) y así sucesivamente hasta obtener convergencia con respecto a los valores de  $\varepsilon_\alpha^e$ . La base de funciones utilizada está conformada por todos los estados del oscilador bidimensional incluidos en 20 capas (420 estados) pertenecientes a la primera subbanda del pozo. Una vez concluido el proceso iterativo es posible calcular fácilmente las propiedades del estado base como la energía total, el momentum angular total, la proyección de espín total, la densidad electrónica [76], etc. Por ejemplo, la energía total del estado base en la aproximación de Hartree-Fock puede ser obtenida mediante la siguiente expresión:

$$E_0^{\text{HF}} = \langle \text{HF} | \hat{H}^e | \text{HF} \rangle = \frac{1}{2} \sum_{\mu \leq \xi_f^e} \left\{ \varepsilon_\mu^e + \sum_t |C_t^{\mu(e)}|^2 \epsilon_t^{(e)} \right\}. \quad (2.39)$$

## 2.4. Estados uniparticulares de un hueco en la banda de valencia en presencia de $N_e$ electrones

El análisis teórico del proceso de dispersión Raman resonante implica, como veremos en el capítulo 4, el cálculo de elementos matriciales de transición a estados intermedios (virtuales) que involucran la creación y aniquilación de pares electrón-hueco en el punto cuántico. Cuando en un semiconductor se produce una transición interbanda en la cual un electrón de la banda

de valencia es excitado a un estado en la banda de conducción, este deja tras si una vacancia que puede ser interpretada como una cuasipartícula, el hueco. Esta cuasipartícula poseerá una energía y una masa efectiva igual a la del electrón en la banda de valencia. Sin embargo, otras magnitudes físicas que caracterizan el estado como son el momentum cinético, el momentum angular y el espín tendrán el signo cambiado con respecto al de los electrones.

En esta sección obtendremos las ecuaciones que nos permitirán calcular las energías y funciones de onda correspondientes a los estados unipartculares de un hueco en la banda de valencia del punto cuántico en presencia de un potencial electrostático generado por  $N_e$  electrones confinados en la banda de conducción. Como explicamos al inicio de este capítulo, el tope de la banda de valencia para el GaAs presenta una degeneración de orden 4 correspondiente a los valores  $m_j = \pm 3/2, \pm 1/2$ , siendo  $m_j$  la proyección en la dirección  $z$  del momentum angular total  $J$  correspondiente a la función de banda. En la aproximación de la función envolvente la función de onda que describe el movimiento del hueco en la banda de valencia se escribe como:

$$\Psi^{(h)}(\vec{r}) = \sum_{m_j \in \Gamma_8} \varphi_{m_j}^{(h)}(\vec{r}) u_{m_j 0}(\vec{r}), \quad (2.40)$$

donde  $\varphi_{m_j}^{(h)}(\vec{r})$  puede ser considerada la componente de un vector  $\varphi^{(h)}$  que es solución del problema,

$$\hat{\mathcal{H}}_{KL} \varphi^{(h)} = E^h \varphi^{(h)}. \quad (2.41)$$

En la ecuación (2.41)  $\hat{\mathcal{H}}_{KL}$  denota el Hamiltoniano efectivo obtenido por Kohn y Luttinger [90, 91] para describir los efectos de potenciales que rompen la periodicidad de la red cristalina. Este Hamiltoniano tiene una estructura matricial y puede ser escrito para el punto cuántico de la siguiente manera:

$$\hat{\mathcal{H}}_{KL} = \begin{pmatrix} \hat{H}_{3/2} & \hat{S} & \hat{R} & 0 \\ \hat{S}^\dagger & \hat{H}_{1/2} & 0 & \hat{R} \\ \hat{R}^\dagger & 0 & \hat{H}_{-1/2} & -\hat{S} \\ 0 & \hat{R}^\dagger & -\hat{S}^\dagger & \hat{H}_{-3/2} \end{pmatrix}, \quad (2.42)$$

con las definiciones siguientes:

$$\begin{aligned} \hat{H}_{\pm 3/2} = & - \frac{\hbar^2}{2m_0 L^2} (\gamma_1 - 2\gamma_2) \frac{\partial^2}{\partial z^2} + \hbar \Omega_{hh} \left\{ \frac{\hat{\vec{p}}_\rho^h}{2} + \frac{\rho^2}{2} \right\} - \frac{\hbar \omega_c^{hh}}{2} \hat{l}_z^h + \\ & \pm (3\kappa' + \frac{27}{4}q') \mu_B B, \end{aligned} \quad (2.43)$$

$$\begin{aligned} \hat{H}_{\pm 1/2} = & - \frac{\hbar^2}{2m_0 L^2} (\gamma_1 + 2\gamma_2) \frac{\partial^2}{\partial z^2} + \hbar \Omega_{lh} \left\{ \frac{\hat{\vec{p}}_\rho^h}{2} + \frac{\rho^2}{2} \right\} - \frac{\hbar \omega_c^{lh}}{2} \hat{l}_z^h + \\ & \pm (\kappa' + \frac{q'}{4}) \mu_B B, \end{aligned} \quad (2.44)$$

donde  $L$  es el ancho del pozo,  $\hbar\Omega_{hh} = \hbar\Omega \frac{m_e(\gamma_1+\gamma_2)}{m_0}$ ,  $\hbar\Omega_{lh} = \hbar\Omega \frac{m_e(\gamma_1-\gamma_2)}{m_0}$ , son los confinamientos efectivos para los huecos pesados ( $m_j = \pm 3/2$ ) y ligeros ( $m_j = \pm 1/2$ ) respectivamente,  $\hbar\omega_c^{hh} = \hbar\omega_{ce} \frac{m_e(\gamma_1+\gamma_2)}{m_0}$  y  $\hbar\omega_c^{lh} = \hbar\omega_{ce} \frac{m_e(\gamma_1-\gamma_2)}{m_0}$ , donde  $\omega_{ce}$  es la frecuencia ciclotrónica del electrón. Al igual que para el caso de electrones el paso a variables adimensionales resulta de escoger la longitud característica en  $z$  dada por el ancho del pozo y en el plano por  $\ell_e = \sqrt{\frac{\hbar}{m_e\Omega_e}}$ . En nuestros cálculos asumimos además que las longitudes características de los electrones y los huecos en el punto es la misma,

$$\ell_e = \ell_{hh} = \ell_{lh}. \quad (2.45)$$

Para los términos no diagonales tenemos:

$$\hat{S} = -\sqrt{3} \frac{\gamma_3 \hbar^2}{m_0 \ell_e L} e^{-i\theta} \left\{ -\frac{\partial}{\partial \rho} + \frac{i}{\rho} \frac{\partial}{\partial \theta} - \frac{\omega_{ce}}{2\Omega_e} \rho \right\} \frac{\partial}{\partial z}, \quad (2.46)$$

$$\begin{aligned} \hat{R} = & \frac{\sqrt{3}}{2} \frac{\bar{\gamma} \hbar^2}{m_0 l_e^2} e^{-2i\theta} \left\{ \frac{\partial^2}{\partial \rho^2} - \frac{2i}{\rho} \frac{\partial^2}{\partial \rho \partial \theta} - \frac{1}{\rho^2} \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} + \left( \frac{\omega_{ce}}{\Omega_e} \rho - \frac{1}{\rho} \right) \frac{\partial}{\partial \rho} \right. \\ & \left. + i \left( \frac{2}{\rho^2} - \frac{\omega_{ce}}{\Omega_e} \right) \frac{\partial}{\partial \theta} + \left( \frac{\omega_{ce}}{2\Omega_e} \right)^2 \rho^2 \right\}, \end{aligned} \quad (2.47)$$

donde el operador  $\hat{R}$  está dado en la aproximación axial [91]. Nótese que en las ecuaciones (2.43) y (2.44) hemos añadido en los elementos diagonales de  $\mathcal{H}_{KL}$  el potencial de confinamiento parabólico en el plano del punto. Los términos proporcionales con  $\kappa'$  y  $q'$  en dichas ecuaciones dan cuenta de la existencia de un campo magnético homogéno aplicado en la dirección  $z$ .

Si tomamos en cuenta la existencia de  $N_e$  electrones confinados en la banda de conducción del punto, obviamente tenemos que considerar en la ecuación (2.41) el término de interacción del hueco con un potencial (medio) electrostático generado por este conjunto de electrones. El valor de dicho potencial en el punto  $\vec{r}$  puede calcularse como,

$$V_{Ne}(\vec{r}) = \frac{1}{\kappa} \int d^3 \vec{r}' \frac{\rho^e(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|}, \quad (2.48)$$

donde  $\rho^e(\vec{r}')$  es la densidad electrónica en el punto  $\vec{r}'$  calculada en la aproximación de Hartree-Fock:

$$\rho^e(\vec{r}') = \langle \text{HF} | \hat{\rho}^e(\vec{r}') | \text{HF} \rangle. \quad (2.49)$$

En la ecuación (2.49)  $\hat{\rho}^e(\vec{r}') = -e \sum_{i=1}^{N_e} \delta(\vec{r}' - \vec{r}_{ie})$  y el estado  $|\text{HF}\rangle$  es el determinante de Slater conformado por los orbitales de HF  $\varphi_\alpha^{(e)}$  calculados en la sección 2.3. Expresando el operador  $\hat{\rho}^e(\vec{r}')$  en segunda cuantización en la base conformada por los estados uniparticulares de HF para electrones y tomando el valor medio, obtenemos:

$$\rho^e(\vec{r}') = -e \sum_{\alpha, \beta} \langle \alpha | \delta(\vec{r}' - \vec{r}) | \beta \rangle \rho_{\beta \alpha}^e$$

$$= -e \sum_{\mu \leq \xi_f^e} \varphi_\mu^{(e)*}(\vec{r}') \varphi_\mu^{(e)}(\vec{r}'), \quad (2.50)$$

donde  $\rho_{\beta\alpha}^e$  es la matriz desidada de una partícula definida según la ecuación (2.30). La suma en la ecuación (2.50) incluye todos los estados de HF ocupados por los electrones en la banda de conducción. Sustituyendo (2.50) en (2.48) obtenemos la siguiente expresión para el potencial  $V_{N_e}(\vec{r})$ :

$$V_{N_e}(\vec{r}) = -\frac{e}{\kappa\ell_e} \sum_{\mu \leq \xi_f^e} \int d^3\vec{r}' \varphi_\mu^{(e)*}(\vec{r}') \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \varphi_\mu^{(e)}(\vec{r}'). \quad (2.51)$$

En nuestro caso, estamos interesados en los estados uniparticulares de hueco que satisfacen la siguiente ecuación:

$$\left[ \hat{\mathcal{H}}_{KL} - \frac{e^2}{\kappa\ell_e} V_{N_e} \mathbb{I}_4 \right] \varphi_\beta^{(h)}(\vec{r}) = \varepsilon_\beta^h \varphi_\beta^{(h)}(\vec{r}), \quad (2.52)$$

donde  $\mathbb{I}_4$  es una matriz identidad de dimensión 4. Multiplicando por la izquierda la ecuación (2.52) por un estado arbitrario  $\varphi_\alpha^{(h)*}(\vec{r})$  y tomando la integral por todo el espacio obtenemos:

$$\langle \alpha^h | \hat{\mathcal{H}}_{KL} | \beta^h \rangle - \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \langle \alpha^h, \mu^e | \frac{1}{r} | \beta^h, \mu^e \rangle \mathbb{I}_4 = \varepsilon_\alpha^h \delta_{\alpha\beta}. \quad (2.53)$$

Con el objetivo de diagonalizar la ecuación (2.53) para los estados de huecos expandimos los estados  $\varphi^{(h)}$  en la base de funciones definidas en (2.20), autofunciones de la diagonal del Hamiltoniano  $\mathcal{H}_{KL}$ ,

$$\varphi_\alpha^{(h)}(\vec{r}) = \sum_s C_s^{\alpha(h)} \phi_s^{(h)}(\vec{r}) \chi_{m_{js}}. \quad (2.54)$$

Sustituyendo la ecuación (2.54) en (2.53) y utilizando el desarrollo (2.35) para los estados de electrones  $\varphi_\mu^{(e)}(\vec{r})$ , obtenemos las siguientes ecuaciones para el cálculo de los coeficientes  $C_s^{\alpha(h)}$  y las autoenergías  $\varepsilon_\alpha^h$ ,

$$\begin{aligned} & \sum_t \left\{ \langle s^h | \hat{\mathcal{H}}_{KL} | t^h \rangle - \beta_{\text{int}} \delta_{m_{js}, m_{jt}} \sum_{\mu \leq \xi_f^e} \sum_{u,v} \delta_{k_{zs}^h, k_{zt}^h} \delta_{k_{zu}^e, k_{zv}^e} \langle s^h, u^e | \frac{1}{r} | t^h, v^e \rangle C_u^{\mu(e)} C_v^{\mu(e)} \right\} C_t^{\alpha(h)} \\ &= \varepsilon_\alpha^h C_s^{\alpha(h)}. \end{aligned} \quad (2.55)$$

El primer término en la ecuación (2.55) corresponde a los elementos matriciales del Hamiltoniano de Kohn-Luttinger cuyas expresiones son brindadas en el apéndice B de esta tesis. El segundo término corresponde a los elementos matriciales de Coulomb calculados en dos dimensiones entre estados de oscilador los cuales son diagonales en los índices  $m_j$  y  $k_z$ . Es fácil demostrar a partir de las expresiones para los elementos matriciales de  $\mathcal{H}_{KL}$  que los estados de huecos se agruparán en sectores con un valor común de la magnitud  $f_h = l_s - m_j$  donde

$l_s$  es el número cuántico de momentum angular correspondiente al estado de oscilador  $\phi_s$ . El problema de autovalores y autovectores definido en la ecuación (2.55) es resuelto utilizando una base conformada por todas las funciones  $\phi_s$  existentes en 20 capas de oscilador y 6 subbandas del pozo (5040 estados).

## 2.5. Ecuaciones de Hartree-Fock en sistemas neutros ( $N_e = N_h$ )

En esta sección derivaremos las ecuaciones de Hartree-Fock para un conjunto de  $N$  pares electrón-hueco confinados en el interior de un punto cuántico de GaAs. Para ello consideraremos un modelo simplificado de dos bandas en el cual ambos portadores están confinados en la dirección de crecimiento ( $z$ ) por un potencial de paredes rígidas y en el plano del punto por un potencial parabólico. Además supondremos la existencia de un campo magnético externo constante y uniforme en la dirección  $z$ .

El Hamiltoniano que describe a los  $N$  “excitones” en el punto puede escribirse como:

$$\hat{H}^{eh} = \sum_{i=1}^N [\hat{h}^e(i) + \hat{h}^h(i)] + \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{i < j}^N \frac{1}{|\vec{r}_{ie} - \vec{r}_{je}|} + \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{i < j}^N \frac{1}{|\vec{r}_{ih} - \vec{r}_{jh}|} - \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{i,j}^N \frac{1}{|\vec{r}_{ie} - \vec{r}_{jh}|}, \quad (2.56)$$

donde  $\hat{h}^e(i)$  es el Hamiltoniano de una partícula definido en la expresión (2.19) y  $\hat{h}^h(i)$  es el Hamiltoniano uniparticular para huecos el cual podemos escribir como,

$$\hat{h}^h(i) = \frac{\hat{p}_z^h}{2m_h} + V(z) + \frac{m_e}{m_h}\hbar\Omega_e \left( \frac{\hat{p}_\rho^h}{2} + \frac{\rho^2}{2} \right) - \frac{m_e}{m_h}\frac{\hbar\omega_{ce}}{2}\hat{l}_z^h + g^h\mu_B B\hat{s}_z^h. \quad (2.57)$$

Los tres términos restantes en la ecuación (2.56) corresponden a la interacción Coulombiana electrón-electrón (ee), hueco-hueco (hh) y electrón-hueco (eh) respectivamente. El Hamiltoniano (2.56) está escrito en variables adimensionales  $\vec{r} = (\vec{r}, z)$  con respecto a la longitud característica del oscilador en el plano y el ancho del pozo en la dirección de crecimiento, respectivamente. Además hemos asumido longitudes características iguales para los electrones y los huecos ( $\ell_e = \ell_h$ ).

Al igual que hicimos en la sección 2.3, en la cual obtuvimos las ecuaciones de HF en un punto cuántico cargado con  $N_e$  electrones, asumiremos la existencia del Hamiltoniano,

$$\hat{H}_{eh}^{\text{HF}} = \sum_{i=1}^N \left( \hat{h}_e^{\text{HF}}(i) + \hat{h}_h^{\text{HF}}(i) \right), \quad (2.58)$$

cuya autofunción dando el valor mínimo de la energía  $E_0^{\text{HF}}$  será construida como el producto de los determinantes de Slater de electrones y huecos,

$$|\text{HF}\rangle = |\Phi^e(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N)\rangle \otimes |\Phi^h(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N)\rangle = \prod_{\mu=1}^N \hat{e}_\mu^\dagger |0\rangle \otimes \prod_{\nu=1}^N \hat{h}_\nu^\dagger |0\rangle, \quad (2.59)$$

donde  $\hat{e}_\mu^\dagger$  y  $\hat{h}_\nu^\dagger$  se refieren a los operadores de creación de electrones y huecos en los estados  $\varphi_\mu^{(e)}$  y  $\varphi_\nu^{(h)}$ , autofunciones de  $\hat{h}_e^{\text{HF}}$  y  $\hat{h}_h^{\text{HF}}$  respectivamente,

$$\hat{h}_e^{\text{HF}}(i)\varphi_\mu^{(e)}(i) = \varepsilon_\mu^e \varphi_\mu^{(e)}(i), \quad (2.60)$$

$$\hat{h}_h^{\text{HF}}(i)\varphi_\nu^{(h)}(i) = \varepsilon_\nu^h \varphi_\nu^{(h)}(i). \quad (2.61)$$

El Hamiltoniano (2.56) puede ser escrito en el formalismo de la segunda cuantización en la base de estados uniparticulares de HF para electrones  $\varphi_\mu^{(e)}$  y huecos  $\varphi_\nu^{(h)}$ ,

$$\begin{aligned} \hat{H}^{eh} &= \sum_{\alpha,\beta} \langle \alpha^e | \hat{h}^e | \beta^e \rangle \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta + \sum_{\alpha,\beta} \langle \alpha^h | \hat{h}^h | \beta^h \rangle \hat{h}_\alpha^\dagger \hat{h}_\beta \\ &+ \frac{1}{2} \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha^e, \beta^e | \frac{1}{r} | \gamma^e, \delta^e \rangle \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta^\dagger \hat{e}_\delta \hat{e}_\gamma + \frac{1}{2} \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha^h, \beta^h | \frac{1}{r} | \gamma^h, \delta^h \rangle \hat{h}_\alpha^\dagger \hat{h}_\beta^\dagger \hat{h}_\delta \hat{h}_\gamma \\ &- \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha^e, \beta^h | \frac{1}{r} | \gamma^e, \delta^h \rangle \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{h}_\beta^\dagger \hat{h}_\delta \hat{e}_\gamma. \end{aligned} \quad (2.62)$$

Para el problema de  $N$  pares electrón-hueco, la ecuación (2.30), según la cual definimos la matriz densidad de una partícula para electrones, se generaliza mediante la definición de la matriz densidad para huecos,

$$\rho_{\beta\alpha}^h = \langle \text{HF} | \hat{h}_\alpha^\dagger \hat{h}_\beta | \text{HF} \rangle = \begin{cases} \delta_{\alpha\beta} & \alpha, \beta \leq \xi_f^h \\ 0 & \alpha, \beta > \xi_f^h \end{cases}, \quad (2.63)$$

donde  $\xi_f^h$  denota el nivel de Fermi para huecos en la banda de valencia. Si ahora tomamos el valor medio del Hamiltoniano (2.62) en el estado  $|\text{HF}\rangle$  y hacemos uso nuevamente del teorema de Wick obtenemos:

$$\begin{aligned} E_0^{\text{HF}}[\rho^e, \rho^h] &= \langle \text{HF} | \hat{H}^{eh} | \text{HF} \rangle \\ &= \sum_{\alpha,\beta} \langle \alpha^e | \hat{h}^e | \beta^e \rangle \rho_{\beta\alpha}^e + \sum_{\alpha,\beta} \langle \alpha^h | \hat{h}^h | \beta^h \rangle \rho_{\beta\alpha}^h \\ &+ \frac{1}{2} \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha^e, \beta^e | \frac{1}{r} | \gamma^e, \delta^e \rangle \{ \rho_{\gamma\alpha}^e \rho_{\delta\beta}^e - \rho_{\delta\alpha}^e \rho_{\gamma\beta}^e \} \\ &+ \frac{1}{2} \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha^h, \beta^h | \frac{1}{r} | \gamma^h, \delta^h \rangle \{ \rho_{\gamma\alpha}^h \rho_{\delta\beta}^h - \rho_{\delta\alpha}^h \rho_{\gamma\beta}^h \} \\ &- \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha^e, \beta^h | \frac{1}{r} | \gamma^e, \delta^h \rangle \rho_{\gamma\alpha}^e \rho_{\delta\beta}^h. \end{aligned} \quad (2.64)$$

Finalmente lo que resta para obtener las ecuaciones de Hartree-Fock es minimizar el valor medio (2.64) con las condiciones  $\text{Tr}\rho^e = \text{Tr}\rho^h = N$ . Por tanto, debemos resolver las siguientes ecuaciones:

$$\frac{\partial}{\partial \rho_{\beta'\alpha'}^e} \left\{ E_0^{\text{HF}}[\rho^e, \rho^h] - \lambda^e \sum_{\alpha} \rho_{\alpha\alpha}^e \right\} = 0, \quad \frac{\partial}{\partial \rho_{\beta'\alpha'}^h} \left\{ E_0^{\text{HF}}[\rho^e, \rho^h] - \lambda^h \sum_{\alpha} \rho_{\alpha\alpha}^h \right\} = 0. \quad (2.65)$$

Llevando a cabo las derivadas planteadas en (2.65) obtenemos:

$$\begin{aligned} \langle \alpha^e | \hat{h}^e | \beta^e \rangle + \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \sum_{\mu \leq \xi_f^e} \left( \langle \alpha^e, \mu^e | \frac{1}{r} | \beta^e, \mu^e \rangle - \langle \alpha^e, \mu^e | \frac{1}{r} | \mu^e, \beta^e \rangle \right) \\ - \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \sum_{\nu \leq \xi_f^h} \langle \alpha^e, \nu^h | \frac{1}{r} | \beta^e, \nu^h \rangle = \varepsilon_{\alpha}^e \delta_{\alpha\beta}, \end{aligned} \quad (2.66)$$

$$\begin{aligned} \langle \alpha^h | \hat{h}^h | \beta^h \rangle + \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \sum_{\nu \leq \xi_f^h} \left( \langle \alpha^h, \nu^h | \frac{1}{r} | \beta^h, \nu^h \rangle - \langle \alpha^h, \nu^h | \frac{1}{r} | \nu^h, \beta^h \rangle \right) \\ - \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \sum_{\mu \leq \xi_f^e} \langle \alpha^h, \mu^e | \frac{1}{r} | \beta^h, \mu^e \rangle = \varepsilon_{\alpha}^h \delta_{\alpha\beta}. \end{aligned} \quad (2.67)$$

Las ecuaciones anteriores no son más que las representaciones matriciales de los Hamiltonianos uniparticulares  $\hat{h}_e^{\text{HF}}$  y  $\hat{h}_h^{\text{HF}}$  en las bases de funciones  $\varphi_k^{(e)}$  y  $\varphi_k^{(h)}$  respectivamente. Según la ecuación (2.66) el electrón con energía  $\varepsilon_{\alpha}^e$  y función de onda  $\varphi_{\alpha}^{(e)}$  calculadas en la aproximación de Hartree-Fock se mueve de manera independiente bajo la acción de un campo medio generado por el resto de los electrones confinados en el punto (segundo término) interactuando atractivamente con un potencial electrostático generado por los  $N$  huecos (tercer término) confinados en la banda de valencia. Una interpretación similar puede ser enunciada para los huecos.

Al igual que en la sección 2.3, expandiremos los estados uniparticulares de HF para electrones y huecos como,

$$\varphi_{\alpha}^{(e)}(\vec{r}) = \sum_s C_s^{\alpha(e)} \phi_s^{(e)}(\vec{r}) \chi_s^{(e)}(\sigma), \quad (2.68)$$

$$\varphi_{\alpha}^{(h)}(\vec{r}) = \sum_s C_s^{\alpha(h)} \phi_s^{(h)}(\vec{r}) \chi_s^{(h)}(\sigma). \quad (2.69)$$

Sustituyendo a (2.68) y (2.69) en las ecuaciones (2.66) y (2.67) obtenemos las siguientes ecuaciones para el cálculo de los coeficientes  $C_s^{\alpha}$  y las autoenergías  $\varepsilon_{\alpha}$ ,

$$\begin{aligned} \sum_t \left\{ \epsilon_s^{(e)} \delta_{st} + \beta_{\text{int}} \sum_{\mu \leq \xi_f^e} \sum_{u,v} \left[ \langle s^e, u^e | \frac{1}{r} | t^e, v^e \rangle - \langle s^e, u^e | \frac{1}{r} | v^e, t^e \rangle \right] C_u^{\mu(e)} C_v^{\mu(e)} \right. \\ \left. - \beta_{\text{int}} \sum_{\nu \leq \xi_f^h} \sum_{u,v} \langle s^e, u^h | \frac{1}{r} | t^e, v^h \rangle C_u^{\nu(h)} C_v^{\nu(h)} \right\} C_{\alpha t}^e = \varepsilon_{\alpha}^e C_{\alpha s}^{(e)}, \end{aligned} \quad (2.70)$$

$$\sum_t \left\{ \epsilon_s^{(h)} \delta_{st} + \beta_{\text{int}} \sum_{\nu \leq \xi_f^h} \sum_{u,v} \left[ \langle s^h, u^h | \frac{1}{r} | t^h, v^h \rangle - \langle s^h, u^h | \frac{1}{r} | v^h, t^h \rangle \right] C_u^{\nu(h)} C_v^{\nu(h)} \right. \\ \left. - \beta_{\text{int}} \sum_{\mu \leq \xi_f^e} \sum_{u,v} \langle s^h, u^e | \frac{1}{r} | t^h, v^e \rangle C_u^{\mu(e)} C_v^{\mu(e)} \right\} C_{\alpha t}^h = \varepsilon_{\alpha}^h C_{\alpha s}^{(h)}. \quad (2.71)$$

En la ecuación (2.71)  $\epsilon_s^{(h)}$  denota las autoenergías del Hamiltoniano  $\hat{h}^h$  dadas por la siguiente expresión:

$$\epsilon_{k_s l_s k_{zs} s_{zs}}^{(h)} = \frac{\hbar^2 \pi^2}{2m_h L^2} k_{zs}^2 + \frac{m_e}{m_h} \hbar \Omega_h (2k_s + |l_s| + 1) - \frac{m_e \hbar \omega_{ce}}{2} l_s + g_s \mu_B B s_{zs}. \quad (2.72)$$

Las ecuaciones de HF (2.70) y (2.71) son resueltas simultáneamente mediante el método iterativo. Para ello consideramos una aproximación inicial para los coeficientes  $C_s^{\alpha} = \delta_{\alpha s}$  para electrones y huecos los cuales son sustituidos en las ecuaciones de HF. Los nuevos coeficientes obtenidos a partir de dichas ecuaciones son sustituidos nuevamente y así sucesivamente hasta obtener convergencia con respecto a los valores de energías  $\varepsilon_{\alpha}$ .

## 2.6. Conclusiones parciales

En este capítulo hemos descrito la aplicación del método de Hartree-Fock (HF) para el cálculo de los estados uniparticulares de electrones y huecos en puntos cuánticos cargados y neutros.

Se ha descrito de forma general la estructura de bandas del GaAs. En los marcos del método  $\vec{k} \cdot \hat{p}$  se obtuvo la expresión del tensor de masa efectiva que describe la cinemática de los portadores en la vecindad del punto  $\Gamma$ .

El punto cuántico es modelado en forma de disco con altura  $L$  y radio  $R$ . El confinamiento de los portadores en la dirección de crecimiento es modelado con un potencial de paredes rígidas y en la dirección lateral por un potencial parabólico con energía característica  $\hbar \omega_0$ . Además consideramos la existencia de un campo magnético externo constante en la dirección  $z$ .

Las ecuaciones de HF para  $N_e$  electrones confinados en la banda de conducción del punto son obtenidas. También presentamos la expresión para el cálculo de la energía del estado básico del sistema calculada en la aproximación de HF.

Los estados uniparticulares para huecos en la banda de valencia son obtenidos mediante la diagonalización del Hamiltoniano  $4 \times 4$  de Kohn-Luttinger considerando además, en los términos de la diagonal, la interacción del hueco con un potencial electrostático generado por  $N_e$  electrones confinados en la banda de conducción. La consideración de la mezcla de las bandas de valencia en la descripción de los estados de huecos ha permitido, como veremos en el capítulo 4, considerar en el proceso de dispersión Raman estados excitados con cambio en la proyección del espín (*spin-flip*).

Finalmente, en este capítulo derivamos las ecuaciones de HF para un punto cuántico neutro. El sistema de  $N$  pares electrón-hueco es tratado en un modelo simplificado de dos bandas.

# Capítulo 3

## EXCITACIONES ELECTRONICAS EN PUNTOS CUANTICOS

En este capítulo se describe la aplicación e implementación de la Aproximación de Fase Aleatoria (RPA) para la obtención de los espectros de excitaciones electrónicas intra e interbandas en puntos cuánticos semiconductores cargados y neutros. La presentación de dicho formalismo, en un estilo tomado de la teoría microscópica del núcleo atómico, ha estado motivada por las múltiples similitudes entre estos sistemas y las nanoestructuras semiconductoras que constituyen el objeto de estudio de esta tesis.

Es posible establecer analogías físicas entre los átomos reales y los puntos cuánticos cargados, denominados también *átomos artificiales*. En ambos sistemas los electrones son confinados por un potencial central externo. El potencial parabólico confinante en puntos cuánticos semiconductores encuentra su análogo en la atracción Coulombiana ejercida sobre los electrones del átomo por los protones en el núcleo. El confinamiento tridimensional de los electrones en estas heteroestructuras semiconductoras da lugar, al igual que en átomos, a un espectro discreto de niveles de energía con una estructura de capas. Otro elemento común a ambos sistemas es la naturaleza Coulombiana de las interacciones entre sus partículas componentes.

Los puntos cuánticos neutros, por otro lado, guardan una analogía muy interesante con los núcleos atómicos. Al igual que en estos últimos, en los puntos neutros existen dos tipos de partículas caracterizadas por valores diferentes de su masa: los electrones y los huecos. El potencial de interacción entre ellas contiene canales atractivos (interacción electrón-hueco) y repulsivos (interacción electrón-electrón, hueco-hueco). Es por esto, por ejemplo, que en puntos neutros o *núcleos artificiales* se observan fenómenos análogos a las resonancias dipolares gigantes [79] y pequeñas [80] usualmente observados en núcleos atómicos.

### 3.1. Excitaciones intrabandas

Las excitaciones electrónicas intrabandas son transiciones electrónicas que tienen lugar entre estados cuánticos pertenecientes a una misma banda energética del semiconductor. Dichas excitaciones aparecen representadas esquemáticamente en la figura 3.1.

Consideremos un sistema de  $N$  partículas ocupando los orbitales de Hartree-Fock de mas bajas

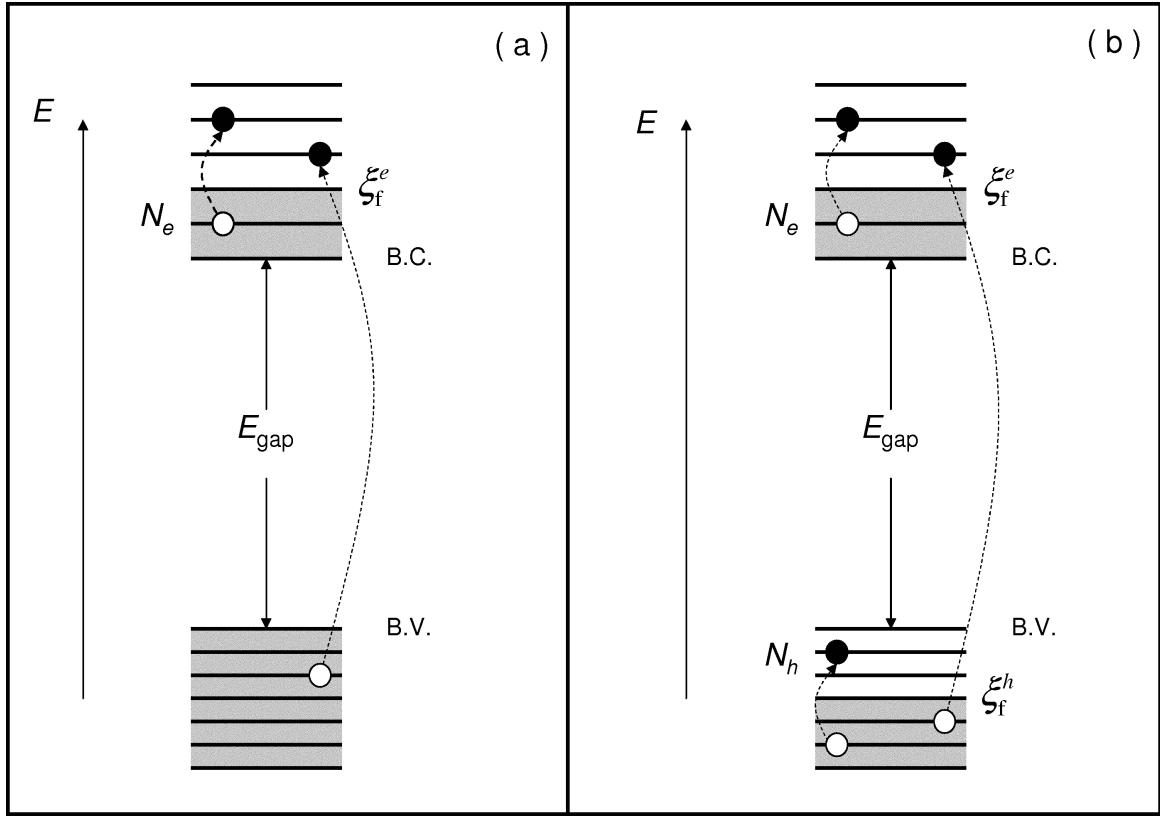


Figura 3.1: Representación esquemática de las excitaciones electrónicas intrabandas e interbandas en un punto cuántico cargado (a) y neutro (b).  $\xi_f^e$  y  $\xi_f^h$  denotan los niveles de Fermi para los electrones y huecos respectivamente.

energías hasta cierto nivel de Fermi. Las funciones de ondas exactas que caracterizan al estado base  $|0\rangle$  o a los estados excitados  $|f\rangle$  de dicho sistema pueden expandirse de la siguiente manera:

$$|0\rangle = C_0^{(0)}|\text{HF}\rangle + \sum_{\sigma\lambda} C_{\sigma\lambda}^{(0)}\hat{a}_\sigma^\dagger\hat{a}_\lambda|\text{HF}\rangle + \frac{1}{4} \sum_{\sigma\tau,\lambda\mu} C_{\sigma\tau,\lambda\mu}^{(0)}\hat{a}_\sigma^\dagger\hat{a}_\tau^\dagger\hat{a}_\lambda\hat{a}_\mu|\text{HF}\rangle + \dots \quad (3.1)$$

$$|f\rangle = C_0^{(f)}|\text{HF}\rangle + \sum_{\sigma\lambda} C_{\sigma\lambda}^{(f)}\hat{a}_\sigma^\dagger\hat{a}_\lambda|\text{HF}\rangle + \frac{1}{4} \sum_{\sigma\tau,\lambda\mu} C_{\sigma\tau,\lambda\mu}^{(f)}\hat{a}_\sigma^\dagger\hat{a}_\tau^\dagger\hat{a}_\lambda\hat{a}_\mu|\text{HF}\rangle + \dots, \quad (3.2)$$

donde en lo adelante los índices  $\sigma, \tau(\lambda, \mu)$  correrán por estados de Hartree-Fock por encima (debajo) del nivel de Fermi. Los términos siguientes en las ecuaciones (3.1, 3.2) corresponden a excitaciones de tres, cuatro, ...,  $N$  partículas sobre el estado  $|\text{HF}\rangle$ . El operador  $\hat{a}_\sigma^\dagger a_\lambda$  aniquila una partícula por debajo del nivel de Fermi (creando un hueco) y crea una partícula por encima del mismo, por lo que se denomina una excitación del tipo 1partícula-1hueco ( $1p - 1h$ ) sobre el estado de  $|\text{HF}\rangle$ .

La diagonalización exacta del Hamiltoniano de un sistema de muchos cuerpos es algo que sólo puede implementarse cuando estos están compuestos por pocas partículas. Una de las aproximaciones más usadas en el tratamiento de sistemas relativamente grandes, como usualmente sucede en la Física Nuclear, es la aproximación de Tamm-Dancoff en la cual el estado base

del sistema es tratado en la aproximación de Hartree-Fock y la función de onda de los estados excitados es escrita como una combinación lineal de configuraciones  $1p - 1h$ ,

$$|f\rangle = \sum_{\sigma\lambda} C_{\sigma\lambda}^{(f)} \hat{a}_\sigma^\dagger \hat{a}_\lambda |HF\rangle. \quad (3.3)$$

### 3.1.1. Aproximación de la fase aleatoria (RPA)

La Aproximación de Fase Aleatoria, conocida como RPA por sus siglas en inglés, fue introducida por Bhom y Pines en los desarrollos teóricos llevados a cabo para el estudio de las oscilaciones del plasma [92]. Este formalismo constituye un refinamiento del método de Tamm-Dancoff (TDA) el cual no considera los efectos de las correlaciones entre partículas en la función de onda del estado base. La RPA es una generalización del método de TDA en la cual, en lugar de considerar un estado base de Hartree-Fock, se incluyen ciertas clases de correlaciones en la función de onda del estado fundamental del sistema de  $N$  partículas.

A continuación, haciendo uso del método de la ecuación de movimiento [93, 94], derivaremos las ecuaciones de la RPA y obtendremos las expresiones explícitas para éstas en los casos de puntos cuánticos cargados y neutros. Consideraremos el conjunto de estados excitados  $|f\rangle$  de un sistema conformado por  $N$  fermiones que satisfacen la ecuación,

$$\hat{H}|f\rangle = E_f|f\rangle. \quad (3.4)$$

Es posible definir operadores  $\hat{Q}_f^\dagger$  y  $\hat{Q}_f$  tales que,

$$|f\rangle = \hat{Q}_f^\dagger |0\rangle \quad \text{y} \quad \hat{Q}_f |0\rangle = 0, \quad (3.5)$$

donde  $|0\rangle$  corresponde a la función de onda exacta que describe el estado base del sistema de  $N$  partículas. A partir de la ecuación de Schrödinger (3.4) y usando las ecuaciones (3.5), obtenemos la ecuación de movimiento para el operador  $\hat{Q}_f^\dagger$ :

$$\begin{aligned} \hat{H}\hat{Q}_f^\dagger |0\rangle &= E_f\hat{Q}_f^\dagger |0\rangle, \\ [\hat{H}, \hat{Q}_f^\dagger] |0\rangle &= (E_f - E_0)\hat{Q}_f^\dagger |0\rangle. \end{aligned} \quad (3.6)$$

Multiplicando la ecuación (3.6) por la izquierda por un estado arbitrario expresado como  $\langle 0|\delta\hat{Q}$  y considerando que  $\langle 0|\hat{Q}_f^\dagger = \langle 0|\hat{H}\hat{Q}_f^\dagger = 0$  obtenemos la siguiente ecuación:

$$\langle 0|[\delta\hat{Q}, [\hat{H}, \hat{Q}_f^\dagger]]|0\rangle = (E_f - E_0)\langle 0|[\delta\hat{Q}, \hat{Q}_f^\dagger]|0\rangle. \quad (3.7)$$

Hasta este punto el tratamiento mostrado es exacto. Dado que la variación  $\delta\hat{Q}|0\rangle$  abarca a todo el espacio de Hilbert, (3.7) corresponde a la ecuación de Schrödinger exacta (3.4).

En la aproximación de Tamm-Dancoff la función de onda exacta del estado base  $|0\rangle$  es aproximada por el estado de Hartree-Fock  $|HF\rangle$  y el operador  $\hat{Q}_f^\dagger$  para construir los estados excitados  $|f\rangle$  es escrito como una combinación lineal del operador de creación partícula-hueco,

$$\hat{Q}_f^\dagger = \sum_{\tau,\mu} C_{\tau\mu}^{(f)} \hat{a}_\tau^\dagger \hat{a}_\mu. \quad (3.8)$$

En consecuencia con la ecuación (3.8), la cual nos restringe al espacio de configuraciones  $1p - 1h$  para la construcción de los estados excitados, consideramos las variaciones del tipo  $\delta Q^\dagger |0\rangle = \sum_{\sigma\lambda} \hat{a}_\sigma^\dagger \hat{a}_\lambda |HF\rangle \delta C_{\sigma\lambda}$ . Sustituyendo (3.8) en (3.7) y tomando en cuenta la expresión del conmutador,

$$[\hat{a}_\alpha^\dagger \hat{a}_\beta, \hat{a}_\gamma^\dagger \hat{a}_\delta] = \delta_{\beta\gamma} \hat{a}_\alpha^\dagger \hat{a}_\delta - \delta_{\delta\alpha} \hat{a}_\gamma^\dagger \hat{a}_\beta, \quad (3.9)$$

la ecuación (3.7) adquiere la forma:

$$\begin{aligned} \sum_{\tau,\mu} \langle HF | [\hat{a}_\lambda^\dagger \hat{a}_\sigma, [\hat{H}, \hat{a}_\tau^\dagger \hat{a}_\mu]] | HF \rangle C_{\tau\mu}^{(f)} &= \Delta E_f^{\text{TDA}} \sum_{\tau,\mu} \langle HF | (\delta_{\sigma\tau} \hat{a}_\lambda^\dagger \hat{a}_\mu - \delta_{\mu\lambda} \hat{a}_\tau^\dagger \hat{a}_\sigma) | HF \rangle C_{\tau\mu}^{(f)}, \\ \sum_{\tau,\mu} \langle HF | [\hat{a}_\lambda^\dagger \hat{a}_\sigma, [\hat{H}, \hat{a}_\tau^\dagger \hat{a}_\mu]] | HF \rangle C_{\tau\mu}^{(f)} &= \Delta E_f^{\text{TDA}} C_{\sigma\lambda}^{(f)}, \end{aligned} \quad (3.10)$$

donde  $\Delta E_f = E_f^{\text{TDA}} - E_0$  es la energía de excitación del estado  $|f\rangle$  en la aproximación de TDA. El procedimiento anterior puede ser generalizado de una manera directa. En principio, es posible escribir la ecuación (3.8) mediante una formulación mas general del operador  $\hat{Q}_f^\dagger$ . Supongamos un estado básico que contiene correlaciones del tipo  $2p - 2h$  como se ilustra en la ecuación (3.1). Bajo esta consideración, no solo es posible crear pares partícula-hueco sino también destruirlos. En la RPA la ecuación (3.8) para el operador  $\hat{Q}_f^\dagger$  se generaliza como sigue:

$$\hat{Q}_f^\dagger = \sum_{\tau,\mu} X_{\tau\mu}^{(f)} \hat{a}_\tau^\dagger \hat{a}_\mu - \sum_{\tau,\mu} Y_{\mu\tau}^{(f)} \hat{a}_\mu^\dagger \hat{a}_\tau, \quad (3.11)$$

donde el signo menos es escogido por conveniencia. El estado base  $|RPA\rangle$  es definido, en analogía con las ecuaciones (3.5), como aquel que es aniquilado por el operador  $\hat{Q}_f$

$$\hat{Q}_f |RPA\rangle = 0. \quad (3.12)$$

A diferencia de la aproximación de TDA, donde sólo teníamos una matriz  $C_{\tau\mu}^{(f)}$ , ahora tenemos dos matrices  $X_{\tau\mu}^{(f)}$  y  $Y_{\mu\tau}^{(f)}$  y por ende dos tipos de variaciones  $\delta Q|0\rangle$ , siendo éstas  $\hat{a}_\sigma^\dagger \hat{a}_\lambda |0\rangle$  y  $\hat{a}_\lambda^\dagger \hat{a}_\sigma |0\rangle$ . Por tanto, a partir de (3.7) obtenemos dos conjuntos de ecuaciones:

$$\langle RPA | [\hat{a}_\lambda^\dagger \hat{a}_\sigma, [\hat{H}, \hat{Q}_f^\dagger]] | RPA \rangle = \Delta E_f^{\text{RPA}} \langle RPA | [\hat{a}_\lambda^\dagger \hat{a}_\sigma, \hat{Q}_f^\dagger] | RPA \rangle, \quad (3.13)$$

$$\langle RPA | [\hat{a}_\sigma^\dagger \hat{a}_\lambda, [\hat{H}, \hat{Q}_f^\dagger]] | RPA \rangle = \Delta E_f^{\text{RPA}} \langle RPA | [\hat{a}_\sigma^\dagger \hat{a}_\lambda, \hat{Q}_f^\dagger] | RPA \rangle, \quad (3.14)$$

donde  $\Delta E_f^{\text{RPA}}$  es la energía de excitación del estado  $|f\rangle$  en la aproximación RPA. Estas ecuaciones contienen como mínimo valores medios de cuatro operadores fermiónicos cuyo cálculo, en

principio, es complicado dado que no conocemos el estado base  $|RPA\rangle$ . Sin embargo, si consideramos que el estado básico correlacionado  $|RPA\rangle$  no difiere mucho de un estado base descrito en la aproximación de Hartree-Fock (HF), es posible calcular los valores medios involucrados en las ecuaciones (3.13) y (3.14) en la aproximación de HF. Por ejemplo,

$$\begin{aligned}\langle RPA | [\hat{a}_\lambda^\dagger \hat{a}_\sigma, \hat{a}_\tau^\dagger a_\mu] | RPA \rangle &= \delta_{\lambda\mu} \delta_{\sigma\tau} - \delta_{\sigma\tau} \langle RPA | \hat{a}_\mu \hat{a}_\lambda^\dagger | RPA \rangle - \delta_{\lambda\mu} \langle RPA | \hat{a}_\tau^\dagger \hat{a}_\sigma | RPA \rangle \\ &\simeq \langle HF | [\hat{a}_\lambda^\dagger \hat{a}_\sigma, \hat{a}_\tau^\dagger a_\mu] | HF \rangle = \delta_{\lambda\mu} \delta_{\sigma\tau}.\end{aligned}\quad (3.15)$$

La sustitución del estado base  $|RPA\rangle$  por el estado  $|HF\rangle$  para el cálculo de los valores medios en las ecuaciones (3.13) y (3.14) se conoce con el nombre de Aproximación Cuasi-bosónica [95, 96] teniendo en cuenta que la relación (3.15) sería una relación exacta si los operadores de creación ( $\hat{a}_\tau^\dagger \hat{a}_\mu$ ) y aniquilación ( $\hat{a}_\lambda^\dagger \hat{a}_\sigma$ ) de configuraciones partícula-hueco obedecieran las relaciones de commutación de los operadores bosónicos. En este sentido la ecuación (3.15) viola el principio de exclusión de Pauli dado que hemos despreciado los demás términos del conmutador. En esta aproximación  $|X_{\tau\mu}^{(f)}|^2$  y  $|Y_{\mu\tau}^{(f)}|^2$  cuantifican la probabilidad de encontrar los estados  $1p - 1h$   $\hat{a}_\tau^\dagger \hat{a}_\mu |0\rangle$  y  $\hat{a}_\mu^\dagger \hat{a}_\tau |0\rangle$  respectivamente en el estado excitado  $|f\rangle$ ,

$$\langle 0 | \hat{a}_\mu^\dagger \hat{a}_\tau | f \rangle \simeq \langle HF | [\hat{a}_\mu^\dagger \hat{a}_\tau, \hat{Q}_f^\dagger] | HF \rangle = X_{\tau\mu}^{(f)}, \quad (3.16)$$

$$\langle 0 | \hat{a}_\tau^\dagger \hat{a}_\mu | f \rangle \simeq \langle HF | [\hat{a}_\tau^\dagger \hat{a}_\mu, \hat{Q}_f^\dagger] | HF \rangle = Y_{\mu\tau}^{(f)}. \quad (3.17)$$

### 3.1.2. Ecuaciones de la RPA para un punto cuántico cargado

En esta sección describimos la forma explícita de las ecuaciones (3.13) y (3.14) que nos permitirán calcular el espectro de excitaciones electrónicas de un punto cuántico cargado con  $N_e$  electrones.

Para ello, escribimos la ecuación (3.11) como,

$$\hat{Q}_f^\dagger = \sum_{\tau,\mu} X_{\tau\mu}^{(f)} \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu - \sum_{\tau,\mu} Y_{\mu\tau}^{(f)} \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau, \quad (3.18)$$

donde hemos sustituído los operadores genéricos de creación ( $\hat{a}^\dagger$ ) y aniquilación ( $\hat{a}$ ) de partículas por los operadores de creación ( $\hat{e}^\dagger$ ) y aniquilación ( $\hat{e}$ ) de electrones en los estados de HF calculados en la sección 2.3. El primer término en la ecuación (3.18) corresponde a aniquilar un electrón en un estado por debajo del nivel de Fermi y crearlo en un estado por encima del mismo. Por otro lado, dada la presencia de correlaciones en el estado base  $|RPA\rangle$ , el segundo término de la misma ecuación considera transiciones electrónicas en el orden inverso, o sea, la aniquilación de un electrón en un estado por encima del nivel de Fermi y la creación de éste en un estado por debajo del mismo.

Sustituyendo el estado base  $|RPA\rangle$  por el determinante de Slater  $|HF\rangle$  en las ecuaciones las ecuaciones (3.13) y (3.14) las mismas pueden reescribirse como:

$$\langle HF | \left[ \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma, [\hat{H}^e, \hat{Q}_f^\dagger] \right] | HF \rangle = \Delta E_f \langle HF | [\hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma, \hat{Q}_f^\dagger] | HF \rangle, \quad (3.19)$$

$$\langle \text{HF} | \left[ \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda, [\hat{H}^e, \hat{Q}_f^\dagger] \right] | \text{HF} \rangle = \Delta E_f \langle \text{HF} | [\hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda, \hat{Q}_f^\dagger] | \text{HF} \rangle, \quad (3.20)$$

donde  $\hat{H}^e$  es el Hamiltoniano del punto cargado descrito por la ecuación (2.28). Sustituyendo la expresión (3.18) en las ecuaciones anteriores y teniendo en cuenta la ecuación (3.9) reescribimos las ecuaciones de la RPA como sigue:

$$\sum_{\tau,\mu} \left\{ \langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{H}^e, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu] | \text{HF} \rangle X_{\tau\mu}^{(f)} - \langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{H}^e, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau] | \text{HF} \rangle Y_{\mu\tau}^{(f)} \right\} = \Delta E_f X_{\sigma\lambda}^{(f)}, \quad (3.21)$$

$$\sum_{\tau,\mu} \left\{ -\langle \text{HF} | [\hat{H}^e, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu] \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle X_{\tau\mu}^{(f)} + \langle \text{HF} | [\hat{H}^e, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau] \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle Y_{\mu\tau}^{(f)} \right\} = -\Delta E_f Y_{\lambda\sigma}^{(f)}. \quad (3.22)$$

Sustituyendo la expresión (2.28) para el Hamiltoniano  $\hat{H}^e$  en las ecuaciones anteriores y calculando los valores medios correspondientes mediante el teorema de Wick [88], descritos en forma detallada en el anexo C, obtenemos el siguiente sistema de ecuaciones lineales:

$$\sum_{\tau,\mu} \left\{ A_{\sigma\lambda,\tau\mu} X_{\tau\mu}^{(f)} + B_{\sigma\lambda,\mu\tau} Y_{\mu\tau}^{(f)} \right\} = \Delta E_f X_{\sigma\lambda}^{(f)}, \quad (3.23)$$

$$\sum_{\tau,\mu} \left\{ B_{\lambda\sigma,\tau\mu} X_{\tau\mu}^{(f)} + A_{\lambda\sigma,\mu\tau} Y_{\mu\tau}^{(f)} \right\} = -\Delta E_f Y_{\lambda\sigma}^{(f)}. \quad (3.24)$$

Las matrices  $A$  y  $B$  son,

$$\begin{aligned} A_{\sigma\lambda,\tau\mu} &= \langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{H}^e, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu] | \text{HF} \rangle \\ &= (\varepsilon_\sigma^e - \varepsilon_\lambda^e) \delta_{\sigma\tau} \delta_{\lambda\mu} + \frac{e^2}{\kappa \ell_e} (\langle \sigma, \mu | \frac{1}{r} | \lambda, \tau \rangle - \langle \sigma, \mu | \frac{1}{r} | \tau, \lambda \rangle), \end{aligned} \quad (3.25)$$

$$\begin{aligned} B_{\sigma\lambda,\mu\tau} &= -\langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{H}^e, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau] | \text{HF} \rangle \\ &= \frac{e^2}{\kappa \ell_e} (\langle \sigma, \tau | \frac{1}{r} | \lambda, \mu \rangle - \langle \sigma, \tau | \frac{1}{r} | \mu, \lambda \rangle). \end{aligned} \quad (3.26)$$

$\varepsilon^e$  son las energías uniparticulares de Hartree-Fock para electrones calculadas en la sección 2.3. Los elementos matriciales de la interacción de Coulomb en las expresiones (3.25) y (3.26) entre estados de HF son calculados utilizando la expansión indicada en la ecuación (2.35).

Las ecuaciones (3.23) y (3.24) pueden ser escritas en representación matricial como sigue:

$$\begin{pmatrix} A & B \\ -B^t & -A^d \end{pmatrix} \begin{pmatrix} X^{(f)} \\ Y^{(f)} \end{pmatrix} = \Delta E_f \begin{pmatrix} X^{(f)} \\ Y^{(f)} \end{pmatrix}. \quad (3.27)$$

Hasta este punto hemos mostrado que resolver el espectro de excitaciones electrónicas de un punto cuántico cargado con  $N_e$  electrones mediante la RPA, implica resolver el problema de

autovalores y autovectores planteado en la ecuación (3.27). La matriz RPA está compuesta por las submatrices  $A$  y  $B$  cuyos elementos matriciales vienen dados por las ecuaciones (3.25) y (3.26), respectivamente. Notar que los índices de las submatrices son índices compuestos. Por ejemplo,  $(\sigma, \lambda)$  en la submatriz  $A$  corresponden a una excitación  $\hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda |RPA\rangle$ , mientras que  $(\mu, \tau)$  en  $B$  corresponden a una excitación  $\hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau |RPA\rangle$ .  $B^t$  corresponde a la matriz transpuesta de  $B$  y los elementos matriciales de la submatriz  $A^d$  se calculan también por medio de la ecuación (3.25) pero en este caso los índices  $(\sigma, \lambda)$  y  $(\mu, \tau)$  corresponden a excitaciones  $\hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma |RPA\rangle$  y  $\hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau |RPA\rangle$  respectivamente.

Los estados de Hartree-Fock de electrones involucrados en las ecuaciones (3.25) y (3.26) corresponden a valores dados del momentum angular orbital  $l$  y la proyección de espín  $s_z$ . Tomando en cuenta que la interacción de Coulomb no modifica ninguna de las dos magnitudes, es fácil mostrar que cada una de las submatrices que conforman la matriz RPA tendrá una estructura de bloques definidos según los valores de  $\Delta l$  y  $\Delta s_z$ , los cuales representan la variación, con respecto al estado base, del momentum angular total y la proyección del espín total, respectivamente. Consideremos, por ejemplo, la ecuación (3.25) para el cálculo de los elementos matriciales  $A_{\sigma\lambda,\tau\mu}$ . La expresión (A.11) para el cálculo del elemento matricial de Coulomb contiene las siguientes reglas de selección,

$$l_\sigma + l_\mu = l_\lambda + l_\tau, \quad (3.28)$$

$$s_{z\sigma} = s_{z\lambda}, \quad (3.29)$$

$$s_{z\mu} = s_{z\tau}. \quad (3.30)$$

Sumando las ecuaciones (3.29) y (3.30) y agrupando convenientemente los términos en la ecuación resultante resulta,

$$l_\sigma - l_\lambda = l_\tau - l_\mu = \Delta l, \quad (3.31)$$

$$s_{z\sigma} - s_{z\lambda} = s_{z\tau} - s_{z\mu} = \Delta s_z. \quad (3.32)$$

Las ecuaciones (3.31) y (3.32) permiten construir la matriz RPA para sectores específicos de excitaciones electrónicas distinguidos segun los valores de  $\Delta l$  y  $\Delta s_z$ . Esto permite trabajar con matrices más pequeñas que pueden ser diagonalizadas con relativa facilidad.

Los estados excitados  $|f\rangle = \hat{Q}_f^\dagger |RPA\rangle$  deben satisfacer la condición de ortogonalidad,

$$\begin{aligned} \langle f|f' \rangle &= \delta_{f,f'} = \langle RPA|[\hat{Q}_f, \hat{Q}_{f'}^\dagger]|RPA\rangle \\ &\simeq \langle HF|[\hat{Q}_f, \hat{Q}_{f'}^\dagger]|HF\rangle. \end{aligned} \quad (3.33)$$

Sustituyendo las expresiones para los operadores  $\hat{Q}_f$  y  $\hat{Q}_{f'}^\dagger$  en la ecuación (3.33) obtenemos:

$$\begin{aligned} \langle f|f' \rangle &= \sum_{\sigma,\lambda,\tau,\mu} \left\{ \langle HF|[\hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu]|HF\rangle X_{\sigma\lambda}^{(f)} X_{\tau\mu}^{(f')} - \langle HF|[\hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau]|HF\rangle X_{\sigma\lambda}^{(f)} Y_{\mu\tau}^{(f')} \right. \\ &\quad \left. - \langle HF|[\hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu]|HF\rangle Y_{\lambda\sigma}^{(f)} X_{\tau\mu}^{(f')} + \langle HF|[\hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau]|HF\rangle Y_{\lambda\sigma}^{(f)} Y_{\mu\tau}^{(f')} \right\}. \end{aligned} \quad (3.34)$$

Haciendo uso de la ecuación (3.9) y calculando los correspondientes valores medios, la condición de ortogonalidad (3.34) se transforma en la siguiente expresión,

$$\langle f | f' \rangle = \sum_{\tau, \mu} \left\{ X_{\tau \mu}^{(f)*} X_{\tau \mu}^{(f')} - Y_{\mu \tau}^{(f)*} Y_{\mu \tau}^{(f')} \right\} = \delta_{f, f'}. \quad (3.35)$$

Para el caso en que  $f = f'$  la ecuación (3.35) constituye la condición de normalización para los autovectores de la matriz RPA,

$$1 = \sum_{\tau, \mu} \left\{ |X_{\tau \mu}^{(f)}|^2 - |Y_{\mu \tau}^{(f)}|^2 \right\}. \quad (3.36)$$

Si hacemos los coeficientes  $Y_{\mu \tau}^{(f)} = 0$  en la ecuación (3.27) retornamos a la aproximación de Tamm-Dancoff. Por ende, las magnitudes de los componentes  $Y^{(f)}$  de los autovectores de la RPA constituyen una medida de las correlaciones en el estado base. En general la aproximación cuasi-bosónica usada para la derivación de las ecuaciones de la RPA es válida para estados con una fuerte naturaleza colectiva. Dichos estados están caracterizados por la existencia de muchos coeficientes  $X_{\tau \mu}^{(f)}$  del mismo orden de magnitud. En tales casos cada configuración  $1p - 1h$ , en las cuales hemos expandido los estados  $|f\rangle$ , tiene una probabilidad muy pequeña de ser excitada y por tanto, la violación del principio de exclusión de Pauli puede ser despreciada. Por otra parte, las amplitudes  $Y_{\mu \tau}^{(f)}$  deben ser pequeñas en comparación con los valores de las componentes  $X_{\tau \mu}^{(f)}$  tomando en cuenta que éstas primeras son proporcionales a las correlaciones en el estado base. Si éstas son muy fuertes, el reemplazo de un estado base correlacionado  $|\text{RPA}\rangle$  por el estado base  $|\text{HF}\rangle$  para calcular los valores medios involucrados en las ecuaciones de la RPA no está justificado. Dentro de los límites de validez de la aproximación cuasi-bosónica es posible describir mediante la RPA excitaciones colectivas y también excitaciones uniparticulares, donde los valores de los coeficientes  $Y_{\mu \tau}^{(f)}$  son significativamente pequeños.

### 3.1.3. Elemento de matriz de los operadores multipolares.

Los elementos matriciales  $\langle f | \hat{D}_l | \text{RPA} \rangle$ , donde  $\hat{D}_l$  es el operador multipolar en dos dimensiones definido como:

$$\hat{D}_l = -e \sum_{i=1}^{N_e} \hat{d}_{l_i}, \quad (3.37)$$

$$\hat{d}_l = \begin{cases} \rho^{|l|} e^{il\theta}, & l \neq 0 \\ \rho^2, & l = 0, \end{cases} \quad (3.38)$$

siendo  $\rho$  y  $\theta$  las coordenadas polares en el plano de movimiento de los electrones en el punto, permiten clasificar al estado  $|f\rangle$  como colectivo o excitaciones de una partícula. Considerando nuevamente las relaciones (3.5) es posible escribir el elemento matricial  $\langle f | \hat{D}_l | \text{RPA} \rangle$  como,

$$\langle f | \hat{D}_l | \text{RPA} \rangle = \langle \text{RPA} | \hat{Q}_f \hat{D}_l | \text{RPA} \rangle = \langle \text{RPA} | [\hat{Q}_f, \hat{D}_l] | \text{RPA} \rangle. \quad (3.39)$$

Escribiendo el operador  $\hat{D}_l$  en el formalismo de la segunda cuantización en la base de los estados de HF de electrones tenemos,

$$\hat{D}_l = -e \sum_{\alpha, \beta} \langle \alpha | \hat{d}_l | \beta \rangle \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta \quad (3.40)$$

Sustituyendo la expresión para el operador  $\hat{D}_l$  en la ecuación 3.39 y reemplazando  $|RPA\rangle$  por  $|HF\rangle$  obtenemos:

$$\langle HF | [\hat{Q}_f, \hat{D}_l] | HF \rangle = -e \sum_{\tau, \mu, \alpha, \beta} \langle \alpha | \hat{d}_l | \beta \rangle \left\{ \langle HF | [\hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau, \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta] | HF \rangle X_{\tau\mu}^{(f)} - \langle HF | [\hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu, \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta] | HF \rangle Y_{\mu\tau}^{(f)} \right\}. \quad (3.41)$$

Haciendo uso nuevamente de la expresión (3.9) obtenemos la siguiente expresión:

$$\langle f | \hat{D}_l | RPA \rangle = -e \sum_{\tau, \mu} \left\{ \langle \tau | \hat{d}_l | \mu \rangle X_{\tau\mu}^{(f)} + \langle \mu | \hat{d}_l | \tau \rangle Y_{\mu\tau}^{(f)} \right\}. \quad (3.42)$$

Los elementos matriciales del operador  $\hat{d}_l$  entre estados uniparticulares de HF en la ecuación (3.42) se calculan expandiendo dichos estados en los estados del oscilador según la ecuación (2.35). La expresión detallada de estos elementos matriciales puede encontrarse en el apéndice D.

En lo adelante nos referiremos a los estados excitados con  $\Delta l = 0$  como excitaciones monopolares, a los que tienen  $\Delta l = \pm 1$  como excitaciones dipolares y los de  $\Delta l = \pm 2$  como excitaciones cuadrupolares. Esta nomenclatura corresponde a la comúnmente usada para denominar los estados excitados en núcleos atómicos.

En general, como mencionamos en la Introducción de la tesis, las excitaciones electrónicas en puntos cuánticos pueden clasificarse en excitaciones de carga (CE) y de espín (SE). El primer grupo lo conforman los estados excitados cuyos valores de espín total  $\vec{S}_f$  y proyección  $S_{zf}$  no difieren con respecto al valor de dichas magnitudes en el estado base, mientras que las excitaciones SE tienen lugar cuando el sistema transita a estados excitados con valores de  $\vec{S}_f$  o  $S_{zf}$  diferentes a los del básico.

Es posible construir en la RPA excitaciones del tipo CE y SE. A su vez, tanto las excitaciones de carga como las de espín, pueden ser uniparticulares (SPE) ó colectivas. En lo adelante, considerando sus siglas en inglés, nos referiremos a las excitaciones colectivas de carga y espín como CDE y SDE, respectivamente. Los modos uniparticulares de carga y espín serán referidos como SPE(C) y SPE(S), respectivamente. Para identificar las excitaciones CDEs calculamos el elemento matricial,

$$\langle f | -e \sum_{\alpha, \beta} \langle \alpha | \hat{d}_l | \beta \rangle (\hat{e}_{\alpha\uparrow}^\dagger \hat{e}_{\beta\uparrow} + \hat{e}_{\alpha\downarrow}^\dagger \hat{e}_{\beta\downarrow}) | RPA \rangle, \quad (3.43)$$

donde  $\alpha$  y  $\beta$  denotan las funciones espaciales (orbitales) de HF, y las funciones de espín han sido representadas explícitamente mediante flechas. Los estados colectivos se distinguirán por

valores significativamente distintos de cero del elemento matricial (3.43), mientras que para las excitaciones uniparticulares el valor del mismo elemento de matriz es prácticamente nulo.

El mismo criterio es empleado para identificar las excitaciones de espín. Mediante el cálculo de los elementos matriciales,

$$\langle f | -e \sum_{\alpha,\beta} \langle \alpha | \hat{d}_l | \beta \rangle \hat{e}_{\alpha\uparrow}^\dagger \hat{e}_{\beta\downarrow} | \text{RPA} \rangle, \quad (3.44)$$

$$\langle f | -e \sum_{\alpha,\beta} \langle \alpha | \hat{d}_l | \beta \rangle \hat{e}_{\alpha\downarrow}^\dagger \hat{e}_{\beta\uparrow} | \text{RPA} \rangle, \quad (3.45)$$

determinamos las excitaciones colectivas de espín con  $\Delta s_z = +1$  y  $\Delta s_z = -1$ , respectivamente, conocidas también como excitaciones de *spin-flip*. Por otro lado, los estados excitados de espín caracterizados por un cambio en el valor del espín total, sin modificar la proyección, son identificados a partir del elemento matricial,

$$\langle f | -e \sum_{\alpha,\beta} \langle \alpha | \hat{d}_l | \beta \rangle (\hat{e}_{\alpha\uparrow}^\dagger \hat{e}_{\beta\uparrow} - \hat{e}_{\alpha\downarrow}^\dagger \hat{e}_{\beta\downarrow}) | \text{RPA} \rangle, \quad (3.46)$$

donde, a diferencia de la expresión (3.42), hemos definido el operador de transición con un signo menos.

### Regla de suma pesada por energía.

La reglas de sumas constituyen una herramienta muy importante en la teoría de las excitaciones colectivas. En muchos casos, ellas permiten el cálculo de propiedades generales de una forma sencilla y son muy útiles para evaluar los límites de validez de diversas aproximaciones [88].

La regla de suma pesada por energía (EWSR)  $S_1$ , dada por la siguiente expresión,

$$\sum_f \Delta E_f \left\{ |\langle f | \hat{D}_l | 0 \rangle|^2 + |\langle f | \hat{D}_l^\dagger | 0 \rangle|^2 \right\} = \langle 0 | \left[ \hat{D}_l, [\hat{H}^e, \hat{D}_l^\dagger] \right] | 0 \rangle, \quad (3.47)$$

puede ser utilizada para evaluar en qué medida la RPA es capaz de describir satisfactoriamente las excitaciones colectivas en puntos cuánticos cargados. Para demostrar la igualdad (3.47) desarrollamos el doble commutador en el miembro derecho como:

$$\langle 0 | \left[ \hat{D}_l, [\hat{H}^e, \hat{D}_l^\dagger] \right] | 0 \rangle = \langle 0 | \left\{ \hat{D}_l \hat{H}^e \hat{D}_l^\dagger - \hat{H}^e \hat{D}_l^\dagger \hat{D}_l - \hat{D}_l \hat{D}_l^\dagger \hat{H}^e + \hat{D}_l^\dagger \hat{H}^e \hat{D}_l \right\} | 0 \rangle. \quad (3.48)$$

Considerando que los autoestados del Hamiltoniano  $\hat{H}^e$ , conforman un sistema completo y por tanto, satisfacen la relación  $|0\rangle\langle 0| + \sum_f |f\rangle\langle f| = 1$ , es posible reescribir la ecuación (3.48) de la siguiente manera:

$$\begin{aligned} S_1 = & \sum_f \left\{ \langle 0 | \hat{D}_l | f \rangle \langle f | \hat{D}_l^\dagger | 0 \rangle E_f - \langle 0 | \hat{D}_l^\dagger | f \rangle \langle f | \hat{D}_l | 0 \rangle E_0 \right. \\ & \left. - \langle 0 | \hat{D}_l | f \rangle \langle f | \hat{D}_l^\dagger | 0 \rangle E_0 + \langle 0 | \hat{D}_l^\dagger | f \rangle \langle f | \hat{D}_l | 0 \rangle E_f \right\}. \end{aligned} \quad (3.49)$$

Agrupando los términos en la ecuación (3.49) y considerando que  $(E_f - E_0) = \Delta E_f$  obtenemos,

$$\sum_f \Delta E_f \left\{ |\langle f | \hat{D}_l | 0 \rangle|^2 + |\langle f | \hat{D}_l^\dagger | 0 \rangle|^2 \right\} = \langle 0 | [\hat{D}_l, [\hat{H}^e, \hat{D}_l^\dagger]] | 0 \rangle. \quad (3.50)$$

En la relación (3.50) intervienen los autoestados exactos  $|f\rangle$  del Hamiltoniano  $\hat{H}^e$ . Usualmente sólo tenemos un conjunto finito de estados aproximados  $|f\rangle$  y energías  $E_f$  aproximadas. Thouless [97] ha demostrado que la regla de suma (3.50) se satisface si el miembro izquierdo es evaluado usando las energías y funciones de onda obtenidas mediante la RPA y el miembro derecho es calculado usando una función de onda para el estado base en la aproximación de Hartree-Fock. Para evaluar el miembro derecho de (3.50) hacemos uso de la expresión (2.24) para el Hamiltoniano  $\hat{H}^e$  y escribimos el operador multipolar  $\hat{D}_l$  en coordenadas cartesianas como,

$$\hat{D}_l = \begin{cases} -e \sum_{j=1}^{N_e} (x_j + iy_j)^l, & l \geq 1 \\ -e \sum_{j=1}^{N_e} (x_j^2 + y_j^2), & l = 0. \end{cases} \quad (3.51)$$

$\hat{D}_l$  comutará con todos los términos del Hamiltoniano  $\hat{H}_e$  excepto con el operador de energía cinética. Por tanto, para el caso de  $l \geq 1$  tenemos,

$$\begin{aligned} [\hat{H}^e, \hat{D}_l^\dagger] &= -\frac{e}{2m_e} \sum_{k,j=1}^{N_e} \left\{ [\hat{p}_{x_k}^2, (x_j - iy_j)^l] + [\hat{p}_{y_k}^2, (x_j - iy_j)^l] \right\} \\ &= \frac{\hbar le}{2m_e} \sum_{k=1}^{N_e} \left\{ i\hat{p}_{x_k}(x_k - iy_k)^{l-1} + i(x_k - iy_k)^{l-1}\hat{p}_{x_k} \right. \\ &\quad \left. + \hat{p}_{y_k}(x_k - iy_k)^{l-1} + (x_k - iy_k)^{l-1}\hat{p}_{y_k} \right\}. \end{aligned} \quad (3.52)$$

Incluyendo en el doble commutador la expresión (3.52) obtenemos:

$$\begin{aligned} [\hat{D}_l, [\hat{H}^e, \hat{D}_l^\dagger]] &= -\frac{\hbar le^2}{2m_e} \sum_{k,j=1}^{N_e} \left\{ i[(x_j + iy_j)^l, \hat{p}_{x_k}(x_k - iy_k)^{l-1}] \right. \\ &\quad + i[(x_j + iy_j)^l, (x_k - iy_k)^{l-1}\hat{p}_{x_k}] \\ &\quad + [(x_j + iy_j)^l, \hat{p}_{y_k}(x_k - iy_k)^{l-1}] \\ &\quad \left. + [(x_j + iy_j)^l, (x_k - iy_k)^{l-1}\hat{p}_{y_k}] \right\} \\ &= \frac{2\hbar e^2 l^2}{m_e} \sum_{k=1}^{N_e} (\rho_k^2)^{l-1}. \end{aligned} \quad (3.53)$$

Sustituyendo la ecuación anterior en el miembro derecho de (3.50) y pasando al valor medio en el estado  $|\text{HF}\rangle$  obtenemos una expresión que nos permite evaluar la regla de suma (3.50),

$$\sum_f \Delta E_f \left\{ |\langle f | \hat{D}_l | \text{RPA} \rangle|^2 + |\langle f | \hat{D}_l^\dagger | \text{RPA} \rangle|^2 \right\} = \frac{2\hbar e^2 l^2}{m_e} \sum_{\gamma \leq \xi_f^e} \langle \gamma | (\rho^2)^{l-1} | \gamma \rangle, \quad (3.54)$$

donde  $\gamma$  son los estados uniparticulares de Hartree-Fock por debajo del nivel de Fermi. La expresión para el cálculo de la integral  $\langle \gamma | (\rho^2)^{l-1} | \gamma \rangle$  se encuentra en el apéndice D. La evaluación de la regla de suma para el caso del operador monopolar  $\hat{D}_{l=0}$  se obtiene siguiendo el mismo esquema de cálculo. Dichas excitaciones satisfacen la regla de suma:

$$\sum_f \Delta E_f |\langle f | \hat{D}_{l=0} | \text{RPA} \rangle|^2 = \frac{2\hbar e^2}{m_e} \sum_{\gamma \leq \xi_f^e} \langle \gamma | \rho^2 | \gamma \rangle. \quad (3.55)$$

### 3.1.4. Ecuaciones de la RPA en sistemas neutros

Es posible calcular también el espectro de excitaciones electrónicas de un punto cuántico neutro mediante la RPA. En esta sección expondremos básicamente cómo se generalizan las expresiones derivadas en las secciones (3.1.2) y (3.1.3) para sistemas cargados, al caso de  $N$  pares electrón-hueco confinados en un punto cuántico. En estos sistemas, además de tener  $N_e$  electrones confinados en la banda de conducción, tenemos  $N_h = N_e$  huecos en la banda de valencia, los cuales están descritos en un modelo simple de dos bandas. El Hamiltoniano modelo usado para la descripción de este sistema está dado por la ecuación (2.56).

La expresión (3.18) para el operador  $\hat{Q}_f^\dagger$  se generaliza como:

$$\hat{Q}_f^\dagger = \sum_{\tau, \mu} \left\{ X_{\tau\mu}^{(f)e} \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu + X_{\tau\mu}^{(f)h} \hat{h}_\tau^\dagger \hat{h}_\mu - Y_{\mu\tau}^{(f)e} \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau - Y_{\mu\tau}^{(f)h} \hat{h}_\mu^\dagger \hat{h}_\tau \right\}, \quad (3.56)$$

donde en este caso los estados excitados  $|f\rangle = \hat{Q}_f^\dagger | \text{RPA} \rangle$  se buscan como una combinación lineal de configuraciones  $1p - 1h$  para los electrones en la banda de conducción y para huecos en la banda de valencia. En consecuencia, las ecuaciones (3.19) y (3.20) se generalizan como sigue:

$$\langle \text{HF} | \left[ \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma, [\hat{H}^{eh}, \hat{Q}_f^\dagger] \right] | \text{HF} \rangle = \Delta E_f \langle \text{HF} | [\hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma, \hat{Q}_f^\dagger] | \text{HF} \rangle, \quad (3.57)$$

$$\langle \text{HF} | \left[ \hat{h}_\lambda^\dagger \hat{h}_\sigma, [\hat{H}^{eh}, \hat{Q}_f^\dagger] \right] | \text{HF} \rangle = \Delta E_f \langle \text{HF} | [\hat{h}_\lambda^\dagger \hat{h}_\sigma, \hat{Q}_f^\dagger] | \text{HF} \rangle, \quad (3.58)$$

$$\langle \text{HF} | \left[ \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda, [\hat{H}^{eh}, \hat{Q}_f^\dagger] \right] | \text{HF} \rangle = \Delta E_f \langle \text{HF} | [\hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda, \hat{Q}_f^\dagger] | \text{HF} \rangle, \quad (3.59)$$

$$\langle \text{HF} | \left[ \hat{h}_\sigma^\dagger \hat{h}_\lambda, [\hat{H}^{eh}, \hat{Q}_f^\dagger] \right] | \text{HF} \rangle = \Delta E_f \langle \text{HF} | [\hat{h}_\sigma^\dagger \hat{h}_\lambda, \hat{Q}_f^\dagger] | \text{HF} \rangle, \quad (3.60)$$

donde  $\hat{H}^{eh}$  es el Hamiltoniano (2.62),  $\Delta E_f$  la energía de excitación del estado  $|f\rangle$  y  $|\text{HF}\rangle$  la función de onda del estado base en la aproximación de Hartree-Fock, dada por el producto de los determinantes de Slater de electrones y de huecos.

Sustituyendo la ecuación (3.56) en las ecuaciones anteriores y teniendo en cuenta la expresión (3.9) es posible reescribir las ecuaciones (3.57)-(3.60) de la siguiente manera:

$$\begin{aligned} & \sum_{\tau,\mu} \left\{ \langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{H}^{eh}, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu] | \text{HF} \rangle X_{\tau\mu}^{(f)e} + \langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{H}^{eh}, \hat{h}_\tau^\dagger \hat{h}_\mu] | \text{HF} \rangle X_{\tau\mu}^{(f)h} \right. \\ & \quad \left. - \langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{H}^{eh}, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau] | \text{HF} \rangle Y_{\mu\tau}^{(f)e} - \langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{H}^{eh}, \hat{h}_\mu^\dagger \hat{h}_\tau] | \text{HF} \rangle Y_{\mu\tau}^{(f)h} \right\} \\ & = \Delta E_f X_{\sigma\lambda}^{(f)e}, \end{aligned} \quad (3.61)$$

$$\begin{aligned} & \sum_{\tau,\mu} \left\{ \langle \text{HF} | \hat{h}_\lambda^\dagger \hat{h}_\sigma [\hat{H}^{eh}, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu] | \text{HF} \rangle X_{\tau\mu}^{(f)e} + \langle \text{HF} | \hat{h}_\lambda^\dagger \hat{h}_\sigma [\hat{H}^{eh}, \hat{h}_\tau^\dagger \hat{h}_\mu] | \text{HF} \rangle X_{\tau\mu}^{(f)h} \right. \\ & \quad \left. - \langle \text{HF} | \hat{h}_\lambda^\dagger \hat{h}_\sigma [\hat{H}^{eh}, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau] | \text{HF} \rangle Y_{\mu\tau}^{(f)e} - \langle \text{HF} | \hat{h}_\lambda^\dagger \hat{h}_\sigma [\hat{H}^{eh}, \hat{h}_\mu^\dagger \hat{h}_\tau] | \text{HF} \rangle Y_{\mu\tau}^{(f)h} \right\} \\ & = \Delta E_f X_{\sigma\lambda}^{(f)h}, \end{aligned} \quad (3.62)$$

$$\begin{aligned} & \sum_{\tau,\mu} \left\{ - \langle \text{HF} | [\hat{H}^{eh}, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu] \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle X_{\tau\mu}^{(f)e} - \langle \text{HF} | [\hat{H}^{eh}, \hat{h}_\tau^\dagger \hat{h}_\mu] \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle X_{\tau\mu}^{(f)h} \right. \\ & \quad \left. + \langle \text{HF} | [\hat{H}^{eh}, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau] \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle Y_{\mu\tau}^{(f)e} + \langle \text{HF} | [\hat{H}^{eh}, \hat{h}_\mu^\dagger \hat{h}_\tau] \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle Y_{\mu\tau}^{(f)h} \right\} \\ & = -\Delta E_f Y_{\lambda\sigma}^{(f)e}, \end{aligned} \quad (3.63)$$

$$\begin{aligned} & \sum_{\tau,\mu} \left\{ - \langle \text{HF} | [\hat{H}^{eh}, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu] \hat{h}_\sigma^\dagger \hat{h}_\lambda | \text{HF} \rangle X_{\tau\mu}^{(f)e} - \langle \text{HF} | [\hat{H}^{eh}, \hat{h}_\tau^\dagger \hat{h}_\mu] \hat{h}_\sigma^\dagger \hat{h}_\lambda | \text{HF} \rangle X_{\tau\mu}^{(f)h} \right. \\ & \quad \left. + \langle \text{HF} | [\hat{H}^{eh}, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau] \hat{h}_\sigma^\dagger \hat{h}_\lambda | \text{HF} \rangle Y_{\mu\tau}^{(f)e} + \langle \text{HF} | [\hat{H}^{eh}, \hat{h}_\mu^\dagger \hat{h}_\tau] \hat{h}_\sigma^\dagger \hat{h}_\lambda | \text{HF} \rangle Y_{\mu\tau}^{(f)h} \right\} \\ & = -\Delta E_f Y_{\lambda\sigma}^{(f)h}. \end{aligned} \quad (3.64)$$

Sustituyendo en las ecuaciones anteriores el Hamiltoniano  $\hat{H}^{eh}$  y llevando a cabo el cálculo de los correspondientes valores medios, descrito en la sección C.2 del anexo C, obtenemos las ecuaciones de la RPA para puntos cuánticos neutros,

$$\begin{aligned} & \sum_{\tau,\mu} \left\{ A_{\sigma\lambda,\tau\mu}^{ee} X_{\tau\mu}^{(f)e} + A_{\sigma\lambda,\tau\mu}^{eh} X_{\tau\mu}^{(f)h} + B_{\sigma\lambda,\mu\tau}^{ee} Y_{\mu\tau}^{(f)e} + B_{\sigma\lambda,\mu\tau}^{eh} Y_{\mu\tau}^{(f)h} \right\} = \Delta E_f X_{\sigma\lambda}^{(f)e}, \\ & \sum_{\tau,\mu} \left\{ A_{\sigma\lambda,\tau\mu}^{he} X_{\tau\mu}^{(f)e} + A_{\sigma\lambda,\tau\mu}^{hh} X_{\tau\mu}^{(f)h} + B_{\sigma\lambda,\mu\tau}^{he} Y_{\mu\tau}^{(f)e} + B_{\sigma\lambda,\mu\tau}^{hh} Y_{\mu\tau}^{(f)h} \right\} = \Delta E_f X_{\sigma\lambda}^{(f)h}, \\ & \sum_{\tau,\mu} \left\{ B_{\lambda\sigma,\tau\mu}^{ee} X_{\tau\mu}^{(f)e} + B_{\lambda\sigma,\tau\mu}^{eh} X_{\tau\mu}^{(f)h} + A_{\lambda\sigma,\mu\tau}^{ee} Y_{\mu\tau}^{(f)e} + A_{\lambda\sigma,\mu\tau}^{eh} Y_{\mu\tau}^{(f)h} \right\} = -\Delta E_f Y_{\lambda\sigma}^{(f)e}, \\ & \sum_{\tau,\mu} \left\{ B_{\lambda\sigma,\tau\mu}^{he} X_{\tau\mu}^{(f)e} + B_{\lambda\sigma,\tau\mu}^{hh} X_{\tau\mu}^{(f)h} + A_{\lambda\sigma,\mu\tau}^{he} Y_{\mu\tau}^{(f)e} + A_{\lambda\sigma,\mu\tau}^{hh} Y_{\mu\tau}^{(f)h} \right\} = -\Delta E_f Y_{\lambda\sigma}^{(f)h}, \end{aligned} \quad (3.65)$$

donde las matrices  $A$  y  $B$  están dadas por las ecuaciones,

$$\begin{aligned} A_{\sigma\lambda,\tau\mu}^{ee} &= \langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{H}^{eh}, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu] | \text{HF} \rangle \\ &= (\varepsilon_\sigma^e - \varepsilon_\lambda^e) \delta_{\sigma\tau} \delta_{\lambda\mu} + \frac{e^2}{\kappa \ell_e} (\langle \sigma^e, \mu^e | \frac{1}{r} | \lambda^e, \tau^e \rangle - \langle \sigma^e, \mu^e | \frac{1}{r} | \tau^e, \lambda^e \rangle), \end{aligned} \quad (3.66)$$

$$\begin{aligned} A_{\sigma\lambda,\tau\mu}^{eh} &= \langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{H}^{eh}, \hat{h}_\tau^\dagger \hat{h}_\mu] | \text{HF} \rangle \\ &= -\frac{e^2}{\kappa \ell_e} \langle \sigma^e, \mu^h | \frac{1}{r} | \lambda^e, \tau^h \rangle, \end{aligned} \quad (3.67)$$

$$\begin{aligned} B_{\sigma\lambda,\mu\tau}^{ee} &= -\langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{H}^{eh}, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau] | \text{HF} \rangle \\ &= \frac{e^2}{\kappa \ell_e} (\langle \sigma^e, \tau^e | \frac{1}{r} | \lambda^e, \mu^e \rangle - \langle \sigma^e, \tau^e | \frac{1}{r} | \mu^e, \lambda^e \rangle). \end{aligned} \quad (3.68)$$

$$\begin{aligned} B_{\sigma\lambda,\mu\tau}^{eh} &= -\langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{H}^{eh}, \hat{h}_\mu^\dagger \hat{h}_\tau] | \text{HF} \rangle \\ &= -\frac{e^2}{\kappa \ell_e} \langle \sigma^e, \tau^h | \frac{1}{r} | \lambda^e, \mu^h \rangle. \end{aligned} \quad (3.69)$$

Los elementos matriciales dados por las ecuaciones anteriores se evalúan entre estados de Hartree-Fock de electrones y huecos calculados en la sección 2.5. Los elementos matriciales de la interacción de Coulomb se calculan expandiendo dichos estados en las autofunciones del oscilador bidimensional según las ecuaciones (2.68) y (2.69).

Las ecuaciones (3.65), al igual que hicimos en la sección 3.1.2, pueden ser escritas en notación matricial como sigue:

$$\begin{pmatrix} A^{ee} & A^{eh} & B^{ee} & B^{eh} \\ A^{he} & A^{hh} & B^{he} & B^{hh} \\ -B^{ee^t} & -B^{eh^t} & -A^{ee^d} & -A^{eh^d} \\ -B^{he^t} & -B^{hh^t} & -A^{he^d} & -A^{hh^d} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} X^{(f)e} \\ X^{(f)h} \\ Y^{(f)e} \\ Y^{(f)h} \end{pmatrix} = \Delta E_f \begin{pmatrix} X^{(f)e} \\ X^{(f)h} \\ Y^{(f)e} \\ Y^{(f)h} \end{pmatrix}. \quad (3.70)$$

Cada submatrix  $A$  y  $B$  están conformadas por cuatro sectores: los sectores  $ee$  y  $hh$  donde, tanto los índices  $(\sigma, \lambda)$  como  $(\tau, \mu)$  corren por estados de HF de electrones y huecos, respectivamente, el sector  $eh$ , donde los índices  $(\sigma, \lambda)$  corren por los estados de electrones y los índices  $(\tau, \mu)$  corren por los estados de huecos y el sector  $he$  el cual se conforma en el orden inverso con respecto al sector  $eh$ . Las matrices  $A$  y  $B$  se construyen según lo explicado en el caso de puntos cuánticos cargados. La diferencia ahora es que también tenemos que considerar las configuraciones  $1p-1h$  para huecos en la conformación de las mismas.

La matriz (3.70) se separará en bloques caracterizados por valores de  $\Delta l, \Delta s_z^e, \Delta s_z^h$  los cuales denotan la variación, con respecto al estado base, del momentum angular total y proyección del espín total para electrones y huecos respectivamente.

Si consideramos la ortogonalidad de los estados excitados obtenemos la siguiente ecuación:

$$\begin{aligned}\langle f|f'\rangle = \delta_{f,f'} &= \langle \text{RPA}|[Q_f, Q_{f'}^\dagger]|\text{RPA}\rangle \\ &\simeq \langle \text{HF}|[Q_f, Q_{f'}^\dagger]|\text{HF}\rangle.\end{aligned}\quad (3.71)$$

Si sustituímos la ecuación (3.56) en (3.71) y calculamos los correspondientes commutadores obtenemos que las ecuaciones (3.35) y (3.36) se generalizan al caso de puntos neutros como sigue,

$$\delta_{f,f'} = \sum_{\tau,\mu} \left\{ X_{\tau\mu}^{(f)e^*} X_{\tau\mu}^{(f')e} + X_{\tau\mu}^{(f)h^*} X_{\tau\mu}^{(f')h} - Y_{\mu\tau}^{(f)e^*} Y_{\mu\tau}^{(f')e} - Y_{\mu\tau}^{(f)h^*} Y_{\mu\tau}^{(f')h} \right\}, \quad (3.72)$$

$$1 = \sum_{\tau,\mu} \left\{ |X_{\tau\mu}^{(f)e}|^2 + |X_{\tau\mu}^{(f)h}|^2 - |Y_{\mu\tau}^{(f)e}|^2 - |Y_{\mu\tau}^{(f)h}|^2 \right\}. \quad (3.73)$$

Aplicando una metodología similar a la descrita en la sección 3.1.3 para sistemas cargados, podemos evaluar el carácter colectivo de los estados excitados mediante el cálculo de los elementos matriciales del operador multipolar  $\langle f|\hat{D}_l|\text{RPA}\rangle$  donde,

$$\hat{D}_l = e \sum_{i=1}^N (\hat{d}_{l_i}^h - \hat{d}_{l_i}^e), \quad (3.74)$$

con  $\hat{d}_l$  está definido según la ecuación (3.38). El operador  $\hat{D}_l$  en el formalismo de la segunda cuantización se escribe,

$$\hat{D}_l = e \sum_{\alpha,\beta} \{ \langle \alpha^h | \hat{d}_l | \beta^h \rangle \hat{h}_\alpha^\dagger \hat{h}_\beta - \langle \alpha^e | \hat{d}_l | \beta^e \rangle \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta \}. \quad (3.75)$$

El elemento matricial  $\langle f|\hat{D}_l|\text{RPA}\rangle$  puede calcularse como:

$$\begin{aligned}\langle f|\hat{D}_l|\text{RPA}\rangle &= \langle \text{RPA}|[\hat{Q}_f, \hat{D}_l]|\text{RPA}\rangle \\ &\simeq \langle \text{HF}|[\hat{Q}_f, \hat{D}_l]|\text{HF}\rangle\end{aligned}\quad (3.76)$$

Sustituyendo las expresiones para  $\hat{Q}_f$  y  $\hat{D}_l$  en (3.76) y calculando los correspondientes valores medios obtenemos:

$$\begin{aligned}\langle f|\hat{D}_l|\text{RPA}\rangle &= e \sum_{\tau,\mu} \left\{ X_{\tau\mu}^{(f)h^*} \langle \tau^h | \hat{d}_l | \mu^h \rangle - X_{\tau\mu}^{(f)e^*} \langle \tau^e | \hat{d}_l | \mu^e \rangle \right. \\ &\quad \left. + Y_{\mu\tau}^{(f)h^*} \langle \mu^h | \hat{d}_l | \tau^h \rangle - Y_{\mu\tau}^{(f)e^*} \langle \mu^e | \hat{d}_l | \tau^e \rangle \right\}.\end{aligned}\quad (3.77)$$

Los elementos matriciales del operador  $\hat{d}_l$  en la ecuación anterior se calculan expandiendo los estados de HF en las funciones de oscilador para electrones ó huecos según corresponda. La expresión explícita de estos elementos se brinda en el apéndice D.

Las excitaciones electrónicas en puntos neutros las denominamos de la misma manera que hicimos para el caso de sistemas cargados. Los estados excitados con  $\Delta l = 0$  los denominaremos excitaciones monopolares, con  $\Delta l = \pm 1$  excitaciones dipolares y con  $\Delta l = \pm 2$  excitaciones cuadrupolares. Por otro lado, es posible también construir una regla de suma pesada por energía asociada al operador  $\hat{D}_l$ , la cual nos permite evaluar los límites dentro de los cuales la RPA brinda resultados satisfactorios. El espectro de excitaciones electrónicas en puntos cuánticos neutros debe satisfacer la siguiente regla de suma,

$$\sum_f \Delta E_f \left\{ |\langle f | \hat{D}_l | \text{RPA} \rangle|^2 + |\langle f | \hat{D}_l^\dagger | \text{RPA} \rangle|^2 \right\} = \langle \text{HF} | \left[ \hat{D}_l, [\hat{H}^{eh}, \hat{D}_l^\dagger] \right] | \text{HF} \rangle. \quad (3.78)$$

Sustituyendo la expresiones (2.56) y (3.74) en el miembro derecho de la ecuación (3.78) y calculando el valor medio del doble conmutador, reescribimos (3.78) como:

$$\begin{aligned} \sum_f \Delta E_f \left\{ |\langle f | \hat{D}_l | \text{RPA} \rangle|^2 + |\langle f | \hat{D}_l^\dagger | \text{RPA} \rangle|^2 \right\} = \\ 2\hbar e^2 l^2 \left\{ \frac{1}{m_e} \sum_{\gamma \leq \xi_f^e} \langle \gamma^e | (\rho^2)^{l-1} | \gamma^e \rangle + \frac{1}{m_h} \sum_{\gamma \leq \xi_f^h} \langle \gamma^h | (\rho^2)^{l-1} | \gamma^h \rangle \right\}, \end{aligned} \quad (3.79)$$

para  $l \neq 0$  y,

$$\sum_f \Delta E_f |\langle f | \hat{D}_{l=0} | \text{RPA} \rangle|^2 = 2\hbar e^2 \left\{ \frac{1}{m_e} \sum_{\gamma \leq \xi_f^e} \langle \gamma^e | \rho^2 | \gamma^e \rangle + \frac{1}{m_h} \sum_{\gamma \leq \xi_f^h} \langle \gamma^h | \rho^2 | \gamma^h \rangle \right\}, \quad (3.80)$$

para  $l = 0$ .  $\xi_f^e$  y  $\xi_f^h$  denotan los niveles de Fermi para electrones y huecos respectivamente.

## 3.2. Excitaciones interbandas

En la sección 3.1 hemos mostrado cómo calcular mediante la RPA las energías y funciones de onda correspondientes a las excitaciones electrónicas intrabandas en puntos cuánticos cargados y neutros. Retomemos nuevamente el cuadro de bandas descrito en la figura 3.1. Adicionalmente a las excitaciones intrabandas, los estados originados como resultado de aniquilar un electrón en la banda de valencia y crearlo en la banda de conducción constituyen estados excitados de los sistemas cargados y neutros que se denominan excitaciones interbandas.

### 3.2.1. Aproximación de Tamm-Dancoff (pp-TDA)

Como veremos en el próximo capítulo, las energías y funciones de ondas asociadas a las excitaciones interbandas en puntos cuánticos cargados y neutrales, constituirán una información crucial para el cálculo de las amplitudes de transición Raman. Por esta razón, implementaremos la aproximación pp-TDA para la descripción de estados excitados con un par e-h adicional.

Dicha aproximación ha sido comúnmente usada en la Física Nuclear para la descripción de propiedades físicas en núcleos atómicos que contienen  $A \pm 2$  nucleones a partir del estado base del núcleo con  $A$  partículas [88].

### Puntos cuánticos cargados

Hallaremos ecuaciones que nos permitan obtener las energías y funciones de onda de un sistema compuesto por  $N_e + 1$  electrones en la banda de conducción y  $1h$  en la banda de valencia. Para ello se asume conocida la función de onda del estado base que describe los  $N_e$  electrones en el punto.

Consideremos el conjunto de autoestados exactos  $|\text{int}\rangle$  del Hamiltoniano  $\hat{H}_{N_e+1,1h}$ , los cuales satisfacen la ecuación de Shrödinger,

$$\hat{H}_{N_e+1,1h}|\text{int}\rangle = E_{\text{int}}^{(N_e+1,1h)}|\text{int}\rangle. \quad (3.81)$$

Consideremos, al igual que en la deducción de las ecuaciones de la RPA, un operador  $\hat{R}_{\text{int}}^\dagger$  tal que:

$$|\text{int}\rangle_{N_e+1,1h} = \hat{R}_{\text{int}}^\dagger |N_e\rangle, \quad \hat{R}_{\text{int}} |N_e\rangle = 0. \quad (3.82)$$

Considerando las ecuaciones (3.82) es posible reescribir la ecuación (3.81) como,

$$[\hat{H}_{N_e+1,1h}, \hat{R}_{\text{int}}^\dagger] |N_e\rangle = (E_{\text{int}}^{(N_e+1,1h)} - E_0^{(N_e)}) \hat{R}_{\text{int}}^\dagger |N_e\rangle \quad (3.83)$$

Multiplicando la ecuación (3.83) por la izquierda por un estado arbitrario de la forma  $\delta\hat{R}|N_e\rangle$  y considerando que  $\langle N_e|[\hat{H}_{N_e+1,1h}, \hat{R}_{\text{int}}^\dagger] = 0$  podemos reescribir la ecuación anterior como sigue:

$$\langle N_e| [\delta\hat{R}, [\hat{H}_{N_e+1,1h}, \hat{R}_{\text{int}}^\dagger]] |N_e\rangle = (E_{\text{int}}^{(N_e+1,1h)} - E_0^{(N_e)}) \langle N_e| \delta\hat{R} |N_e\rangle. \quad (3.84)$$

La ecuación (3.84) es la ecuación de movimiento del operador  $\hat{R}_{\text{int}}^\dagger$  análoga a la derivada para el operador  $\hat{Q}_f^\dagger$  en las ecuaciones de la RPA. El operador  $\hat{R}_{\text{int}}^\dagger$  se escogerá como:

$$\hat{R}_{\text{int}}^\dagger = \sum_{\sigma,\tau} V_{\sigma\tau}^{(\text{int})} \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger, \quad (3.85)$$

donde el índice  $\sigma$  corre por los estados de HF de electrones por encima del nivel de Fermi cuyas funciones de onda y energías fueron calculadas en la sección 2.3 y el índice  $\tau$  corre por estados de HF de huecos calculados en la sección 2.4. Sustituyendo la ecuación (3.85) en (3.84) y pasando al valor medio en el estado  $|\text{HF}\rangle_{N_e}$  obtenemos:

$$\sum_{\sigma,\tau} \langle \text{HF} | \hat{h}_\tau \hat{e}_{\sigma'} [\hat{H}_{N_e+1,1h}, \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger] | \text{HF} \rangle_{N_e} V_{\sigma\tau}^{(\text{int})} = \Delta E_{\text{int}} V_{\sigma'\tau'}^{(\text{int})}, \quad (3.86)$$

donde hemos definido  $\Delta E_{\text{int}} = (E_{\text{int}}^{(N_e+1,1h)} - E_0^{(N_e)})$ . Nótese que estas energías están medidas respecto al estado básico del sistema con  $N_e$  electrones. El miembro izquierdo en la ecuación anterior se calcula según la expresión,

$$\begin{aligned} {}_{N_e}\langle \text{HF} | \hat{h}_{\tau'} \hat{e}_{\sigma'} [\hat{H}_{N_e+1,1h}, \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger] | \text{HF} \rangle_{N_e} \\ = \sum_{\alpha,\beta} \langle \alpha^e | \hat{h}^e | \beta^e \rangle {}_{N_e}\langle \text{HF} | \hat{h}_{\tau'} \hat{e}_{\sigma'} [\hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta, \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger] | \text{HF} \rangle_{N_e} \\ + \sum_{\alpha,\beta} \langle \alpha^h | \hat{\mathcal{H}}_{KL} | \beta^h \rangle {}_{N_e}\langle \text{HF} | \hat{h}_{\tau'} \hat{e}_{\sigma'} [\hat{h}_\alpha^\dagger \hat{h}_\beta, \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger] | \text{HF} \rangle_{N_e} \\ + \frac{e^2}{2\kappa\ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha^e, \beta^e | \frac{1}{r} | \gamma^e, \delta^e \rangle {}_{N_e}\langle \text{HF} | \hat{h}_{\tau'} \hat{e}_{\sigma'} [\hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta^\dagger \hat{e}_\delta \hat{e}_\gamma, \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger] | \text{HF} \rangle_{N_e} \\ - \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha^e, \beta^h | \frac{1}{r} | \gamma^e, \delta^h \rangle {}_{N_e}\langle \text{HF} | \hat{h}_{\tau'} \hat{e}_{\sigma'} [\hat{e}_\alpha^\dagger \hat{h}_\beta^\dagger \hat{h}_\delta \hat{e}_\gamma, \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger] | \text{HF} \rangle_{N_e}. \quad (3.87) \end{aligned}$$

Haciendo uso del teorema de Wick [88] llegamos a,

$$\begin{aligned} {}_{N_e}\langle \text{HF} | \hat{h}_{\tau'} \hat{e}_{\sigma'} [\hat{H}_{N_e+1,1h}, \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger] | \text{HF} \rangle_{N_e} \\ = \delta_{\tau\tau'}^h \left\{ \langle \sigma'^e | \hat{h}^e | \sigma^e \rangle + \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{\gamma \leq \xi_f^e} (\langle \sigma'^e, \gamma^e | \frac{1}{r} | \sigma^e, \gamma^e \rangle - \langle \sigma'^e, \gamma^e | \frac{1}{r} | \gamma^e, \sigma^e \rangle) \right\} \\ + \delta_{\sigma\sigma'}^e \left\{ \langle \tau'^h | \hat{\mathcal{H}}_{KL} | \tau^h \rangle - \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{\gamma \leq \xi_f^e} \langle \tau'^h, \gamma^e | \frac{1}{r} | \tau^h, \gamma^e \rangle \right\} \\ - \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \langle \sigma'^e, \tau'^h | \frac{1}{r} | \sigma^e, \tau^h \rangle. \quad (3.88) \end{aligned}$$

Con ayuda de las expresiones (2.33) y (2.53), la ecuación (3.88) se transforma en,

$${}_{N_e}\langle \text{HF} | \hat{h}_{\tau'} \hat{e}_{\sigma'} [\hat{H}_{N_e+1,1h}, \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger] | \text{HF} \rangle_{N_e} = (\varepsilon_\sigma^e + \varepsilon_\tau^h) \delta_{\sigma\sigma'}^e \delta_{\tau\tau'}^h - \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \langle \sigma'^e, \tau'^h | \frac{1}{r} | \sigma^e, \tau^h \rangle. \quad (3.89)$$

En la ecuación anterior  $\varepsilon_\sigma^e$  y  $\varepsilon_\tau^h$  son las energías de Hartree-Fock de electrones y huecos calculadas en las secciones 2.3 y 2.4, respectivamente. De esta manera la ecuación (3.86) puede ser escrita en notación matricial como,

$$A^{\text{pp-TDA}} V_{N_e+1,1h}^{(\text{int})} = \Delta E_{\text{int}} V_{N_e+1,1h}^{(\text{int})}, \quad (3.90)$$

donde los elementos matriciales de  $A^{\text{pp-TDA}}$  se calculan mediante la expresión (3.89). Como hemos mencionado con anterioridad, la magnitud conservada para los estados de HF de electrones en la banda de conducción es el momentum angular orbital. Sin embargo, los estados de HF de huecos en la banda de valencia son calculados diagonalizando el Hamiltoniano de Kohn-Luttinger en presencia de un conjunto de electrones lo cual, según lo mostrado en la sección 2.4, implica que la magnitud conservada en este caso es  $l_h - m_j$ , siendo  $m_j$  la proyección del

momentum angular de la función de Bloch para el estado del electrón en la banda de valencia y  $l_h$  el momentum angular del hueco asociado a la función envolvente. Según la ecuación (3.89) para los elementos matriciales de  $A^{\text{PP-TDA}}$  y considerando que la interacción de Coulomb conserva el momentum angular, encontramos que la matriz  $A^{(\text{PP-TDA})}$  se separará en bloques definidos según las relaciones:

$$\begin{aligned} l_\sigma^e + l_\tau^h - m_{j_\tau} &= l_{\sigma'}^e + l_{\tau'}^h - m_{j_{\tau'}}, \\ s_{z_\sigma}^e &= s_{z_{\sigma'}}^e, \end{aligned} \quad (3.91)$$

de manera que los estados  $|\text{int}\rangle_{N_e+1,1h}$  pueden ser construidos por sectores caracterizados por los números cuánticos,

$$\mathcal{F} = l_\sigma^e + l_\tau^h - m_{j_\tau}; \quad s_{z_\sigma}^e, \quad (3.92)$$

donde  $\mathcal{F}$  es el momentum angular total del par añadido y  $s_{ze}$  la proyección del espín del electrón creado en la banda de conducción.

Los estados  $|\text{int}\rangle_{N_e+1,1h} = \hat{R}_{\text{int}}^\dagger |\text{HF}\rangle_{N_e}$  deben satisfacer la condición de ortogonalidad,

$$\begin{aligned} \delta_{\text{int}',\text{int}} = \langle \text{int}' | \text{int} \rangle &= {}_{N_e} \langle \text{HF} | \hat{R}_{\text{int}'} \hat{R}_{\text{int}}^\dagger | \text{HF} \rangle_{N_e}, \\ &= \sum_{\sigma',\tau',\sigma,\tau} V_{\sigma\tau}^{(\text{int}')*} V_{\sigma\tau}^{(\text{int})} {}_{N_e} \langle \text{HF} | \hat{h}'_\tau \hat{e}'_\sigma \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger | \text{HF} \rangle_{N_e}, \\ &= \sum_{\sigma,\tau} V_{\sigma\tau}^{(\text{int}')*} V_{\sigma\tau}^{(\text{int})}. \end{aligned} \quad (3.93)$$

En el caso en que  $\text{int}' = \text{int}$  la ecuación (3.93) se transforma en la condición de normalización de los vectores  $V_{N_e+1,1h}^{(\text{int})}$  dada por la expresión:

$$1 = \sum_{\sigma,\tau} |V_{\sigma\tau}^{(\text{int})}|^2. \quad (3.94)$$

## Puntos cuánticos neutros

En esta sección, mediante la aproximación partícula-partícula TDA, construiremos también ecuaciones para las energías y funciones de onda de las excitaciones interbandas en puntos cuánticos neutros. En esta ocasión construimos los estados  $|\text{int}\rangle_{N+1}$  del sistema con  $N+1$  pares electrón-hueco a partir del estado base  $|\text{HF}\rangle_N$ .

Siguiendo la misma metodología de la sección 3.2.1 para sistemas cargados podemos derivar la siguiente ecuación:

$${}_N \langle \text{HF} | \left[ \delta \hat{R}, [\hat{H}_{N+1}, \hat{R}_{\text{int}}^\dagger] \right] | \text{HF} \rangle_N = (E_{\text{int}}^{(N+1)} - E_0^{(N)}) {}_N \langle \text{HF} | \delta \hat{R}, \hat{R}_{\text{int}}^\dagger | \text{HF} \rangle_N, \quad (3.95)$$

donde  $\hat{H}_{N+1}$  es el Hamiltoniano del sistema con  $(N+1)$  pares electrón-hueco,  $(E_{\text{int}}^{(N+1)} - E_0^{(N)}) = \Delta E_{\text{int}}$  las energías correspondientes a los nuevos estados referenciadas con respecto a la energía del estado base del sistema de  $N$  pares y  $\hat{R}_{\text{int}}^\dagger$  es el operador descrito por la ecuación (3.85) con la diferencia de que en este caso los índices  $\sigma$  y  $\tau$  corresponden a los estados de HF de electrones y huecos calculados en la sección 2.5.

Sustituyendo la expresión para el operador  $\hat{R}_{\text{int}}^\dagger$  en la ecuación anterior obtenemos:

$$\sum_{\sigma,\tau} {}_N\langle \text{HF} | \hat{h}_{\tau'} \hat{e}_{\sigma'} [\hat{H}_{N+1}, \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger] | \text{HF} \rangle_N V_{\sigma\tau}^{(\text{int})} = \Delta E_{\text{int}} V_{\sigma'\tau'}^{(\text{int})}. \quad (3.96)$$

El valor medio en la ecuación anterior se escribe como,

$$\begin{aligned} {}_N\langle \text{HF} | \hat{h}_{\tau'} \hat{e}_{\sigma'} [\hat{H}_{N+1}, \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger] | \text{HF} \rangle_N &= \sum_{\alpha,\beta} \langle \alpha^e | \hat{h}^e | \beta^e \rangle {}_N\langle \text{HF} | \hat{h}_{\tau'} \hat{e}_{\sigma'} [\hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta, \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger] | \text{HF} \rangle_N \\ &+ \sum_{\alpha,\beta} \langle \alpha^h | \hat{h}^h | \beta^h \rangle {}_N\langle \text{HF} | \hat{h}_{\tau'} \hat{e}_{\sigma'} [\hat{h}_\alpha^\dagger \hat{h}_\beta, \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger] | \text{HF} \rangle_N \\ &+ \frac{e^2}{2\kappa\ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha^e, \beta^e | \frac{1}{r} | \gamma^e, \delta^e \rangle {}_N\langle \text{HF} | \hat{h}_{\tau'} \hat{e}_{\sigma'} [\hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta^\dagger \hat{e}_\delta \hat{e}_\gamma, \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger] | \text{HF} \rangle_N \\ &+ \frac{e^2}{2\kappa\ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha^h, \beta^h | \frac{1}{r} | \gamma^h, \delta^h \rangle {}_N\langle \text{HF} | \hat{h}_{\tau'} \hat{e}_{\sigma'} [\hat{h}_\alpha^\dagger \hat{h}_\beta^\dagger \hat{h}_\delta \hat{h}_\gamma, \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger] | \text{HF} \rangle_N \\ &- \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha^e, \beta^h | \frac{1}{r} | \gamma^e, \delta^h \rangle {}_N\langle \text{HF} | \hat{h}_{\tau'} \hat{e}_{\sigma'} [\hat{e}_\alpha^\dagger \hat{h}_\beta^\dagger \hat{h}_\delta \hat{e}_\gamma, \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger] | \text{HF} \rangle_N. \end{aligned} \quad (3.97)$$

Haciendo uso nuevamente del teorema de Wick, obtenemos:

$$\begin{aligned} {}_N\langle \text{HF} | \hat{h}_{\tau'} \hat{e}_{\sigma'} [\hat{H}_{N+1}, \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger] | \text{HF} \rangle_N &= \delta_{\tau,\tau'}^h \left\{ \langle \sigma'^e | \hat{h}^e | \sigma^e \rangle \right. \\ &+ \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{\gamma \leq \xi_f^e} (\langle \sigma'^e, \gamma^e | \frac{1}{r} | \sigma^e, \gamma^e \rangle - \langle \sigma'^e, \gamma^e | \frac{1}{r} | \gamma^e, \sigma^e \rangle) - \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{\gamma \leq \xi_f^h} \langle \sigma'^e, \gamma^h | \frac{1}{r} | \sigma^e, \gamma^h \rangle \Big\} \\ &+ \delta_{\sigma,\sigma'}^e \left\{ \langle \tau'^h | \hat{h}^h | \tau^h \rangle \right. \\ &+ \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{\gamma \leq \xi_f^h} (\langle \tau'^h, \gamma^h | \frac{1}{r} | \tau^h, \gamma^h \rangle - \langle \tau'^h, \gamma^h | \frac{1}{r} | \gamma^h, \tau^h \rangle) - \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{\gamma \leq \xi_f^e} \langle \tau'^h, \gamma^e | \frac{1}{r} | \tau^h, \gamma^e \rangle \Big\} \\ &- \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \langle \sigma'^e, \tau'^h | \frac{1}{r} | \sigma^e, \tau^h \rangle. \end{aligned} \quad (3.98)$$

Considerando las expresiones (2.66) y (2.67) para las energías de HF para electrones y huecos respectivamente, reescribimos la ecuación (3.98) como,

$${}_N\langle \text{HF} | \hat{h}_{\tau'} \hat{e}_{\sigma'} [\hat{H}_{N+1}, \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger] | \text{HF} \rangle_N = (\varepsilon_\sigma^e + \varepsilon_\tau^h) \delta_{\sigma\sigma'} \delta_{\tau\tau'} - \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \langle \sigma'^e, \tau'^h | \frac{1}{r} | \sigma^e, \tau^h \rangle. \quad (3.99)$$

Al igual que hicimos en la sección anterior, la ecuación (3.96) puede ser escrita en notación matricial como,

$$A^{\text{pp-TDA}} V_{N+1}^{(\text{int})} = \Delta E_{\text{int}} V_{N+1}^{(\text{int})}, \quad (3.100)$$

donde los elementos matriciales de  $A^{\text{pp-TDA}}$  se calculan mediante la expresión (3.99). Los elementos matriciales (3.99) se evalúan entre estados de HF. Tanto los estados de electrones como los de huecos, como vimos en la sección 2.5, conservan el momentum angular orbital. Por esta razón es posible construir los estados del sistema de  $N+1$  pares por sectores definidos por los valores del momentum angular total del par añadido  $l_\sigma^e + l_\tau^h$  y las proyecciones de espín del electrón  $s_{z_\sigma}^e$  y el hueco  $s_{z_\tau}^h$ .

Los estados  $|\text{int}\rangle_{N+1} = \hat{R}_{\text{int}}^\dagger |\text{HF}\rangle_N$  son mutuamente ortogonales y están normalizados según la ecuación (3.94).

### 3.3. Conclusiones parciales

En este capítulo se han descrito teóricamente las aproximaciones de la fase aleatoria (RPA) y partícula-partícula Tamm-Danoff (pp-TDA) usadas para construir las excitaciones electrónicas intra- e inter-bandas respectivamente en puntos cuánticos cargados y neutros.

Se han derivado las ecuaciones de la RPA mediante las cuales pueden ser obtenidas las energías de excitación y las funciones de onda multielectrónicas de los estados excitados en un punto cuántico cargado con  $N_e$  electrones. Dichas ecuaciones fueron generalizadas para un punto cuántico poblado con  $N$  pares electrón-hueco. Demostramos que dichas excitaciones pueden ser construidas para diferentes sectores de  $\Delta l$  y  $\Delta s_z$  denotando estas magnitudes la variación con respecto al estado base del momentum angular y la proyección del espín, respectivamente.

Las expresiones derivadas para el cálculo de los elementos de matriz de los operadores multipolares entre los estados excitados y el estado base y la evaluación de la regla de suma pesada por energía (EWSR) permiten identificar, en los espectros calculados, las excitaciones colectivas de carga (CDE), de espín (SDE) y las excitaciones de una partícula (SPEs).

Finalmente, obtuvimos las ecuaciones de la pp-TDA para el cálculo de las energías y funciones de onda de muchas partículas correspondientes a los estados intermedios (virtuales) necesarios para el cálculo de la amplitud de transición Raman.



## Capítulo 4

# DISPERSION INELASTICA DE LUZ (RAMAN) POR EXCITACIONES ELECTRONICAS EN PUNTOS CUANTICOS: CONCEPTOS Y FORMALISMO

La dispersión inelástica de la luz (DIL) por la materia ha sido un fenómeno investigado desde finales del siglo XIX hasta nuestros días con el objetivo de estudiar los procesos físicos que tienen lugar en sistemas gaseosos, líquidos y sólidos. Rayleigh, Brillouin, Raman entre otros científicos, hicieron las mayores contribuciones en este campo. Rayleigh, por ejemplo, fue el primero en abordar el problema de la dispersión de luz por moléculas considerando los efectos de coherencia de la luz dispersada. También es preciso mencionar que los primeros análisis teóricos en esta área fueron llevados a cabo por Brillouin quién realizó cálculos para describir el espectro de la luz dispersada por fluctuaciones de la densidad en fluidos provocadas por la propagación de ondas sonoras [98, 99].

Las investigaciones en el campo de la DIL no se limitaron al estudio de los fenómenos mencionados en el párrafo anterior. En el año 1923 Smekal estudió el fenómeno de la dispersión de luz en un sistema con dos niveles cuantizados de energía [100]. Posteriormente Raman y Krishnan en el año 1928 observaron, en el espectro de la luz dispersada por compuestos líquidos como el benzol, la presencia de bandas laterales bien definidas, ubicadas simétricamente a ambos lados de la línea correspondiente a la frecuencia de la luz incidente [101, 102]. Un resultado similar fue reportado en el mismo año por Landsberg y Mandelstam [103] para el espectro de luz dispersada correspondiente a un cristal de cuarzo. El fenómeno de la DIL por moléculas y sólidos cristalinos es denominado efecto Raman.

Como es conocido, la invención del láser de Helio-Neón en el año 1961 y el desarrollo de espectrómetros ópticos modernos dieron lugar a un renacimiento de las investigaciones en el campo de la DIL que trasciende hasta la actualidad. Como mencionamos en el capítulo introductorio de la tesis, la dispersión Raman de luz constituye una herramienta de gran utilidad para describir el espectro de excitaciones electrónicas de los puntos cuánticos semiconductores.

Este capítulo lo dedicamos a explicar algunos aspectos conceptuales necesarios así como el formalismo teórico implementado para calcular la sección eficaz de dispersión Raman por excitaciones electrónicas en puntos cuánticos cargados y neutros.

## 4.1. Definiciones básicas

La sección eficaz de dispersión de luz es la magnitud física que permite llevar a cabo comparaciones entre las mediciones experimentales y los cálculos teóricos.

Consideremos el experimento imaginario que se ilustra en la figura 4.1 en el cual un haz paralelo de luz que pasa a través del volumen  $V$  de un material, es dispersado en todas las direcciones por el fragmento de muestra iluminada. Mediante un detector es posible observar la luz dispersada en la dirección que forma un ángulo  $\phi$  con respecto a la dirección del haz incidente.

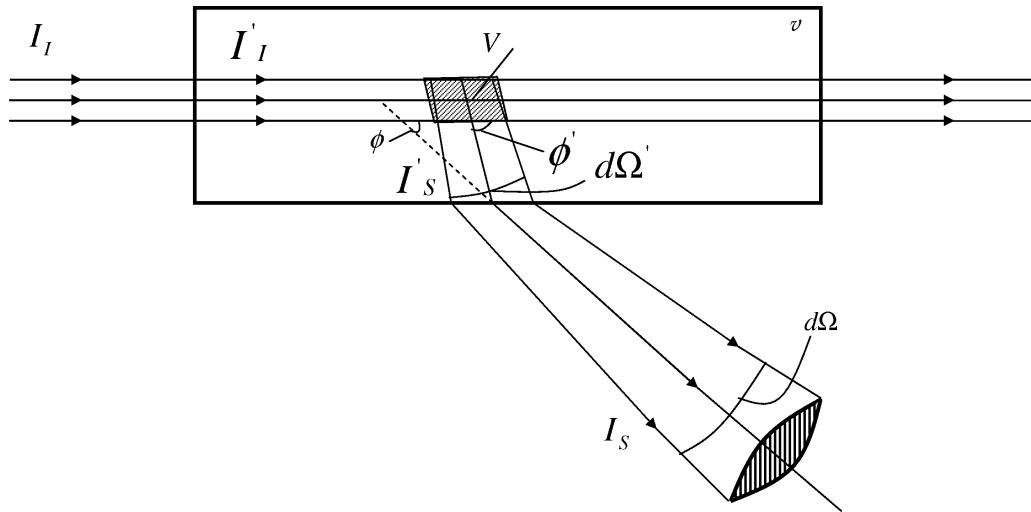


Figura 4.1: Experimento Raman imaginario.

El campo de detección del detector, representado por la lente, está limitado a un ángulo sólido  $d\Omega$ , el cual a su vez limita el volumen  $V$  en la muestra de donde son recibidos los fotones dispersados. Las intensidades de la luz incidente y dispersada se denotan como  $I_I$  y  $I_S$ . La magnitud de la intensidad  $I_S$  está determinada por un conjunto de factores. Uno de ellos es la transmisión de la luz a través de la muestra, el cual varía con el ángulo  $\phi$  de una manera complicada. Por tanto, en los experimentos Raman es usual convertir directamente las intensidades medidas  $I_I$  y  $I_S$ , el ángulo sólido  $d\Omega$  y el ángulo de dispersión  $\phi$  en las correspondientes intensidades  $I'_I$  y  $I'_S$ , el ángulo sólido  $d\Omega'$  y el ángulo de dispersión  $\phi'$  dentro de la muestra. Dichas conversiones pueden ser llevadas a cabo conociendo la forma de la muestra, sus índices de refracción y la geometría del haz de luz.

La dispersión de frecuencias en el láser incidente es en general muy pequeña lo que permite considerarlo un haz de luz monocromático con frecuencia  $\nu_i$ . Sin embargo, la intensidad de luz dispersada está distribuida en un rango de frecuencias como se muestra en la figura 4.2. El pico ubicado en el centro del espectro está dado por la contribución de los fotones dispersa-

dos elásticamente y es conocido como pico de Rayleigh. El resto corresponde a dispersiones

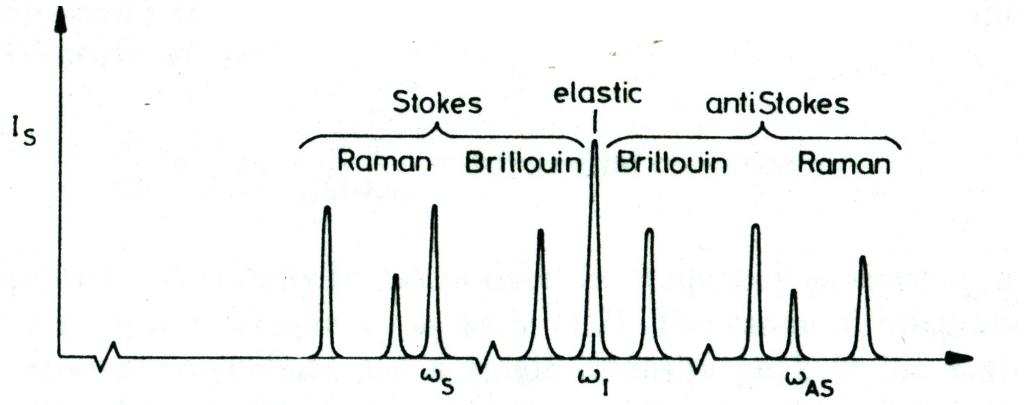


Figura 4.2: Espectro de la luz dispersada.

inelásticas y los corrimientos de sus frecuencias respecto a  $\nu_i$  pueden dividirse en dos regiones; la componente de Brillouin conformada por los picos cercanos a la frecuencia del láser incidente y la componente Raman que agrupa los picos asociados a las excitaciones en moléculas y sólidos cristalinos. Las contribuciones inelásticas están a su vez subdivididas. Aquellas con valores de frecuencia  $\nu_f < \nu_i$  conocidas como componentes de Stokes y la región donde  $\nu_f > \nu_i$  denominada componente anti-Stokes. Cada fotón dispersado en la componente de Stokes está asociado con una ganancia energética  $\Delta E$  por la muestra, donde,

$$\Delta E = h\nu_i - h\nu_f. \quad (4.1)$$

Por otro lado, cada fotón dispersado en la componente anti-Stokes está asociado con un proceso en el cual la muestra cede una cantidad de energía  $\Delta E$ ,

$$\Delta E = h\nu_f - h\nu_i. \quad (4.2)$$

La existencia de fotones dispersados con valores particulares de frecuencias  $\nu_f$  definen picos de intensidad en el espectro de la luz dispersada inelásticamente los cuales corresponden a un conjunto de estados excitados del medio dispersor. Una de las aplicaciones más importantes de la DIL es la determinación de las energías de excitación a través de la medición de los valores  $\Delta E$ , conocidos como corrimientos Raman, correspondientes a los picos de intensidad en el espectro observado.

Las mediciones del espectro de DIL correspondiente a la componente de Stokes para un ángulo fijo de dispersión, determina la función,

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\nu_f} \equiv \text{sección eficaz diferencial espectral}. \quad (4.3)$$

Dicha función es definida como la cantidad de energía removida por unidad de tiempo del haz incidente como resultado de la dispersión del mismo en el volumen  $V$  en la dirección del

elemento de ángulo sólido  $d\Omega$  con un valor de frecuencia entre  $\nu_f$  y  $\nu_f + d\nu_f$ , dividida por el producto de  $d\Omega d\nu_f$  con la intensidad del haz incidente.

La sección eficaz diferencial es definida como,

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \int d\nu_f \frac{d^2\sigma}{d\Omega d\nu_f}. \quad (4.4)$$

Si en la ecuación anterior restringimos el intervalo de integración a un solo pico en el espectro de la luz dispersada, la sección eficaz diferencial (4.4) determina la dispersión total de luz en un ángulo de sólido  $d\Omega$  asociada con un estado excitado en particular.

Finalmente la sección eficaz total puede ser obtenida integrando la sección diferencial en todas las direcciones del espacio,

$$\sigma = \int d\Omega \frac{d\sigma}{d\Omega}. \quad (4.5)$$

Esta sección eficaz determina la dispersión total en todas las direcciones causada por un estado excitado en particular y su evaluación experimental requiere mediciones de la intensidad dispersada para un número grande de ángulos de dispersión. Estas series de mediciones son raras veces llevadas a cabo dado que, en la mayoría de los casos, las energías de excitación de la muestra y los tiempos de vida son independientes del ángulo usado para su determinación.

## 4.2. Configuración del experimento Raman

Como ya hemos mencionado, en este capítulo explicaremos el formalismo empleado para calcular la sección eficaz de dispersión Raman correspondiente al proceso en el cual un fotón con energía  $h\nu_i$ , es dispersado inelásticamente con una energía  $h\nu_f < h\nu_i$  por un punto cuántico que contiene decenas de electrones (cargado) o pares electrón-hueco (neutro) bajo la influencia, en general, de un campo magnético externo.

Para ello consideramos, como usualmente es llevado a cabo en los experimentos, una geometría de retrodispersión, ilustrada mediante la figura 4.3, en la cual la luz dispersada es detectada en la misma dirección del haz incidente ( $\phi_f = \phi_i$ ). El plano del punto cuántico define el plano  $xy$  y la dirección del campo magnético  $B$  define el eje  $z$ .  $\vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i}$  y  $\vec{\varepsilon}_{\vec{q}_f}$  denotan los vectores de polarización de la radiación incidente y dispersada respectivamente,  $\vec{q}_{||}$  y  $q_z$  representan las proyecciones del vector de onda  $\vec{q}$  de la radiación electromagnética en el plano del punto y en el eje  $z$ .

Considerando que el láser incidente es deflectado en el interior del punto según la ley de Snell, el ángulo real de incidencia vendrá dado por la expresión,

$$\phi'_i = \arcsen\left(\frac{\sen\phi_i}{\eta}\right), \quad (4.6)$$

donde  $\eta$  denota el índice de refracción del semiconductor. En consecuencia con esto, las componentes  $q'_{||}$  y  $q'_z$  del vector de onda de la radiación incidente dentro del punto estarán dadas por las ecuaciones,

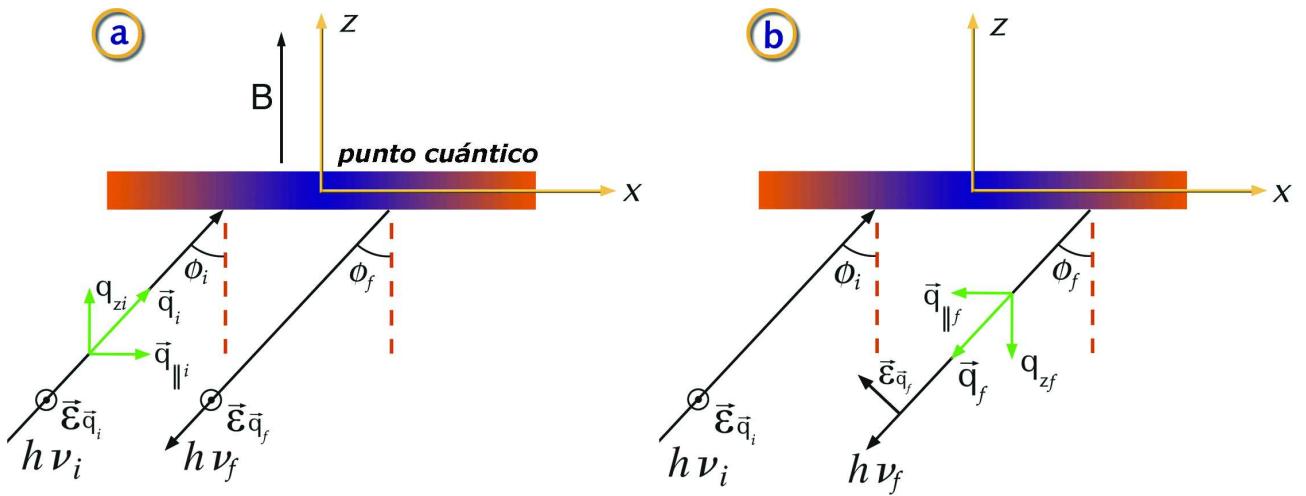


Figura 4.3: Configuración del experimento Raman: (a) polarización paralela, (b) polarización cruzada u ortogonal.

$$q_{||i} = q_i \operatorname{sen} \phi_i = q_i \eta \operatorname{sen} \phi'_i = q'_i \operatorname{sen} \phi'_i = q'_{||i}, \quad (4.7)$$

$$q'_{zi} = q'_i \cos \phi'_i = q_i \eta \cos \phi'_i. \quad (4.8)$$

Para el caso de la radiación dispersada dichas componentes son calculadas como,

$$q'_{||f} = q_f \operatorname{sen} \phi_f, \quad (4.9)$$

$$q'_{zf} = -\eta q_f \cos \phi'_f. \quad (4.10)$$

Con el objetivo de identificar los picos Raman asociados a las excitaciones electrónicas de carga y espín en puntos cuánticos, se llevan cabo mediciones de la intensidad de la luz dispersada en dos configuraciones. La primera, ilustrada en la figura 4.3(a), denominada polarización paralela en la cual  $\vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \parallel \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_f}$ . En nuestros cálculos consideraremos una radiación incidente linealmente polarizada en la dirección del eje  $y$  ( $\varepsilon_{yi} = 1$ ). En la figura 4.4(a) representamos, para el caso de polarización paralela, los vectores de polarización para la radiación incidente y dispersada en el plano del punto. Nótese que el esbozo de dicha figura no ha sido particularizado al caso de retrodispersión.

Con la ayuda de las figuras 4.3(a) y 4.4(a) podemos escribir las siguientes ecuaciones para las componentes del vector  $\vec{\varepsilon}_{\vec{q}_f}$ :

$$\varepsilon_{fx} = -\operatorname{sen} \theta_f, \quad (4.11)$$

$$\varepsilon_{fy} = \cos \theta_f, \quad (4.12)$$

$$\varepsilon_z = 0, \quad (4.13)$$

donde las variables  $\theta_i$  y  $\theta_f$  denotan los ángulos comprendidos entre los vectores  $\vec{q}_{||i}$  y  $\vec{q}_{||f}$  con respecto al eje  $x$  respectivamente.

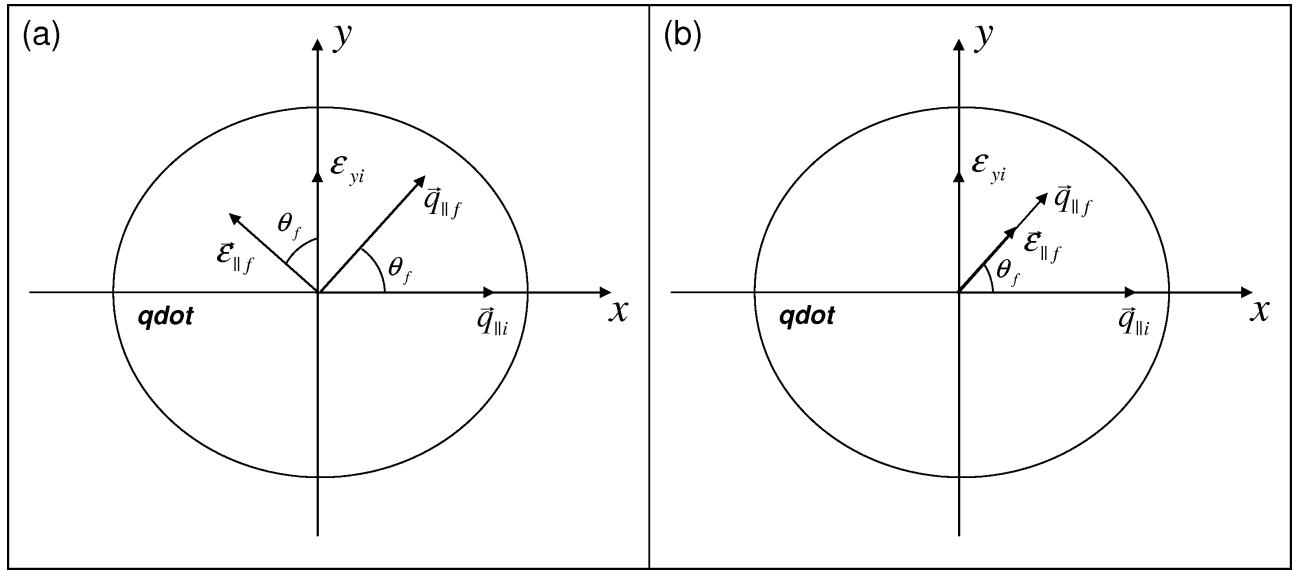


Figura 4.4: Componentes de los vectores de polarización del campo eléctrico de la radiación incidente y dispersada en el plano del punto cuántico: (a) polarización paralela, (b) polarización cruzada.

En la configuración de polarización ortogonal, ilustrada en la figura 4.3(b), el vector de polarización de la luz dispersada es perpendicular al de la luz incidente. En este caso, como se muestra en la figura 4.4(b), la proyección del vector  $\vec{\varepsilon}_{\vec{q}_f}$  en el plano del punto es colineal con  $\vec{q}_{||f}$  y los valores de sus componentes están dados por las siguientes ecuaciones:

$$\varepsilon_{fx} = \varepsilon_{f||}\cos \theta_f = \cos \phi_f \cos \theta_f, \quad (4.14)$$

$$\varepsilon_{fy} = \varepsilon_{f||}\sin \theta_f = \cos \phi_f \sin \theta_f, \quad (4.15)$$

$$\varepsilon_z = \sin \phi_f. \quad (4.16)$$

En una configuración de retrodispersión los valores de las componentes de los vectores de polarización pueden ser obtenidos evaluando  $\phi_f = \phi_i$  y  $\theta_f = \pi$ .

### 4.3. Amplitud de transición y sección eficaz diferencial de dispersión Raman

Los cálculos microscópicos de la sección eficaz de dispersión Raman están basados en el Hamiltoniano mecano-cuántico que describe el acoplamiento entre el campo de radiación electromagnética y el medio dispersor, dado en nuestro caso por un punto cuántico semiconductor. El punto de partida es el Hamiltoniano total,

$$\hat{H} = \hat{H}_0^{(\text{rad})} + \hat{H}_0^{(e)} + \hat{H}_I. \quad (4.17)$$

Las contribuciones son, respectivamente, el Hamiltoniano del campo de radiación, el cual incluye

los campos fotónicos de la radiación incidente y dispersada, el Hamiltoniano del punto cuántico semiconductor y el término correspondiente al acoplamiento de los electrones en el medio con el campo de radiación. En general, el Hamiltoniano que describe el medio dispersor contiene términos asociados con las excitaciones elementales en el medio y términos que consideran las interacciones entre dichas excitaciones. En nuestros cálculos  $\hat{H}_0^{(e)}$  contiene la interacción Coulombiana entre los electrones. Términos adicionales asociados con vibraciones de la red cristalina (fonones) y su interacción con los electrones del medio no están incluidos en nuestro Hamiltoniano.

Cada evento de dispersión en la teoría mecano-cuántica corresponde a una transición entre los estados inicial  $|i\rangle$  y final  $|f\rangle$  del subsistema electrónico. Dichos estados satisfacen las ecuaciones:

$$\hat{H}_0^{(e)}|i\rangle = E_i|i\rangle, \quad (4.18)$$

$$\hat{H}_0^{(e)}|f\rangle = E_f|f\rangle. \quad (4.19)$$

El campo de radiación, simultáneamente, transita de un estado inicial con  $n_{\vec{q}_i}$  fotones con energía  $h\nu_i$  y  $n_{\vec{q}_f}$  fotones con energía  $h\nu_f$  a un estado final con  $n_{\vec{q}_i} - 1$  y  $n_{\vec{q}_f} + 1$  fotones. Ambos estados del campo de radiación satisfacen las ecuaciones:

$$\hat{H}_0^{(\text{rad})}|n_{\vec{q}_i}, n_{\vec{q}_f}\rangle = (n_{\vec{q}_i}h\nu_i + n_{\vec{q}_f}h\nu_f)|n_{\vec{q}_i}, n_{\vec{q}_f}\rangle, \quad (4.20)$$

$$\hat{H}_0^{(\text{rad})}|n_{\vec{q}_i} - 1, n_{\vec{q}_f} + 1\rangle = ((n_{\vec{q}_i} - 1)h\nu_i + (n_{\vec{q}_f} + 1)h\nu_f)|n_{\vec{q}_i} - 1, n_{\vec{q}_f} + 1\rangle. \quad (4.21)$$

La energía del campo electromagnético en un medio con un índice de refracción  $\eta$  está dada por la siguiente expresión:

$$U_R = \frac{1}{2} \int (\epsilon_0 \eta^2 E^2 + \mu_0 H^2) dV. \quad (4.22)$$

La cuantización del campo de radiación basada en esta expresión para la energía conduce a un potencial vector de la forma,

$$\vec{A}(\vec{r}) = \sum_{\vec{q}} A_{\vec{q}}^0 \{ \vec{\varepsilon}_{\vec{q}} \hat{a}_{\vec{q}} e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} + \vec{\varepsilon}_{\vec{q}}^* \hat{a}_{\vec{q}}^\dagger e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}} \}, \quad (4.23)$$

donde  $A_{\vec{q}}^0 = (\hbar/4\pi\epsilon_0\eta^2 V \nu_{\vec{q}})^{1/2}$  y  $\hat{a}_{\vec{q}}$  ( $\hat{a}_{\vec{q}}^\dagger$ ) son los operadores de aniquilación (creación) de fotones con un vector de onda  $\vec{q}$ , frecuencia  $\nu_{\vec{q}}$  y vector de polarización  $\vec{\varepsilon}_{\vec{q}}$ . Dichos operadores satisfacen las ecuaciones,

$$\hat{a}_{\vec{q}}^\dagger |n_{\vec{q}}\rangle = (n_{\vec{q}} + 1)^{1/2} |n_{\vec{q}} + 1\rangle, \quad (4.24)$$

$$\hat{a}_{\vec{q}} |n_{\vec{q}}\rangle = n_{\vec{q}}^{1/2} |n_{\vec{q}} - 1\rangle. \quad (4.25)$$

El campo de radiación es incluido en el Hamiltoniano electrónico llevando a cabo el reemplazo,  $\hat{\vec{p}} \rightarrow \hat{\vec{p}} + e\vec{A}(\vec{r})$ . Por tanto, el Hamiltoniano de interacción de los electrones en el punto con la luz puede escribirse de la siguiente manera:

$$\hat{H}_I = \frac{1}{2m_0} \sum_i \left\{ 2e\vec{A}(\vec{r}_i) \cdot \hat{\vec{p}}_i + e^2 |\vec{A}(\vec{r}_i)|^2 \right\}, \quad (4.26)$$

donde  $m_0$  es la masa del electrón en el vacío. La expresión (4.26) contiene términos lineales y cuadráticos en  $\vec{A}$ . Tomando en cuenta la expresión del potencial vector y escribiendo el Hamiltoniano (4.26) en el formalismo de la segunda cuantización, obtenemos:

$$\hat{H}_I^{(A)} = \frac{e}{m_0} \sum_{\vec{q}} A_{\vec{q}}^0 \sum_{\alpha, \beta} \left\{ \langle \alpha | e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} \vec{\varepsilon}_{\vec{q}} \cdot \hat{\vec{p}} | \beta \rangle \hat{a}_{\vec{q}} \hat{e}_{\alpha}^{\dagger} \hat{e}_{\beta} + \langle \alpha | e^{-i\vec{q} \cdot \vec{r}} \vec{\varepsilon}_{\vec{q}}^* \cdot \hat{\vec{p}} | \beta \rangle \hat{a}_{\vec{q}}^{\dagger} \hat{e}_{\alpha}^{\dagger} \hat{e}_{\beta} \right\}, \quad (4.27)$$

$$\begin{aligned} \hat{H}_I^{(A^2)} = & \frac{e^2}{2m_0} \sum_{\vec{q}, \vec{q}'} A_{\vec{q}}^0 A_{\vec{q}'}^0 \sum_{\alpha, \beta} \left\{ \langle \alpha | e^{i(\vec{q} + \vec{q}') \cdot \vec{r}} \vec{\varepsilon}_{\vec{q}} \cdot \vec{\varepsilon}_{\vec{q}'} | \beta \rangle \hat{a}_{\vec{q}} \hat{a}_{\vec{q}'} \hat{e}_{\alpha}^{\dagger} \hat{e}_{\beta} + \langle \alpha | e^{i(\vec{q} - \vec{q}') \cdot \vec{r}} \vec{\varepsilon}_{\vec{q}} \cdot \vec{\varepsilon}_{\vec{q}'}^* | \beta \rangle \hat{a}_{\vec{q}} \hat{a}_{\vec{q}'}^{\dagger} \hat{e}_{\alpha}^{\dagger} \hat{e}_{\beta} \right. \\ & \left. + \langle \alpha | e^{-i(\vec{q} - \vec{q}') \cdot \vec{r}} \vec{\varepsilon}_{\vec{q}}^* \cdot \vec{\varepsilon}_{\vec{q}'} | \beta \rangle \hat{a}_{\vec{q}}^{\dagger} \hat{a}_{\vec{q}'} \hat{e}_{\alpha}^{\dagger} \hat{e}_{\beta} + \langle \alpha | e^{-i(\vec{q} + \vec{q}') \cdot \vec{r}} \vec{\varepsilon}_{\vec{q}}^* \cdot \vec{\varepsilon}_{\vec{q}'}^* | \beta \rangle \hat{a}_{\vec{q}}^{\dagger} \hat{a}_{\vec{q}'}^{\dagger} \hat{e}_{\alpha}^{\dagger} \hat{e}_{\beta} \right\}, \end{aligned} \quad (4.28)$$

donde  $\hat{e}$  y  $\hat{e}^{\dagger}$  son los operadores de aniquilación y creación respectivamente de electrones en los estados uniparticulares de Hartree-Fock.

La función de onda total del sistema es tomada como un producto de la función de onda de los electrones en el punto cuántico y la función de onda de los fotones libres. La amplitud de transición entre el estado inicial  $|n_{\vec{q}_i}, n_{\vec{q}_f}\rangle |i\rangle$  y el estado final  $|n_{\vec{q}_i} - 1, n_{\vec{q}_f} + 1\rangle |f\rangle$ , calculada a segundo orden de teoría de perturbaciones dependiente del tiempo [104], incluye las contribuciones de  $\hat{H}_I^{(A)}$  y  $\hat{H}_I^{(A^2)}$  y está dada por la siguiente expresión:

$$A_{fi} = \frac{e^{i(\mathbb{E}_f - \mathbb{E}_i)t/\hbar} - 1}{\mathbb{E}_f - \mathbb{E}_i} \left\{ \sum_{\text{int}} \frac{\langle f | \langle n_{\vec{q}_i} - 1, n_{\vec{q}_f} + 1 | \hat{H}_I^{(A)} | \text{int} \rangle \langle \text{int} | \hat{H}_I^{(A)} | n_{\vec{q}_i}, n_{\vec{q}_f} \rangle | i \rangle}{\mathbb{E}_{\text{int}} - \mathbb{E}_i} \right. \\ \left. - \langle f | \langle n_{\vec{q}_i} - 1, n_{\vec{q}_f} + 1 | \hat{H}_I^{(A^2)} | n_{\vec{q}_i}, n_{\vec{q}_f} \rangle | i \rangle \right\}. \quad (4.29)$$

En la ecuación (4.29), la suma por estados intermedios abarca todos los estados no perturbados con energías  $\mathbb{E}_{\text{int}}$ , para los cuales los elementos matriciales de  $\hat{H}_I^{(A)}$  son distintos de cero.

En los experimentos de dispersión Raman en puntos cuánticos, la energía de los fotones incidentes es del mismo orden de magnitud que la brecha energética de la estructura semiconductora. Por tanto, en nuestros cálculos consideramos en la suma por estados intermedios las contribuciones de los estados electrónicos asociados a las excitaciones interbandas en el punto cuántico, o sea, estados del sistema con un par electrón-hueco adicional. Sustituyendo las expresiones (4.27) y (4.28) en la ecuación (4.29) y calculando explícitamente los elementos matriciales de los operadores de fotones con ayuda de las ecuaciones (4.24) y (4.25) obtenemos:

$$\begin{aligned}
A_{fi} &= \frac{e^2}{m_0} \sqrt{n_{\vec{q}_i}(n_{\vec{q}_f} + 1)} \\
&\times \left\{ \frac{P^2}{m_0} \sum_{\text{int}} \left( \frac{\langle f | \hat{H}_{e-r}^+(\vec{q}_f) | \text{int} \rangle \langle \text{int} | \hat{H}_{e-r}^-(\vec{q}_i) | i \rangle}{E_{\text{int}} - E_i - h\nu_i + i\Gamma_{\text{int}}} + \frac{\langle f | \hat{H}_{e-r}^-(\vec{q}_i) | \text{int} \rangle \langle \text{int} | \hat{H}_{e-r}^+(\vec{q}_f) | i \rangle}{E_{\text{int}} - E_i + h\nu_f + i\Gamma_{\text{int}}} \right) \right. \\
&\quad \left. - A_{\vec{q}_i}^0 A_{\vec{q}_f}^0 (\vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \cdot \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_f}) \left\langle f \left| \sum_{\alpha, \beta} \langle \alpha | e^{i(\vec{q}_i - \vec{q}_f) \cdot \vec{r}} | \beta \rangle \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta \right| i \right\rangle \right\} \frac{e^{i(h\nu_f + E_f - h\nu_i - E_i)t/\hbar} - 1}{h\nu_f + E_f - h\nu_i - E_i}. \quad (4.30)
\end{aligned}$$

En la ecuación (4.30)  $n_{\vec{q}_i}$  y  $n_{\vec{q}_f}$  representan el número de fotones con energías  $h\nu_i$  y  $h\nu_f$  en el estado inicial. Nosotros tomamos  $n_{\vec{q}_f} = 0$  correspondiente a la dispersión Raman no estimulada. Adicionalmente hemos introducido el ancho energético  $\Gamma_{\text{int}}$  asociado al tiempo de vida del estado intermedio  $|\text{int}\rangle$ .  $P$  es el elemento matricial interbanda del operador  $\hat{p}$  por lo que en las expresiones que siguen el operador de momentum lineal es una magnitud adimensional. Los operadores  $\hat{H}_{e-r}^\pm(\vec{q})$  se definen como:

$$\hat{H}_{e-r}^-(\vec{q}) = A_{\vec{q}}^0 \sum_{\alpha, \bar{\beta}} \langle \alpha | e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} \vec{\varepsilon}_{\vec{q}} \cdot \hat{\vec{p}} | \bar{\beta} \rangle \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{h}_{\bar{\beta}}^\dagger, \quad (4.31)$$

$$\hat{H}_{e-r}^+(\vec{q}) = A_{\vec{q}}^0 \sum_{\bar{\alpha}, \beta} \langle \bar{\alpha} | e^{-i\vec{q} \cdot \vec{r}} \vec{\varepsilon}_{\vec{q}}^* \cdot \hat{\vec{p}} | \beta \rangle \hat{h}_{\bar{\alpha}} \hat{e}_\beta, \quad (4.32)$$

donde hemos introducido los operadores de creación y aniquilación de huecos en la banda de valencia. En el segundo término entre llaves en la ecuación (4.30) los índices  $\alpha$  y  $\beta$  denotan un sistema completo de estados uniparticulares de electrones en la banda de conducción y es posible demostrar, como veremos mas adelante, que dicho término puede ser expresado en función de los elementos matriciales de los operadores multipolares calculados en la sección (3.1.3). Por otro lado, la sumatoria en la ecuación (4.30) está multiplicada por el coeficiente  $P^2/m_0$  cuyo valor para el GaAs es aproximadamente 11.35 eV [39]. Esto implica que la contribución de dicho término en el cálculo de la amplitud de transición Raman es dominante. La suma por estados intermedios incluye dos términos. El primero, el cual contiene en el denominador la relación  $E_{\text{int}} - E_i - h\nu_i$ , toma valores grandes cuando  $E_{\text{int}} - E_i \approx h\nu_i$ , o sea, bajo condiciones de resonancia. Por otro lado, el segundo término no es resonante y su contribución en el cálculo de  $A_{fi}$  puede ser despreciada [105]. Bajo estas consideraciones la ecuación (4.30) se transforma de la siguiente manera:

$$A_{fi} = \left( \frac{eP}{m_0} \right)^2 \sqrt{n_{\vec{q}_i}} \left\{ \sum_{\text{int}} \frac{\langle f | \hat{H}_{e-r}^+(\vec{q}_f) | \text{int} \rangle \langle \text{int} | \hat{H}_{e-r}^-(\vec{q}_i) | i \rangle}{E_{\text{int}} - E_i - h\nu_i + i\Gamma_{\text{int}}} \right\} \frac{e^{i(h\nu_f + E_f - h\nu_i - E_i)t/\hbar} - 1}{h\nu_f + E_f - h\nu_i - E_i}. \quad (4.33)$$

La probabilidad de transición entre los estados incicial y final puede ser calculada tomando el cuadrado del módulo de la magnitud  $A_{fi}$ :

$$|A_{fi}|^2 = \left( \frac{eP}{m_0} \right)^4 n_{\vec{q}_i} \left| \sum_{\text{int}} \frac{\langle f | \hat{H}_{e-r}^+(\vec{q}_f) | \text{int} \rangle \langle \text{int} | \hat{H}_{e-r}^-(\vec{q}_i) | i \rangle}{E_{\text{int}} - E_i - h\nu_i + i\Gamma_{\text{int}}} \right|^2 \frac{4 \operatorname{sen}^2 \left( \frac{h\nu_f + E_f - h\nu_i - E_i}{2\hbar} t \right)}{(h\nu_f + E_f - h\nu_i - E_i)^2}. \quad (4.34)$$

Si ahora consideramos valores grandes de  $t$  y hacemos uso del límite,  $\lim_{t \rightarrow \infty} \frac{\sin^2(\alpha t)}{\pi t \alpha^2} = \delta(\alpha)$ , se demuestra fácilmente que la ecuación (4.34) se transforma de la siguiente manera:

$$|A_{fi}|^2 = \frac{2\pi n_{\vec{q}_i}}{\hbar} \left( \frac{eP}{m_0} \right)^4 \left| \sum_{\text{int}} \frac{\langle f | \hat{H}_{e-r}^+(\vec{q}_f) | \text{int} \rangle \langle \text{int} | \hat{H}_{e-r}^-(\vec{q}_i) | i \rangle}{E_{\text{int}} - E_i - h\nu_i + i\Gamma_{\text{int}}} \right|^2 \delta(h\nu_f + E_f - h\nu_i - E_i)t. \quad (4.35)$$

La probabilidad de la transición cuántica por unidad de tiempo (*transition rate*) entre los estados inicial y final viene dada por el cociente  $|A_{fi}|^2/t$ . Por tanto, la cantidad de energía removida por unidad de tiempo del haz incidente, debido al proceso de dispersión es  $h\nu_i |A_{fi}|^2/t$ . Si asumimos un medio dispersor ópticamente isotrópico, la intensidad media del haz incidente se expresa como:

$$\bar{I} = \frac{ch\nu_i n_{\vec{q}_i}}{\eta V}, \quad (4.36)$$

donde  $n_{\vec{q}_i}$  es el número de fotones incidentes en el volumen  $V$ . Haciendo uso de la definición brindada en la sección 4.1 la sección eficaz diferencial espectral puede ser calculada mediante la siguiente expresión:

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma}{d\Omega d\nu_f} &= \frac{h\nu_i |A_{fi}|^2}{t\bar{I}} \\ &= C \left| \sum_{\text{int}} \frac{\langle f | \hat{H}_{e-r}^+(\vec{q}_f) | \text{int} \rangle \langle \text{int} | \hat{H}_{e-r}^-(\vec{q}_i) | i \rangle}{E_{\text{int}} - E_i - h\nu_i + i\Gamma_{\text{int}}} \right|^2 \delta(h\nu_f + E_f - h\nu_i - E_i), \end{aligned} \quad (4.37)$$

donde  $C = \frac{2\pi\eta_i V}{hc} (eP/m_0)^4$ . La función delta de Dirac en la ecuación (4.37) fuerza la conservación de la energía. Dicha función, tomando en cuenta la existencia de límites en la resolución de los espectrómetros Raman, es aproximada mediante una función de Lorentz:

$$\delta(E - E_f) \approx \frac{\Gamma_f/\pi}{(E - E_f)^2 + \Gamma_f^2}. \quad (4.38)$$

Sustituyendo la ecuación (4.38) en (4.37) e introduciendo una suma por estados finales para considerar las contribuciones de los estados excitados cercanos en energía a un pico Raman, obtenemos finalmente:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\nu_f} = C \sum_f \left| \sum_{\text{int}} \frac{\langle f | \hat{H}_{e-r}^+(\vec{q}_f) | \text{int} \rangle \langle \text{int} | \hat{H}_{e-r}^-(\vec{q}_i) | i \rangle}{E_{\text{int}} - E_i - h\nu_i + i\Gamma_{\text{int}}} \right|^2 \frac{\Gamma_f/\pi}{(E - E_f)^2 + \Gamma_f^2}. \quad (4.39)$$

## 4.4. Esquema computacional para evaluar la amplitud de transición Raman

Una representación esquemática en niveles de energías de la expresión (4.33) para el cálculo de la amplitud de transición Raman, es ilustrada en la figura 4.5.

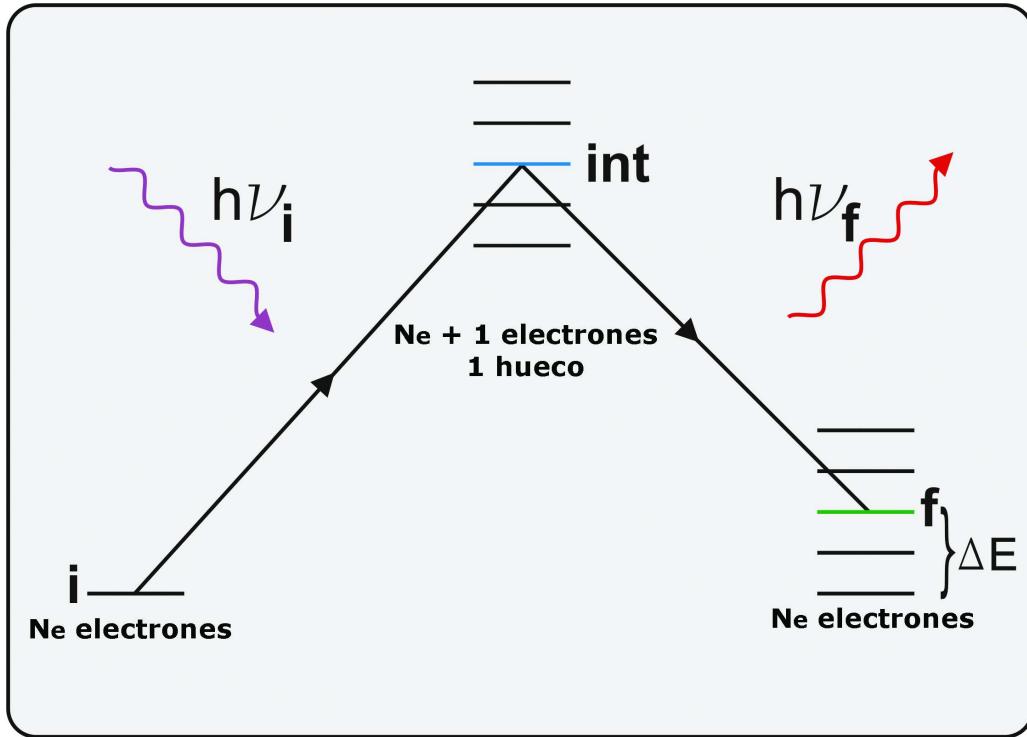


Figura 4.5: Amplitud de transición Raman y su interpretación en términos de transiciones virtuales para el caso de puntos cuánticos cargados.

El proceso de dispersión Raman, puede ser entendido en términos de transiciones virtuales a través de estados intermedios. El elemento matricial  $\langle int | \hat{H}_{e-r}^-(\vec{q}_i) | i \rangle$ , en el caso de puntos cargados, corresponde a la transición del estado inicial (básico)  $|i\rangle$  del punto con  $N_e$  electrones a un estado intermedio  $|int\rangle$  del sistema con  $N_e + 1$  electrones en la banda de conducción y 1 hueco en la banda de valencia como resultado de la aniquilación de un fotón incidente con energía  $h\nu_i$  y la creación de un par electrón-hueco. Por otra parte, el elemento de matriz  $\langle f | \hat{H}_{e-r}^+(\vec{q}_f) | int \rangle$  considera la aniquilación del par electrón-hueco y la creación de un fotón dispersado con energía  $h\nu_f < h\nu_i$ , o sea, la transición del estado intermedio  $|int\rangle$  al estado excitado final  $|f\rangle$  para el cual estamos evaluando la amplitud de transición Raman. Una figura análoga puede ser construida para el caso de puntos cuánticos neutros . La única diferencia radica en que los estados inicial y final corresponden a los estados del sistema de  $N$  pares electrón-hueco y los estados intermedios al sistema con  $N + 1$  pares.

Tanto para puntos cuánticos cargados como neutros, para evaluar la amplitud de transición Raman es necesario calcular las energías y funciones de onda asociadas a los estados inicial, final e intermedios involucrados en la expresión (4.33).

#### 4.4.1. Puntos cuánticos cargados

En esta sección describimos el esquema de cálculo implementado para evaluar la sección eficaz diferencial de dispersión Raman por excitaciones electrónicas en puntos cuánticos cargados. Dicho algoritmo de cálculo consta de cinco etapas o pasos:

- 1) Calcular las energías y funciones de onda de los estados uniparticulares de HF correspondientes al sistema de  $N_e$  electrones confinados en el punto cuántico. Dicho cálculo es llevado a cabo resolviendo iterativamente las ecuaciones de HF deducidas en la sección 2.3.
- 2) Obtener las energías y funciones de onda de los estados uniparticulares de HF correspondientes al hueco en la banda de valencia. Esta información es usada en la construcción de los estados intermedios involucrados en el cálculo de la amplitud de transición Raman. Los estados de HF para el hueco son calculados mediante la diagonalización del Hamiltoniano de Kohn-Luttinger en presencia del campo autoconsistente de HF generado por los  $N_e$  electrones en la banda de conducción (ec.(2.55)).
- 3) Calcular y caracterizar el espectro de excitaciones electrónicas intrabandas. Los estados finales en el proceso de dispersión Raman en puntos cargados son estados excitados del sistema de  $N_e$  electrones. Dichos estados son calculados resolviendo las ecuaciones de la RPA (3.23, 3.24). Como resultado obtenemos las energías de excitación o corrimientos Raman  $\Delta E_f$  y los coeficientes  $X^{(f)}$  y  $Y^{(f)}$  asociados al estado final  $|f\rangle$ . Dichos estados son clasificados en excitaciones uniparticulares o colectivas según su contribución a la regla de suma pesada por energía definida en la ecuación (3.50).
- 4) Obtener los estados intermedios involucrados en el cálculo de  $A_{fi}$ . Estos estados son construidos en la aproximación pp-TDA, cuyas ecuaciones fueron deducidas en la sección 3.2.1. Dichos estados están caracterizados por los números cuánticos  $\mathcal{F} = l^e + l^h - m_j$ ,  $s_z^e$ , donde  $l^e + l^h$  es el momentum angular orbital del par añadido,  $m_j$  el momentum angular total asociado a la función de banda del electrón en la banda de valencia y  $s_z^e$  la proyección del espín del electrón añadido en la banda de conducción. Resolviendo el problema de autovalores y autovectores (3.90) obtenemos los valores de  $\Delta E_{\text{int}} = E_{\text{int}}^{(N_e+1,1h)} - E_i^{(N_e)}$  y los coeficientes  $V_{N_e+1,1h}^{(\text{int})}$  asociados a los estados intermedios  $|\text{int}\rangle$ .

Con el objetivo de disminuir el tiempo de cómputo de las energías y funciones de onda de los estados electrónicos involucrados en el cálculo de la amplitud de transición Raman, calculamos todos los elementos matriciales de la interacción de Coulomb  $\langle \alpha, \beta | 1/r | \gamma, \delta \rangle$  entre los estados de oscilador comprendidos en 20 capas ( $\sim 12\,000\,000$ ) y los almacenamos en un fichero. Dichos elementos matriciales son cargados en memoria al inicio de los cálculos descritos en los puntos del 1) al 4). Esta optimización nos ha permitido resolver las ecuaciones de HF y de la RPA en pocos minutos y calcular todos los estados intermedios necesarios para la obtención de los espectros Raman asociados a las excitaciones electrónicas multipolares en pocos días.

- 5) Cálculo de los elementos matriciales del Hamiltoniano de interacción de la luz con el sistema. Tomando en cuenta la ecuación (4.31) para el operador  $\hat{H}_{e-r}^-$  y la expresión (3.85) del operador  $\hat{R}_{\text{int}}^\dagger$  mediante el cual se construyen los estados intermedios, obtenemos:

$${}_{N_e+1,1h} \langle \text{int} | \hat{H}_{e-r}^- (\vec{q}_i) | i \rangle_{N_e} = A_{\vec{q}_i}^0 \sum_{\sigma > \xi_f^e, \tau} \sum_{\alpha, \bar{\beta}} V_{\sigma \tau}^{(\text{int})*} \langle \alpha | e^{i \vec{q}_i \cdot \vec{r}} \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \cdot \hat{\vec{p}} | \bar{\beta} \rangle \langle i | \hat{h}_\tau \hat{e}_\sigma \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{h}_{\bar{\beta}}^\dagger | i \rangle, \quad (4.40)$$

donde  $V_{\sigma \tau}^{\text{int}}$  son los coeficientes involucrados en la aproximación pp-TDA. El cálculo del valor medio en la ecuación (4.40) es llevado a cabo approximando la función de onda del estado base  $|i\rangle$  que describe a los  $N_e$  electrones en el punto por el determinante de Slater  $|\text{HF}\rangle$ . Por tanto, la expresión (4.40) se transforma de la siguiente manera,

$${}_{N_e+1,1h} \langle \text{int} | \hat{H}_{e-r}^- (\vec{q}_i) | i \rangle_{N_e} = A_{\vec{q}_i}^0 \sum_{\sigma > \xi_f^e, \tau} V_{\sigma\tau}^{(\text{int})*} (\text{banda} - \text{orbital})_{\sigma\tau}^{(i)}. \quad (4.41)$$

El factor  $(\text{banda} - \text{orbital})_{\sigma\tau}^{(i)}$  está definido como:

$$(\text{banda} - \text{orbital})_{\sigma\tau}^{(i)} = \langle \sigma | e^{i\vec{q}_i \cdot \vec{r}} \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \cdot \hat{\vec{p}} | \tau \rangle. \quad (4.42)$$

Expandiendo los estados de HF  $\sigma$  y  $\tau$  para electrones y huecos, respectivamente, según las ecuaciones (2.35) y (2.54), el elemento matricial (4.42) puede expresarse de la siguiente forma:

$$\begin{aligned} (\text{banda} - \text{orbital})_{\sigma\tau}^{(i)} = & \sum_{s,t} C_s^{\sigma(e)*} C_t^{\tau(h)*} \left( \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \cdot \hat{\vec{p}}_{\sigma_s, m_{j_t}} \right) \\ & \times \frac{2}{L} \int_0^L dz \sin\left(\frac{k_z^s \pi}{L} z\right) \sin\left(\frac{k_z^t \pi}{L} z\right) e^{iq_z z} \\ & \times \int e^{i\vec{q}_{||i} \cdot \vec{\rho}} \phi_s^{(e)*}(\vec{\rho}) \phi_t^{(h)*}(\vec{\rho}) d^2 \rho. \end{aligned} \quad (4.43)$$

Las funciones de Bloch en las bandas de conducción y valencia utilizadas para el cálculo del elemento matricial interbanda  $\hat{p}_{\sigma_s, m_{j_t}}$  son brindadas en la tabla 4.1.

$ j, m_j\rangle$	$u_{j, m_j}$
$ \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle$	$ S \uparrow\rangle$
$ \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$	$ S \downarrow\rangle$
$ \frac{3}{2}, \frac{3}{2}\rangle$	$\frac{-\alpha_1}{\sqrt{2}}  (X + iY) \uparrow\rangle$
$ \frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\rangle$	$\frac{\alpha_2}{\sqrt{2}}  (X - iY) \downarrow\rangle$
$ \frac{3}{2}, \frac{1}{2}\rangle$	$\frac{\alpha_3}{\sqrt{6}} [2 Z \uparrow\rangle -  (X + iY) \downarrow\rangle]$
$ \frac{3}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$	$\frac{\alpha_4}{\sqrt{6}} [2 Z \downarrow\rangle +  (X - iY) \uparrow\rangle]$

Cuadro 4.1: Funciones de Bloch en los puntos  $\Gamma_6$  y  $\Gamma_8$  para los compuestos III-V. Las variables  $j, m_j$  denotan los autovalores de los operadores  $\hat{J}$  y  $\hat{J}_z$  respectivamente.

En esta tabla  $S$ ,  $X$ ,  $Y$  y  $Z$  denotan las funciones de onda asociadas a los estados del cristal en el punto  $\Gamma$ , las cuales se transforman de igual manera que las funciones atómicas  $s$ ,  $x$ ,  $y$  y  $z$  respecto a las operaciones de simetría del grupo puntual correspondiente al GaAs. Las fases  $\alpha_1$ ,  $\alpha_2$ ,  $\alpha_3$  y  $\alpha_4$  han sido elegidas como  $-\alpha_1 = \alpha_2 = -\iota$  y  $-\alpha_3 = \alpha_4 = \iota$ . El elemento matricial del operador  $\vec{p}$  entre estas funciones toma la forma [39]:

$$\langle S | p_x | X \rangle = \langle S | p_y | Y \rangle = \langle S | p_z | Z \rangle = im_0 \tilde{P} = iP. \quad (4.44)$$

Todos los demás elementos matriciales de  $\hat{\vec{p}}$  son nulos por simetría. Haciendo uso de las relaciones (4.44) y las funciones de bandas descritas en la tabla 4.1, calculamos el factor  $\vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \cdot \hat{\vec{p}}_{\sigma_s, m_j}$  mediante la tabla 4.2,

$\sigma \setminus m_j$	3/2	1/2	-1/2	-3/2
1/2	$\alpha_1 \varepsilon_+^i$	$\alpha_3 \sqrt{2/3} \varepsilon_z^i$	$\alpha_4 \sqrt{1/3} \varepsilon_-^i$	0
-1/2	0	$\alpha_3 \sqrt{1/3} \varepsilon_+^i$	$\alpha_4 \sqrt{2/3} \varepsilon_z^i$	$\alpha_2 \varepsilon_-^i$

Cuadro 4.2: El cociente  $\vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \cdot \hat{\vec{p}}_{\sigma, m_j} / (iP)$ .

donde las componentes  $\varepsilon_{\pm}$  están definidas como:

$$\varepsilon_{\pm} = \mp \frac{(\varepsilon_x \pm i\varepsilon_y)}{\sqrt{2}}. \quad (4.45)$$

Por otro lado, la integral en  $z$  en la ecuación (4.43) puede evaluarse fácilmente mediante la siguiente expresión:

$$\langle k_z^s | e^{iq_{zi}z} | k_z^t \rangle = \frac{4ik_z^s k_z^t L q_{zi} [-1 + e^{iq_{zi}L} (-1)^{k_z^s - k_z^t}]}{\pi^2 \left\{ [(k_z^s + k_z^t)^2 - (q_{zi}L/\pi)^2] [(k_z^s - k_z^t)^2 - (q_{zi}L/\pi)^2] \right\}}. \quad (4.46)$$

Finalmente, para evaluar el elemento matricial (banda – orbital) $_{\sigma\tau}^{(i)}$ , solo nos resta calcular la integral bidimensional que involucra las funciones envolventes en el plano del punto. La exponencial  $e^{i\vec{q}_{||i} \cdot \vec{\rho}}$  puede expandirse en serie de Taylor hasta segundo orden como,

$$e^{i\vec{q}_{||i} \cdot \vec{\rho}} = e^{iq_{||i}\rho \cos\theta'} \simeq 1 + iq_{||i}\rho \cos\theta' - \frac{1}{2}q_{||i}^2\rho^2 \cos^2\theta' + \dots, \quad (4.47)$$

donde  $\theta' = \theta - \theta_i$  denota el ángulo comprendido entre los vectores  $\vec{\rho}$  y  $\vec{q}_{||i}$  en el plano del punto. Escribiendo la función coseno mediante funciones exponenciales reescribimos (4.47) como:

$$e^{i\vec{q}_{||i} \cdot \vec{\rho}} = \left(1 - \frac{q_{||i}^2\rho^2}{4}\right) + \frac{iq_{||i}}{2}(e^{-i\theta_i}\rho e^{i\theta} + e^{i\theta_i}\rho e^{-i\theta}) - \frac{q_{||i}^2}{8}(e^{-2i\theta_i}\rho^2 e^{2i\theta} + e^{2i\theta_i}\rho^2 e^{-2i\theta}) + \dots \quad (4.48)$$

Sustituyendo la expresión (4.48) en la integral por  $\vec{\rho}$  de la ecuación (4.43) y tomando en cuenta la definición (3.38) para los operadores multipolares de una partícula obtenemos:

$$\begin{aligned} \int e^{i\vec{q}_{||i} \cdot \vec{\rho}} \phi_s^{(e)*}(\vec{\rho}) \phi_t^{(h)*}(\vec{\rho}) d^2\rho &= \langle k_s, l_s | 1 - \frac{q_{||i}^2}{4} \hat{d}_0 | k_t, -l_t \rangle \\ &+ i \frac{q_{||i}}{2} \langle k_s, l_s | e^{-i\theta_i} \hat{d}_1 + e^{i\theta_i} \hat{d}_{-1} | k_t, -l_t \rangle \\ &- \frac{(q_{||i})^2}{8} \langle k_s, l_s | e^{-2i\theta_i} \hat{d}_2 + e^{2i\theta_i} \hat{d}_{-2} | k_t, -l_t \rangle, \end{aligned} \quad (4.49)$$

donde  $k$  y  $l$  corresponden a los números cuánticos principal y angular de las funciones de oscilador. Los elementos matriciales de los operadores multipolares de una partícula entre estados de oscilador se calculan según las expresiones (D.2) y (D.3) brindadas en el anexo D.

El elemento matricial del operador  $H_{e-r}^\dagger$  entre los estados intermedios y finales se calcula a partir de la siguiente expresión:

$${}_{N_e}\langle f|\hat{H}_{e-r}^+(\vec{q}_f)|\text{int}\rangle_{N_e+1,1h} = A_{\vec{q}_f}^0 \sum_{\sigma > \xi_f^e, \lambda \leq \xi_f^e} \sum_{\sigma' > \xi_f^e, \tau} \sum_{\bar{\alpha}, \beta} \left\{ \langle \bar{\alpha}| e^{-i\vec{q}_f \cdot \vec{r}} \hat{\varepsilon}_{\vec{q}_f}^* \cdot \hat{\vec{p}} |\beta\rangle \right. \\ \times \left[ X_{\sigma\lambda}^{(f)*} V_{\sigma'\tau}^{(\text{int})} \langle i|\hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma \hat{h}_{\bar{\alpha}} \hat{e}_\beta \hat{e}_{\sigma'}^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger |i\rangle - Y_{\lambda\sigma}^{(f)*} V_{\sigma'\tau}^{(\text{int})} \langle i|\hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda \hat{h}_{\bar{\alpha}} \hat{e}_\beta \hat{e}_{\sigma'}^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger |i\rangle \right] \right\}, \quad (4.50)$$

donde  $X_{\sigma\lambda}^{(f)}$  y  $Y_{\lambda\sigma}^{(f)}$  son los coeficientes involucrados en las ecuaciones de la RPA (3.23, 3.24). Aproximando la función de onda del estado base  $|i\rangle$  por el estado  $|\text{HF}\rangle$  y calculando los valores medios en la ecuación (4.50) obtenemos:

$${}_{N_e}\langle f|\hat{H}_{e-r}^+(\vec{q}_f)|\text{int}\rangle_{N_e+1,1h} = -A_{\vec{q}_f}^0 \sum_{\sigma > \xi_f^e, \lambda \leq \xi_f^e} \sum_{\tau} (\text{banda} - \text{orbital})_{\lambda\tau}^{(f)} V_{\sigma\tau}^{(\text{int})} X_{\sigma\lambda}^{(f)*}. \quad (4.51)$$

El factor (banda – orbital) es obtenido a partir de la ecuación (4.43) sustituyendo  $i$  por  $f$  y tomando el complejo conjugado de toda la expresión.

Por otra parte, el denominador en la ecuación (4.33), en la suma por estados intermedios, es calculado como,

$$E_{\text{int}} - E_i - h\nu_i + i\Gamma_{\text{int}} = E_{\text{gap}} + \Delta E_{\text{int}} - h\nu_i + i\Gamma_{\text{int}}, \quad (4.52)$$

donde  $E_{\text{gap}}$  denota la brecha del semiconductor. Haciendo uso de las expresiones (4.41) y (4.51) para evaluar los elementos matriciales del Hamiltoniano de interacción  $\hat{H}_{e-r}^\pm$  podemos, finalmente, calcular la amplitud de transición Raman según la ecuación (4.33)

#### 4.4.2. Puntos cuánticos neutros

El algoritmo de cálculo de la amplitud de transición Raman correspondiente a las excitaciones electrónicas en puntos cuánticos neutros, es similar al descrito en la sección (4.4.1) para sistemas cargados. Sin embargo, en su implementación tenemos que considerar algunos elementos diferentes dados por la presencia de dos tipos de portadores en el punto cuántico y los modelos usados para su descripción física. Por ejemplo, a diferencia del caso de puntos cargados, ahora los estados inicial y final son estados del sistema de  $N$  pares electrón-hueco y los estados intermedios corresponden a  $N + 1$  pares en el punto.

Los estados uniparticulares de HF para electrones y huecos son obtenidos resolviendo iterativamente las ecuaciones (2.70) y (2.71) respectivamente. Por otra parte, resolviendo el problema de autovalores y autovectores (3.70) obtenemos las energías de excitación  $\Delta E_f$  y los coeficientes  $X^{(f)e}$ ,  $X^{(f)h}$ ,  $Y^{(f)e}$ ,  $Y^{(f)h}$  correspondientes a los estados finales  $|f\rangle$ . El espectro de excitaciones electrónicas es construido en diferentes sectores definidos por los valores de  $\Delta l$ ,  $\Delta s_{ze}$  y  $\Delta s_{zh}$ .

Dichos estados pueden clasificarse en excitaciones de una partícula o colectivas atendiendo a su contribución a la regla de suma pesada por energía (ec. 3.78).

Los estados intermedios involucrados en el cálculo de  $A_{fi}$  son obtenidos en la aproximación pp-TDA. Los valores de  $\Delta E_{\text{int}} = E_{\text{int}}^{(N+1)} - E_i^{(N)}$  y los coeficientes  $V_{N+1}^{(\text{int})}$  son obtenidos resolviendo el problema de autovalores y autovectores planteado en la ecuación (3.100). Dichos estados son construidos en diferentes sectores definidos por los valores de  $l_e + l_h$ ,  $s_{ze}$  y  $s_{zh}$  siendo  $s_{ze}$  y  $s_{zh}$  las proyecciones del espín del electrón y el hueco, respectivamente.

El denominador en la ecuación (4.33), correspondiente a la suma por estados intermedios, se calcula según la expresión (4.52) escrita para el caso de puntos cuánticos cargados. Sin embargo, en este caso  $E_{\text{int}}$  y  $E_i$  denotan las energías de los estados multiexcitonicos intermedios e inicial.

El cálculo del elemento matricial del operador  $\hat{H}_{e-r}^-(\vec{q}_i)$  puede ser llevado a cabo mediante un procedimiento análogo al desarrollado en el caso de sistemas cargados:

$${}_{N+1}\langle \text{int} | \hat{H}_{e-r}^-(\vec{q}_i) | i \rangle_N = A_{\vec{q}_i}^0 \sum_{\sigma > \xi_f^e, \tau > \xi_f^h} V_{\sigma\tau}^{(\text{int})*} (\text{banda} - \text{orbital})_{\sigma\tau}^{(i)}, \quad (4.53)$$

donde el factor  $(\text{banda} - \text{orbital})_{\sigma\tau}^{(i)}$  puede ser calculado según la expresión (4.43). Sin embargo, tomando en cuenta que los huecos en este problema están tratados en un modelo simple de dos bandas, el factor  $\vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \cdot \vec{p}_{\sigma_s, m_j t}$ , calculado mediante la tabla 4.2, estará definido solamente para valores de  $m_j = \pm 3/2$ . Además, las bases de funciones (oscilador) utilizadas para expandir los estados de HF de electrones y huecos pertenecen a la primera subbanda del pozo. Por tanto, el elemento de matriz (4.46) es diagonal en  $k_z$ , con  $k_z^s = k_z^t = 1$ .

El elemento matricial del operador  $\hat{H}_{e-r}^+(\vec{q}_f)$  está dado por una expresión relativamente más compleja:

$$\begin{aligned} {}_N\langle f | \hat{H}_{e-r}^+(\vec{q}_f) | \text{int} \rangle_{N+1} = & A_{\vec{q}_f}^0 \sum_{\sigma > \xi_f^e, \lambda \leq \xi_f^e} \sum_{\sigma' > \xi_f^e, \tau > \xi_f^h} \sum_{\bar{\alpha}, \beta} \left\{ \langle \bar{\alpha} | e^{-i\vec{q}_f \cdot \vec{r}} \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_f} \cdot \hat{\vec{p}} | \beta \rangle \right. \\ & \times \left[ X_{\sigma\lambda}^{(f)e*} \langle i | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma \hat{h}_{\bar{\alpha}} \hat{e}_\beta \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger | i \rangle + X_{\sigma\lambda}^{(f)h*} \langle i | \hat{h}_\lambda^\dagger \hat{h}_\sigma \hat{h}_{\bar{\alpha}} \hat{e}_\beta \hat{e}_{\sigma'}^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger | i \rangle \right. \\ & \left. - Y_{\lambda\sigma}^{(f)e*} \langle i | \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda \hat{h}_{\bar{\alpha}} \hat{e}_\beta \hat{e}_{\sigma'}^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger | i \rangle - Y_{\lambda\sigma}^{(f)h*} \langle i | \hat{h}_\sigma^\dagger \hat{h}_\lambda \hat{h}_{\bar{\alpha}} \hat{e}_\beta \hat{e}_{\sigma'}^\dagger \hat{h}_\tau^\dagger | i \rangle \right] V_{\sigma'\tau}^{(\text{int})} \left. \right\} \quad (4.54) \end{aligned}$$

Calculando los valores medios en la ecuación (4.54) en la aproximación de HF obtenemos:

$$\begin{aligned} {}_N\langle f | H_{e-r}^+(\vec{q}_f) | \text{int} \rangle_{N+1} = & -A_{\vec{q}_f}^0 \left\{ \sum_{\sigma > \xi_f^e, \tau > \xi_f^h} \sum_{\sigma' > \xi_f^e, \lambda \leq \xi_f^e} \delta_{\sigma, \sigma'}^e (\text{banda} - \text{orbital})_{\lambda\tau}^{(f)} V_{\sigma\tau}^{(\text{int})} X_{\sigma'\lambda}^{(f)e*} \right. \\ & + \left. \sum_{\sigma > \xi_f^e, \tau > \xi_f^h} \sum_{\tau' > \xi_f^h, \lambda \leq \xi_f^h} \delta_{\tau, \tau'}^h (\text{banda} - \text{orbital})_{\sigma\lambda}^{(f)} V_{\sigma\tau}^{(\text{int})} X_{\tau'\lambda}^{(f)h*} \right\}, \quad (4.55) \end{aligned}$$

donde el factor  $(\text{banda} - \text{orbital})$  es calculado a partir de (4.43) sustituyendo  $i$  por  $f$  y tomando el complejo conjugado de la expresión completa.

## 4.5. Expresión aproximada para la amplitud de transición Raman en régimen no resonante

En numerosas ocasiones, los experimentos Raman llevados a cabo en puntos cuánticos son interpretados sobre la base de una expresión teórica para la amplitud de transición Raman conocida como la aproximación de régimen no resonante (ORA, por sus siglas en inglés) [106]. Dicha aproximación, en la región donde los valores de  $h\nu_i$  están alejados de la región de resonancias con los estados intermedios, predice amplitudes Raman significativamente distintas de cero asociadas con las excitaciones electrónicas colectivas. Los experimentos Raman en la región de resonancia extrema en pozos e hilos cuánticos revelan fuertes picos de la intensidad Raman correspondientes a excitaciones uniparticulares [107, 52, 108]. Estos picos, ausentes en una aproximación como la ORA, sólo pueden ser descritos considerando apropiadamente los estados (virtuales) intermedios involucrados en el cálculo de la amplitud de transición Raman [109]. Para energías superiores del láser incidente, 40-50 meV por encima del gap del semiconductor, se han observado amplificaciones resonantes de la intensidad Raman para valores particulares de la frecuencia del haz de luz incidente [47]. Este efecto resonante no puede ser descrito en el marco de una aproximación como la ORA, y en general está asociado a la existencia de resonancias de entrada (*incoming*) y de salida (*outgoing*) con los estados intermedios.

La expresión (4.33) constituye el punto de partida para la deducción de la expresión usada para interpretar los espectros Raman en régimen fuera de resonancia. Si asumimos que el valor de la energía del fotón incidente está alejado de la energía de cualquier estado intermedio, el denominador en la suma por estados intermedios de la ecuación (4.33) será lo suficientemente grande como para despreciar la variación de este con respecto a  $E_{\text{int}}$  y por tanto,  $E_{\text{int}} - E_i - h\nu_i \approx E_{\text{gap}} - h\nu_i$ . Si además consideramos que el conjunto de estados intermedios incluidos en una ventana de energía desde  $E_{\text{gap}}$  hasta aproximadamente  $E_{\text{gap}} + (40 - 50)$  meV, involucrados en el cálculo de la amplitud de transición Raman, están caracterizados por los mismos valores del parámetro  $\Gamma_{\text{int}}$ , la relación de completitud  $\sum'_{\text{int}} |\text{int}\rangle\langle \text{int}| \approx 1$  es prácticamente satisfecha y la ecuación (4.33) puede escribirse como:

$$A_{fi}^{\text{ORA}} = \frac{(eP/m_0)^2 \sqrt{n_{\vec{q}_i}}}{E_{\text{gap}} - h\nu_i} \langle f | \hat{H}_{e-r}^+(\vec{q}_f) \hat{H}_{e-r}^-(\vec{q}_i) | i \rangle, \quad (4.56)$$

donde hemos omitido por simplicidad el término dependiente del tiempo. Sustituyendo las expresiones para los operadores  $\hat{H}_{e-r}^+$  y  $\hat{H}_{e-r}^-$  en la ecuación (4.56) obtenemos:

$$A_{fi}^{\text{ORA}} = \frac{(eP/m_0)^2 \sqrt{n_{\vec{q}_i}}}{E_{\text{gap}} - h\nu_i} \sum_{\alpha, \bar{\beta}} \sum_{\bar{\alpha}', \beta'} \langle \bar{\alpha}' | e^{-i\vec{q}_f \cdot \vec{r}} \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_f}^* \cdot \hat{\vec{p}} | \beta' \rangle \langle \alpha | e^{i\vec{q}_i \cdot \vec{r}} \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \cdot \hat{\vec{p}} | \bar{\beta} \rangle \langle f | \hat{h}_{\bar{\alpha}'} \hat{e}_{\beta'} \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{h}_{\bar{\beta}}^\dagger | i \rangle. \quad (4.57)$$

En el caso de puntos cuánticos cargados, los estados  $|i\rangle$  y  $|f\rangle$  no contienen estados de huecos. Por tanto, los operadores correspondientes a dichas partículas en la ecuación anterior se contraen mediante una función delta de Kronecker y la ecuación (4.57) puede reescribirse como sigue:

$$A_{fi}^{\text{ORA}} = \frac{(eP/m_0)^2 \sqrt{n_{\vec{q}_i}}}{E_{\text{gap}} - h\nu_i} \sum_{\alpha, \beta', \bar{\beta}} \langle \alpha | e^{i\vec{q}_i \cdot \vec{r}} \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \cdot \hat{\vec{p}} | \bar{\beta} \rangle \langle \beta | e^{-i\vec{q}_f \cdot \vec{r}} \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_f}^* \cdot \hat{\vec{p}} | \beta' \rangle \langle f | \hat{e}_{\beta'} \hat{e}_\alpha^\dagger | i \rangle. \quad (4.58)$$

Nosotros tomamos una base completa de funciones para los estados de huecos  $|\bar{\beta}\rangle$  caracterizadas por un índice  $\bar{\gamma}$  que incluye los números cuánticos de la función envolvente (orbital) y el índice  $m_j$  correspondiente a la proyección del momentum angular total asociado con la función de banda. Es posible entonces, reescribir la ecuación (4.58) como,

$$A_{fi}^{\text{ORA}} = \sum_{\alpha, \beta'} \{[\uparrow\uparrow] + [\downarrow\downarrow] + [\uparrow\downarrow] + [\downarrow\uparrow]\}, \quad (4.59)$$

donde hemos usado la notación abreviada,

$$[\uparrow\uparrow] = \frac{(eP/m_0)^2 \sqrt{n_{\vec{q}_i}}}{E_{\text{gap}} - h\nu_i} \sum_{m_j, \bar{\gamma}} \langle \alpha | e^{i\vec{q}_i \cdot \vec{r}} \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \cdot \hat{\vec{p}} | \bar{\gamma}, m_j \rangle \langle \bar{\gamma}, m_j | e^{-i\vec{q}_f \cdot \vec{r}} \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_f}^* \cdot \hat{\vec{p}} | \beta' \uparrow \rangle \langle f | \hat{e}_{\beta'\uparrow} \hat{e}_{\alpha\uparrow}^\dagger | i \rangle. \quad (4.60)$$

Las funciones de espín para los estados de electrones han sido denotadas explícitamente mediante flechas. Los elementos matriciales del producto  $\vec{\varepsilon} \cdot \vec{p}$  dependen solamente de la proyección del espín del electrón y el valor del índice  $m_j$ . Haciendo uso de la condición de completitud de los orbitales de huecos la ecuación anterior puede ser reescrita como:

$$[\uparrow\uparrow] = \frac{(eP/m_0)^2 \sqrt{n_{\vec{q}_i}}}{E_{\text{gap}} - h\nu_i} \sum_{m_j} \langle \alpha | e^{i(\vec{q}_i - \vec{q}_f) \cdot \vec{r}} | \beta' \rangle \langle \uparrow | \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \cdot \hat{\vec{p}} | m_j \rangle \langle m_j | \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_f}^* \cdot \hat{\vec{p}} | \uparrow \rangle \langle f | \hat{e}_{\beta'\uparrow} \hat{e}_{\alpha\uparrow}^\dagger | i \rangle. \quad (4.61)$$

Los elementos matriciales del producto  $\vec{\varepsilon}_{\vec{q}} \cdot \vec{p}$  se calculan según la tabla 4.2. Llevando a cabo el cálculo de dichos elementos matriciales para los valores de  $m_j = -3/2, -1/2, 1/2, 3/2$  podemos escribir la ecuación (4.61) en la forma,

$$\begin{aligned} [\uparrow\uparrow] &= \frac{(eP/m_0)^2 \sqrt{n_{\vec{q}_i}}}{E_{\text{gap}} - h\nu_i} \left\{ \langle \alpha | e^{i(\vec{q}_i - \vec{q}_f) \cdot \vec{r}} | \beta' \rangle \{ \vec{\varepsilon}_+^i \vec{\varepsilon}_+^{f*} + \frac{2}{3} \vec{\varepsilon}_z^i \vec{\varepsilon}_z^{f*} + \frac{1}{3} \vec{\varepsilon}_-^i \vec{\varepsilon}_-^{f*} \} \langle f | \hat{e}_{\beta'\uparrow} \hat{e}_{\alpha\uparrow}^\dagger | i \rangle \right\} \\ &= \frac{(eP/m_0)^2 \sqrt{n_{\vec{q}_i}}}{h\nu_i - E_{\text{gap}}} \langle \alpha | e^{i(\vec{q}_i - \vec{q}_f) \cdot \vec{r}} | \beta' \rangle \langle f | \left\{ \frac{2}{3} (\vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \cdot \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_f}) - \frac{i}{3} (\vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \times \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_f}) \cdot \hat{z} \right\} \hat{e}_{\alpha\uparrow}^\dagger \hat{e}_{\beta'\uparrow} | i \rangle. \end{aligned} \quad (4.62)$$

Efectuando los mismos cálculos para el resto de los términos en la ecuación (4.59) es posible demostrar la siguiente expresión para  $A_{fi}^{\text{ORA}}$ ,

$$\begin{aligned} A_{fi}^{\text{ORA}} &= - \frac{(eP/m_0)^2 \sqrt{n_{\vec{q}_i}}}{E_{\text{gap}} - h\nu_i} \sum_{\alpha, \beta'} \langle \alpha | e^{i(\vec{q}_i - \vec{q}_f) \cdot \vec{r}} | \beta' \rangle \\ &\times \left\langle f \left| \left\{ \frac{2}{3} (\vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \cdot \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_f}) [\hat{e}_{\alpha\uparrow}^\dagger \hat{e}_{\beta'\uparrow} + \hat{e}_{\alpha\downarrow}^\dagger \hat{e}_{\beta'\downarrow}] - \frac{i}{3} (\vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \times \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_f}) \cdot \hat{z} [\hat{e}_{\alpha\uparrow}^\dagger \hat{e}_{\beta'\uparrow} - \hat{e}_{\alpha\downarrow}^\dagger \hat{e}_{\beta'\downarrow}] \right. \right. \right. \\ &\left. \left. \left. - \frac{i}{3} (\vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \times \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_f}) \cdot (\hat{x} - i\hat{y}) \hat{e}_{\alpha\uparrow}^\dagger \hat{e}_{\beta'\downarrow} - \frac{i}{3} (\vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \times \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_f}) \cdot (\hat{x} + i\hat{y}) \hat{e}_{\alpha\downarrow}^\dagger \hat{e}_{\beta'\uparrow} \right\} \right| i \right\rangle. \end{aligned} \quad (4.63)$$

Nótese que en esta aproximación los estados intermedios no juegan ningún papel. La exponencial en la ecuación (4.63) puede escribirse como:

$$e^{i(\vec{q}_i - \vec{q}_f) \cdot \vec{r}} = e^{i(q_{zi} - q_{zf})z} e^{i|\vec{q}_{||i} - \vec{q}_{||f}| \cdot \rho \cos \theta}. \quad (4.64)$$

Expandiendo la exponencial en la ecuación (4.64) hasta segundo orden y tomando en cuenta la definición de los operadores multipolares de una partícula  $\hat{d}_l$  dada por la ecuación (3.38) podemos reescribir la ecuación (4.63) como sigue:

$$\begin{aligned} A_{fi}^{\text{ORA}} \approx & - \frac{(eP/m_0)^2 \sqrt{n_{\vec{q}_i}}}{E_{\text{gap}} - h\nu_i} \sum_{\alpha, \beta'} \langle \alpha | e^{iq_{zt}z} \left\{ 1 - \frac{|\vec{q}_{||t}|^2}{4} \hat{d}_0 + i \frac{|\vec{q}_{||t}|}{2} (\hat{d}_1 + \hat{d}_{-1}) + \frac{|\vec{q}_{||t}|^2}{8} (\hat{d}_2 + \hat{d}_{-2}) \right\} | \beta' \rangle \\ & \times \left\langle f \left| \left\{ \frac{2}{3} (\vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \cdot \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_f}) [\hat{e}_{\alpha\uparrow}^\dagger \hat{e}_{\beta'\uparrow} + \hat{e}_{\alpha\downarrow}^\dagger \hat{e}_{\beta'\downarrow}] - \frac{i}{3} (\vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \times \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_f}) \cdot \hat{z} [\hat{e}_{\alpha\uparrow}^\dagger \hat{e}_{\beta'\uparrow} - \hat{e}_{\alpha\downarrow}^\dagger \hat{e}_{\beta'\downarrow}] \right. \right. \right. \\ & \left. \left. \left. - \frac{i}{3} (\vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \times \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_f}) \cdot (\hat{x} - i\hat{y}) \hat{e}_{\alpha\uparrow}^\dagger \hat{e}_{\beta'\downarrow} - \frac{i}{3} (\vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \times \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_f}) \cdot (\hat{x} + i\hat{y}) \hat{e}_{\alpha\downarrow}^\dagger \hat{e}_{\beta'\uparrow} \right\} \right| i \right\rangle, \end{aligned} \quad (4.65)$$

donde  $q_{zt} = q_{zi} - q_{zf}$  y  $\vec{q}_{||t} = \vec{q}_{||i} - \vec{q}_{||f}$ . La forma de la ecuación (4.65) para el cálculo de la amplitud de transición Raman en régimen no resonante nos permite arribar a las siguientes conclusiones. Sólo los estados finales colectivos, o sea, aquellos que se distinguen por valores significativamente distintos de cero del elemento matricial de los operadores multipolares, tendrán asociados valores de  $A_{fi}^{\text{ORA}}$  no nulos.

Un segundo aspecto importante está relacionado con las reglas de selección del efecto Raman. En la ecuación (4.65) los operadores multipolares que no alteran los números cuánticos de espín del estado inicial están multiplicados por el factor  $\vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \cdot \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_f}$ . Esto significa que los picos de intensidad Raman correspondientes a las excitaciones colectivas de carga, aparecerán en los espectros medidos en la configuración de polarización paralela. Por otro lado, los operadores multipolares que modifican el espín están multiplicados por el término  $\vec{\varepsilon}_{\vec{q}_i} \times \vec{\varepsilon}_{\vec{q}_f}$ . Por tanto, los picos de intensidad Raman correspondientes a las excitaciones de espín estarán presentes en los espectros medidos o calculados en la configuración de polarización ortogonal.

## 4.6. Conclusiones parciales

En este capítulo hemos presentado y definido los conceptos básicos del fenómeno de la dispersión inelástica de la luz. La expresión para el cálculo de la amplitud de transición Raman electrónica es obtenida a segundo orden de teoría de perturbaciones dependiente del tiempo.

El proceso de dispersión Raman es modelado considerando un haz de luz incidente monocromático y linealmente polarizado. Dos tipos de configuraciones para la detección de la luz dispersada son contempladas. La primera, denominada polarización paralela, en la cual los vectores de polarización de los fotones incidente y dispersado son paralelos entre si y la segunda, denominada polarización cruzada, en la cual la polarización de la luz dispersada es perpendicular a la de la luz incidente.

Por primera vez, construimos un esquema de cálculo para la amplitud de transición Raman electrónica en términos de las energías y funciones de onda de los estados multielectrónicos básico (inicial), intermedios (virtuales) y finales (excitados) involucrados en el proceso de dis-

persión. En dicho esquema el espectro de excitaciones electrónicas del punto es calculado de forma independiente al cálculo de la sección eficaz Raman.

Finalmente en este capítulo, obtuvimos una expresión para el cálculo de la amplitud de transición Raman para régimen no resonante. Dicha expresión muestra de manera directa las reglas de selección de la dispersión Raman electrónica.

# Capítulo 5

## ANALISIS DE LOS RESULTADOS

Este capítulo lo dedicamos a presentar y discutir los resultados obtenidos en esta investigación. El análisis de los mismos está estructurado de la siguiente manera. En la próxima sección describimos los espectros de excitaciones electrónicas multipolares para un punto cuántico cargado con 42 electrones. Los espectros Raman calculados en diferentes regiones de la energía  $h\nu_i$  del láser incidente son discutidos en las secciones 5.2.1 ( $h\nu_i \leq E_{\text{gap}}$ ), 5.2.2 ( $E_{\text{gap}} \leq h\nu_i \leq E_{\text{gap}} + 30 \text{ meV}$ ) y 5.2.3 ( $h\nu_i \sim E_{\text{gap}} + 50 \text{ meV}$ ). Finalmente en la sección 5.3 presentamos espectros Raman calculados para un punto cuántico neutro poblado por 42 pares electrón-hueco. En general, aunque no presentamos mediciones experimentales de la sección eficaz Raman, los resultados obtenidos son comparados cualitativamente con los resultados experimentales publicados en la literatura científica citada en la introducción de esta tesis.

### 5.1. Espectros de excitaciones electrónicas para un punto cuántico cargado

En esta sección presentaremos los espectros de excitaciones electrónicas multipolares calculados mediante la Aproximación de Fase Aleatoria (RPA) para un punto cuántico con  $N_e = 42$  electrones confinados en su interior. En un cuadro de partículas independientes, 42 electrones ocupan todos los estados de Fock-Darwing incluidos en 6 capas de oscilador, o sea, constituye un sistema de capas cerradas. En la dirección de crecimiento ( $z$ ) la dimensión del punto es  $L = 25 \text{ nm}$ . El confinamiento de los electrones en esta dirección es modelado por medio de un potencial de paredes duras. Por otra parte, el confinamiento lateral de los electrones está descrito por un potencial parabólico con una energía característica  $\hbar\omega_0 = 12 \text{ meV}$ . En este sistema es posible controlar la densidad de la nube electrónica variando la fuerza del confinamiento según la relación:  $\rho \sim N_e^{1/2} m_e \omega_0 / \hbar$ . Los puntos estudiados en la Ref. [54] contienen aproximadamente 200 electrones confinados lateralmente por un potencial parabólico cuya energía característica es  $\hbar\omega_0 \simeq 6 \text{ meV}$ . En nuestros cálculos el valor de  $\hbar\omega_0$  fue escogido con el objetivo de reproducir en nuestro sistema, con 42 electrones, una densidad electrónica similar a la de los puntos investigados por Shiüller y colaboradores [54]. Los valores usados para la masa efectiva del electrón en la banda de conducción  $m_e/m_0 = 0.067$  y la constante dieléctrica relativa  $\kappa = 12.5$  corresponden al GaAs.

En la conformación de la matriz de la RPA, definida en la ecuación (3.27), los índices  $(\lambda, \mu)$ ,

recorren todos los estados uniparticulares de HF por debajo del nivel de Fermi los cuales denotamos como  $N_{\text{ocup}} = N_e$ . Por otra parte, los índices  $(\sigma, \tau)$  recorren los estados de HF por encima del nivel de Fermi hasta la capa 12 y el número de estados contenidos en ese intervalo lo denotamos como  $N_{\text{unocup}}$ . Por tanto, la dimensión de la matriz a diagonalizar en la RPA puede calcularse como  $\text{DIM}_{\text{RPA}} = 2 \times [N_e \times N_{\text{unocup}}]$ . En ausencia de un campo magnético externo, los estados uniparticulares de HF conforman una estructura de capas muy similar a la que conforman los estados del oscilador bidimensional. En general, la presencia de un campo magnético perpendicular al plano del punto cuántico introduce cierto grado de distorsión a dicha estructura por lo que en principio el valor de  $\text{DIM}_{\text{RPA}}$  depende del valor de  $B$ . Por ejemplo, para  $B = 0$ , el número de estados de HF por encima de nivel de Fermi involucrados en la construcción de la matriz (3.27) es  $N_{\text{unocup}} = 114$  y, por ende,  $\text{DIM}_{\text{RPA}} = 9576$ . Sin embargo, como demostramos en la sección 3.1.2, la matriz de la RPA puede ser construida en diferentes sectores definidos por los valores de  $\Delta l$  y  $\Delta s_z$  lo cual nos permitió trabajar con matrices de dimensiones significativamente menores ( $\text{DIM}_{\text{RPA}} \sim 500$ ) y por tanto, reducir de forma apreciable el costo computacional del cálculo de los estados excitados  $|f\rangle$ .

El principal mecanismo de decaimiento de los estados (electrónicos) excitados en puntos cuánticos a bajas temperaturas es la emisión de fonones longitudinales-ópticos (LO) [110]. Para el GaAs, la energía de umbral para la emisión de fonones LO es  $\hbar\omega_{\text{LO}} \simeq 30 meV. Por esta razón, consideraremos en los espectros calculados los estados con energías de excitación  $\Delta E_f < \hbar\omega_{\text{LO}}$  con el objetivo de excluir en los espectros Raman aquellos picos relacionados con excitaciones fonónicas.$

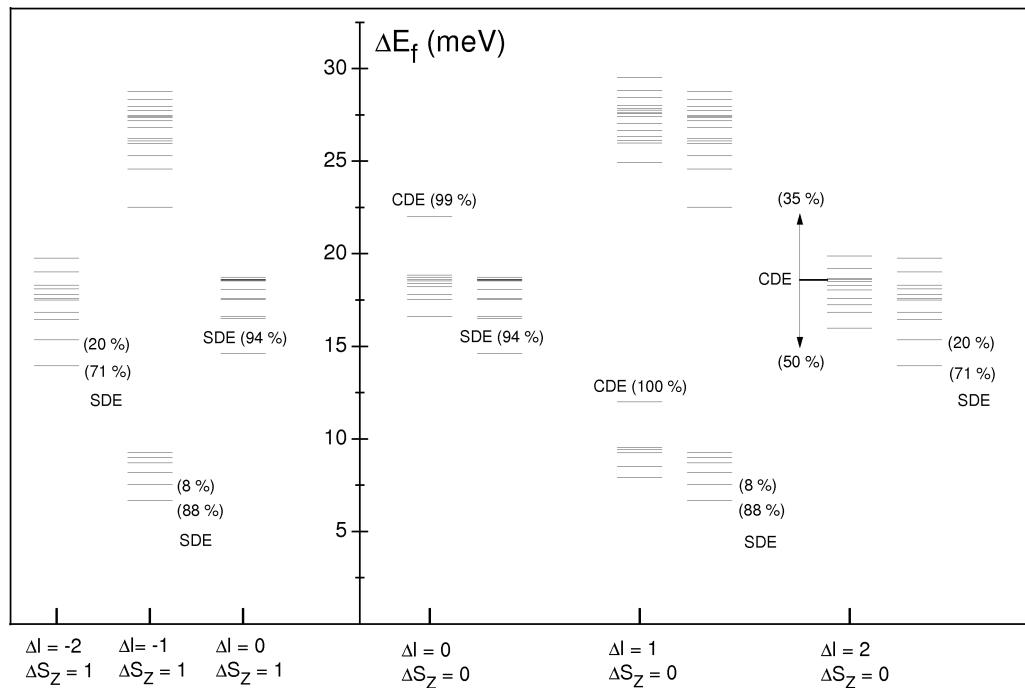


Figura 5.1: Espectro de excitaciones electrónicas en el punto cuántico modelado.  $B = 0$  T.

En la figura 5.1 mostramos el espectro de excitaciones del punto cuántico para  $B = 0$ . La energía de excitación  $\Delta E_f$  correspondiente a cada estado es precisamente el corrimiento Raman medido en los experimentos de dispersión inelástica de luz. A la izquierda del eje  $y$  representamos las excitaciones con  $\Delta s_z = 1$ , conocidas también como excitaciones de *spin-flip*. En la parte derecha

mostramos los estados calculados con  $\Delta s_z = 0$ . En esta región de la figura, para cada valor de  $\Delta l$  representamos dos conjuntos de estados, a la izquierda representamos las excitaciones de carga y a la derecha las excitaciones de espín que involucran un cambio en el valor del espín total del estado excitado con respecto al estado base. Nótese que, en ausencia de un campo magnético los estados finales  $|f\rangle$  con  $\Delta s_z = 0$  y  $\Delta s_z = 1$  son degenerados. Las excitaciones colectivas de carga y espín son denotadas en la figura como CDE y SDE respectivamente. La fracción de la regla de suma asociada a los modos colectivos es brindada explícitamente en esta figura. El resto de los estados representados en cada sector corresponden a excitaciones uniparticulares de carga [SPEs(C)] y espín [SPEs(S)].

En el sector con  $\Delta l = 0, \Delta s_z = 0$  observamos que el estado CDE concentra el 99 % de la fuerza de la transición monopolar de carga del estado  $|i\rangle$  al estado  $|f\rangle$ . Lo mismo sucede para el estado SDE cuya contribución a la regla de suma es del 94 %. Esto evidencia, en ausencia de un campo magnético externo, la fuerte naturaleza colectiva de estos modos. En el sector  $\Delta l = 1, \Delta s_z = 0$  el modo CDE, cuya energía de excitación  $\Delta E_f = \hbar\omega_0 = 12$  meV, concentra el 100 % de la fuerza de la transición dipolar en concordancia con el teorema generalizado de Kohn [7]. Por otra parte, en el sector con  $\Delta l = 2, \Delta s_z = 0$  la contribución a la regla de suma (3.79) está distribuida entre dos estados con energías de excitación muy cercanas. Nótese que en general, las excitaciones colectivas están relativamente aisladas de las uniparticulares.

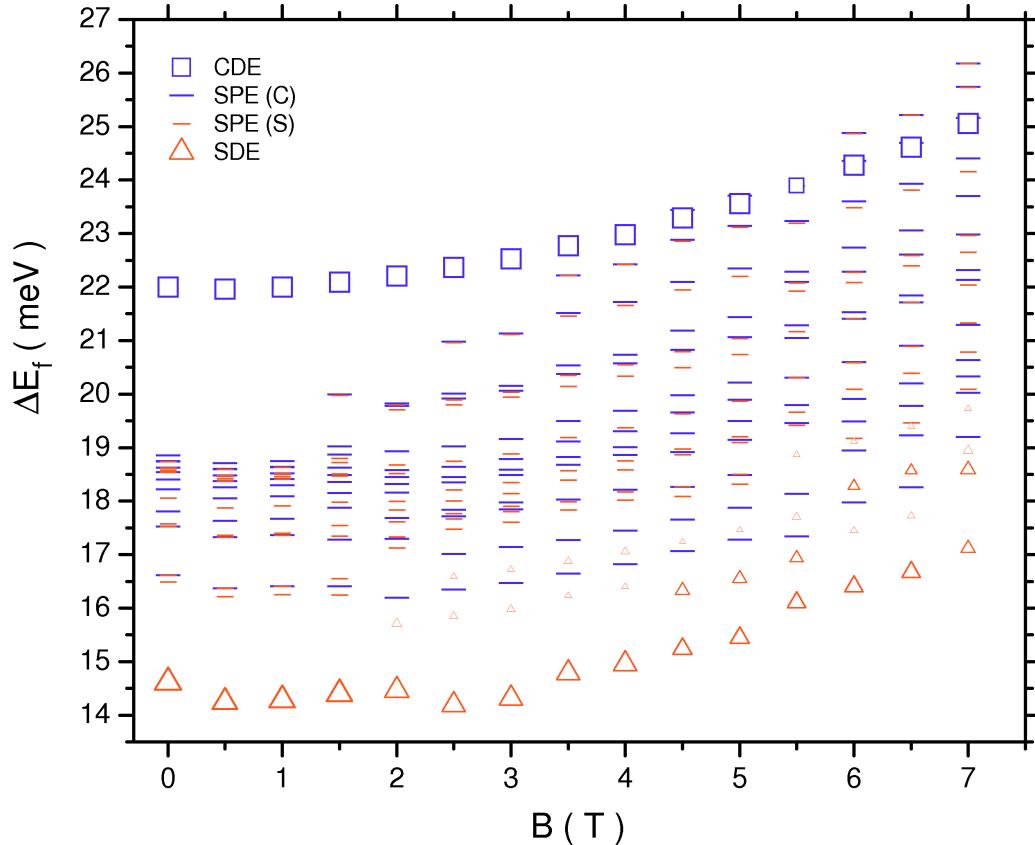


Figura 5.2: Espectro de excitaciones monopolares para diferentes valores del campo magnético externo en el intervalo  $B = [0, 7 T]$ .

En la figura 5.2 mostramos el espectro de excitaciones monopolares para diferentes valores del

campo magnético externo en el intervalo entre 0 y 7 T. Las excitaciones colectivas de carga y espín, cuyas contribuciones a la regla de suma exceden el 5 %, están representadas mediante cuadrados (negros) y triángulos (rojos) respectivamente. El tamaño de los símbolos empleados en este gráfico es proporcional a la fracción de la regla de suma asociada a cada modo colectivo. Las excitaciones SPEs(C) y SPEs(S) son también representadas mediante barras horizontales largas (negras) y cortas (rojas) respectivamente.

Con respecto al modo monopolar CDE podemos observar en la figura 5.2 dos características principales: i) la energía de excitación correspondiente a este modo muestra un comportamiento suave como función de  $B$  y ii) el tamaño de los símbolos (cuadrados) usados para su representación se mantiene invariable con el campo magnético. Esto indica que el modo CDE monopolar preserva su fuerte naturaleza colectiva ante la presencia de un campo magnético externo. O sea, toda la fuerza de la transición se concentra en un estado en todo el intervalo de valores de  $B$ . Solamente para  $B = 5.5$  T existen dos estados entre los cuales se distribuye la fuerza de la transición monopolar de carga. Por otra parte, el estado colectivo de espín es obtenido siempre en la región de bajas energías de excitación del espectro y muestra un comportamiento prácticamente independiente del campo magnético en el intervalo de valores entre 0 y 2 T. A partir de 2 T observamos la aparición de nuevos modos SDE. En general, en la región donde  $B > 3$  T, las posiciones de dichos modos siguen un comportamiento cuasi-lineal. Los estados excitados uniparticulares están agrupados en grupos compactos para valores pequeños de  $B$ . Sin embargo, es posible observar una distribución más homogénea de estos para valores del campo magnético externo por encima de 3 T. Es interesante notar también en el espectro de SPEs que el estado SPE(C) de menor energía se encuentra relativamente aislado del resto en todo el intervalo de valores de  $B$  mostrado.

Los estados excitados en los sectores  $\Delta l = \pm 1, \Delta s_z = 0$  para diferentes valores de  $B$  en el intervalo entre 0 y 7 T son mostrados en la figura 5.3. Las excitaciones colectivas y uniparticulares son representadas mediante una simbología similar a la descrita en la figura 5.2. La energía de excitación  $\Delta E_f$  correspondiente al modo de Kohn (CDE) en presencia de un campo magnético externo puede ser calculada analíticamente mediante la expresión:

$$\Delta E_f(B)_{\text{Kohn}} = \sqrt{(\hbar\omega_0)^2 + \left(\frac{eB}{2m_e c}\right)^2} \pm \frac{eB}{2m_e c}, \quad (5.1)$$

donde el signo  $+(-)$  corresponde al caso de  $\Delta l = 1(-1)$ . Las funciones definidas en la ecuación (5.1) han sido representadas mediante líneas rectas en las figuras 5.3(a) y 5.3(b) con el objetivo de mostrar como la RPA reproduce perfectamente, para todos los valores de  $B$ , la posición del estado dipolar colectivo de carga o modo de Kohn. En la figura 5.3(a) podemos observar en la región  $0 \leq B \leq 2$  T que el estado CDE puede distinguirse claramente del conjunto de SPEs, mientras que para valores de  $B > 2$  T dicho modo penetra en una zona del espectro caracterizada por una densidad de estados SPEs no nula. Sin embargo, si observamos el comportamiento del estado colectivo de carga en el sector con  $\Delta l = -1$ , ilustrado en la figura 5.3(b), encontramos que el mismo se encuentra ubicado, para cualquier valor de  $B$ , en una región del espectro caracterizada por la ausencia de excitaciones electrónicas uniparticulares.

Los estados colectivos de espín, al igual que en el caso monopolar, son las excitaciones de más bajas energías en el espectro dipolar. En la figura 5.3(a) podemos apreciar la existencia de varias bandas de estados SDE. En general, la contribución a la regla de suma 3.79 está distribuida en

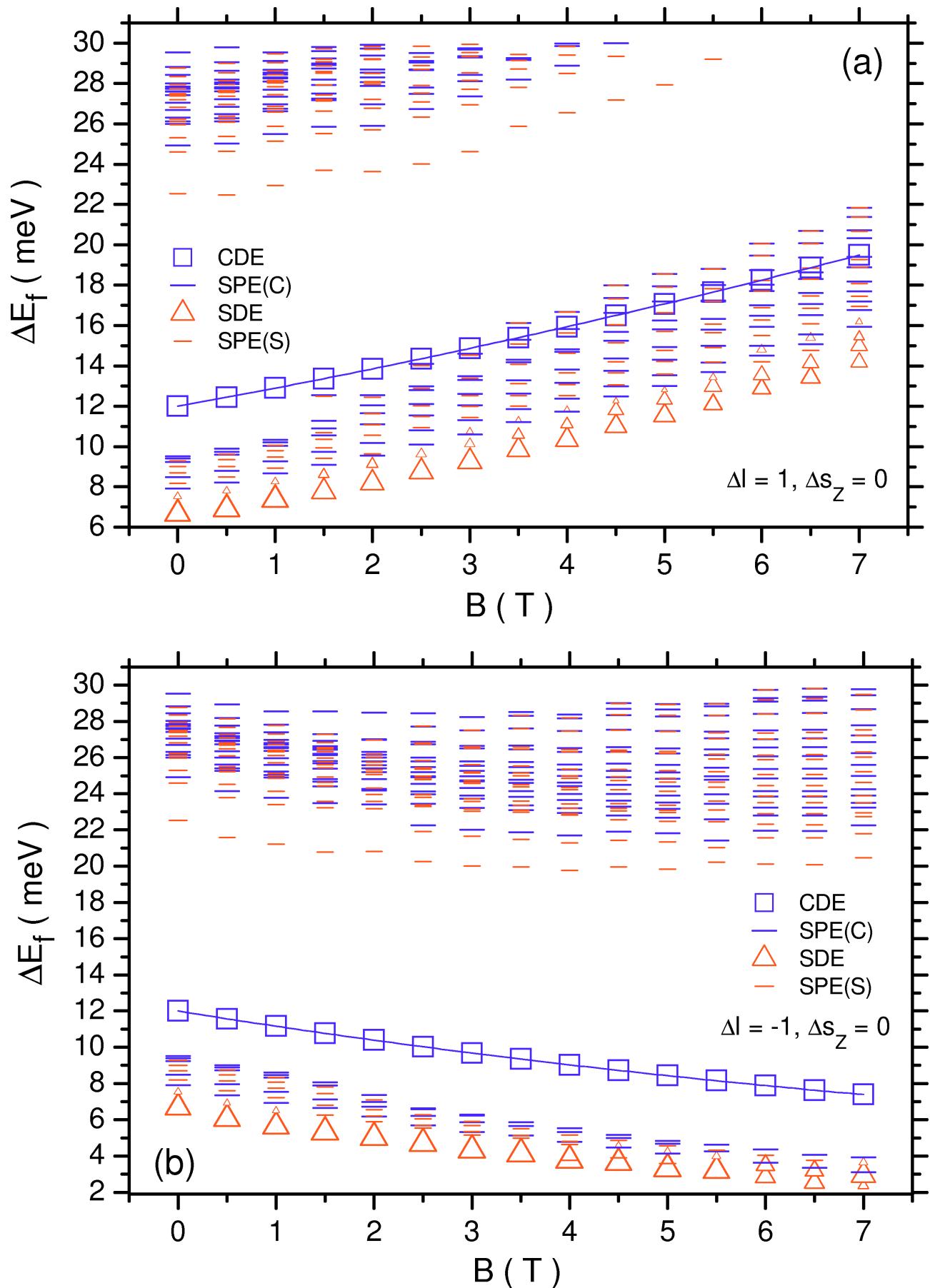


Figura 5.3: Espectro de excitaciones dipolares en presencia de un campo magnético externo perpendicular al plano del punto cuántico.

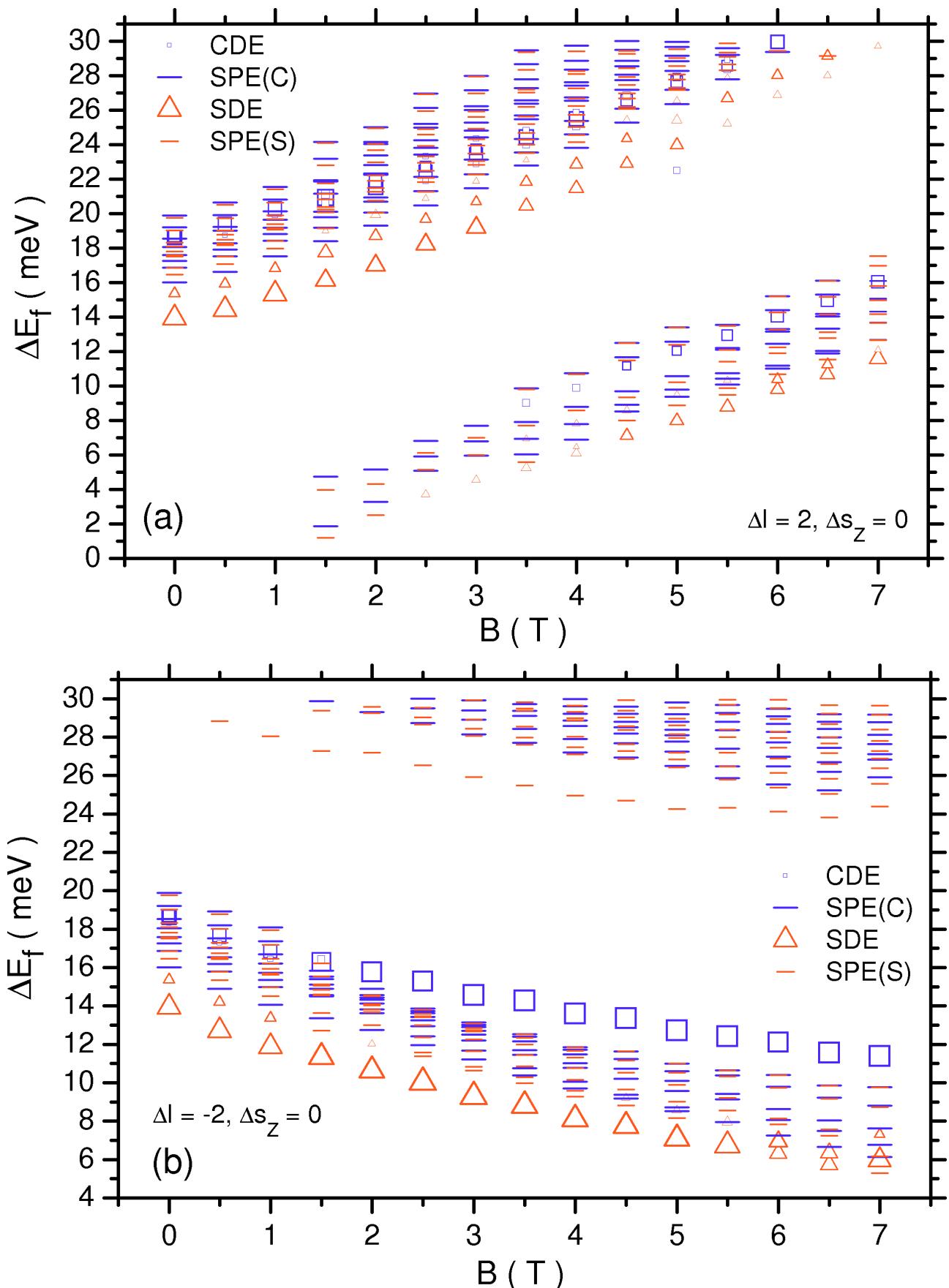


Figura 5.4: Espectro de excitaciones cuadrupolares en presencia de un campo magnético externo perpendicular al plano del punto cuántico.

mas de un estado, aunque la fuerza de la transición se concentra en el modo menos energético. Nótese para el caso  $\Delta l = 1$  que en la medida que se incrementa el valor del campo, parte de la fuerza de la transición dipolar de espín es trasladada a los estados que conforman la segunda banda de excitaciones SDE.

Los estados excitados calculados en los sectores  $\Delta l = \pm 2, \Delta s_z = 0$  (cuadrupolar) son mostrados en la figura 5.4. Los gráficos 5.4(a) y 5.4(b) revelan espectros con una estructura más compleja y diversa con respecto a los casos monopolar y dipolar. Sin embargo, podemos resaltar, a modo de comparación con lo hasta aquí expuesto, algunas cuestiones de interés. Por ejemplo, los estados colectivos de carga en el sector con  $\Delta l = 2$  están inmersos, para cualquier valor de  $B$ , dentro de un conjunto de excitaciones uniparticulares. Además, a diferencia de los modos CDE monopolares y dipolares, la contribución a la regla de suma se encuentra distribuida entre varios estados excitados. Por otra parte, para el sector con  $\Delta l = -2$ , mostrado en la figura 5.4(b), observamos que el modo CDE a partir del valor  $B = 2.0$  T concentra toda la fuerza de la transición cuadrupolar de carga adquiriendo una fuerte naturaleza colectiva.

## 5.2. Espectros Raman calculados para un punto cuántico cargado

En esta sección presentamos cálculos de las intensidades Raman asociadas a las excitaciones electrónicas de un punto cuántico cargado con 42 electrones. Los valores de la energía del láser incidente son brindados con respecto a la brecha energética renormalizada de la nanoestructura semiconductora denotada como  $E'_{\text{gap}} = E_{\text{gap}} + \Delta E_{\text{int}}^{(0)}$  donde,  $\Delta E_{\text{int}}^{(0)}$  corresponde al autovalor de más baja energía del sistema con un par electrón-hueco adicional obtenido mediante la aproximación pp-TDA. Todos los espectros Raman que serán presentados en lo adelante, están calculados asumiendo una configuración de retrodispersión en la cual el ángulo que forma la luz incidente y dispersada con respecto a la normal del punto es de  $20^\circ$ .

En el cálculo de la sección eficaz de dispersión Raman, consideramos todos los estados (excitados) finales  $|f\rangle$  con energías de excitación  $\Delta E_f \leq \hbar\omega_{\text{LO}}$ . Esto significa que la anchura energética de los estados finales, modelada mediante el parámetro  $\Gamma_f$ , tomará valores pequeños. En nuestros cálculos dicha magnitud es tomada como una constante cuyo valor es  $\Gamma_f = 0.1$  meV. Por otro lado, en el cálculo de  $|A_{fi}|^2$  en régimen no resonante y régimen de resonancia extrema incluimos todos los estados intermedios que satisfacen la condición  $\Delta E_{\text{int}} \leq \hbar\omega_{\text{LO}} = 30$  meV. En este intervalo de energía el valor del parámetro fenomenológico  $\Gamma_{\text{int}}$ , asociado a los tiempos de vida de dichos estados, fue escogido como  $\Gamma_{\text{int}} = 0.5$  meV. Los estados intermedios en la región donde  $\Delta E_{\text{int}} \geq \hbar\omega_{\text{LO}}$  estarán caracterizados por valores mucho mayores de este parámetro como resultado de la apertura del canal de emisión espontánea de fonones LO. Este punto será retomado con más profundidad en la discusión de los espectros Raman calculados en la sección 5.2.3 de este capítulo.

### 5.2.1. Régimen no resonante

Hasta ahora, no hemos encontrado en la literatura trabajos que reporten mediciones experimentales de la sección eficaz Raman asociadas a excitaciones electrónicas en puntos cuánticos en régimen no resonante. Para valores de la energía del láser incidente por debajo de  $E'_{\text{gap}}$ , uno

esperaría valores pequeños de las intensidades Raman asociadas a las excitaciones electrónicas. Sin embargo, tales mediciones de la intensidad de luz dispersada tendrían un conjunto importante de ventajas las cuales discutiremos a lo largo de las próximas subsecciones.

### Contribución de las excitaciones electrónicas multipolares a los espectros Raman

El esquema de cálculo implementado para la amplitud de transición Raman permite calcular el espectro de la luz dispersada correspondiente a cada sector de excitaciones electrónicas caracterizado por los valores de  $\Delta l$  y  $\Delta s_z$ . En lo adelante los resultados obtenidos serán presentados en esa forma aunque en un experimento real, las contribuciones a la intensidad Raman de los estados excitados con diferentes multipolaridades aparecen en un mismo espectro.

En la figura 5.5 presentamos los espectros Raman calculados en diferentes sectores de  $\Delta l$  y  $\Delta s_z$ . La energía del láser incidente  $h\nu_i$  fue escogida 5 meV por debajo del valor de  $E'_{\text{gap}}$  y

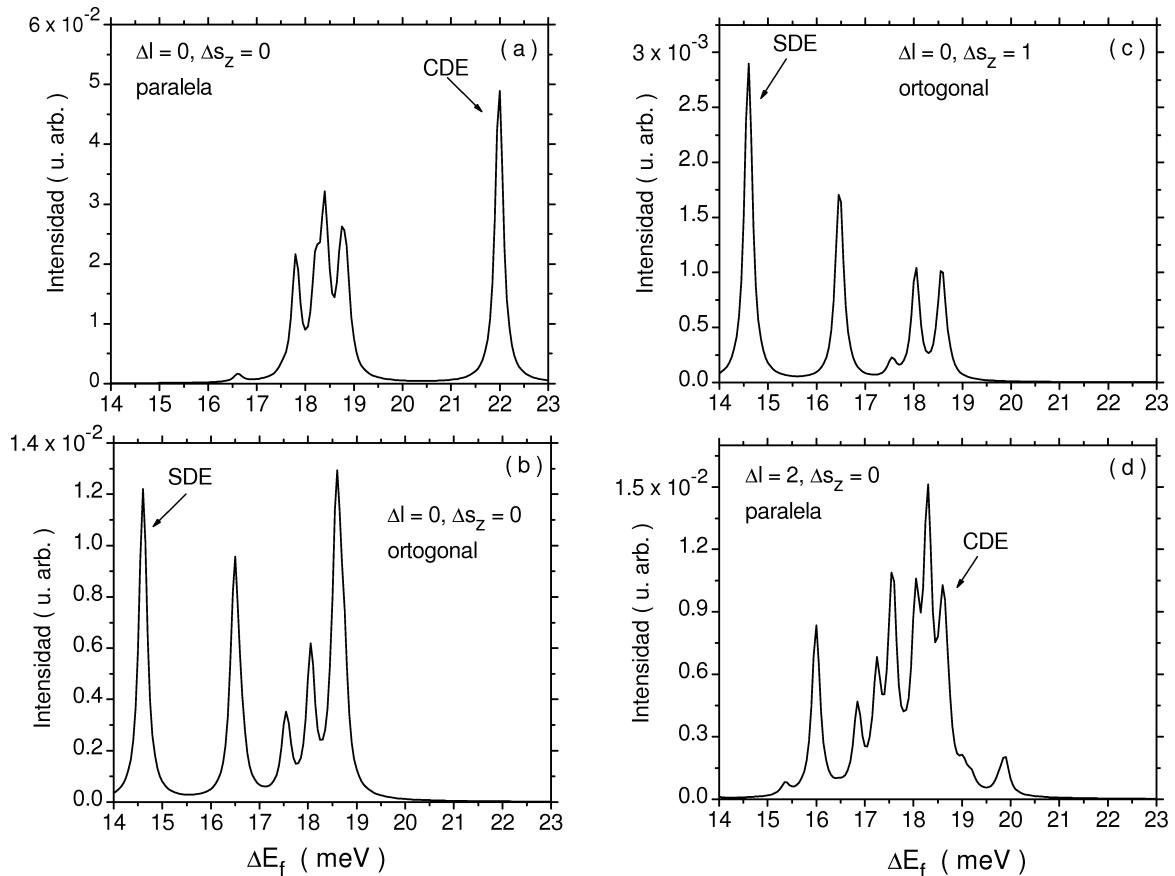


Figura 5.5: Espectros Raman calculados en diferentes sectores de  $\Delta l$  y  $\Delta s_z$ . La energía del láser incidente es  $h\nu_i = E'_{\text{gap}} - 5$  meV.  $B = 0$  T.

el valor del campo magnético externo es  $B = 0$  T. Los picos Raman asociados a los modos colectivos son explícitamente señalados. En términos generales, lo primero que observamos en la figura 5.5 es que las intensidades Raman asociadas a las excitaciones monopulares de carga (a), cuadrupolares de carga (d) y monopulares de espín con  $\Delta s_z = 0$  (b), exhiben magnitudes

comparables. La figura 5.5(a), correspondiente al espectro Raman monopolar calculado en polarización paralela, muestra los picos más intensos en comparación con el resto de los multipolos. Existen dos razones por las cuales los estados finales monopolares dan lugar a picos Raman dominantes. Primero, el proceso de dispersión Raman se produce a través del intercambio (virtual) de dos fotones. Por tanto, las reglas de selección indican que la variación del momentum angular del estado electrónico excitado, con respecto al estado inicial, debe ser preferiblemente  $\Delta l = 0, \pm 2$ . Segundo, la evaluación del factor banda-orbital en las expresiones (4.41) y (4.51) implica el cálculo de la integral,

$$\begin{aligned} \int e^{i\vec{q}_{||i}\cdot\vec{\rho}} \phi_s^{(e)*}(\vec{\rho}) \phi_t^{(h)*}(\vec{\rho}) d^2\rho &= \langle k_s, l_s | 1 - \frac{q_{||i}^2}{4} \hat{d}_0 | k_t, -l_t \rangle \\ &+ i \frac{q_{||i}}{2} \langle k_s, l_s | e^{-i\theta_i} \hat{d}_1 + e^{i\theta_i} \hat{d}_{-1} | k_t, -l_t \rangle \\ &- \frac{(q_{||i})^2}{8} \langle k_s, l_s | e^{-2i\theta_i} \hat{d}_2 + e^{2i\theta_i} \hat{d}_{-2} | k_t, -l_t \rangle. \end{aligned} \quad (5.2)$$

La expresión (5.2) implica en cada proceso de creación o aniquilación de un par electrón-hueco con momentum angular  $l$  la aparición del factor  $(q_{||i}\rho)^l$ . Considerando que la dimensión del punto calculado, en la dirección radial, está en el orden de los 100 nm y que la longitud de onda del láser es del orden de los 700 nm, encontramos, por ejemplo, que el factor  $(q_{||i}\rho)^l$  para  $l = 1$  (dipolo) tomará el valor máximo aproximado de 0,304. Para el caso de  $l = 2$  (cuadrupolo) obtenemos el valor 0,09. O sea, la integral (5.2) alcanzará su máximo valor cuando los pares involucrados en el proceso de dispersión tengan momentum angular total  $l_s + l_t = 0$ .

Comparando las figuras 5.5(b) y 5.5(c) podemos notar que las intensidades Raman correspondientes a los estados excitados de espín que involucran un cambio en el valor de  $S_z$  con respecto al estado inicial, son un orden de magnitud menores que las intensidades obtenidas para las excitaciones de espín con  $\Delta s_z = 0$ . Los picos Raman en el sector  $\Delta l = 0, \Delta s_z = 1$  son obtenidos como consecuencia de la mezcla de las bandas, considerada en el cálculo de los estados de HF del hueco. Supongamos que creamos (virtualmente) un electrón y un hueco, cuya componente mayoritaria en la función de onda corresponde, por ejemplo, al valor de  $m_j = 3/2$ . Es preciso entonces, para alcanzar un estado excitado  $|f\rangle$  que involucre un cambio en la proyección del espín, aniquilar el mismo hueco y un electrón con proyección de espín opuesta. Esto implica, según la tabla 4.2 que la amplitud de este proceso vendrá dada por una componente minoritaria,  $\chi_{m'_j}$ , de la función de onda del hueco lo cual significa, a su vez, que la magnitud de  $|A_{fi}|^2$  será proporcional con  $|\chi_{m'_j}|^2$ . Por tanto, las excitaciones monopolares de espín en el sector con  $\Delta s_z = 0$  dan lugar a los picos Raman dominantes en los espectros calculados en polarización ortogonal.

Los espectros Raman calculados en el sector dipolar, los cuales no hemos incluido en la figura 5.5, revelan picos de intensidad dos órdenes menor con respecto a las contribuciones obtenidas en los sectores monopolares y cuadrupolares [71].

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

El comportamiento de los valores de  $|A_{fi}|^2$ , correspondientes a los estados monopolares de carga CDE, SPE(C)<sub>3</sub> y SPE(C)<sub>5</sub>, calculados en polarización paralela para diferentes valores de la energía del láser incidente es mostrado en la figura 5.6. El valor de  $h\nu_i$  es variado en

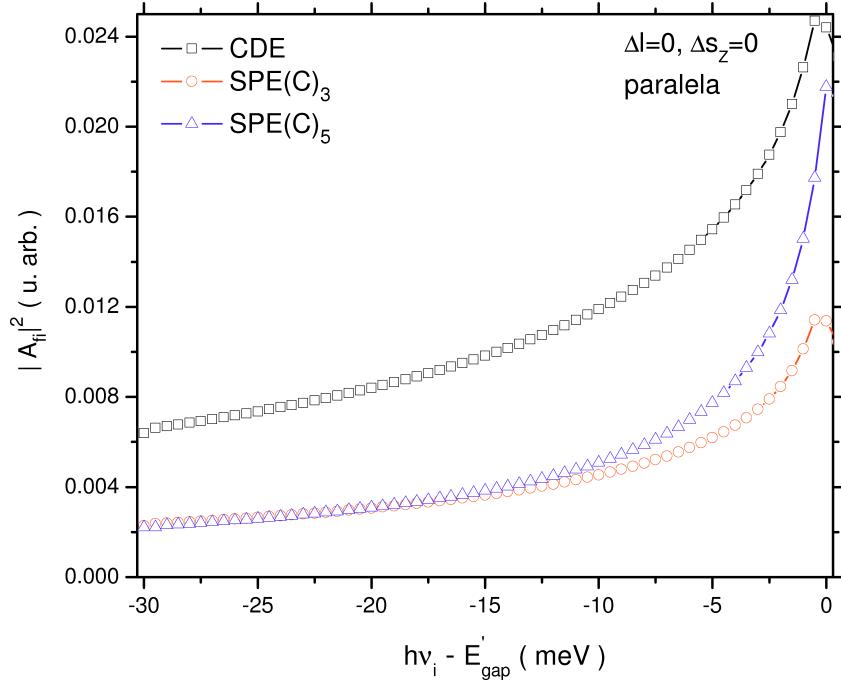


Figura 5.6: Comportamiento de  $|A_{fi}|^2$  para las excitaciones electrónicas monopolares CDE, SPE(C)<sub>3</sub> y SPE(C)<sub>5</sub> con energías de excitación  $\Delta E_f = 21.99, 17.8$  y  $18.4$  meV, respectivamente, como función de  $h\nu_i$ .

el intervalo  $[E'_{\text{gap}} - 30 \text{ meV}, E'_{\text{gap}}]$  con un paso de 0.5 meV. El campo magnético externo es  $B = 0$  T. Nótese el comportamiento monótono de las intensidades Raman en la medida que el láser incidente se aproxima al valor de  $E'_{\text{gap}}$ . Desde el punto de vista experimental, este comportamiento constituye una ventaja importante para la identificación de los picos Raman individuales.

De acuerdo con la aproximación ORA, expuesta en la sección 4.5, en la medida en que la energía del láser incidente se aleja de la región de resonancia, los picos Raman correspondientes a los modos colectivos deben comenzar a dominar el espectro calculado o medido. Segundo este criterio, sería posible identificar las excitaciones colectivas y uniparticulares en un espectro Raman a partir de monitorear las intensidades de los diferentes picos al variar el valor de la energía de la luz incidente. Es interesante notar en la figura 5.6 como el pico Raman correspondiente al modo CDE se hace dominante con respecto a los uniparticulares cuando la energía de la radiación incidente se encuentra a solo 5 meV por debajo de la brecha energética de la estructura semiconductor. En este sentido podemos afirmar, para el caso de las excitaciones electrónicas monopolares, que la región donde  $h\nu_i \leq E'_{\text{gap}} - 5$  meV define el régimen bajo el cual las posiciones de los picos de intensidad Raman pueden ser descritas por una aproximación del tipo ORA [73].

## Correlación entre las intensidades de los picos Raman y la densidad de estados excitados

Es natural observar la existencia de picos Raman en regiones del espectro donde existen aglomeraciones de estados finales [50]. En la figura 5.7 mostramos los espectros Raman monopolares calculados en ambas polarizaciones en ausencia de campo magnético. El valor de la energía del

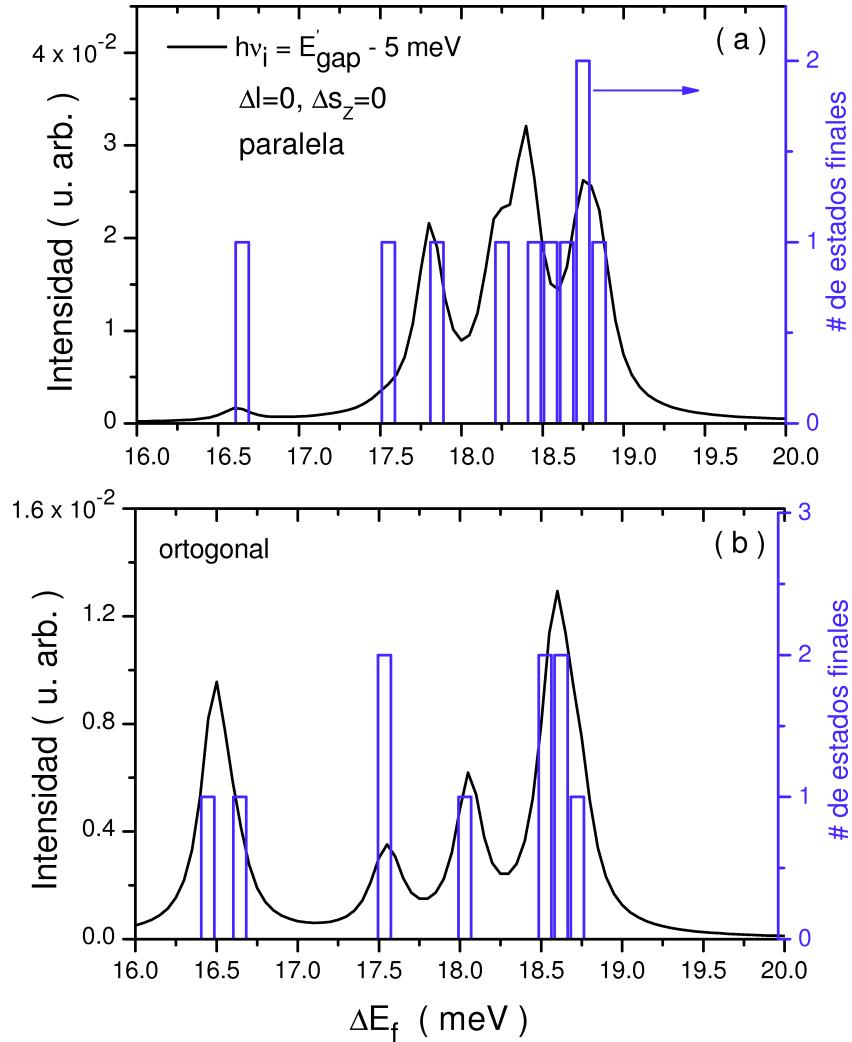


Figura 5.7: Espectros Raman monopolares calculados en polarización paralela y ortogonal. Comparación con la densidad de estados finales SPE<sub>s</sub>.

láser incidente es  $h\nu_i = E'_{\text{gap}} - 5 \text{ meV}$ . Ambos espectros son mostrados en el intervalo de energía correspondiente a las excitaciones SPEs. Las densidades de estados finales uniparticulares de carga y espín son representadas en las figuras 5.7(a) y 5.7(b) mediante histogramas construidos con un paso de 0.1 meV.

Las reglas de selección del efecto Raman electrónico, las cuales pueden ser deducidas a partir de la expresión (4.65) para el cálculo de la amplitud de transición Raman  $A_{fi}^{\text{ORA}}$  en régimen no resonante, plantean lo siguiente: los picos de intensidad Raman asociados a las excitaciones colectivas de carga (espín) van a ser observados si la luz dispersada es detectada en polarización

paralela (ortogonal). En la construcción de la figura 5.7 hemos usado las implicaciones de estas reglas para correlacionar los espectros Raman calculados en polarización paralela con la densidad de estados finales uniparticulares de carga y los espectros calculados en polarización orthogonal con la densidad de estados finales de espín.

En general los espectros mostrados en la figura 5.7 reproducen de forma detallada los perfiles de las densidades de estados finales de carga y espín. En las mediciones experimentales de los espectros Raman en puntos cuánticos cargados, los picos de intensidad que aparecen con magnitudes comparables en ambas polarizaciones son adjudicados a excitaciones electrónicas uniparticulares [54]. Sin embargo, sería más preciso afirmar, según lo mostrado en la figura 5.7, que los estados SPEs(C) aparecen fundamentalmente en los espectros Raman calculados o medidos en polarización paralela, mientras que los estados SPEs(S) aparecen fundamentalmente en los espectros calculados en polarización orthogonal. Las diferentes excitaciones uniparticulares de carga y espín en este intervalo se encuentran muy cercanas en energías y, por tanto, no es sencillo estudiar en un espectro Raman medido la aparición de los picos Raman mostrados en la figura 5.7 en polarización paralela u orthogonal.

### Rompimiento de las reglas de selección de la dispersión Raman electrónica en presencia de un campo magnético externo

Las reglas de selección de la polarización han sido usadas tradicionalmente como una herramienta para identificar la naturaleza (carga o espín) de las excitaciones electrónicas en puntos cuánticos cargados. Sin embargo, como mostraremos a continuación, estas reglas se rompen en presencia de un campo magnético externo.

Los espectros Raman asociados a las excitaciones monopolares, calculados en ambas polarizaciones para  $B = 0$  y  $B = 1$  T son mostrados en la figura 5.8. La energía del láser incidente se encuentra a 2.5 meV por debajo de la brecha energética de la estructura semiconductora. Los picos Raman asociados a las excitaciones SDE, CDE y SPEs han sido explícitamente señalados. En la figura 5.8(a) podemos observar que un pico en la intensidad Raman asociado al modo colectivo de espín es solo obtenido en polarización orthogonal. Una situación completamente opuesta es observada para el modo CDE para el cual obtenemos una intensidad distinta de cero en el espectro calculado en polarización paralela. Sin embargo, si consideramos la presencia de un campo magnético externo estas reglas de selección son parcialmente rotas. Para el caso de  $B = 1$  T, ilustrado en la figura 5.8(b), obtenemos valores no triviales de las intensidades Raman asociadas a los modos CDE y SDE en ambas polarizaciones aunque, la polarización paralela (ortogonal) permanece siendo la configuración favorable para la detección de los modos colectivos de carga (espín).

La razón de polarización  $r$  de un pico Raman asociado a una excitación colectiva o uniparticular de carga, es la magnitud definida por la fracción que tiene como numerador el valor de  $|A_{fi}|_{\perp}^2$  calculado en polarización orthogonal, la cual constituye la polarización no favorable para la detección de este modo, y como denominador el valor de  $|A_{fi}|_{\parallel}^2$  calculado en polarización paralela. Para el caso de las excitaciones de espín dicha fracción es invertida. El cálculo de las razones de polarización permite llevar a cabo un análisis cuantitativo de los efectos provocados por el campo magnético sobre las reglas de selección de la dispersión Raman electrónica. Para  $B = 0$ , las razones de polarización correspondientes a los picos Raman CDE y SDE mostrados en la figura 5.8(a) son  $r_{\text{CDE}}^{B=0 \text{ T}} = 3.6 \times 10^{-4}$  y  $r_{\text{SDE}}^{B=0 \text{ T}} = 2.0 \times 10^{-7}$  respectivamente. En presencia

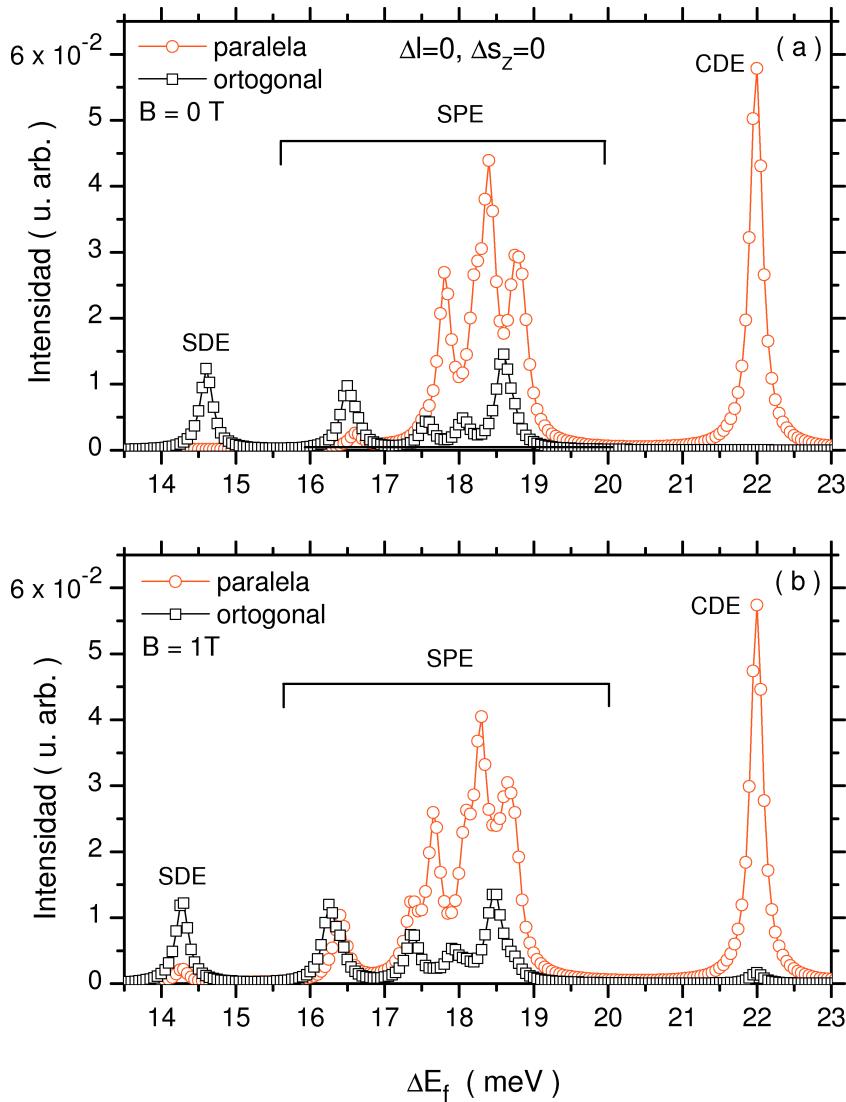


Figura 5.8: Espectros Raman monopolares calculados en polarización paralela y ortogonal para  $B = 0$  (a) y  $1$  T (b).

de un campo magnético  $B = 1$  T dichas magnitudes alcanzan los valores  $r_{\text{CDE}}^{B=1\text{ T}} = 2.8 \times 10^{-2}$  y  $r_{\text{SDE}}^{B=1\text{ T}} = 1.7 \times 10^{-1}$ , lo cual revela la manera en que el campo magnético perturba las reglas de selección. Un efecto más notable es observado para la intensidad Raman correspondiente al estado SDE.

Los picos asociados a las excitaciones SPEs monopolares en la figura 5.8, están distribuidos en el intervalo de valores entre 16 y 19 meV. En los casos de  $B = 0$  y  $1$  T, los estados SPEs(C) y SPEs(S) se encuentran muy cercanos en energía y el solapamiento de las intensidades Raman impide llevar a cabo un análisis cualitativo a simple vista similar al expuesto para los modos colectivos. Sin embargo, es posible calcular las razones de polarización  $r$  de cada pico Raman asociado a las excitaciones uniparticulares. Para  $B = 0$ , los valores de  $|A_{fi}|^2$  correspondientes a los estados SPEs(C) calculados en polarización ortogonal son como promedio tres órdenes de magnitud menores con respecto a los obtenidos en polarización paralela, dando lugar a un valor promedio de la razón de polarización  $\langle r_{\text{SPE(C)}}^{B=0} \rangle = 3.0 \times 10^{-3}$ . Esto indica que los picos Raman

monopolares correspondientes a los estados excitados SPEs(C) obedecen, en analogía con los modos colectivos de carga, las reglas de selección del efecto Raman en ausencia de campos magnéticos externos. Por otra parte, para  $B = 1$  T, las amplitudes Raman correspondientes a estos estados exhiben magnitudes comparables en ambas polarizaciones lo cual es reflejado en el valor promedio de la razón de polarización  $\langle r_{\text{SPE}(C)}^{B=1 \text{ T}} \rangle = 0.26$ . Llevando a cabo el mismo análisis para los picos Raman asociados a los estados SPEs(S) encontramos que el valor promedio de la razón de polarización transita desde  $\langle r_{\text{SPE}(S)}^{B=0} \rangle = 2. \times 10^{-4}$ , en ausencia de campo magnético, al valor  $\langle r_{\text{SPE}(S)}^{B=1 \text{ T}} \rangle = 1.1$ .

### Regla del salto de la intensidad Raman. Identificación de excitaciones de carga y espín

En la figura 5.9 mostramos el comportamiento de las intensidades Raman correspondientes a los modos colectivos monopolares SDE<sub>1</sub> y CDE en la medida en que la energía del láser incidente

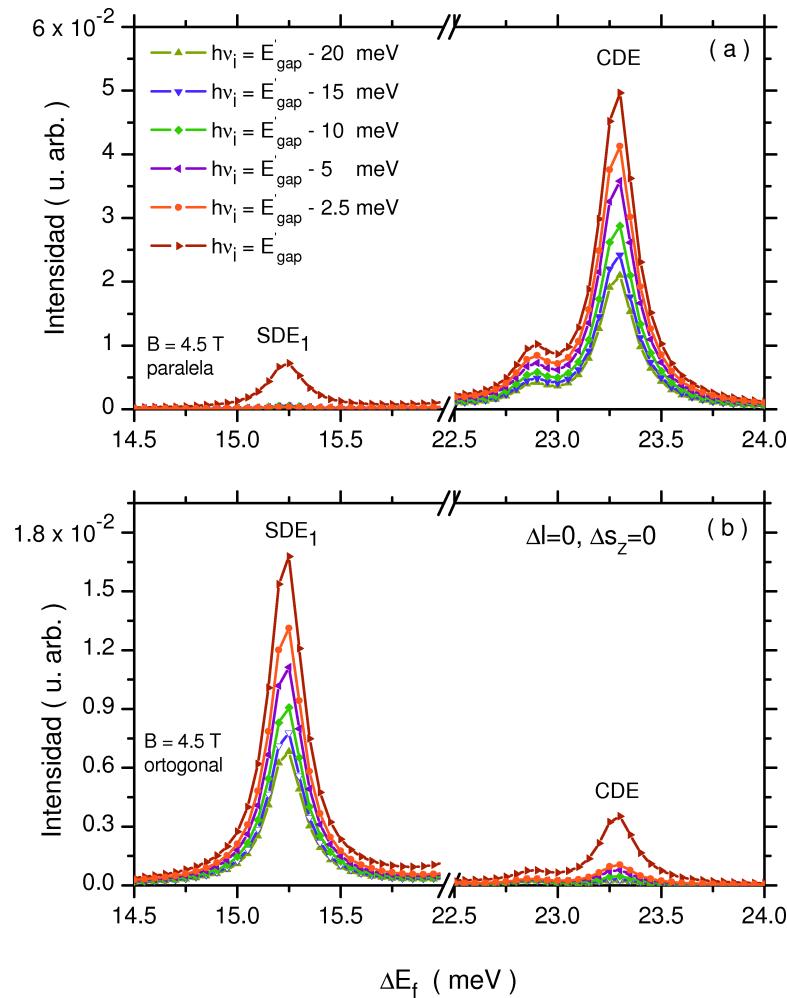


Figura 5.9: Comportamiento de los picos Raman colectivos para  $B = 4.5$  T en la medida en que  $h\nu_i$  se aproxima al valor de  $E'_\text{gap}$ .

se aproxima al valor de la brecha energética del punto cuántico. El valor del campo magnético

externo es  $B = 4.5$  T. El intervalo de valores en el eje  $x$  correspondiente a las excitaciones uniparticulares ha sido omitido por simplicidad en esta figura.

Los picos Raman monopolares calculados en polarización paralela son mostrados en la figura 5.9(a). En ella podemos observar como la intensidad asociada al modo colectivo de carga se incrementa monótonamente cuando la energía de la luz incidente es incrementada desde el valor  $h\nu_i = E'_{\text{gap}} - 20$  meV hasta el valor de  $E'_{\text{gap}}$ . Sin embargo, en esta misma polarización, las intensidades calculadas correspondientes al modo SDE<sub>1</sub> son prácticamente nulas en todo el intervalo de valores de  $h\nu_i$  excepto cuando  $h\nu_i = E'_{\text{gap}}$ , situación en la cual observamos un incremento abrupto de la intensidad Raman. En la figura 5.9(b) mostramos los picos asociados

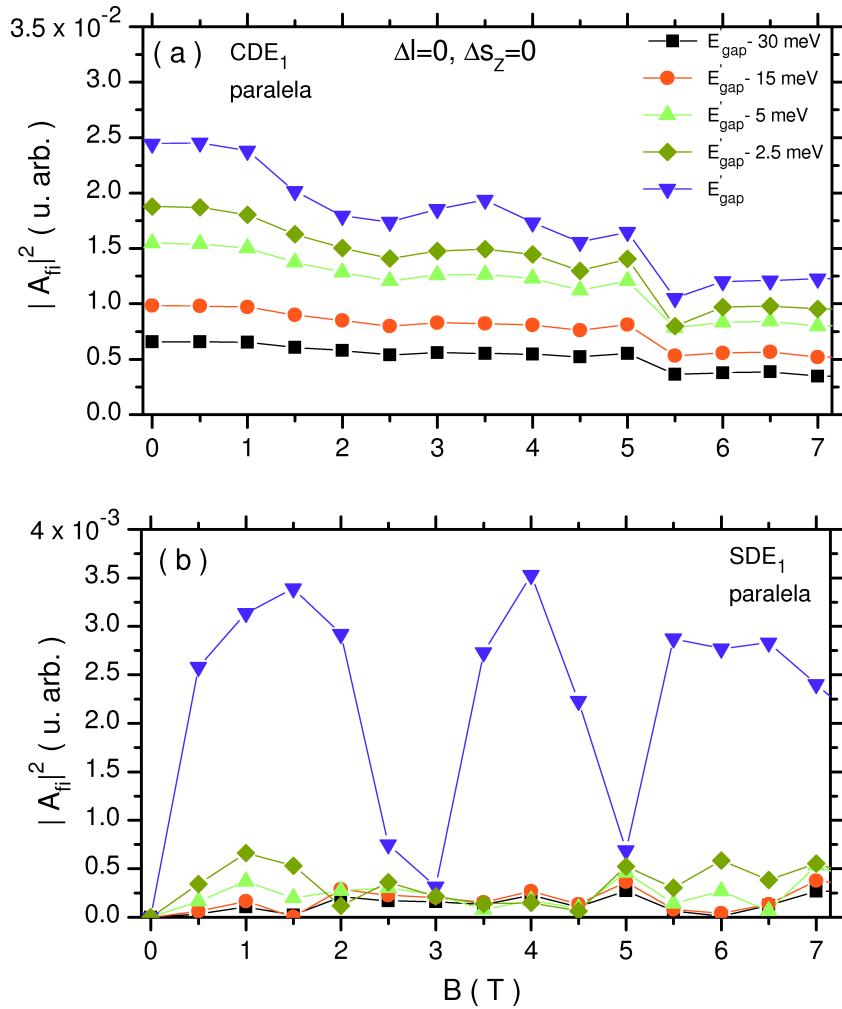


Figura 5.10: Valores calculados de  $|A_{fi}|^2$  correspondientes a los modos monopolares CDE y SDE<sub>1</sub> como función del campo magnético externo.

a los mismos modos analizados en la figura 5.9(a) calculados en polarización ortogonal. En este caso, como se puede observar, la intensidad Raman correspondiente al modo SDE<sub>1</sub> muestra un comportamiento monótono creciente como función del valor de  $h\nu_i$  mientras que el incremento abrupto en el valor de la intensidad cuando  $h\nu_i = E'_{\text{gap}}$ , es obtenido para el pico correspondiente al modo colectivo de carga.

El comportamiento de las intensidades Raman mostrado en la figura 5.9 lo hemos denominado

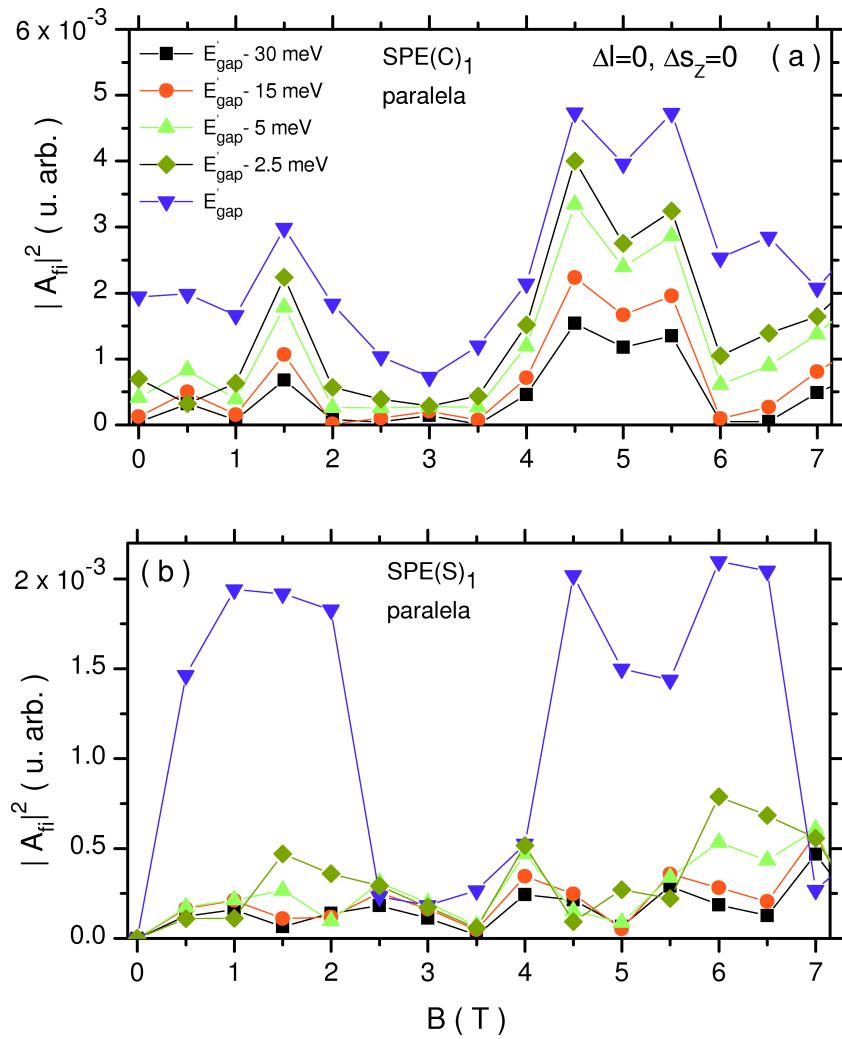


Figura 5.11: Valores calculados de  $|A_{fi}|^2$  correspondientes a los modos monopolares SPE(C)<sub>1</sub> y SPE(S)<sub>1</sub> como función del campo magnético externo.

regla del salto de la intensidad Raman. Nótese que esta regla involucra dos factores: el carácter (carga o espín) de la excitación electrónica y la polarización utilizada para el cálculo o la medición de la intensidad Raman asociada a dicha excitación.

Con el objetivo de examinar la validez de la regla del salto de la intensidad Raman para diferentes valores del campo magnético, mostramos en la figura 5.10 la variación de las intensidades Raman, calculadas en polarización paralela, correspondientes a los modos monopolares CDE y SDE<sub>1</sub> como función del campo magnético externo. Los resultados son mostrados para diferentes valores de la energía del láser incidente. Es posible observar en la figura 5.10(a) un comportamiento monótono creciente para las intensidades Raman como función de  $h\nu_i$  en todo el intervalo de valores de  $B$ . Por otra parte, el comportamiento de la intensidad Raman asociada al modo SDE<sub>1</sub>, mostrado en la figura 5.10(b), satisface la regla del salto de la intensidad Raman para cualquier valor del campo magnético excepto en los puntos donde  $B = 2.5, 3.0$  y  $5.0$  T. Es interesante destacar que las reglas de selección del efecto Raman para  $B = 0$ , deducidas para régimen no resonante, son obedecidas también cuando  $h\nu_i = E'_\text{gap}$ .

Un análisis similar puede ser llevado a cabo para las intensidades Raman asociadas a los estados uniparticulares monopolares  $SPE(C)_1$  y  $SPE(S)_1$ . Desde un punto de vista experimental, las intensidades de los picos Raman relacionados con estos estados, los cuales se encuentran relativamente aislados del resto (figura 5.2), pueden ser seguidas como función del campo magnético. Nótese en la figura 5.11(a) cómo las intensidades asociadas al estado en cuestión muestran un fuerte carácter fluctuante como función del campo magnético aplicado sobre el punto. También podemos observar el incremento monótono del valor de  $|A_{fi}|^2$  como función de la energía del láser incidente para cada valor de  $B$  mostrado. Por otra parte, el análisis de la figura 5.11(b) revela la existencia de dos intervalos de valores de  $B$  en los cuales la intensidad Raman correspondiente al estado  $SPE(S)_1$  exhibe un comportamiento de acuerdo con la regla del salto descrita anteriormente.

La regla del salto de la intensidad Raman tiene lugar cuando la energía del láser incidente es resonante con el valor de la brecha de la estructura semiconductor, región en la cual la amplitud de transición Raman no puede ser calculada mediante una expresión del tipo ORA (ec. 4.65). Para valores pequeños del campo magnético externo en el intervalo entre 0.5 y 2.0 T, es obedecida por los estados monopolares colectivos y uniparticulares. Para ciertos valores de  $B$ , observamos un colapso de dicha regla. La regla del salto de la intensidad Raman no es universal respecto a los valores de  $B$ . Sin embargo, podría constituir una herramienta muy útil para identificar las excitaciones electrónicas de carga y espín en puntos cuánticos.

### 5.2.2. Régimen de resonancia extrema

En esta sección mostramos espectros Raman calculados en la región donde la energía del láser incidente es variada en un intervalo de 30 meV por encima de la brecha energética del punto cuántico. Muchos de los trabajos experimentales citados en la introducción de esta tesis reportan espectros medidos en este régimen, denominado régimen de resonancia extrema. Algunas de las propiedades discutidas en la sección 5.2.1, correspondiente a los espectros calculados en régimen no resonante, son válidas también en esta región. Por ejemplo, los picos Raman monopolares y cuadrupolares constituyen los picos dominantes en los espectros calculados y la densidad de estados finales está fuertemente correlacionada con la posición de las principales líneas Raman. Sin embargo, los espectros Raman calculados en esta región de la energía del láser incidente exhiben otras características muy interesantes relacionadas con las resonancias con los estados intermedios involucrados en el cálculo de la amplitud de transición Raman.

#### Predominio de los picos Raman asociados a excitaciones electrónicas uniparticulares

En la figura 5.12 mostramos tres espectros monopolares calculados en polarización paralela para diferentes valores de la energía del láser incidente en ausencia de campo magnético. El pico Raman asociado al modo colectivo ha sido explícitamente señalado. Por otra parte, los picos situados en el intervalo entre 16 y 19 meV corresponden a las excitaciones monopolares uniparticulares. Nótese que para el modo colectivo de espín, cuya energía de excitación es 14.5 meV, obtenemos valores nulos de la intensidad Raman. Esto implica que las reglas de selección de la dispersión Raman electrónica, para  $B = 0$  T, se satisfacen también en régimen de resonancia extrema.

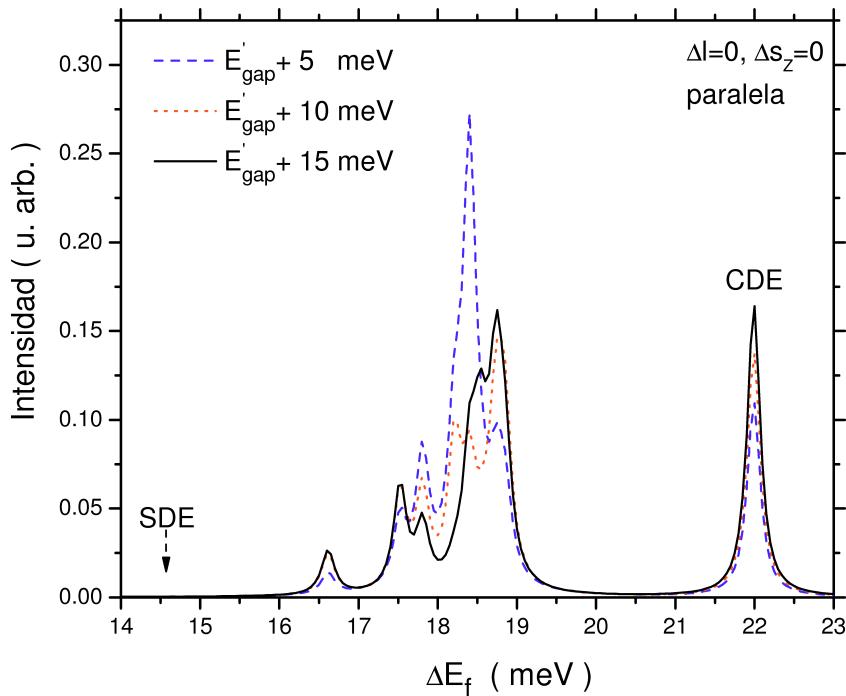


Figura 5.12: Espectros Raman en el sector  $\Delta l = 0, \Delta s_z = 0$  calculados en polarización paralela en la región de resonancia extrema para  $B = 0$ .

Un predominio de los picos Raman asociados a las excitaciones SPEs sobre el pico correspondiente al modo colectivo de carga es observado en la figura 5.12. Desde un punto de vista cualitativo, podemos pensar que el proceso de dispersión Raman en régimen resonante tiene lugar a través de un estado intermedio, aquel exactamente en resonancia, el cual decae (virtualmente) indiscriminadamente a un estado final, colectivo o uniparticular. Como mostramos en la sección 5.1 las excitaciones SPEs, en general, se encuentran agrupadas en forma compacta en regiones limitadas del espectro. Por tanto, los picos Raman calculados en esta zona del espectro, contienen las contribuciones de varios estados con energías de excitación muy cercanas dando lugar a picos Raman muy intensos.

Adicionalmente a esto, la figura 5.12 revela, a diferencia del caso de régimen no resonante, un comportamiento no monótono de las intensidades Raman con respecto a la energía del láser incidente  $h\nu_i$ . Por ejemplo, podemos notar que el valor máximo de la intensidad Raman en esta región del espectro es alcanzado cuando  $h\nu_i = E'_\text{gap} + 5 \text{ meV}$ . Nótese también en esta misma región, cómo las posiciones de los picos se desplazan según el valor de la energía de la luz incidente. Este comportamiento puede entenderse de la siguiente manera. Cuando la energía del láser incidente es variada por encima de la brecha energética, el valor de  $A_{fi}$  asociado a cada estado final estará determinado fundamentalmente por el estado intermedio en resonancia con  $h\nu_i$ .

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

Las resonancias con los estados intermedios pueden ser visualizadas de una forma mas clara si estudiamos el comportamiento de las intensidades Raman individuales como función de la energía del láser incidente. Con este propósito llevamos a cabo cálculos de los valores de  $|A_{fi}|^2$

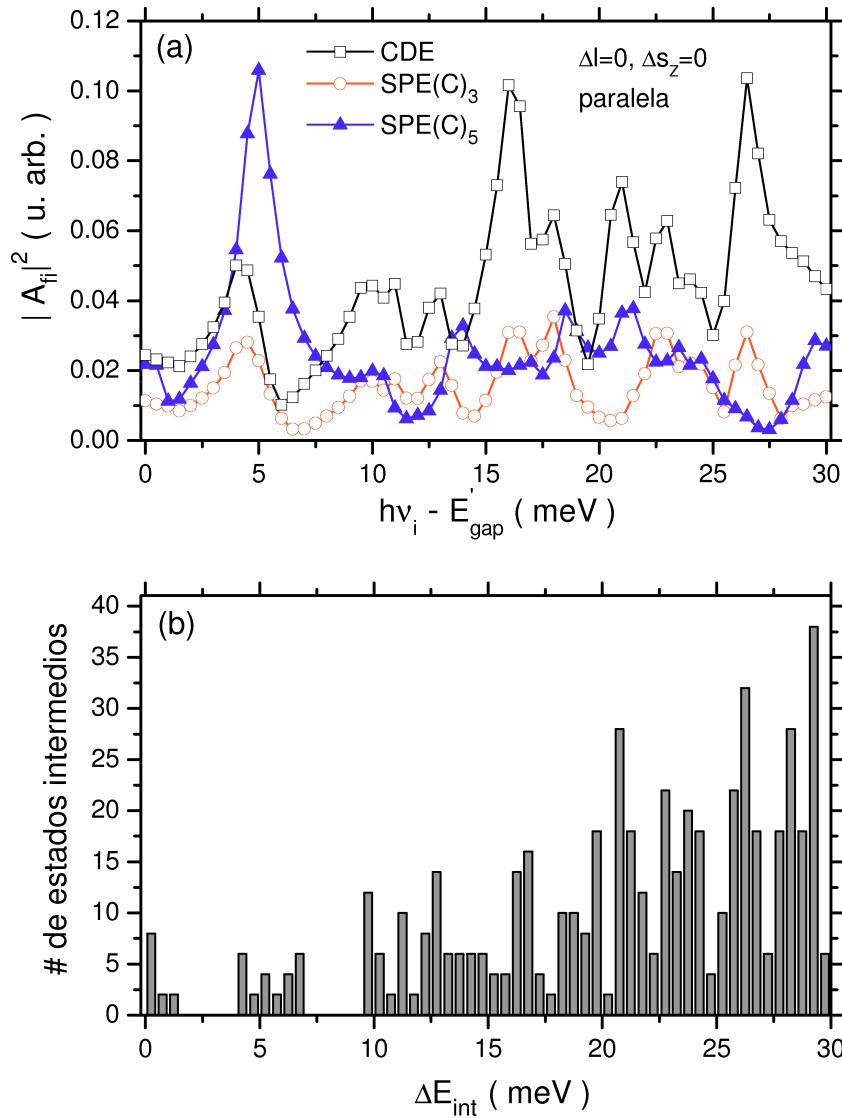


Figura 5.13: (a) Comportamiento de  $|A_{fi}|^2$  para las mismas excitaciones electrónicas mostradas en la figura 5.6 como función de  $h\nu_i$ , (b) histograma de estados intermedios.

correspondientes a los estados monopolares CDE, SPE(C)<sub>3</sub> y SPE(C)<sub>5</sub> para los valores de  $h\nu_i$  contenidos en el intervalo entre  $E'_{gap}$  y  $E'_{gap} + 30$  meV con un paso de 0.5 meV. Los resultados calculados en polarización paralela en ausencia de campo magnético son mostrados en la figura 5.13(a). Si comparamos dichos resultados con los mostrados en la figura 5.6 para las intensidades Raman asociadas a estos mismos estados excitados en régimen no resonante, podemos notar que el comportamiento de las intensidades Raman dentro del régimen de resonancia extrema es mucho más complicado, lo cual ha sido observado experimentalmente. Las intensidades Raman

en esta región fluctúan fuertemente producto de las resonancias con los estados intermedios. Este comportamiento dificulta en un experimento real la identificación y seguimiento de picos Raman individuales.

Por otra parte, en la figura 5.13(b) mostramos un histograma de estados intermedios construido con un paso de 0.5 meV en el intervalo entre  $E'_{\text{gap}}$  y  $E'_{\text{gap}} + 30$  meV. Nuestra idea en este caso es ilustrar que el seguimiento de las intensidades Raman de picos individuales como función de  $h\nu_i$  permite obtener información acerca de la densidad de niveles de energía de los estados intermedios, fundamentalmente en la región de valores de  $h\nu_i$  ligeramente por encima de la brecha energética. Nótese, en general, que cada incremento en el número de estados intermedios en la figura 5.13(b) se refleja en un incremento también de las intensidades Raman monitoreadas en la figura 5.13(a).

### Efectos de interferencia en la amplitud de transición Raman

Los efectos de interferencia en la amplitud de transición Raman pueden ser evaluados mediante el cálculo de las contribuciones individuales de cada estado intermedio involucrado en la expresión para  $A_{fi}$ . El postulado es que el razonamiento cualitativo llevado a cabo para la

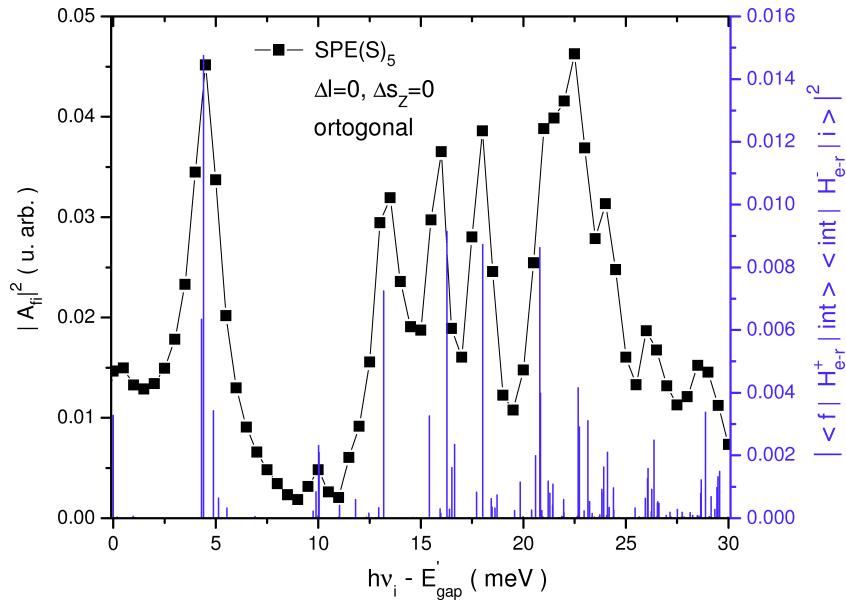


Figura 5.14: Valores de  $|A_{fi}|^2$  calculados en polarización ortogonal correspondientes al estado SPE(S)<sub>5</sub> con energía de excitación  $\Delta E_f = 18$  meV y la contribución individual de los estados intermedios a la suma (4.33).  $B = 0$ .

interpretación de los resultados mostrados en la sección 5.2.2 es correcto: solo aquellos estados intermedios cuyos valores de energías se encuentran muy cercanos al valor de  $h\nu_i$  contribuyen al valor de la amplitud de transición Raman. Con el objetivo de verificar dicha afirmación, llevamos a cabo varios cálculos de  $A_{fi}$  incluyendo en la suma de estados intermedios sólo aquellos estados comprendidos en la ventana energética ( $h\nu_i - \delta E, h\nu_i + \delta E$ ). En el análisis de estos resultados no se observaron cambios cualitativos entre los espectros calculados con  $\delta E = 10$  meV y con  $\delta E = 2$  meV.

En la figura 5.14 mostramos los valores calculados de  $|A_{fi}|^2$  correspondientes al estado excitado SPE(S)<sub>5</sub> para diferentes valores de  $h\nu_i$  en el intervalo entre  $E'_{\text{gap}}$  y  $E'_{\text{gap}} + 30$  meV. Dichos cálculos fueron llevados a cabo en polarización ortogonal y en ausencia de campo magnético. Con el objetivo de evaluar los efectos de interferencia en el cálculo de  $A_{fi}$  hemos añadido mediante líneas verticales (azules) las contribuciones individuales de cada estado intermedio involucrado en la ecuación (4.33). Es posible apreciar en esta figura que los picos en los valores de  $|A_{fi}|^2$  están prácticamente determinados por el valor de  $|\langle f | \hat{H}_{e-r}^\dagger(\vec{q}_f) | \text{int} \rangle \langle \text{int} | \hat{H}_{e-r}^-(\vec{q}_i) | i \rangle|^2$  para el estado  $|\text{int}\rangle$  en resonancia. O sea, no se observan efectos considerables de cooperación o cancelación lo cual indica que los efectos de interferencia en el cálculo de la amplitud de transición Raman son débiles bajo condiciones de excitación resonante.

### 5.2.3. Espectros Raman en régimen resonante en la región donde la energía del láser incidente está notablemente por encima de la brecha energética de la estructura semiconductor

Como hemos mostrado en la sección 5.2.2, los espectros Raman calculados en régimen de resonancia extrema revelan fuertes picos de intensidad en el espectro de la luz dispersada correspondientes a excitaciones uniparticulares. Para valores más grandes de la energía del láser incidente, típicamente en el intervalo de 40 – 50 meV por encima de la brecha energética, se han observado tres efectos fundamentales: i) disminución de los valores de la intensidad Raman medidos con respecto a los obtenidos en régimen de resonancia extrema, ii) un fuerte decremento en la intensidad Raman asociada a los estados SPEs en comparación con los picos correspondientes a los modos colectivos, iii) una amplificación resonante de las intensidades Raman asociadas a las excitaciones colectivas para valores particulares de la energía del láser incidente [52, 54]. Por otra parte, las posiciones de las excitaciones colectivas de los puntos estudiados en la Ref. [54] fueron calculadas mediante una aproximación tipo ORA por los autores en la Ref. [66]. Sin embargo, las contribuciones de los estados colectivos a un espectro Raman en un punto cuántico cargado pueden ser dominantes en un régimen muy diferente con respecto a aquel en el cual una aproximación como la ORA es válida. En la región donde  $h\nu_i \geq E'_{\text{gap}} + 40$  meV existen numerosos estados intermedios. Por tanto, en un análisis de los espectros Raman en esta región los efectos de las resonancias con los estados intermedios no pueden ser ignorados.

Nuestra idea es que una descripción teórica mas completa de los espectros Raman medidos en esta región debe incorporar una dependencia del parámetro  $\Gamma_{\text{int}}$ , asociados a los tiempos de vida de los estados intermedios, con respecto a la energía de excitación de cada estado  $\Delta E_{\text{int}}$ . Como mencionamos al inicio de la sección 5.2, el valor de  $\Gamma_{\text{int}}$  debe experimentar un incremento abrupto cuando  $\Delta E_{\text{int}} \geq \hbar\omega_{LO}$  como consecuencia de la apertura del canal de emisión espontánea de fonones LO [111]. Como resultado de esto, las contribuciones de estos estados intermedios al valor de  $A_{fi}$  perderán su carácter resonante incluso cuando sus energías se encuentren muy cerca del valor  $h\nu_i$ . Esto implica, en primer lugar, una disminución de los valores de las intensidades Raman y, en segundo lugar, un comportamiento suave de dichas intensidades como función de la energía de la luz incidente en esta región. Por otra parte, un ligero incremento de la intensidad de un pico Raman para un valor particular de la energía del láser incidente en esta región, no está dado solamente por valores significativos de  $|\langle f | \hat{H}_{e-r}^\dagger | \text{int} \rangle \langle \text{int} | \hat{H}_{e-r}^- | i \rangle|^2$  sino también por valores relativamente pequeños del parámetro  $\Gamma_{\text{int}}$ . Puede existir un conjunto de

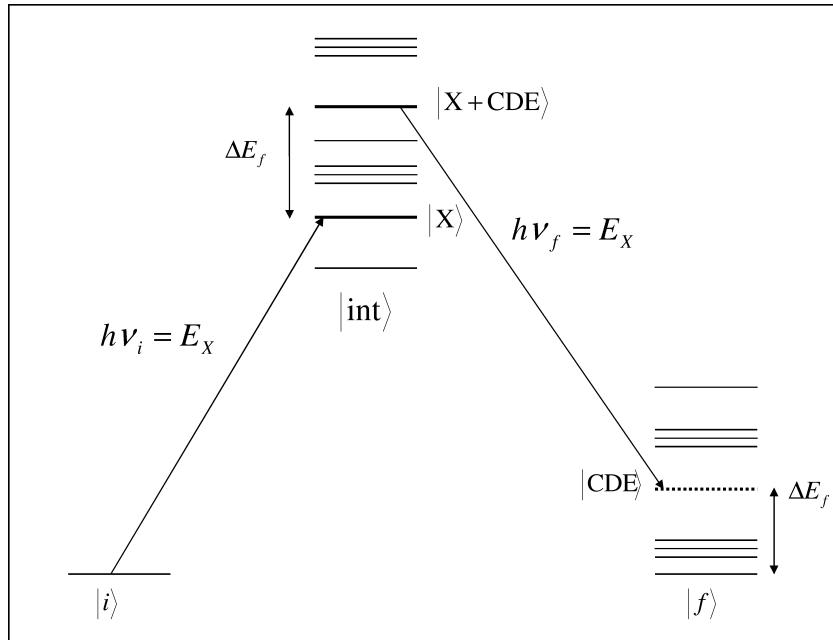


Figura 5.15: Representación esquemática de las resonancias de entrada y salida en el efecto Raman.

estados intermedios caracterizados por valores de  $\Gamma_{\text{int}}$  relativamente pequeños con respecto al de sus estados vecinos lo cual se reflejaría en un incremento de las intensidades Raman cuando el valor de  $h\nu_i$  es resonante con dichos estados.

En la Ref. [47] Danan y colaboradores estudiaron experimentalmente el comportamiento de los picos Raman asociados a las excitaciones electrónicas intersubbandas colectivas de carga y espín en pozos cuánticos del tipo GaAs/Ga<sub>1-x</sub>Al<sub>x</sub>As, como función de la energía del láser incidente en régimen resonante. Como resultado observaron en el perfil de amplificación resonante de las intensidades Raman asociadas a los modos CDE y SDE la presencia de picos distintivos cuando las energías de los fotones incidentes (resonancias de entrada) o dispersados (resonancias de salida) coincidían con las líneas del excitón medidas en un experimento de fotoluminiscencia de excitación (PLE). Dichas observaciones experimentales motiva la interrogante sobre la existencia de estados intermedios del tipo “X + modo colectivo”, o sea, estados intermedios construidos mediante la creación de un excitón encima de un estado final colectivo o viceversa.

Una interpretación más clara de las denominadas resonancias de entrada (*incoming*) y salida (*outgoing*) es brindada con ayuda de la figura 5.15. Supongamos que estamos construyendo el perfil de amplificación resonante de la intensidad Raman asociada al estado final colectivo de carga  $|f\rangle$  con energía de excitación  $\Delta E_f$ , representado en la figura mediante una línea discontinua. Si el producto  $\langle f|\hat{H}_{e-r}^\dagger|X\rangle\langle X|\hat{H}_{e-r}|i\rangle$  no es pequeño, detectaremos un aumento en la intensidad Raman asociada al estado CDE cuando  $h\nu_i = E_X$  lo cual, según la Ref. [47], constituye una resonancia de entrada. La existencia de la correspondiente resonancia de salida estaría dada solamente por la presencia de un estado intermedio del tipo “X + CDE” con energía  $E_X + \Delta E_f$  y caracterizado por un valor relativamente pequeño del parámetro  $\Gamma_{\text{int}}$ . Consecuentemente con lo anterior observaríamos un pico en la intensidad Raman asociada al estado CDE cuando la energía del fotón dispersado  $h\nu_f = E_X$ .

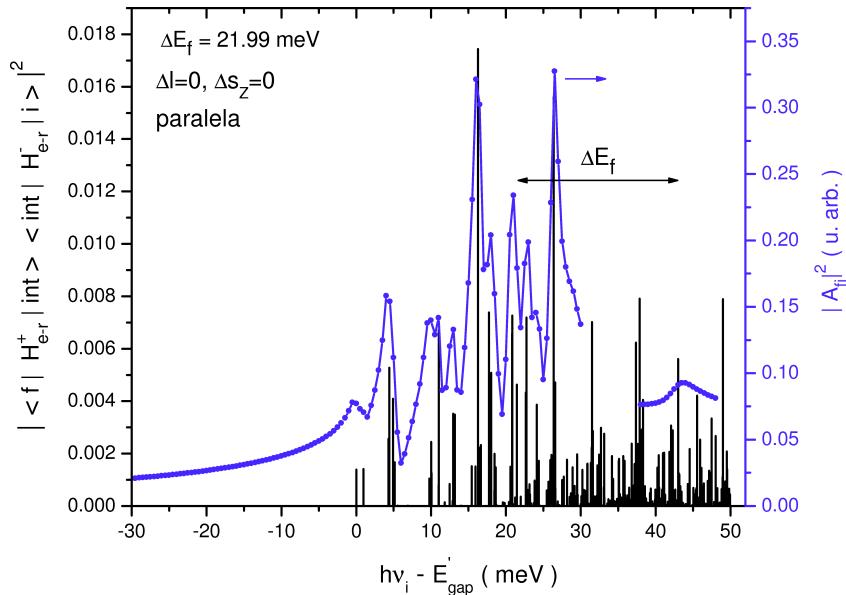


Figura 5.16: Intensidad del pico Raman asociado al modo colectivo de carga monopolar CDE como función de  $h\nu_i$ .  $B = 0$ .

Los estados intermedios  $|int\rangle$  involucrados en nuestros cálculos son construidos como una combinación lineal de pares e-h. Ciertamente, los estados intermedios del tipo “X + excitación colectiva” no son accesibles mediante una aproximación como la pp-TDA. La obtención de estos estados así como el cálculo de los tiempos de vida asociados a los mismos debido a la interacción con fonones constituyen los objetivos fundamentales de un trabajo que esta siendo llevado a cabo en el presente [112]. No obstante, es posible modelar cualitativamente el razonamiento ilustrado fijando a mano los valores de  $\Gamma_{int}$ .

La figura 5.16 muestra el comportamiento de la intensidad Raman asociada al estado monopolar CDE como función de la energía del láser incidente en el intervalo de valores para  $h\nu_i$  entre  $E'_\text{gap} - 30$  meV y  $E'_\text{gap} + 50$  meV. Los valores mostrados están calculados en polarización paralela y en ausencia de campo magnético externo. Los valores máximos de la intensidad Raman son alcanzados en la región de resonancia extrema. Para el cálculo de  $|A_{fi}|^2$  en la región donde  $h\nu_i \simeq E'_\text{gap} + (40 - 50)$  meV le hemos asignado al estado intermedio con energía de excitación  $\Delta E_{int} = E_x + \Delta E_f$  un valor de  $\Gamma_{int} = 2$  meV, el cual es 5 veces menor con respecto al de sus estados vecinos. En este caso  $E_x$  corresponde al máximo de absorción obtenido para  $h\nu_i = E'_\text{gap} + 20$  meV y  $\Delta E_f = 22$  meV es la energía de excitación del estado colectivo de carga en el sector monopolar. Nótese la amplificación resonante de la intensidad Raman cuando  $h\nu_i = E'_\text{gap} + 42$  meV. Finalmente en la figura 5.17 mostramos un espectro Raman monopolar calculado en polarización paralela para un valor de  $h\nu_i$  en resonancia con el estado intermedio modelado del tipo “X + CDE”. Como resultado podemos observar, en concordancia con los resultados experimentales, un dominio de las intensidad Raman asociada al modo colectivo sobre las intensidades obtenidas en la región del espectro correspondiente a los estados SPEs.

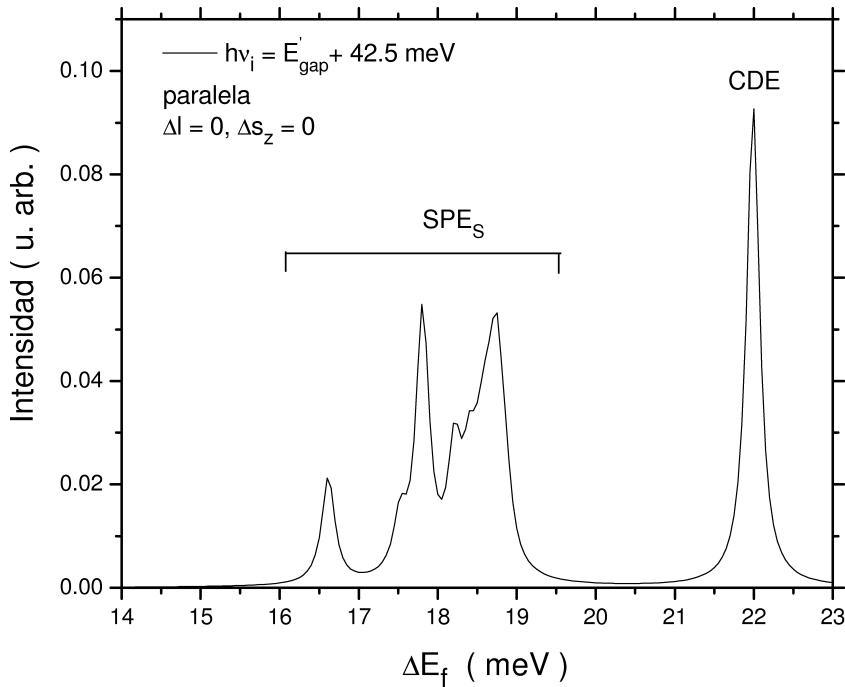


Figura 5.17: Espectro Raman monopolar calculado en polarización paralela.  $B = 0$ .

### 5.3. Espectros Raman calculados para puntos cuánticos neutros

En la presente sección mostramos espectros Raman calculados para un punto cuántico neutro poblado con  $N = 42$  pares electrón-hueco (e-h). Con ello pretendemos, básicamente, mostrar las diferencias existentes entre estos resultados con respecto a los espectros mostrados en la sección 5.2 correspondientes a un punto cuántico cargado. No existen en la literatura científica trabajos que aborden experimentalmente el problema de la dispersión Raman de luz en puntos cuánticos neutros. Sin embargo, esto no implica la imposibilidad de llevar cabo mediciones experimentales de la sección eficaz Raman asociada a las excitaciones electrónicas en puntos cuánticos excitónicos. Aunque el tiempo de vida de los excitones agrega cierto grado de dificultad para acometer una tarea como esta, pensamos que ello no representa un reto real tomando en cuenta los experimentos que se llevan a cabo en la actualidad. Con relativa independencia de los parámetros del punto, los sistemas multiexcitonicos alcanzan, típicamente, valores de la densidad en el orden de  $5 \times 10^{11}$  pares/cm<sup>2</sup>, lo cual es logrado con la ayuda de un láser estacionario de mediana potencia el cual produce, en media, una población estable de pares e-h en el punto. Por otro lado la presencia adicional de otro láser es requerida, el cual aportará los fotones que serán dispersados por los  $N$  pares confinados en el punto.

Las energías y funciones de onda correspondientes a las excitaciones electrónicas en estos sistemas son obtenidas en el marco de la RPA, cuyas expresiones fueron deducidas en la sección 3.1.4. Sin embargo, la dinámica de este problema es mucho más compleja. Por ejemplo, los estados excitados colectivos dipolares, los cuales en el caso de sistemas cargados son interpretados estructuralmente como oscilaciones del centro de masa de los  $N_e$  electrones [7], en un punto cuántico neutro corresponden a estados excitados análogos a las resonancias dipolares gigantes

(GDR), usualmente estudiadas en núcleos atómicos [113]. En las referencias [79, 80] demostramos para puntos cuánticos neutros que la regla de suma pesada por energía asociada a la fotoabsorción en el infrarrojo lejano es completamente saturada por estados excitados colectivos del tipo GDR en los cuales la nube electrónica oscila resonantemente en contrafase respecto a los huecos.

Los cálculos que presentaremos a continuación fueron llevados a cabo para un punto cuántico con forma de disco cuya dimensión en la dirección de crecimiento es  $L = 12$  nm. El confinamiento lateral de los portadores es modelado por un potencial parabólico cuya energía característica es  $\hbar\omega_0 = 3$  meV. Los valores usados para la masa efectiva de los electrones  $m_e/m_0 = 0.067$ , la masa efectiva de los huecos  $m_h/m_0 = 0.11$  y la constante dieléctrica relativa  $\kappa = 12.5$  corresponden al GaAs.

Los espectros Raman correspondientes al sector monopolar de excitaciones electrónicas para  $B = 1$  T y 2 T son mostrados en la figura 5.18. Estos espectros fueron calculados en polarización

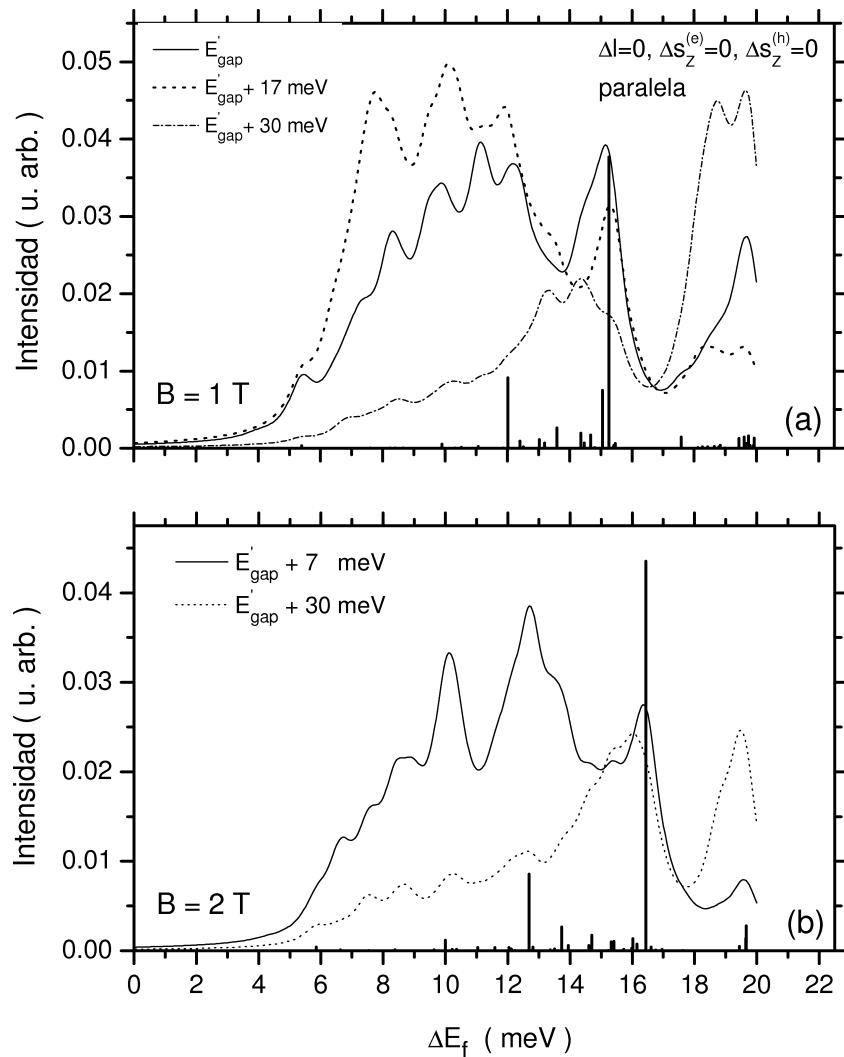


Figura 5.18: Espectros Raman calculados en polarización paralela bajo condiciones de incidencia normal en la región de resonancia extrema. La contribución a la regla de suma ha sido superpuesta en la figura mediante barras verticales.

paralela en una configuración de retrodispersión asumiendo que la luz incide normalmente sobre el plano del punto ( $\phi_i = \phi_f = 0$ ). La contribución de cada estado excitado en este sector a la regla de suma (3.80), ha sido incluida en la figura mediante líneas verticales lo cual nos permite identificar a su vez la posición de los estados colectivos en cada sector. Los espectros calculados son mostrados para diferentes valores de la energía del láser incidente en la región donde  $E'_{\text{gap}} \leq h\nu_i \leq E'_{\text{gap}} + 30$ . En términos generales podemos decir que los espectros Raman monopolares ilustrados en la figura 5.18 revelan una estructura mucho más compleja con respecto a los espectros obtenidos para puntos cuánticos cargados. Para ambos valores de  $B$  observamos un predominio de las intensidades Raman asociadas a los estados SPEs sobre las intensidades correspondientes a los modos colectivos.

En la figura 5.19 mostramos los espectros Raman cuadrupolares calculados en polarización paralela asumiendo para el ángulo de incidencia de la luz sobre el punto el valor  $\phi_i = \phi_f = \pi/6$ . En esta figura podemos observar una simetría entre los espectros Raman calculados en el

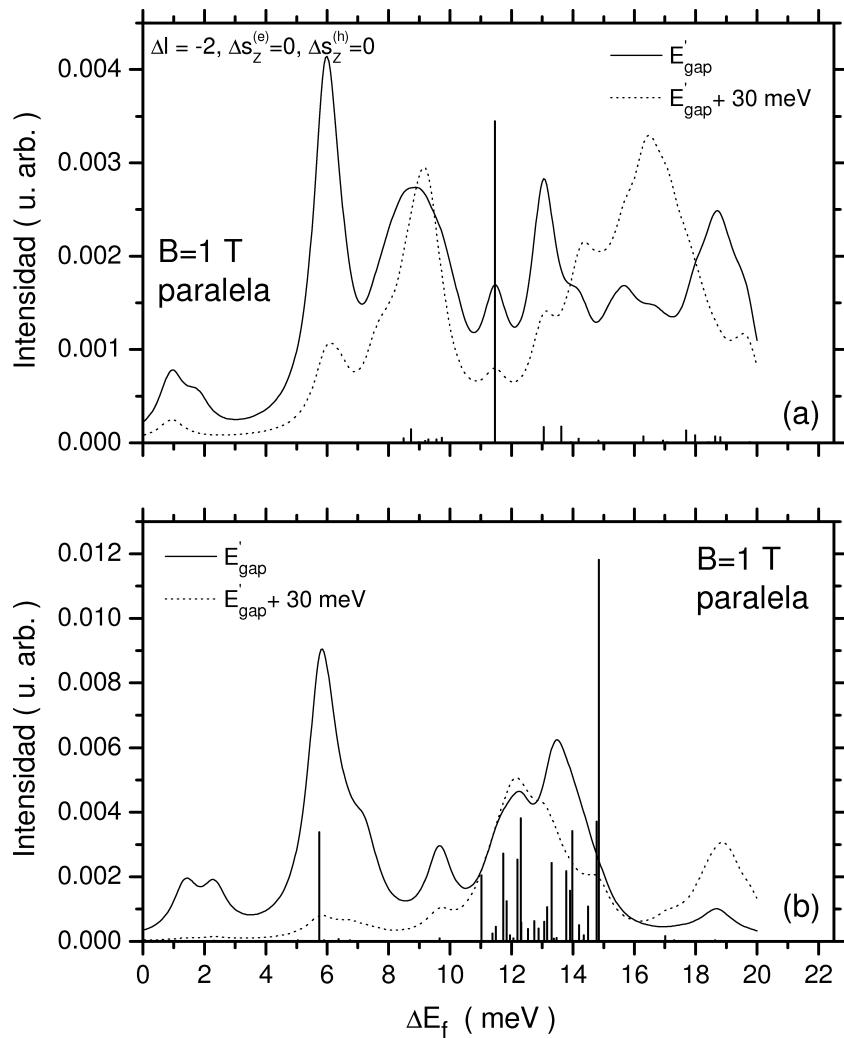


Figura 5.19: Espectros Raman calculados en los sectores  $\Delta l = -2$  (a) y (b)  $\Delta l = +2$ .  $\phi_i = \phi_f = \pi/6$ .

sector de excitaciones con  $\Delta l = -2$  y  $\Delta l = 2$ . La mayoría de los picos Raman que se observan

en la figura 5.19(a) corresponden a excitaciones SPEs. Sin embargo, los picos Raman más intensos observados en el sector de excitaciones con  $\Delta l = 2$  están concentrados en la región del espectro correspondiente a las excitaciones colectivas. El resto de los multipolos muestran un comportamiento similar.

## 5.4. Conclusiones parciales

En este capítulo nos hemos concentrado en el análisis de los resultados obtenidos a partir de los formalismos implementados y descritos detalladamente en los capítulos 2, 3 y 4. Los resultados mostrados corresponden a un punto cuántico cargado con 42 electrones. Como ancho del pozo en la dirección de crecimiento tomamos el valor de  $L = 25$  nm y para el confinamiento lateral tomamos como energía característica el valor  $\hbar\omega_0 = 12$  meV. El campo magnético externo fue variado en el intervalo entre 0 y 7 T.

Mediante la Aproximación de Fase Aleatoria (RPA), obtuvimos el espectro de estados excitados del punto cuántico y estudiamos su evolución para diferentes valores del campo magnético externo. Los modos colectivos monopolares y dipolares de carga concentran toda la fuerza de la transición en el intervalo de  $B$  estudiado. Además encontramos que la RPA reproduce en perfecta concordancia con el Teorema de Kohn, las posiciones de las energías de excitación del modo CDE dipolar para todos los valores del campo magnético. Por otra parte, las excitaciones de espín son obtenidas en las regiones de bajas energías de los espectros calculados y las contribuciones significativas a la regla de suma se encuentran distribuidas en más de un estado.

Obtuvimos las energías y funciones de onda multielectrónicas de los estados intermedios involucrados en el proceso de dispersión Raman mediante la aproximación partícula-partícula Tamm-Dancoff (pp-TDA).

Los espectros Raman correspondientes a las excitaciones electrónicas del punto fueron presentados en diferentes regiones de la energía del láser incidente para diferentes sectores del momentum angular y el espín. A partir del análisis de dichos espectros encontramos que los picos más intensos están asociados a las excitaciones electrónicas monopolares. Además, las intensidades Raman correspondientes a los estados excitados de espín que involucran un cambio en el valor de  $S_z$  con respecto al estado inicial, son un orden de magnitud menores que las intensidades obtenidas para las excitaciones de espín con  $\Delta s_z = 0$ . Por otro lado, las intensidades de los picos Raman calculados en el sector dipolar son dos órdenes de magnitud menores con respecto a las intensidades obtenidas en los sectores monopolar y cuadrupolar.

Se llevaron a cabo cálculos de las intensidades Raman de picos individuales correspondientes a las excitaciones monopolares CDE, SPE(C)<sub>3</sub> y SPE(C)<sub>5</sub> para diferentes valores de la energía de la radiación incidente por debajo de la brecha del punto y se obtuvo un comportamiento monótono creciente de dichas intensidades en la medida en que la energía del láser es aproximada al valor de la brecha energética del punto. Dichos cálculos permitieron también definir los límites para la aplicación de una aproximación de régimen no resonante como la ORA para el cálculo de la amplitud de transición Raman electrónica.

Las intensidades de los picos Raman monopolares calculados en polarización paralela y orthogonal fueron comparadas, respectivamente, con los histogramas construidos para las excitaciones del tipo SPEs de carga y espín obteniéndose que el perfil de la densidad de estados finales SPEs puede ser descrito en términos de la estructura del espectro Raman calculado o medido.

Mediante el cálculo de las razones de polarización de los picos Raman a  $B = 0$  y 1 T demostramos el rompimiento de las reglas de selección del efecto Raman electrónico en presencia de un campo magnético externo. Por primera vez, se muestra que las excitaciones SPEs en ausencia de un campo magnético satisfacen, al igual que los modos colectivos, dichas reglas de selección. Los cálculos realizados predicen un rompimiento abrupto de las reglas de selección de la dispersión Raman electrónica, para  $B \neq 0$  T, cuando la energía del láser incidente es resonante con la brecha energética del punto. Este fenómeno, denominado regla del salto de la intensidad Raman, involucra dos factores: el carácter (carga o espín) de la excitación electrónica y la polarización utilizada para el cálculo o la medición de la intensidad Raman asociada a dicha excitación.

En la región de resonancia extrema obtuvimos fuertes picos de la intensidad Raman asociados a las excitaciones SPEs. El comportamiento de las intensidades Raman en esta región, a diferencia de lo observado en régimen no resonante y como consecuencia de las resonancias con los estados intermedios, está caracterizado por un fuerte carácter fluctuante. Bajo condiciones de excitación resonante la intensidad Raman de un estado final particular puede ser amplificada. Sin embargo, la rápida variación de las intensidades como función de la energía del láser incidente, dificulta considerablemente el seguimiento de picos individuales.

Los efectos de interferencia en la amplitud de transición Raman fueron evaluados mediante el cálculo de las contribuciones individuales de cada estado intermedio involucrado en la expresión para  $A_{fi}$ . Como resultado encontramos que el valor de la amplitud de transición Raman queda prácticamente determinado por aquellos estados intermedios en resonancia con la radiación incidente.

Los espectros Raman calculados para un punto cuántico neutro poblado por 42 pares electrón-hueco bajo condiciones de excitación resonante muestran, en general, una estructura mucho más compleja que los espectros calculados para puntos cargados. Estos resultados muestran un predominio de las excitaciones uniparticulares.

# Capítulo 6

## CONCLUSIONES Y PERSPECTIVAS

En esta tesis hemos presentado e implementado un conjunto de métodos que nos han permitido modelar teóricamente el fenómeno de la dispersión Raman de luz en puntos cuánticos poblados con decenas de electrones o pares electrón-hueco en presencia de un campo magnético externo. Dicho esquema de cálculo permite, por primera vez, calcular la amplitud de transición Raman electrónica en términos de las energías y funciones de onda multielectrónicas de los estados del punto involucrados en el proceso de dispersión. A nuestra consideración, los resultados más importantes son los siguientes:

- La Aproximación de Fase Aleatoria (RPA), tradicionalmente usada en núcleos atómicos, fue implementada para el cálculo de las excitaciones electrónicas multipolares de un punto cuántico cargado con 42 electrones para diferentes valores del campo magnético externo en el intervalo entre 0 y 7 T. Mediante el cálculo de los elementos matriciales de los operadores multipolares identificamos en los espectros calculados las excitaciones colectivas de carga (CDE), de espín (SDE) y las excitaciones uniparticulares (SPEs) de forma independiente al cálculo de la amplitud Raman.
- Las energías y funciones de onda multielectrónicas de los estados intermedios involucrados en el proceso de dispersión Raman, fueron calculadas a través de la aproximación partícula-partícula Tamm-Danoff (pp-TDA).
- Los espectros Raman calculados en diferentes sectores del momentum angular y el espín revelan un predominio de los picos correspondientes a las excitaciones monopolares. Además las intensidades Raman correspondientes a los estados excitados de espín con  $\Delta s_z = \pm 1$ , son un orden de magnitud menores que las intensidades obtenidas para las excitaciones de espín con  $\Delta s_z = 0$ .
- Por primera vez, se predicen un conjunto de ventajas asociadas a la medición de los espectros Raman electrónicos en régimen no resonante. El comportamiento monótono creciente de las intensidades Raman en la medida en que la energía del láser incidente se aproxima a la brecha del punto facilitaría en un experimento la identificación y seguimiento de picos Raman individuales.
- Las reglas de selección del efecto Raman electrónico fueron derivadas a partir de la expresión obtenida para el cálculo de la amplitud de transición Raman en régimen no resonante (ORA).

- Las intensidades de los picos Raman monopolares calculados en polarización paralela y ortogonal muestran una fuerte correlación con las densidades de estados finales SPEs de carga y espín, respectivamente.
- Los efectos de un campo magnético externo en la dirección de crecimiento del punto sobre las reglas de selección Raman fueron estudiados tanto desde un punto de vista cualitativo como cuantitativo.
- Se predice teóricamente la regla del salto de la intensidad Raman y es propuesta como una herramienta de gran utilidad para identificar la naturaleza (carga o espín) de las excitaciones electrónicas en puntos cuánticos cargados.
- Los espectros Raman calculados en la región de resonancia extrema muestran un predominio de los picos Raman correspondientes a las excitaciones del tipo SPEs sobre las intensidades asociadas a los modos colectivos. Bajo condiciones de excitación resonante mostramos como la intensidad Raman de un estado final particular puede ser amplificada. Sin embargo, la rápida variación de las intensidades como función de la energía del láser incidente, dificulta considerablemente el seguimiento de picos individuales.
- Los valores calculados de la amplitud de transición Raman bajo condiciones de excitación resonante están determinados por los estados intermedios en resonancia con la radiación incidente.
- Por primera vez, se muestra que la fenomenología de los espectros Raman medidos en la región donde la energía del láser incidente se encuentra notablemente por encima de la brecha del punto cuántico puede ser descrita satisfactoriamente considerando los tiempos de vida de los estados intermedios involucrados en el proceso de dispersión.

En el futuro existen perspectivas inmediatas de continuar el trabajo. En los últimos años los cálculos de la sección Raman en puntos grandes son exclusivamente de nuestra autoría. Los experimentos habían prácticamente desaparecido de la literatura desde el año 1998, pero en época reciente se nota un resurgimiento relacionado con la medición del efecto Raman en puntos auto-ensamblados poblados por pocos electrones ( $2 \leq N_e \leq 7$ ) [44]. Dichos sistemas pueden ser tratados exactamente mediante algoritmos de diagonalización de matrices grandes como el método de Lanczos. En ninguno de los trabajos reportados aparece un cálculo de la sección eficaz Raman. Desde hace varios años mantenemos una colaboración con el Dr. D.J. Lockwood del Instituto de Ciencias Microestructurales, en Canadá, en el cual en estos momentos se están realizando mediciones. Se encuentra prácticamente listo ya un esquema de cálculo para evaluar la amplitud de transición Raman en términos de los estados multielectrónicos calculados mediante la diagonalización exacta del Hamiltoniano del punto.

Otra tarea inmediata es la caracterización de los anchos energéticos de los estados intermedios involucrados en el cálculo de amplitud de transición Raman. La emisión de fonones longitudinales-opticos (LO) es uno de los principales mecanismos de relajación no radiativo de los estados excitados en los materiales semiconductores. La modificación de los tiempos de vida de los estados intermedios por encima de determinada energía de umbral  $\hbar\omega_{LO}$  producto de la emisión espontánea de fonones LO puede constituir una teoría válida para la descripción de los espectros Raman medidos en puntos cuánticos en la región donde la energía del láser

incidente está muy por encima de la brecha de la estructura. Esta tarea se encuentra en una fase avanzada y es el tema de la tesis de maestría del Lic. Alexander Odriazola.

Desde el punto de vista computacional existe otra perspectiva de mucho interés. Para la obtención de los resultados presentados en esta tesis se han desarrollado un total de 7 códigos escritos en FORTRAN. Es posible en la actualidad encapsular códigos y generar unidades las cuales pueden ser invocadas desde nuevos programas según sus necesidades. FORTRAN 90 permite el desarrollo de estructuras denominadas *módulos*. Hemos comenzado a desarrollar una biblioteca de módulos que permitirá el uso y la generalización de una forma eficiente de los formalismos implementados en esta tesis para la caracterización de las propiedades electrónicas y ópticas de puntos cuánticos.

Finalmente, una extensión de nuestro trabajo y que pudiera tener impacto consiste en abordar sistemas moleculares de interés biológico que involucren decenas o centenares de electrones.



# Apéndice A

## ELEMENTO MATRICIAL DE LA INTERACCION DE COULOMB

Mostraremos el cálculo de los elementos matriciales del potencial de Coulomb entre estados de oscilador bidimensional

$$\phi_{k,l}(r, \theta) = C_{k|l|} r^{|l|} e^{-r^2/2} L_k^{|l|}(r^2) e^{il\theta}, \quad (\text{A.1})$$

donde  $C_{k|l|} = \sqrt{\frac{k!}{\pi(k+|l|)!}}$ . Para el elemento matricial tenemos

$$\begin{aligned} \langle i, j | \frac{1}{r} | k, l \rangle &= C_{k_i|l_i|} C_{k_j|l_j|} C_{k_k|l_k|} C_{k_l|l_l|} \int \frac{1}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} r_1^{|l_i|+|l_k|} r_2^{|l_j|+|l_l|} e^{-(r_1^2+r_2^2)} \\ &\times L_{k_i}^{|l_i|}(r_1^2) L_{k_k}^{|l_k|}(r_1^2) L_{k_j}^{|l_j|}(r_2^2) L_{k_l}^{|l_l|}(r_2^2) \\ &\times e^{i(l_k-l_i)\theta_1+i(l_l-l_j)\theta_2} d^2 r_1 d^2 r_2, \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

donde el elemento de volumen es  $d^2 r_1 d^2 r_2 = r_1 r_2 dr_1 dr_2 d\theta_1 d\theta_2$ .

Introduciendo las variables angulares  $\theta' = \theta_1 - \theta_2$  y  $\Theta = (\theta_1 + \theta_2)/2$  entonces podemos expresar el potencial de Coulomb de la siguiente forma [114]

$$\begin{aligned} \frac{1}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} &= \frac{1}{\sqrt{r_1^2 + r_2^2 - 2r_1 r_2 \cos \theta'}} \\ &= \frac{1}{\Gamma(1/2)} \int_0^\infty \frac{e^{-t(r_1^2+r_2^2)}}{t^{1/2}} \left( \sum_{m=0}^\infty \frac{(2tr_1 r_2)^m \cos^m \theta'}{m!} \right) dt. \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

En las nuevas variables angulares las integrales que las involucran son

$$\begin{aligned} \int_0^{2\pi} d\Theta e^{i(l_k+l_l-l_i-l_j)\Theta} \int_0^{2\pi} d\theta' e^{i(l_k+l_l-l_i-l_j)\theta'/2} \cos^m \theta' &= \\ 2\pi \delta_{l_i+l_j, l_k+l_l} \int_0^{2\pi} d\theta' e^{i(l_k+l_l-l_i-l_j)\theta'/2} \cos^m \theta'. \end{aligned}$$

La integral en la variable  $\theta'$  la podemos reducir al cálculo de la siguiente integral

$$\int_0^{2\pi} \cos p\theta' \cos^m \theta' d\theta' = \frac{2\pi m!}{2^m \Gamma(\frac{m-p}{2} + 1) \Gamma(\frac{m+p}{2} + 1)}, \quad (\text{A.4})$$

si existe algún entero  $q$  tal que  $m - p = 2q \geq 0$ , en otro caso la integral se anula, donde se ha tomado  $p = l_k + l_l - l_i - l_j$ . Teniendo esto en cuenta los resultados para las integrales angulares son  $\frac{4\pi^2 m!}{2^m \Gamma(\frac{m-|l_k-l_i|}{2} + 1) \Gamma(\frac{m+|l_k-l_i|}{2} + 1)} \delta_{l_i+l_j, l_k+l_l}$  si  $m - |l_k - l_i| = 2q \geq 0$  y en cualquier otro caso se anula. La expresión para el elemento matricial después de esto nos queda

$$\begin{aligned} \langle i, j | \frac{1}{r} | k, l \rangle &= 4\pi^{3/2} \delta_{l_i+l_j, l_k+l_l} C_{k_i|l_i|} C_{k_j|l_j|} C_{k_k|l_k|} C_{k_l|l_l|} \sum_{q=0}^{\infty} \frac{1}{q!(q + |l_k - l_i|)!} \\ &\times \int_0^{\infty} dt \int_0^{\infty} dr_1 \int_0^{\infty} dr_2 r_1^{2q+|l_i|+|l_k|+|l_k-l_i|+1} r_2^{2q+|l_j|+|l_l|+|l_k-l_i|+1} \\ &\times t^{2q+|l_k-l_i|-1/2} e^{-(1+t)(r_1^2+r_2^2)} \\ &\times L_{k_i}^{|l_i|}(r_1^2) L_{k_k}^{|l_k|}(r_1^2) L_{k_j}^{|l_j|}(r_2^2) L_{k_l}^{|l_l|}(r_2^2). \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

Expresando los polinomios de Laguerre como [114]

$$L_k^{|l|}(r^2) = \sum_{a=0}^k (-1)^a \frac{\Gamma(k + |l| + 1)}{\Gamma(k - a + 1) \Gamma(a + |l| + 1)} \frac{r^{2a}}{\Gamma(a + 1)}, \quad (\text{A.6})$$

y sustituyéndolos en la integral para el elemento matricial obtenemos,

$$\begin{aligned} \langle i, j | \frac{1}{r} | k, l \rangle &= 4\pi^{3/2} \delta_{l_i+l_j, l_k+l_l} C_{k_i|l_i|} C_{k_j|l_j|} C_{k_k|l_k|} C_{k_l|l_l|} \sum_{q=0}^{\infty} \frac{1}{q!(q + |l_k - l_i|)!} \\ &\times \sum_{a=0}^{k_i} \sum_{b=0}^{k_j} \sum_{c=0}^{k_k} \sum_{d=0}^{k_l} (-1)^{a+b+c+d} [G(a, k_i, l_i) G(a, k_j, l_j) \\ &\times G(a, k_k, l_k) G(a, k_l, l_l)] \\ &\times \int_0^{\infty} dt \int_0^{\infty} dr_1 \int_0^{\infty} dr_2 r_1^{2q+|l_i|+|l_k|+|l_k-l_i|+1} r_2^{2q+|l_j|+|l_l|+|l_k-l_i|+1} \\ &\times t^{2q+|l_k-l_i|-1/2} e^{-(1+t)(r_1^2+r_2^2)}, \end{aligned} \quad (\text{A.7})$$

donde  $G(a, k_i, l_i) = \frac{\Gamma(k_i + |l_i| + 1)}{\Gamma(k_i - a + 1) \Gamma(|l_i| + a + 1) \Gamma(a + 1)}$ . Las integrales por  $r_1$  y por  $r_2$  dan  $\frac{\Gamma(a+c+q+1+\frac{|l_k-l_i|+|l_i|+|l_k|}{2})}{(1+t)^{a+c+q+1+\frac{|l_k-l_i|+|l_i|+|l_k|}{2}}}$  respectivamente, quedando solo la integral por  $t$ ,

$$\begin{aligned} &\int_0^{\infty} \frac{t^{2q+|l_k-l_i|-1/2}}{(1+t)^{a+b+c+d+2+|l_k-l_i|+\frac{|l_i|+|l_j|+|l_k|+|l_l|}{2}}} dt = \\ &\frac{\Gamma(2q + |l_k - l_i| + 1/2) \Gamma(a + b + c + d + 1 + \frac{|l_i| + |l_j| + |l_k| + |l_l| + 1}{2})}{\Gamma(2q + |l_k - l_i| + 2 + a + b + c + d + \frac{|l_i| + |l_j| + |l_k| + |l_l|}{2})}. \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

Sustituyendo en el elemento matricial obtenemos

$$\begin{aligned}
 \langle i, j | \frac{1}{r} | k, l \rangle &= \pi^{3/2} \delta_{l_i+l_j, l_k+l_l} C_{k_i|l_i|} C_{k_j|l_j|} C_{k_k|l_k|} C_{k_l|l_l|} \\
 &\times \sum_{a=0}^{k_i} \sum_{b=0}^{k_j} \sum_{c=0}^{k_k} \sum_{d=0}^{k_l} (-1)^{a+b+c+d} G(a, k_i, l_i) G(a, k_j, l_j) G(a, k_k, l_k) \\
 &\times G(a, k_l, l_l) \Gamma(a + b + c + d + 1 + \frac{|l_i| + |l_j| + |l_k| + |l_l| + 1}{2}) \\
 &\times \sum_{q=0}^{\infty} \frac{\Gamma(2q + |l_k - l_i| + 1/2)}{q!(q + |l_k - l_i|)!} \Gamma(a + c + q + 1 + \frac{|l_k - l_i| + |l_i| + |l_k|}{2}) \\
 &\times \frac{\Gamma(b + d + q + 1 + \frac{|l_k - l_i| + |l_j| + |l_l|}{2})}{\Gamma(2q + |l_k - l_i| + 2 + a + b + c + d + \frac{|l_i| + |l_j| + |l_k| + |l_l|}{2})}. \tag{A.9}
 \end{aligned}$$

Analicemos por separado la serie por  $q$ . Podemos hacer el cambio  $q + 1 \rightarrow q$  y reescribir la serie como

$$\begin{aligned}
 g &= \sum_{q=1}^{\infty} \frac{\Gamma(2q + |l_k - l_i| - 3/2)}{\Gamma(q)\Gamma(q + |l_k - l_i|)} \Gamma(a + c + q + \frac{|l_k - l_i| + |l_i| + |l_k|}{2}) \\
 &\times \frac{\Gamma(b + d + q + \frac{|l_k - l_i| + |l_j| + |l_l|}{2})}{\Gamma(2q + |l_k - l_i| + a + b + c + d + \frac{|l_i| + |l_j| + |l_k| + |l_l|}{2})}.
 \end{aligned}$$

Para realizar el cálculo numérico introducimos el siguiente desarrollo asintótico [114]

$$\begin{aligned}
 \frac{\Gamma(z+a)}{\Gamma(z+b)} &= \frac{1}{z^{b-a}} \left( 1 + \frac{(a-b)(a+b-1)}{2z} \right. \\
 &\quad \left. + \frac{(a-b)(a-b-1)(3\{a+b-1\}^2 - a+b-1)}{24z^2} \right), \tag{A.10}
 \end{aligned}$$

y calculamos el comportamiento de  $\frac{\Gamma(2q + |l_k - l_i| - 3/2)}{\Gamma(2q + |l_k - l_i| + a + b + c + d + \frac{|l_i| + |l_j| + |l_k| + |l_l|}{2})}$ ,  $\frac{\Gamma(a+c+q+\frac{|l_k - l_i| + |l_i| + |l_k|}{2})}{\Gamma(q)}$  y  $\frac{\Gamma(b+d+q+\frac{|l_k - l_i| + |l_j| + |l_l|}{2})}{\Gamma(q + |l_k - l_i|)}$  para grandes valores de  $q$ . Con la ayuda de estas expresiones podemos reescribir la serie como  $g = g_{\infty} + g_N$  donde

$$\begin{aligned}
 g_{\infty} &= \frac{1}{2^{a+b+c+d+1+\frac{|l_i| + |l_j| + |l_k| + |l_l| + 1}{2}}} \sum_{q=1}^{\infty} \left( \frac{1}{q^{3/2}} + \frac{C_{5/2}}{q^{5/2}} + \frac{C_{7/2}}{q^{7/2}} \right) \\
 &= \frac{1}{2^{a+b+c+d+1+\frac{|l_i| + |l_j| + |l_k| + |l_l| + 1}{2}}} (Z(3/2) + C_{5/2}Z(5/2) \\
 &\quad + C_{7/2}Z(7/2)), \\
 g_N &= \sum_{q=1}^N \frac{\Gamma(2q + |l_k - l_i| - 3/2)}{\Gamma(q)\Gamma(q + |l_k - l_i|)} \\
 &\times \frac{\Gamma(a + c + q + \frac{|l_k - l_i| + |l_i| + |l_k|}{2})\Gamma(b + d + q + \frac{|l_k - l_i| + |l_j| + |l_l|}{2})}{\Gamma(2q + |l_k - l_i| + a + b + c + d + \frac{|l_i| + |l_j| + |l_k| + |l_l|}{2})} \\
 &- \frac{1}{q^{3/2}} - \frac{C_{5/2}}{q^{5/2}} - \frac{C_{7/2}}{q^{7/2}},
 \end{aligned}$$

hemos introducido los coeficientes  $C_{3/2}$ ,  $C_{5/2}$  y  $C_{7/2}$  que dependen de las variables de suma y de los momentos angulares de los estados uniparticulares y además de las funciones  $Z(z) = \sum_{q=1}^{\infty} \frac{1}{q^z}$  de Riemann.

Finalmente

$$\begin{aligned}
\langle i, j | \frac{1}{r} | k, l \rangle &= \pi^{3/2} \delta_{s_{zi}, s_{zk}} \delta_{s_{zj}, s_{zl}} \delta_{l_i + l_j, l_k + l_l} C_{k_i | l_i |} C_{k_j | l_j |} C_{k_k | l_k |} C_{k_l | l_l |} \\
&\times \sum_{a=0}^{k_i} \sum_{b=0}^{k_j} \sum_{c=0}^{k_k} \sum_{d=0}^{k_l} (-1)^{a+b+c+d} G(a, k_i, l_i) G(a, k_j, l_j) \\
&\times G(a, k_k, l_k) G(a, k_l, l_l) \\
&\times \Gamma(a + b + c + d + 1 + \frac{|l_i| + |l_j| + |l_k| + |l_l| + 1}{2}) \\
&\times (g_{\infty} + g_N).
\end{aligned} \tag{A.11}$$

En el cálculo, para alcanzar la precisión requerida tomamos  $N = 300$ .

## Apéndice B

# ELEMENTOS MATRICIALES DEL HAMILTONIANO DE KOHN-LUTTINGER

En este apéndice brindamos las expresiones de los elementos matriciales del Hamiltoniano de Kohn-Luttinger involucrados en la ecuación (2.55). Los valores numéricos usados para los parámetros de Luttinger son [81]:

$$\gamma_1 = 6.790, \quad \gamma_2 = 1.924, \quad \gamma_3 = 2.681, \\ \bar{\gamma} = (\gamma_2 + \gamma_3)/2, \quad \kappa' = 1.2, \quad q' = 0.04$$

El Hamiltoniano de Kohn-Luttinger tiene la siguiente estructura:

$$\hat{\mathcal{H}}_{KL} = \begin{pmatrix} \hat{H}_{3/2} & \hat{S} & \hat{R} & 0 \\ \hat{S}^\dagger & \hat{H}_{1/2} & 0 & \hat{R} \\ \hat{R}^\dagger & 0 & \hat{H}_{-1/2} & -\hat{S} \\ 0 & \hat{R}^\dagger & -\hat{S}^\dagger & \hat{H}_{-3/2} \end{pmatrix} \quad (B.1)$$

Los términos  $H$  son diagonales en todos los índices  $m_j, k, l, k_z$ . Por tanto:

$$\langle t | \hat{H}_{\pm 3/2} | s \rangle = \delta_{st} \left\{ \hbar \Omega_e \frac{m_e(\gamma_1 + \gamma_2)}{m_0} (2k_s + |l_s| + 1) + \frac{\hbar^2}{2m_0} (\gamma_1 - 2\gamma_2) \frac{k_{zs}^2 \pi^2}{L^2} \right. \\ \left. - \frac{\hbar \omega_{ce}}{2} \frac{m_e(\gamma_1 + \gamma_2)}{m_0} l_s \pm \mu_B \left( 3\kappa + \frac{27q}{4} \right) B \right\}, \quad (B.2)$$

$$\langle t | \hat{H}_{\pm 1/2} | s \rangle = \delta_{st} \left\{ \hbar \Omega_e \frac{m_e(\gamma_1 - \gamma_2)}{m_0} (2k_s + |l_s| + 1) + \frac{\hbar^2}{2m_0} (\gamma_1 + 2\gamma_2) \frac{k_{zs}^2 \pi^2}{L^2} \right. \\ \left. - \frac{\hbar \omega_{ce}}{2} \frac{m_e(\gamma_1 - \gamma_2)}{m_0} l_s \pm \mu_B \left( \kappa + \frac{q}{4} \right) B \right\}. \quad (B.3)$$

$m_0$  es la masa del electrón en el vacío,  $\mu_B$  es el magnetón de Bohr atómico,  $\omega_{ce}$  es la frecuencia ciclotrónica del electrón,  $\Omega_e = \sqrt{\omega_0^2 + \omega_{ce}^2/4}$  y  $k, l$  son los números cuánticos radial y angular correspondientes a los estados del oscilador en dos dimensiones.

Los elementos matriciales de los operadores  $\hat{S}$  and  $\hat{R}$  son escritos en la siguiente manera:

$$\begin{aligned} \langle t | \hat{S} | s \rangle &= \langle 3/2, k_t, l_t, k_{zt} | \hat{S} | 1/2, k_s, l_s, k_{zs} \rangle \\ &= \frac{\sqrt{3}\hbar^2\gamma_3}{m_0} \sqrt{\frac{m_e\Omega_e}{\hbar}} \frac{4k_{zt}k_{zs}}{L(k_{zt}^2 - k_{zs}^2)} \delta_{l_t, l_s+1} \delta_{k_{zt}+k_{zs}, \text{impar}} \\ &\times \begin{cases} \sqrt{k_s+1} (1 - \omega_{ce}/(2\Omega_e)) \delta_{k_t, k_s+1} + \sqrt{k_s + |l_s|} (1 + \omega_{ce}/(2\Omega_e)) \delta_{k_t, k_s}; & l_s \leq -1 \\ \sqrt{k_s} (1 + \omega_{ce}/(2\Omega_e)) \delta_{k_t, k_s-1} + \sqrt{k_s + l_s + 1} (1 - \omega_{ce}/(2\Omega_e)) \delta_{k_t, k_s}; & l_s \geq 0, \end{cases} \quad (\text{B.4}) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \langle t | \hat{R} | s \rangle &= \langle 3/2, k_t, l_t, k_{zt} | \hat{R} | -1/2, k_s, l_s, k_{zs} \rangle \\ &= \frac{\sqrt{3}\bar{\gamma}m_e}{2m_0} \hbar\Omega_e \delta_{l_t, l_s+2} \delta_{k_{zt}, k_{zs}} \\ &\times \begin{cases} \sqrt{(k_s + |l_s| - 1)(k_s + |l_s|)} (1 + \omega_{ce}/(2\Omega_e))^2 \delta_{k_t, k_s} \\ 2\sqrt{(k_s + 1)(k_s + |l_s|)} (1 - (\omega_{ce}/(2\Omega_e))^2) \delta_{k_t, k_s+1}; & l_s \leq -2 \\ \sqrt{(k_s + 2)(k_s + 1)} (1 - \omega_{ce}/(2\Omega_e))^2 \delta_{k_t, k_s+2} \end{cases} \\ &\times \begin{cases} -\sqrt{k_s(k_s + 1)} (1 + \omega_{ce}/(2\Omega_e))^2 \delta_{k_t, k_s-1} \\ -2k_s (1 - (\omega_{ce}/(2\Omega_e))^2) \delta_{k_t, k_s}; & l_s = -1 \\ -\sqrt{(k_s + 2)(k_s + 1)} (1 - \omega_{ce}/(2\Omega_e))^2 \delta_{k_t, k_s+1} \end{cases} \\ &\times \begin{cases} \sqrt{(k_s - 1)k_s} (1 + \omega_{ce}/(2\Omega_e))^2 \delta_{k_t, k_s-2} \\ 2\sqrt{k_s(k_s + |l_s| + 1)} (1 - (\omega_{ce}/(2\Omega_e))^2) \delta_{k_t, k_s-1}; & l_s \geq 0 \\ \sqrt{(k_s + l_s + 2)(k_s + l_s + 1)} (1 - \omega_{ce}/(2\Omega_e))^2 \delta_{k_t, k_s}. \end{cases} \quad (\text{B.5}) \end{aligned}$$

# Apéndice C

## VALORES MEDIOS INVOLUCRADOS EN LAS ECUACIONES DE LA RPA

En este anexo se describe el cálculo de los valores medios que aparecen en las ecuaciones de la RPA para puntos cargados y neutros. En ambos casos la herramienta esencial empleada es el teorema de Wick [88] para el cálculo del valor medio del producto de operadores de creación y aniquilación de electrones y huecos.

### C.1. PUNTOS CUANTICOS CARGADOS

Dado que los valores medios se calcularán usando una función de onda para el estado base del sistema descrita en la aproximación de Hartree-Fock, sólo contribuirán al cálculo de los valores medios las contracciones del tipo:

$$\langle \text{HF} | \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta | \text{HF} \rangle = \begin{cases} 0 & \beta > \xi_f^e \\ \delta_{\alpha,\beta} & \beta \leq \xi_f^e \end{cases}, \quad (\text{C.1})$$

$$\langle \text{HF} | \hat{e}_\beta \hat{e}_\alpha^\dagger | \text{HF} \rangle = \begin{cases} 0 & \alpha \leq \xi_f^e \\ \delta_{\beta,\alpha} & \alpha > \xi_f^e \end{cases}, \quad (\text{C.2})$$

donde  $\xi_f^e$  denota el nivel de Fermi de los electrones.

### C.1.1. Primer valor medio en la ecuación (3.21) ( $A_{\sigma\lambda,\tau\mu}$ )

$$\begin{aligned}
 & \langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{H}^e, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu] | \text{HF} \rangle \\
 &= \sum_{\alpha,\beta} \langle \alpha | \hat{h}^e | \beta \rangle \langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu] | \text{HF} \rangle \\
 &+ \frac{e^2}{2\kappa\ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha, \beta | \frac{1}{r} | \gamma, \delta \rangle \langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta^\dagger \hat{e}_\delta \hat{e}_\gamma \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu | \text{HF} \rangle \\
 &- \frac{e^2}{2\kappa\ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha, \beta | \frac{1}{r} | \gamma, \delta \rangle \langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta^\dagger \hat{e}_\delta \hat{e}_\gamma | \text{HF} \rangle \\
 &= \delta_{\lambda\mu} \left\{ \langle \sigma | \hat{h}^e | \tau \rangle + \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{\gamma \leq \xi_f^e} (\langle \sigma, \gamma | \frac{1}{r} | \tau, \gamma \rangle - \langle \sigma, \gamma | \frac{1}{r} | \gamma, \tau \rangle) \right\} \\
 &- \delta_{\sigma\tau} \left\{ \langle \mu | \hat{h}^e | \lambda \rangle + \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{\gamma \leq \xi_f^e} (\langle \mu, \gamma | \frac{1}{r} | \lambda, \gamma \rangle - \langle \mu, \gamma | \frac{1}{r} | \gamma, \lambda \rangle) \right\} \\
 &+ \frac{e^2}{\kappa\ell_e} (\langle \sigma, \mu | \frac{1}{r} | \lambda, \tau \rangle - \langle \sigma, \mu | \frac{1}{r} | \tau, \lambda \rangle). \tag{C.3}
 \end{aligned}$$

Haciendo uso de la ecuación (2.33), obtenemos:

$$\begin{aligned}
 \langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{H}^e, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu] | \text{HF} \rangle &= (\varepsilon_\sigma^e - \varepsilon_\lambda^e) \delta_{\sigma\tau} \delta_{\lambda\mu} + \frac{e^2}{\kappa\ell_e} (\langle \sigma, \mu | \frac{1}{r} | \lambda, \tau \rangle - \langle \sigma, \mu | \frac{1}{r} | \tau, \lambda \rangle) \\
 &= A_{\sigma\lambda,\tau\mu}. \tag{C.4}
 \end{aligned}$$

### C.1.2. Segundo valor medio en la ecuación (3.21) ( $B_{\sigma\lambda,\mu\tau}$ )

$$\begin{aligned}
 -\langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{H}^e, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau] | \text{HF} \rangle &= \frac{e^2}{2\kappa\ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha, \beta | \frac{1}{r} | \gamma, \delta \rangle \langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta^\dagger \hat{e}_\delta \hat{e}_\gamma | \text{HF} \rangle \\
 &= \frac{e^2}{\kappa\ell_e} (\langle \sigma, \tau | \frac{1}{r} | \lambda, \mu \rangle - \langle \sigma, \tau | \frac{1}{r} | \mu, \lambda \rangle) = B_{\sigma\lambda,\mu\tau}. \tag{C.5}
 \end{aligned}$$

### C.1.3. Primer valor medio en la ecuación (3.22) ( $-B_{\lambda\sigma,\tau\mu}$ )

$$\begin{aligned}
 -\langle \text{HF} | [\hat{H}^e, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu] \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle &= -\frac{e^2}{2\kappa\ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha, \beta | \frac{1}{r} | \gamma, \delta \rangle \langle \text{HF} | \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta^\dagger \hat{e}_\delta \hat{e}_\gamma \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle \\
 &= -\frac{e^2}{\kappa\ell_e} (\langle \lambda, \mu | \frac{1}{r} | \sigma, \tau \rangle - \langle \lambda, \mu | \frac{1}{r} | \tau, \sigma \rangle) = -B_{\lambda\sigma,\tau\mu}. \tag{C.6}
 \end{aligned}$$

### C.1.4. Segundo valor medio en la ecuación (3.22) ( $-A_{\lambda\sigma,\mu\tau}$ )

$$\begin{aligned}
 & \langle \text{HF} | [\hat{H}^e, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau] \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle \\
 &= \sum_{\alpha,\beta} \langle \alpha | \hat{h}^e | \beta \rangle \langle \text{HF} | [\hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau] \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle \\
 &+ \frac{e^2}{2\kappa\ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha, \beta | \frac{1}{r} | \gamma, \delta \rangle \langle \text{HF} | \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta^\dagger \hat{e}_\delta \hat{e}_\gamma \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle \\
 &- \frac{e^2}{2\kappa\ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha, \beta | \frac{1}{r} | \gamma, \delta \rangle \langle \text{HF} | \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta^\dagger \hat{e}_\delta \hat{e}_\gamma \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle \\
 &= \delta_{\sigma\tau} \left\{ \langle \lambda | \hat{h}^e | \mu \rangle + \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{\gamma \leq \xi_f^e} (\langle \lambda, \gamma | \frac{1}{r} | \mu, \gamma \rangle - \langle \lambda, \gamma | \frac{1}{r} | \gamma, \mu \rangle) \right\} \\
 &- \delta_{\lambda\mu} \left\{ \langle \tau | \hat{h}^e | \sigma \rangle + \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{\gamma \leq \xi_f^e} (\langle \tau, \gamma | \frac{1}{r} | \sigma, \gamma \rangle - \langle \tau, \gamma | \frac{1}{r} | \gamma, \sigma \rangle) \right\} \\
 &- \frac{e^2}{\kappa\ell_e} (\langle \lambda, \tau | \frac{1}{r} | \sigma, \mu \rangle - \langle \lambda, \tau | \frac{1}{r} | \mu, \sigma \rangle). \tag{C.7}
 \end{aligned}$$

Nuevamente, haciendo uso de la ecuación (2.33), obtenemos:

$$\begin{aligned}
 \langle \text{HF} | [\hat{H}^e, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau] \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle &= - \left\{ (\varepsilon_\sigma^e - \varepsilon_\lambda^e) \delta_{\sigma\tau} \delta_{\lambda\mu} + \frac{e^2}{\kappa\ell_e} (\langle \lambda, \tau | \frac{1}{r} | \sigma, \mu \rangle - \langle \lambda, \tau | \frac{1}{r} | \mu, \sigma \rangle) \right\} \\
 &= -A_{\lambda\sigma,\mu\tau}. \tag{C.8}
 \end{aligned}$$

## C.2. PUNTOS CUANTICOS NEUTROS

### C.2.1. Primer valor medio en la ecuación (3.61) ( $A_{\sigma\lambda,\tau\mu}^{ee}$ )

$$\begin{aligned}
 \langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{H}^{eh}, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu] | \text{HF} \rangle &= \sum_{\alpha,\beta} \langle \alpha^e | \hat{h}^e | \beta^e \rangle \langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu] | \text{HF} \rangle \\
 &+ \frac{e^2}{2\kappa\ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha^e, \beta^e | \frac{1}{r} | \gamma^e, \delta^e \rangle \langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta^\dagger \hat{e}_\delta \hat{e}_\gamma, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu] | \text{HF} \rangle \\
 &- \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha^e, \beta^h | \frac{1}{r} | \gamma^e, \delta^h \rangle \langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{e}_\alpha^\dagger \hat{h}_\beta^\dagger \hat{h}_\delta \hat{e}_\gamma, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu] | \text{HF} \rangle. \tag{C.9}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{H}^{eh}, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu] | \text{HF} \rangle &= \delta_{\lambda\mu}^e \left\{ \langle \sigma^e | \hat{h}^e | \tau^e \rangle - \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \sum_{\gamma \leq \xi_f^h} \langle \sigma^e, \gamma^h | \frac{1}{r} | \tau^e, \gamma^h \rangle \right. \\
&\quad + \left. \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \sum_{\gamma \leq \xi_f^e} (\langle \sigma^e, \gamma^e | \frac{1}{r} | \tau^e, \gamma^e \rangle - \langle \sigma^e, \gamma^e | \frac{1}{r} | \gamma^e, \tau^e \rangle) \right\} \\
&\quad - \delta_{\sigma\tau}^e \left\{ \langle \mu^e | \hat{h}^e | \lambda^e \rangle - \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \sum_{\gamma \leq \xi_f^h} \langle \mu^e, \gamma^h | \frac{1}{r} | \lambda^e, \gamma^h \rangle \right. \\
&\quad + \left. \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \sum_{\gamma \leq \xi_f^e} (\langle \mu^e, \gamma^e | \frac{1}{r} | \lambda^e, \gamma^e \rangle - \langle \mu^e, \gamma^e | \frac{1}{r} | \gamma^e, \lambda^e \rangle) \right\} \\
&\quad + \frac{e^2}{\kappa \ell_e} (\langle \sigma^e, \mu^e | \frac{1}{r} | \lambda^e, \tau^e \rangle - \langle \sigma^e, \mu^e | \frac{1}{r} | \tau^e, \lambda^e \rangle). \tag{C.10}
\end{aligned}$$

Haciendo uso de la ecuación (2.66), obtenemos:

$$\begin{aligned}
\langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{H}^{eh}, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu] | \text{HF} \rangle &= (\varepsilon_\sigma^e - \varepsilon_\lambda^e) \delta_{\sigma\tau}^e \delta_{\lambda\mu}^e \\
&\quad + \frac{e^2}{\kappa \ell_e} (\langle \sigma^e, \mu^e | \frac{1}{r} | \lambda^e, \tau^e \rangle - \langle \sigma^e, \mu^e | \frac{1}{r} | \tau^e, \lambda^e \rangle) \\
&= A_{\sigma\lambda,\tau\mu}^{ee}. \tag{C.11}
\end{aligned}$$

### C.2.2. Segundo valor medio en la ecuación (3.61) ( $A_{\sigma\lambda,\tau\mu}^{eh}$ )

$$\begin{aligned}
\langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{H}^{eh}, \hat{h}_\tau^\dagger \hat{h}_\mu] | \text{HF} \rangle &= -\frac{e^2}{\kappa \ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha^e, \beta^h | \frac{1}{r} | \gamma^e, \delta^h \rangle \langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{h}_\beta^\dagger \hat{h}_\delta \hat{e}_\gamma \hat{h}_\tau^\dagger \hat{h}_\mu | \text{HF} \rangle. \\
&= -\frac{e^2}{\kappa \ell_e} \langle \sigma^e, \mu^h | \frac{1}{r} | \lambda^e, \tau^h \rangle = A_{\sigma\lambda,\tau\mu}^{eh}. \tag{C.12}
\end{aligned}$$

### C.2.3. Tercer valor medio en la ecuación (3.61) ( $B_{\sigma\lambda,\mu\tau}^{ee}$ )

$$\begin{aligned}
-\langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{H}^{eh}, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau] | \text{HF} \rangle &= \frac{e^2}{2\kappa \ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha^e, \beta^e | \frac{1}{r} | \gamma^e, \delta^e \rangle \langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta^\dagger \hat{e}_\delta \hat{e}_\gamma | \text{HF} \rangle \\
&= \frac{e^2}{\kappa \ell_e} (\langle \sigma^e, \tau^e | \frac{1}{r} | \lambda^e, \mu^e \rangle - \langle \sigma^e, \tau^e | \frac{1}{r} | \mu^e, \lambda^e \rangle) = B_{\sigma\lambda,\mu\tau}^{ee}. \tag{C.13}
\end{aligned}$$

### C.2.4. Cuarto valor medio en la ecuación (3.61) ( $B_{\sigma\lambda,\mu\tau}^{eh}$ )

$$\begin{aligned}
 -\langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma [\hat{H}^{eh}, \hat{h}_\mu^\dagger \hat{h}_\tau] | \text{HF} \rangle &= -\frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha^e, \beta^h | \frac{1}{r} | \gamma^e, \delta^h \rangle \\
 &\quad \times \langle \text{HF} | \hat{e}_\lambda^\dagger \hat{e}_\sigma \hat{h}_\mu^\dagger \hat{h}_\tau \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{h}_\beta^\dagger \hat{h}_\delta \hat{e}_\gamma | \text{HF} \rangle \\
 &= -\frac{e^2}{\kappa\ell_e} \langle \sigma^e, \tau^h | \frac{1}{r} | \lambda^e, \mu^h \rangle = B_{\sigma\lambda,\mu\tau}^{eh}. \tag{C.14}
 \end{aligned}$$

### C.2.5. Valores medios en la ecuación (3.62)

Teniendo en cuenta la simetría del Hamiltoniano  $\hat{H}^{eh}$ , los valores medios en la ecuación (3.62) tienen formalmente las mismas expresiones que los valores medios calculados en la ecuación (3.61). La única diferencia en este caso consiste en que los índices  $\sigma$  y  $\lambda$  ahora corren por los estados de HF de huecos.

$$\langle \text{HF} | \hat{h}_\lambda^\dagger \hat{h}_\sigma [\hat{H}^{eh}, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu] | \text{HF} \rangle = -\frac{e^2}{\kappa\ell_e} \langle \sigma^h, \mu^e | \frac{1}{r} | \lambda^h, \tau^e \rangle = A_{\sigma\lambda,\tau\mu}^{he}. \tag{C.15}$$

$$\begin{aligned}
 \langle \text{HF} | \hat{h}_\lambda^\dagger \hat{h}_\sigma [\hat{H}^{eh}, \hat{h}_\tau^\dagger \hat{h}_\mu] | \text{HF} \rangle &= (\varepsilon_\sigma^h - \varepsilon_\lambda^h) \delta_{\sigma\tau}^h \delta_{\lambda\mu}^h \\
 &\quad + \frac{e^2}{\kappa\ell_e} (\langle \sigma^h, \mu^h | \frac{1}{r} | \lambda^h, \tau^h \rangle - \langle \sigma^h, \mu^h | \frac{1}{r} | \tau^h, \lambda^h \rangle) \\
 &= A_{\sigma\lambda,\tau\mu}^{hh}. \tag{C.16}
 \end{aligned}$$

$$-\langle \text{HF} | \hat{h}_\lambda^\dagger \hat{h}_\sigma [\hat{H}^{eh}, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau] | \text{HF} \rangle = -\frac{e^2}{\kappa\ell_e} \langle \sigma^h, \tau^e | \frac{1}{r} | \lambda^h, \mu^e \rangle = B_{\sigma\lambda,\mu\tau}^{he}. \tag{C.17}$$

$$\begin{aligned}
 -\langle \text{HF} | \hat{h}_\lambda^\dagger \hat{h}_\sigma [\hat{H}^{eh}, \hat{h}_\mu^\dagger \hat{h}_\tau] | \text{HF} \rangle &= \frac{e^2}{\kappa\ell_e} (\langle \sigma^h, \tau^h | \frac{1}{r} | \lambda^h, \mu^h \rangle - \langle \sigma^h, \tau^h | \frac{1}{r} | \mu^h, \tau^h \rangle) \\
 &= B_{\sigma\lambda,\mu\tau}^{hh}. \tag{C.18}
 \end{aligned}$$

### C.2.6. Primer valor medio en la ecuación (3.63) ( $-B_{\lambda\sigma,\tau\mu}^{ee}$ )

$$\begin{aligned}
 -\langle \text{HF} | [\hat{H}^{eh}, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu] \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle &= -\frac{e^2}{2\kappa\ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha^e, \beta^e | \frac{1}{r} | \gamma^e, \delta^e \rangle \langle \text{HF} | \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta^\dagger \hat{e}_\delta \hat{e}_\gamma \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle \\
 &= -\frac{e^2}{\kappa\ell_e} (\langle \lambda^e, \mu^e | \frac{1}{r} | \sigma^e, \tau^e \rangle - \langle \lambda^e, \mu^e | \frac{1}{r} | \tau^e, \sigma^e \rangle) \\
 &= -B_{\lambda\sigma,\tau\mu}^{ee}.
 \end{aligned} \tag{C.19}$$

### C.2.7. Segundo valor medio en la ecuación (3.63) ( $-B_{\lambda\sigma,\tau\mu}^{eh}$ )

$$\begin{aligned}
 -\langle \text{HF} | [\hat{H}^{eh}, \hat{h}_\tau^\dagger \hat{h}_\mu] \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle &= \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha^e, \beta^h | \frac{1}{r} | \gamma^e, \delta^h \rangle \langle \text{HF} | \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{h}_\beta^\dagger \hat{h}_\delta \hat{e}_\gamma \hat{h}_\tau^\dagger \hat{h}_\mu \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle \\
 &= \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \langle \lambda^e, \mu^h | \frac{1}{r} | \sigma^e, \tau^h \rangle = -B_{\lambda\sigma,\tau\mu}^{eh}.
 \end{aligned} \tag{C.20}$$

### C.2.8. Tercer valor medio en la ecuación (3.63) ( $-A_{\lambda\sigma,\mu\tau}^{ee}$ )

$$\begin{aligned}
 \langle \text{HF} | [\hat{H}^{eh}, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau] \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle &= \sum_{\alpha,\beta} \langle \alpha^e | \hat{h}^e | \beta^e \rangle \langle \text{HF} | [\hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau] \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle \\
 &\quad + \frac{e^2}{2\kappa\ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha^e, \beta^e | \frac{1}{r} | \gamma^e, \delta^e \rangle \langle \text{HF} | [\hat{e}_\alpha^\dagger \hat{e}_\beta^\dagger \hat{e}_\delta \hat{e}_\gamma, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau] \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle \\
 &\quad - \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{\alpha,\beta,\gamma,\delta} \langle \alpha^e, \beta^h | \frac{1}{r} | \gamma^e, \delta^h \rangle \langle \text{HF} | [\hat{e}_\alpha^\dagger \hat{h}_\beta^\dagger \hat{h}_\delta \hat{e}_\gamma, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau] \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle
 \end{aligned} \tag{C.21}$$

$$\begin{aligned}
 \langle \text{HF} | [\hat{H}^{eh}, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau] \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle &= \delta_{\sigma\tau}^e \left\{ \langle \lambda^e | \hat{h}^e | \mu^e \rangle - \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{\gamma \leq \xi_f^h} \langle \lambda^e, \gamma^h | \frac{1}{r} | \mu^e, \gamma^h \rangle \right. \\
 &\quad \left. + \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{\gamma \leq \xi_f^e} \left( \langle \lambda^e, \gamma^e | \frac{1}{r} | \mu^e, \gamma^e \rangle - \langle \lambda^e, \gamma^e | \frac{1}{r} | \gamma^e, \mu^e \rangle \right) \right\} \\
 &\quad - \delta_{\lambda\mu}^e \left\{ \langle \tau^e | \hat{h}_e | \sigma^e \rangle - \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{\gamma \leq \xi_f^h} \langle \tau^e, \gamma^h | \frac{1}{r} | \sigma^e, \gamma^h \rangle \right. \\
 &\quad \left. + \frac{e^2}{\kappa\ell_e} \sum_{\gamma \leq \xi_f^e} \left( \langle \tau^e, \gamma^e | \frac{1}{r} | \sigma^e, \gamma^e \rangle - \langle \tau^e, \gamma^e | \frac{1}{r} | \gamma^e, \sigma^e \rangle \right) \right\} \\
 &\quad - \frac{e^2}{\kappa\ell_e} (\langle \lambda^e, \tau^e | \frac{1}{r} | \sigma^e, \mu^e \rangle - \langle \lambda^e, \tau^e | \frac{1}{r} | \mu^e, \sigma^e \rangle).
 \end{aligned} \tag{C.22}$$

Haciendo uso de la expresión (2.66) en la ecuación (C.22) obtenemos:

$$\begin{aligned} \langle \text{HF} | [\hat{H}^{eh}, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau] \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle &= - \left\{ (\varepsilon_\sigma^e - \varepsilon_\lambda^e) \delta_{\sigma\tau}^e \delta_{\lambda\mu}^e \right. \\ &\quad \left. + \frac{e^2}{\kappa \ell_e} (\langle \lambda^e, \tau^e | \frac{1}{r} | \sigma^e, \mu^e \rangle - \langle \lambda^e, \tau^e | \frac{1}{r} | \sigma^e, \mu^e \rangle) \right\} \\ &= -A_{\lambda\sigma,\mu\tau}^{ee}. \end{aligned} \quad (\text{C.23})$$

### C.2.9. Cuarto valor medio en la ecuación (3.63) ( $-A_{\lambda\sigma,\mu\tau}^{eh}$ )

$$\begin{aligned} \langle \text{HF} | [\hat{H}^{eh}, \hat{h}_\mu^\dagger \hat{h}_\tau] \hat{e}_\sigma^\dagger \hat{e}_\lambda | \text{HF} \rangle &= \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \sum_{\alpha, \beta, \gamma, \delta} \langle \alpha^e, \beta^h | \frac{1}{r} | \gamma^e, \delta^h \rangle \langle \text{HF} | \hat{h}_\mu^\dagger \hat{h}_\tau \hat{e}_\alpha^\dagger \hat{h}_\beta^\dagger \hat{h}_\delta \hat{e}_\gamma^\dagger \hat{h}_\sigma^\dagger \hat{h}_\lambda | \text{HF} \rangle \\ &= \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \langle \lambda^e, \tau^h | \frac{1}{r} | \sigma^e, \mu^h \rangle = -A_{\lambda\sigma,\mu\tau}^{eh}. \end{aligned} \quad (\text{C.24})$$

### C.2.10. Valores medios en la ecuación (3.64)

Mediante un razonamiento del mismo tipo que el fundamentado en la sección C.2.5 es posible escribir las expresiones para los valores medios presentes en la ecuación (3.64).

$$-\langle \text{HF} | [\hat{H}^{eh}, \hat{e}_\tau^\dagger \hat{e}_\mu] \hat{h}_\sigma^\dagger \hat{h}_\lambda | \text{HF} \rangle_N = \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \langle \lambda^h, \mu^e | \frac{1}{r} | \sigma^h, \tau^e \rangle = -B_{\lambda\sigma,\tau\mu}^{he}. \quad (\text{C.25})$$

$$\begin{aligned} -\langle \text{HF} | [\hat{H}^{eh}, \hat{h}_\tau^\dagger \hat{h}_\mu] \hat{h}_\sigma^\dagger \hat{h}_\lambda | \text{HF} \rangle &= -\frac{e^2}{\kappa \ell_e} (\langle \lambda^h, \mu^h | \frac{1}{r} | \sigma^h, \tau^h \rangle - \langle \lambda^h, \mu^h | \frac{1}{r} | \tau^h, \sigma^h \rangle) \\ &= -B_{\lambda\sigma,\tau\mu}^{hh}. \end{aligned} \quad (\text{C.26})$$

$$\langle \text{HF} | [\hat{H}^{eh}, \hat{e}_\mu^\dagger \hat{e}_\tau] \hat{h}_\sigma^\dagger \hat{h}_\lambda | \text{HF} \rangle = \frac{e^2}{\kappa \ell_e} \langle \lambda^h, \tau^e | \frac{1}{r} | \sigma^h, \mu^e \rangle = -A_{\lambda\sigma,\mu\tau}^{he}. \quad (\text{C.27})$$

$$\begin{aligned} \langle \text{HF} | [\hat{H}^{eh}, \hat{h}_\mu^\dagger \hat{h}_\tau] \hat{h}_\sigma^\dagger \hat{h}_\lambda | \text{HF} \rangle &= - \left\{ (\varepsilon_\sigma^h - \varepsilon_\lambda^h) \delta_{\sigma\tau}^h \delta_{\lambda\mu}^h \right. \\ &\quad \left. + \frac{e^2}{\kappa \ell_e} (\langle \lambda^h, \tau^h | \frac{1}{r} | \sigma^h, \mu^h \rangle - \langle \lambda^h, \tau^h | \frac{1}{r} | \mu^h, \sigma^h \rangle) \right\} \\ &= -A_{\lambda\sigma,\mu\tau}^{hh}. \end{aligned} \quad (\text{C.28})$$



## Apéndice D

# ELEMENTOS DE MATRIZ DE LOS OPERADORES MULTIPOLARES

El cálculo de los elementos matriciales,  $\langle \alpha | \hat{d}_l | \gamma \rangle$  entre estados de HF se lleva a cabo expandiendo dichos estados en las funciones de oscilador para electrones y huecos según corresponda.

$$\langle \alpha | \hat{d}_l | \gamma \rangle = \sum_{s,t} C_s^{\alpha*} C_t^{\gamma} \langle s | \hat{d}_l | t \rangle, \quad (\text{D.1})$$

donde los elementos  $\langle s | \hat{d}_l | t \rangle$ , tomados entre estados de oscilador, están dados, en el caso de  $l = 0$ , por la expresión,

$$\begin{aligned} \langle k_s, l_s | \frac{d_0}{\ell^2} | k_t, l_t \rangle &= \delta(l_s, l_t) \left\{ (2k_t + |l_t| + 1) \delta(k_s, k_t) - \sqrt{(k_t + 1)(k_t + |l_t| + 1)} \delta(k_s, k_t + 1) \right. \\ &\quad \left. - \sqrt{k_t(k_t + |l_t|)} \delta(k_s, k_t - 1) \right\}. \end{aligned} \quad (\text{D.2})$$

y, para  $l > 0$  por la siguiente ecuación:

$$\begin{aligned} \langle k_s, l_s | \frac{d_l}{\ell^l} | k_t, l_t \rangle &= \delta(l_s, l_t + l) \sum_{r=0}^{\text{Min}(l, k_t)} (-1)^r \frac{l!}{(l-r)! r!} \sqrt{\frac{k_t!}{(k_t + |l_t|)!}} \frac{(k_t - r + |l_t + l|)!}{(k_t - r)!} \\ &\quad \times \delta(k_s, k_t - r); \quad l_t \geq 0, \\ &= \delta(l_s, l_t + l) \sum_{r=0}^{\text{Min}(l, k_s)} (-1)^r \frac{l!}{(l-r)! r!} \sqrt{\frac{k_s!}{(k_s + |l_t + l|)!}} \frac{(k_s - r + |l_t|)!}{(k_s - r)!} \\ &\quad \times \delta(k_t, k_s - r); \quad l_t \leq -l, \\ &= \delta(l_s, l_t + l) (-1)^{k_s - k_t} \sum_{r=0}^{\text{Min}(l - |l_t|, k_t)} \frac{(l - |l_t|)!}{(l - |l_t| - r)! r!} \frac{|l_t|!}{(|l_t| - k_s + k_t - r)!} \\ &\quad \times \sqrt{\frac{k_t!}{(k_t + |l_t|)!}} \frac{k_s!}{(k_s + |l_t + l|)!} \frac{(k_t - r + l)!^2}{(k_t - r)!^2} \Theta(k_s - k_t + r); \\ &\quad -l < l_t < 0. \end{aligned} \quad (\text{D.3})$$

En la ecuación anterior  $\Theta(x) = 1$  para  $0 \leq x \leq \text{Min}(|l_t|, k_s)$  y cero en otro caso. Finalmente, para  $l < 0$ , obtenemos la expresión:

$$\langle k_s, l_s | d_l | k_t, l_t \rangle = \langle k_t, l_t | d_{|l|} | k_s, l_s \rangle^*. \quad (\text{D.4})$$

Por otro lado, los elementos  $\langle \gamma | (\rho^2)^\xi | \gamma \rangle$ , involucrados en los miembros derechos de las reglas de sumas (3.54-3.55) y (3.79-3.80) son evaluados como,

$$\langle \lambda | (r^2)^\xi | \lambda \rangle = \sum_{s,t} C_{\lambda s}^* C_{\lambda t} \langle s | (r^2)^\xi | t \rangle, \quad (\text{D.5})$$

donde:

$$\begin{aligned} \langle k_s, l_s | \left( \frac{r^2}{l_0^2} \right)^\xi | k_t, l_t \rangle &= \delta(l_s, l_t) \sqrt{\frac{k_s! k_t!}{(k_s + |l_s|)! (k_t + |l_s|)!}} \sum_{m=0}^{\text{Min}(\xi, k_s)} \sum_{n=0}^{\text{Min}(\xi, k_t)} (-1)^{m+n} \\ &\times \delta(k_s - m, k_t - n) \frac{\xi!^2}{(\xi - m)! m! (\xi - n)! n!} \frac{(k_t - n + |l_s| + \xi)!}{(k_t - n)!}. \end{aligned} \quad (\text{D.6})$$

# Bibliografía

- [1] L. Chang, L. Esaki, R. Tsu, *Apply Physics Letters* 24, (1974) 593.
- [2] R. Dingle, W. Wiegmann, C.H. Henry, *Physical Review Letters* 33, (1974) 827.
- [3] Zh.I. Alferov, *Semiconductors* 32, (1998) 1.
- [4] M.P. Petroff, C.A. Gossard, A.R. Logan, W. Wiegmann, *Apply Physics Letters* 41, (1982) 635.
- [5] C.R. Ashoori, *Nature* 379, (1996) 413.
- [6] A.M. Reed, T.R. Bate, K. Bradshaw, M.W. Duncan, M.W. Frensel, W.J. Lee, D.H. Smith, *J. Vacuum Sci. Technol. B* 4, (1986) 358.
- [7] L. Jacak, P. Hawrylak, and A. Wojs, *Quantum dots*, (Springer-Verlag, Berlin, 1998).
- [8] W.G. van der Wiel, S. De Franceschi, J.M. Elzerman, T. Fujisawa, S. Tarucha, L.P. Kouwenhoven, *Reviews of Modern Physics* 75, (2003) 1.
- [9] C.R. Ashoori, L.H. Störmer, S.J. Weiner, N.L. Pfeifer, J.S. Pearton, W.K. Baldwin, K. West, *Physical Review Letters* 68, (1992) 3088.
- [10] C.R. Ashoori, L.H. Störmer, S.J. Weiner, N.L. Pfeifer, W.K. Baldwin, K. West, *Physical Review Letters* 71, (1993) 613.
- [11] W. Hansen, P.T. Smith, Y.K. Lee, A.J. Brum, M.C. Knoedler, M.J. Hong, P.D. Kern, *Physical Review letters* 62, (1989) 2168.
- [12] A. Lorke, P.J. Kotthaus, K. Ploog, *Physical Review Letters* 64, (1990) 2559.
- [13] B. Meurer, D. Heitmann, K. Ploog, *Physical Review Letters* 68, (1992) 1371.
- [14] I.A. Ekimov, L.A. Efros, A.A. Onushchenko, *Solid State Communications* 56, (1985) 921.
- [15] N.I. Stranski, L. Von Krastanow, *Akad.Wiss. Let. Mainz Math. Natur K1* 11b 146, (1939) 797.
- [16] A.F. Andreev, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 80, (1981) 2042.
- [17] V.I. Marchenko, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* 81, (1981) 1141.
- [18] N.N. Ledentsov et al., in *Proceedings of the 22nd International Conference on the Physics of Semiconductors* (World Scientific, Singapore, 1995).

- [19] Zh.I. Alferov, N.Yu. Gordeev, S.V. Zaitsev, P.S. Kopev, I.V. Kochnev, V.V. Khomin, I.L. Krestnikov, N.N. Ledentsov, A.V. Lunev, M.V. Maksimov, S.S. Ruvimov, A.V. Sakharov, A.F. Tsatsulnikov, Yu.M. Shernyakov, D. Bimberg, *Semiconductors* 30, (1996) 197.
- [20] Z.R. Wasilewski, S. Fafard, J.P. McCaffrey, *Journal of Crystal Growth* 201/202, (1999) 1131.
- [21] M. Grundmann *et al.*, *Physical Review Letters* 74, (1995) 4043.
- [22] Y. Arakawa and H. Sakaki, *Applied Physics Letters* 40, (1982) 939.
- [23] S. Fafard, K. Hinzer, S. Raymond, M. Dion, J. McCaffrey, Y. Feng, and S. Charbonneau, *Science* 274, (1996) 1350.
- [24] D. Bimberg, M. Grundmann, N. N. Ledentsov, M. H. Mao, Ch. Ribbat, R. Sellin, V. M. Ustinov, A. E. Zhukov, Zh. I. Alferov, and J. A. Lott, *Physica Status Solidi (b)* 224, (2001) 787.
- [25] C.H. Bennett, *Physics Today* 48(10), (1995) 24.
- [26] J.-I. Cirac and P. Zoller, *Physical Review Letters* 74, (1995) 4091.
- [27] Daniel Loss and David P. Di Vincenzo, *Physical Review A* 57, (1998) 120.
- [28] Igor Zutic, Jaroslav Fabian, S. Das Sarma, *Reviews of Modern Physics* 76, (2004) 323.
- [29] Pierre M. Petroff, Axel Lorke, and Atac Imamoglu, *Physics Today* 54, (2001) 46.
- [30] M. Fricke, A. Lorke, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, and P. M. Petroff, *Europhysics Letters* 36, (1996) 197.
- [31] U. Bockelmann, W. Heller, and G. Abstreiter, *Physical Review B* 55, (1997) 4469.
- [32] N. Žurauskienė, G. Janssen, E. Goovaerts, A. Bouwen, D. Schoemaker, P. M. Koenraad, and J. H. Wolter, *Physica Status Solidi (b)* 224, (2001) 551.
- [33] S. Sauvage, P. Boucaud, F.H. Julien, J.-M. Gérard, and J.-Y. Marzin, *Journal of Applied Physics* 82, (1997) 3396.
- [34] S. Sauvage, P. Boucaud, J.-M. Gérard, and V. Thierry-Mieg, *Physical Review B* 58, (1998) 10562.
- [35] C. Riva, K. Varga, V.A. Schweigert, and F.M. Peeters, *Physica Status Solidi (b)* 210, (1998) 689.
- [36] D.A. Broido, A. Cros, and U. Rössler, *Physical Review B* 45, (1992) 11395.
- [37] M. Braskén, M. Lindberg, and J. Tulkki, *Physical Review B* 55, (1997) 9275.
- [38] L. Bányai and S.W. Koch, *Semiconductor quantum dots*, (World Scientific, Singapore, 1993).
- [39] G. Bastard, *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*, (Les Editions de Physique, Paris, 1988).

- [40] M.S. Reiman and M. Manninen, *Reviews of Modern Physics* 74, (2002) 1283.
- [41] A. Gonzalez and R. Capote, *Physical Review B* 66, (2002) 113311.
- [42] R. Perez, A. Gonzalez and J. Mahecha, *Journal of Physics: Condensed Matter* 15, (2003) 7681.
- [43] Y. Saad, *Numerical Methods for Large Eingenvalue Problems* (Halstead Press, New York, 1992).
- [44] T. Brocke, M.-T. Bootsmann, M. Tews, B. Wunsch, D. Pfannkuche, Ch. Heyn, W. Hansen, D. Heitmann, and C. Schüller, *Physical Review Letters* 91, (2003) 257401.
- [45] N.H. Bonadeo *et al.*, *Science* 282, (1998) 1473.
- [46] T. Takagahara, *Physical Review B* 60, (1999) 2638.
- [47] G. Danan, A. Pinczuk, J.P. Valladares, L.N. Pfeiffer, K.W. West, and C.W. Tu, *Physical Review B* 39, (1989) 5512.
- [48] P.D. Wang, Y.P. Song, C.M. Sotomayor Torres, M.C. Holland, D.J. Lockwood, P. Hawrylak, J.J. Palacios, P.C.M. Christianen, J.C. Maan, and J.A.A.J. Perenboom, *Superlattices Microstruct.* 15, (1994) 23.
- [49] R. Strentz, U. Bockelmann, F. Hirler, G. Abstreiter, G. Böhm, and G. Weimann, *Physical Review Letters* 73, (1994) 3022.
- [50] D.J. Lockwood, P. Hawrylak, P. D. Wang, C.M. Sotomayor Torres, A. Pinczuk and B.S. Dennis, *Physical Review Letters* 77, (1996) 354.
- [51] G. Biese, C. Schüller, K. Keller, C. Steinebach, D. Heitmann, P. Grambow, and K. Eberl, *Physical Review B* 53, (1996) 9565.
- [52] C. Schüller, G. Biese, K. Keller, C. Steinebach, D. Heitman, P. Grambow, and K. Eberl, *Physical Review B* 54, (1996) 17304 (R).
- [53] G. Biese, E. Ulrichs, L. Rolf, C. Schüller, C. Steinebach, S. Borgstädt-Franke, Ch. Heyn, D. Heitmann, and K. Eberl, *Physica E* 2, (1998) 619.
- [54] C. Schüller, K. Keller, G. Biese, E. Ulrichs, L. Rolf, C. Steinebach, D. Heitmann, and K. Eberl, *Physical Review Letters* 80, (1998) 2673.
- [55] C. Schüller, *Physica E* 3, (1998) 121.
- [56] C.M. Sotomayor Torres, D.J. Lockwood, and P.D. Wang, *Journal of Electronic Materials* 29, (2000) 576.
- [57] C. Shüller, C. Steinebach, D. Heitmann, *Solid State Communications* 119, (2001) 323.
- [58] A.O. Govorov and L.I. Magarill, *Physics of the Solid State* 36 (2), (1994) 139.
- [59] A. Brataas, A.G. Malshokov, V. Gudmundsson, K.A. Chao, *Journal of Physics: condensed matter* 8, (1996) 325.

- [60] C. Steinebach, R. Krahne, G. Biese, C. Shüller, D. Heitmann, K. Eberl, Physical Review B 54, (1996) 14281(R).
- [61] C. Steinebach, C. Shüller, G. Biese, D. Heitmann, K. Eberl, Physical Review B 57, (1998) 1703.
- [62] O. Steffens, M. Suhrke, Physical Review Letters 82, (1999) 3891.
- [63] M. Pi, M. Barranco, A. Emperador, E. Lipparini, Li Serra, Physical Review B 57, (1998) 14783.
- [64] Li Serra, M. Barranco, A. Emperador, M. Pi, E. Lipparini, Physical Review B 59, (1999) 15290.
- [65] E. Lipparini, M. Barranco, A. Emperador, M. Pi, Li Serra, Physical Review B 60, (1999) 8734.
- [66] M. Barranco, L. Colletti, A. Emperador, E. Lipparini, M. Pi, and L. Serra, Physical Review B 61, (2000) 8289.
- [67] A. Mooradian, Physical Review Letters 20, (1968) 1102.
- [68] C. Steinebach, C. Shüller, D. Heitmann, Physical Review B 59, (1999) 10240.
- [69] César Pascual García, Vittorio Pellegrini, Aron Pinczuk, Massimo Rontani, Guido Goldoni, Elisa Molinari, Brian S. Dennis, Loren N. Pfeiffer and Ken W. West, Physical Review Letters 95, (2005) 266806.
- [70] A. Delgado, A. González, *Inelastic light scattering and the excited states of many-electron quantum dots*, Journal of Physics: Condensed Matter, (2003) 4259.
- [71] A. Delgado, A. Gonzalez, D.J. Lockwood, *Semiquantitative theory of electronic Raman scattering from medium-size quantum dots*, Physical Review B 69, (2004) 155314.
- [72] A. González, A. Delgado, *Resonancia ciclotrónica y dispersión inelástica de luz en puntos cuánticos semiconductores*, Revista Cubana de Física, 21 (2004) 12.
- [73] A. Gonzalez, A. Delgado, *Inelastic light scattering and the off-resonance approximation*, Physica E 27, (2005) 5.
- [74] A. Delgado, A. González, D.J. Lockwood, *Electronic Raman scattering in quantum dots revisited*, Solid State Communications 135 (2005) 554.
- [75] A. Delgado, A. González, D.J. Lockwood, *Selection and jump rules in electronic Raman scattering from GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As artificial atoms*, Physical Review B 71, (2005) 241311(R).
- [76] A. Delgado, A. González and E. Menéndez-Proupin, *Resonant Raman scattering off neutral quantum dots*, Physical Review B 65, (2002) 155306.
- [77] B. A. Rodriguez and A. Gonzalez, Physical Review B 63, (2001) 205324.

- [78] B.A. Rodriguez, A. Gonzalez, L. Quiroga, R. Capote, and F.J. Rodriguez, International Journal of Modern Physics B 14, (2000) 71.
- [79] A. Delgado, L. Lavin, R. Capote and A. González, Physica E 8 (2000) 342-348.
- [80] R. Capote, A. Delgado and A. González, Modern Physics Letters B 15 (2001) 81 - 87.
- [81] Landolt-Bornstein, *Numerical Data and Functional Relationship in Science and Technology*, group III, Volume 17 (Springer Verlag, Berlin, 1982).
- [82] Charles Kittel, *Introduction to solid state physics*, (John Wiley & Sons, 1996).
- [83] N.W. Ashcroft and N.D. Mermin, *Solid State Physics*, (HoltRinehart and Winston, New York, 1976).
- [84] Peter Y. Yu, Manuel Cardona, *Fundamentals of semiconductors*, (Springer-Verlag, Berlin, 1999).
- [85] M. Guzzi, E. Grillis, S. Oggioni, J. L. Staehli, C. Bosio, and L. Pavesi, Physical Review B 5, (1992) 10951.
- [86] T. Forchhammer, E. Veje, and P. Tidemand-Petersson, Physical Review B 52, (1995) 14693.
- [87] H. J. Lee, L. Y. Juravel, J. C. Woolley, and A. J. SpringThorpe, Physical Review B 21, (1980) 659.
- [88] P. Ring, P. Schuck, *The Nuclear Many-Body Problem*, (Springer-Verlag, Berlin, 1980).
- [89] A.H. MacDonald, G.C. Aers, Physical Review B 29, (1984) 5976.
- [90] J. M. Luttinger and W. Kohn, Physical Review 97, (1955) 869.
- [91] J. M. Luttinger, Physical Review 102, (1956) 1030.
- [92] D. Bohm and D. Pines, Physical Review 92, (1953) 609.
- [93] D.J. Rowe, Reviews of Modern Physics 40, (1968) 153.
- [94] D.J. Rowe, *Nuclear Collective Motion*, (Methuen, London, 1970).
- [95] G.E. Brown, J.A. Evans and D.J. Thouless, Nuclear Physics 24, (1961) 1.
- [96] G.E. Brown, *Unified Theory of Nuclear Models*, (North Holland, Amsterdam, 1964).
- [97] D.J. Thouless, Nuclear Physics 22, (1961) 78.
- [98] L. Brillouin, Compt. Rend. 158 (1914) 1331.
- [99] L. Brillouin, Ann. Phys. (Paris) 17 1922 88.
- [100] A. Smekal, Naturwiss. 11 (1923) 873.
- [101] C.V. Raman and K.S. Krishnan, Ind. J. Phys 2 (1928) 387.
- [102] C.V. Raman and K.S. Krishnan, Nature 121 (1928) 501.

- [103] G. Landsberg and L. Mandelstam, *Naturwiss.* 16 (1928) 557.
- [104] L.D. Landau and E.M. Lifshitz, *Quantum mechanics: Non-relativistic theory*, (Pergamon Press, London, 1965).
- [105] El denominador  $E_{\text{int}} - E_i + h\nu_f$  puede expresarse como  $E_{\text{int}} - E_i + (h\nu_i - \Delta E)$ . Tomando en cuenta que los valores de  $\Delta E$ , correspondientes a las excitaciones electrónicas, son del orden de los meV y la frecuencia de la luz incidente es del orden de los eV podemos escribir  $E_{\text{int}} - E_i + (h\nu_i - \Delta E) \approx E_{\text{int}} - E_i + h\nu_i \approx 2E_{\text{gap}}$ . En el caso del GaAs  $2E_{\text{gap}} \approx 3000\text{meV}$ . Nuestros cálculos incluyendo ambos términos en la suma por estados intermedios de la ecuación (4.33) han mostrado que la contribución del término no resonante es insignificante.
- [106] M. Cardona (ed.), *Light scattering in solids*, 2nd edition, (Springer-Verlag, New-York, 1982).
- [107] A.R. Goni, A. Pinczuk, J.S. Weiner, J.M. Calleja, B.S. Dennis, L.N. Pfeiffer, and K.W. West, *Physical Review Letters* 67, (1991) 3298.
- [108] A. Pinczuk, B.S. Dennis, L.N. Pfeiffer, and K.W. West, *Philos. Mag. B* 70, (1994) 429.
- [109] Daw-Wei Wang and S. D. Sarma, *Physical Review B* 65, (2002) 125322.
- [110] J. Shah, *Ultrafast spectroscopy of semiconductors and semiconductor nanostructures* (Springer-Verlag, New-York, 1999).
- [111] H. Htoon, D. Kulik, O. Baklenov, A.L. Holmes, Jr., T. Takagahara, and C.K. Shih, *Physical Review B* 63 (2001) 241303(R).
- [112] A. Odriazola, A. Gonzalez and A. Delgado, trabajo en curso.
- [113] Judah M. Eisenberg, Walter Greiner, *Nuclear Models: Collective and Single-Particle Phenomena*, (North-Holland, Amsterdam, 1987)
- [114] M. Abramowitz, and I.A. Stegun, (*Handbook of Mathematical Functions*, Dover Publications, New York, 1972).