

Universidade Federal de São Carlos  
Departamento de Física

**Efeitos da interação de plasma na  
absorção ótica em uma super-rede  
randômica de pontos quânticos.**

Eduardo de Paula Abreu

Tese apresentada ao Departamento de  
Física da Universidade Federal de São  
Carlos, para obtenção do título de  
**Doutor em Física.**

Orientador: Prof. Dr. Paulo Daniel Emmel

Departamento de Física  
São Carlos – 2004

**Ficha catalográfica elaborada pelo DePT da  
Biblioteca Comunitária/UFSCar**

A162ei

Abreu, Eduardo de Paula.

Efeitos da interação de plasma na absorção ótica em uma super-rede randômica de pontos quânticos / Eduardo de Paula Abreu. -- São Carlos : UFSCar, 2004.

101 p.

Tese (Doutorado) -- Universidade Federal de São Carlos, 2004.

1. Matéria condensada (propriedade ótica). 2. Método de Monte Carlo. 3. Simulação. 4. Coeficiente de absorção ótica. 5. Ponto quântico. I. Título.

CDD: 530.41 (20<sup>a</sup>)

*Dedico a meus pais e meus irmãos.*

# Agradecimentos

- Os mais sinceros agradecimentos ao Prof. Dr. Paulo Daniel Emmel, pela boa vontade, paciência, dedicação e pelo grande espírito de profissionalismo.
- Aos professores Gilberto Prata, Marcos César de Oliveira, Sergio Mergulhão, Luiz Eugênio Machado, Salomon, Adenilson Chiquito, Davi Vianna, Yury Pusep, Paulo Pizani, Miled, José Pedro Rino e a todos os outros professores pelo conhecimento, experiência e amizade.
- Ao Roberto Serra, Fabiano, Bittencourt, Sanderson, William, Denilson, Graça, Moreira, Edmar, Rita, Rodrigo, Destefani, Marcelo, Celso, Villas, Silvio, Vitor, Tânia, Norton, Barreto, Marcos Veríssimo, Eudes, Fabrício, Míriam, Giovani e a todos os outros colegas, pelas amplas discussões e críticas que sempre me motivaram.
- Aos funcionários do Departamento de Física pela colaboração e amizade.
- Aos meus pais e meus irmãos por torcer e acreditar em mim.
- À CAPES pelo tão necessário e indispensável apoio financeiro.

## Resumo

### **Efeitos da interação de plasma na absorção ótica em uma super-rede randômica de pontos quânticos.**

Neste trabalho são calculados os estados fundamental e primeiro excitado do elétron em redes uni-dimensionais, bi-dimensionais e multicamadas de pontos quânticos cilíndricos interagentes contendo no máximo um elétron e considerando barreira de potencial infinita e finita. As dimensões e o número de ocupação dos pontos quânticos são escolhidas aleatoriamente usando o método de Monte Carlo. Para o caso de barreira finita calculamos os níveis de energia através da Teoria do Funcional da Densidade (DFT). Calculamos a função envelope considerando a aproximação da massa efetiva e usando o método numérico desenvolvido por Samita Gangopadhyay e B.R. Nag. Uma vez obtido os níveis de energia, calculamos o coeficiente de absorção considerando a interação elétron-elétron. Os cálculos mostram a influência da interação de plasma na absorção. Os resultados demonstram uma mudança do coeficiente de absorção como uma função da densidade de pontos quânticos. Quando o campo elétrico é aplicado o pico de absorção se move para a direita indicando uma resposta coletiva de elétrons localizados interagentes.

## Abstract

### Effects of the plasma interaction in the optic absorption in a random superlattices of quantum dots.

In this work the ground and first excited states of the electron are calculated in interacting one-dimensional, two-dimensional lattices and multilayers of cylindrical quantum dots containing at the most an electron and considering both infinite and finite potential barriers. The dimensions and the occupation of the quantum dots are chosen randomly using Monte Carlo's method. In the case of finite barrier we calculated the levels of energy through the Density Functional Theory (DFT ). We calculated the envelope function considering the effective mass approximation and using the numeric method developed by Samita Gangopadhyay and B.R. Nag. Once obtained the levels of energy, we calculated the absorption coefficient considering the electron-electron interaction. The calculations show the influence of the plasma interaction in the absorption. The results demonstrate a change of the absorption coefficient as a function of the density of quantum dots. When the electric field is applied the absorption peak moves to the right indicating a collective response of interacting localized electrons.

# Sumário

<b>1</b>	<b>Introdução</b>	<b>10</b>
<b>2</b>	<b>O método numérico de Samita Gangopadhyay e B.R. Nag</b>	<b>17</b>
<b>3</b>	<b>Excitações Óticas Coletivas em Super-Redes de Pontos Quânticos</b>	<b>30</b>
<b>4</b>	<b>Resultados, Discussões e Conclusões</b>	<b>36</b>
4.1	Níveis de Energia e Funções Envelope . . . . .	36
4.2	Absorção ótica . . . . .	38
<b>A</b>	<b>Integral multidimensional</b>	<b>56</b>
<b>B</b>	<b>Sistema efetivo de unidades</b>	<b>62</b>
<b>C</b>	<b>A Aproximação da Massa Efetiva e a Função Envelope</b>	<b>64</b>
<b>D</b>	<b>Teoria do funcional da densidade</b>	<b>76</b>
D.1	O teorema de Hohenberg-Kohn . . . . .	76
D.2	As equações autoconsistentes . . . . .	79
<b>E</b>	<b>Publicações</b>	<b>86</b>

# Lista de Figuras

1-1	Sistema contendo os componentes do sistema de crescimento MBE. . . .	11
1-2	Esquema das células de evaporação do sistema de crescimento MBE. . . .	12
1-3	(a) rede unidimensional de pontos quânticos cilíndricos; (b) rede bidimensional de pontos quânticos cilíndricos. . . . .	13
1-4	Super-rede de pontos quânticos cilíndricos. . . . .	14
2-1	Barreira de potencial finita do ponto quântico esférico de raio $a$ . . . . .	19
2-2	Função de onda do estado fundamental para um ponto quântico esférico de raio $a = 4,5$ nm. . . . .	24
2-3	Função de onda do primeiro estado excitado para um ponto quântico esférico de raio $a = 4,5$ nm. . . . .	25
2-4	Função de onda do estado fundamental do ponto quântico esférico de raio $a = 4,5$ nm: (a) resultado analítico; (b) resultado numérico. . . . .	26
2-5	Função de onda do primeiro estado excitado do ponto quântico esférico de raio $a = 4,5$ nm: (a) resultado analítico; (b) resultado numérico. . . . .	27
2-6	Comparação entre as energias calculadas com barreira infinita e finita do ponto quântico esférico: (a) estado fundamental; (b) primeiro estado excitado. . . . .	29
4-1	Função de onda para o ponto quântico cilíndrico de raio 5,0 nm e altura 10,0 nm:(a) estado fundamental ; (b) primeiro estado excitado. . . . .	37

4-2	Energia de interação coulombiana entre dois pontos quânticos com raio de 10 nm e altura de 5nm; (a) ângulo entre os dois pontos quânticos; (b) e (c) as energias para o caso de campo elétrico aplicado na direção $z$ e $x$ , respectivamente. . . . .	41
4-3	Energia de interação entre dois dipolos: (a) campo elétrico na direção $z$ ; (b) campo elétrico na direção $x$ . . . . .	42
4-4	Comparação entre as energias de Hartree e de troca para dois pontos quânticos cilíndricos de raio 10,8 nm e altura de 2,1 nm onde o eixo horizontal representa a distância entre os pontos quânticos e o eixo vertical a energia de interação. . . . .	44
4-5	Potencial dado pela expressão (4.5) para um ponto quântico cilíndrico de raio 10,8 nm e altura 2,1 nm. . . . .	45
4-6	Coeficiente de absorção para redes randômicas de pontos quânticos cilíndricos com barreira de potencial infinita: (a) rede linear de pontos quânticos de raio médio de 10,8 nm e altura média de 2,1 nm com campo elétrico aplicado na direção $x$ ; (b) rede planar de pontos quânticos de raio médio de 3,1 nm e altura média de 30,0 nm com campo elétrico aplicado na direção $z$ ; . . . . .	48
4-7	Coeficiente de absorção para redes randômicas de pontos quânticos cilíndricos com barreira de potencial finita: (a) rede linear de pontos quânticos de raio médio de 10,8 nm e altura média de 2,1 nm com campo elétrico aplicado na direção $x$ ; (b) rede planar de pontos quânticos de raio médio de 3,1 nm e altura média de 30,0 nm com campo elétrico aplicado na direção $z$ . . . . .	49
4-8	Absorção para uma super-rede randômica com multicamadas de pontos quânticos cilíndricos com barreira de potencial infinita: (a) pontos quânticos de raio médio de 10,8 nm e altura média de 2,1 nm com campo elétrico na direção $x$ ; (b) pontos quânticos de raio médio de 3,1 nm e altura média de 30,0 nm com campo elétrico na direção $z$ . . . . .	50

4-9	Coefficiente de absorção para rede randômica bi-dimensional de pontos quânticos cilíndricos de raio médio 30 nm e altura média 60 nm com campo elétrico aplicado na direção z. . . . .	51
4-10	Módulo e fase da amplitude de excitação dos osciladores:(a) longe da energia de ressonância coletiva $E=71,9$ meV; (b) próximo da energia de ressonância coletiva $E=79,7$ meV. . . . .	54
4-11	Módulo e fase da amplitude de excitação dos osciladores:(a) longe da energia de ressonância coletiva $E=26,2$ meV; (b) próximo da energia de ressonância coletiva $E=43,3$ meV. . . . .	55
C-1	Interface de dois materiais com massas efetivas diferentes. . . . .	72
C-2	Descontinuidade na derivada da função envelope na interface entre dois materiais diferentes para um ponto quântico esférico de raio 4,5 nm devido às condições de contorno de Ben-Daniel e Duke. . . . .	75

# Lista de Tabelas

2.1	Energia do ponto quântico esférico de raio $a=4,5$ nm. . . . .	23
2.2	Energia do ponto quântico esférico de raio 4,5 nm. . . . .	23
2.3	Comparação das energias obtidas com barreira de potencial finita e infinita para um ponto quântico de raio 4,5 nm. . . . .	24
4.1	Energia do ponto quântico cilíndrico de raio 5 nm e altura 10 nm. . . . .	36
4.2	Comparação das energias obtidas para o ponto quântico cilíndrico de raio 5 nm e altura 10 nm com barreira de potencial finita e infinita. . . . .	38
D.1	Auto-energia da equação radial do átomo de Hélio como uma função do número de iterações.. . . .	84

# Capítulo 1

## Introdução

O grande progresso teórico e experimental da física do estado sólido nas últimas duas décadas tornou possível reduzir a dimensão de um sistema tridimensional para um sistema quase zero-dimensional chamado de ponto quântico, caixa quântica ou ainda átomo artificial, que pode ser fabricado pela técnica de crescimento de cristais por Feixe Molecular Epitaxial (MBE-Molecular Beam Epitaxy). Um esquema desta técnica é mostrado na Fig. 1-1[1].

Esta técnica foi criada no final dos anos 60 por Cho [2] e Arthur [3] e ela consiste no crescimento de filmes finos sobre um material base chamado de substrato. Em ultra-alto vácuo feixes moleculares provenientes de células de evaporação isoladas termicamente uma das outras, aquecidas através de resistências elétricas, incidem sobre o substrato, formando as sucessivas camadas da estrutura. O controle dos feixes é feito abrindo e fechando obturadores contidos em cada célula. Na Fig. 1-2 é apresentado um esquema contendo os elementos básicos de um moderno sistema de MBE.

Nos pontos quânticos, os efeitos de confinamento quântico têm atraído uma considerável atenção por causa de suas propriedades óticas. Estas propriedades nos mostram como os sólidos respondem a uma radiação externa aplicada absorvendo, transmitindo ou refletindo a radiação incidente e podem ser controladas pela escolha da forma e

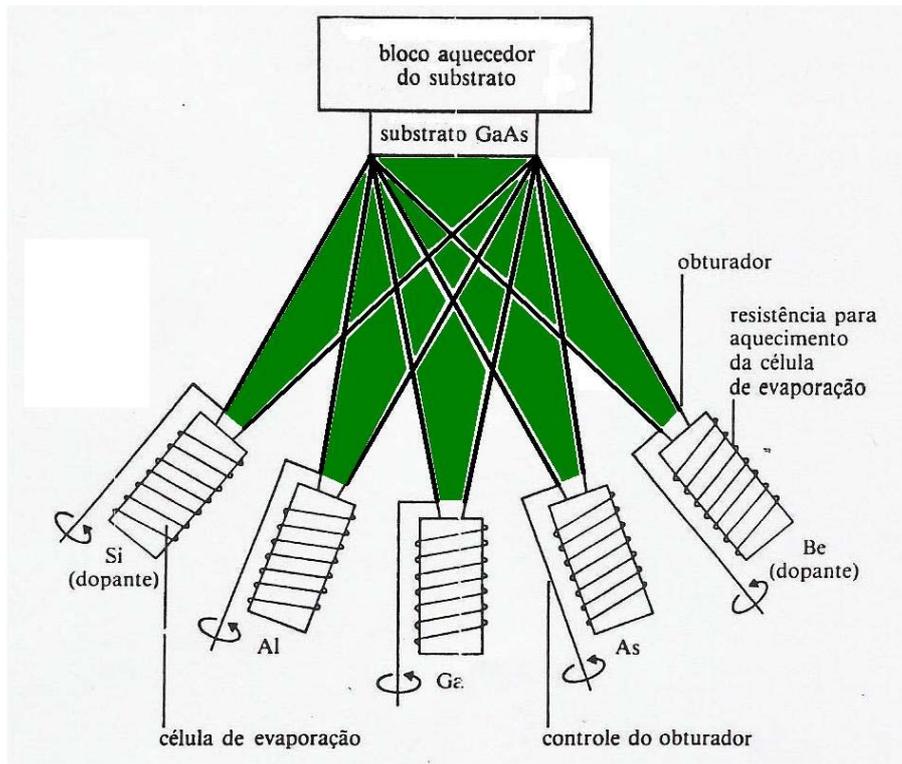


Figura 1-1: Sistema contendo os componentes do sistema de crescimento MBE.

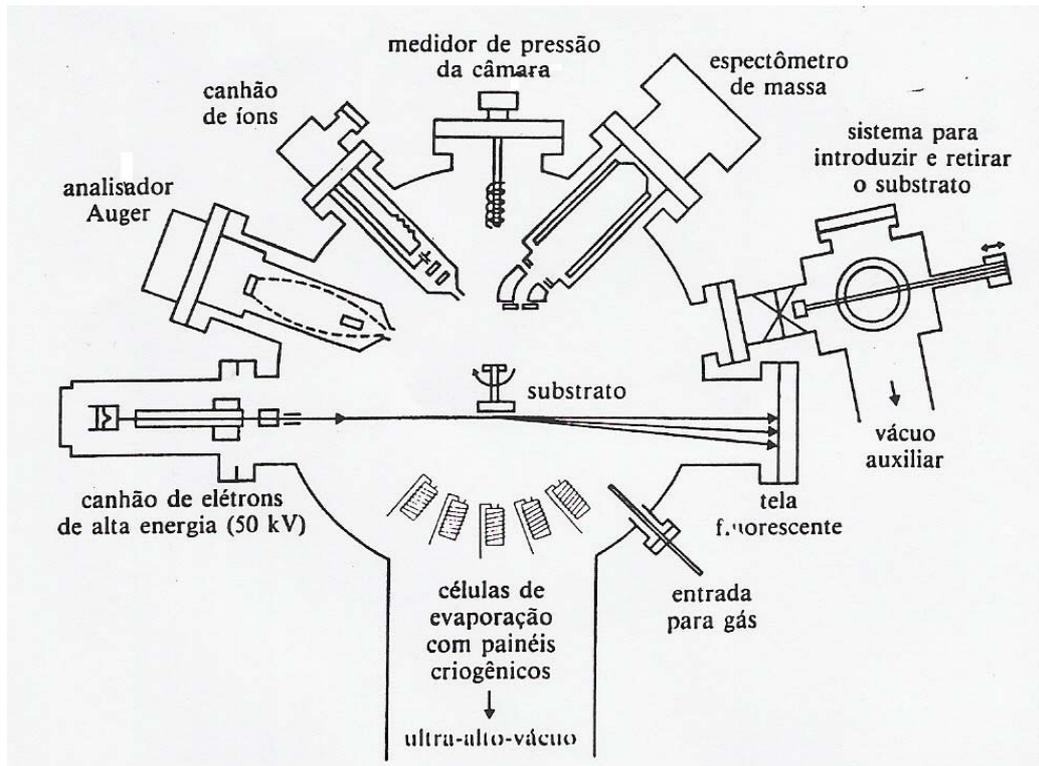


Figura 1-2: Esquema das células de evaporação do sistema de crescimento MBE.

tamanho dos pontos quânticos. Camadas de pontos quânticos são usadas na fabricação de fotodetetores e lasers[4], [5], [6], [7].

Metzner e Döhler desenvolveram uma teoria que considera os efeitos das interações estática e dinâmica dos elétrons localizados interagentes no coeficiente de absorção ótica[9], [18], [28]. Resultados experimentais [14], [15] mostram evidências da resposta coletiva de elétrons localizados interagentes também chamada de resposta de plasma.

Nesta tese estudamos a absorção ótica em redes randômicas uni-dimensional, bi-dimensional e também multicamadas de pontos quânticos cilíndricos que possuem dimensões aleatórias, conforme mostram as figuras 1-3 e 1-4.

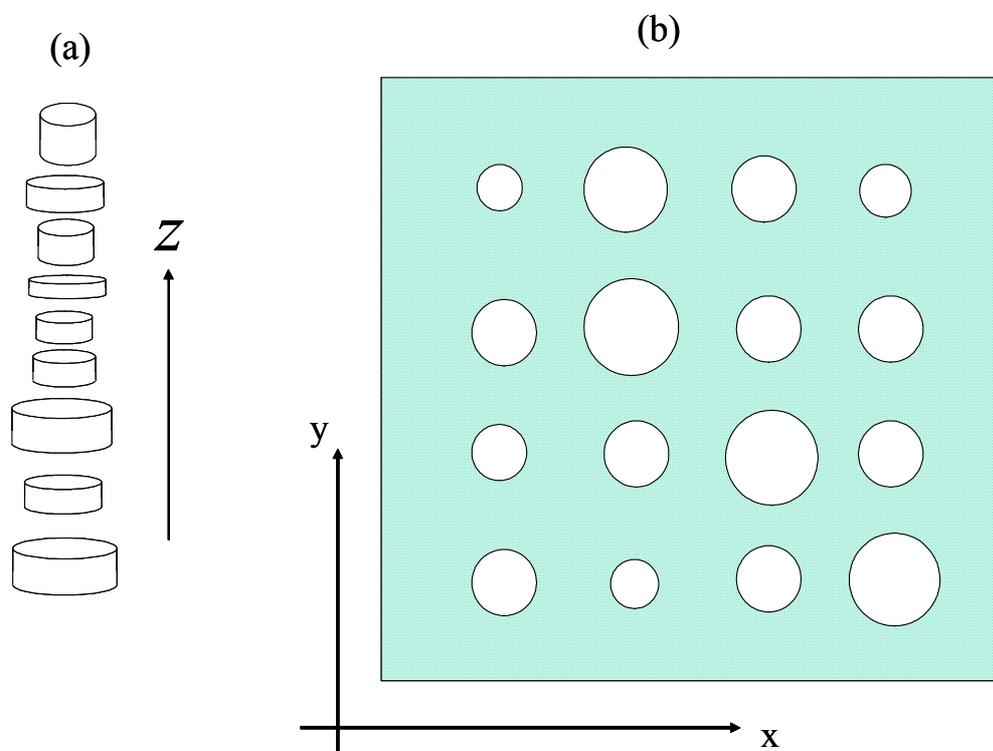


Figura 1-3: (a) rede unidimensional de pontos quânticos cilíndricos; (b) rede bidimensional de pontos quânticos cilíndricos.

Estudamos este sistema usando a Aproximação da Massa Efetiva (AME) desenvolvida por Luttinger e Kohn [10] e condições de contorno dadas por Ben-Daniel e Duke [11].

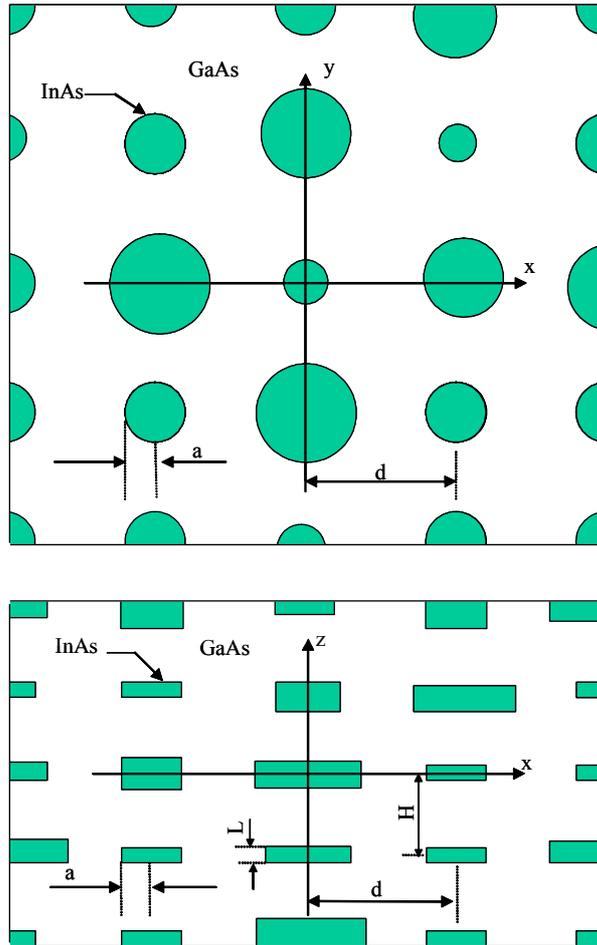


Figura 1-4: Super-rede de pontos quânticos cilíndricos.

Consideramos que cada ponto quântico possui no máximo um elétron o qual é escolhido aleatoriamente. Os elétrons dos pontos quânticos interagem entre si e estas interações modificam seus níveis de energia. Calculamos a absorção ótica considerando barreira de potencial finita e infinita para os pontos quânticos, onde para o caso de barreira de potencial infinita, os níveis de energia do elétron apresentam valores maiores do que os valores reais devido ao maior confinamento do elétron, o que faz com que os resultados não fiquem muito bons. Já para o caso onde consideramos a barreira de potencial finita os níveis de energia são mais próximos do valor real, além disso usamos a Teoria do Funcional da Densidade DFT (Density Functional Theory ) que de acordo com seus entusiastas é uma das mais populares e bem sucedidas abordagens quânticas da matéria [12], [13]. Juntamente com DFT utilizamos o método numérico de Samita Gangopadhyay e B.R. Nag para achar a função envelope para o caso de barreira finita.

Dependendo da densidade de pontos quânticos e também da direção do campo elétrico aplicado neste sistema haverá um estreitamento e deslocamento do pico de absorção comparado com a energia de transição de uma única partícula. Esta mudança do pico de absorção reflete uma ressonância coletiva do sistema (resposta do plasma), ao campo elétrico aplicado [9].

No segundo capítulo desta tese descreveremos o método numérico de Samita Gangopadhyay e B.R. Nag para determinar a função envelope e energia dos pontos quânticos com barreira de potencial finita. Primeiro fazemos um cálculo para pontos quânticos esféricos e comparamos com o resultado obtido analiticamente. Depois esse mesmo método, será usado para calcularmos a energia e função envelope de pontos quânticos cilíndricos.

O terceiro capítulo traz o método de Metzner e Dohler [9], [18] que é usado para o cálculo da absorção em pontos quânticos levando em conta a interações de Hartree e de troca dinâmicas e estáticas entre os elétrons.

O quarto capítulo apresenta os resultados, discussões e conclusões de nossos cálculos realizados para a absorção ótica das redes de pontos quânticos.

No apêndice A mostramos como calculamos numericamente a interação de Coulomb

usando dois métodos que são a simulação de Monte Carlo e a quadratura com interpolação. No apêndice B mostramos o sistema efetivo de unidades, usados neste trabalho. No apêndice C apresentamos a aproximação da massa efetiva e a função envelope. No apêndice D apresentamos uma discussão sobre a teoria do funcional da densidade que é usada para calcular as energias dos elétrons levando em conta as interações de Hartree e de troca estáticas em um sistema de muitos elétrons e fazemos uma aplicação dessa teoria para o cálculo da energia do átomo de Hélio. No apêndice E anexamos uma cópia de um artigo e um proceeding que publicamos durante a realização desta tese.

# Capítulo 2

## O método numérico de Samita Gangopadhyay e B.R. Nag

Vamos considerar o problema de encontrar os níveis de energia de um elétron confinado em um potencial  $V(\vec{r})$ . A equação de Schrödinger para a função envelope de um elétron na aproximação da massa efetiva (apêndice C) para o potencial  $V(\vec{r})$  é dada por

$$-\frac{\hbar^2}{2} \nabla \cdot \left( \frac{1}{m^*(\vec{r})} \nabla \right) \Psi(\vec{r}) + V(\vec{r}) \Psi(\vec{r}) = E \Psi(\vec{r}) \quad (2.1)$$

onde  $\Psi$ ,  $m^*(r)$ ,  $V(\vec{r})$  e  $E$  são a função envelope, a massa efetiva, o potencial de confinamento e os autovalores, respectivamente. Resolveremos a Eq.(2.1) numericamente usando um método numérico desenvolvido por Samita Gangopadhyay e B.R. Nag[16] onde a função envelope  $\Psi(\vec{r})$  é expandida em um conjunto ortonormal de funções periódicas (funções base), que são soluções para um poço quântico de altura de barreira infinita e dimensões  $L_x$ ,  $L_y$  e  $L_z$ , ou seja:

$$\Psi(\vec{r}) = \sum_{lmn} a_{lmn} \psi_{lmn}(\vec{r}), \quad (2.2)$$

onde

$$\begin{aligned} \psi_{lmn} = & \sqrt{\frac{2}{L_x}} \text{sen} \left[ l\pi \left( \frac{1}{2} - \frac{x}{L_x} \right) \right] \sqrt{\frac{2}{L_y}} \text{sen} \left[ m\pi \left( \frac{1}{2} - \frac{y}{L_y} \right) \right] \\ & \times \sqrt{\frac{2}{L_z}} \text{sen} \left[ n\pi \left( \frac{1}{2} - \frac{z}{L_z} \right) \right]. \end{aligned} \quad (2.3)$$

Os domínios que escolhemos foram  $[-L_x/2, L_x/2]$ ,  $[-L_y/2, L_y/2]$  e  $[-L_z/2, L_z/2]$ . Uma vantagem deste método é que ele pode ser aplicado para estruturas de formas arbitrárias e portanto aplicável para um potencial de confinamento de forma arbitrária. Substituindo a Eq.(2.2) na Eq.(2.1), multiplicando à esquerda por  $\psi_{lmn}^*$ , e finalmente integrando sobre o cubo de lado  $L_x$ ,  $L_y$  e  $L_z$ , temos a equação matricial

$$\sum (M_{lmnl'm'n'} - E\delta_{ll'}\delta_{mm'}\delta_{nn'}) a_{lmn} = 0, \quad (2.4)$$

onde usamos a ortonormalidade das funções de onda. Os elementos de matriz  $M_{lmnl'm'n'}$  são dados por

$$\begin{aligned} M_{lmnl'm'n'} = & -\frac{\hbar^2}{2} \int \psi_{l'm'n'}^* \nabla \cdot \left( \frac{1}{m^*(x, y, z)} \nabla \right) \psi_{lmn} dx dy dz \\ & + \int \psi_{l'm'n'}^* V(\vec{r}) \psi_{lmn} dx dy dz. \end{aligned} \quad (2.5)$$

Fazendo a derivada, a primeira integral na Eq.(2.5) torna-se

$$\begin{aligned} -\frac{\hbar^2}{2} \left[ \int \psi_{l'm'n'}^* \left( \nabla \frac{1}{m^*(x, y, z)} \right) \cdot (\nabla \psi_{lmn}) dx dy dz + \right. \\ \left. \int \psi_{l'm'n'}^* \frac{1}{m^*(x, y, z)} \nabla \cdot (\nabla \psi_{lmn}) dx dy dz \right]. \end{aligned} \quad (2.6)$$

Integrando por partes a segunda integral da equação acima, obtemos

$$M_{lmnl'm'n'} = \frac{\hbar^2}{2} \int \frac{1}{m^*(x, y, z)} \nabla \psi_{l'm'n'}^* \cdot \nabla \psi_{lmn} dx dy dz +$$

$$\int \psi_{l'm'n'}^* V(r) \psi_{lmn} dx dy dz. \quad (2.7)$$

Resolvendo a Eq. (2.4) obtemos os autovalores.

Um número suficientemente grande de funções base é escolhido de modo a assegurar que os autovalores tenham a precisão desejada. Esse número aumenta com o aumento nos valores escolhidos de  $L_x$ ,  $L_y$  e  $L_z$ . Os valores de  $L_x$ ,  $L_y$  e  $L_z$  e o número de funções base são escolhidos por tentativa. Os valores são obtidos de maneira que a precisão desejada seja obtida e o tempo computacional não seja muito longo.

Vamos usar este método para encontrar os níveis de energia de um elétron confinado em um ponto quântico esférico de raio  $a$  com barreira de potencial finito conforme é mostrado na Fig. 2-1.

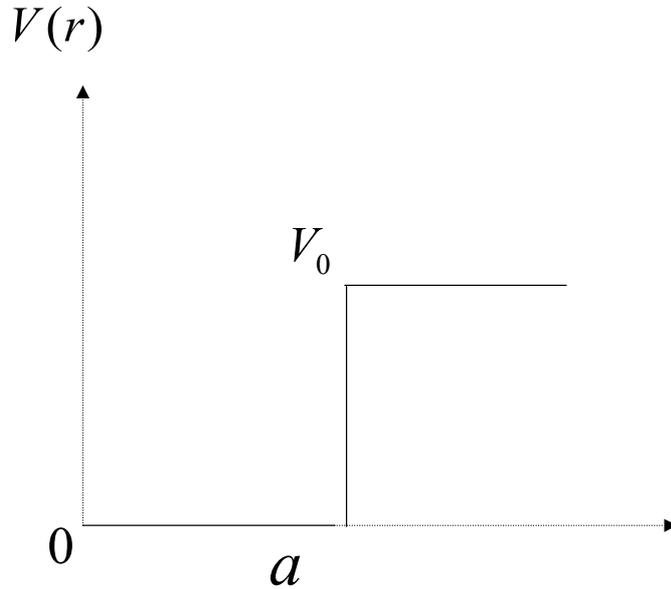


Figura 2-1: Barreira de potencial finita do ponto quântico esférico de raio  $a$ .

Este é o único caso de potencial tridimensional finito que se pode fazer separação de variáveis e resolver a equação de Schrödinger analiticamente, mas vamos resolvê-lo numericamente e depois comparar com o caso analítico. Conforme é mostrado na Fig.

2-1 o potencial dentro do poço vale zero e vale  $V_0$  fora do poço.

Vamos primeiramente achar os elementos de matriz  $M_{lmn'l'm'n'}$  dados pela expressão (2.7) e para isso temos que resolver o problema da dependência espacial da massa efetiva na integral, isto é, a descontinuidade de seu valor quando ela passa da região do poço para a região da barreira. Para contornar este problema, dividimos a integral em três partes, cada uma das quais com massa efetiva constante. Primeiro fazemos a integração com  $m^* = m_b$  sobre todo o cubo (ou seja barreira mais o poço); segundo, subtraímos a integral com  $m^* = m_b$  na região do poço; e terceiro adicionamos a integral com  $m^* = m_w$  na região do poço.

O mesmo procedimento é adotado para a integral que contém o potencial, que é zero na região do poço e finalmente teremos

$$\begin{aligned}
M_{lmn'l'm'n'} &= \left[ \frac{\hbar^2 \pi^2}{2} \frac{1}{m_B} \left( \frac{ll'}{L_x^2} + \frac{mm'}{L_y^2} + \frac{nn'}{L_z^2} \right) + V_0 \right] \\
&\times \delta_{ll'} \delta_{mm'} \delta_{nn'} + \frac{\hbar^2}{2} \left( \frac{1}{m_w} - \frac{1}{m_b} \right) \\
&\times \int_w \nabla \psi_{l'm'n'}^* \nabla \psi_{lmn} dx dy dz \\
&- V_0 \int_w \psi_{l'm'n'}^* \psi_{lmn} dx dy dz, \tag{2.8}
\end{aligned}$$

Encontrando os elementos de matriz  $M_{lmn'l'm'n'}$  e substituindo na equação matricial (2.4) obtemos os autovalores.

A equação de Schrödinger para a função envelope na aproximação da masa efetiva para o potencial esférico acima pode ser escrita como

$$\begin{aligned}
-\frac{\hbar^2}{2m_w} \nabla^2 \Psi_1(r, \theta, \varphi) &= E \Psi_1(r, \theta, \varphi), \text{ para } r < a \\
\left( -\frac{\hbar^2}{2m_b} \nabla^2 + V_0 \right) \Psi_2(r, \theta, \varphi) &= E \Psi_2(r, \theta, \varphi), \text{ para } r > a, \tag{2.9}
\end{aligned}$$

onde  $m_w$  e  $m_b$  são as massas efetivas do material do poço e da barreira respectivamente,  $a$  é o raio do ponto quântico e  $V_0$  é constante. Escrevendo as equações acima no sistema

efetivo de unidades (apêndice B), temos:

$$\begin{aligned} -\nabla^2\Psi_1(r, \theta, \varphi) &= E\Psi_1(r, \theta, \varphi), \text{ para } r < a \\ -\nabla^2\Psi_2(r, \theta, \varphi) &= \frac{m_b}{m_w}(E - V_0)\Psi_2(r, \theta, \varphi), \text{ para } r > a. \end{aligned} \quad (2.10)$$

A solução analítica, para a equação (2.10) para  $r < a$ , é dada por

$$\Psi_{l,m,k}(r, \theta, \varphi) = A j_l(kr) Y_l^m(\theta, \varphi),$$

onde  $k = \sqrt{E}$ ,  $l$  e  $m$  são números inteiros,  $Y_l^m(\theta, \varphi)$  são os harmônicos esféricos,  $j_l(kr)$  são as funções de Bessel esféricas.

Para  $r > a$  a solução analítica é dada por

$$\Psi_{l,m,\kappa}(r, \theta, \varphi) = A k_l(\kappa r) Y_l^m(\theta, \varphi),$$

onde  $\kappa = \sqrt{\frac{m_b}{m_w}(V_0 - E)}$  e  $k_l(\kappa r)$  são as funções de Bessel esféricas modificadas.

As energias são determinadas pelas condições de contorno na interface entre os materiais do poço e da barreira que possuem massas efetivas diferentes. Essas condições de contorno são dadas por Ben-Daniel e Duke [11], que são as continuidades da função e da derivada da função dividida pela massa efetiva. Obtemos portanto as equações:

$$\frac{A}{m_w^*} \frac{d}{dr} j_l(kr) \Big|_{r=a} = \frac{B}{m_b^*} \frac{d}{dr} k_l(\kappa r) \Big|_{r=a}$$

$$A j_l(ka) = B k_l(\kappa a),$$

onde  $A$  e  $B$  são as constantes de normalização. Para que o sistema acima tenha solução

não trivial devemos zerar o determinante dos coeficientes:

$$\det = \begin{vmatrix} \left. \frac{1}{m_w^*} \frac{d}{dr} j_l(\kappa r) \right|_{r=a} & - \left. \frac{1}{m_b^*} \frac{d}{dr} k_l(\kappa r) \right|_{r=a} \\ j_l(\kappa a) & - k_l(\kappa a) \end{vmatrix}.$$

Agora varia-se a energia entre 0 e  $V_0$  de modo a obter as soluções de

$$\det(E) = 0.$$

Para o caso de ponto quântico esférico de raio  $a$  com barreira infinita a equação de Schrödinger é dada por

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*} \nabla^2 \Psi(r, \theta, \varphi) + V \Psi(r, \theta, \varphi) = E \Psi(r, \theta, \varphi),$$

onde  $V$  é zero dentro do ponto quântico e infinito fora. A equação acima pode ser resolvida através de separação de variáveis e a solução é:

$$\Psi_{i,l,m}(r, \theta, \phi) = A j_l(\alpha_{li} \frac{r}{a}) Y_l^m(\theta, \phi),$$

onde  $\alpha_{li}$  é a  $i$ -ésima raiz de  $j_m(\xi)$ , uma função de Bessel esférica. Sua energia é dada por:

$$E_{i,l} = \frac{\hbar^2}{2m^*} \left( \frac{\alpha_{li}}{a} \right)^2.$$

Neste caso o estado fundamental é representado pelos números  $i = 1, l = 0, m = 0$  e o primeiro estado excitado por  $i = 1, l = 1, m = 0$ .

A tabela 2.1 nos mostra uma comparação entre os valores obtidos para as energias do estado fundamental e primeiro excitado usando diferentes números de funções base para um ponto quântico esférico de raio  $a = 4,5$  nm. Para o número de 13 funções base em cada uma das direções  $x, y$  e  $z$ , ou seja, um total de  $13 \times 13 \times 13 = 2197$  funções base o tempo computacional de cálculo foi de 6 h e 29 min, para  $10 \times 10 \times 10 = 1000$  funções

base o tempo é de 41 minutos, e para um número menor  $3 \times 3 \times 3 = 27$  funções base o tempo é de 1s.

Tabela 2.1: Energia do ponto quântico esférico de raio  $a=4,5$  nm.

	núm. de f. base=27	núm. de f. base=1000	núm. de f. base=2197
$E_0(meV)$	219,5	215,6	214,9
$E_1(meV)$	433,2	418,6	418,1

Vamos agora comparar os resultados obtidos usando o método numérico com os resultados obtidos analiticamente para um ponto quântico esférico de raio  $a = 4,5$  nm. Usando uma base de 2197 funções para a expansão da função envelope obtemos os seguintes valores para o estado fundamental e primeiro excitado que são dados na tabela 2.2 e comparados com os resultados analíticos.

Tabela 2.2: Energia do ponto quântico esférico de raio 4,5 nm.

	numérico	Analítico	diferença em %
$E_0(meV)$	214,9	213,6	0,6 %
$E_1(meV)$	418,1	417,2	0,2 %

Nas figuras 2-2 a 2-5 vemos as funções de onda calculadas analiticamente e numericamente para o estado fundamental e primeiro estado excitado. Vemos desses gráficos que as funções de onda obtidas numericamente estão em bom acordo com a função de onda obtida analiticamente.

A tabela 2.3 nos mostra uma comparação entre os valores da energia para pontos quânticos com barreira finita e infinita.

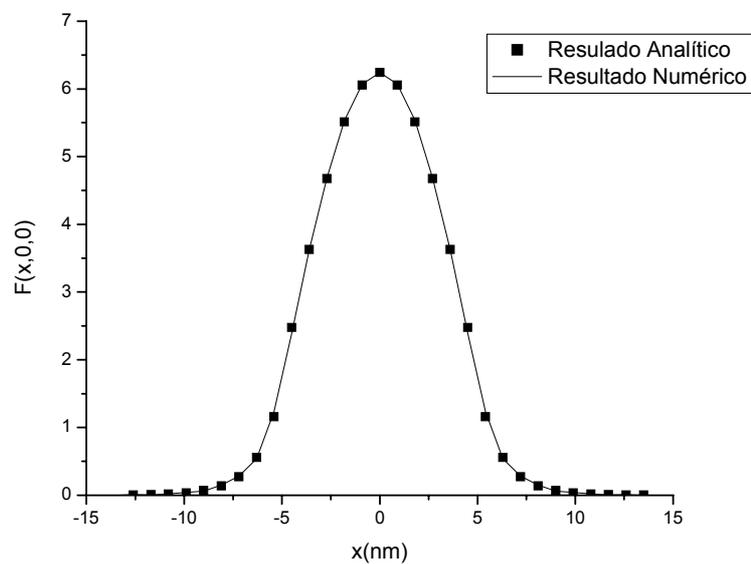


Figura 2-2: Função de onda do estado fundamental para um ponto quântico esférico de raio  $a = 4,5$  nm.

Tabela 2.3: Comparação das energias obtidas com barreira de potencial finita e infinita para um ponto quântico de raio 4,5 nm.

	Barreira finita $V=450$ meV	Barreira infinita	diferença em %
$E_0$ (meV)	213,6	463,7	117%
$E_1$ (meV)	417,2	948,6	127%

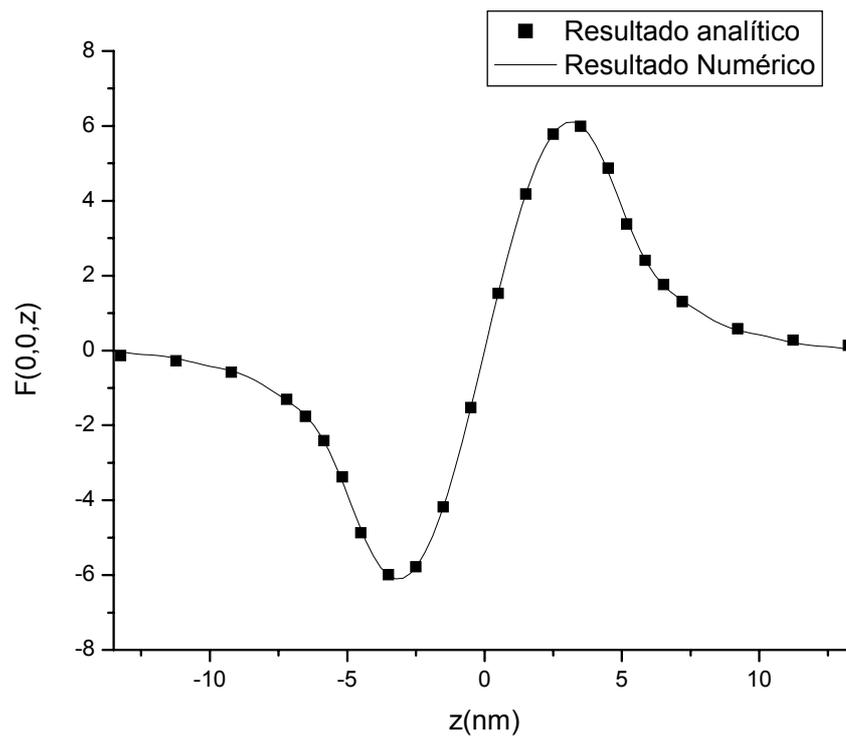


Figura 2-3: Função de onda do primeiro estado excitado para um ponto quântico esférico de raio  $a = 4,5$  nm.

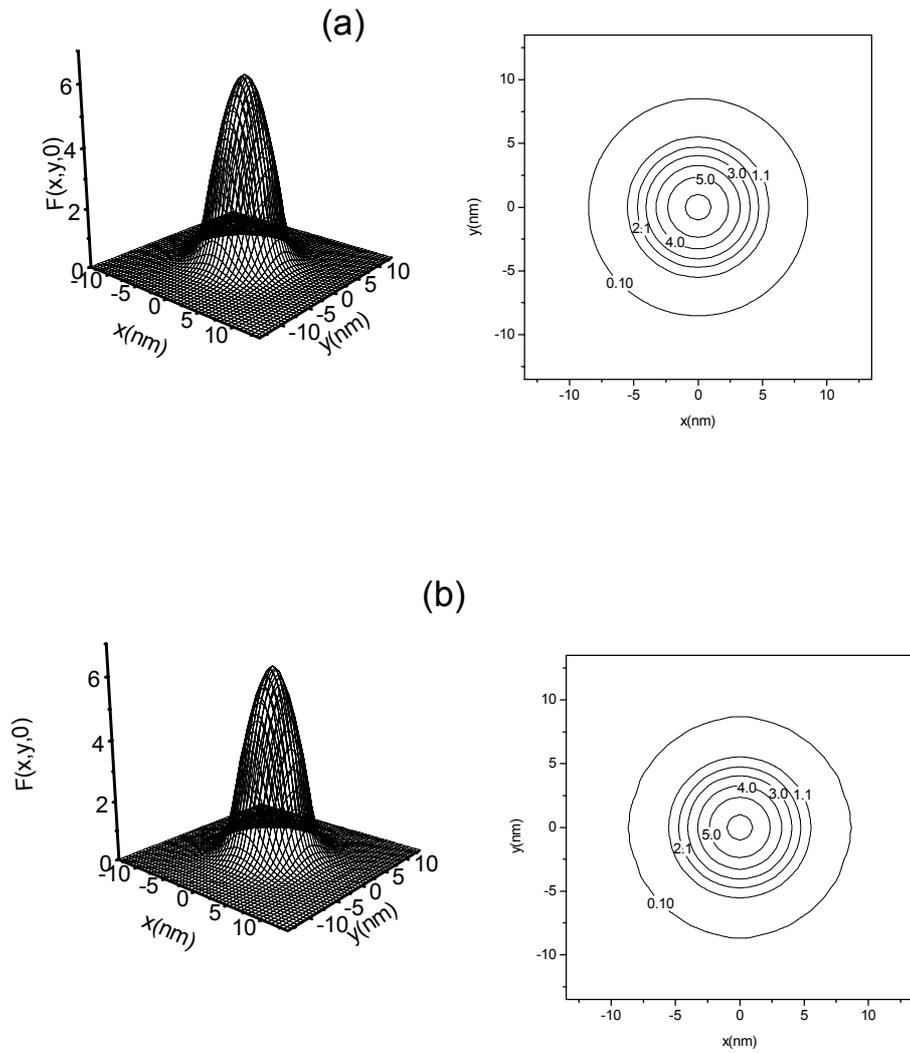


Figura 2-4: Função de onda do estado fundamental do ponto quântico esférico de raio  $a = 4, 5$  nm: (a) resultado analítico; (b) resultado numérico.

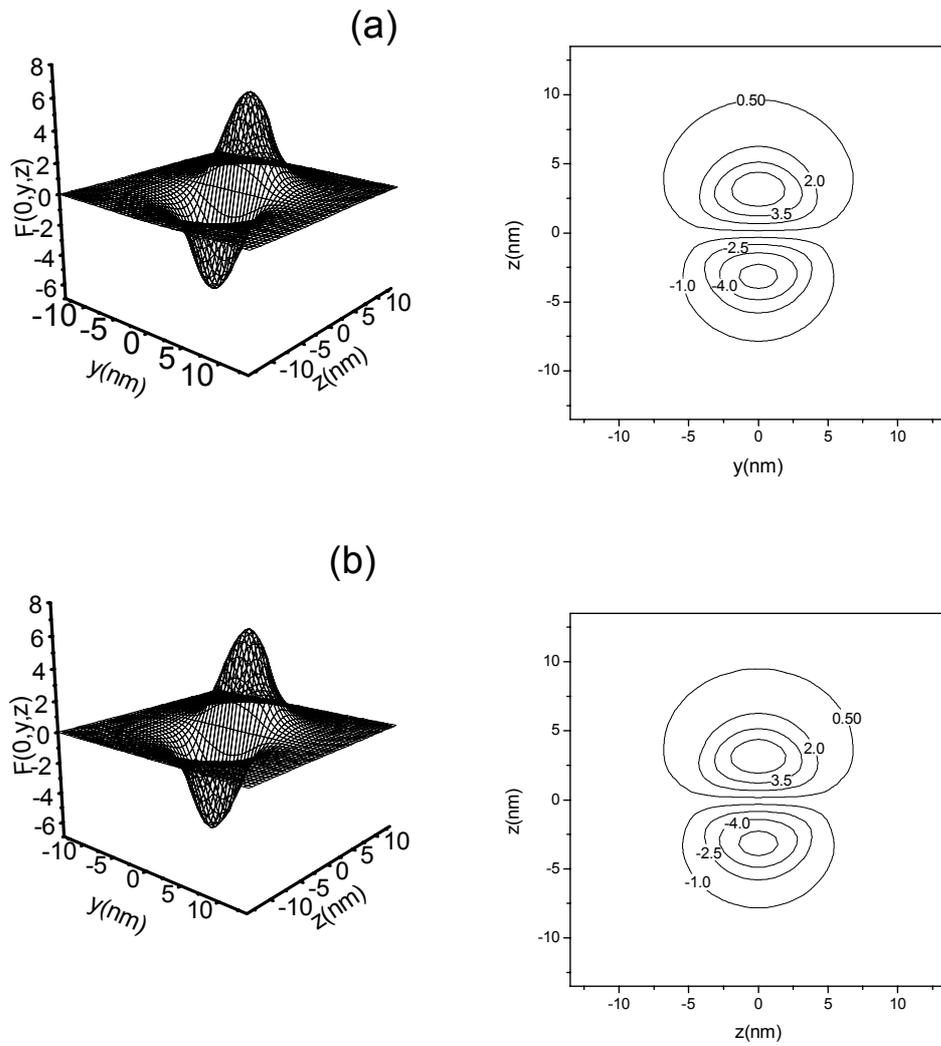


Figura 2-5: Função de onda do primeiro estado excitado do ponto quântico esférico de raio  $a = 4,5$  nm: (a) resultado analítico; (b) resultado numérico.

Vemos da tabela 2.3 que para essa dimensão de ponto quântico existe uma grande diferença entre as energias calculadas usando barreira de potencial infinita e barreira de potencial finita.

Para pontos quânticos com diâmetros maiores essa diferença é menor, como pode ser visto na Fig. 2-6

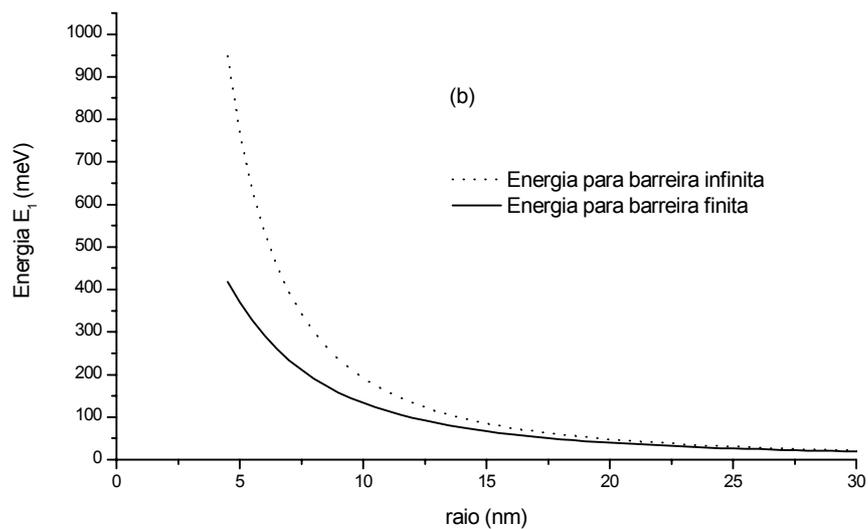
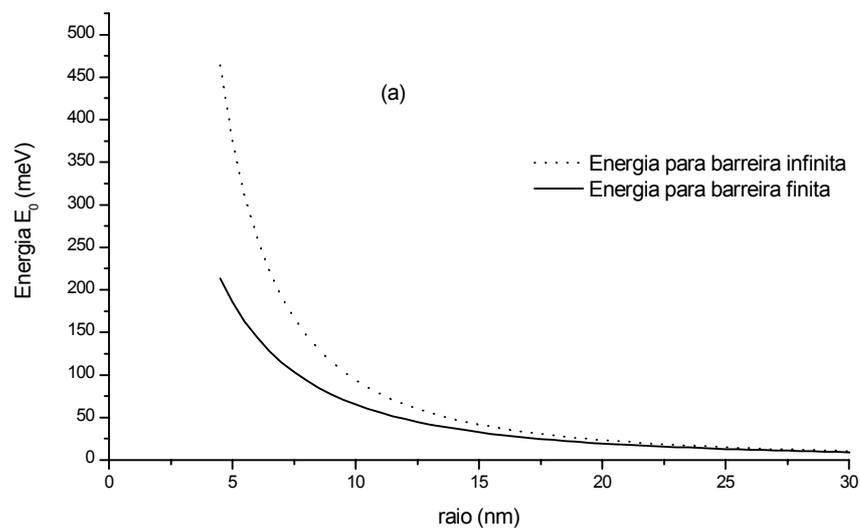


Figura 2-6: Comparação entre as energias calculadas com barreira infinita e finita do ponto quântico esférico: (a) estado fundamental; (b) primeiro estado excitado.

## Capítulo 3

# Excitações Óticas Coletivas em Super-Redes de Pontos Quânticos

Nesse capítulo vamos fazer um estudo teórico sobre as excitações óticas coletivas em redes de pontos quânticos, e calcular o coeficiente de absorção.

Usando a teoria desenvolvida por Metzner e colaboradores[9],[18], consideramos uma rede de pontos quânticos onde aplicamos um campo elétrico periódico na direção  $\hat{n}$  ( $\hat{n} = \hat{x}$  ou  $\hat{z}$ ), que é dado abaixo pela expressão:

$$\vec{E} = \hat{n}E \cos(\omega t). \quad (3.1)$$

Devido a esse campo aparecerá no sistema uma energia potencial externa e uma energia potencial induzida, dadas, respectivamente, por

$$U^{ext}(\vec{r}, t) = e\vec{E} \cdot \vec{r} = eEr_n \cos(\omega t), \quad (3.2)$$

e

$$U^{ind}(\vec{r}, t) = \sum_k v^{(k)}(\vec{r}, t), \quad (3.3)$$

onde  $r_n$  é o componente do vetor  $\vec{r}$  na direção do vetor unitário  $\hat{n}$  e  $v^{(k)}(\vec{r}, t)$  é a energia

potencial induzida de um único elétron colocado no  $k$ -ésimo ponto quântico. A soma de  $U^{ext}(\vec{r}, t)$  e  $U^{ind}(\vec{r}, t)$  é igual a energia total  $U(\vec{r}, t)$ , isto é

$$U(\vec{r}, t) = U^{ext}(\vec{r}, t) + U^{ind}(\vec{r}, t).$$

Supondo um regime de resposta linear para o sistema, a energia total  $U(\vec{r}, t)$  pode ser decomposta em dois componentes de Fourier dados por

$$U(\vec{r}, t) = U(\vec{r}, \omega)e^{i\omega t} + U^*(\vec{r}, \omega)e^{-i\omega t}, \quad (3.4)$$

onde  $U(\vec{r}, \omega)$  é a transformada de Fourier temporal de  $U(\vec{r}, t)$ , dada por:

$$U^{(k)}(\vec{r}, \omega) = \frac{eEr_n}{2} + \sum_{j \neq k} v^{(j)}(\vec{r}, \omega), \quad (3.5)$$

onde  $v^{(j)}(\vec{r}, \omega)$  é a transformada de Fourier temporal de  $v^{(j)}(\vec{r}, t)$ .

Vamos considerar, como uma aproximação, que cada ponto quântico com um elétron ligado seja um sistema de dois níveis composto pelo estados fundamental e primeiro excitado. Usando teoria de perturbação dependente do tempo em primeira ordem e considerando que inicialmente somente o estado fundamental é ocupado temos que a função de onda dependente do tempo do  $k$ -ésimo elétron pode ser escrita como [20]:

$$\Phi^{(k)}(\vec{r}, t) = b^{(k)}(\omega)e^{-i\omega t}\varphi_1^{(k)}(\vec{r}) + \varphi_0^{(k)}(\vec{r}),$$

onde  $\varphi_0^{(k)}(\vec{r})$  e  $\varphi_1^{(k)}(\vec{r})$  são as funções de onda do estado fundamental e primeiro excitado e consideramos somente o termo ressonante

$$b^{(k)}(\omega) = \frac{-\langle \varphi_{(1)}^{(k)} | U^{(k)}(\vec{r}, -\omega) | \varphi_{(0)}^{(k)} \rangle}{\hbar[\omega_{10}^{(k)} - \omega - i(\Gamma/\hbar)]},$$

uma vez que o termo anti-ressonante é pequeno para  $\omega \approx \omega_1^{(k)} - \omega_0^{(k)} = \omega_{10}^{(k)}$ .  $\Gamma$  é um

parâmetro que foi introduzido na expressão acima para levar em conta o alargamento homogêneo do coeficiente de absorção devido aos fônons.

Uma vez obtida a função de onda dependente do tempo podemos calcular a flutuação de carga induzida  $\rho^{(k)}(\vec{r}, t)$ , isto é

$$\rho^{(k)}(\vec{r}, t) = (-e)[|\Phi^{(k)}(\vec{r}, t)|^2 - |\phi_0^{(k)}(\vec{r})|^2] = (-e)[\phi_1^{(k)*}(\vec{r})\phi_0^{(k)}(\vec{r})b^{(k)*}(\omega)e^{i\omega t} + c.c.], \quad (3.6)$$

onde o termo de ordem  $O(b^{(i)2}(\omega))$  foi omitido em virtude da aproximação de resposta linear. Vamos definir para o  $k$ -ésimo ponto quântico a expressão  $u^{(k)}(\omega)$  dada por:

$$u^{(k)}(\omega) = R^{(k)}(\omega) \langle \varphi_{(0)}^{(k)} | U^{(k)}(\vec{r}, \omega) | \varphi_{(1)}^{(k)} \rangle, \quad (3.7)$$

onde

$$R^{(k)}(\omega) = \frac{1}{\hbar[\omega - \omega_{10}^{(k)} + i(\Gamma/\hbar)]}$$

de modo que a transformada de Fourier temporal de  $\rho^{(k)}(\vec{r}, t)$  pode ser escrita como

$$\rho^{(k)}(\vec{r}, \omega) = (-e)\Delta n^{(k)}(\vec{r})u^{(k)}(\omega), \quad (3.8)$$

onde

$$\Delta n^{(k)}(\vec{r}) = \phi_1^{(k)*}(\vec{r})\phi_0^{(k)}(\vec{r}). \quad (3.9)$$

Com as definições acima, e supondo  $K$  como a constante dielétrica do material que contém os pontos quânticos o componente  $\omega$  do potencial induzido no ponto quântico ( $k$ ) é

$$v^{(k)}(\vec{r}, \omega) = \frac{-e}{K} \int d^3r' \frac{\rho^{(k)}(\vec{r}', \omega)}{|\vec{r} - \vec{r}'|} - \frac{dv_x(\vec{r})}{dn} \frac{\rho^{(k)}(\vec{r}, \omega)}{(-e)} \quad (3.10)$$

$$= (\Delta D^{(k)}(\vec{r}) - \Delta X^{(k)}(\vec{r}))u^{(k)}(\omega), \quad (3.11)$$

onde

$$\Delta D^{(k)}(\vec{r}) = \frac{e^2}{K} \int d^3r' \frac{\Delta n^{(k)}(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \quad (3.12)$$

é a flutuação do potencial de Coulomb, e

$$\Delta X^{(k)} = \frac{dv_x(\vec{r})}{dn} \Delta n^{(k)}(\vec{r}) = -\frac{2}{3} e^2 \left( \frac{3n(\vec{r})}{8\pi} \right)^{-2/3} \Delta n^{(k)}(\vec{r}) \quad (3.13)$$

é a flutuação do potencial de troca, onde  $v_x(\vec{r})$  é dado pela Eq. (D.17) do apêndice D,  $n(\vec{r})$  é a densidade total dada por

$$n(\vec{r}) = \sum_{k=1}^N |\varphi_{(0)}^{(k)}|^2,$$

onde  $N$  é o número total de elétrons.

Com as definições acima podemos reescrever a Eq.(3.5) como

$$U^{(k)}(\vec{r}, \omega) = \frac{eEr_n}{2} + \sum_{j \neq k} (\Delta D^{(j)}(\vec{r}) - \Delta X^{(j)}) u^{(j)}(\omega). \quad (3.14)$$

Tomando o elemento de matriz de  $U^{(k)}(\vec{r}, \omega)$  entre os estados fundamental e primeiro excitado e inserindo na Eq.(3.7), temos

$$u^{(k)}(\omega) = R^{(k)}(\omega) \left[ \frac{eEr_n^{(k)}}{2} + \sum_{j \neq k} (D_{(k)}^{(j)} - X_{(k)}^{(j)}) u^{(j)}(\omega) \right], \quad (3.15)$$

onde

$$r_n^{(k)} = \langle \varphi_{(0)}^{(k)} | r_n | \varphi_{(1)}^{(k)} \rangle, \quad (3.16)$$

$$D_{(k)}^{(j)} = \langle \varphi_{(0)}^{(k)} | \Delta D^{(j)} | \varphi_{(1)}^{(k)} \rangle \quad (3.17)$$

$$X_{(k)}^{(j)} = \langle \varphi_{(0)}^{(k)} | \Delta X^{(j)} | \varphi_{(1)}^{(k)} \rangle. \quad (3.18)$$

Notemos que  $D_{(k)}^{(j)}$  e  $X_{(k)}^{(j)}$  são as energias de interação coulombiana e de troca entre

os osciladores  $(k)$  e  $(j)$ . O valor da integral  $D_{(k)}^{(j)}$  é calculado usando quadratura com interpolação dado no apêndice A; Supondo  $U_{(k)}^{(j)} = 0$  [9], podemos reescrever a Eq.(3.15) como

$$\sum_j [\delta_{kj} - R^{(k)}(\omega)(D_{(k)}^{(j)} - X_{(k)}^{(j)})]u^{(j)}(\omega) = R^{(k)}(\omega)\frac{eEr_n^{(k)}}{2}, \quad (3.19)$$

Resolvendo o sistema acima, calculamos o coeficiente de absorção  $\alpha(\omega)$ , que é proporcional à parte real do tensor condutividade  $\sigma_{nn}(\omega)$ , definida por

$$\sigma_{nn}(\omega) = \frac{1}{E} \int_{-\infty}^{\infty} dr_n \bar{j}(r_n, \omega), \quad (3.20)$$

onde a corrente induzida média  $\bar{j}(r_n, \omega)$  na direção  $r_n$  pode ser obtida pelo o uso da equação da continuidade:

$$\frac{\partial}{\partial r_n} \bar{j}(r_n, t) + \frac{\partial}{\partial t} \bar{\rho}(r_n, t) = 0. \quad (3.21)$$

onde  $\bar{\rho}(r_n, t)$  a média da flutuação de carga induzida total. Aplicando a transformada de Fourier temporal na Eq.(3.21) podemos calcular a corrente induzida média

$$\bar{j}(r_n, \omega) = (-i\omega) \int_{-\infty}^{r_n} \bar{\rho}(r'_n, \omega) dr'_n, \quad (3.22)$$

onde  $\bar{\rho}(r_n, \omega)$  é dado por

$$\bar{\rho}(r_n, \omega) = \sum_k \bar{\rho}^{(k)}(\vec{r}_n, \omega) \quad (3.23)$$

onde

$$\bar{\rho}^{(k)}(\vec{r}_n, \omega) = (-e)\Delta\bar{n}^{(k)}(r_n)u^{(k)}(\omega)$$

e

$$\Delta\bar{n}^{(k)}(r_n) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \phi_1^{(k)*}(\vec{r})\phi_0^{(k)}(\vec{r})dr_m dr_y / \Omega_{my}$$

onde  $\Omega_{my}$  é a área de uma superfície que é perpendicular à direção do campo elétrico aplicado,  $n$  e  $m$  podem ser  $x$  ou  $z$ .

Com as definições acima podemos reescrever a Eq. (3.23) como

$$\bar{\rho}(r_n, \omega) = \sum_k u^{(k)}(\omega)(-e)\Delta\bar{n}^{(k)}(r_n)$$

A Eq. (3.22) pode ser reescrita como:

$$\bar{j}(r_n, \omega) = (-i\omega) \sum_k u^{(k)}(\omega)(-e) \int_{-\infty}^{r_n} dr'_n \Delta\bar{n}^{(k)}(r'_n). \quad (3.24)$$

Inserindo a Eq.(3.24) na Eq.(3.20), temos

$$\sigma_{nn}(\omega) = \frac{i\omega e}{E\Omega_{my}} \sum_k l^{(k)} u^{(k)}(\omega), \quad (3.25)$$

onde

$$l^{(k)} = \Omega_{my} \int_{-\infty}^{\infty} dr_n \int_{-\infty}^{r_n} dr'_n \Delta\bar{n}^{(k)}(r'_n). \quad (3.26)$$

O coeficiente de absorção é proporcional à parte real do tensor condutividade [9], isto é:

$$\alpha(\omega) \propto \text{Re } \sigma_{nn}(\omega)$$

# Capítulo 4

## Resultados, Discussões e Conclusões

### 4.1 Níveis de Energia e Funções Envelope

Os níveis de energia e função envelope para o elétron confinado no ponto quântico cilíndrico em uma barreira de potencial finita foram calculados usando o método numérico que é dado no Capítulo 2. Na figura 4-1 mostramos as funções envelope para um ponto quântico cilíndrico de raio 5,0 nm e altura 10,0 nm, calculadas usando o método acima mencionado.

A tabela 4.1 nos mostra uma comparação entre os valores obtidos para as energias do estado fundamental e primeiro excitado usando diferentes números de funções base para um ponto quântico cilíndrico de raio 5 nm e altura de 10 nm.

Tabela 4.1: Energia do ponto quântico cilíndrico de raio 5 nm e altura 10 nm.

	núm. de f. base=27	núm. de f. base=1000	núm. de f. base=2197
$E_0(meV)$	165,6	161,1	156,4
$E_1(meV)$	307,8	301,9	298,5

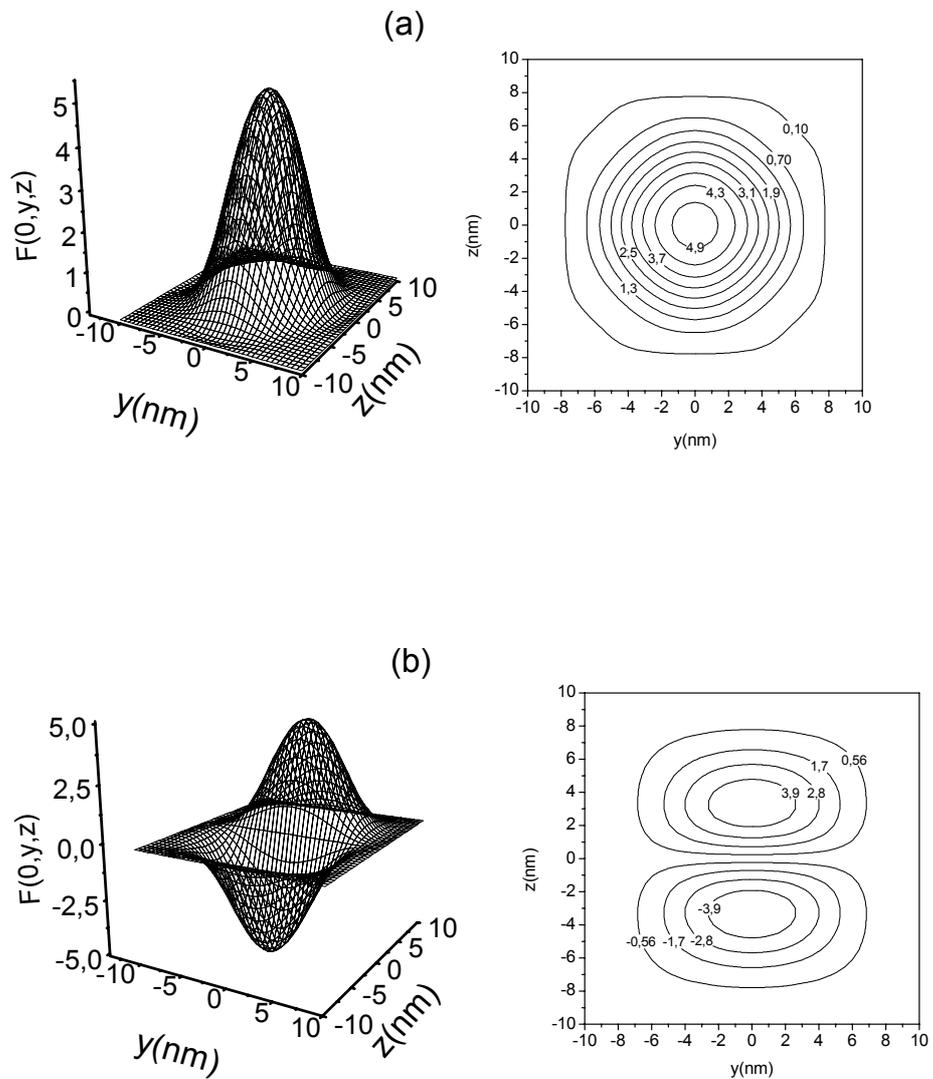


Figura 4-1: Função de onda para o ponto quântico cilíndrico de raio 5,0 nm e altura 10,0 nm:(a) estado fundamental ; (b) primeiro estado excitado.

Para o caso de ponto quântico cilíndrico de raio  $a$  e altura  $L$  com barreira infinita a equação de Schrödinger é dada por

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*}\nabla^2\psi(\rho, \phi, z) + V\psi(\rho, \phi, z) = E\psi(\rho, \phi, z),$$

onde  $V$  é zero dentro do ponto quântico e infinito fora. A equação acima pode ser resolvida através de separação de variáveis e a solução é:

$$\psi_{i,m,n}(\rho, \phi, z) = AJ_m\left(\alpha_{mi}\frac{\rho}{a}\right)\cos(m\phi)\text{sen}\left[n\pi\left(\frac{1}{2} - \frac{z}{L}\right)\right] \quad (4.1)$$

onde  $\alpha_{mi}$  é a  $i$ -ésima raiz de  $J_m(\xi)$ , uma função de Bessel de ordem  $m$ , e a energia é dada por:

$$E_{i,m,n} = \frac{\hbar^2}{2m} \left( \left( \frac{\alpha_{mi}}{a} \right)^2 + \left( \frac{n\pi}{L} \right)^2 \right). \quad (4.2)$$

Neste caso o estado fundamental é representado pelos números  $i = 1$ ,  $m = 0$ ,  $n = 1$ , e o primeiro estado excitado por  $i = 1$ ,  $m = 0$ ,  $n = 2$ . A tabela (4.2) nos mostra uma comparação entre os valores da energia para um ponto quântico cilíndrico com barreira finita e infinita de raio 5 nm e altura 10 nm .

Tabela 4.2: Comparação das energias obtidas para o ponto quântico cilíndrico de raio 5 nm e altura 10 nm com barreira de potencial finita e infinita.

	Barreira finita V=450 meV	Barreira infinita	diferença em porcentagem
$E_0(meV)$	156,4	314,0	100,7 %
$E_1(meV)$	298,5	595,7	99,6 %

## 4.2 Absorção ótica

No cálculo da absorção consideramos pontos quânticos cilíndricos interagentes de InAs em GaAs, no qual cada ponto quântico possui no máximo um elétron. O número de

ocupação e dimensões dos pontos quânticos são fornecidas pela simulação de Monte Carlo e o alargamento da curva de absorção devido aos fônons é incluído no sistema através do parâmetro  $\Gamma$ , que de acordo com a referência [9], tem o valor de 1 meV. Consideramos uma variação randômica gaussiana [27] nas dimensões de maneira a obter um alargamento da curva de absorção de 20 meV [9]. Os valores da massa efetiva e constante dielétrica para o InAs usados foram respectivamente 0,040 e 14,55 [25]. Para o GaAs a massa efetiva foi 0,0665 [25]. Calculamos a absorção ótica para redes uni-dimensionais, bi-dimensionais e multiplanares de pontos quânticos cilíndricos mostrados nas figuras 1-3 e 1-4 com campo elétrico aplicado nas direções  $x$  e  $z$ . A direção de crescimento que escolhemos foi a direção  $z$  de nosso sistema de coordenadas. Nesta direção a altura média dos pontos quânticos é  $L$ , e a distância entre eles é  $H$ , conforme figura 1-4. Na direção  $x$ , o raio dos pontos quânticos é  $a$ , e a distância mínima entre eles é  $d$ . A função envelope foi calculada usando barreira de potencial infinita e finita, também consideramos a aproximação da massa efetiva (apêndice C). Estudamos três tipos de redes onde em cada uma delas os pontos quânticos possuem raios médios dados por 10,8 nm, 3,1 nm e 30,0 nm, e alturas médias dadas por 2,1 nm, 30,0 nm e 60,0 nm, respectivamente.

Para barreira de potencial infinita a solução da equação de Schrödinger foi dada pela expressão (4.1) e a energia dada pela expressão (4.2). Para o caso de campo elétrico aplicado na direção  $x$  os números quânticos  $(i, m, n)$  para o estado fundamental e primeiro excitado são respectivamente  $(1, 0, 1)$  e  $(1, 1, 1)$ , porém com campo aplicado na direção  $z$  existe uma regra de seleção onde o número quântico  $n$  não pode ser 1 devido ao fato de que as integrais (3.16) e (3.26) seriam zero, por uma questão de paridade e portanto a absorção (3.25) também se anularia, por isso colocamos para o estado excitado os números quânticos  $(1, 0, 2)$ . Para o caso de barreira finita a função envelope foi calculada numericamente conforme capítulo 2.

As interações de Hartree e de troca que estão presentes no sistema antes da aplicação do campo elétrico são chamadas de interações estáticas e as interações que surgem depois que é aplicado no sistema um campo elétrico oscilante no tempo são chamadas de

interações dinâmicas [18]. Essas interações dinâmicas surgem por causa da flutuação da densidade eletrônica causada pela aplicação do campo elétrico oscilante no tempo.

A energia de interação de Coulomb dinâmica  $D_{(i)}^{(j)}$  entre dois pontos quânticos dada pela equação (3.17) é calculada usando quadratura com interpolação (apêndice A) onde os programas em Fortran que calculam as integrais e fazem a interpolação foram extraídas do livro Numerical Recipes[23]. Essa energia de interação depende da distância entre os pontos quânticos e é importante na análise da absorção, como veremos a seguir. A figura 4-2 demonstra as energias de interação coulombiana  $D_{(i)}^{(j)}$ , para diferentes ângulos e distâncias entre os pontos quânticos cilíndricos com raio de 10 nm e altura de 5nm. A figura 4-2(a) mostra o ângulo entre os dois pontos quânticos e as figuras 4-2(b) e 4-2(c) as energias para o caso de campo elétrico aplicado na direção  $z$  e  $x$ , respectivamente.

Destas figuras, vemos que o sinal da energia de interação  $D_{(i)}^{(j)}$  depende das posições dos pontos quânticos e da direção do campo elétrico aplicado, ou seja os pontos quânticos agem como dipolos. Este comportamento tipo dipolo pode ser entendido através da expressão para a energia de interação entre dois dipolos  $\vec{p}_1$  e  $\vec{p}_2$  dada abaixo por

$$U_{12} = \frac{\vec{p}_1 \cdot \vec{p}_2 - 3(\vec{n} \cdot \vec{p}_1)(\vec{n} \cdot \vec{p}_2)}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|^3}, \quad (4.3)$$

onde  $\vec{n}$  é um vetor unitário na direção de  $\vec{r}_1 - \vec{r}_2$ ,  $\vec{r}_1$  é a posição do dipolo 1,  $\vec{r}_2$  é a posição do dipolo 2. Para o campo elétrico na direção  $z$  fazemos  $\vec{r}_2 = 0$ ,  $\vec{r}_1 = \vec{r}$ ,  $\vec{p}_1 = \vec{p}_2 = p\hat{z}$ , temos que a expressão (4.3) pode ser reescrita como

$$U_{12} = \frac{p^2}{r^3}(1 - 3 \cos^2 \theta),$$

que é mostrado na figura 4-3 para diferentes ângulos entre os dipolos. Para o campo elétrico na direção  $x$  fazemos  $\vec{r}_2 = 0$ ,  $\vec{r}_1 = \vec{r}$ ,  $\vec{p}_1 = \vec{p}_2 = p\hat{x}$ , temos que a expressão (4.3) pode ser reescrita como

$$U_{12} = \frac{p^2}{r^3}(1 - 3 \cos^2(\frac{\pi}{2} - \theta)),$$

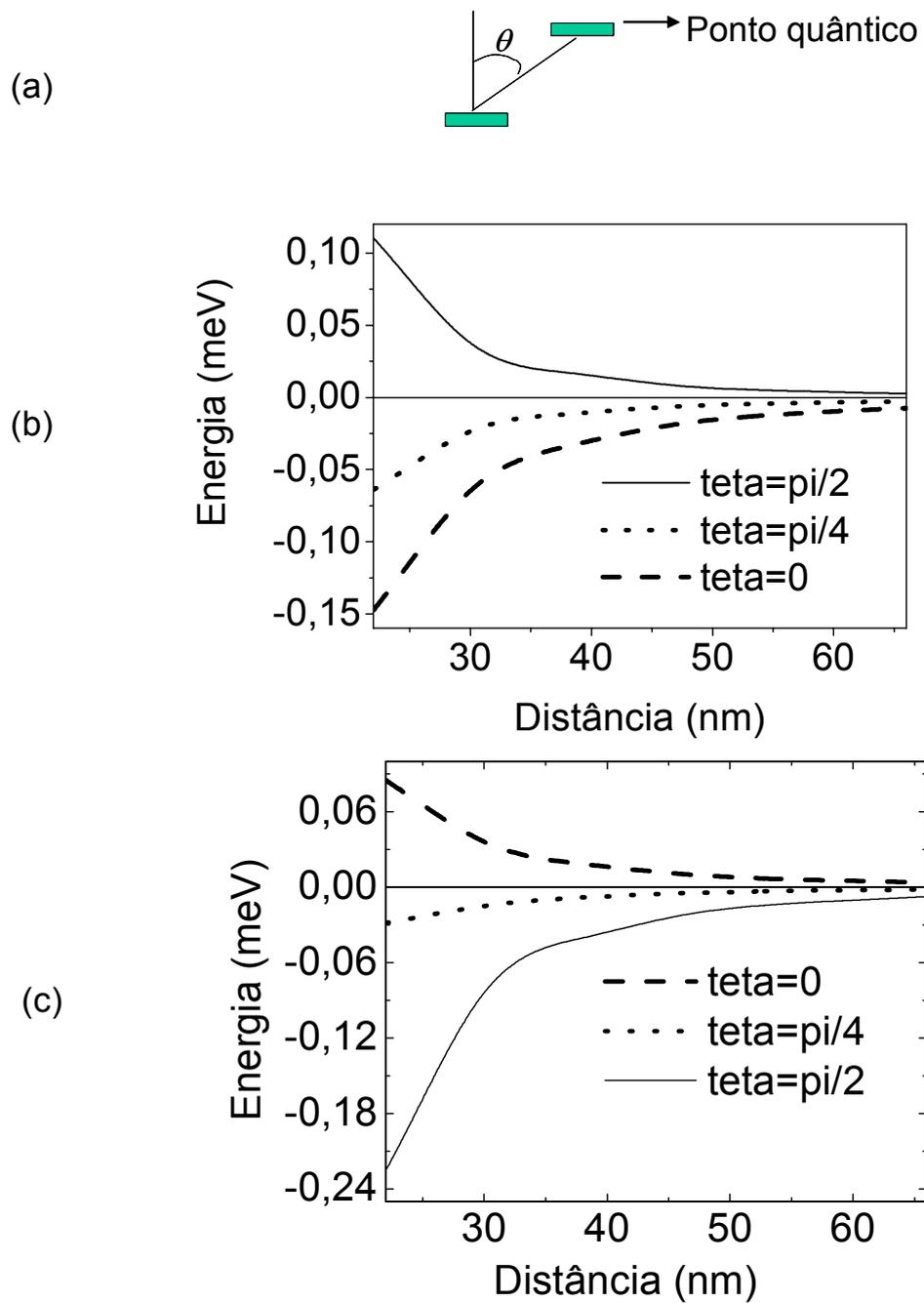


Figura 4-2: Energia de interação coulombiana entre dois pontos quânticos com raio de 10 nm e altura de 5nm; (a) ângulo entre os dois pontos quânticos; (b) e (c) as energias para o caso de campo elétrico aplicado na direção  $z$  e  $x$ , respectivamente.

que é mostrado também na figura 4-3 para diferentes ângulos entre os dipolos.

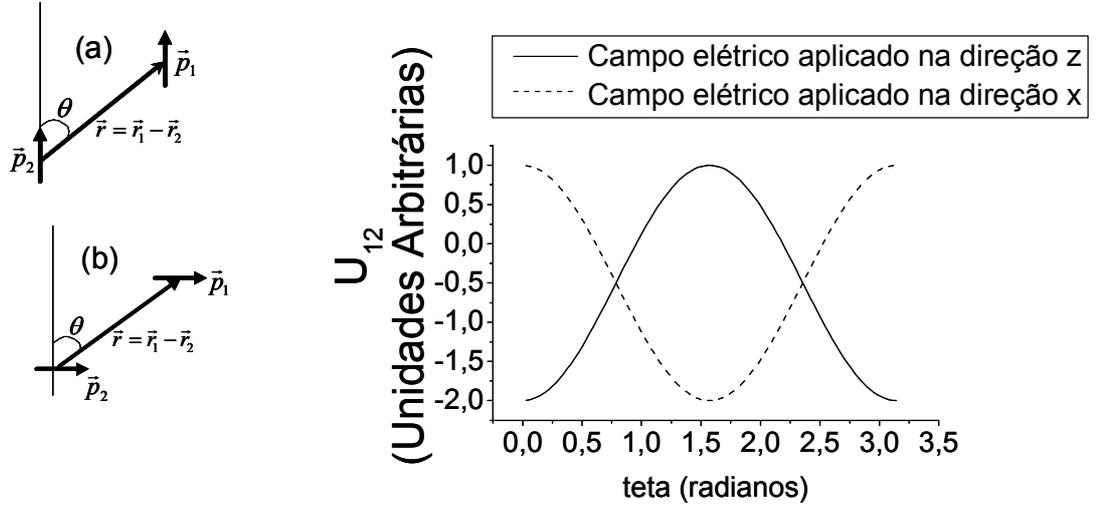


Figura 4-3: Energia de interação entre dois dipolos: (a) campo elétrico na direção z; (b) campo elétrico na direção x.

Desta figura vemos que o sinal da interação dipolo-dipolo depende da posição dos dipolos e da direção do campo elétrico aplicado. Essa interação entre os dipolos pode ser positiva ou negativa, e para os pontos quânticos isto também acontece.

Para barreira de potencial finita haverá, dependendo das distâncias entre os pontos quânticos, uma interação de troca entre os elétrons. Para calcularmos a função envelope do elétron neste caso usamos um método numérico descrito no capítulo 2, juntamente com o método DFT descrito no apêndice D.

Para acharmos os níveis de energia do elétron usando DFT, resolvemos a equação Schrödinger para um ponto quântico cilíndrico dada por

$$-\frac{\hbar^2}{2} \nabla \cdot \left( \frac{1}{m^*(\vec{r})} \right) \nabla \Psi(\vec{r}) + V(\vec{r}) \Psi(\vec{r}) = E \Psi(\vec{r}), \quad (4.4)$$

onde  $V(\vec{r})$  é dado por

$$V(\vec{r}) = V_H(\vec{r}) + v_x(\vec{r}) + V_0(\vec{r}), \quad (4.5)$$

onde  $V_H(\vec{r})$ ,  $v_x(\vec{r})$  são os potenciais de Hartree e de troca estáticos dados respectivamente pelas equações (D.15) e (D.17) do apêndice D.  $V_0(r)$  é a barreira de potencial que é igual a zero dentro do ponto quântico e 450 meV fora[25]. Para resolvermos a Eq. (4.4), fazemos inicialmente  $V_H(\vec{r}) = v_x(\vec{r}) = 0$  e encontramos uma função de onda inicial, com ela encontramos os potenciais de Hartree e de troca e achamos um novo  $V(r)$ . Repetimos esses passos até que o valor da energia  $E$  seja igual ao seu valor da iteração anterior. Realizando esses cálculos vimos que as energias dos elétrons confinados aumentam, à medida que diminuimos as distâncias entre os pontos quânticos e isso ocorre devido à interação de Coulomb entre os elétrons.

A interação de troca, dada pela expressão (3.18), é muito mais fraca do que a interação de Hartree, dada pela expressão (3.17), como pode ser visto na figura 4-4 para dois pontos quânticos cilíndricos de raio 10,8 nm e altura de 2,1 nm, que estão colocados ao longo do eixo z em uma rede unidimensional. Nesta figura vemos a variação da energia de interação com a distância entre os pontos quânticos.

A expressão para o potencial total dado pela Eq. (4.5) é mostrada na figura 4-5, onde vemos que ele varia pouco ao longo do eixo z.

O coeficiente de absorção é convenientemente apresentado em unidades do valor de Drude que é dado por  $\sigma_0 = \frac{n_e e^2 \hbar}{\Gamma m^*}$  onde  $\Gamma = 1 \text{ meV}$  [9], [28]. Isso é feito para que possamos comparar o coeficiente de absorção para diferentes densidades de elétrons. Calculamos o coeficiente de absorção para uma rede uni-dimensional do tipo mostrado na figura 1-3(a) com pontos quânticos de raio médio de 10,8 nm, altura média de 2,1 nm e distância mínima entre os pontos quânticos igual a 3,2 nm com campo elétrico aplicado na direção x. Porém para o campo elétrico aplicado na direção z essa dimensão de ponto quântico não permite que haja estado excitado ligado, de maneira que tivemos de mudar a dimensão desses pontos quânticos e considerar uma rede bidimensional do tipo mostrado na figura 1-3(b) com pontos quânticos de raio médio de 3,1 nm, altura média de 30,0 nm e distância

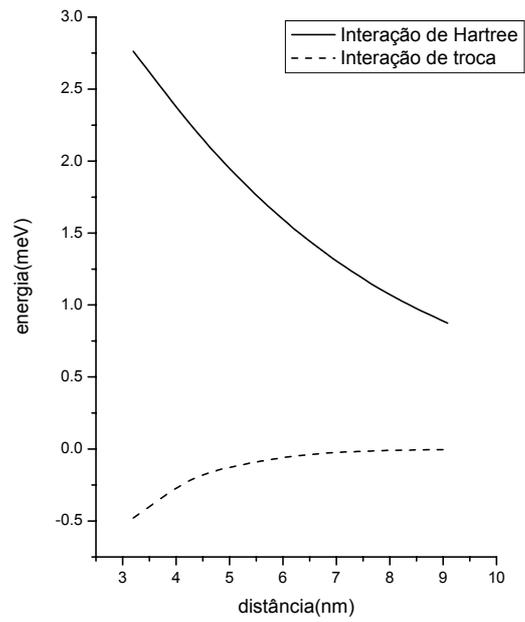


Figura 4-4: Comparação entre as energias de Hartree e de troca para dois pontos quânticos cilíndricos de raio 10,8 nm e altura de 2,1 nm onde o eixo horizontal representa a distância entre os pontos quânticos e o eixo vertical a energia de interação.

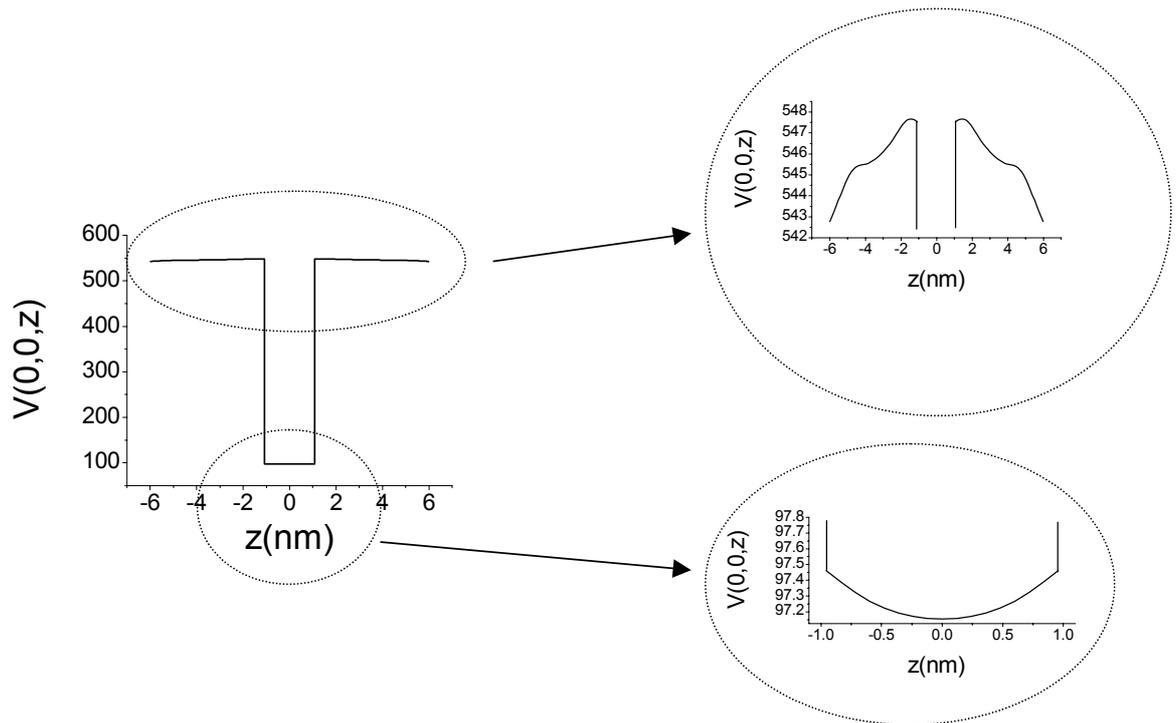


Figura 4-5: Potencial dado pela expressão (4.5) para um ponto quântico cilíndrico de raio 10,8 nm e altura 2,1 nm.

mínima entre os pontos quânticos igual a 7,2 nm. Os coeficientes de absorção para esses tipos de redes considerando barreira de potencial infinita são mostradas na figura 4-6 onde são consideradas várias densidades de pontos quânticos, representadas na figura por  $n_{PQ}$ , e densidades de elétrons, representadas por  $n_e$ , com campo elétrico aplicado nas direções x e z. No cálculo do coeficiente de absorção fizemos uma média de várias configurações randômicas e sorteamos em cada configuração randômica 7 elétrons entre os 9 pontos quânticos, as dimensões também foram sorteadas de maneira a obter uma variação gaussiana randômica de 20 meV na energia de transição do pontos quânticos isolados.

Para os modelos de super-redes descritas no parágrafo anterior calculamos também o coeficiente de absorção considerando barreira finita que é mostrado na figura 4-7 onde também são consideradas várias densidades de pontos quânticos dadas por  $n_{PQ}$  e densidades de elétrons dadas por  $n_e$  com campo elétrico aplicado na direções x e z.

Consideramos também super-redes multiplanares do tipo mostrado na figura 1-4 para a qual calculamos o coeficiente de absorção usando aproximação de barreira de potencial infinita, conforme é mostrado na figura 4-8 para vários valores da densidades eletrônica  $n_e$  e de pontos quânticos  $n_{PQ}$ , onde sorteamos 21 elétrons entre 27 pontos quânticos, as partes (a) e (b) são para campo elétrico aplicado nas direções x e z respectivamente. Para o cálculo do coeficiente de absorção referente à figura 4-8(a) consideramos pontos quânticos de raio médio de 10,8 nm e altura média de 2,1 nm, distância entre as camadas de 3,2 nm e distância mínima entre os pontos quânticos igual a 40 nm. Para o cálculo do coeficiente de absorção referente à figura 4-8(b) consideramos pontos quânticos de raio médio de 3,1 nm e altura média de 30,0 nm, distância entre as camadas de 50 nm e distância mínima entre os pontos quânticos igual a 7,2 nm.

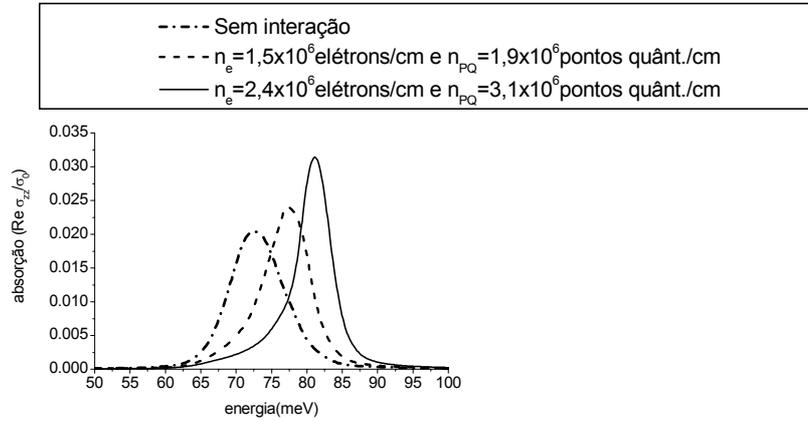
Na figura 4-9 vemos o coeficiente de absorção para uma super-rede randômica bi-dimensional do tipo mostrado na figura 1-3(b) com pontos quânticos cilíndricos de raio médio 30,0 nm e altura média 60,0 nm; distância mínima entre os pontos quânticos igual a 80,0 nm com campo elétrico aplicado na direção z e densidades de elétrons e de pontos

quânticos iguais respectivamente a  $1,2 \times 10^{10}$  elétrons/cm<sup>2</sup> e  $1,6 \times 10^{10}$  pontos quânticos/cm<sup>2</sup>. Nesta figura foram feitos cálculos onde sorteamos 7 elétrons entre 9 pontos quânticos, usamos barreira de potencial infinita e finita onde notamos que para essas dimensões de pontos quânticos a energia de transição obtida usando esses dois métodos estão próximas.

Em todos os cálculos do coeficiente de absorção mostrados nas figuras (4-6), (4-7), (4-8), (4-9) fizemos uma média de várias configurações randômicas e em cada gráfico vemos três curvas de absorção sendo que uma curva não considera a interação elétron-elétron e as outras curvas consideram essa interação. Para o caso de barreira infinita não há interação de troca de um ponto quântico com os outros, uma vez que não há superposição das funções envelope, mas há uma interação de Coulomb. Para o caso de barreira finita além da interação de Coulomb há também uma interação de troca.

Em baixas densidades de pontos quânticos, as distâncias entre eles são grandes e não há praticamente interação entre os elétrons (fig. 4-2). Portanto nas curvas de absorção mostradas nas figuras 4-6 e 4-7 vemos uma curva centrada em torno da energia de transição média de um ponto quântico isolado, ou seja, que não interage com outros pontos quânticos. À medida que a densidade de elétrons é aumentada o pico de absorção se desloca mais para a direita e também ocorre um maior estreitamento da curva de absorção. Portanto as interações entre os pontos quânticos blindam uma parte dos efeitos das flutuações randômicas da energia de transição. O estreitamento da curva de absorção é devido ao comportamento coletivo dos elétrons localizados interagentes. Próximo da energia de excitação que corresponde à ressonância coletiva, todas as amplitudes de excitação complexas dadas pela expressão (3.7) dos elétrons possuem aproximadamente a mesma fase, o que faz com que a absorção aumente [9], além disso o módulo da amplitude de excitação complexa é grande quando comparado com seu valor longe da ressonância. Isso é mostrado na figura 4-10 com campo elétrico aplicado na direção x para as energias de excitação iguais a 71,9 meV e 79,7 meV da figura 4-6(a) para uma configuração específica e  $n_e = 2,4 \times 10^6$  elétrons/cm. Fizemos esta análise também com o campo elétrico aplicado na direção z na fig. 4-6(b) para as energias de excitação iguais a 26,2 meV e

(a)



(b)

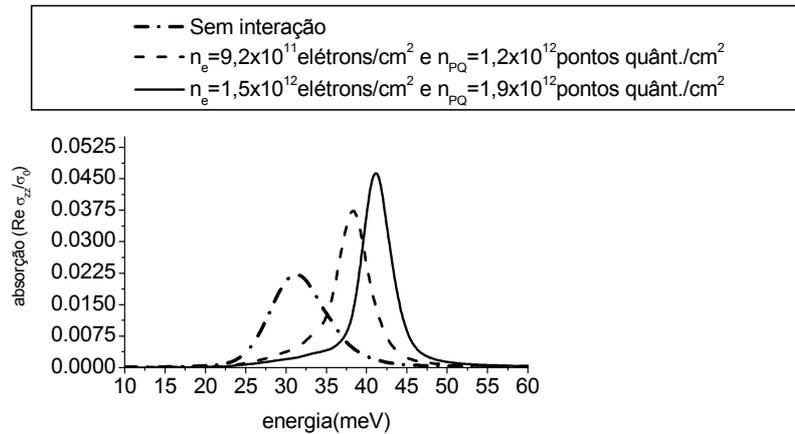
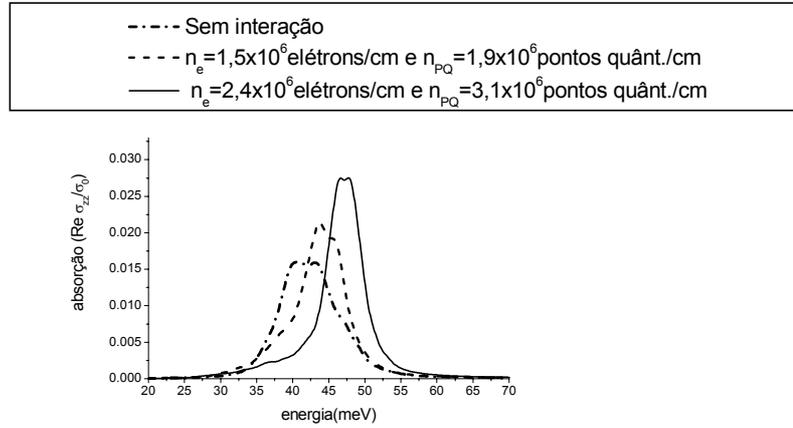


Figura 4-6: Coeficiente de absorção para redes randômicas de pontos quânticos cilíndricos com barreira de potencial infinita: (a) rede linear de pontos quânticos de raio médio de 10,8 nm e altura média de 2,1 nm com campo elétrico aplicado na direção x; (b) rede planar de pontos quânticos de raio médio de 3,1 nm e altura média de 30,0 nm com campo elétrico aplicado na direção z;

(a)



(b)

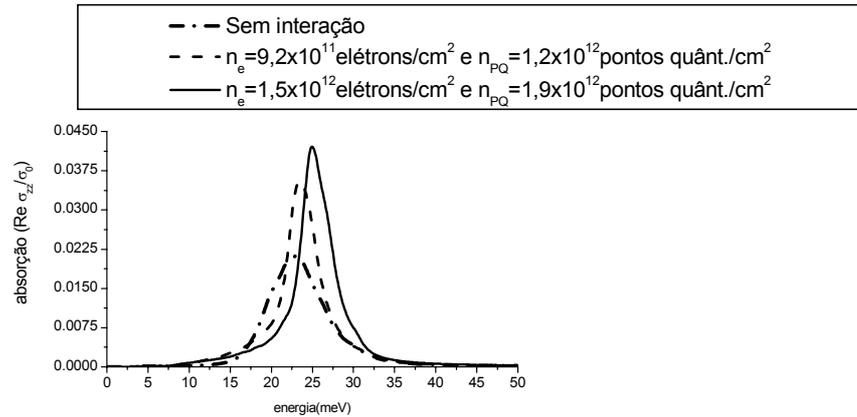


Figura 4-7: Coeficiente de absorção para redes randômicas de pontos quânticos cilíndricos com barreira de potencial finita: (a) rede linear de pontos quânticos de raio médio de 10,8 nm e altura média de 2,1 nm com campo elétrico aplicado na direção x; (b) rede planar de pontos quânticos de raio médio de 3,1 nm e altura média de 30,0 nm com campo elétrico aplicado na direção z.

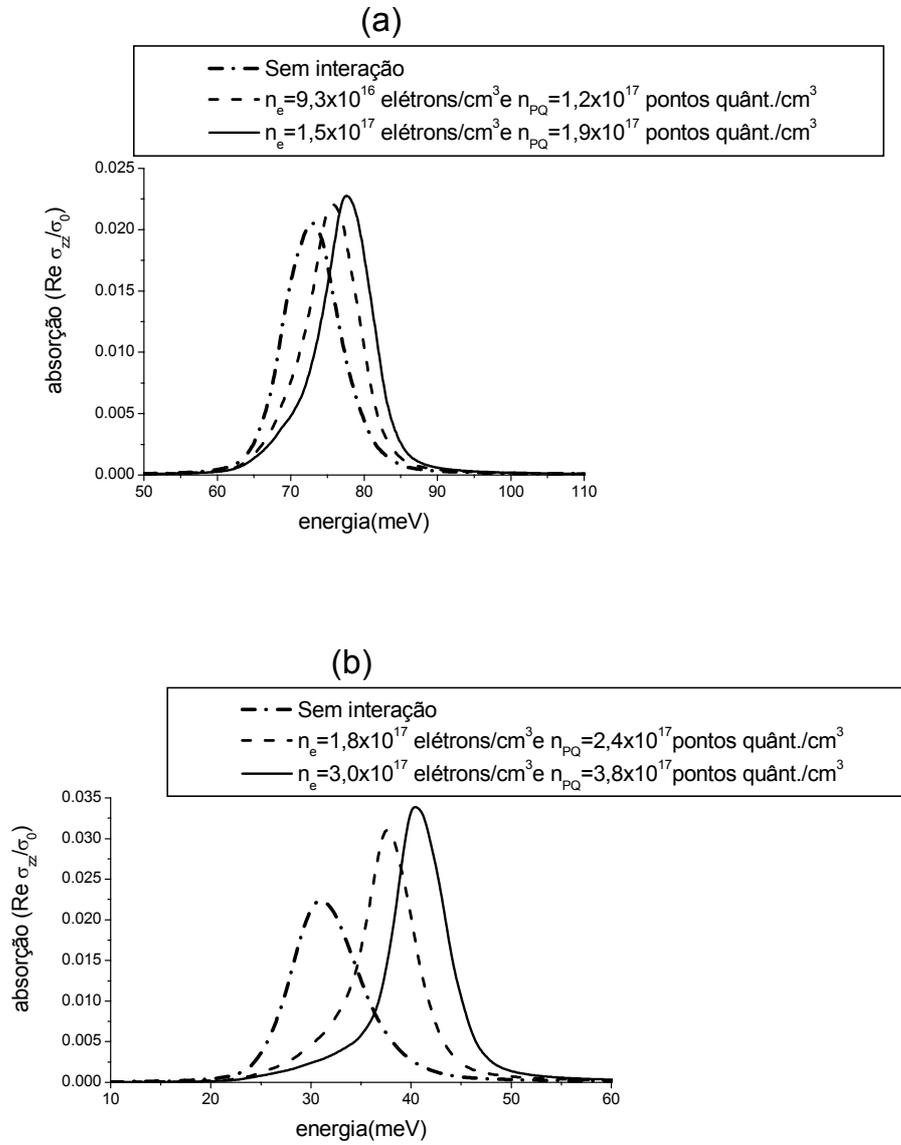


Figura 4-8: Absorção para uma super-rede randômica com multicamadas de pontos quânticos cilíndricos com barreira de potencial infinita: (a) pontos quânticos de raio médio de 10,8 nm e altura média de 2,1 nm com campo elétrico na direção x; (b) pontos quânticos de raio médio de 3,1 nm e altura média de 30,0 nm com campo elétrico na direção z.

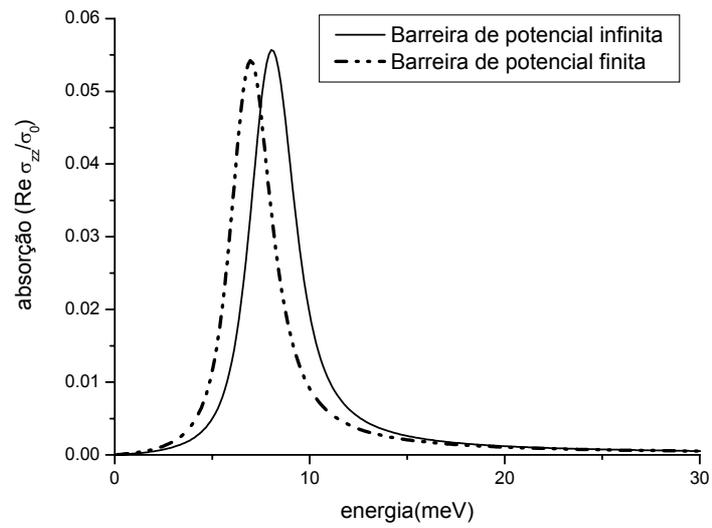


Figura 4-9: Coeficiente de absorção para rede randômica bi-dimensional de pontos quânticos cilíndricos de raio médio 30 nm e altura média 60 nm com campo elétrico aplicado na direção z.

43,3 meV e  $n_e=1,5\times 10^{12}$  elétrons/cm<sup>2</sup>, os módulos e as fases das amplitudes de excitação complexas são mostrados na figura 4-11.

Para uma rede bidimensional (planar) com pontos quânticos distribuídos no plano x,y e com campo elétrico aplicado na direção z, a interação de Coulomb é sempre repulsiva (fig. 4-2), somente o módulo desta interação é que depende da distância entre os pontos quânticos. Tal interação repulsiva provoca um deslocamento para a direita da energia de ressonância coletiva, quando comparada com a energia de transição de um ponto quântico isolado. Analisemos agora esta mesma super-rede, porém com campo elétrico aplicado na direção x. De acordo com a figura 4-3 o sinal da interação entre os dipolos depende do ângulo entre o vetor distância  $\vec{r}_{ij}$  e o eixo dos dipolos (pontos quânticos) que estão na direção x. Na média angular, a interação entre os pontos quânticos é atrativa [28], de modo que se esperaria um deslocamento para a esquerda do pico de absorção com o aumento da densidade de pontos quânticos. Porém, deveríamos usar pontos quânticos com raios maiores do que 3,1 nm para que houvesse estado excitado ligado, no entanto fazendo isso a densidade de pontos quânticos diminui e conseqüentemente a interação também diminui e os efeitos de plasma ficam imperceptíveis.

Para uma rede unidimensional crescida na direção z com campo elétrico aplicado na direção x, a interação de coulomb entre os pontos quânticos é sempre repulsiva (fig. 4-3), e o deslocamento da energia de ressonância coletiva é para a direita. Com campo elétrico na direção z a interação entre os dipolos é atrativa, porém, não há estado excitado ligado para pontos quânticos com altura de 2,1 nm, que é o usado nesta tese, de maneira que não há absorção. Se houvesse estado excitado o pico de absorção se deslocaria para a esquerda.

As interações entre os pontos quânticos seriam mais fortes se houvesse uma maneira de fabricar pontos quânticos menores do que os que foram usados nesta tese. Porém, pontos quânticos menores não apresentam estados excitados quando se usa InAs/GaAs que possui uma barreira de potencial de 450 meV[25]. Podendo-se fabricar pontos quânticos com dimensões menores e com barreira de pontencial maior do que 450 meV, a densi-

dade pode ser aumentada e conseqüentemente a interação coulombiana dinâmica também aumenta.

Depois de tudo que foi mostrado nesta tese podemos concluir que:

1) As interações dinâmicas provocam um estreitamento e deslocamento do pico de absorção para a direita, efeito este que aumenta com a densidade de pontos quânticos ionizados. O estreitamento do pico de absorção é pequeno quando comparado com o alargamento devido à aleatoriedade da rede, que é em torno de 20 meV [9], e por isso deve ser difícil de se observar em experimentos.

2) A absorção depende do tipo da super-rede (linear ou planar) e da direção do campo elétrico aplicado. Por exemplo para a super-rede linear aqui estudada com pontos quânticos de raio médio igual a 10,8 nm e altura média igual 2,1 nm não há absorção quando o campo é aplicado na direção z devido à não existência de estados excitados compatíveis com essa transição. Para a super-rede planar com pontos quânticos de raio médio igual a 3,1 nm e altura média igual a 30 nm não há absorção quando o campo elétrico é aplicado na direção x.

3) De acordo com os resultados apresentados para o coeficiente de absorção parece haver um comportamento universal que é o deslocamento do pico de absorção para a direita. E isto ocorre independente da forma da super-rede (lineares, planares, multicamadas) e também dos pontos quânticos uma vez que obtemos esse mesmo deslocamento do pico para direita em super-redes com pontos quânticos cilíndricos de InAs/GaAs e esféricos de GaAs/AlAs [29].

Os cálculos que foram feitos nesta tese podem ser feitos também para outros tipos de pontos quânticos como por exemplo pontos quânticos em forma de pirâmide ou em forma de cone e também pode-se usar outros materiais. Pretendemos fazer um cálculo para a absorção considerando a interação de troca para uma super-rede multiplanar com um número grande configurações randômicas (aproximadamente 200) e esperamos que em breve possa ter resultados experimentais para compararmos com nossos resultados teóricos.

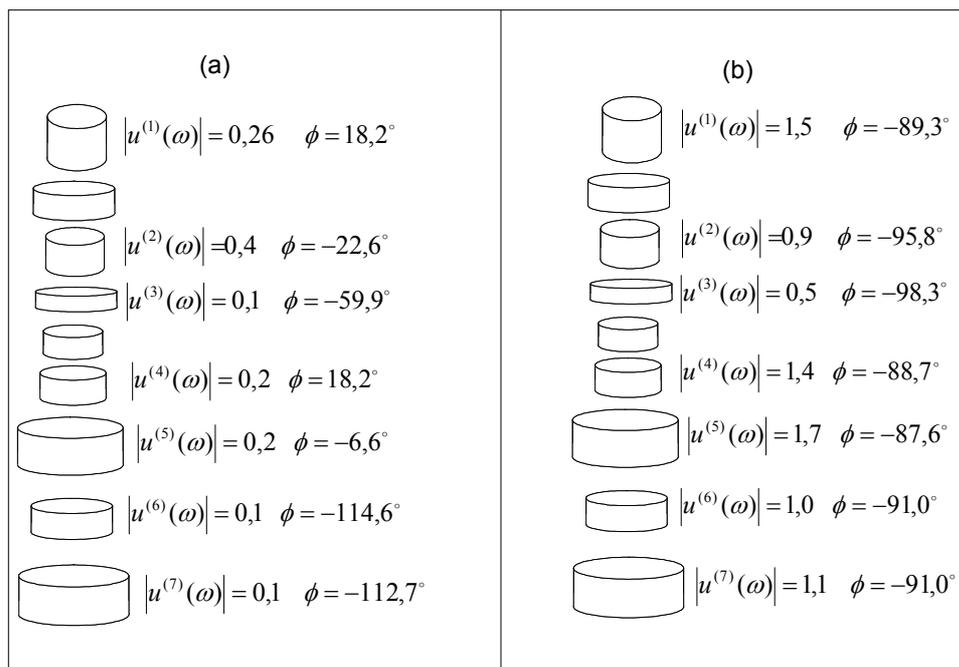
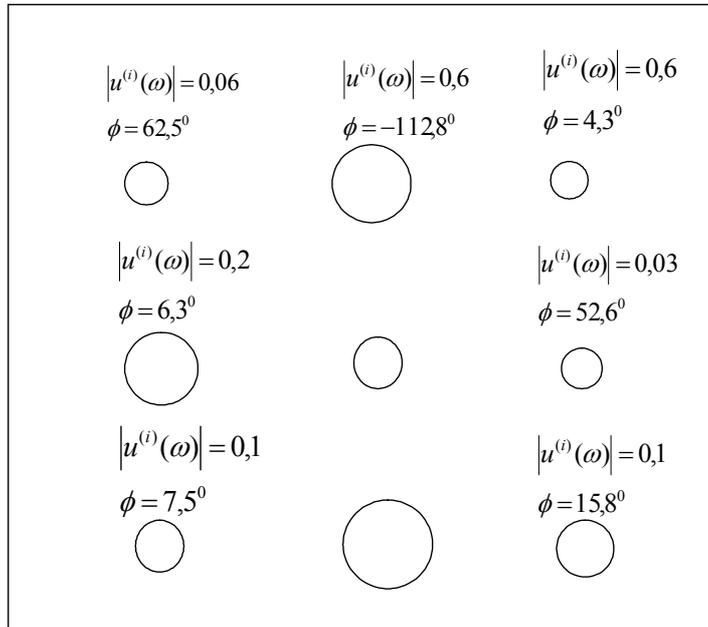


Figura 4-10: Módulo e fase da amplitude de excitação dos osciladores:(a) longe da energia de ressonância coletiva  $E=71,9$  meV; (b) próximo da energia de ressonância coletiva  $E=79,7$  meV.

(a)



(b)

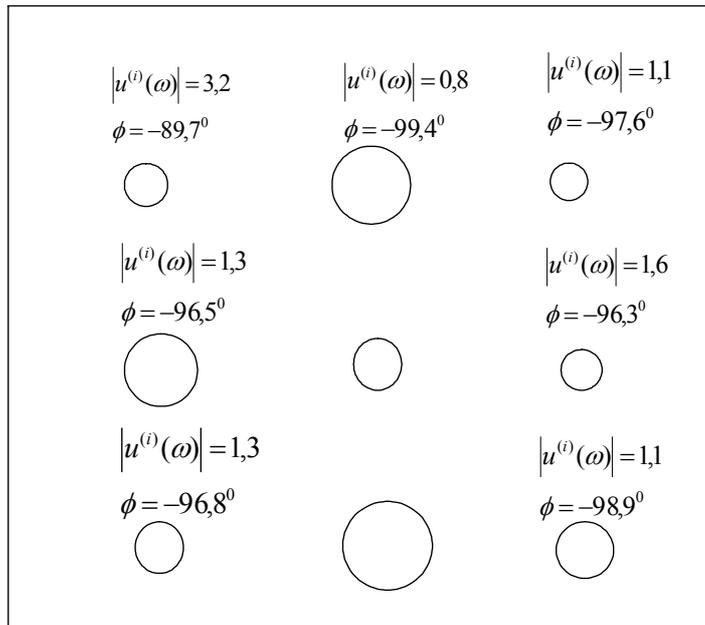


Figura 4-11: Módulo e fase da amplitude de excitação dos osciladores:(a) longe da energia de ressonância coletiva  $E=26,2$  meV; (b) próximo da energia de ressonância coletiva  $E=43,3$  meV.

# Apêndice A

## Integral multidimensional

Vamos mostrar como calculamos numericamente a integral multidimensional dada pela equação (3.17), que é a interação de Coulomb entre dois pontos quânticos, já que no caso do nosso trabalho de pontos quânticos cilíndricos, ela não pode ser resolvida analiticamente. Para termos uma noção da precisão do cálculo vamos usar a solução analítica da integral dada pela expressão (9.52) do livro do Levine [22] e compará-la com a solução numérica, que é obtida usando o método de Monte Carlo e depois compará-la com outro método usando quadratura com interpolação. A expressão (9.52) do livro do Levine [22] é dada por

$$\mathcal{E} = \frac{Z^6 e'^2}{\pi^2 a_0^6} \int_0^{2\pi} \int_0^{2\pi} \int_0^\pi \int_0^\pi \int_0^\infty \int_0^\infty e^{-2Zr_1/a_0} e^{-2Zr_2/a_0} \frac{1}{r_{12}} r_1^2 \text{sen}\theta_1 r_2^2 \text{sen}\theta_2 dr_1 dr_2 d\theta_1 d\theta_2 d\phi_1 d\phi_2, \quad (\text{A.1})$$

onde

$$e' = \frac{e}{(4\pi\epsilon_0)^{1/2}},$$

onde  $e$  é a carga do elétron e  $r_{12}$  é dado por

$$r_{12} = \left[ (x_1 - x_2)^2 + (y_1 - y_2)^2 + (z_1 - z_2)^2 \right]^{1/2},$$

onde  $x_j = r_j \sin\theta_j \cos\phi_j$ ;  $y_j = r_j \sin\theta_j \sin\phi_j$  e  $z_j = r_j \cos\theta_j$ . Vamos reescrever a expressão (A.1) no sistema efetivo de unidades (apêndice B), isto é:

$$\mathcal{E} = \frac{Z^6 2}{\pi^2} \int_0^{2\pi} \int_0^{2\pi} \int_0^\pi \int_0^\pi \int_0^\infty \int_0^\infty e^{-2Zr_1} e^{-2Zr_2} \frac{1}{r_{12}} r_1^2 \sin\theta_1 r_2^2 \sin\theta_2 dr_1 dr_2 d\theta_1 d\theta_2 d\phi_1 d\phi_2, \quad (\text{A.2})$$

A expressão (A.1) é uma integral em seis dimensões, e para calculá-la vamos fazer a expansão de  $1/r_{12}$  em termos de harmônicos esféricos [22]

$$\frac{1}{r_{12}} = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l \frac{4\pi}{2l+1} \frac{r_{<}^l}{r_{>}^{l+1}} [Y_l^m(\theta_1, \phi_1)]^* Y_l^m(\theta_2, \phi_2), \quad (\text{A.3})$$

onde  $r_{<}$  representa o menor de  $r_1$  e  $r_2$ , e  $r_{>}$  é o maior de  $r_1$  e  $r_2$ . Substituindo a expressão (A.3) em (A.1) e multiplicando e dividindo por  $Y_0^0 (Y_0^0)^* = 1/4\pi$ , temos

$$\begin{aligned} \mathcal{E} &= 32Z^6 \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l \frac{1}{2l+1} \int_0^\infty \int_0^\infty e^{-2Zr_1} e^{-2Zr_2} \frac{r_{<}^l}{r_{>}^{l+1}} r_1^2 r_2^2 dr_1 dr_2 \\ &\times \int_0^{2\pi} \int_0^\pi [Y_l^m(\theta_1, \phi_1)]^* Y_0^0(\theta_1, \phi_1) \sin\theta_1 d\theta_1 d\phi_1 \\ &\times \int_0^{2\pi} \int_0^\pi [Y_0^0(\theta_2, \phi_2)]^* Y_l^m(\theta_2, \phi_2) \sin\theta_2 d\theta_2 d\phi_2. \end{aligned}$$

Devido a ortonormalidade dos harmônicos esféricos temos

$$\mathcal{E} = 32Z^6 \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l \frac{1}{2l+1} \int_0^\infty \int_0^\infty (\dots) dr_1 dr_2 \delta_{l,0} \delta_{m,0} \delta_{l,0} \delta_{m,0}.$$

Por causa dos deltas de Kronecker somente o termo com  $m = l = 0$  será diferente de zero isto é:

$$\mathcal{E} = 32Z^6 \int_0^\infty \int_0^\infty e^{-2Zr_1} e^{-2Zr_2} \frac{1}{r_{>}} r_1^2 r_2^2 dr_1 dr_2.$$

Na integral acima se integrarmos primeiro sobre  $r_1$ , então no intervalo  $0 \leq r_1 \leq r_2$ , temos  $r_{>} = r_2$ ; no intervalo  $r_2 \leq r_1 \leq \infty$ , temos  $r_{>} = r_1$ . Portanto

$$\mathcal{E} = 32Z^6 \int_0^\infty e^{-2Zr_2} r_2^2 \left[ \int_0^{r_2} e^{-2Zr_1} \frac{r_1^2}{r_2} dr_1 + \int_{r_2}^\infty e^{-2Zr_1} \frac{r_1^2}{r_1} dr_1 \right] dr_2$$

$$\begin{aligned} \mathcal{E} &= 32Z^6 \int_0^\infty e^{-2Zr_2} r_2^2 \left( \int_0^{r_2} e^{-2Zr_1} r_1^2 dr_1 \right) dr_2 \\ &\quad + 32Z^6 \int_0^\infty e^{-2Zr_2} r_2^2 \left( \int_{r_2}^\infty e^{-2Zr_1} r_1 dr_1 \right) dr_2. \end{aligned}$$

As integrais acima são tabeladas [22] e o resultado é dado por

$$\mathcal{E} = \frac{10Z}{8} Ry,$$

onde  $Ry$  é o Rydberg. Uma vez que  $Z = 2$ , temos

$$\mathcal{E} = 2,5Ry = 2,5 \times 13,606 \text{ eV} = 34,015 \text{ eV} \quad (\text{A.4})$$

Vamos agora calcular a mesma integral usando o método de Monte Carlo e logo em seguida usaremos o método da quadratura com interpolação e depois compararemos os resultados.

O método de Monte Carlo fundamenta-se na simulação de números aleatórios e a denominação do método provém da cidade de Monte Carlo no principado de Mônaco, que é famosa por seus cassinos, onde entre outros jogos há a roleta, que é um gerador mecânico de números aleatórios. Como um exemplo de gerador de números aleatórios temos a relação de recorrência que gera uma sequência de números inteiros  $x_1, x_2, x_3, \dots$  cada um entre 0 e  $m-1$ :

$$x_i = (a \cdot x_{i-1} + c) \bmod m, \quad i > 0,$$

onde  $\text{mod } m$  é a função módulo definida da seguinte forma[26]

$$x \text{ mod } m = x - \text{int}(x/m)m, \quad (\text{A.5})$$

onde  $\text{INT}(x/m)$  é a parte inteira do quociente (por exemplo,  $\text{INT}(3,1)=3$ ),  $x \text{ mod } m$  é o resto positivo obtido quando  $m$  é subtraído de  $x$  o maior número de vezes possível, por exemplo,  $11 \text{ mod } 3=2$ . O número inicial  $x_0$ , que deve ser escolhido antes de se iniciar o processo de gerar números aleatórios, é chamado de semente do gerador[21].

Quando uma sequência gera todos os inteiros distintos  $n$  ( $0 < n < m-1$ ) durante cada período é dito então que essa sequência possui um período completo (full period) [26]. Para que a sequência dada pela expressão (A.5) tenha um período completo os seus coeficientes devem obedecer as seguintes condições[26]:

- 1)  $c$  e  $m$  não devem ter divisores comuns maiores do que a unidade;
- 2)  $a \text{ mod } p=1$  para cada fator primo  $p$  de  $m$ ;
- 3)  $a \text{ mod } 4=1$  se 4 é um divisor de  $m$ .

Nesta tese usamos um programa fortran do livro Numerical Recipes[23] para gerar números aleatórios e com isso pudemos calcular a integral pelo método de Monte Carlo que é dada por[23]

$$\int f dV \approx V \langle f \rangle \pm V \sqrt{\frac{\langle f^2 \rangle - \langle f \rangle^2}{N}}, \quad (\text{A.6})$$

onde

$$\langle f \rangle = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N f(x_i)$$

$$\langle f^2 \rangle = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N f^2(x_i).$$

O termo  $V \sqrt{\frac{\langle f^2 \rangle - \langle f \rangle^2}{N}}$  na expressão (A.6) é o erro na integração de Monte Carlo. Para o caso de coordenadas esféricas a integral (A.2) será dada por

$$\mathcal{E} = V_1 V_2 \left\langle r_1^2 F_1 \text{sen} \theta_1 \frac{1}{r_{12}} r_2^2 F_2 \text{sen} \theta_2 \right\rangle,$$

onde  $F_1(r_1) = e^{-2Zr_1}$ ,  $F_2(r_2) = e^{-2Zr_2}$ ,  $V_1 = 2\pi^2 r_{1\max}$ ,  $V_2 = 2\pi^2 r_{2\max}$ . O valor médio é dado por

$$\left\langle r_1^2 F_1 \text{sen} \theta_1 \frac{1}{r_{12}} r_2^2 F_2 \text{sen} \theta_2 \right\rangle = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N r_{1i}^2 F_1(r_{1i}) \text{sen} \theta_{1i} \frac{1}{r_{12i}} r_{2i}^2 F_2(r_{2i}) \text{sen} \theta_{2i},$$

onde

$$r_{12i} = \left[ (x_{1i} - x_{2i})^2 + (y_{1i} - y_{2i})^2 + (z_{1i} - z_{2i})^2 \right]^{1/2},$$

onde  $x_{ji} = r_{ji} \text{sen} \theta_{ji} \cos \phi_{ji}$ ;  $y_{ji} = r_{ji} \text{sen} \theta_{ji} \text{sen} \phi_{ji}$  e  $z_{ji} = r_{ji} \cos \theta_{ji}$ . Para  $r_{1\max}$  e  $r_{2\max}$  podemos colocar os valores de 2, 8 uma vez que com esses valores, para  $Z = 2$ , temos

$$e^{-2Zr_{1\max} r_1^2} = e^{-2 \times 2 \times 2,8^2} \approx 0,0001,$$

e podemos em uma aproximação considerar que a função é desprezível nesse ponto. Para  $N = 250000$ , temos para  $\mathcal{E}$  o valor

$$\mathcal{E} = 2,507 Ry = 34,12 \text{ eV},$$

que possui um erro estimado dado pela expressão  $V \sqrt{\frac{\langle f^2 \rangle - \langle f \rangle^2}{N}}$  de 0,26 eV e um erro com relação ao valor exato de 0,105 eV.

Vamos agora utilizar um outro método para calcularmos o valor da expressão A.1. Este método utilizará de interpolação e quadratura. Vamos dividir  $r_{2\max}$  em quatro partes ou seja teremos cinco pontos para interpolarmos em  $r_2$ , isto é,  $r_2 = 0$ ;  $r_2 = 0,7$ ;  $r_2 = 1,4$ ;  $r_2 = 2,1$ ;  $r_2 = 2,8$ ; e fazemos o mesmo para  $\theta_2$  e  $\phi_2$ , ou seja,  $\theta_2 = 0$ ,  $\theta_2 = \pi/4$ ,  $\theta_2 = 2\pi/4$ ,  $\theta_2 = 3\pi/4$ ,  $\theta_2 = \pi$ ,  $\phi_2 = 0$ ,  $\phi_2 = 2\pi/4$ ,  $\phi_2 = 2 \times 2\pi/4$ ,  $\phi_2 = 3 \times 2\pi/4$ ,  $\phi_2 = 4 \times 2\pi/4$ . Portanto teremos que interpolar  $5 \times 5 \times 5 = 125$  pontos. A nossa função a ser interpolada será

$$g(r_2, \theta_2, \phi_2) = e^{-2Zr_2} r_2^2 \text{sen} \theta_2 \int_0^{2\pi} \int_0^\pi \int_0^\infty e^{-2Zr_1} \frac{1}{r_{12}} r_1^2 \text{sen} \theta_1 \quad (\text{A.7}) \\ dr_1 d\theta_1 d\phi_1.$$

Só para testarmos o método de interpolação vamos calcular o valor da função  $g(r_0, \theta_0, \phi_0)$  para  $r_0=1,2$ ;  $\theta_0=0,157$ ;  $\phi_0=3,92$ . O valor calculado numericamente usando quadratura é dado por 0,318. Se usarmos a tabela com os 125 pontos e interpolarmos teremos para  $g(r_0, \theta_0, \phi_0)$  o valor 0,322. Ou seja teríamos uma diferença de 1,2% entre o valor calculado numericamente usando quadratura e o valor interpolado. Essa diferença poderia ser diminuída se usássemos, por exemplo, 343 pontos. Nesse caso a diferença cairia para 0,6%.

O valor da expressão A.1 usando quadratura e interpolação é dado por  $\mathcal{E} = 2,494Ry = 33,933 eV$ , que possui um erro de 0,082 eV com relação ao valor exato que é de 34,015 eV. Nesta tese comparamos os valores obtidos para a expressão(3.17) usando o método de Monte Carlo com os valores obtidos usando o método da quadratura com interpolação.

# Apêndice B

## Sistema efetivo de unidades

Nesta tese usamos o sistema efetivo de unidades no intuito de simplificar os cálculos, e para vermos como surgem estas unidades vamos considerar um elétron ligado a um íon positivo localizado em um semiconductor. Classicamente este sistema é estudado através de três equações:

1) energia

$$E = \frac{m^*v^2}{2} - \frac{e^2}{Kr}, \quad (\text{B.1})$$

onde  $m^*$  é a massa efetiva do elétron,  $v$  sua velocidade,  $K$  é a constante dielétrica do meio onde a impureza está imersa;

2) momento angular

$$L = m^*vr, \quad (\text{B.2})$$

3) segunda lei de Newton

$$\frac{m^*v^2}{r} = \frac{e^2}{Kr^2}. \quad (\text{B.3})$$

Quantizando-se o momento angular na Eq. (B.2), ou seja,

$$L = n\hbar,$$

$$r_n = n^2 a^*$$

e

$$E_n = -\frac{Ry^*}{n^2},$$

onde  $a^*$  e  $Ry^*$  são o raio de Bohr e o rydberg efetivos dados respectivamente por

$$a^* = \frac{\hbar^2 K}{m^* e^2}$$

e

$$Ry^* = \frac{m^* e^4}{2\hbar^2 K^2}.$$

Faremos uma aplicação para o sistema acima onde a hamiltoniana é dada por

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m^*} \nabla^2 - \frac{e^2}{Kr}. \quad (\text{B.4})$$

Escreveremos agora a expressão acima em uma forma adimensional e para isso faremos a transformação  $x, y, z \rightarrow a^* x', a^* y', a^* z'$  e dividiremos a hamiltoniana por  $Ry^*$  de maneira que a Eq. (B.4) pode ser reescrita como

$$H' = \frac{H}{Ry^*} = \frac{1}{Ry^*} \left( -\frac{\hbar^2}{2m^* a^{*2}} \nabla'^2 - \frac{e^2}{K a^* r'} \right), \quad (\text{B.5})$$

mas

$$Ry^* = \frac{\hbar^2}{2m^* a^{*2}},$$

$$2Ry^* = \frac{e^2}{K a^*},$$

portanto obtemos a hamiltoniana adimensional

$$H' = -\nabla'^2 - \frac{2}{r'}.$$

Como exemplo temos que para  $m^* = 0,040$  e  $K = 14,55$  o raio de Bohr e o rydberg efetivos são dados respectivamente por 19,278 nm e 2,56 meV.

# Apêndice C

## A Aproximação da Massa Efetiva e a Função Envelope

Em um cristal um elétron se move no potencial criado pelos íons positivamente carregados e todos os outros elétrons. Este potencial é chamado de potencial cristalino e para um cristal ideal ele é periódico com o período da rede cristalina [24]. A periodicidade do potencial cristalino  $W(r)$  implica que

$$W\left(\vec{r} + \sum_i n_i \vec{a}_i\right) = W(\vec{r}),$$

onde  $a_i$ ,  $i = 1, 2, 3$ , são os vetores fundamentais da rede de Bravais,  $\vec{r}$  é um ponto arbitrário do cristal e  $n_i$  é qualquer inteiro. A função de onda de único elétron deve satisfazer a equação de Schrödinger,

$$H_{cr}\psi(\vec{r}) = \left[-\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2 + W(\vec{r})\right]\psi(\vec{r}) = \mathcal{E}\psi(\vec{r}), \quad (\text{C.1})$$

onde  $m$  é a massa do elétron livre e  $H_{cr}$  é o Hamiltoniano cristalino. Seja o operador translação  $T_{\vec{d}}$  que age sobre o vetor  $\vec{r}$  definido como

$$T_{\vec{d}}\vec{r} = \vec{r} + \vec{d}, \quad \vec{d} = \sum_i n_i \vec{a}_i.$$

Aplicando este operador na função de onda  $\psi(\vec{r})$ , temos

$$T_{\vec{d}}\psi(\vec{r}) = \psi(\vec{r} + \vec{d}),$$

onde  $\psi(\vec{r} + \vec{d})$  é também solução da Eq. (C.1) com a mesma energia  $\mathcal{E}$ . Vamos supor que o estado eletrônico com energia  $\mathcal{E}$  não seja degenerado. Então concluímos que as funções de onda  $\psi(\vec{r})$  e  $\psi(\vec{r} + \vec{d})$  podem diferir somente por um múltiplo:

$$\psi(\vec{r} + \vec{d}) = C_{\vec{d}}\psi(\vec{r}). \quad (\text{C.2})$$

Da condição de normalização obtemos que

$$|C_{\vec{d}}|^2 = 1.$$

Duas translações diferentes devem conduzir ao mesmo resultado que uma única translação  $\vec{d} = \vec{d}_1 + \vec{d}_2$ , ou seja,  $C_{\vec{d}_1}C_{\vec{d}_2} = C_{\vec{d}_1 + \vec{d}_2}$ . Deste último resultado temos que  $C_{\vec{d}}$  pode ser representado em uma forma exponencial:

$$C_{\vec{d}} = e^{i\vec{k} \cdot \vec{d}} = \exp\left(i\vec{k} \cdot \sum_i n_i \vec{a}_i\right),$$

onde  $\vec{k}$  é um vetor constante. Portanto da Eq. (C.2), temos a função de onda na forma de Bloch:

$$\psi(\vec{r}) = e^{-i\vec{k} \cdot \vec{d}}\psi(\vec{r} + \vec{d}) = e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}}u_{\vec{k}}(\vec{r}), \quad (\text{C.3})$$

onde

$$u_k(\vec{r}) = e^{-i\vec{k}\cdot(\vec{r}+\vec{d})}\psi(\vec{r}+\vec{d}),$$

onde  $u_k(\vec{r})$ , chamada de função de Bloch, satisfaz a condição de periodicidade

$$u_k(\vec{r}+\vec{d}) = u_k(\vec{r}).$$

Portanto a função de onda de uma única partícula estacionária em um potencial cristalino tem a forma de uma onda plana modulada pela função função de Bloch com a periodicidade da rede. O vetor de onda  $\vec{k}$  é chamado de vetor de onda do elétron no cristal.

Aplicando condições periódicas de contorno para o cristal com um número de períodos  $N_i$  ao longo da direção  $\vec{a}_i$ ,

$$\psi(\vec{r} + N_i\vec{a}_i) = \psi(\vec{r}), \quad N_i \rightarrow \infty$$

obtemos para  $\vec{k}$ ,

$$\vec{k}\cdot\vec{a}_i N_i = 2\pi n_i, \quad n_i = 1, 2, 3, \dots, N_i.$$

Estes valores quase contínuos de  $\vec{k}$  formam a primeira zona de Brillouin do cristal.

A Eq. (C.3) pode ser reescrita como

$$\psi_{\alpha,\vec{k}}(\vec{r}) = \frac{1}{\sqrt{V}} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} u_{\alpha,\vec{k}}, \quad (\text{C.4})$$

onde  $\alpha$  enumera as bandas de energia,  $\frac{1}{\sqrt{V}}$  é a constante de normalização, onde  $V$  é o volume do cristal que é dado por  $V = NV_0$ ;  $N = N_1N_2N_3$  e  $V_0$  são o número e o volume das células primitivas do cristal, respectivamente. A função  $u_{\alpha,\vec{k}}(\vec{r})$  satisfaz as condições

$$\frac{1}{V_0} \int_{V_0} |u_{\alpha,\vec{k}}|^2 d^3r = 1$$

e

$$\frac{1}{V_0} \int_{V_0} u_{\alpha, \vec{k}}^* u_{\alpha', \vec{k}'} d^3 r = \delta_{\alpha\alpha'} \delta_{\vec{k}\vec{k}'}. \quad (\text{C.5})$$

Substituindo a função (C.4) na Eq. (C.1) obtemos:

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 - i \frac{\hbar^2}{m} (\vec{k} \nabla) + W(\vec{r}) \right] u_{\alpha, \vec{k}} = \left[ \mathcal{E}_\alpha(\vec{k}) - \frac{\hbar^2 k^2}{2m} \right] u_{\alpha, \vec{k}}. \quad (\text{C.6})$$

Para encontrarmos  $\mathcal{E}_\alpha(\vec{k})$  vamos reescrever a Eq. (C.6) da seguinte forma

$$\left[ H(\vec{k} = 0) + w(\vec{k}) \right] u_{\alpha, \vec{k}} = \mathcal{E}_\alpha(\vec{k}) u_{\alpha, \vec{k}}, \quad (\text{C.7})$$

onde um extremo de  $\mathcal{E}_\alpha(\vec{k})$  se encontra no ponto  $\vec{k} = 0$  e

$$H(\vec{k} = 0) = -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + W(\vec{r})$$

é o Hamiltoniano, cujas autofunções são  $u_{\alpha, 0}$

$$H(\vec{k} = 0) u_{\alpha, 0} = \mathcal{E}_\alpha(0) u_{\alpha, 0},$$

$$w(\vec{k}) = -i \frac{\hbar^2}{m} (\vec{k} \nabla) + \frac{\hbar^2 k^2}{2m} \rightarrow 0, \text{ quando } \vec{k} \rightarrow 0.$$

Em valores pequenos de  $\vec{k}$ ,  $w(\vec{k})$  será uma pequena perturbação e poderemos corrigir os autovalores  $\mathcal{E}_\alpha(0)$  aplicando a teoria de perturbação[20], [22]. Fazendo isto temos que a correção de primeira ordem é dada por

$$\mathcal{E}_\alpha^{(1)}(k) = \frac{1}{V_0} \int_{V_0} u_{\alpha, 0}^*(\vec{r}) w(\vec{k}) u_{\alpha, 0}(\vec{r}) d^3 r = \frac{\hbar^2 k^2}{2m}$$

e a correção de segunda ordem é

$$\mathcal{E}_\alpha^{(2)}(k) = \sum_{\alpha' \neq \alpha} \frac{\left| \frac{1}{V_0} \int_{V_0} u_{\alpha, 0}^*(\vec{r}) w(\vec{k}) u_{\alpha', 0}(\vec{r}) d^3 r \right|^2}{\mathcal{E}_\alpha(0) - \mathcal{E}_{\alpha'}(0)} = \frac{\hbar^2}{m^2} \sum_{\alpha' \neq \alpha} \frac{|\vec{k} \cdot \vec{\pi}_{\alpha\alpha'}|^2}{\mathcal{E}_\alpha(0) - \mathcal{E}_{\alpha'}(0)}, \quad (\text{C.8})$$

onde

$$\vec{\pi}_{\alpha\alpha'} = \frac{1}{V_0} \int_{V_0} u_{\alpha,0}^*(\vec{r}) (-i\hbar\vec{\nabla}) u_{\alpha',0}(\vec{r}) d^3r.$$

Portanto

$$\mathcal{E}_\alpha(\vec{k}) = \mathcal{E}_\alpha(0) + \mathcal{E}_\alpha^{(1)}(k) + \mathcal{E}_\alpha^{(2)}(k), \quad (\text{C.9})$$

ou seja

$$\mathcal{E}_\alpha(\vec{k}) = \mathcal{E}_\alpha(0) + \frac{\hbar^2 k^2}{2m} + \frac{\hbar^2}{m^2} \sum_{\alpha' \neq \alpha} \frac{|\vec{k} \cdot \vec{\pi}_{\alpha\alpha'}|^2}{\mathcal{E}_\alpha(0) - \mathcal{E}_{\alpha'}(0)}. \quad (\text{C.10})$$

A Eq. (C.10) pode ser reescrita como [24]

$$\mathcal{E}_\alpha(\vec{k}) = \mathcal{E}_\alpha(0) + \frac{\hbar^2}{2} \left( \frac{1}{m^*} \right)_{ik} k_i k_k, \quad (\text{C.11})$$

onde  $\left( \frac{1}{m^*} \right)_{ik}$  é o tensor massa efetiva recíproco que descreve as propriedades da banda eletrônica  $\alpha$  na vizinhança do ponto  $\vec{k} = 0$ . Para um cristal cúbico este tensor se reduz a um escalar

$$\left( \frac{1}{m^*} \right)_{ik} = \frac{1}{m^*} \delta_{ik},$$

e portanto, temos

$$\mathcal{E}_\alpha(\vec{k}) = \mathcal{E}_\alpha(0) + \frac{\hbar^2 k^2}{2m^*}.$$

A aproximação que fizemos para chegar à Eq. (C.11) é chamada de Aproximação da Massa Efetiva (AME) e podemos usar esta aproximação para descrever o movimento de um elétron em um potencial externo  $U(\vec{r})$  que é aplicado no cristal. Nesse caso a equação de Schrödinger é

$$[H_{cr} + U(\vec{r})] \psi(\vec{r}) = \mathcal{E} \psi(\vec{r}). \quad (\text{C.12})$$

Vamos expandir a função de onda em uma série

$$\psi(\vec{r}) = \sum_{\alpha, \vec{k}} C_{\alpha, \vec{k}} \psi_{\alpha, \vec{k}}, \quad (\text{C.13})$$

onde  $\psi_{\alpha, \vec{k}}$  são soluções do problema não perturbado da Eq. (C.1). Colocando a expansão

(C.13) na Eq. (C.12), multiplicando pelo complexo conjugado  $\psi_{\alpha, \vec{k}}^*$  e integrando sobre a célula primitiva, obtemos

$$\mathcal{E}_\alpha(\vec{k})C_{\alpha, \vec{k}} + \sum_{\alpha', \vec{k}'} \langle \alpha, \vec{k} | U | \alpha', \vec{k}' \rangle C_{\alpha', \vec{k}'} = \mathcal{E}C_{\alpha, \vec{k}}, \quad (\text{C.14})$$

onde os elementos de matriz são

$$\langle \alpha, \vec{k} | U | \alpha', \vec{k}' \rangle = \frac{1}{NV_0} \int_V e^{i(\vec{k}' - \vec{k}) \cdot \vec{r}} u_{\alpha, \vec{k}}^*(\vec{r}) U(\vec{r}) u_{\alpha', \vec{k}'}(\vec{r}) d^3r. \quad (\text{C.15})$$

Vamos agora expandir o potencial  $U(\vec{r})$  em uma série de Fourier:

$$U(\vec{r}) = \sum_{\vec{K}} U_{\vec{K}} e^{i(\vec{K} \cdot \vec{r})}.$$

Inserindo a expansão acima na Eq. (C.15) e obtemos

$$\begin{aligned} \langle \alpha, \vec{k} | U | \alpha', \vec{k}' \rangle &= \frac{1}{NV_0} \sum_{\vec{K}} \int_V e^{i(\vec{k}' - \vec{k} + \vec{K}) \cdot \vec{r}} u_{\alpha, \vec{k}}^*(\vec{r}) U_{\vec{K}} u_{\alpha', \vec{k}'}(\vec{r}) d^3r \\ &\approx \frac{1}{NV_0} \sum_{\vec{K}} U_{\vec{K}} \sum_{\vec{n}} e^{i(\vec{k}' - \vec{k} + \vec{K}) \cdot \vec{n}} \int_{V_0} u_{\alpha, \vec{k}}^*(\vec{r}) u_{\alpha', \vec{k}'}(\vec{r}) d^3r, \end{aligned}$$

onde  $\vec{n}$  é a posição da  $n$ -ésima célula primitiva e levamos em conta que as funções de Bloch são periódicas e que o potencial  $U(\vec{r})$  varia lentamente de modo que somente os vetores  $\vec{K}$  com módulo pequeno contribuem para o resultado. A soma  $\sum_{\vec{n}} e^{i(\vec{k}' - \vec{k} + \vec{K}) \cdot \vec{n}}$  desaparece a menos que

$$\vec{k}' - \vec{k} + \vec{K} = 0.$$

Portanto podemos reescrever a Eq. (C.14) como

$$\mathcal{E}_\alpha(\vec{k})C_{\alpha, \vec{k}} + \sum_{\alpha', \vec{k} - \vec{K}} U_{\vec{K}} C_{\alpha', \vec{k} - \vec{K}} \Delta_{\vec{k} \vec{k} - \vec{K}}^{\alpha \alpha'} = \mathcal{E}C_{\alpha, \vec{k}}, \quad (\text{C.16})$$

onde

$$\Delta_{\vec{k}\vec{k}-\vec{K}}^{\alpha\alpha'} = \frac{1}{V_0} \int_{V_0} u_{\alpha,\vec{k}}^*(\vec{r}) u_{\alpha',\vec{k}-\vec{K}}(\vec{r}) d^3r$$

Para  $\vec{K}$  pequeno, podemos fazer a seguinte aproximação

$$\Delta_{\vec{k}\vec{k}-\vec{K}}^{\alpha\alpha'} \approx \Delta_{\vec{k}\vec{k}}^{\alpha\alpha'} = \delta_{\alpha\alpha'},$$

onde usamos a condição dada pela Eq. (C.5). Portanto podemos simplificar a Eq. (C.16)

para a forma

$$\mathcal{E}_\alpha(\vec{k}) C_{\alpha,\vec{k}} + \sum_{\vec{K}} U_{\vec{K}} C_{\alpha,\vec{k}-\vec{K}} = \mathcal{E} C_{\alpha,\vec{k}}. \quad (\text{C.17})$$

Substituindo a Eq. (C.4) na Eq. (C.13) e considerando um  $\alpha$  fixo, obtemos

$$\psi(\vec{r}) = \sum_{\vec{k}} C_{\alpha,\vec{k}} \psi_{\alpha,\vec{k}} = \frac{1}{\sqrt{V}} \sum_{\vec{k}} C_{\alpha,\vec{k}} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} u_{\alpha,\vec{k}}(\vec{r}). \quad (\text{C.18})$$

Para calcularmos  $\psi(\vec{r})$  introduziremos a função

$$\mathcal{F}_\alpha(\vec{r}) = \frac{1}{\sqrt{V}} \sum_{\vec{k}} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} C_{\alpha,\vec{k}}.$$

Multiplicando a Eq. (C.17) por  $e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}}$  e somando em  $\vec{k}$ , obtemos

$$\sum_{\vec{k}} \mathcal{E}_\alpha(\vec{k}) C_{\alpha,\vec{k}} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} + \sum_{\vec{K},\vec{k}} U_{\vec{K}} C_{\alpha,\vec{k}-\vec{K}} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} = \mathcal{E} \sum_{\vec{k}} C_{\alpha,\vec{k}} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}}. \quad (\text{C.19})$$

Podemos fazer uma transformação no primeiro termo da equação acima da seguinte maneira:

$$\begin{aligned} \sum_{\vec{k}} \mathcal{E}_\alpha(\vec{k}) C_{\alpha,\vec{k}} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} &= \sum_{\vec{k}} \mathcal{E}_\alpha(-i\vec{\nabla}) C_{\alpha,\vec{k}} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} \\ &= \mathcal{E}_\alpha(-i\vec{\nabla}) \sum_{\vec{k}} C_{\alpha,\vec{k}} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} = \mathcal{E}_\alpha(-i\vec{\nabla}) \sqrt{V} \mathcal{F}_\alpha(\vec{r}), \end{aligned}$$

onde substituímos o vetor de onda  $\vec{k}$  pelo operador  $-i\vec{\nabla}$  na expressão para a energia  $\mathcal{E}(\vec{k})$ . O segundo termo na expressão (C.19) pode ser reescrito como

$$\sum_{\vec{K}} U_{\vec{K}} e^{i\vec{K}\cdot\vec{r}} \sum_{\vec{k}} e^{i(\vec{k}-\vec{K})\cdot\vec{r}} C_{\alpha,\vec{k}-\vec{K}}. \quad (\text{C.20})$$

Para um  $\vec{K}$  fixo, o somatório interno na expressão acima pode ser escrito como

$$\sum_{\vec{k}} e^{i(\vec{k}-\vec{K})\cdot\vec{r}} C_{\alpha,\vec{k}-\vec{K}} = \sum_{\vec{k}-\vec{K}} e^{i(\vec{k}-\vec{K})\cdot\vec{r}} C_{\alpha,\vec{k}-\vec{K}} = \sqrt{V} \mathcal{F}_\alpha(\vec{r}).$$

Portanto obtemos a equação para  $\mathcal{F}_\alpha(\vec{r})$ :

$$[\mathcal{E}_\alpha(-i\vec{\nabla}) + U(\vec{r})] \mathcal{F}_\alpha(\vec{r}) = \mathcal{E} \mathcal{F}_\alpha(\vec{r}). \quad (\text{C.21})$$

Na aproximação da massa efetiva para um cristal cúbico temos que  $\mathcal{E}_\alpha(\vec{k}) = \mathcal{E}(0) + \frac{\hbar^2 k^2}{2m^*}$ , portanto a Eq. (C.21) pode ser expressa por

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2m^*} \nabla^2 + U(\vec{r}) \right] \mathcal{F}_\alpha(\vec{r}) = [\mathcal{E} - \mathcal{E}(0)] \mathcal{F}_\alpha(\vec{r}).$$

onde substituímos o vetor de onda  $\vec{k}$  pelo operador  $-i\vec{\nabla}$  na expressão para  $\mathcal{E}_\alpha(\vec{k})$ . A equação acima tem a forma da equação de Schrödinger para um elétron com uma massa efetiva  $m^*$  se movendo em um potencial externo  $U(\vec{r})$  e a função  $\mathcal{F}_\alpha(\vec{r})$  é chamada de função envelope.

Da Eq. (C.18) temos que

$$\psi(\vec{r}) \approx \frac{1}{\sqrt{V}} \sum_{\vec{k}} C_{\alpha,\vec{k}} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} u_{\alpha,0}(\vec{r}) = \mathcal{F}_\alpha(\vec{r}) u_{\alpha,0}(\vec{r}).$$

e portanto obtemos que para um potencial externo  $U(\vec{r})$  que varia lentamente o elétron no cristal pode ser descrito em termos da função de bloch modulada pela função envelope

que deve satisfazer a condição de normalização:

$$\int d^3r |\mathcal{F}_\alpha(\vec{r})|^2 = 1.$$

Se dois meios possuem massas efetivas diferentes  $m_1^*$  e  $m_2^*$  (Fig.C-1) devemos considerar na interface entre eles as condições de contorno de Ben-Daniel e Duke [11] para a função envelope do elétron.

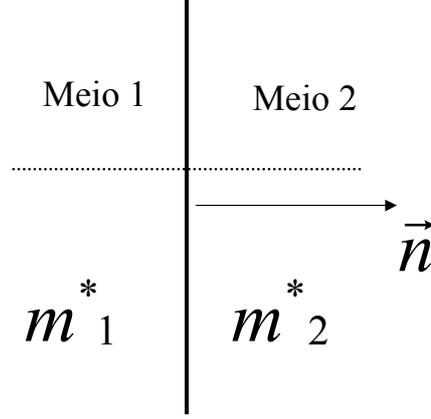


Figura C-1: Interface de dois materiais com massas efetivas diferentes.

Para chegarmos a essas condições de contorno consideremos a equação que expressa a conservação local da carga elétrica [20]:

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho(\vec{r}, t) + \text{div} \vec{J}(\vec{r}, t) = 0, \quad (\text{C.22})$$

onde

$$\rho(\vec{r}, t) = |\psi(\vec{r}, t)|^2 \quad (\text{C.23})$$

é a densidade de probabilidade e  $\vec{J}(\vec{r}, t)$  é a densidade de corrente. Vamos encontrar um vetor  $\vec{J}(\vec{r}, t)$  que satisfaça a Eq. (C.22) e para isso vamos supor que um elétron seja submetido a um potencial  $V(\vec{r})$  e seu Hamiltoniano seja dado por

$$H = \frac{-\hbar^2}{2} \nabla \cdot \left( \frac{1}{m^*} \nabla \right) + V(\vec{r}),$$

onde  $m^*$  é a massa efetiva do elétron, e a equação de Schrödinger seja dada por

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(\vec{r}, t) = \frac{-\hbar^2}{2} \nabla \cdot \left( \frac{1}{m^*} \nabla \right) \psi(\vec{r}, t) + V(\vec{r}) \psi(\vec{r}, t), \quad (\text{C.24})$$

onde  $V(\vec{r})$  é real. O complexo conjugado da equação acima é

$$-i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi^*(\vec{r}, t) = \frac{-\hbar^2}{2} \nabla \cdot \left( \frac{1}{m^*} \nabla \right) \psi^*(\vec{r}, t) + V(\vec{r}) \psi^*(\vec{r}, t). \quad (\text{C.25})$$

Multiplicando os dois lados da Eq. (C.24) por  $\psi^*(\vec{r}, t)$  e os dois lados da Eq. (C.25) por  $\psi(\vec{r}, t)$  e subtraindo a Eq. (C.25) da Eq. (C.24) obtemos

$$i\hbar \left( \psi^*(\vec{r}, t) \frac{\partial \psi(\vec{r}, t)}{\partial t} + \psi(\vec{r}, t) \frac{\partial \psi^*(\vec{r}, t)}{\partial t} \right) = \frac{-\hbar^2}{2} \left( \psi^*(\vec{r}, t) \nabla \cdot \left( \frac{1}{m^*} \nabla \psi^*(\vec{r}, t) \right) - \psi(\vec{r}, t) \nabla \cdot \left( \frac{1}{m^*} \nabla \psi^*(\vec{r}, t) \right) \right),$$

ou seja

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\psi(\vec{r}, t)|^2 = \frac{(i\hbar)^2}{2} \left( \psi^*(\vec{r}, t) \nabla \cdot \left( \frac{1}{m^*} \nabla \psi^*(\vec{r}, t) \right) - \psi(\vec{r}, t) \nabla \cdot \left( \frac{1}{m^*} \nabla \psi^*(\vec{r}, t) \right) \right)$$

ou ainda

$$-i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \rho(\vec{r}, t) = \frac{(i\hbar)^2}{2} \left( \psi^*(\vec{r}, t) \nabla \cdot \left( \frac{1}{m^*} \nabla \psi^*(\vec{r}, t) \right) - \psi(\vec{r}, t) \nabla \cdot \left( \frac{1}{m^*} \nabla \psi^*(\vec{r}, t) \right) \right) \quad (\text{C.26})$$

Uma vez que

$$\nabla \cdot \left( \psi^*(\vec{r}, t) \left( \frac{1}{m^*} \nabla \psi(\vec{r}, t) \right) \right) = \nabla \psi^*(\vec{r}, t) \cdot \frac{1}{m^*} \nabla \psi(\vec{r}, t) + \nabla \cdot \left( \frac{1}{m^*} \nabla \psi(\vec{r}, t) \right) \psi^*(\vec{r}, t) \quad (\text{C.27})$$

e

$$\nabla \cdot \left( \psi(\vec{r}, t) \left( \frac{1}{m^*} \nabla \psi^*(\vec{r}, t) \right) \right) = \nabla \psi(\vec{r}, t) \cdot \frac{1}{m^*} \nabla \psi^*(\vec{r}, t) + \nabla \cdot \left( \frac{1}{m^*} \nabla \psi^*(\vec{r}, t) \right) \psi(\vec{r}, t), \quad (\text{C.28})$$

vamos subtrair a expressão (C.28) de (C.27) para obtermos

$$\begin{aligned} \nabla \cdot \left( \psi^*(\vec{r}, t) \frac{1}{m^*} \nabla \psi(\vec{r}, t) - \psi(\vec{r}, t) \frac{1}{m^*} \nabla \psi^*(\vec{r}, t) \right) &= \psi^*(\vec{r}, t) \nabla \cdot \left( \frac{1}{m^*} \nabla \psi(\vec{r}, t) \right) \\ &\quad - \psi(\vec{r}, t) \nabla \cdot \left( \frac{1}{m^*} \nabla \psi^*(\vec{r}, t) \right) \end{aligned}$$

Da equação acima temos que a Eq. (C.26) pode ser reescrita como

$$-i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \rho(\vec{r}, t) = \frac{(i\hbar)^2}{2} \nabla \cdot \left( \psi^*(\vec{r}, t) \frac{1}{m^*} \nabla \psi(\vec{r}, t) - \psi(\vec{r}, t) \frac{1}{m^*} \nabla \psi^*(\vec{r}, t) \right)$$

ou ainda

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho(\vec{r}, t) - \frac{i\hbar}{2} \nabla \cdot \left( \psi^*(\vec{r}, t) \frac{1}{m^*} \nabla \psi(\vec{r}, t) - \psi(\vec{r}, t) \frac{1}{m^*} \nabla \psi^*(\vec{r}, t) \right) = 0$$

Comparando a expressão acima com a expressão (C.22), temos:

$$J(\vec{r}, t) = \frac{i\hbar}{2m^*} (\psi^*(\vec{r}, t) \nabla \psi(\vec{r}, t) - \psi(\vec{r}, t) \nabla \psi^*(\vec{r}, t)),$$

que pode ser reescrita como

$$J(\vec{r}, t) = \text{Re} \left[ \frac{i\hbar}{m^*} \psi^*(\vec{r}, t) \nabla \psi(\vec{r}, t) \right]$$

Consideremos agora a interface entre dois materiais com massas efetivas diferentes (Fig.C-1), onde a densidade de corrente  $J(\vec{r}, t)$  deve ser contínua, isto é:

$$\begin{aligned} J_1 \cdot \vec{n} &= J_2 \cdot \vec{n} \\ \text{Re} \left[ \frac{i\hbar}{m_1^*} (\psi_1^* \nabla \psi_1 \cdot \vec{n}) \right] &= \text{Re} \left[ \frac{i\hbar}{m_2^*} (\psi_2^* \nabla \psi_2 \cdot \vec{n}) \right], \end{aligned} \quad (\text{C.29})$$

onde  $\vec{n}$  é um vetor unitário perpendicular à interface. Usando a condição de que na interface

$$\psi_1 = \psi_2, \quad (\text{C.30})$$

temos que a Eq. (C.29) pode ser reescrita como:

$$\frac{1}{m_1^*} \left( \frac{\partial \psi_1}{\partial x_n} \right) = \frac{1}{m_2^*} \left( \frac{\partial \psi_2}{\partial x_n} \right). \quad (\text{C.31})$$

As equações (C.30) e (C.31) são conhecidas como condições de contorno de Ben-Daniel e Duke e causam uma descontinuidade na derivada da função envelope como pode ser visto na figura C-2, que mostra a função envelope para um ponto quântico esférico de raio 4,5 nm.

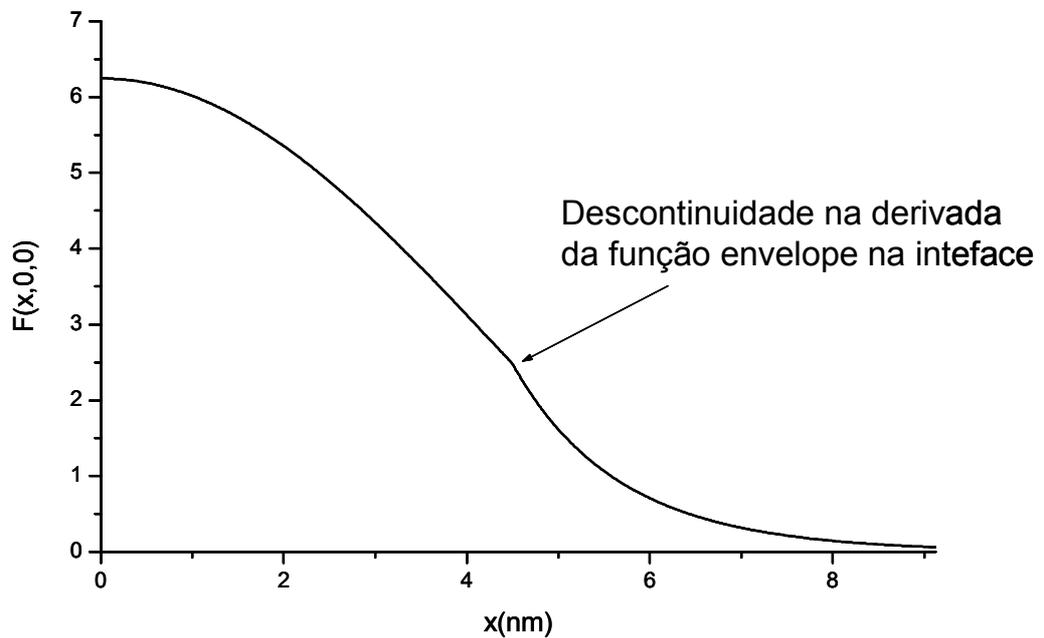


Figura C-2: Descontinuidade na derivada da função envelope na interface entre dois materiais diferentes para um ponto quântico esférico de raio 4,5 nm devido às condições de contorno de Ben-Daniel e Duke.

# Apêndice D

## Teoria do funcional da densidade

### D.1 O teorema de Hohenberg-Kohn

Neste apêndice vamos fazer um estudo sobre a teoria do funcional da densidade (DFT, density functional theory) que será usada para calcularmos os níveis de energias dos pontos quânticos considerando as interações elétron-elétron.

A teoria do funcional da densidade é um método utilizado para estudar as propriedades eletrônicas de um sistema de muitos elétrons. Este método foi elaborado em 1964 por Hohenberg e Kohn (HK)[17]. Estes autores demonstraram, através de uma teorema, que todos os aspectos da estrutura eletrônica de um sistema em um estado fundamental não degenerado são completamente determinados por sua densidade eletrônica  $n(\vec{r})$ .

O teorema acima conhecido como o teorema de Hohenberg-Kohn afirma que o valor esperado de qualquer operador  $O$  é um funcional único  $O[n(\vec{r})]$  da densidade do estado fundamental  $n_0(\vec{r})$ . Vamos demonstrar este teorema. Mas antes é importante dizer que o que caracteriza um sistema não relativístico de  $N$  elétrons interagentes é apenas o potencial externo  $V_{ext}$  sendo que a energia cinética  $T$  e a interação coulombiana  $V$  são as mesmas para todos os sistemas ( $T$  e  $V$  são chamados de universais).

Vamos então à prova do teorema de Hohenberg-Kohn [13]. Primeiro mostraremos que

dois potenciais,  $V_{ext}$  e  $V'_{ext}$ , que diferem por mais de uma constante trivial (uma constante não é importante uma vez que podemos sempre mudar o ponto de referência da energia potencial), dão origem a estados fundamentais diferentes  $\Psi_0$  e  $\Psi'_0$ . Vamos fazer a prova por contradição. A equação de Schrödinger para  $\Psi_0$  e  $\Psi'_0$  são

$$(T + V + V_{ext}) \Psi_0 = \varepsilon_0 \Psi_0 \quad (\text{D.1})$$

$$(T + V + V'_{ext}) \Psi'_0 = \varepsilon'_0 \Psi'_0, \quad (\text{D.2})$$

onde  $\varepsilon_0$  e  $\varepsilon'_0$  são as respectivas energias do estado fundamental. Vamos supor agora que  $\Psi_0$  e  $\Psi'_0$  sejam os mesmos, e  $V_{ext}$  e  $V'_{ext}$  diferem por mais de uma constante trivial. Nós então subtraímos a Eq. (D.2) da Eq. (D.1) e obtemos:

$$(V_{ext} - V'_{ext}) \Psi_0 = (\varepsilon_0 - \varepsilon'_0) \Psi_0.$$

Uma vez que  $\varepsilon_0$  e  $\varepsilon'_0$  são apenas números reais, então temos que  $V_{ext}$  e  $V'_{ext}$  podem diferir no máximo por uma constante, o que contraria a nossa hipótese. Nós assim mostramos que se  $V_{ext} \neq V'_{ext}$  então  $\Psi_0 \neq \Psi'_0$ .

Vamos agora provar que se  $V_{ext} \neq V'_{ext}$  (e conseqüentemente  $\Psi_0 \neq \Psi'_0$ ), então devemos ter  $n_0(\vec{r}) \neq n'_0(\vec{r})$ . Novamente provamos esta afirmação por contradição. Vamos supor que  $n_0(\vec{r}) = n'_0(\vec{r})$  e que  $H' = T + V + V'_{ext}$  e  $H = T + V + V_{ext}$ , ou seja,  $H'$  e  $H$  diferem somente pelo potencial externo. De acordo com o princípio variacional de Rayleigh-Ritz, temos:

$$\varepsilon_0 = \langle \Psi_0 | H | \Psi_0 \rangle < \langle \Psi'_0 | H | \Psi'_0 \rangle,$$

e

$$\langle \Psi'_0 | H | \Psi'_0 \rangle = \langle \Psi'_0 | H' + V_{ext} - V'_{ext} | \Psi'_0 \rangle = \varepsilon'_0 + \int n'_0(\vec{r}) [V_{ext}(\vec{r}) - V'_{ext}(\vec{r})] d^3r,$$

de modo que

$$\varepsilon_0 < \varepsilon'_0 + \int n'_0(\vec{r}) [V_{ext}(\vec{r}) - V'_{ext}(\vec{r})] d^3r. \quad (\text{D.3})$$

Se trocamos as quantidades primadas pelas quantidades não primadas, teremos

$$\varepsilon'_0 < \varepsilon_0 + \int n_0(\vec{r}) [V'_{ext}(\vec{r}) - V_{ext}(\vec{r})] d^3r. \quad (\text{D.4})$$

Adicionando as Eqs. (D.3) e (D.4) e usando a nossa suposição de que  $n_0(\vec{r}) = n'_0(\vec{r})$ , então teremos a expressão

$$\varepsilon_0 + \varepsilon'_0 < \varepsilon_0 + \varepsilon'_0,$$

que é inconsistente. Portanto mostramos que estados fundamentais não degenerados diferentes necessariamente conduzem a densidades do estado fundamental diferentes. Disso segue que duas densidades do estado fundamental idênticas devem surgir de potenciais externos idênticos e com isto a prova do teorema de Hohenberg-Kohn está completa.

Uma vez que o valor esperado de qualquer operador  $O$  é um funcional único da densidade do estado fundamental  $n_0(\vec{r})$ , isto certamente se aplica para a energia do estado fundamental. Escrevemos este funcional como

$$\varepsilon[n] = \langle \Psi_0[n] | T + V_{ext} + V | \Psi_0[n] \rangle, \quad (\text{D.5})$$

onde  $V_{ext}$  é o potencial externo específico de um sistema com densidade do estado fundamental  $n_0(\vec{r})$  e energia do estado fundamental  $\varepsilon_0$ . Para o caso onde a densidade  $n(\vec{r})$  se iguala à densidade do estado fundamental  $n_0(\vec{r})$  que corresponde ao potencial externo  $V_{ext}$ , o funcional  $\varepsilon[n]$  então se torna o valor  $\varepsilon_0$ . Uma vez que a energia do estado fundamental é unicamente determinada por  $n_0(\vec{r})$ , o princípio variacional de Rayleigh-Ritz afirma que

$$\varepsilon_0 < \varepsilon[n]$$

para  $n \neq n_0$ .

Podemos escrever a energia do estado fundamental como

$$\varepsilon[n] = F_{HK}[n] + \int V_{ext}(\vec{r})n(\vec{r})d^3r, \quad (\text{D.6})$$

onde  $F_{HK}[n] = \langle \Psi[n] | T + V | \Psi[n] \rangle$  é um funcional único e é o mesmo funcional da densidade para todos os sistemas interagentes de  $N$ -elétrons. Portanto necessitamos determiná-lo somente uma vez, e aplicá-lo para todos os sistemas.

## D.2 As equações autoconsistentes

A energia do estado fundamental de um sistema interagente pode ser encontrada usando o formalismo de Kohn-Sham [13]. A idéia desse formalismo é usar um sistema não interagente auxiliar submetido a um potencial externo  $V_s$  tal que esse sistema tenha a mesma densidade do estado fundamental do sistema interagente. Uma vez que obtivemos essa densidade, podemos usá-la no funcional da energia Eq. (D.5).

No formalismo de Kohn-Sham as equações são resolvidas auto-consistentemente. O potencial efetivo  $V_s$  depende da densidade eletrônica e o cálculo é iniciado supondo-se uma densidade inicial. Esta densidade inicial nos dá um potencial  $V_s$  inicial, que pode ser usado para encontrar as funções de onda e energias das partículas individuais, e com isso uma nova densidade é obtida, que dará um novo potencial  $V_s$ . As equações são resolvidas novamente e este processo é repetido até que a autoconsistência seja obtida, isto é, até que a energia obtida em uma iteração seja suficientemente próxima da energia obtida em outra iteração.

Vamos considerar um sistema não interagente de  $N$ -elétrons em um potencial externo  $V_s$ . O hamiltoniano  $H_s$  deste sistema é dado por

$$H_s = T_s + V_s.$$

Vamos aplicar o teorema de Hohenberg-Kohn para este sistema que diz que há um fun-

cional único de energia

$$\varepsilon_s [n] = T_s [n] + \int V_s(\vec{r})n(\vec{r})d^3r, \quad (\text{D.7})$$

onde  $T_s [n]$  é um funcional energia cinética de um sistema de  $N$  elétrons não interagentes e portanto é um funcional diferente do funcional  $T [n]$  da Eq. (D.6).

A densidade do estado fundamental para o sistema não interagente é dada por

$$n_s(\vec{r}) = \sum_{i=1}^N |\phi_i(\vec{r})|^2, \quad (\text{D.8})$$

onde as  $N$  funções de onda de uma partícula  $\phi_i(\vec{r})$  satisfazem a equação tipo Schrödinger

$$\left[ \frac{-\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V_s(\vec{r}) \right] \phi_i(\vec{r}) = \varepsilon_i \phi_i(\vec{r}), \quad \varepsilon_1 \leq \varepsilon_2 \leq \dots, \quad (\text{D.9})$$

onde  $\varepsilon_i$  são os  $N$  autovalores mais baixos. Agora vamos encontrar um  $V_s(\vec{r})$  de maneira que o sistema não interagente tenha a mesma densidade do estado fundamental do sistema interagente no potencial externo  $V_{ext}$ . Para isso vamos reescrever o funcional energia  $\varepsilon [n]$  do sistema interagente dado pela Eq. (D.5) como

$$\begin{aligned} \varepsilon [n] &= T_s [n] + \left\{ \langle \Psi [n] | T + V | \Psi [n] \rangle - T_s [n] - \frac{e^2}{2} \int \int \frac{n(\vec{r})n(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d^3r d^3r' \right\} \\ &\quad + \frac{e^2}{2} \int \int \frac{n(\vec{r})n(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d^3r d^3r' + \int n(\vec{r})V_{ext}(\vec{r})d^3r \\ &= T_s [n] + \frac{e^2}{2} \int \int \frac{n(\vec{r})n(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d^3r d^3r' + \int n(\vec{r})V_{ext}(\vec{r})d^3r + \varepsilon_{xc} [n]. \end{aligned} \quad (\text{D.10})$$

Na expressão acima somamos e subtraímos o funcional energia cinética  $T_s [n]$  do sistema não interagente e também o termo de Hartree  $\frac{e^2}{2} \int \int \frac{n(\vec{r})n(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d^3r d^3r'$ . Definimos a soma dos termos entre chaves como o funcional energia de correlação e de troca  $\varepsilon_{xc} [n]$ . Das

equações (D.10) e (D.6) este funcional é dado por

$$\varepsilon_{xc}[n] = F_{HK}[n] - \frac{e^2}{2} \int \int \frac{n(\vec{r})n(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d^3r d^3r' - T_s[n]. \quad (\text{D.11})$$

Portanto tudo que não sabemos a respeito da interação elétron-elétron foi colocado no termo  $\varepsilon_{xc}[n]$ .

Vamos fazer uma variação na Eq.(D.10) com respeito à densidade de partículas para minimizar o funcional  $\varepsilon[n]$ , isto é

$$\frac{\delta\varepsilon[n]}{\delta n(\vec{r})} = \frac{\delta T_s[n]}{\delta n(\vec{r})} + e^2 \int \frac{n(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d^3r' + V_{ext}(\vec{r}) + v_{xc}[n(\vec{r})] = 0, \quad (\text{D.12})$$

onde definimos o funcional potencial de correlação troca como

$$v_{xc}[n(\vec{r})] = \frac{\delta\varepsilon_{xc}[n]}{\delta n(\vec{r})}. \quad (\text{D.13})$$

Vamos agora fazer uma variação na energia com relação a densidade de partículas para o gás de elétrons não interagentes dada pela expressão (D.7), ou seja:

$$\frac{\delta T_s[n]}{\delta n(\vec{r})} + V_s(\vec{r}) = 0.$$

Comparando a equação acima com a Eq.(D.12) vemos que o potencial externo  $V_s(\vec{r})$  deve ser igual a:

$$V_s(\vec{r}) = v_{xc}[n(\vec{r})] + e^2 \int \frac{n(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d^3r' + V_{ext}(\vec{r}), \quad (\text{D.14})$$

fazendo

$$V_H = e^2 \int \frac{n(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d^3r' \quad (\text{D.15})$$

que é chamado de potencial de Hartree, temos

$$V_s(\vec{r}) = v_{xc}[n(\vec{r})] + V_H + V_{ext}(\vec{r}) \quad (\text{D.16})$$

O método autoconsistente de Kohn-Sham funciona da seguinte forma:

1) fazemos uma tentativa inicial para a densidade  $n(\vec{r})$  e a substituímos na eq.(D.16) para encontrarmos  $V_s(\vec{r})$ ;

2) resolvemos a Eq. (D.9) para as funções de onda e energia de uma partícula  $\phi_i(\vec{r})$  e usamos a Eq.(D.8) para encontrarmos o novo valor de  $n(\vec{r}) = n_s(\vec{r})$ ;

3) repetimos os passos acima diversas vezes até que as energias  $\varepsilon_i$  da Eq.(D.9) não sejam muito diferentes de uma iteração para outra. Dessa forma teremos encontrado a densidade  $n(\vec{r})$  que é correta tanto para o gás de elétrons não interagentes como também para o gás de elétrons interagentes.

Para resolvermos as equações autoconsistentes de Kohn-Sham é necessário fazermos uma aproximação para o potencial de correlação troca  $v_{xc}[n(\vec{r})]$ . Para isso vamos desprezar a parte de correlação, que de acordo com Metzner, et al[18] tem uma contribuição muito pequena, e usar aproximação da densidade local (LDA) “Local Density Approximation” para a parte de troca. Nessa aproximação a energia de troca  $\varepsilon_x[n]$  é considerada como sendo igual à de um gás de elétrons livres [19], ou seja,

$$\varepsilon_x(n) = -\frac{3}{2}e^2 \left( \frac{3n^4}{8\pi} \right)^{1/3}$$

e o potencial de troca é dado por:

$$v_x(\vec{r}) = \frac{d\varepsilon_x(n)}{dn} = -2e^2 \left( \frac{3n(\vec{r})}{8\pi} \right)^{1/3} \quad (\text{D.17})$$

Como um exemplo da aplicação da DFT usando LDA vamos calcular a energia do átomo de Hélio [21]. No sistema efetivo de unidades, a equação radial para o átomo de Hélio é dada por:

$$\left( -\frac{d^2}{dr^2} - \frac{4}{r} + v_x(r) + 2V_H(r) \right) u(r) = \varepsilon u(r), \quad (\text{D.18})$$

onde

$$u(r) = rR(r), \quad (\text{D.19})$$

onde  $R(\vec{r})$  é a função de onda radial. O primeiro passo é resolver a Eq. (D.18) considerando o potencial de Hartree  $V_H(\vec{r})$  e o potencial de troca  $v_x(\vec{r})$  inicialmente iguais a zero e com isso achar um primeiro chute para a função de onda. Feito isso, podemos encontrar o potencial de Hartree calculando a integral:

$$V_H(\vec{r}) = 2 \int \frac{n(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d^3 r', \quad (\text{D.20})$$

onde

$$n(\vec{r}) = \sum_{i=1}^2 |\phi_i(\vec{r})|^2, \quad (\text{D.21})$$

onde  $\phi_i(\vec{r})$  é a função de onda do elétron que é dada por

$$\phi_i(\vec{r}) = \frac{R(r)}{\sqrt{4\pi}}. \quad (\text{D.22})$$

Calculamos também o potencial de troca que é, no sistema efetivo de unidades escrito como:

$$v_x(\vec{r}) = -4 \left( \frac{3 \times n(\vec{r})}{8\pi} \right)^{1/3}. \quad (\text{D.23})$$

Substituímos esses potenciais encontrados na Eq. (D.18) e a resolvemos novamente e repetimos esses passos até que a mudança, de um loop para o outro, na energia  $\varepsilon$  seja menor do que a precisão escolhida, que no nosso caso é de 0,001 eV. A tabela D.1 mostra o valor da energia  $\varepsilon$  como uma função do número de iterações.

Vamos agora calcular a energia total do átomo de Hélio para comparar com o valor experimental. A energia total de um sistema de muitos elétrons no sistema efetivo de unidades é dada por[21]:

$$E_T = \sum_{k=1}^N \varepsilon_k - \int d^3 r d^3 r' n(\vec{r}) \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} n(\vec{r}') + \varepsilon_{xc}[n] - \int d^3 r v_{xc}[n(\vec{r})] n(\vec{r}), \quad (\text{D.24})$$

Tabela D.1: Auto-energia da equação radial do átomo de Hélio como uma função do número de iterações..

iteração	energia $\varepsilon$ (eV)
1	-54,42143
2	-7,87984
3	-18,87676
4	-12,07769
5	-15,65336
6	-13,55148
7	-14,71734
8	-14,04802
9	-14,42503
10	-14,21033
11	-14,33185
12	-14,26283
13	-14,30195
14	-14,27975
15	-14,29234
16	-14,28520
17	-14,28925
18	-14,28695
19	-14,28826
20	-14,28752

uma vez que  $N = 2$ , e  $V_H(\vec{r}) = 2 \int \frac{n(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d^3r'$ , temos

$$E_T = 2\varepsilon - \frac{1}{2} \int d^3r V_H(\vec{r})n(\vec{r}) + \varepsilon_{xc}[n] - \int d^3r v_{xc}[n]n(\vec{r}), \quad (\text{D.25})$$

onde  $\varepsilon_{xc}[n]$  é dada por

$$\varepsilon_{xc}[n] = \int d^3r E_{xc}[n(\vec{r})]n(\vec{r}),$$

onde  $E_{xc}[n(\vec{r})]$  é a energia de correlação e troca por partícula. Na aproximação LDA, considerando somente a parte de troca, a expressão (D.25) é dada por

$$E_T = 2\varepsilon - \frac{1}{2} \int d^3r V_H(\vec{r})n(\vec{r}) + \varepsilon_x[n] - \int d^3r v_x[n]n(\vec{r}), \quad (\text{D.26})$$

onde  $\varepsilon_x[n] = \int d^3r E_x[n(\vec{r})]n(\vec{r})$  e  $E_x[n] = -3 \left(\frac{3}{8\pi}\right)^{1/3} (n)^{1/3}$  [19]. Portanto, temos

$$E_T = 5,3219 \text{ Ry} = -72,4095 \text{ eV}$$

Uma vez que o valor experimental para a energia do átomo de Hélio [22] é igual a  $-78,995 \text{ eV}$ , obtemos uma diferença de 9,1% em relação ao nosso cálculo.

# Apêndice E

## Publicações

E. de P. Abreu, R.M. Serra, P.D. Emmel

*The effect of combination of magnetic field and low temperature on doped quantum wells*, Physica E 11, 190 (2001)

Eduardo de Paula Abreu and Paulo Daniel Emmel

*Light Absorption of a Random Planar Array of Quantum Dots; The Effect of Size and Density*

Proceedings of the CIMTEC- International Conferences Modern Materials and Technologies, Florença, Itália, 14 a 18 de Julho de 2002.



ELSEVIER

Physica E 11 (2001) 190–193

**PHYSICA E**

www.elsevier.com/locate/physe

# The effect of combination of magnetic field and low temperature on doped quantum wells

E. de P. Abreu, R.M. Serra, P.D. Emmel\*

*Departamento de Física, Universidade Federal de São Carlos, P.O. Box 676, 13565-905, São Carlos, SP, Brazil*

## Abstract

In this work, we study in the optical absorption of lightly doped and compensated GaAs–GaAlAs quantum wells in the presence of applied magnetic field at low temperatures. The maximum values of magnetic field and temperature are chosen to be 10 T and 5 K, respectively. The wave functions and energies of electrons bound to impurities are calculated variationally using hydrogen-like functions. The absorption coefficient is computed through the use of Fermi golden rule and the statistics of this system is made by a self-consistent calculation of the electrostatic potential generated by ionized impurities, while the convergence parameter is the electronic chemical potential. We focus our attention on  $1s \rightarrow 2p_{\pm}$  transitions. The results show that the range of frequency absorbed by the system stays unaltered in  $1s \rightarrow 2p_{-}$  transition and changes for the  $1s \rightarrow 2p_{+}$  transition, presenting a shift to higher frequencies as the magnetic field increases. Another important result is the decrease of the absorption coefficient for the lowest part of the frequency range as the temperature decreases, turning the material almost transparent for those frequencies. This kind of information may be useful for further diagnosis of quantum well systems. © 2001 Elsevier Science B.V. All rights reserved.

PACS: 71.55.-i

Keywords: Quantum well; Shallow impurities; Absorption coefficient

## 1. Introduction

The use of heterostructures in electronics experienced a real growth in the previous decade, mainly in opto-electronic devices. One of the most important heterostructures is the quantum well formed by

GaAs–GaAlAs that is generated by several techniques, for example the molecular beam epitaxy (MBE), in which layer by layer of the crystal are deposited on a substrate. When this system is doped it presents an infrared optical coefficient, which varies with the geometry, density of impurities, the ratio of acceptor and donor densities, and applied magnetic field. As the distribution of electrons in donors depend on the temperature, this coefficient and other properties such as the electronic specific heat present

\* Corresponding author. Tel.: +55-16-2608222; fax: +55-16-2614835.

E-mail address: emmel@df.ufscar.br (P.D. Emmel).

a temperature-dependent behavior. Serra et al. [1] showed an anomaly in the electronic specific heat of doped quantum well of the Schottky type. There are several calculations of infrared optical coefficient [2–5]. Recently, Baldan et al. [6] calculated the absorption coefficient at zero magnetic field.

In this paper, we study a doped quantum well in the presence of a magnetic field under various conditions of temperature, impurity density and compensation. Depending on the kind of transition, there is a change on the range of absorbed frequency as the magnetic field varies. As the temperature decreases there is a weakening of the absorption coefficient in the lowest part of the frequency range.

## 2. The model

We study a lightly doped and compensated quantum well with shallow impurities. Being  $N_A$  and  $N_D$  the acceptor and donor densities, respectively, we define the compensation as

$$k = \frac{N_A}{N_D}. \quad (1)$$

Due to the low concentration of donors, we neglect the superposition of electron wave functions and consider only the electrostatic interaction between ionized impurities. Since we treat donors as major impurities, we have at low temperatures a distribution of neutral donors and an equal number of ionized donors and acceptors. We make use of the semiclassical impurity band model developed by Andrada e Silva and da Cunha Lima [7], which treats ionized impurities classically, while considering the interaction between bound electrons and donor quantum mechanically.

The Hamiltonian of one electron bound to a donor in the presence of a magnetic field is given by

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m^*} \nabla^2 - \frac{e^2}{Ku} + V(z) + \frac{e^2 B^2}{2m^* c^2} + \frac{eB}{2m^* c} L_z, \quad (2)$$

where  $e$ ,  $m^*$  and  $L_z$  are the absolute value of the charge, effective mass and the  $z$ -component of the angular momentum of the electron, respectively,  $u = \sqrt{x^2 + y^2 + (z - z_i)^2}$  is the distance between the electron and the donor situated at  $(0, 0, z_i)$ ,  $K$  is the dielectric constant,  $B$  is the magnetic field,  $c$  is the

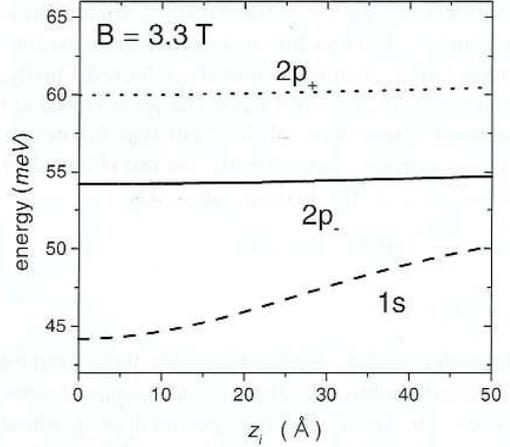


Fig. 1. Electronic energy of the states 1s,  $2p_-$ , and  $2p_+$ , for a quantum well with a width of 100 Å, and intensity of magnetic field  $B = 3.3$  T.

light velocity, and  $V(z)$  is the confining quantum well potential energy defined by

$$V(z) = \begin{cases} 0 & \text{if } |z| < L/2, \\ \infty & \text{if } |z| > L/2, \end{cases} \quad (3)$$

$L$  being the well width.

The variational wave functions [3], needed for our study of light absorption, are written as

$$\psi_{1s}(\vec{r}) = A_{1s} \cos\left(\frac{\pi z}{L}\right) \exp(-[\kappa_{1s}u + \eta_{1s}\rho^2]), \quad (4)$$

$$\psi_{2p_{\pm}}(\vec{r}) = A_{2p} \cos\left(\frac{\pi z}{L}\right) \exp(\pm i\varphi) \times \exp(-[\kappa_{2p}u + \eta_{2p}\rho^2]), \quad (5)$$

where the sets  $(A_{1s}, \kappa_{1s}, \eta_{1s})$  and  $(A_{2p}, \kappa_{2p}, \eta_{2p})$  represent the normalization constant and variational parameters of the above wave functions and  $\rho = \sqrt{x^2 + y^2}$ . In Fig. 1, we show the energies of the levels 1s,  $2p_-$  and  $2p_+$  as a function of  $z_i$  for  $B = 3.3$  T.

We use the self-consistent method [1] to determine the thermal properties of the system in the following way: Given an initial electric charge density (ionized impurities), the electrostatic potentials are calculated. From the knowledge of the energy of the electron bound to a donor in a quantum well, the electronic density of states are determined. After that, the chemical potential is computed by imposing the number of neutral donors which is the function of a quantum well compensation. From the chemical potential, the

charge density can be recalculated via Fermi–Dirac distribution. The procedure is performed until the convergence of the chemical potential is achieved. Finally, the system energy and the electronic specific heat are computed. These steps will be detailed as follows.

Using as initial charge density, the one obtained by Colchesqui et al. [8], corresponds to 0 K,

$$\rho(z) = \frac{eN_D}{L} (\Theta(|z| - z_m) - k),$$

$$z_m = \frac{L}{2} (1 - k),$$

where  $\Theta(x)$  and  $z_m$  are the Heaviside theta function and the half-width of the distribution of neutral donors, respectively. The electrostatic potential  $\phi(z)$ , whose effect is only a weak perturbation ( $-e\langle\psi|\phi(z)|\psi\rangle$ ) on the electron energy, is obtained via Poisson's equation. Next, we calculate the electronic density of states per donor

$$D(E_{1s}) = \frac{2}{L} \frac{1}{|dE_{1s}/dz|}, \quad (6)$$

where  $E_{1s}$  is the corrected energy of the 1s electron. Assuming the charge neutrality, we have

$$(1 - k) = \int D(E_{1s}) \frac{1}{\exp((E_{1s} - \mu)/k_B T) + 1} dE_{1s}, \quad (7)$$

where  $k_B$  is the Boltzmann constant. With this equation we obtain the chemical potential  $\mu$  which is used to compute a new charge density

$$\rho(z) = \frac{eN_D}{L} \times \left[ \left( 1 - \frac{1}{\exp((E_{1s}(z) - \mu)/k_B T) + 1)} \right) - k \right]. \quad (8)$$

The process continues until the convergence of the chemical potential is achieved, so that one may be able to calculate any thermal property of the system.

The time average dissipation rate of the incident electromagnetic energy ( $P$ ) is computed from the Joule effect

$$P = \sigma_1 \langle \mathcal{E}^2 \rangle V, \quad (9)$$

where  $\sigma_1$  is the real part of the material optical conductivity,  $\mathcal{E}$  is the intensity of the radiation electric field and  $V$  is the effective volume of a single donor

impurity which is equal to the inverse of the donor density

$$V = \frac{1}{N_D}. \quad (10)$$

The symbol  $\langle \dots \rangle$  represents the time average of a physical quantity.

$\hbar\omega$  being the energy of the absorbed photon and  $W(z_i)$  the transition rate per unit time between the levels of a single impurity, given by the Fermi golden rule, we have

$$P = W(z_i) \hbar\omega. \quad (11)$$

The optical conductivity for a single neutral donor impurity located at  $z_i$  inside a quantum well is then given by

$$\sigma_1(z_i, \omega) = \frac{N_D \hbar\omega W(z_i)}{\langle \mathcal{E}^2 \rangle}. \quad (12)$$

Considering the well known expression for  $W(z_i)$ , in the case of long wave limit, taking a plane wave of polarization  $\vec{u}$  we obtain

$$\sigma_1(z_i, \omega) = N_D e^2 \omega |\vec{u} \cdot \langle 1s | \vec{r} | m \rangle_{z_i}|^2 \delta(E_{m,1s} - \hbar\omega), \quad (13)$$

where  $\langle 1s | \vec{r} | m \rangle_{z_i}$  is the matrix element of the operator  $\vec{r}$  taken between the states 1s and  $m = 2p_+, 2p_-$  of an electron bound to the impurity located in  $z_i$ . The transition takes place between the 1s and  $2p_+$  or  $2p_-$  donor impurity states, depending on the photon polarization. The term  $E_{m,1s}$  represents the difference between these energy levels.

The total absorption coefficient is obtained by summing up the contribution of all neutral donor impurities in the quantum well. For fixed  $N_D$  and  $k$ ,  $\mu$  is a function of temperature. ( $D_j(E)$ ) being the joint density of states connected by the transition, given by

$$D_j^{1s \rightarrow m}(E) = \frac{2}{L} \frac{1}{|dE_{m,1s}/dz|_{E_{m,1s}=E}}, \quad (14)$$

we finally have

$$\sigma_1^{1s \rightarrow m}(\omega, T) = N_D \pi e^2 \omega \frac{1}{\exp((E_{1s}(z_0) - \mu)/k_B T) + 1} \times |\vec{u} \cdot \langle 1s | \vec{r} | m \rangle_{z_0}|^2 D_j^{1s \rightarrow m}(\hbar\omega), \quad (15)$$

where  $z_0$  is defined as the position in which the transition energy equals the photon energy, i.e.

$$E_{m,1s}(z_0) = \hbar\omega, \quad (16)$$

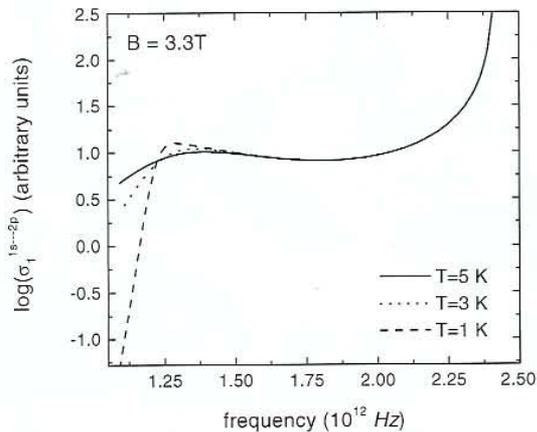


Fig. 2. Absorption coefficient for the transition  $1s \rightarrow 2p_-$  with intensity of magnetic field  $B = 3.3$  T, compensation  $k = 0.1$ , and temperatures  $T = 1, 3$ , and  $5$  K.

with  $m$  being equal to  $2p_+$  or  $2p_-$ . It is interesting to observe the presence of the Fermi–Dirac distribution function in Eq. (15).

### 3. Results and conclusions

The absorption coefficient was calculated for quantum wells of  $100 \text{ \AA}$  width and concentrations of  $10^9$  donors/cm<sup>2</sup>. The results presented here are a consequence of the neutral donor distribution that depends on the compensation, the magnetic field and temperature. At low temperatures, the neutral donors are located in the central region of the quantum well since the lowest level ( $1s$ ) donor energy increases from the center to the border of the quantum well as shown in Fig. 1. The occupation of these levels depends on the compensation of the system, varying from the completely occupied one at  $k = 0$ , to a totally empty one at  $k = 1$ . Due to the Fermi distribution function, the occupancy of the highest levels occurs by the increase of temperature, allowing absorption of low energy photons. Fig. 2 shows the absorption coefficient at three different temperatures and one can observe that the sample is almost transparent for the lowest frequencies at a temperature of  $1$  K.

The effect of the magnetic field is to modify the energy levels, maintaining the absorption coefficient frequency range nearly the same for the transition

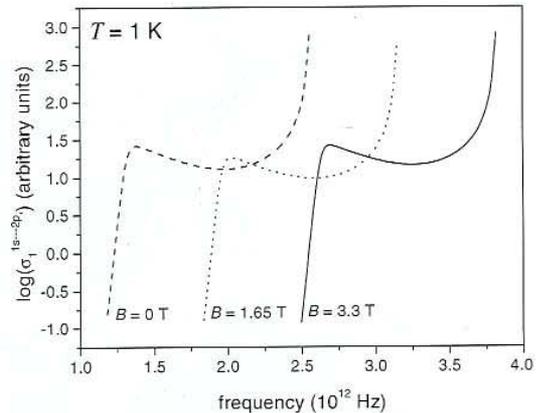


Fig. 3. Absorption coefficient for the transition  $1s \rightarrow 2p_+$ , with compensation  $k = 0.1$ , temperature  $T = 1$  K, and from left to right: intensity of magnetic field  $B = 0, 1.65$ , and  $3.3$  T.

$1s \rightarrow 2p_-$ , while changing those for the  $1s \rightarrow 2p_+$  transitions. As the magnetic field increases, the last absorption spectrum is dislocated to higher frequencies. This effect is due to the fact that the  $1s$  and  $2p_-$  levels suffer almost the same changes as the magnetic field increases, while the  $2p_+$  level presents a crescent increasing relatively to the other two levels. Fig. 3 shows the  $1s \rightarrow 2p_+$  absorption coefficient for various magnetic fields.

As a conclusion, we can say that this is a very interesting system whose optical absorption, in the far infrared range, in principle, may be used for the diagnosis of a doped and compensated quantum well.

### References

- [1] R.M. Serra, P.D. Emmel, Braz. J. Phys. 27 (A) (1997) 295.
- [2] B.V. Shanabrook, Phys. B 146 (1987) 121.
- [3] I.C. da Cunha Lima, P.D. Emmel, Solid State Commun. 89 (1994) 725.
- [4] A. Ferreira da Silva, I.C. da Cunha Lima, P.D. Emmel, Superlatt. Microstruct. 16 (1994) 335.
- [5] G.N. Carneiro, G. Weber, L.E. de Oliveira, Semicond. Sci. Technol. 10 (1995) 41.
- [6] M.R. Baldan, R.M. Serra, P.D. Emmel, A. Ferreira da Silva, Braz. J. Phys. 29 (1999) 723.
- [7] E.A. de Andrada e Silva, I.C. da Cunha Lima, Phys. Rev. B 39 (1989) 10101.
- [8] B.C.F. Colchesqui, P.D. Emmel, E.M. de Andrada e Silva, I.C. da Cunha Lima, Phys. Rev. B 40 (1989) 12513.

# LIGHT ABSORPTION OF A RANDOM PLANAR ARRAY OF QUANTUM DOTS; THE EFFECT OF SIZE AND DENSITY.

Eduardo de Paula ABREU and Paulo Daniel EMMEL\*

Universidade Federal de São Carlos, Departamento de Física, CP 676,  
13.565-905 São Carlos SP Brazil

Modern semiconductor physics deals with heterostructures formed by different materials joined together. Depending on the main dimension we have quantum wells, wires or dots, which are respectively quasi-two, one or zero dimensional structures. There are many applications to this class of materials such as infrared detectors, lasers, etc.

We calculate the absorption coefficient for a planar array of quantum dots (QD) as a response to an applied light field. The QD's, which are modeled in cylindrical or spherical shapes, are distributed randomly in a plane by means of Monte Carlo simulation method. Considering one electron per QD and taking into account electrostatic interaction between them there is a collective, plasmonlike response to the field and the peak position of the optical intersubband spectrum shows a shift respectively to the peak position of an isolated QD. We obtained a shift that increases with concentration of QD's and with their height, in case of cylindrical dots.

## 1. INTRODUCTION

The technology for growing new materials created many important applications. In case of semiconductors there are lasers<sup>1</sup>, infrared detectors, modulators<sup>2</sup>, etc created by special design of heterostructures<sup>3</sup> like quantum wells, quantum wires or QD's, also known as boxes. These structures present a confining potential due to a junction of two different materials, a heterojunction, that are generated by the discontinuity of the valence and conduction bands. As a consequence the system presents a quantization in the electron spectrum, that changes drastically the density

---

\*e-mail: [emmel@df.ufscar.br](mailto:emmel@df.ufscar.br)

Sponsoring agencies: Capes and Fapesp

of states. In quantum wells or wires there is at least one direction in which the electron is free for propagation and this kind of junction is used in devices based in transport. When the electron is bound in all directions we have a QD, also known as artificial atom, that is very useful for optoelectronics. The spectrum of a QD depends on the properties of the constituent materials and its shape. In this paper we deal with random planar arrays of cylindrical and spherical GaAs QD's grown in AlAs. We consider randomness in the planar distribution as well in the dimensions of the QD's.

This work deals with the intersubband transitions that occur in the system induced by the light field. It is needed to take into account the interaction among electrons distributed in the QD's. The resonance is a plasmonlike response that cannot be described in terms of single particle transitions occurring in isolated QD's.

## 2. THEORY

Following Metzner et al<sup>4</sup> we consider a planar array of QD's in which is applied an oscillating electric field perpendicular to this plane:

$$\vec{E} = E \cos(\omega t) \hat{z} \quad (1)$$

so that it creates an external potential energy on an electron located in  $\vec{r}$ :

$$W^{ext}(\vec{r}, t) = eEz \cos(\omega t). \quad (2)$$

The system reacts generating an induced Coulomb potential energy, given by:

$$W^{ind}(\vec{r}, t) = \sum_i V^{(i)}(\vec{r}, t), \quad (3)$$

where  $V^{(i)}(\vec{r}, t)$  is the contribution of the  $i^{\text{th}}$  oscillator, a single electron bound to a QD. The total potential  $W(\vec{r}, t)$  is then the sum of the external and induced parts. In the linear response regime  $W(\vec{r}, t)$  is composed of only two Fourier components of frequency  $\omega$ :

$$W(\vec{r}, t) = W(\vec{r}, \omega)e^{i\omega t} + W^*(\vec{r}, \omega)e^{-i\omega t}, \quad (4)$$

where  $W(\vec{r}, \omega)$  is formed by the contribution of each oscillator given below:

$$W^{(i)}(\vec{r}, \omega) = \frac{eEz}{2} + \sum_{j \neq i} V^{(j)}(\vec{r}, \omega), \quad (5)$$

being  $V^{(j)}(\vec{r}, \omega)$  the temporal Fourier transform of  $V^{(j)}(\vec{r}, t)$ .

Each oscillator is meant to be a two level system composed by the fundamental and first excited state of an electron bound to a QD. Initially only the ground state is occupied so that the time dependent wave function of the  $i^{\text{th}}$  oscillator can be written as:

$$\psi^{(i)}(\vec{r}, t) = c^{(i)}(\omega) e^{-i\omega t} \varphi_1^{(i)}(\vec{r}) + \varphi_0^{(i)}(\vec{r}), \quad (6)$$

where it is being considered only the resonant term

$$c^{(i)}(\omega) = \frac{-\langle i1 | W^{(i)}(\vec{r}, -\omega) | i0 \rangle}{\hbar(\Delta\omega_{10} - \omega - i\Gamma/\hbar)}, \quad (7)$$

since the anti-resonant term is small for  $\omega \approx \omega_1^{(i)} - \omega_0^{(i)} = \Delta\omega_{10}^{(i)}$ .  $\Gamma$  is a term introduced in the above expression to take into account the homogeneous phonon broadening. In terms of this function the induced space charge fluctuation is calculated resulting:

$$\rho^{(i)}(\vec{r}, t) = (-e) \left( |\psi_1^{(i)}(\vec{r}, t)|^2 - |\varphi_0^{(i)}(\vec{r})|^2 \right) = (-e) \varphi_1^{(i)*}(\vec{r}) \varphi_0^{(i)}(\vec{r}) c^{(i)*}(\omega) e^{i\omega t} + c.c., \quad (8)$$

where the term of order  $O(c^{(i)2}(\omega))$  was omitted by virtue of linear response approximation. It is convenient to define a response function  $p^{(i)}(\omega)$  for the  $i^{\text{th}}$  oscillator and its form factor  $\rho_0^{(i)}(\vec{r})$  as well its excitation amplitude  $u^{(i)}(\omega)$ :

$$p^{(i)}(\omega) = \left( \hbar[\omega - \Delta\omega_{10} + i\Gamma/\hbar] \right)^{-1}, \quad (9)$$

$$\rho_0^{(i)}(\vec{r}) = (-e) \varphi_1^{(i)*}(\vec{r}) \varphi_0^{(i)}(\vec{r}), \quad (10)$$

$$u^{(i)}(\omega) = c^{(i)*}(\omega) = p^{(i)}(\omega) \langle i0 | W^{(i)}(\vec{r}, \omega) | i1 \rangle. \quad (11)$$

The quantities  $\rho^{(i)}(\vec{r}, \omega)$  and  $V^{(i)}(\vec{r}, \omega)$ , Fourier transforms of  $\rho^{(i)}(\vec{r}, t)$  and  $V^{(i)}(\vec{r}, t)$  respectively, can be written as:

$$\rho^{(i)}(\vec{r}, \omega) = \rho_0^{(i)}(\vec{r}) u^{(i)}(\omega), \quad (12)$$

$$V^{(i)}(\vec{r}, \omega) = \frac{-e}{K} \int d^3r' \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \rho^{(i)}(\vec{r}', \omega) = T^{(i)}(\vec{r}) u^{(i)}(\omega), \quad (13)$$

where  $K$  is the dielectric constant of the material that contains the QD's and

$$T^{(i)}(\vec{r}) = \frac{-e}{K} \int d^3r' \frac{1}{|\vec{r}-\vec{r}'|} \rho_0^{(i)}(\vec{r}'). \quad (14)$$

Substituting eq. (13) into eq. (5) and taking the matrix element of  $W^{(i)}(\vec{r}, \omega)$  between the fundamental and first excited states of the  $i^{\text{th}}$  oscillator, we obtain the dynamic equation for  $u^{(i)}(\omega)$  that couples two level systems given  $E$  and  $\omega$ :

$$u^{(i)}(\omega) = p^{(i)}(\omega) \left[ \frac{eEz^{(i)}}{2} + \sum_{j \neq i} T_{(i)}^{(j)} u^{(j)}(\omega) \right], \quad (15)$$

where  $z^{(i)}$  and  $T_{(i)}^{(j)}$  are defined as:

$$z^{(i)} = \langle i0 | z | i1 \rangle \quad (16)$$

and

$$T_{(i)}^{(j)} = \langle i0 | T^{(j)}(\vec{r}) | i1 \rangle, \quad (17)$$

the Coulomb interaction between the  $i^{\text{th}}$  and  $j^{\text{th}}$  oscillators for unit excitation amplitude. The set of equations (15) for all oscillators can be solved numerically so it is possible to compute  $\rho^{(i)}(\vec{r}, \omega)$  and afterwards its in-plane average:

$$\bar{\rho}^{(i)}(z, \omega) = \langle \rho^{(i)}(\vec{r}, \omega) \rangle_{xy} / \Omega, \quad (18)$$

being  $\Omega$  the lateral area of the planar array of QD's. The Fourier transform of the total induced charge fluctuation can be written by means of eqs. (10,12) as:

$$\bar{\rho}(z, \omega) = \sum_i \bar{\rho}^{(i)}(z, \omega) = \sum_i u^{(i)}(\omega) \bar{\rho}_0^{(i)}(z). \quad (19)$$

The calculation of the absorption coefficient is made using the density of current associated with the induced charge density by continuity equation:

$$\frac{\partial}{\partial z} \bar{j}(z, t) + \frac{\partial}{\partial t} \bar{\rho}(z, t) = 0. \quad (20)$$

Taking the temporal Fourier transform of the above equation and integrating it in  $z$  we obtain:

$$\bar{j}(z, \omega) = -i\omega \int_{-\infty}^{\infty} dz' \bar{\rho}(z', \omega). \quad (21)$$

The absorption coefficient is the real part of  $\sigma_{xx}(\omega)$  given by:

$$\sigma_{zz}(\omega) = \frac{1}{E} \int_{-\infty}^{\infty} dz j^-(z, \omega). \quad (22)$$

Defining the quantity  $\ell^{(i)}$  as

$$\ell^{(i)} = \frac{\Omega}{-e} \int_{-\infty}^{\infty} dz \int_{-\infty}^z dz' \bar{\rho}_0^{(i)}(z'), \quad (23)$$

which has the dimension of length, and using eqs. (19,21) we get the final expression for  $\sigma_{zz}(\omega)$ :

$$\sigma_{zz}(\omega) = \frac{i\omega e}{E\Omega} \sum_i \ell^{(i)} u^{(i)}(\omega). \quad (24)$$

As a final remark it should be noted that this expression is independent of  $E$  and  $\Omega$  since  $u^{(i)}(\omega)$  and  $\Omega$  are proportional to  $E$  and the number of QD's in  $\Omega$  respectively

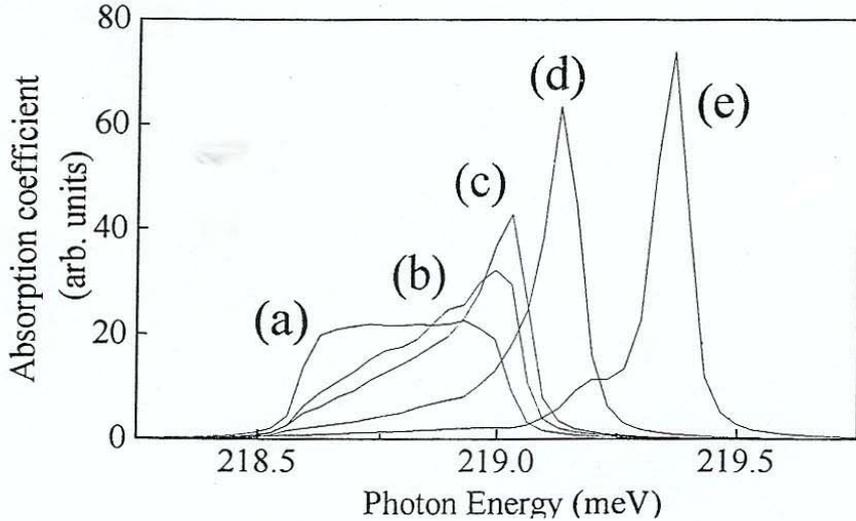


FIGURE 1

Absorption coefficient of spherical QD's of radius  $5.2\text{nm}$  and concentrations (a)  $\approx 0$ , (b)  $1.6 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ , (c)  $2.0 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ , (d)  $3.0 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ , (e)  $4.5 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$

### 3. SPECIFICATIONS OF THE SYSTEM

In this work we simulate QD's immersed in a semiconductor whose conduction band mismatch is high enough to consider electrons bound to QD's by infinite

barriers, which is an approximation for GaAs QD's in AlAs. We also consider one electron per QD.

For both types of QD's studied here the calculation of energies and wavefunctions is trivial due to separation of variables. For a cylindrical QD with radius and height respectively equal to  $a$  and  $L$ , the wavefunction is:

$$\psi_{i,m,n}(\rho, \varphi, z) = AJ_m(\alpha_{mi} \frac{\rho}{a}) e^{im\varphi} \sin\left(\frac{n\pi}{L} z\right), \quad (25)$$

where  $\alpha_{mi}$  is the  $i^{\text{th}}$  zero of  $J_m(\xi)$  and whose energy is:

$$E_{i,m,n} = \frac{\hbar^2}{2m} \left[ \left( \frac{\alpha_{mi}}{a} \right)^2 + \left( \frac{n\pi}{L} \right)^2 \right]. \quad (26)$$

The quantum numbers  $(i, m, n)$  for the ground and first excited states are  $(1,0,1)$  and  $(1,0,2)$ . For a spherical QD of radius  $a$  we have:

$$\psi_{i,l,m}(r, \theta, \varphi) = Aj_l(\alpha_{li} \frac{r}{a}) Y_l^m(\theta, \varphi). \quad (27)$$

where  $\alpha_{li}$  is the  $i^{\text{th}}$  zero of  $j_l(\xi)$ , a spherical Bessel function. Its energy is given by:

$$E_{i,l} = \frac{\hbar^2}{2m} \left( \frac{\alpha_{li}}{a} \right)^2. \quad (28)$$

In this case the ground and first excited states are represented by the following  $(i, l, m)$  quantum numbers  $(1,0,0)$  and  $(1,1,0)$ .

The disorder is included in the system by Monte Carlo simulation of positions and parameters of the QD's. Further its concentration is varied.

#### 4. RESULTS

In figure 1 we show the absorption coefficient for spherical QD's of  $5.2nm$  radius (one half of effective Bohr radius in GaAs) and a dispersion of 5% in it. The concentration varies from approximately zero (dilute limit), in which the electrostatic interaction between them goes to zero and the plasma effect disappear, to  $4.5 \times 10^{11} cm^{-2}$ , where the interaction changes completely the shape of the absorption curve, going from a plateau to a sharp peak. It should be emphasized that

the higher is the concentration, the larger is the shift on the peak that becomes more accentuated.

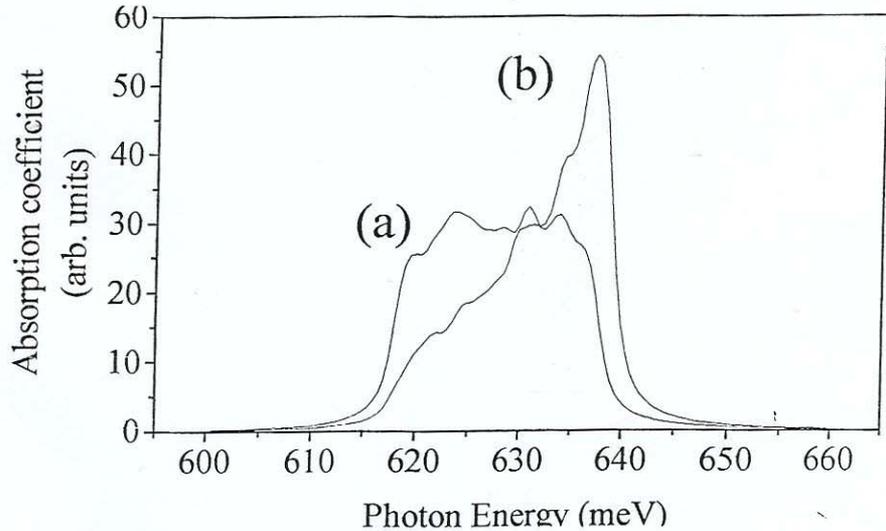


FIGURE 2

Absorption coefficient for cylindrical QD of radius  $2.0\text{nm}$  and height  $5.2\text{nm}$ , with fluctuation of 1%, for concentrations of (a)  $\approx 0$  and (b)  $4.5 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$ .

In figures 2 and 3 we see the effect of the height in the absorption coefficient for cylindrical QD's, for low and high concentrations. The effect is a shift in the peak, relatively to the dilute limit, with a large growing in its intensity, which in this case is of order of 10 times, and a sharpening in its shape. This fact may be understood due to the dependency of  $\sigma_{\pm}(\omega)$  on products of  $\ell^{(i)}$  and  $u^{(i)}(\omega)$ , showing clearly that it is a non linear effect in  $L$ . Notice that the range of energies that take place in the transition is shifted to the right as a consequence of the increase in the QD height. At present QD's are not sufficiently high to exhibit this last property, but we hope it will be possible on the future with the advent of new technologies.

The study of these collective excitations in QD's may be extended to the Raman effect<sup>5</sup>, to transitions with electric field applied parallel to the plane, etc.

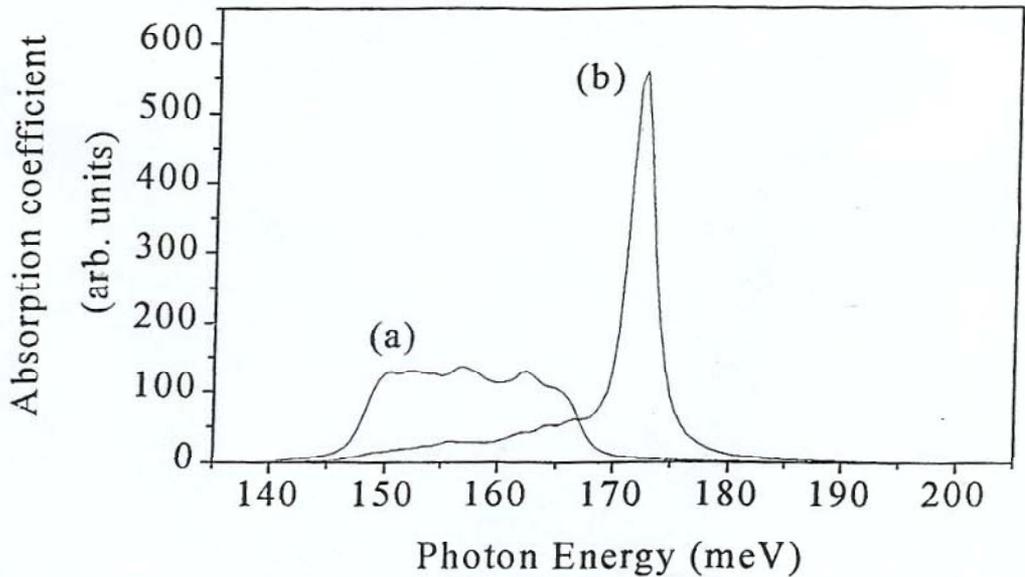


FIGURE 3

Absorption coefficient for cylindrical QD of radius  $2.0\text{nm}$  and height  $10.4\text{nm}$ , with fluctuation of 3%, for concentrations of (a)  $\approx 0$  and (b)  $4.5 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$ .

#### REFERENCES

- 1) J. Faist, F. Capasso, L. Sivco, C. Sirtori, A. Hutchinson, A. Chou, *Science* **264**, 553 (1994).
- 2) N. Vodjani, B. Vinter, V. Berger, E. Bockenhoff, and E. Costard, *Appl. Phys. Lett.* **59**, 555 (1989)
- 3) V. V. Mitin, V. A. Kochelap, and M. A. Strosio, *Quantum Heterostructures* (Cambridge University Press)
- 4) C. Metzner and G. H. Döhler, *Phys. Rev. B* **60**, 11005 (1999)
- 5) Yu. A. Pusep, W. Fortunato, P. P. González-Borrero, A. Toropov, and J. C. Galzerani, *Phys. Rev. B* **63**, 115311 (2001)

# Referências Bibliográficas

- [1] E. C. Valadares, *Harmonia das Bandas Cristalinas*, Ciência Hoje **06** no. 35, (1987)
- [2] A. Y. Cho, *J. Vac. Technol.* **8**, 531 (1971), *Appl. Phys. Lett.* **19**, 467 (1971)
- [3] J.R. Arthur, *J. Appl. Phys.* **19**, 4032 (1968)
- [4] Q. D. Zhuang, J. M. Li, H. X. Li, Y. P. Zeng, L. Pan, Y. H. Chen, M. Y. Kong, and L. Y. Lin, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 3706 (1998)
- [5] M. Henini, *Microelectron. Journ.* **34**, 333 (2003)
- [6] Qiangua Xie, Anupam Madhukar, Ping Chen, and Nobuhiko P. Kobayashi, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 2542 (1995)
- [7] S.Taddei, M. Colocci, A. Vinattieri, F. Bogani, S. Franchi, P. Frigeri. L. Lazzarini, and Salviati, *Phys. Rev. B* **62**, 10220 (2000)
- [8] B. Liu, Q. D. Zhuang, S. F. Yoon, J. H. Dai, M. Y. Kong, Y. P. Zeng, J. M. Li, and H. J. Zhang, *Internat. Journ. of Mod. Phys. B* **15**, 1959 (2001).
- [9] C. Metzner and G. H. Döhler, *Phys. Rev. B* **60**, 11005 (1999)
- [10] J. M. Luttinger e W. M. Kohn, *Phys. Rev.* **97**, 869 (1955)
- [11] D. J. Ben-Daniel e C. B. Duke, *Phys. Rev.* **152**, 683 (1966)
- [12] Klaus Capelle, ” *A bird’s-eye view of density-functional theory* ”

- [13] E. K. U. Gross, E. Runge, O. Heinonen, *Many Particle Theory*, (Adam Hilger, 1992)
- [14] Yu. A. Pusep and A. J. Chiquito, *J. Appl. Phys.* **88**, 3093 (2000)
- [15] A. I. Yakimov, A. V. Dvurechenskii, N. P. Stepina and A. I. Nikiforov, *Phys. Rev. B* **62**, 9939 (2000)
- [16] S. Gangopadhyay and B. R. Nag, *Nanotechnology* **8**, 14 (1997)
- [17] Hohenberg, P., and kohn, W., 1964, *Phys. Rev.* **136**, B864-71
- [18] R. N. Riemann, C. Metzner, and G. H. Döhler, *Phys. Rev. B* **65**, 115304 (2002)
- [19] Joseph Callaway, *Quantum Theory of the Solid*, Academic Press, INC (1991)
- [20] Claude Cohen-Tannoudji, Bernard Diu, Franck Laloë, *Quantum Mechanics*, John Wiley and Sons, (1977)
- [21] J. M. Thijssen, *Computational Physics*, Cambridge University Press, (1999)
- [22] Ira N. Levine, *Quantum Chemistry*, Prentice Hall, (1991)
- [23] W. H. Press et al, *Numerical Recipes: The art of Scientific Computing*, Cambridge Univ. Press, (1989)
- [24] Vladimir V. Mitin, Viatcheslav A. Kochelap, Michael A. Strócio, *Quantum Heterostructures*, Cambridge Univ. Press, (1999)
- [25] M. Califano and P. Harrison, *Phys. Rev. B* **61**, 10959 (2000)
- [26] Charles A. Whitey, *Random Processes in physical systems*, John Wiley & Sons, Inc., (1990)
- [27] L. Banyai, S. W. Koch, *Semiconductor Quantum Dots*, World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., (1993)

- [28] C. Metzner, G. H. Dohler, *Physica E* **7**, 718(2000).
- [29] Proceedings of the CIMTEC- International Conferences Modern Materials e Technologies, Florença, Itália, 14 a 18 de Julho de 2002.