

I TALLER INTERNACIONAL DE CIENCIA DE MATERIALES

Puebla, México

Hibridización de estados electrónicos en puntos cuánticos (auto-ensamblados)



Angela Stella Camacho Beltrán
Departamento de Física
Universidad de los Andes
Bogotá-Colombia

Mundo macroscópico y mundo microscópico

ARRIBA



Sistemas mesoscópicos



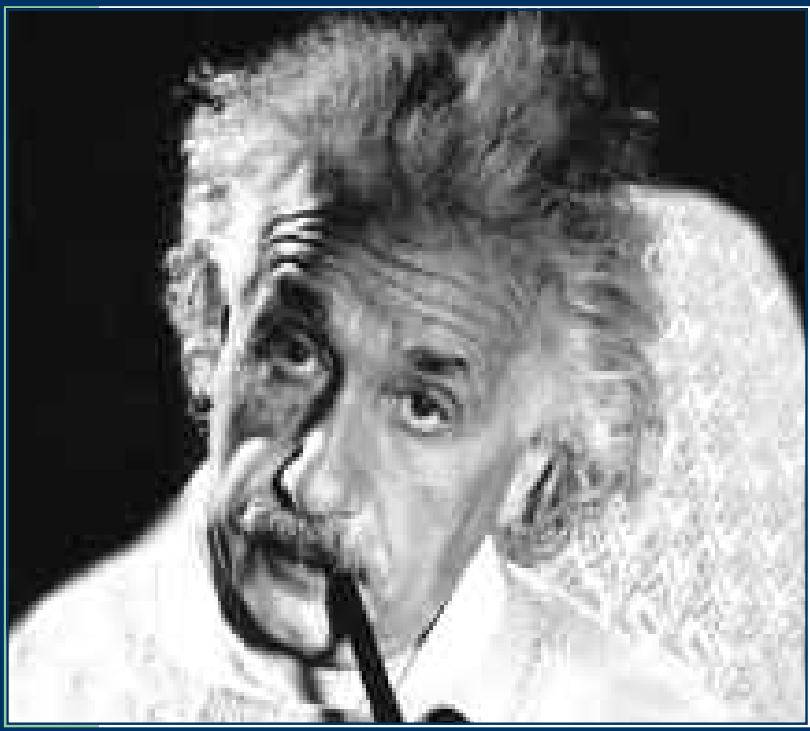
ABAJO

SISTEMAS CLÁSICOS
GRANULARES
NANO-PARTÍCULAS

SISTEMAS CUÁNTICOS
ÁTOMOS
MOLECULAS

**Einstein estima el
tamaño de una molécula
de azúcar en un
Nanómetro**

1905



**Feynmann abre el debate hacia
la miniaturización
“HAY MUCHO LUGAR EN EL
FONDO”**

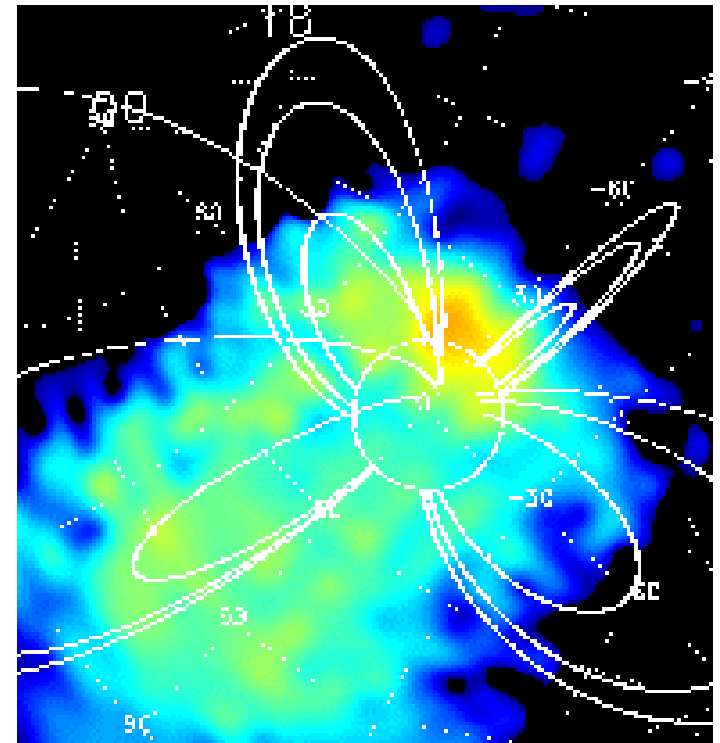
1959



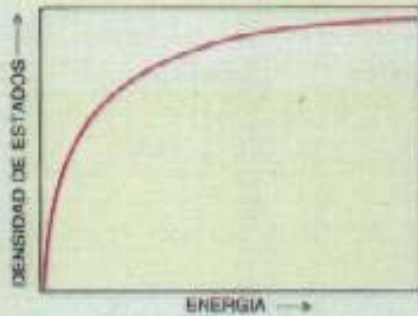
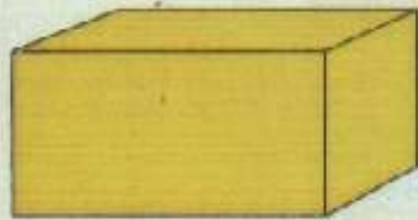
**Hace 3500 Millones de
Años aparecen las
primeras Células...**



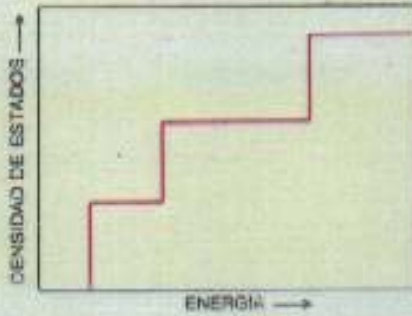
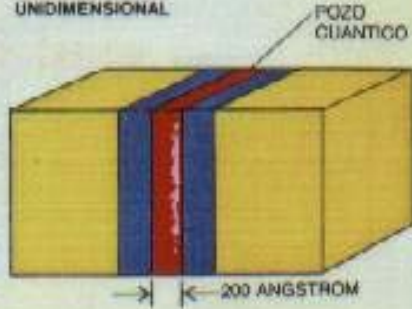
400 a.C.
Demócrito define un primer
concepto de ATOMO ...



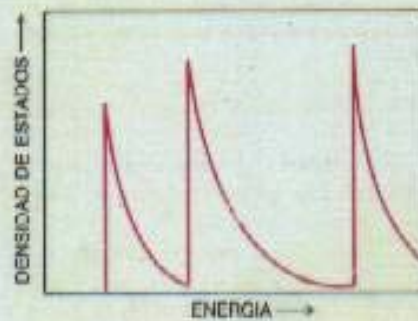
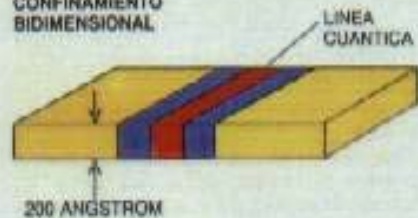
SIN CONFINAMIENTO



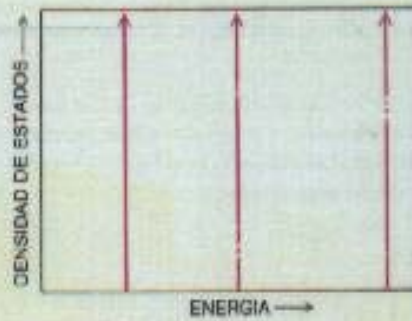
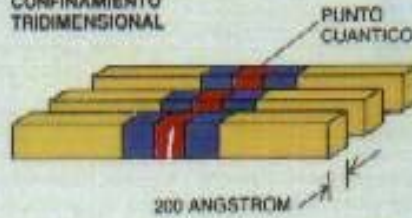
CONFINAMIENTO UNIDIMENSIONAL



CONFINAMIENTO BIDIMENSIONAL



CONFINAMIENTO TRIDIMENSIONAL



ARSENIURO DE GALIO CON DOPADO n

ARSENIURO DE GALIO Y ALUMINIO

ARSENIURO DE GALIO

Un pozo cuántico

3D Materiales en bloque

2D Pozos cuánticos

1D Hilos cuánticos

0D Puntos cuánticos

PUNTOS CUÁNTICOS AUTO-ENSAMBLADOS

Permiten estudiar

- los efectos de confinamiento de cada punto
- las posibles interacciones entre ellos e
- indagar acerca de el proceso de autoorganización que se presenta también en otros sistemas a otras escalas, como por ejemplo en sistemas granulares o en sistemas biológicos

Los puntos cuánticos se tratan como átomos artificiales :

Poseen niveles de energía discretos lleno con electrones o con excitones

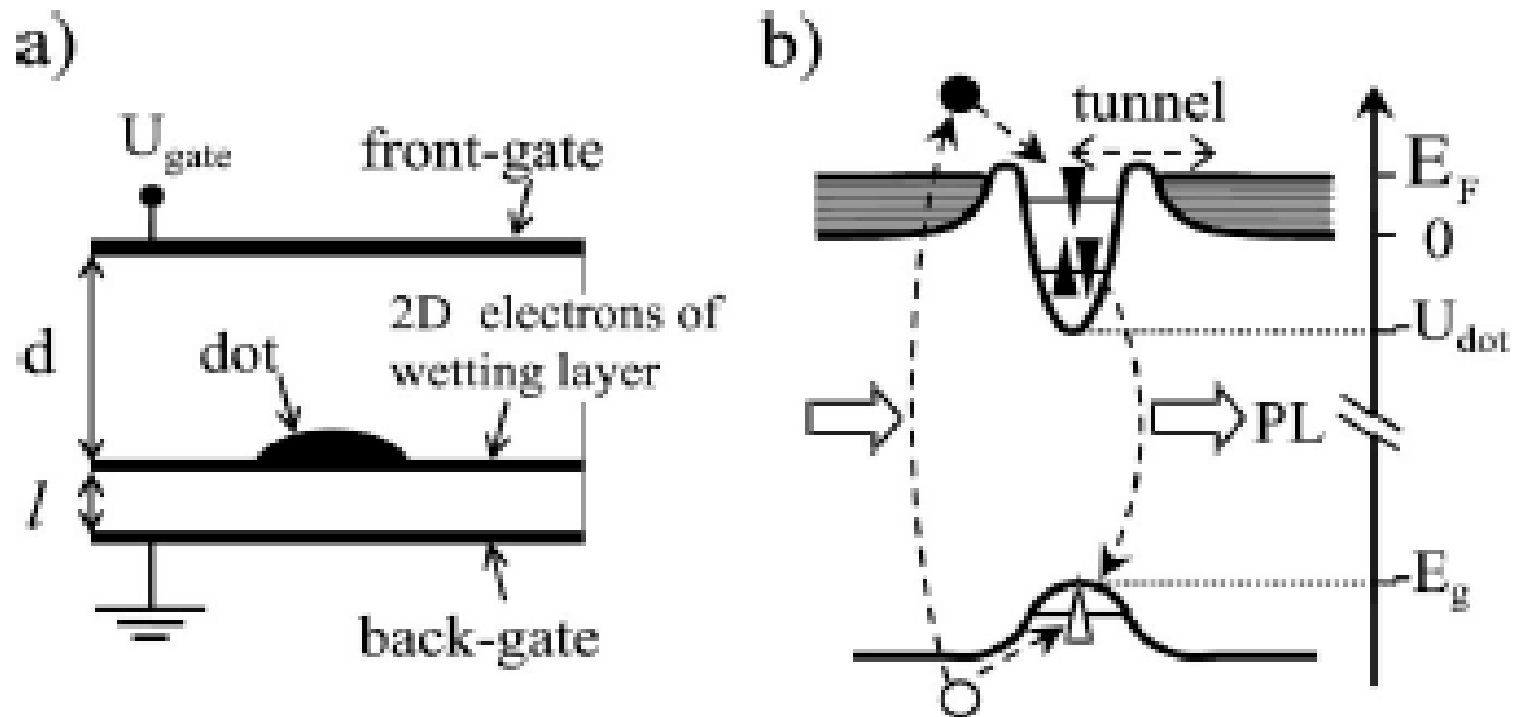
Optica Cuántica y teoría de la Información

Ya se manipulan excitones en puntos cuánticos coherentemente

- **Las diferencias entre átomos y puntos cuánticos:
LOS ESTADOS ELECTRONICOS**
- **Se han detectado estados que representan una hibridización coherente de estados localizados en el punto cuántico y estados extendidos del continuo. Estos estados se detectaron en un experimento de fotoluminiscencia después de la emisión de un fotón desde un punto cuántico**

Khaled Karrai, et.al. Nature 427, January, 2004

Experimento de fotoluminiscencia en un sistema de puntos cuánticos auto-ensamblados



U_{gate} controla el número de electrones en el punto
Las barreras representan la interacción de Coulomb intrapunto

La lámina de mojado o wetting layer

- Es una capa delgada del mismo material del punto que se excita con un láser de 830 nm de manera no resonante.
- Es una capa que se puede llenar de electrones y tener un gas 2D

Govorov, et.al PRB 67,241307(R),2003

Estados finales de X_s^{2-} , X_t^{2-} y X^{3-} sin campo magnético

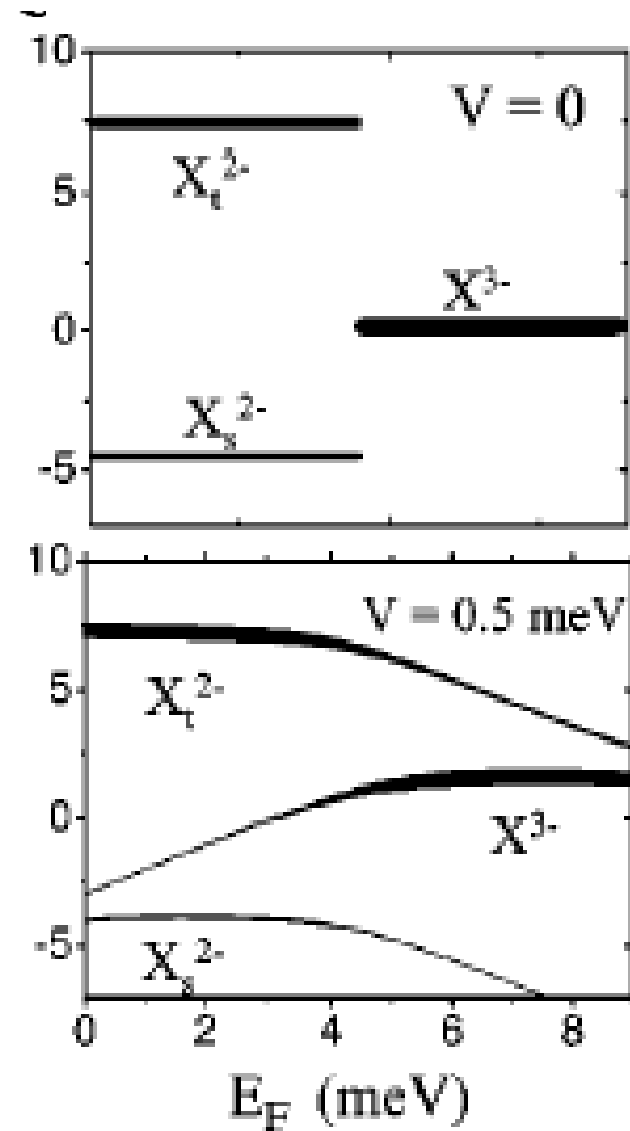
X_s^{2-} singlet final state:

$$\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} \uparrow\downarrow & \uparrow\downarrow \\ \uparrow\downarrow & \uparrow\downarrow \\ _ & _ \end{pmatrix} \ominus \begin{pmatrix} \uparrow\downarrow & \uparrow\downarrow \\ \uparrow\downarrow & \uparrow\downarrow \\ _ & _ \end{pmatrix}$$

X_t^{2-} triplet final states:

$$\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} \uparrow\downarrow & \uparrow\downarrow \\ \uparrow\downarrow & \uparrow\downarrow \\ _ & _ \end{pmatrix} \oplus \begin{pmatrix} \uparrow\downarrow & \uparrow\downarrow \\ \uparrow\downarrow & \uparrow\downarrow \\ _ & _ \end{pmatrix}, \quad \begin{pmatrix} \uparrow\downarrow & \uparrow\downarrow \\ \uparrow\downarrow & \uparrow\downarrow \\ _ & _ \end{pmatrix}$$

X^{3-} final state:

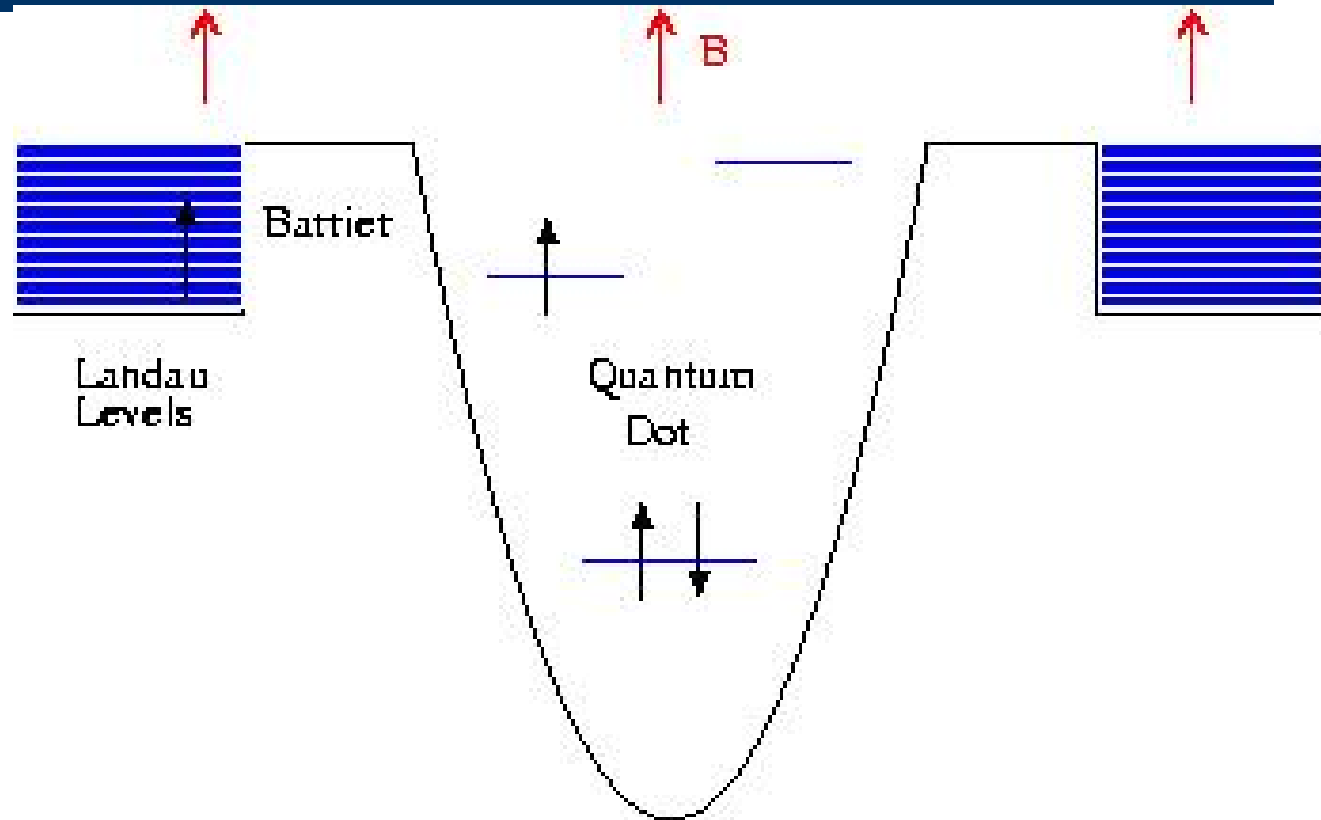


Kondo excitons

Interacción entre un excitón cargado confinado en el punto
y electrones delocalizados en la wetting layer

- El excitón cargado con spin diferente de cero se rodea de una nube de electrones de Fermi de radio $(k_B T)^{-1}$.
- Manifestaciones de estos estados en espectros de emisión a baja temperatura,
- Las líneas ópticas dependen fuertemente del bias vertical y sus anchos se determinan por temperatura de Kondo

Fotoluminiscencia con campo magnético externo



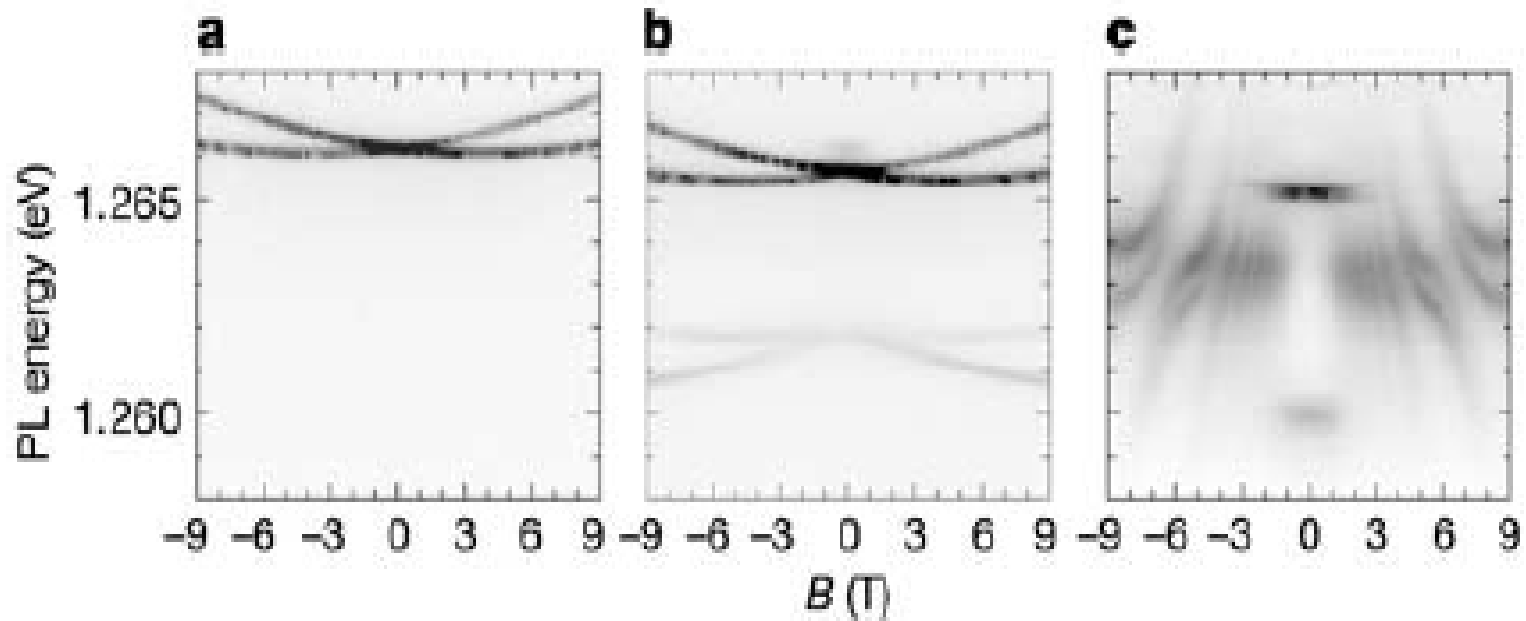
Fotoluminiscencia en presencia de campo magnético

- **Excitones cargados**

- Simple X^{1-}

Doble X^{2-}

Triple X^{3-}

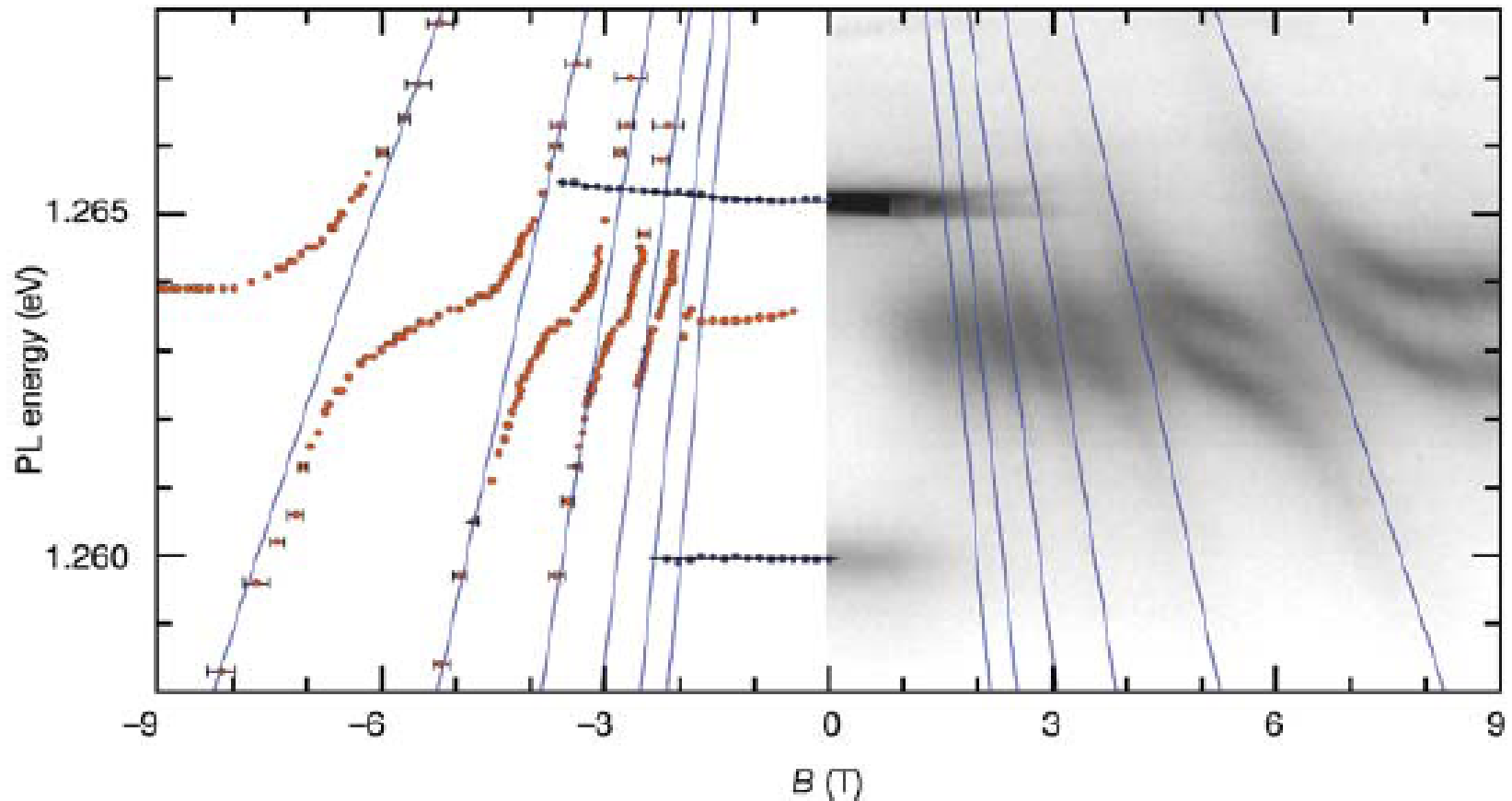


Fotoluminiscencia de excitones cargados en un punto cuántico

- Para X^{1-} y X^{2-} el comportamiento es el típico de excitones localizados:
 - Un corrimiento diamagnético proveniente del confinamiento excitónico
 - un desdoblamiento debido a efecto Zeemann de spin.
- El X^{2-} muestra dos líneas como consecuencia del intercambio de estados finales desdoblados de $S=1$ y $S=0$.
- X^{3-} presenta un comportamiento completamente diferente a campos magnéticos muy altos además del efecto Zeeman la PL desarrolla una serie de oscilaciones que solo pueden explicarse como una nueva interacción electrónica

Energía de cada pico de fotoluminiscencia como función del campo magnético

Los anticruces en X^{3-}



Niveles de Landau

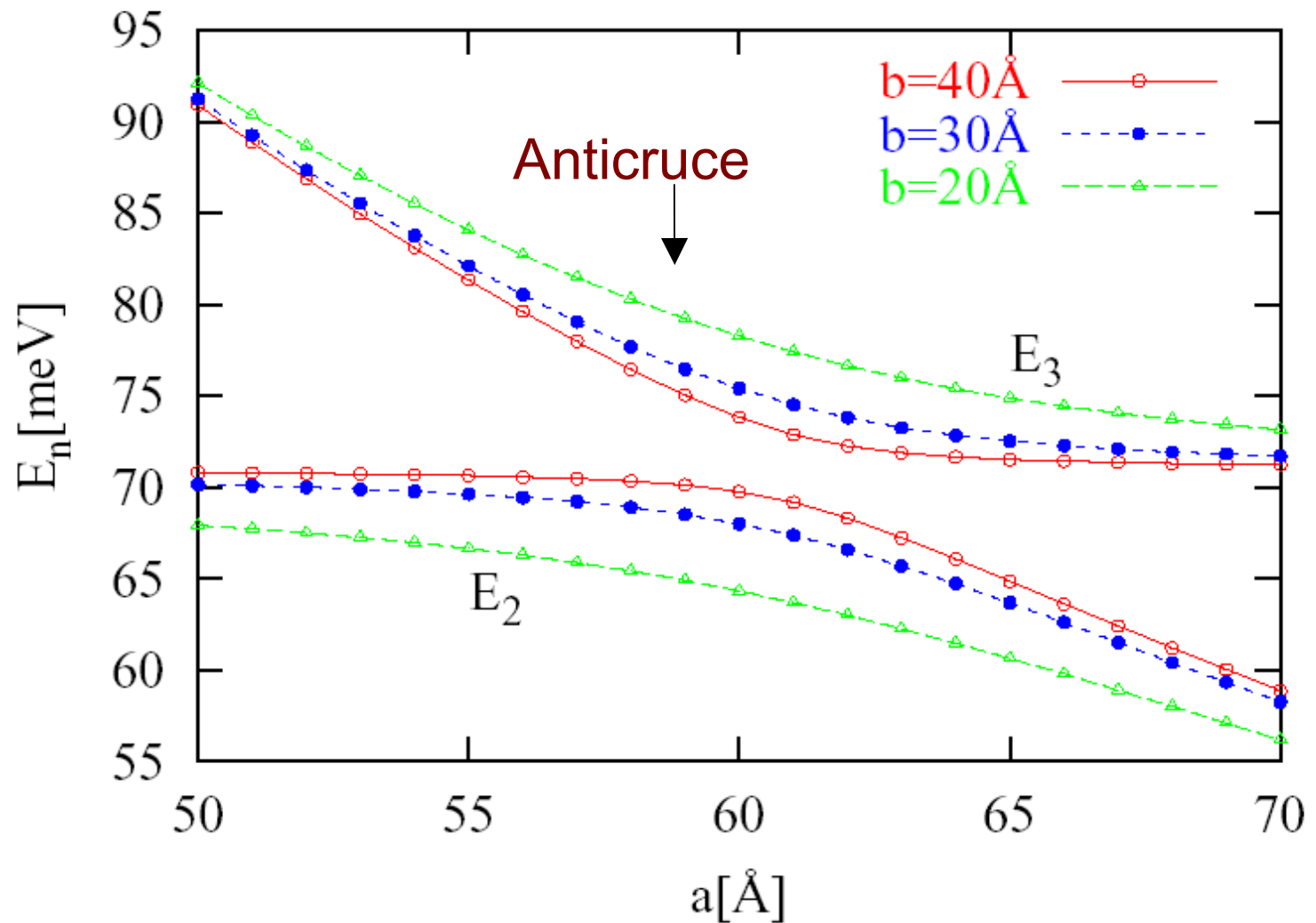
Los niveles de Landau con energías

$$E_n = (n + \frac{1}{2})\hbar\omega_c$$

con $n=0,1,2,3,\dots$ que vienen de la cuantización de la energía cinética de un electrón debido a campo magnético

- Características de niveles de Landau:
 - 1) las asíntotas en cada anticruce son función lineal del campo magnético
 - 2) Las asíntotas de todos los anticruces se extrapolan a la misma energía a campo magnético cero
 - 3) La intensidad PL es una función periódica de $1/B$
- Los anticruces prueban que el punto cuántico interactúa coherentemente con los niveles de Landau.

Dependencia geométrica del anticruce



Anticruces

- Las líneas sólidas muestran la siguiente dependencia de la energía

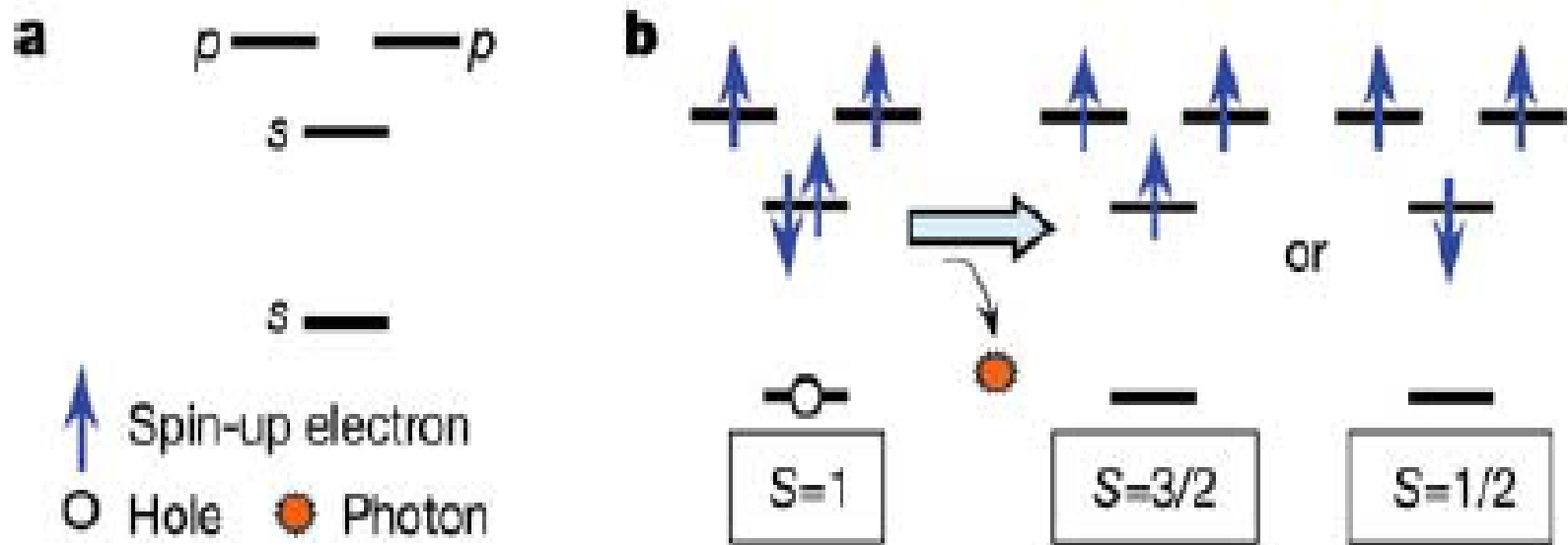
$$E_0 + \Delta - \left(n + \frac{3}{2}\right) \frac{e\hbar B}{m_0 m^*}$$

- Esta forma funcional se ajustó a las asíntotas
- La pendiente negativa significa que la hibridización tiene lugar en el estado final
- La fotoluminiscencia de un excitón ligado toma propiedades de estados extendidos

Características de hibridización

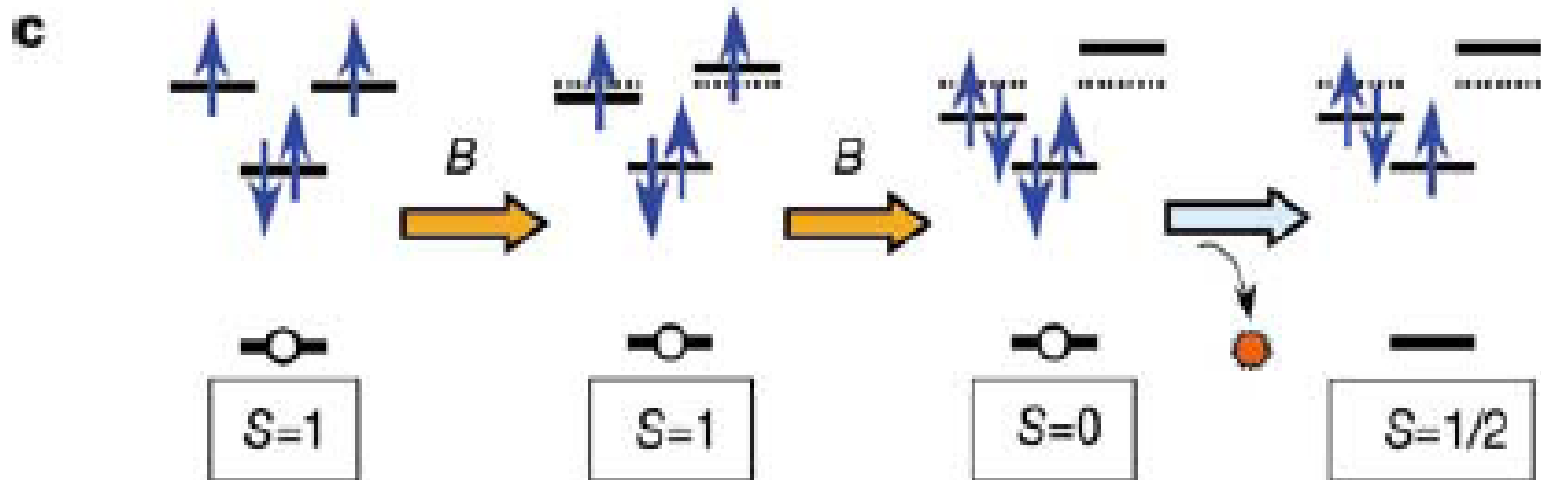
- La emisión del fotón **DISPARA** la hibridización.
- Del desdoblamiento a 6.5 T ($\Delta = 2.4$ meV) se puede deducir que el sistema oscila entre un estado localizado con carácter de punto cuántico y uno extendido de carácter Landau con una frecuencia de 0.6 THz
- Este es un **ANTICRUCÉ**. El sistema está al mismo tiempo en los dos estados

El modelo del átomo artificial a campo magnético cero



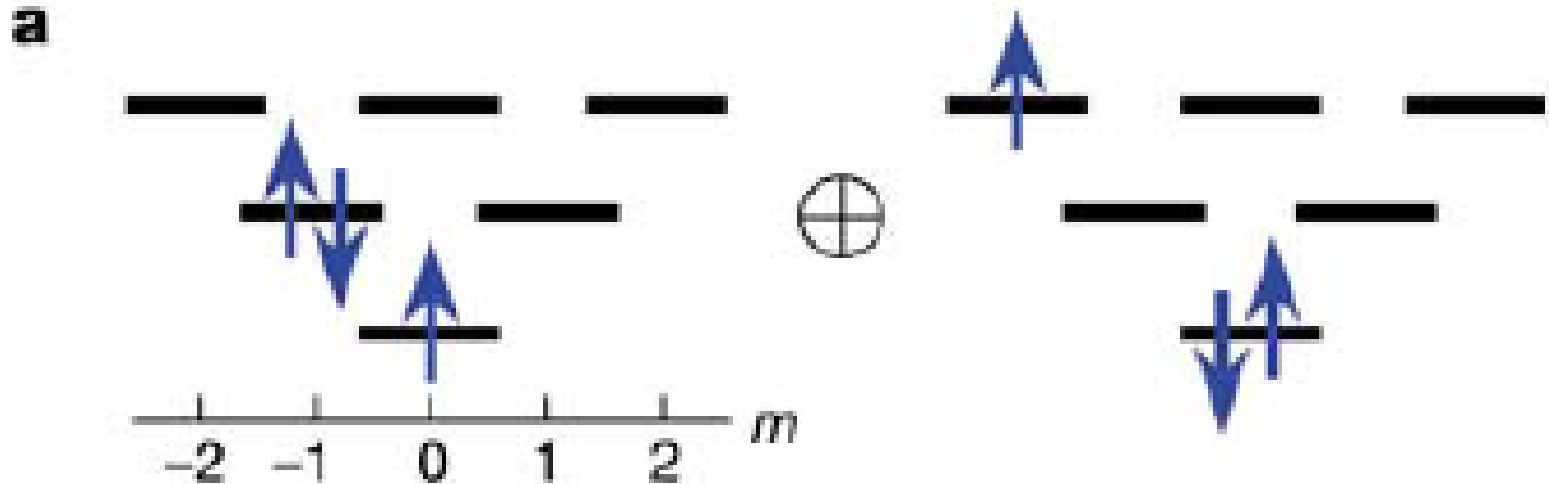
El punto tiene orbitales s y p separados por 34 meV como se deduce del corrimiento diamagnético y los dos orbitales p están muy cerca del degeneramiento por la forma de la PL para X^{3-} en $B = 0$. **DOS LINEAS A CAMPO CERO CON ΔE**

El modelo del átomo artificial con campo magnético



Un campo magnético introduce un desdoblamiento Zeeman orbital entre los dos estados p para formar un estado $S=0$. Sin embargo dentro de este modelo de átomo artificial no se puede explicar el anticruce que se desarrolla a campos magnéticos altos

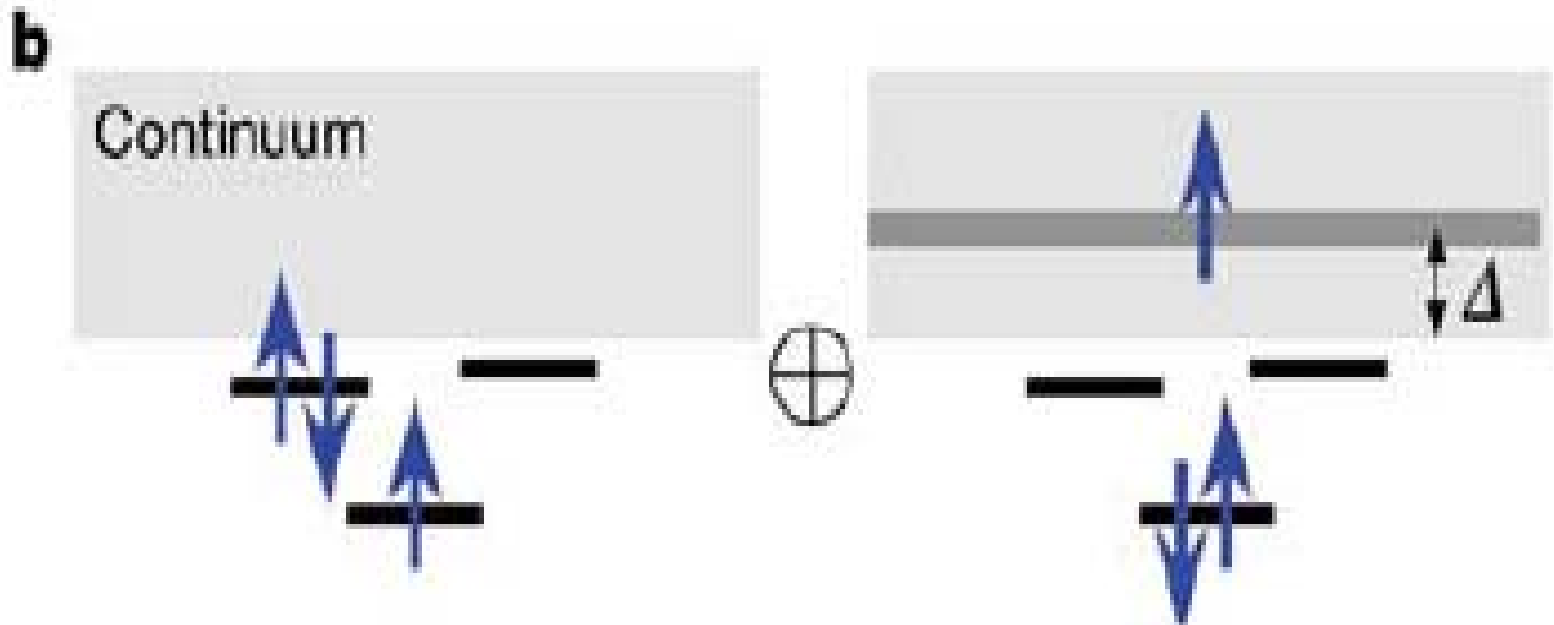
Estado final hibridizado incluyendo orbitales d



El modelo del átomo artificial tiene que incluir los orbitales d para explicar la configuración $S=0$ como mezcla de s,p,p y s,s,d.

Como el orbital d no es ligado, se descarta.

Mezcla con el continuo sin orbitales d



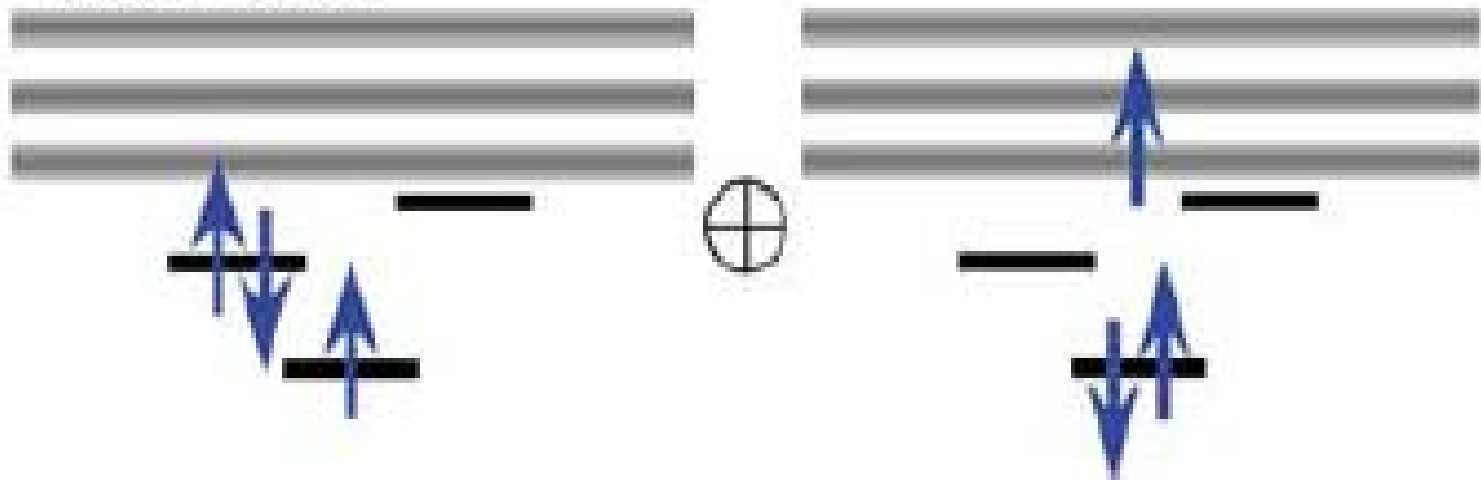
Los estados del continuo están asociados con la 2D wetting layer, los cuales se cuantizan en presencia de un campo magnético como los niveles de Landau

La hibridización con los niveles de Landau ocurre cuando la diferencia de energía entre los dos estados Δ es de 20 meV.

A grandes campos magnéticos el continuo se condensa en niveles de Landau

C

Landau levels



Esta hibridización ocurre para $S=0$ y no para $S=1$.

La hibridización con los niveles de Landau ocurre cuando Δ es de 20 meV. Cuando el campo magnético aumenta esta condición se cumple para cada nivel de Landau mostrando la oscilación.

La hibridización es permitida porque cada nivel de Landau tiene una componente tipo d independiente del índice de Landau.

Comparación de las diferentes energías

- Energía de cuantización
- Energía de Coulomb
- El corrimiento diamagnético es pequeño ($10 \mu\text{eV/T}^2$) y no cambia con la carga. Luego la energía de confinamiento es mucho mayor que la de Coulomb.
- Se puede tomar la energía de Coulomb como una perturbación a los estados de una partícula

El elemento matricial de Coulomb

$$M_n = \langle s^\uparrow p^\uparrow p^\uparrow | U | s^\uparrow s^\downarrow n^\uparrow \rangle$$

$$M_0 = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \frac{16\sqrt{\pi}L_c^3 L_e^2 (3L_c^2 + L_e^2)}{(2L_c^2 + L_e^2)^{3/2} (6L_c^2 + L_e^2)^{5/2}}$$

Usando las funciones de oscilador armónico y las funciones de onda de los niveles de Landau en el gauge simétrico centrado el punto.

L_e es la longitud característica de la función de onda electrónica, igual a $56 \text{ \AA}$ tomado del corrimiento diamagnético del X^0 y L_c es la longitud magnética

$$L_c = \sqrt{\frac{\hbar}{eB}}$$

Condición para la hibridización

- La condición necesaria para la hibridización es la vacancia en el orbital s con el orbital p lleno
- puede presentarse en excitones con carga superior 4, 5 etc. La relación entre el elemento matricial y el ancho de la línea a campo magnético bajo

$$M = \sqrt{\frac{\Gamma \hbar \omega_c^0}{\pi}}$$

- el ancho de línea de 0.40 meV implica $2M = 2,4$ meV, en excelente acuerdo con el experimento

Modelo teórico para tunelamiento

$$\hat{H} = H_{conf} + \frac{1}{2} \sum_{\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3, \alpha} U_{\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3, \alpha}^{e-e} a_{\alpha_1}^+ a_{\alpha_2}^+ a_{\alpha_3} a_{\alpha_4} + H_{tun}$$

$$H_{tun} = \sum_{k, \sigma} T [c_{k, \sigma}^+ a_{p, \sigma} + a_{p, \sigma}^+ c_{k, \sigma}]$$

$$T = \frac{\bar{\varepsilon}}{\kappa \sqrt{l_D l_L}} e^{-\kappa b} \quad \kappa = \sqrt{\frac{2mU}{\hbar^2}} \quad \bar{\varepsilon} = \frac{\pi^2 \hbar^2}{m l_D l_L}$$

T se calcula con funciones de onda de estados electrónicos confinados en el punto y funciones de onda de Landau
 l_D es el ancho del pozo y l_L es el radio de la órbita de Landau correspondiente

El campo magnético como herramienta de control

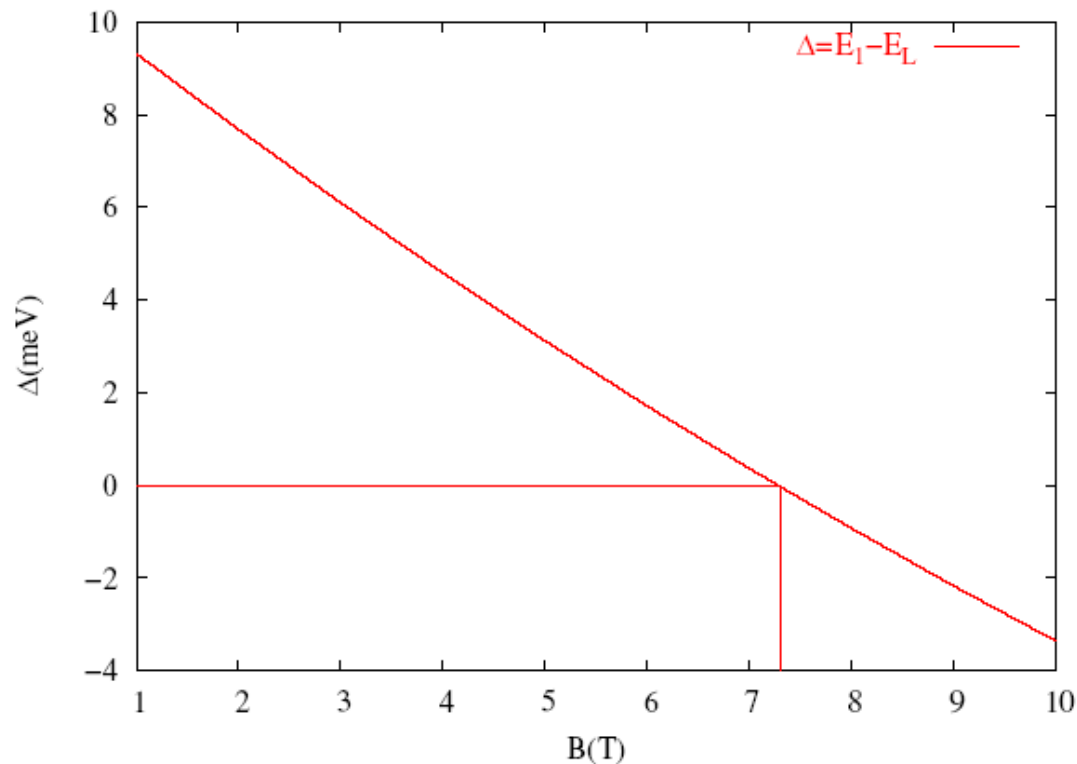
- Modelo de dos niveles para acoplar un estado electrónico del punto con un estado de Landau del gas de Fermi separados por una barrera de energía U y ancho b

El elemento de matriz de tunelamiento disminuye exponencialmente con el ancho de la barrera.

Llamando Δ la diferencia de energías de los dos sistemas separadamente y Δ_T la diferencia de los dos niveles acoplados por la barrera

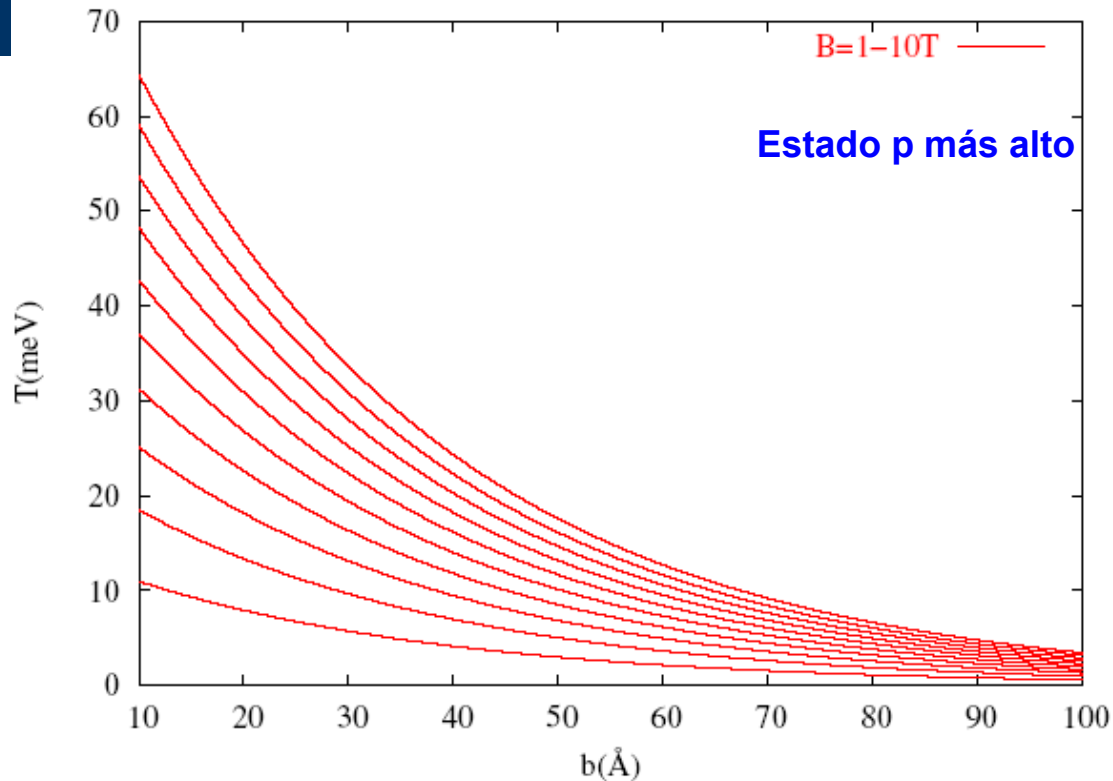
$$\Delta_T = \sqrt{\Delta^2 + (2T)^2}$$

Variación de la diferencia de energías de los dos sistemas separadamente como función del campo magnético



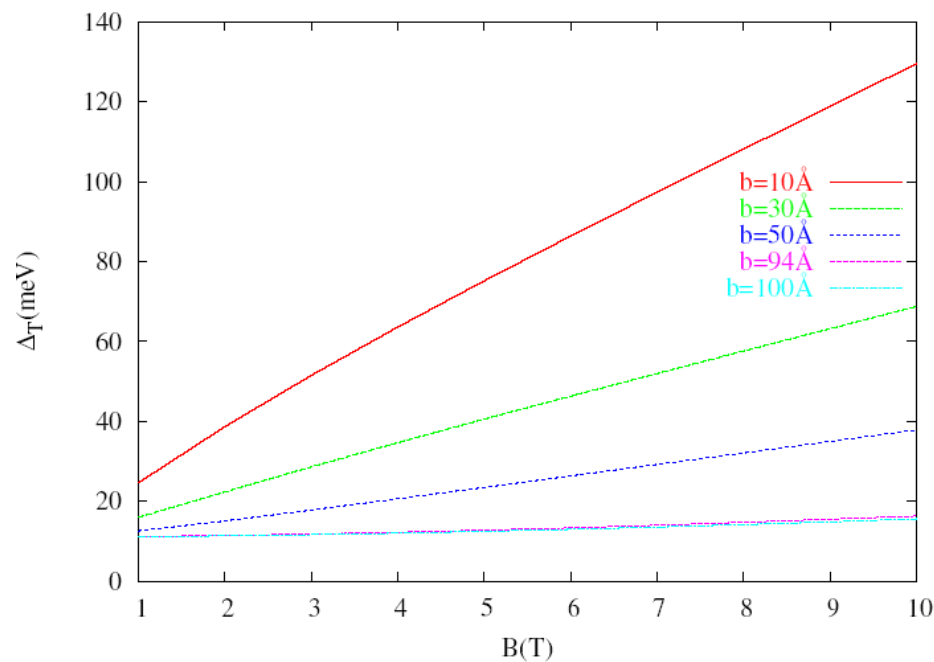
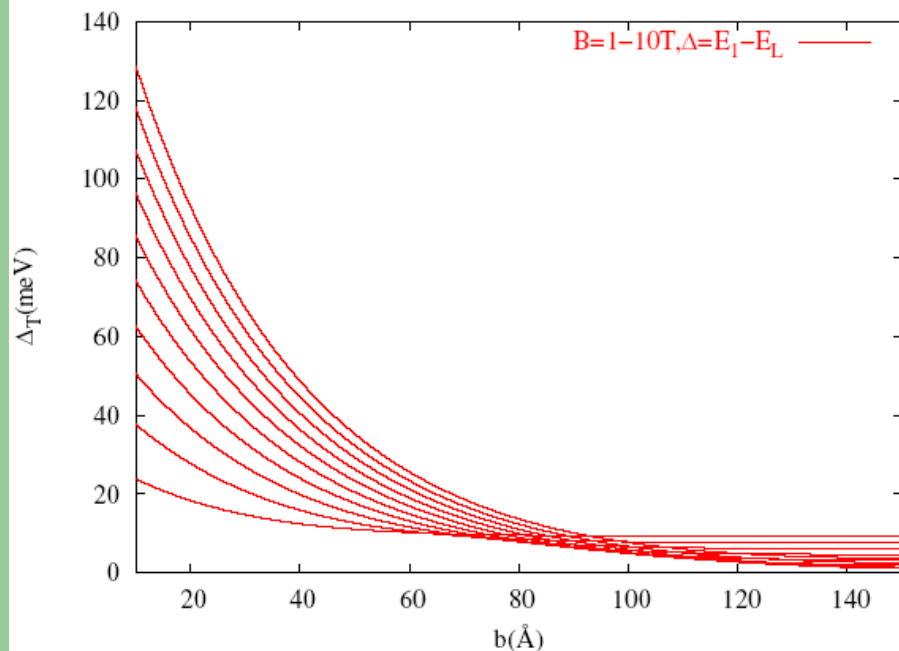
Para un campo de 7,3 T esta diferencia es cero

El elemento matricial de tunelamiento como función de la barrera para varios campos magnéticos



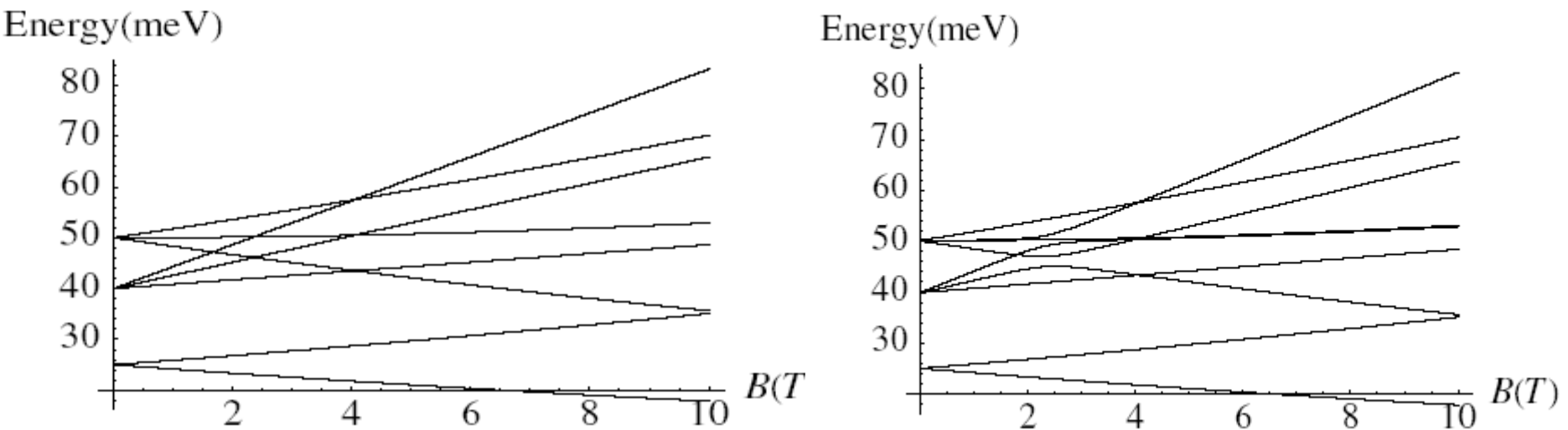
T decrece cuando aumenta el ancho de la barrera b
 T crece con el campo magnético B

Sintonización con el ancho de la barrera y con la magnitud del campo magnético



Estado p más bajo en energía hibridiza con estado base de Landau.
Para una barrera de $b=100 \text{ Å}$ Δ puede variar entre 0,5 y 3,5 meV
para campos hasta de 10 T

Variación de los niveles de energía como función del campo magnético teniendo en cuenta spin



Niveles de energía de los sistemas punto cuántico y de Landau separadamente

Niveles de energía del sistema acoplado a través de una barrera $b=100 \text{ \AA}$ con un elemento matricial de tunelamiento $T = 1 \text{ meV}$

Conclusiones

La hibridización podría darse por tunelamiento

- Un cálculo más exacto teniendo en cuenta efectos de muchos niveles y sus desdoblamientos de spin permitirá una comparación con el cálculo derivado de la interacción de Coulomb y con los resultados de la conformación de moléculas artificiales
- Este cálculo permitirá sacar conclusiones sobre la relación entre desorden y acoplamiento a través de un estado cuasi-ligado
- Aunque la hibridización entre niveles localizados y extendidos no está presente en moléculas naturales, las moléculas artificiales pueden presentar nuevas características relacionadas con procesos de acoplamiento mecano-cuántico
- El sistema autoensamblado es un laboratorio para observar el proceso de auto-organización presente en muchos otros sistemas a escalas muy diferentes como los sistemas granulares y sistemas biológicos