

Akademia Górniczo-Hutnicza w Krakowie
Wydział Fizyki i Informatyki Stosowanej

Praca doktorska

**Badania teoretyczne własności sztucznych molekuł i
układów ekscytonowych w pojedynczych i sprzężonych
kropkach kwantowych**

Tomasz Chwiej

Praca wykonana w Zakładzie Fizyki Teoretycznej i Komputerowej pod
kierunkiem prof. AGH dr hab. Stanisława Bednarka

Kraków 2005

Podziękowania

Przede wszystkim chciałbym w tym miejscu wyrazić głęboką wdzięczność Panu profesorowi Stanisławowi Bednarkowi za opiekę naukową i pomoc udzieloną mi w trakcie powstawania tej pracy.

Pragnę także serdecznie podziękować Panu doktorowi Bartłomiejowi Szafranowi za współpracę naukową oraz poświęcony mi czas.

Dziękuję także kierownikowi Zakładu Fizyki Teoretycznej i Komputerowej, Panu profesorowi Januszowi Adamowskiemu za współpracę i wszelką okazaną mi pomoc oraz profesorowi Francois Peetersowi za opiekę naukową podczas pobytu na Uniwersytecie w Antwerpii.

Chcę również podziękować wszystkim pracownikom Zakładu Fizyki Teoretycznej i Komputerowej za stworzenie bardzo dobrej atmosfery w zespole oraz władzom Wydziału Fizyki i Informatyki Stosowanej za finansowanie z funduszu badań własnych.

Praca była częściowo finansowana z grantu promotorskiego KBN nr. 1P03B06126.

Spis treści

1.	Wstęp.....	2
2.	Efektywny potencjał oddziaływania kulombowskiego w strukturach kwazijednowymiarowych.....	8
3.	Układ dwóch elektronów w pojedynczej kropce kwantowej o symetrii cylindrycznej.....	18
3.1.	Rola korelacji elektronowej w procesie tworzenia się molekuly Wignera	18
3.2.	Degeneracja singletowych i trypletowych poziomów energetycznych w granicy dużych rozmiarów kropek.....	25
3.3.	Degeneracja singletowych i trypletowych poziomów energetycznych w obszarze małych rozmiarów kropek.....	28
4.	Układ dwóch elektronów w podwójnej pionowej sprzężonej kropce kwantowej o symetrii cylindrycznej	31
4.1.	Wpływ korelacji elektronowej na własności układu dwóch elektronów	31
4.2.	Degeneracja singletowych i trypletowych poziomów energetycznych sztucznej molekuly w zakresie szerokich barier.	35
5.	Układ kilku elektronów w podwójnej sprzężonej kropce kwantowej.....	41
5.1.	Metody użyte do rozwiązywania problemu N-elektronowego	42
5.1.1	Separacja ruchu środka masy i ruchu względnego.....	42
5.1.2	Metoda mieszania konfiguracji.	43
5.1.3	Metoda LSDA.	47
5.2.	Dwa elektrony	52
5.3.	Trzy elektrony	54
5.4.	Cztery elektrony	56
5.5.	Układy wieloelektronowe.....	59
6.	Ekscytonowy efekt Starka w podwójnej sprzężonej kropce kwantowej.....	62
6.1.	Rola oddziaływania kulombowskiego w procesie dysocjacji ekscytonu pod wpływem pola elektrycznego.....	73
6.2.	Ekscytonowy efekt Starka w podwójnej sprzężonej kropce kwantowej o niesymetrycznym potencjale uwięzienia.....	76
6.3.	Trionowy efekt Starka w podwójnej sprzężonej kropce kwantowej.....	79
7.	Podsumowanie i wnioski.....	86
	Literatura autorska.....	93
	Literatura	94

1. Wstęp

W ostatnich latach nastąpił szybki rozwój nanotechnologii, czyli metod projektowania i wytwarzania obiektów o rozmiarach rzędu od kilku do stu nanometrów. Obiekty te, nazywane nanostrukturami wykazują wiele ciekawych własności. Ich małe rozmiary powodują ograniczenie ruchu znajdujących się w nich nośników ładunku przynajmniej w jednym wymiarze przestrzennym. W rezultacie widmo energetyczne takiego układu ma charakter dyskretny [1,2]. Wpływ rozmiarów układu, w którym znajdują się nośniki, na strukturę poziomów energetycznych nosi nazwę kwantowego efektu rozmiarowego [3,4].

Szczególnie dużo uwagi poświęca się nanostrukturom półprzewodnikowym. Wynika ono z możliwości ich potencjalnego zastosowania w najbliższej przyszłości do budowy układów elektronicznych. Projektowanie takich półprzewodnikowych układów kwantowych wchodzi w zakres rozwijającej się inżynierii kwantowej, ponieważ ich własności można poprawnie opisać stosując prawa mechaniki kwantowej.

Nanostruktury półprzewodnikowe dzielą się na: studnie kwantowe, druty kwantowe i kropki kwantowe. Budowa studni kwantowych opiera się na wykorzystaniu własności heterozłącza, które powstaje w wyniku połączenia dwóch warstw półprzewodników różniących się szerokością przerwy energetycznej. Dochodzi wówczas do wyrównania się poziomów Fermiego w obu półprzewodnikach co powoduje, że przesuwają się względem siebie krawędzie pasm przewodnictwa i pasm walencyjnych. Układając na sobie kolejno warstwy półprzewodników o szerokiej, węższej i znów szerokiej przerwie energetycznej uzyskuje się w środkowej warstwie studnię potencjału. Ogranicza ona ruch nośników ładunku w jednym wymiarze przestrzennym. W rezultacie nośniki mogą poruszać się wyłącznie w płaszczyźnie studni. Dlatego studnie kwantowe są układami dwuwymiarowymi. Metoda ta pozwala wytwarzać także wielokrotne sprzężone studnie kwantowe oddzielone od siebie barierami potencjału. Uzyskiwane w ten sposób heterostruktury półprzewodnikowe wykonuje się najczęściej ze związków półprzewodnikowych, które są stopami pierwiastków drugiej i szóstej lub trzeciej i piątej grupy układu okresowego. Ponieważ od składu pierwiastkowego użytych związków półprzewodnikowych zależy szerokość przerwy energetycznej, można w ten sposób regulować w pewnym zakresie głębokością studni potencjału. W zależności od usytuowania poziomów Fermiego i różnicy przerw energetycznych obu materiałów, możliwe jest uwięzienie elektronów i dziur w tym samym obszarze przestrzennym. Są to tzw. struktury typu 1 zwane także kontrawariantnymi. Natomiast w strukturach typu 2 zwanych kowariantnymi, elektrony i

dziury są rozdzielone przestrzennie. Wtedy studnia potencjału dla elektronu stanowi barierę dla dziury i odwrotnie [5].

W drutach kwantowych ruch nośników ładunku ograniczony jest w dwóch wymiarach przestrzennych i dlatego są one obiektami kwazijednowymiarowymi. Natomiast w kropkach kwantowych ruch nośników jest ograniczony w trzech wymiarach przestrzennych [6].

Kropkę kwantową stanowi trójwymiarowa studnia potencjału, w której mogą zostać uwięzione nośniki ładunku. Często taki potencjał uwięzienia uzyskuje się ograniczając ruch nośników w płaszczyźnie dwuwymiarowej studni kwantowej. Dokonuje się tego zmniejszając fizycznie jej rozmiary metodą wytrawiania lub przykładając napięcie do odpowiednio ukształtowanych metalowych elektrod naniesionych na jej powierzchnię [6].

Najczęściej wykorzystuje się jednak kombinację obu tych metod. W wyniku naprzemiennego ułożenia warstw dwóch półprzewodników zostaje ograniczony ruch nośników w kierunku wzrostu kropki. Natomiast napięcie przyłożone do elektrod metalowych naniesionych na górną powierzchnię powstałej w ten sposób studni kwantowej generuje potencjał uwięzienia bocznego. Kształtem i głębokością bocznego potencjału uwięzienia można wtedy sterować poprzez zmianę napięcia na elektrodach.

Kropka kwantowa wykazuje duże podobieństwo do naturalnego atomu. Pełni ona rolę centrum przyciągającego dla nośników ładunku podobnie jak ciężkie jądro w atomie. Ponadto widmo energetyczne uwięzionych nośników jest dyskretne, a struktura elektronowa wykazuje charakter powłokowy, jeżeli kształt kropki jest regularny i posiada ona symetrię przestrzenną [7]. Dzięki tym podobieństwom kropki kwantowe nazwano sztucznymi atomami. Analogicznie sprzężone kropki kwantowe nazywane są sztucznymi molekułami. W odróżnieniu od atomów, w kropkach kwantowych mogą się znajdować jednocześnie elektrony i dziury tworząc układy ekscytonowe [8].

Ze względu na unikalne własności elektryczne i optoelektroniczne kropek kwantowych, znalazły one już zastosowanie praktyczne. Pojedyncza kropka kwantowa może pracować jako tranzystor jednoelektronowy [9,10]. Samozorganizowane kropki kwantowe zostały wykorzystane do budowy laserów [11,12]. Znalazły one również zastosowanie jako źródła światła w medycynie i w biologii [13]. Zaawansowane są także prace nad budową automatów komórkowych na kropkach kwantowych, które mogą wykonywać operacje logiczne. Przewiduje się, że w takich układach przepływowi informacji nie będzie towarzyszył przepływ prądu [14,15]. Obecnie powszechnie uważa się, że półprzewodnikowe kropki kwantowe będą stanowić podstawę wszystkich nowych układów elektronicznych [16].

Dużą zaletą kropek kwantowych jest możliwość sterowania nimi poprzez zmianę napięć przyłożonych do metalowych elektrod. Ich położenie w kropce określa kierunek, w którym mogą poruszać się nośniki ładunku. W kropkach płaskich elektrody umieszczone są na tej samej warstwie półprzewodnika, a transport ładunku odbywa się w kierunku poprzecznym (tzn. w płaszczyźnie prostopadłej do kierunku wzrostu). W kropkach tego typu można łatwo zmieniać rozmiar i wysokość bariery oddzielającej sprzężone kropki. Pozwala to sterować sprzężeniem tunelowym pomiędzy kropkami [17,18].

Natomiast w kropkach pionowych transport nośników ładunku odbywa się w kierunku wzrostu kropki pomiędzy elektrodami umieszczonymi jedna nad drugą. W tego typu kropkach stosuje się często dodatkową elektrodę, której zadaniem jest wytworzenie potencjału uwięzienia w kierunku prostopadłym do osi kropki. W pobliżu centrum kropki, gdzie uwięzione są elektrony, potencjał ten ma zazwyczaj przebieg paraboliczny. Potwierdzono to eksperymentalnie badając absorpcję promieniowania elektromagnetycznego w zakresie dalekiej podczerwieni [19,20]. Jeżeli pojedyncza pionowa kropka kwantowa ma symetrię cylindryczną, wówczas posiada ona taką samą strukturę poziomów jednocząstkowych jak dwuwymiarowy oscylator harmoniczny. Z powodu symetrii przestrzennej takiej kropki, elektrony w niej uwięzione tworzą strukturę powłokową. Dla małej liczby elektronów zapełnianie kolejnych powłok odbywa się podobnie jak w przypadku naturalnych atomów, czyli zgodnie z regułami Hunda odpowiednimi dla danej symetrii układu [21-23]. Zmiana napięcia na dodatkowej elektrodzie sterującej pozwala zmieniać kształt potencjału uwięzienia w kierunku prostopadłym do osi pionowej kropki kwantowej. Modyfikacji ulega wtedy także cała struktura poziomów energetycznych, którą wyznacza się badając transport elektronów przez kropkę w zakresie występowania tak zwanej kwantowej blokady kulombowskiej [24]. Przyczyną jej występowania jest dyskretna struktura jednocząstkowych poziomów energetycznych i oddziaływanie kulombowskie pomiędzy elektronami znajdującymi się w kropce. W rezultacie, w niskich temperaturach (kilka mK) obserwuje się jednoelektronowy przepływ prądu przez kropkę. Dlatego pojedyncza kropka kwantowa może pracować jako jednoelektronowy tranzystor polowy [25]. Oprócz badania transportu nośników, w których wyznacza się widmo energii ładowania kropki [26], strukturę energetyczną kropki można także określić przy pomocy spektroskopii pojemnościowej [27-31].

Stosując obie przedstawione powyżej metody badano również zmiany własności kropek kwantowych w polu magnetycznym [32-34]. Stwierdzono, że przy pomocy pola magnetycznego o indukcji rzędu kilku tesli można manipulować spinem układu elektronów oraz zmieniać konfigurację elektronową układu [35-41]. W kropkach kwantowych poddanych działaniu silnego

poła magnetycznego zaobserwowano także przejście od kwantowania przestrzennego do kwantowania Landaua [42].

Z uwagi na kwantową naturę efektów obserwowanych w kropkach kwantowych, opis teoretyczny ich własności wymaga zastosowania aparatu mechaniki kwantowej. Dużym utrudnieniem jest zazwyczaj niska symetria kropek kwantowych oraz konieczność uwzględnienia oddziaływań wielociałowych. Ponadto, aby ograniczyć czasochłonność przeprowadzanych obliczeń numerycznych, stosowane są zazwyczaj bardzo uproszczone modele kropek kwantowych. Modele takie pozwalają opisywać jedynie najistotniejsze własności kropek kwantowych.

Celem tej pracy jest uzyskanie opisu teoretycznego sztucznych molekuł oraz układów ekscytonowych w pionowych pojedynczych i sprzężonych kropkach kwantowych o symetrii cylindrycznej. Wykorzystanie w obliczeniach istniejącej symetrii układu pozwala na znaczne uproszczenie rachunków przedstawionych w następnych rozdziałach problemach.

Rozdziały drugi, trzeci i czwarty zostały poświęcone opisowi sztucznych molekuł elektronowych w kropkach kwantowych, w których potencjał uwięzienia bocznego, czyli w kierunku prostopadłym do osi kropki jest znacznie silniejszy od potencjału uwięzienia w kierunku podłużnym. Taka postać potencjału powoduje „zamrożenie” poprzecznych stopni swobody nośników i w efekcie własności takiego układu są zbliżone do własności układów jednowymiarowych.

W rozdziale drugim przedstawione jest formalne wyprowadzenie wzoru opisującego efektywny kwazijednowymiarowy potencjał oddziaływania kulombowskiego. Potencjał ten opisuje oddziaływanie pomiędzy dwoma nośnikami ładunkami znajdującymi się w kwazijednowymiarowej kropce kwantowej o parabolicznym przebiegu potencjału uwięzienia bocznego. Jego własności porównano z własnościami innych modelowych potencjałów jednowymiarowych. Dyskutowane są również warunki stosowalności tego potencjału. Krótko opisano także możliwości jego zastosowania w innych układach kwazijednowymiarowych z uwzględnieniem kropek kwantowych nie posiadających symetrii cylindrycznej.

W rozdziale trzecim rozważany jest układ dwóch elektronów uwięzionych w pojedynczej kropce kwantowej. Problem ten rozwiązano w modelu jednowymiarowym z wykorzystaniem efektywnego kwazijednowymiarowego potencjału oddziaływania kulombowskiego. Uzyskane wyniki wskazują, że przy odpowiednio dużych rozmiarach pojedynczej kropki może dojść do rozdzielania przestrzennego elektronów i utworzenia molekuły Wignera. Analiza wyników otrzymanych przy użyciu metody Hartree-Focka pozwala określić rolę, jaką odgrywa korelacja elektronowa w procesie tworzenia się molekuły Wignera. W rozdziale tym wyjaśniono również

przyczyny degeneracji singletowych i trypletowych poziomów energetycznych w zakresie dużych i małych rozmiarów pojedynczej kropki kwantowej.

W rozdziale czwartym opisano układ dwóch elektronów uwięzionych w pionowej podwójnej sprzężonej kropce kwantowej. Problem ten również rozwiązano w modelu jednowymiarowym wykorzystującym potencjał efektywny. W rozdziale tym duży nacisk położono na analizę wpływu sprzężenia tunelowego na widmo energetyczne układu. Uzyskane wyniki pokazują, że korelacja elektronowa jest odpowiedzialna za rozdzielanie elektronów przy dużych szerokościach bariery oddzielającej sprzężone kropki. W granicy szerokiej bariery stwierdzono także możliwość występowania degeneracji energii stanów singletowych i stanów trypletowych.

Jeżeli kropka kwantowa zawiera wiele elektronów, wówczas do jej opisu używa się jednej z metod pola średniego, jak np.: metody Hartree-Focka czy metody funkcjonału gęstości [2,43,44]. Zaletą metody funkcjonału gęstości jest duża wydajność obliczeniowa, która sprawia że są one często stosowane. Jedną z częściej używanych metod funkcjonału gęstości jest metoda LSDA (Local Spin Density Approximation). W rozdziale piątym przedstawione są wyniki uzyskane przy użyciu metody LSDA w układzie dwóch, trzech oraz czterech elektronów uwięzionych w podwójnej sprzężonej kropce kwantowej. Wyniki te porównywane są z wynikami dokładnymi, otrzymanymi w metodzie mieszania konfiguracji, w celu sprawdzenia dokładności metody LSDA dla małej liczby elektronów. Szczególną uwagę zwrócono na zagadnienie łamania symetrii potencjału uwięzienia przez jednoelektronowe funkcje falowe w nieograniczonej metodzie LSDA. Otrzymane wyniki wskazują, że nieograniczona metoda LSDA dobrze odtwarza energię układu dla dowolnej szerokości bariery oddzielającej sprzężone kropki. Z drugiej strony, funkcja falowa układu uzyskana w tej metodzie nie zawsze potrafi jednak odtworzyć symetrię dokładnej funkcji falowej.

W ostatnim rozdziale pracy rozważane są układy ekscytonowe w podwójnej kropce kwantowej. Własności takich układów mogą ulegać dużym zmianom pod wpływem zewnętrznego pola elektrycznego. Jego wpływ na widmo energetyczne ekscytonu nosi nazwę efektu Starka [45,46]. W pojedynczej kropce kwantowej o małych rozmiarach (rzędu kilku nm) przesunięcie elektronu względem dziury pod wpływem pola elektrycznego jest niewielkie. Natomiast w podwójnej sprzężonej kropce kwantowej, ze względu na większe rozmiary układu, pole elektryczne może spowodować dysocjację ekscytonu, czyli przestrzenne rozdzielanie elektronu i dziury. Mechanizm dysocjacji neutralnego oraz ujemnie naładowanego ekscytonu w podwójnej kropce kwantowej pod wpływem pola elektrycznego jest opisany w rozdziale szóstym. Otrzymane wyniki pokazują, że dla niewielkich wartości natężenia pola elektrycznego

oddziaływanie elektrostatyczne elektronu i dziury może przeciwdziałać procesowi dysocjacji. Prezentowane wyniki obliczeń numerycznych jakościowo zgadzają się z wynikami eksperymentalnymi. Natomiast w przypadku ujemnie naładowanego ekscytonu stwierdzono, że dysocjacja może zachodzić na dwa sposoby w zależności od geometrii potencjału uwięzienia.

Ostatni rozdział pracy stanowi podsumowanie. Zawiera on krótką dyskusję wyników przedstawionych w poprzednich rozdziałach.

2. Efektywny potencjał oddziaływania kulombowskiego w strukturach kwazijednowymiarowych.

W nanostrukturach półprzewodnikowych ruch nośników ładunku może być ograniczony w jednym, w dwóch lub w trzech wymiarach przestrzennych. Jeżeli ograniczenie ruchu cząstki w danym kierunku spowodowane jest istnieniem silnego potencjału uwięzienia, wówczas różnice energii między kolejnymi jednocząstkowymi poziomami energetycznymi są duże. W rezultacie prawdopodobieństwo obsadzenia stanów wzbudzonych jest bardzo małe i cząstka znajduje się w stanie podstawowym. Ruch nośników w danym kierunku zostaje w ten sposób „zamrożony”. Do takich nisko-wymiarowych układów zaliczają się między innymi nanostruktury kwazijednowymiarowe, w których potencjał uwięzienia w jednym wymiarze przestrzennym (kierunek podłużny) jest znacznie słabszy niż w dwóch pozostałych wymiarach (kierunek poprzeczny). W rezultacie poprzeczne stopnie swobody nośników zostają „zamrożone”, a wszelkie interesujące z fizycznego punktu widzenia efekty są wynikiem kwantyzacji ruchu w kierunku podłużnym. Typowe kwazijednowymiarowe obiekty^a mają postać drutów kwantowych, nanokryształów włoskowych oraz nanorurek węglowych [47-51].

Oprócz nich, własności układów kwazijednowymiarowych mogą wykazywać również pionowe kropki kwantowe, w których potencjał uwięzienia bocznego jest bardzo silny. Potencjał taki można wytworzyć elektrostatycznie, przez przyłożenie odpowiedniej różnicy potencjałów do elektrod metalowych. W ten sposób zmniejszane są efektywne rozmiary kropki w kierunku prostopadłym do jej osi, a przez to zmniejszeniu ulega również obszar, w którym uwięzione są nośniki ładunku [52,53]. „Zamrożenie” poprzecznych stopni swobody można wykorzystać w celu sprowadzenia problemu ruchu oddziaływujących nośników ładunku w trzech wymiarach przestrzennych do problemu jednowymiarowego. Korzyścią wynikającą z takiego postępowania jest redukcja liczby zmiennych niezależnych potrzebnych do opisu układu. Ma to szczególnie duże znaczenie, przy wykonywaniu obliczeń numerycznych.

Zastosowanie przybliżenia jednowymiarowego wiąże się z użyciem jednowymiarowego potencjału oddziaływania kulombowskiego. Wraz ze zmniejszaniem wymiarowości problemu oddziaływających elektronów rośnie energia ich oddziaływania kulombowskiego [54]. W

^a określenie „nanostruktury kwazijednowymiarowe” ma na celu podkreślenie faktu, że obiekty te nie są ściśle obiektami jednowymiarowymi, a jedynie wykazują pewne do nich podobieństwo

klasycznym jednowymiarowym układzie potencjał oddziaływania staje się osobliwy dla zerowej wartości argumentu. Jednakże w strukturach kwaziejednowymiarowych powinien on być skończony ze względu na rozmycie funkcji falowej w kierunku poprzecznym.

W pracach dotyczących układów kwaziejednowymiarowych z uwięzionymi nośnikami ładunku często wykorzystywane są jednowymiarowe potencjały modelowe. Wszystkie te potencjały zawierają co najmniej jeden parametr dopasowania i nie posiadają osobliwości. Jeden z takich modelowych potencjałów ma postać [55-58]:

$$V_1(z_{12}) = \frac{\kappa}{\sqrt{z_{12}^2 + R^2}} \quad (2.1)$$

gdzie: $\kappa = e^2 / (4\pi\epsilon\epsilon_0)$, z_{12} jest odległością względną elektronów, ϵ jest stałą dielektryczną, a R jest parametrem dopasowania. Potencjał ten jest ograniczony oraz dąży asymptotycznie do potencjału kulombowskiego dla dużych wartości argumentu. Jednowymiarowe potencjały modelowe mogą też mieć następującą postać [59,60]:

$$V_2(z_{12}) = \frac{\kappa}{|z_{12}| + \alpha R} \quad (2.2)$$

gdzie α jest dodatkowym parametrem dopasowania,
lub:

$$V_3(z_{12}) = \frac{\kappa \left(1 - \exp\left[-\frac{|z_{12}|}{R}\right] \right)}{|z_{12}|} \quad (2.3)$$

Cechą wspólną tych potencjałów jest ich zależność od parametru dopasowania R . Niestety nie istnieją ściśle określone reguły, według których należy dobierać jego wartość. Zazwyczaj utożsamiany jest on z promieniem drutu kwantowego. W ten sposób potencjał modelowy uzależnia się od geometrii potencjału uwięzienia. Postępowanie takie jednak może być źródłem trudnych do oszacowania błędów (np. ze względu na silną lokalizację dziury i elektronu w ekscytonie, jego energia wiązania może silnie zależeć od tego parametru).

Okazuje się jednak, że dla układów trójwymiarowych o symetrii cylindrycznej, w których potencjał uwięzienia ma postać potencjału oscylatora harmonicznego, można uzyskać analitycznie efektywny kwaziejednowymiarowy potencjał oddziaływania kulombowskiego. Paraboliczny potencjał uwięzienia bocznego może zostać wytworzony w pionowych kropkach

kwantowych o symetrii cylindrycznej, przy pomocy elektrod metalowych. Praktyczne realizacje takich struktur są opisane w pracach Ashooriego i Tokury [52,53].

W celu otrzymania formuły analitycznej opisującej efektywne oddziaływanie jednowymiarowe wystarczy ograniczyć rozważania do układu zawierającego tylko dwie cząstki np. dwa oddziaływujące elektrony. Hamiltonian układu dwóch elektronów w przybliżeniu masy efektywnej przy braku pól zewnętrznych jest następujący:

$$\hat{H}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = -\frac{\hbar^2}{2m_e^*} \left(\nabla_{\vec{r}_1}^2 + \nabla_{\vec{r}_2}^2 \right) + \frac{\kappa}{r_{12}} + U_{\parallel}(z_1) + U_{\parallel}(z_2) + \frac{m_e^* \omega^2}{2} (x_1^2 + y_1^2 + x_2^2 + y_2^2) \quad (2.4)$$

gdzie: m_e^* jest efektywną masą elektronu, \vec{r}_1 i \vec{r}_2 są wektorami położenia pierwszego i drugiego elektronu, $r_{12} = \sqrt{(x_1 - x_2)^2 + (y_1 - y_2)^2 + (z_1 - z_2)^2}$ jest odległością pomiędzy elektronami, ω jest częstością oscylatora harmonicznego, a $U_{\parallel}(z)$ jest potencjałem uwięzienia w kierunku podłużnym.

Przy założeniu, że ruch w kierunku poprzecznym jest słabo zaburzany przez oddziaływanie elektron-elektron, część przestrzenną dwuelektronowej funkcji falowej można przedstawić w postaci rozseparowanej:

$$\Phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \psi_1(x_1, y_1) \psi_2(x_2, y_2) \varphi_{\parallel}(z_1, z_2) \quad (2.5)$$

Zależność funkcji falowej dla kierunku podłużnego od współrzędnych obu elektronów jest wynikiem założenia, że ruch obu elektronów w tym kierunku jest skorelowany.

Dla parabolicznego potencjału uwięzienia bocznego, funkcję falową stanu podstawowego dla kierunku poprzecznego można zapisać w postaci:

$$\psi_{\perp}(x, y) = \frac{1}{\sqrt{\pi} \ell_e} \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{2\ell_e^2}\right) \quad (2.6)$$

gdzie:

$$\ell_e = \sqrt{\frac{\hbar}{m_e^* \omega}} \quad (2.7)$$

jest tzw. charakterystyczną długością oscylatorową dla elektronu.

Aby otrzymać całkowitą energię oddziaływania elektron-elektron należy obliczyć wartość poniższej całki (tzw. całki kulombowskiej):

$$W = \int d^3\vec{r}_1 \int d^3\vec{r}_2 \frac{\kappa}{r_{12}} |\Phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2)|^2 \quad (2.8)$$

Podstawiając w powyższym wzorze za funkcję falową $\Phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$ jej rozseparowaną postać, można całkę oddziaływania kulombowskiego zapisać, przy pomocy odwrotnych transformat fourierowskich:

$$|\psi_{\perp}(x, y)|^2 = \frac{1}{(2\pi)^2} \iint d^2k \rho_{\perp}(k_x, k_y) \exp[-i(k_x x + k_y y)] \quad (2.9)$$

$$|\varphi_{\parallel}(z_1, z_2)|^2 = \frac{1}{(2\pi)^2} \iint_{-\infty}^{\infty} dq_1 dq_2 \rho_{\parallel}(q_1, q_2) \exp[-i(q_1 z_1 + q_2 z_2)] \quad (2.10)$$

$$\frac{1}{r_{12}} = \frac{1}{2\pi^2} \iint d^2k \int_{-\infty}^{\infty} dq \frac{\exp\{-i[k_x(x_1 - x_2) + k_y(y_1 - y_2) + q(z_1 - z_2)]\}}{k_x^2 + k_y^2 + q^2} \quad (2.11)$$

gdzie: $d^2k = dk_x dk_y$,

a odpowiednie transformaty Fourier'a mają postać:

$$F\left[|\psi_{\perp}(x, y)|^2\right] = \rho_{\perp}(k_x, k_y) = \exp\left(-\frac{(k_x^2 + k_y^2)}{4}\right) \quad (2.12)$$

$$F\left[|\varphi_{\parallel}(z_1, z_2)|^2\right] = \rho_{\parallel}(q_1, q_2) \quad (2.13)$$

$$F\left[\frac{1}{r}\right] = \frac{4\pi}{k_x^2 + k_y^2 + q^2} \quad (2.14)$$

Po wstawieniu odwrotnych transformat Fourier'a pod znak całki (2.8), należy wykonać całkowanie po współrzędnych \vec{r}_1 i \vec{r}_2 wykorzystując własność delty Diraca:

$$\delta(k) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dx \exp(-ikx) \quad (2.15)$$

W ten sposób otrzymuje się całkę oddziaływania kulombowskiego w przestrzeni wektora falowego:

$$W = \frac{\kappa}{2\pi^2} \iint d^2k \int_{-\infty}^{\infty} dq \frac{\rho_{\perp}^2(k_x, k_y) \rho_{\parallel}(q, -q)}{k^2 + q^2} \quad (2.16)$$

Po podstawieniu za $\rho_{\parallel}(q, -q)$ w równaniu (2.16) transformaty:

$$\rho_{\parallel}(q, -q) = \iint_{-\infty}^{\infty} dz_1 dz_2 |\varphi(z_1, z_2)|^2 \exp[iq(z_1 - z_2)] \quad (2.17)$$

można wykonać operację całkowania po zmiennej q , przy czym wygodnie jest posłużyć się poniższą tożsamością:

$$\int_{-\infty}^{\infty} dq \frac{\exp(iqz)}{k^2 + q^2} = \frac{\pi}{k} \exp(-k|z|) \quad \text{dla } k > 0 \quad (2.18)$$

Po wykonaniu tej operacji całkę kulombowską można przedstawić w postaci:

$$W = \iint_{-\infty}^{\infty} dz_1 dz_2 |\varphi(z_1, z_2)|^2 V_{eff}(z_1 - z_2) \quad (2.19)$$

gdzie:

$$\begin{aligned} V_{eff}(z_1 - z_2) &= \frac{\kappa}{2\pi} \iint_{-\infty}^{\infty} d^2k \rho_{\perp}^2(k_x, k_y) \frac{\exp(-k|z_1 - z_2|)}{k} \\ &= \kappa \int_0^{\infty} dk \exp\left(-k|z_1 - z_2| - \frac{k^2 \ell_e^2}{2}\right) \end{aligned} \quad (2.20)$$

jest efektywnym kwaziejednowymiarowym potencjałem oddziaływania kulombowskiego.

Po wykonaniu całkowania po zmiennej k , efektywny potencjał oddziaływania pomiędzy elektronami zajmującymi orbitale typu $1s$ (dla ruchu poprzecznego) dwuwymiarowego oscylatora harmonicznego przyjmuje postać:

$$V_{eff}(z_{12}) = \sqrt{\frac{\pi}{2}} \frac{\kappa}{\ell_e} \exp\left(\frac{(z_1 - z_2)^2}{2\ell_e^2}\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{|z_1 - z_2|}{\sqrt{2}\ell_e}\right) \quad (2.21)$$

gdzie: $\operatorname{erfc}(x)$ jest uzupełniającą funkcją błędu.

W podobny sposób można również uzyskać wyrażenie opisujące oddziaływanie pomiędzy dwoma elektronami zajmującymi odpowiednio orbitale $1s$ i $1p$ [appendix w pracy A1]. Potencjał efektywny dla takiego przypadku wyraża się następującym wzorem:

$$V_{eff}^{sp}(z_{12}) = \left(\frac{3}{4} - \frac{z_{12}}{4\ell_e^2}\right) V_{eff}(z_{12}) + \frac{\kappa z_{12}}{4\ell_e^2} \quad (2.22)$$

W granicy $z \rightarrow 0$ potencjał V_{eff}^{sp} przyjmuje mniejsze wartości od V_{eff} , natomiast dla dużych wartości argumentu dąży on asymptotycznie do wartości κ/z_{12} .

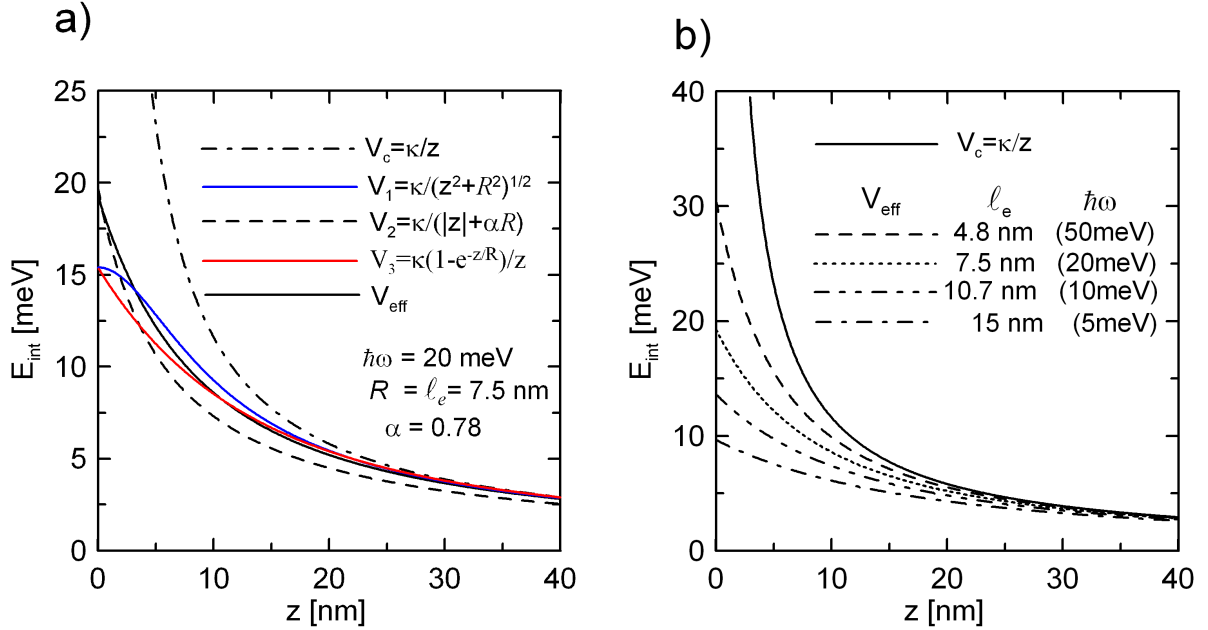
Zastosowanie efektywnego kwaziejednowymiarowego potencjału oddziaływania (V_{eff}) nie ogranicza się jedynie do problemu dwóch elektronów. Może on być stosowany również w układzie zawierającym nośniki o różnym znaku ładunku, wtedy za parametr ℓ_e we wzorach (2.21) i (2.22) należy podstawić:

$$\ell_{12} = \sqrt{\frac{\ell_1^2 + \ell_2^2}{2}} \quad (2.23)$$

gdzie: ℓ_1, ℓ_2 oznaczają charakterystyczne długości oscylatorowe pierwszej i drugiej cząstki.

Efektywny kwaziejednowymiarowy potencjał oddziaływania kulombowskiego jak dotąd był rzadko wykorzystywany w obliczeniach kwantowych. Barker i in. użyli go do obliczenia energii wiązania ekscytonu [61]. Zastosowali oni przybliżenie funkcji falowej elektronu i dziury dla kierunku podłużnego w postaci gaussianów centrowanych w różnych punktach przestrzeni. Umożliwiło to sparametryzowanie energii oddziaływania elektronu i dziury. Również Esser i in. użyli potencjału efektywnego do opisu oddziaływania elektronu i dziury w drucie kwantowym [62]. Natomiast w pracach [A1-A3] został on wykorzystany do opisu kropek kwantowych zawierających kilka elektronów.

Przebiegi efektywnego potencjału oddziaływania kulombowskiego (wzór 2.21) dla $\ell_e=7.5$ nm oraz trzech modelowych potencjałów jednowymiarowych w funkcji odległości między elektronami przedstawia rysunek 2.1(a). W obliczeniach wykorzystano parametry materiałowe dla GaAs, dla którego masa efektywna wynosi $m_e^* = 0.067 m_e$, a wartość stałej dielektrycznej jest równa $\epsilon = 12.4$.



Rys. 2.1 (a) Energia potencjalna oddziaływania elektron-elektron (wzór 2.21) w funkcji odległości. (b) Porównanie efektywnego potencjału jednowymiarowego z potencjałem kulombowskim dla kilku wartości parametru ℓ_e .

Potencjał efektywny ma nie znikającą pierwszą pochodną w $z=0$, a dla dużych wartości argumentu dąży asymptotycznie do wartości κ/z jak w klasycznym przypadku jednowymiarowym. Dla porównania na rysunku 2.1(a) przedstawiono także trzy modelowe potencjały jednowymiarowe. Wartość parametru R przyjęto równą długości oscylatorowej ℓ_e . Wartość parametru dopasowania $\alpha=0.78$ dobrano tak, aby potencjał V_2 osiągał taką samą wartość jak potencjał efektywny dla $z=0$. Każdy z trzech modelowych potencjałów dla dużych wartości argumentu zachowuje się jak potencjał kulombowski. Jednak odtwarzają one niedokładnie przebieg potencjału efektywnego dla małych i średnich odległości między elektronami. Jak widać potencjał V_1 różni się od pozostałych tym, że jego pochodna znika dla zerowej wartości argumentu. Natomiast potencjały modelowe tj. V_2 i V_3 mają niezerową wartość pochodnej w tym punkcie podobnie jak potencjał efektywny.

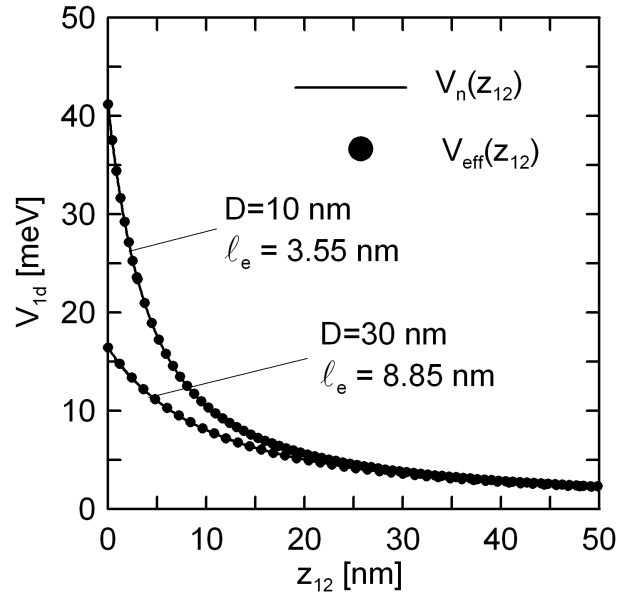
Wpływ parametru ℓ_e na przebieg potencjału efektywnego przedstawia rysunek 2.1(b). Parametr ten opisuje rozmycie jednoelektronowych funkcji falowych w kierunku poprzecznym (wzór 2.6). Im mniejsza jest jego wartość, tym mniejsze jest to rozmycie. Wówczas gęstość ładunku w pobliżu osi kropki rośnie, a skutkiem tego jest silniejsze oddziaływanie elektronów ze sobą. Na rysunku 2.1(b) widać, że zmniejszanie wartości parametru ℓ_e rzeczywiście powoduje wzrost energii oddziaływania dla małych i średnich odległości pomiędzy elektronami. Z drugiej strony, dla dostatecznie dużych odległości pomiędzy nimi w stosunku do wartości ℓ_e wpływ tego efektu staje się zaniedbywalny. Gdy wartość ℓ_e zbliża się do 40 nm, wtedy potencjał efektywny (niezależnie od wartości ℓ_e) zachowuje się jak klasyczny jednowymiarowy potencjał kulombowski. Elektrony oddziałują wówczas jak dwa ładunki punktowe.

Formuła opisująca potencjał efektywny została otrzymana w postaci analitycznej przy założeniu, że potencjał uwięzienia bocznego ma postać potencjału oscylatora harmonicznego. Okazuje się jednak, że można go również zastosować w strukturach o symetrii cylindrycznej z potencjałem uwięzienia bocznego innym niż paraboliczny lub w strukturach nie posiadających w ogóle symetrii cylindrycznej. Istnieją dwa sposoby uzyskania potencjału efektywnego dla takich struktur. Pierwsze podejście opiera się na założeniu, że funkcję falową dla kierunku poprzecznego można nadal przybliżyć przy pomocy wzoru (2.6). Na podstawie posiadanych informacji o geometrii układu należy tylko odpowiednio ustalić wartość parametru ℓ_e . Drugie podejście ma charakter czysto numeryczny. Najpierw należy znaleźć funkcję falową jednoelektronowego stanu podstawowego $\psi(x, y)$ dla kierunku poprzecznego rozwiązując numerycznie problem własny. Kolejnym krokiem jest obliczenie poniższej całki:

$$V(z_1, z_2) = \iint_{-\infty}^{\infty} dx_1 dy_1 \iint_{-\infty}^{\infty} dx_2 dy_2 \frac{\kappa}{r_{12}} |\psi_1(x_1, y_1)|^2 |\psi_2(x_2, y_2)|^2 \quad (2.24)$$

Następnie należy odpowiednio dobrać wartość parametru ℓ_e , tak, aby efektywny potencjał oddziaływania (2.21) odtwarzał przebieg potencjału (2.24). Korzyścią wynikającą z zastosowania któregośkolwiek z tych dwóch podejść jest zredukowanie liczby używanych zmiennych niezależnych oraz możliwość posługiwania się w dalszych obliczeniach analityczną formułą opisującą potencjał oddziaływania.

Na rysunku 2.2 przedstawiono porównanie uzyskanego numerycznie potencjału oddziaływania elektron-elektron z efektywnym kwaziejednowymiarowym potencjałem oddziaływania kulombowskiego w kropce o kwadratowym przekroju poprzecznym. Potencjał uwięzienia w kierunku poprzecznym przyjęto w postaci prostokątnej studni kwantowej o głębokości 300 meV wytworzonej w GaAs i otoczonej barierą z AlGaAs. W rachunkach użyto parametrów materiałowych dla GaAs: $m_e^* = 0.067$ i $\epsilon = 12.4$.



Rys. 2.2 Porównanie jednowymiarowego potencjału oddziaływania kulombowskiego uzyskanego numerycznie z efektywnym kwazi-jednowymiarowym potencjałem oddziaływania dwóch elektronów w kropce o kwadratowym przekroju poprzecznym. Na rysunku, V_n oznacza potencjał uzyskany numerycznie.

Przykładowe parametry dopasowania ($\hbar\omega$, l_e) dla kropki o przekroju cylindrycznym i przekroju kwadratowym zawiera tabela 2.1. W tabeli tej parametr D oznacza średnicę przekroju poprzecznego kropki o symetrii cylindrycznej lub długość boku kwadratu stanowiącego przekrój poprzeczny kropki.

Tabela 2.1 Parametry dopasowania efektywnego kwazijednowymiarowego potencjału oddziaływania pomiędzy dwoma elektronami uwięzionymi w kropce kwantowej o kołowym i kwadratowym przekroju poprzecznym.

rodzaj przekroju poprzecznego		D [nm]		
		10	20	30
kołowy	$\hbar\omega$ [meV]	110	37	17
	l_e [nm]	3.22	5.54	7.95
kwadratowy	$\hbar\omega$ [meV]	90	29	14.5
	l_e [nm]	3.55	6.26	8.85

W następnych dwóch rozdziałach zaprezentowane zostaną rozwiązania problemu dwóch elektronów w pojedynczej i w podwójnej kropce kwantowej w modelu jednowymiarowym. W przybliżeniu tym wykorzystano efektywny kwazijednowymiarowy potencjał oddziaływania. Dzięki redukcji liczby zmiennych w modelu jednowymiarowym możliwe jest uzyskanie numerycznie dokładnego rozwiązania problemu własnego hamiltonianu dwóch elektronów.

3. Układ dwóch elektronów w pojedynczej kropce kwantowej o symetrii cylindrycznej

3.1. Rola korelacji elektronowej w procesie tworzenia się molekuly Wignera

Wprowadzony w rozdziale 2 efektywny kwazijednowymiarowy potencjał oddziaływania został wykorzystany w problemie dwóch elektronów uwięzionych w cylindrycznej kropce kwantowej z parabolicznym potencjałem uwięzienia bocznego. Jego użycie pozwala opisać układ w modelu jednowymiarowym. Zastosowanie tego przybliżenia powoduje zmniejszenie liczby zmiennych niezależnych opisujących położenie obu elektronów z sześciu (\vec{r}_1, \vec{r}_2) do zaledwie dwóch (z_1, z_2) . Dzięki temu problem własny układu dwóch oddziaływujących elektronów można rozwiązać (numerycznie) dokładnie dla dowolnego kształtu potencjału uwięzienia w kierunku podłużnym [A4, A5].

Obliczenia przedstawione w dalszej części tego paragrafu wykonano dla kropki kwantowej, w której potencjał uwięzienia w kierunku podłużnym stanowi pojedyncza prostokątna studnia kwantowa wytworzona w $\text{In}_{0.05}\text{Ga}_{0.95}\text{As}$ i otoczona barierami z GaAs [64]. Głębokość studni względem dna pasma przewodnictwa materiału bariery wynosi $V_0 = -240$ meV. Potencjał uwięzienia bocznego ma kształt paraboliczny, w którym odległość w skali energii pomiędzy kolejnymi poziomami jednoelektronowymi wynosi $\hbar\omega = 6$ meV co odpowiada charakterystycznej długości oscylatorowej $\ell_e = 13.76$ nm. Masa efektywna wynosi $m_e^* = 0.064$ masy spoczynkowej elektronu, a stała dielektryczna jest równa $\epsilon = 12.4$.

Trójwymiarowy hamiltonian układu dwóch elektronów w przybliżeniu masy efektywnej można przedstawić w poniższej postaci:

$$\begin{aligned} \hat{H}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = & -\frac{\hbar^2}{2m_e^*} (\nabla_{\vec{r}_1}^2 + \nabla_{\vec{r}_2}^2) + \frac{m_e^* \omega^2}{2} (\rho_1^2 + \rho_2^2) \\ & + \frac{\kappa}{r_{12}} + V_{ext}(z_1) + V_{ext}(z_2) \end{aligned} \quad (3.1)$$

gdzie: $\rho^2 = x^2 + y^2$, $\kappa = e^2 / (4\pi\epsilon\epsilon_0)$, $V_{ext}(z)$ jest potencjałem uwięzienia w kierunku podłużnym.

Problem własny tego operatora sprowadzamy do efektywnie jednowymiarowej postaci w sposób następujący:

Zakładamy, że funkcję falową w przestrzeni trójwymiarowej można zapisać w postaci rozseparowanej (2.5). Następnie równanie własne operatora (3.1) :

$$\left(\hat{H}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) - E\right)\psi_1(x_1, y_1)\psi_2(x_2, y_2)\varphi(z_1, z_2) = 0 \quad (3.2)$$

mnożymy lewostronnie przez $\psi_1^*(x_1, y_1)\psi_2^*(x_2, y_2)$ (funkcje wyrażone wzorem 2.6) i całkujemy po zmiennych poprzecznych x_1, x_2, y_1, y_2 . Uzyskujemy równanie, które musi spełniać funkcja $\varphi(z_1, z_2)$. Jest to równanie własne operatora zawierającego jedynie zmienne ruchu podłużnego z_1 i z_2 :

$$\hat{H}(z_1, z_2) = -\frac{\hbar^2}{2m_e^*} \left(\frac{\partial}{\partial z_1^2} + \frac{\partial}{\partial z_2^2} \right) + V_{eff}(z_{12}) + V_{ext}(z_1) + V_{ext}(z_2) + 2\hbar\omega \quad (3.3)$$

gdzie: V_{eff} jest efektywnym potencjałem oddziaływania elektron-elektron, danym wyrażeniem (2.21), a $2\hbar\omega$ jest podwojoną energią elektronu znajdującego się w stanie podstawowym dwuwymiarowego oscylatora harmonicznego.

Ponieważ hamiltonian układu nie zawiera zależności od spinu elektronów, można w funkcji falowej rozseparować zmienne przestrzenne i spinowe:

$$\Psi(\vec{r}_1, \sigma_1, \vec{r}_2, \sigma_2) = \Phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2)\chi(\sigma_1, \sigma_2) \quad (3.4)$$

gdzie: $\chi(\sigma_1, \sigma_2)$ oznacza część spinową funkcji falowej, a $\Phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$ część przestrzenną, która wyraża się wzorem (2.5). Określoną symetrię względem permutacji cząstek posiadać będą obie części funkcji falowej – przestrzenna i spinowa.

Całkowita funkcja falowa układu elektronów musi być antysymetryczna względem zamiany cząstek miejscami. Zatem symetrycznej przestrzennej funkcji falowej odpowiada antysymetryczna funkcja spinowa i na odwrót. Ze wzoru (2.6) wynika, że iloczyn $\psi_1(x_1, y_1)\psi_2(x_2, y_2)$ jest zawsze symetryczny względem takiej operacji i o symetrii całej

funkcji decyduje symetria funkcji falowej $\varphi(z_1, z_2)$, która stanowi rozwiązanie problemu własnego w przybliżeniu jednowymiarowym (funkcja własna hamiltonianu 3.3).

Zgodnie z tymi założeniami stanom singletowym odpowiadają funkcje falowe spełniające warunek:

$$\varphi(z_1, z_2) = +\varphi(z_2, z_1) \quad (3.5)$$

a stanom trypletowym odpowiadają funkcje falowe:

$$\varphi(z_1, z_2) = -\varphi(z_2, z_1) \quad (3.6)$$

Rozwiązanie problemu własnego w przybliżeniu jednowymiarowym sprowadza się do znalezienia funkcji falowych $\varphi(z_1, z_2)$ i odpowiadających im energii przy użyciu odpowiedniej procedury numerycznej. Problem własny rozwiązano numerycznie przy użyciu metody ewolucji układu w czasie urojonym [65]. W tym celu wprowadzono dwuwymiarową siatkę, w której węzłach określone są wartości funkcji falowej $\varphi(z_1, z_2)$. Dyskretną postać hamiltonianu (3.3) uzyskano zastępując występujące w nim drugie pochodne trójpunktowym wyrażeniem różnicowym. Zastosowana procedura jest metodą iteracyjną. W każdej iteracji uzyskuje się nową funkcję falową według poniższego algorytmu:

$$\varphi^{i+1} = (1 - \alpha \hat{H}) \varphi^i \quad (3.7)$$

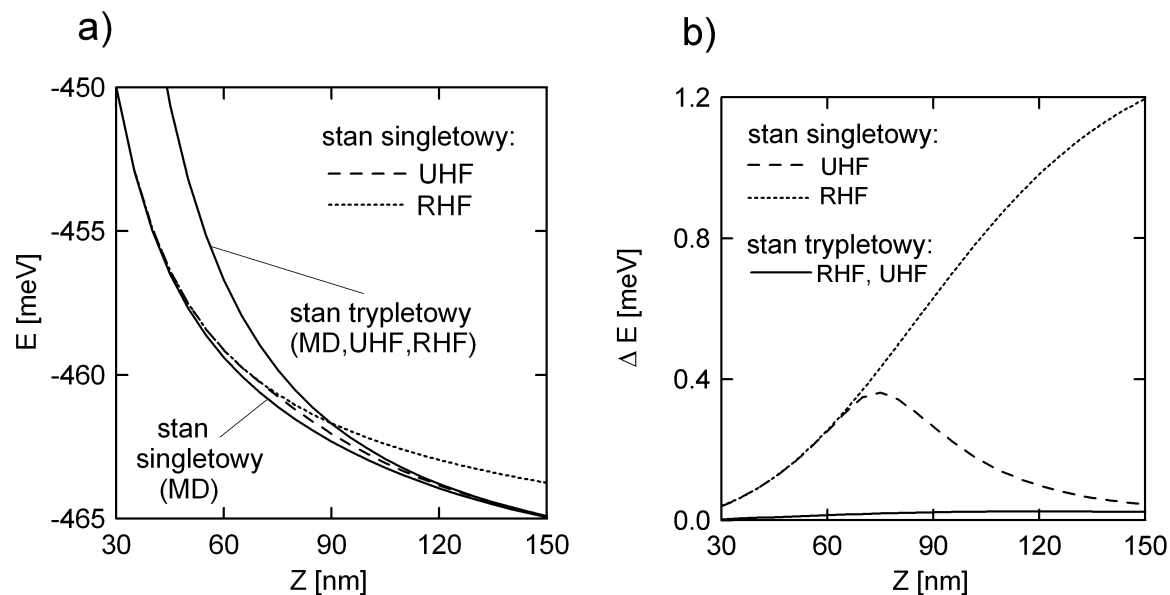
gdzie: wskaźnik i oznacza numer iteracji, parametr α jest małą liczbą rzeczywistą dobieraną empirycznie tak, aby uzyskać zbieżność całkowitej energii układu.

W każdej iteracji funkcja falowa musi być normowana. Jako funkcji startowej (próbnej) użyto funkcji o losowym rozkładzie jednorodnym. Szerokość barier zewnętrznych w kierunku podłużnym ustalono tak, aby funkcja falowa zerowała się na brzegach obszaru obliczeniowego (warunek brzegowy). Podczas iteracji (ewolucji układu w czasie urojonym) funkcja falowa φ^i dąży do funkcji falowej najniższego poziomu energetycznego o narzuconych na funkcję falową symetriach. Stosując jednocześnie ortogonalizację Schmidta można również uzyskać rozwiązania dla stanów wzbudzonych. Dzięki temu, że rachunek dwucząstkowy wykonywany

jest bezpośrednio, bez korzystania z przybliżeń jednoelektronowych, uwzględniona jest pełna korelacja elektronowa i użytą metodę rachunkową można traktować jako „dokładną”^a (MD).

Aby określić rolę wynikającą z oddziaływania elektron-elektron korelacji elektronowej rachunki zostały powtórzone przy użyciu tzw. ograniczonej metody Hartree-Focka, która stanowi punkt odniesienia dla efektów korelacyjnych. Dla porównania zastosowano również tzw. nieograniczoną metodę Hartree-Focka [66,67]. W ograniczonej (przestrzennie i spinowo) metodzie Hartree-Focka (RHF) jednoelektronowe funkcje falowe zachowują symetrię potencjału uwięzienia i są takie same dla elektronów o przeciwnych spinach. Natomiast w nieograniczonej (przestrzennie i spinowo) metodzie Hartree-Focka (UHF) jednoelektronowe funkcje falowe dla każdego spin-orbitalu są optymalizowane osobno, dzięki czemu na skutek oddziaływania elektron-elektron mogą łamać (nie odtwarzać) symetrię potencjału zewnętrznego. W rezultacie metoda nieograniczona częściowo uwzględnia efekty korelacyjne. Porównanie rozwiązań uzyskanych przy użyciu ograniczonej i nieograniczonej metody Hartree-Focka z rozwiązaniami uzyskanymi metodą dokładną pozwala określić wpływ jaki ma korelacja elektronowa na własności układu.

Energie dwóch najniższych poziomów układu dwóch elektronów uzyskane, przy użyciu tych trzech metod przedstawia rysunek 3.1(a). Energie liczone są w funkcji długości kropki.



Rys 3.1 (a) Zależności energii dwóch najniższych poziomów energetycznych układu dwóch elektronów od długości pojedynczej kropki kwantowej. Poziomy te odpowiadają stanowi singletowemu i stanowi trypletowemu. (b) Błędy energii w ograniczonej i nieograniczonej metodzie Hartree-Fock’a.

^a Obliczenia numeryczne wykonywane przy użyciu metody czasu urojonego wykonywane są z określoną dokładnością.

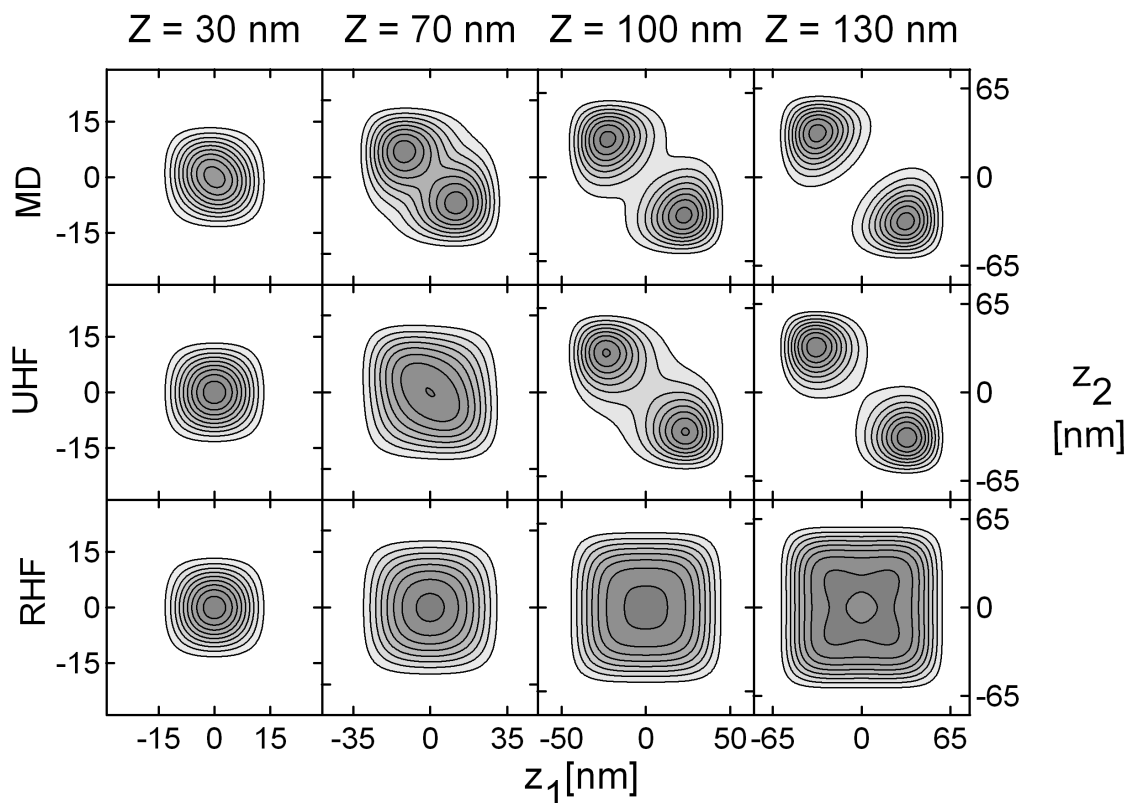
Niezależnie od jej długości stanem podstawowym jest stan singletowy, a stan trypletowy jest stanem wzbudzonym. Dla rosnących wartości Z różnica energii tych poziomów maleje. Dla Z powyżej 140 nm energie w stanie trypletowym i w stanie singletowym stają się zdegenerowane. Na rysunku tym widać, że kolejność poziomów w metodzie RHF zmienia się, gdy długość kropki przekracza 90 nm. Dla większych kropek stanem podstawowym staje się stan trypletowy, a energia układu w stanie singletowym znacznie odbiega od energii dokładnej. Odwrócenie kolejności położenia energii stanu singletowego i trypletowego stanowi poważny, mający charakter jakościowy błąd metody. W metodzie UHF nie obserwujemy przestawienia energii singlet-tryplet, stan singletowy jest w całym zakresie stanem podstawowym.

Na rysunku 3.1(b) przedstawione są błędy metod RHF i UHF tj. różnice energii układu uzyskane, przy użyciu metody RHF oraz metody UHF i metody dokładnej:

$$\Delta E = E_{RHF,UHF} - E_D \quad (3.8)$$

Błąd metody RHF traktujemy jako energię korelacji (zgodnie z jej definicją). W metodzie RHF błąd energii układu znajdującego się w stanie singletowym rośnie przy zwiększaniu rozmiarów kropki. Natomiast w metodzie UHF błąd energii początkowo rośnie osiągając maksimum dla $Z = 70$ i następnie maleje przy zwiększaniu długości kropki. Dla małych rozmiarów kropki (Z poniżej 60 nm) błędy obu metod dla stanu singletowego są takie same. Obie metody dają identyczny błąd energii, gdy układ znajduje się w stanie trypletowym. Jest on jednak bardzo mały i można stwierdzić, że metody te bardzo dobrze odtwarzają energię tego poziomu.

Tak różne zachowanie się przebiegów błędów energii w ograniczonej i nieograniczonej metodzie Hartree-Focka można wyjaśnić analizując rozkłady dwuelektronowej gęstości prawdopodobieństwa $\rho(z_1, z_2) = |\varphi(z_1, z_2)|^2$. Kontury gęstości prawdopodobieństwa (na płaszczyźnie $z_1 z_2$) dla stanu singletowego przedstawia rysunek 3.2.



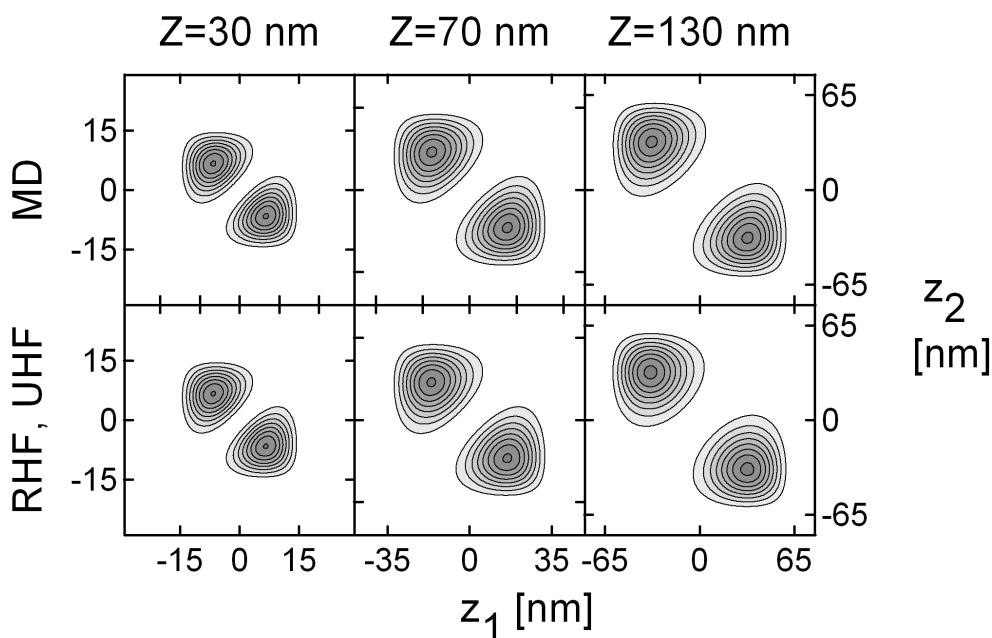
Rys. 3.2 Kontury gęstości prawdopodobieństwa w stanie podstawowym (singletowym) układu dwóch elektronów uzyskane przy użyciu metody dokładnej oraz ograniczonej i nieograniczonej metody Hartree-Focka. Na górze rysunku zaznaczono rozmiary kropki w kierunku podłużnym.

Funkcja falowa stanu singletowego uzyskana przy użyciu metody dokładnej dla kropki o długości 30 nm ma maksimum zlokalizowane w pobliżu środka kropki. Maksimum rozkładu gęstości prawdopodobieństwa w tym stanie jest lekko rozciągnięte na osi $z_1 = -z_2$, co jest spowodowane odpychaniem się elektronów. Przy wzroście długości kropki rośnie rola korelacji elektronowej. Dla kropki o długości 70 nm powoduje ona pojawienie się w rozkładzie gęstości prawdopodobieństwa dwóch maksimumów. Elektrony starają się zlokalizować w przeciwnych krawędziach kropki. Gdy rozmiary kropki są odpowiednio duże, wówczas elektrony zostają rozdzielone przestrzennie (tworzy się tzw. molekula Wignera). O takim układzie mówi się, że jest silnie skorelowany. Ma to na celu podkreślenie, iż korelacja elektronowa odgrywa wtedy kluczową rolę. Przypadek ten jest widoczny na wykresie gęstości prawdopodobieństwa dla kropki o długości 130 nm.

Dla kropki o długości 30 nm rozkłady gęstości w metodzie UHF i w metodzie RHF są całkowicie symetryczne. Asymetria rozkładu gęstości w metodzie UHF pojawia się dla znacznie większych kropek niż w rozwiązaniu dokładnym. Dla kropki o długości 70 nm nadal można wyróżnić jedno maksimum, które jednak pokazuje, że elektrony unikają przebywania w tym

samym obszarze przestrzennym. Gdy długości kropki osiąga 100 nm widoczne stają się dwa maksima, a dla $Z=130$ nm elektrony zostają rozdzielone. W metodzie RHF funkcje jednoelektronowe nie mogą łamać symetrii potencjału uwięzienia (muszą ją odtwarzać) jak to ma miejsce w metodzie UHF. Dlatego prawdopodobieństwo znalezienia obu elektronów w tym samym punkcie przestrzeni jest niezerowe niezależnie od rozmiarów kropki. Wynika stąd, że błędy energii układu dla określonego stanu w metodzie UHF i w metodzie RHF są duże wtedy, gdy ich gęstości prawdopodobieństwa różnią się znacznie od jej rozkładu dokładnego. Złamanie symetrii potencjału zewnętrznego w funkcjach jednoelektronowych w metodzie UHF pozwala na przynajmniej częściowe uwzględnienie korelacji elektronowej.

Na rysunku 3.3 przedstawione są kontury dwuelektronowej gęstości prawdopodobieństwa dla stanu trypletowego dla trzech długości kropki.



Rys. 3.3 Kontury gęstości prawdopodobieństwa w pierwszym stanie wzbudzonym (trypletowym) układu dwóch elektronów uzyskane przy użyciu metody dokładnej oraz ograniczonej i nieograniczonej metody Hartree-Focka. Na górze rysunku zaznaczono rozmiary kropki w kierunku podłużnym.

Z powodu symetrii części przestrzennej funkcji falowej (antysymetryczna względem zamiany elektronów miejscami) rozkład przedstawia całkowicie rozdzielone elektrony nawet dla małych kropek. Przy wzroście długości kropki rośnie odległość pomiędzy elektronami. Porównując rozkłady gęstości prawdopodobieństwa w stanie singletowym (rys. 3.2) i w stanie trypletowym (rys. 3.3) dla kropki o długości 130 nm, łatwo zauważyć ich duże podobieństwo. Oznacza to, że za degenerację energii w tych stanach w zakresie dużych rozmiarów kropki

odpowiada identyczny rozkład gęstości elektronowej. Dwuelektronowe gęstości prawdopodobieństwa w stanie trypletowym uzyskane przy pomocy metod UHF i RHF mają identyczny rozkład jak w metodzie dokładnej. Dlatego też błąd energii układu w stanie trypletowym jest bardzo mały w obu tych metodach.

3.2. Degeneracja singletowych i trypletowych poziomów energetycznych w granicy dużych rozmiarów kropek

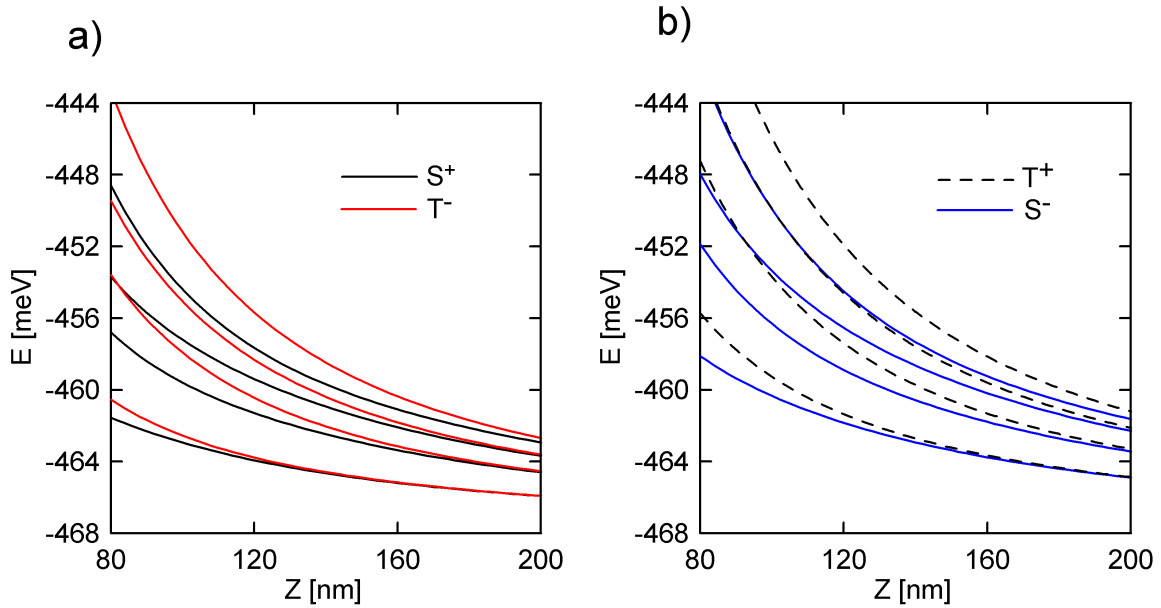
Widoczna na rysunku 3.1(a) degeneracja energii w stanach singletowym i trypletowym w granicy dużych rozmiarów kropki nie jest przypadkowa. Wynika ona z symetrii funkcji falowych układu i pojawia się również dla stanów wzbudzonych. W celu ułatwienia określenia stanów wzbudzonych możemy tak wybrać początek układu (0 osi „z”), żeby potencjał uwięzienia w układzie podwójnej kropki był dany funkcją parzystą: $V_{\text{ext}}(z) = V_{\text{ext}}(-z)$. Również efektywny potencjał oddziaływania elektron-elektron użyty w przybliżeniu jednowymiarowym jest parzystą funkcją argumentu (wzór 2.21). Przy takich założeniach operator parzystości komutuje z hamiltonianem układu (3.3). Dlatego część przestrzena dwuelektronowej funkcji falowej powinna być parzysta lub nieparzysta względem operacji jednoczesnej zmiany znaku współrzędnych obu elektronów. Klasyfikację stanów singletowych i trypletowych ze względu na parzystość dwuelektronowej funkcji falowej przedstawia tabela 3.1.

Tabela 3.1. Grupy symetrii w pojedynczej kropce kwantowej z parzystym potencjałem uwięzienia.

Stan	Oznaczenie grupy	Własności funkcji falowej	
		Zamiana elektronów miejscami	Parzystość całkowita
singletowy parzysty	S^+	$\varphi(z_1, z_2) = +\varphi(z_2, z_1)$	$\varphi(z_1, z_2) = +\varphi(-z_1, -z_2)$
singletowy nieparzysty	S^-	$\varphi(z_1, z_2) = +\varphi(z_2, z_1)$	$\varphi(z_1, z_2) = -\varphi(-z_1, -z_2)$
trypletowy parzysty	T^+	$\varphi(z_1, z_2) = -\varphi(z_2, z_1)$	$\varphi(z_1, z_2) = +\varphi(-z_1, -z_2)$
trypletowy nieparzysty	T^-	$\varphi(z_1, z_2) = -\varphi(z_2, z_1)$	$\varphi(z_1, z_2) = -\varphi(-z_1, -z_2)$

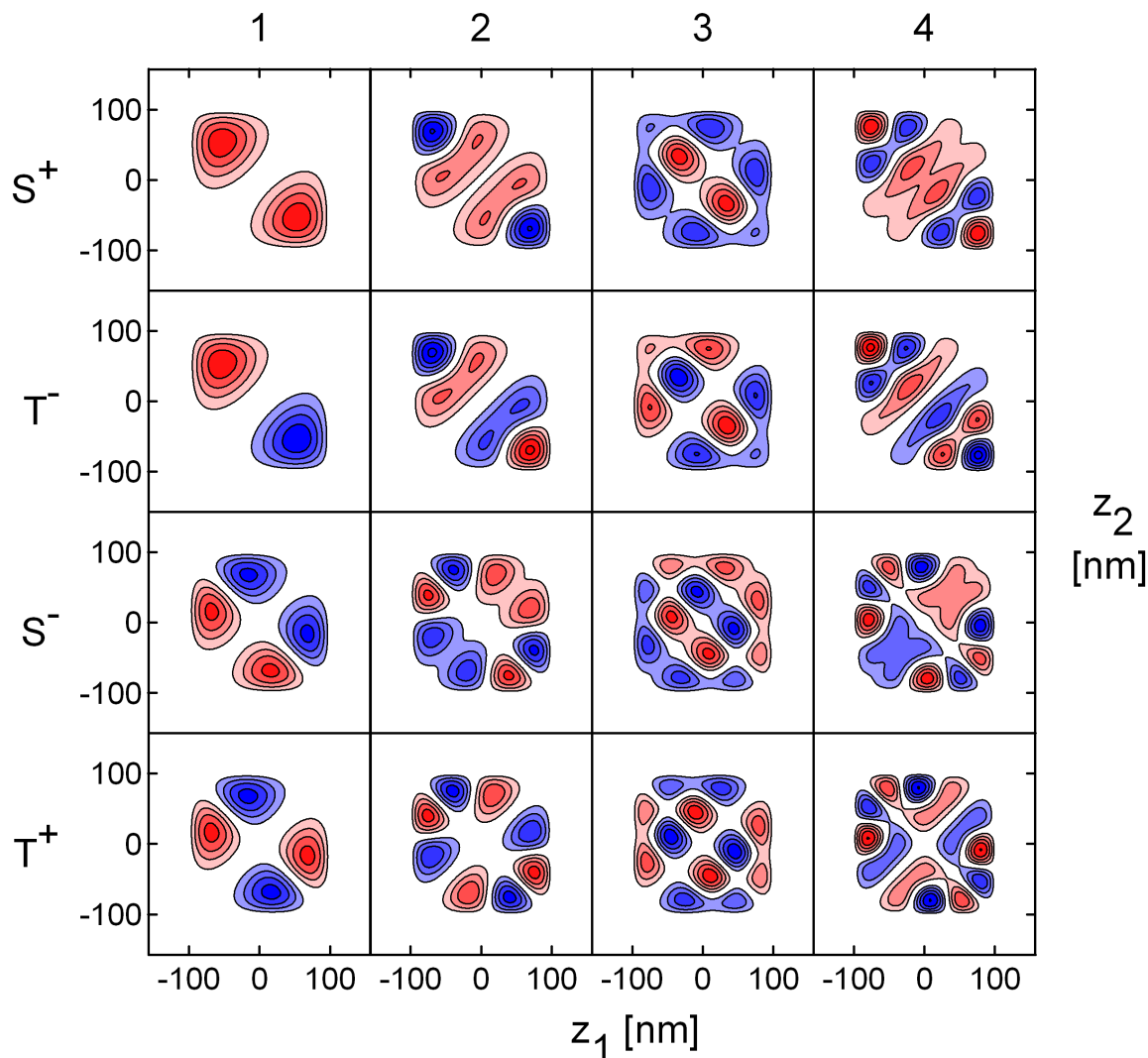
Przy użyciu metody dokładnej przebadano w funkcji długości kropki przebiegi kilku najniższych poziomów energetycznych odpowiadających stanom o określonej symetrii przestrzennej.

Wyniki przedstawione są na rysunkach 3.4(a) i 3.4(b). Okazuje się, że w granicy dużych rozmiarów kropki zdegenerowane są energie par stanów. Pary te tworzą odpowiednio parzyste stany singletowe z nieparzystymi stanami trypletowymi (rys. 3.4(a)) oraz nieparzyste stany singletowe z parzystymi stanami trypletowymi (rys. 3.4(b)).



Rys. 3.4 Zależności energii najniższych poziomów energetycznych układu dwóch elektronów od długości pojedynczej kropki: (a) poziomy energetyczne odpowiadają stanom S^+ i T^- (b) poziomy energetyczne odpowiadają stanom S^- i T^+ .

Degeneracja ta ma źródło w wyspowym rozkładzie gęstości prawdopodobieństwa. Na rysunku 3.5 przedstawione są kontury funkcji falowych odpowiadające poziomom przedstawionym na rysunkach 3.4(a) i 3.4(b) dla kropki o długości 200 nm.



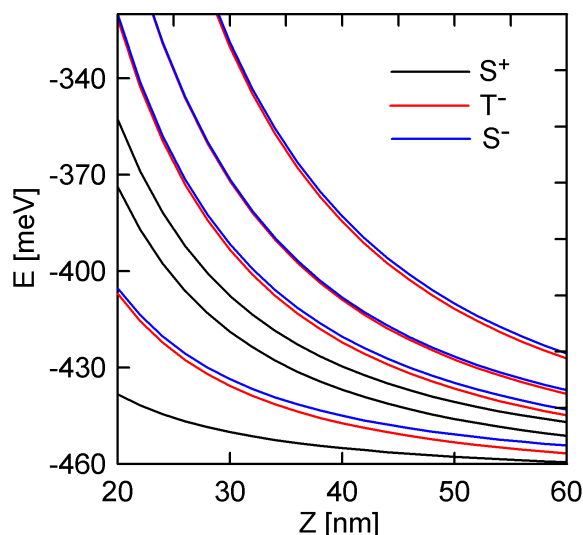
Rys. 3.5 Kontury funkcji falowej układu dwóch elektronów $\varphi(z_1, z_2)$ dla najniższych poziomów energetycznych odpowiadających czterem grupom symetrii w kropce o długości 200 nm. Liczby na górze rysunku numerują kolejne stany w danej grupie (kolejność na skali energii). Kolor czerwony oznacza, że funkcja falowa przyjmuje w danym obszarze wartości większe od zera, a kolor niebieski wskazuje te obszary, w których wartości funkcji falowej są ujemne.

Patrząc na rysunek 3.5 łatwo stwierdzić, które pary poziomów są zdegenerowane lub bliskie degeneracji. Funkcje falowe takiej pary różnią się znakiem funkcji falowej i dla wyższych stanów wzbudzonych również nieznacznie kształtem. Większe podobieństwo wykazują ich gęstości prawdopodobieństwa. Rozkłady dwuelektronowej gęstości prawdopodobieństwa pary zdegenerowanych poziomów energetycznych są ponadto niezmiennicze względem operacji

zmiany znaku obu zmiennych przestrzennych i względem zamiany elektronów miejscami. Dlatego za degenerację energii w stanach singletowych i trypletowych w zakresie dużych rozmiarów kropki odpowiada wyspowy charakter rozkładu gęstości prawdopodobieństwa.

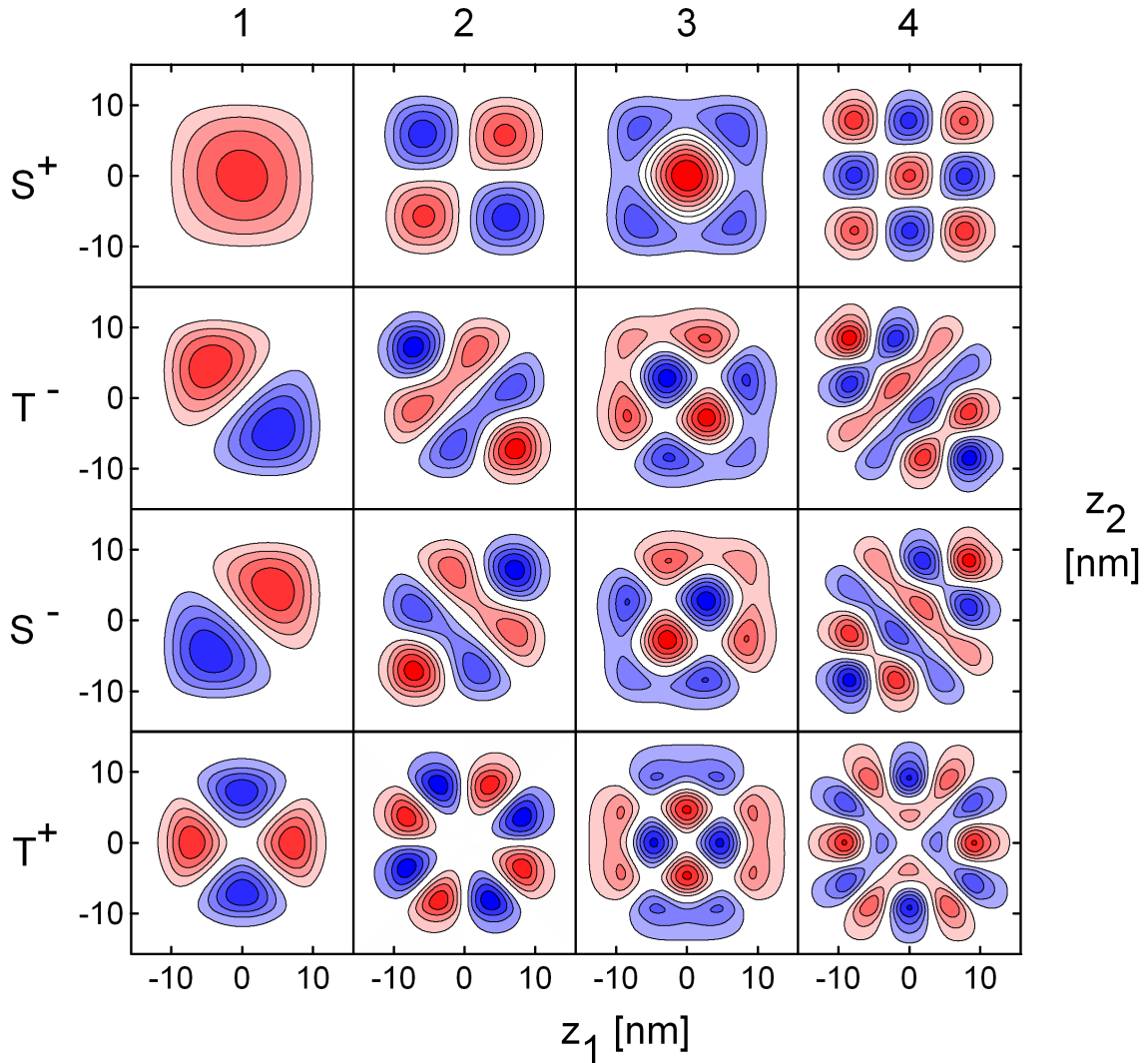
3.3. Degeneracja singletowych i trypletowych poziomów energetycznych w obszarze małych rozmiarów kropek.

Interesująca degeneracja energii par stanów singletowych i trypletowych pojawia się w granicy małych rozmiarów kropki. Energie kilkunastu najniższych poziomów energetycznych układu dwóch elektronów obliczone metodą dokładną w modelu jednowymiarowym w funkcji długości kropki przedstawione są na rysunku 3.6.



Rys. 3.6 Zależności energii najniższych poziomów energetycznych układu dwóch elektronów od długości pojedynczej kropki.

W granicy małych rozmiarów kropki występuje degeneracja energii kolejnych nieparzystych stanów trypletowych z nieparzystymi stanami singletowymi. Pojawienie się tej degeneracji jest dość nieoczekiwane, ale znajduje odzwierciedlenie w rozkładach przestrzennych odpowiadających im funkcji falowych. Kontury funkcji falowych czterech najniższych poziomów energetycznych reprezentujących każdą z czterech grup symetrii w kropce o długości 20 nm przedstawione są na rysunku 3.7.



Rys. 3.7 Kontury funkcji falowej układu dwóch elektronów $\varphi(z_1, z_2)$ dla najniższych poziomów energetycznych odpowiadających czterem grupom symetrii w pojedynczej kropce o długości 20 nm. Liczby na górze rysunku numerują kolejne (w skali energii) stany w danej grupie. Kolor czerwony oznacza, że funkcja falowa przyjmuje w danym obszarze wartości większe od zera, a kolor niebieski wskazuje te obszary, w których jej wartości są ujemne.

Funkcje falowe kolejnych par stanów, których energie ulegają degeneracji, zawierają wiersze 2 i 3. Funkcje falowe odpowiadające kolejnym nieparzystym stanom singletowym można uzyskać z funkcji falowych kolejnych nieparzystych stanów trypletowych po zmianie znaku współrzędnej z_1 lub z_2 . Źródłem tej degeneracji jest symetria pojawiająca się w granicy małych rozmiarów kropki. Wprowadzając współrzędne środka masy:

$$Z = \frac{z_1 + z_2}{2} \quad (3.9)$$

i współrzędne ruchu względnego:

$$z = \frac{z_1 - z_2}{2} \quad (3.10)$$

hamiltonian układu dwóch elektronów można zapisać w nowych zmiennych:

$$\hat{H}(z, Z) = -\frac{\hbar^2}{4m_e^*} \left(\frac{\partial^2}{\partial Z^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) + V_{ext}(Z + z) + V_{ext}(Z - z) + V_{eff}(2z) \quad (3.11)$$

Dla małych rozmiarów kropki energia uwięzienia elektronów w kropce zdecydowanie dominuje nad energią oddziaływania pomiędzy elektronami. Jeśli oddziaływanie to zostanie zaniedbane, wtedy hamiltonian (3.11) staje się niezmienniczy względem zamiany współrzędnej względnej z i współrzędnej środka masy Z . Operacja taka jest równoważna zmianie znaku współrzędnej $z_2 = Z - z$. Symetria ta jest odpowiedzialna za występowanie degeneracji pomiędzy nieparzystymi stanami trypletowymi i nieparzystymi stanami singletowymi w granicy małych rozmiarów kropki.

4. Układ dwóch elektronów w podwójnej pionowej sprzężonej kropce kwantowej o symetrii cylindrycznej

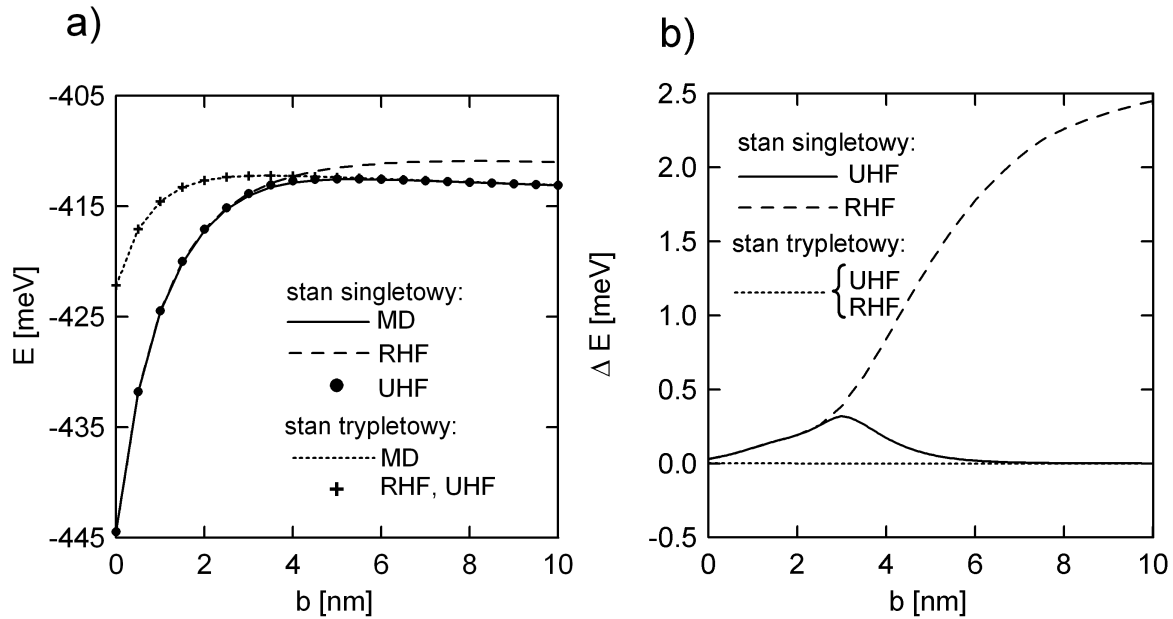
4.1. Wpływ korelacji elektronowej na własności układu dwóch elektronów

Wprowadzony w poprzednim rozdziale model jednowymiarowy wykorzystujący potencjał efektywny został wykorzystany w problemie dwóch elektronów uwięzionych w cylindrycznej podwójnej sprzężonej kropce kwantowej. Układ taki nosi nazwę sztucznej molekuly.

W przybliżeniu masy efektywnej hamiltonian dwóch elektronów w modelu jednowymiarowym ma postać (3.3). Przyjęto, że potencjał uwięzienia rozważanej sprzężonej kropki kwantowej w kierunku podłużnym stanowią dwie identyczne prostokątne studnie o szerokości 12 nm i głębokości 240 meV, rozdzielone barierą o szerokości b . Potencjał uwięzienia bocznego ma postać potencjału oscylatora harmonicznego, w którym odległości pomiędzy kolejnymi poziomami jednoelektronowymi wynoszą $\hbar\omega=6$ meV. Pozostałe parametry materiałowe są następujące: masa efektywna elektronu jest równa $m_e^* = 0.064$ masy elektronu w próżni, a stała dielektryczna wynosi $\epsilon=12.4$.

Problem własny hamiltonianu (3.3) rozwiązywany jest, przy użyciu metody ewolucji w czasie urojonym na dwuwymiarowej siatce określającej położenia obu elektronów (metoda dokładna) oraz ograniczonej i nieograniczonej metody Hartree-Focka. Porównanie rozwiązań tj. energii i dwuelektronowych funkcji falowych otrzymanych w metodzie dokładnej oraz w metodach RHF i UHF pozwala określić rolę, jaką spełnia korelacja elektronowa w sztucznej molekułe.

Przebiegi dwóch najniższych poziomów energetycznych układu dwóch elektronów w funkcji szerokości bariery, uzyskane przy pomocy tych trzech metod, przedstawia rysunek 4.1(a). Poziomy te reprezentują odpowiednio stan singletowy i stan trypletowy. Natomiast rysunek 4.1(b) przedstawia błędy energii dwóch najniższych poziomów energetycznych liczonych metodami RHF i UHF. Błędy energii zostały obliczone zgodnie ze wzorem (3.8).



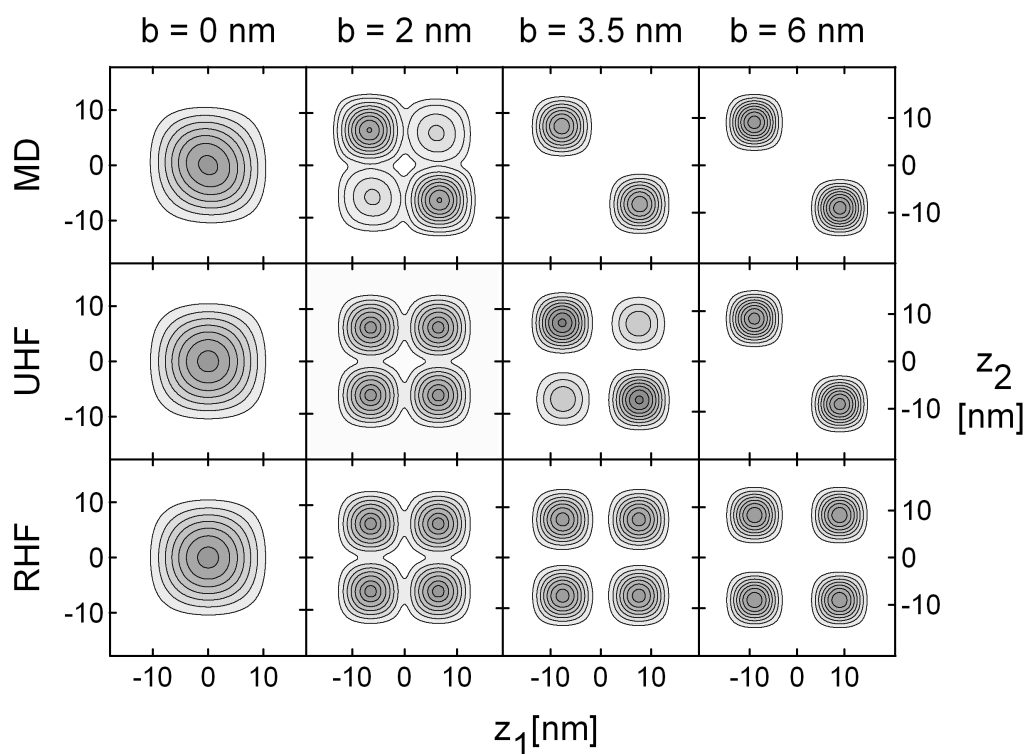
Rys. 4.1 (a) Energie dwóch najniższych poziomów energetycznych układu dwóch elektronów w podwójnej sprężonej kropce kwantowej w funkcji szerokości bariery oddzielającej studnie potencjału. (b) Błędy energii w ograniczonej i nieograniczonej metodzie Hartree-Focka.

Z rachunków wykonanych metodą dokładną wynika, że stan singletowy jest stanem podstawowym, a stan trypletowy pozostaje stanem wzbudzonym. Energie obu stanów są wyraźnie oddzielone, jeżeli szerokość bariery nie przekracza 5 nm. Przy wzroście szerokości bariery maleje różnica energii pomiędzy tymi dwoma poziomami energetycznymi. W rezultacie energia stanu podstawowego staje się dwukrotnie zdegenerowana w zakresie szerokich barier. W metodzie RHF kolejność poziomów na skali energii zmienia się. Gdy szerokość bariery przekracza 4 nm, układ znajdujący się w stanie singletowym ma wyższą energię niż w stanie trypletowym. W odróżnieniu od metody RHF, zmiany kolejności dwóch najniższych poziomów energetycznych nie przewiduje metoda UHF.

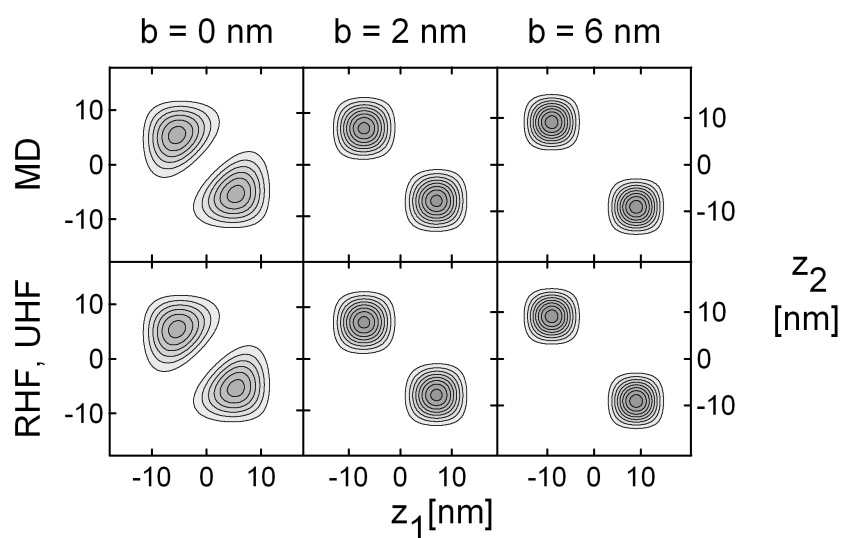
Na rysunku 4.1(b) widać, że błąd energii w stanie singletowym w metodzie RHF rośnie monotonicznie w całym zakresie szerokości barier. Początkowo błąd energii rośnie także w metodzie UHF. Osiąga on jednak maksimum dla $b=3$ nm, następnie maleje do zera w granicy szerokiej bariery. Obie metody bardzo dobrze odtwarzają energię układu w stanie trypletowym. Błąd energii w tym stanie jest równy 0.

Dodatkowe informacje o własnościach układu można uzyskać analizując dwuelektronową gęstość prawdopodobieństwa rozkładu cząstek. Na rysunku 4.2(a) przedstawione są kontury dwuelektronowej gęstości prawdopodobieństwa w stanie singletowym, a rysunek 4.2(b) przedstawia kontury dwuelektronowej gęstości prawdopodobieństwa w stanie trypletowym.

a)



b)



Rys. 4.2 Kontury dwuelektronowej gęstości prawdopodobieństwa sztucznej molekuly

$|\varphi(z_1, z_2)|^2$: (a) stan singletowy (b) stan trypletowy. Rozkłady gęstości uzyskano, przy użyciu metody dokładnej oraz ograniczonej i nieograniczonej metody Hartree-Focka. Na górze rysunków zaznaczono szerokość bariery oddzielającej sprzężone kropki.

Rozkład gęstości prawdopodobieństwa w stanie singletowym uzyskany przy użyciu metody dokładnej w granicy zerowej bariery charakteryzuje się jedynie niewielką asymetrią spowodowaną korelacją elektronową. Wraz z pojawieniem się w układzie bariery oddzielającej studnie, efekty korelacyjne stają się bardziej widoczne. Już dla bardzo wąskiej bariery ($b=2$ nm) w rozkładzie gęstości pojawiają się dwa maksima zlokalizowane odpowiednio w dolnej i w górnej kropce. Dalsze zwiększanie szerokości bariery powoduje zanik sprzężenia tunelowego pomiędzy kropkami, co w połączeniu z silnym odpychaniem się elektronów prowadzi ostatecznie do ich rozdzielenia. Gdy pierwszy elektron zostaje zlokalizowany w dolnej kropce to drugi elektron można znaleźć z dużym prawdopodobieństwem tylko w górnej kropce. I odwrotnie, gdy pierwszy lokalizuje się w górnej kropce, drugi w dolnej kropce.

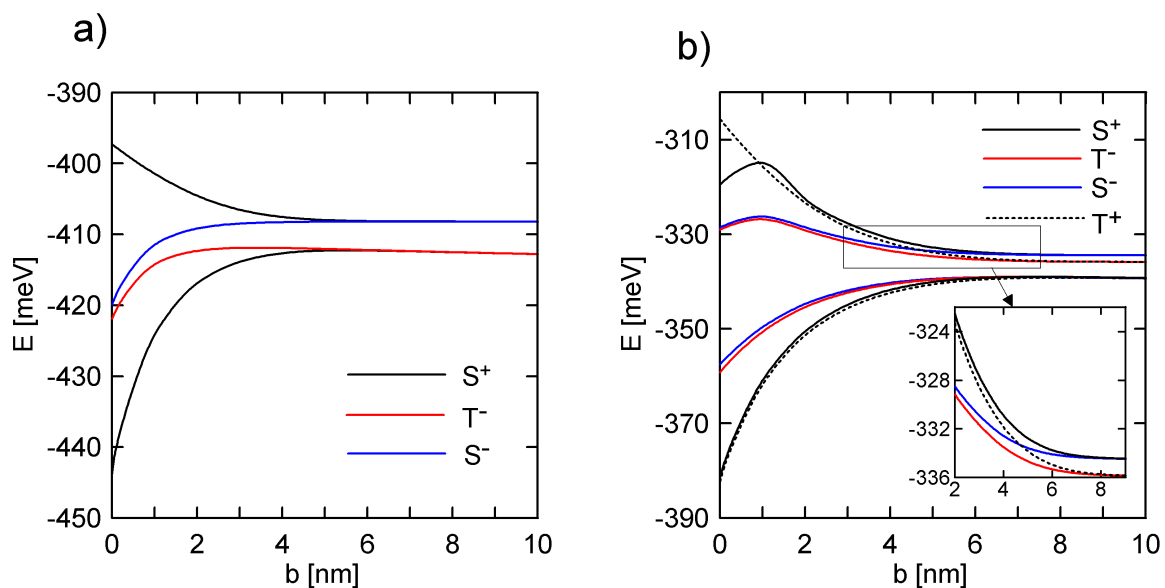
W metodzie UHF i w metodzie RHF rozkłady dwuelektronowej gęstości prawdopodobieństwa są całkowicie symetryczne w granicy zerowej bariery. Na rysunku 4.2(a) widać, że zachowują one także symetrię, gdy bariera jest wąska (2 nm). Dla szerszych barier, w funkcjach jednoelektronowych użytych w metodzie UHF oddziaływanie kulombowskie powoduje złamanie parzystości, którą wykazuje potencjał uwięzienia. Uwzględniona w ten sposób korelacja elektronowa powoduje, że elektrony zaczynają się lokalizować w różnych kropkach. Dzieje się to jednak z pewnym „opóźnieniem” w stosunku do rozwiązania dokładnego. Dla bariery o szerokości 6 nm gęstość prawdopodobieństwa w stanie singletowym uzyskana w metodzie UHF jest identyczna jak w rozwiązaniu dokładnym. Natomiast w metodzie RHF układ pozostaje nieskorelowany nawet w granicy szerokiej bariery, a prawdopodobieństwo znalezienia obu elektronów w tej samej studni jest identyczne jak prawdopodobieństwo znalezienia ich w różnych studniach.

W stanie trypletowym, niezależnie od szerokości bariery, elektrony są rozdzielone przestrzennie ze względu na antysymetrię dwuelektronowej funkcji falowej. Dwuelektronowe gęstości prawdopodobieństwa w tym stanie uzyskane w metodzie Hartree-Focka oraz w metodzie dokładnej są nieodróżnialne. Porównując rozkłady gęstości w stanie singletowym i w stanie trypletowym, widać że stają się one identyczne dla szerokich barier. Oznacza to, że przyczyną degeneracji energii w tych stanach w zakresie szerokich barier jest identyczny („wyspowy”) rozkład ich dwuelektronowych gęstości prawdopodobieństwa.

4.2. Degeneracja singletowych i trypletowych poziomów energetycznych sztucznej molekuly w zakresie szerokich barier.

W rozdziale 3 zostały omówione przyczyny degeneracji energii w dwuelektronowych stanach singletowych i trypletowych w pojedynczej kropce kwantowej w granicy jej skrajnych rozmiarów. Degeneracja w tych stanach pojawia się również w układzie dwóch elektronów uwięzionych w podwójnej sprzężonej kropce kwantowej. Potencjał uwięzienia rozważanej podwójnej kropki kwantowej jest parzystą funkcją argumentu, jeżeli początek układu odniesienia znajduje się w środku bariery oddzielającej studnie. Wykorzystując tę własność można dokonać klasyfikacji stanów dwuelektronowych w sposób identyczny jak zrobiono to w poprzednim rozdziale (tabela 3.1).

Przebiegi najniższych poziomów energetycznych dwóch elektronów uwięzionych w podwójnej kropce w zależności od szerokości bariery przedstawiają rysunki 4.3(a) i 4.3(b).



Rys. 4.3 Energie układu dwóch elektronów w podwójnej sprzężonej kropce kwantowej w funkcji szerokości bariery: (a) niskoenergetyczna część widma (b) przebiegi poziomów odpowiadających wyższym stanom wzbudzonym

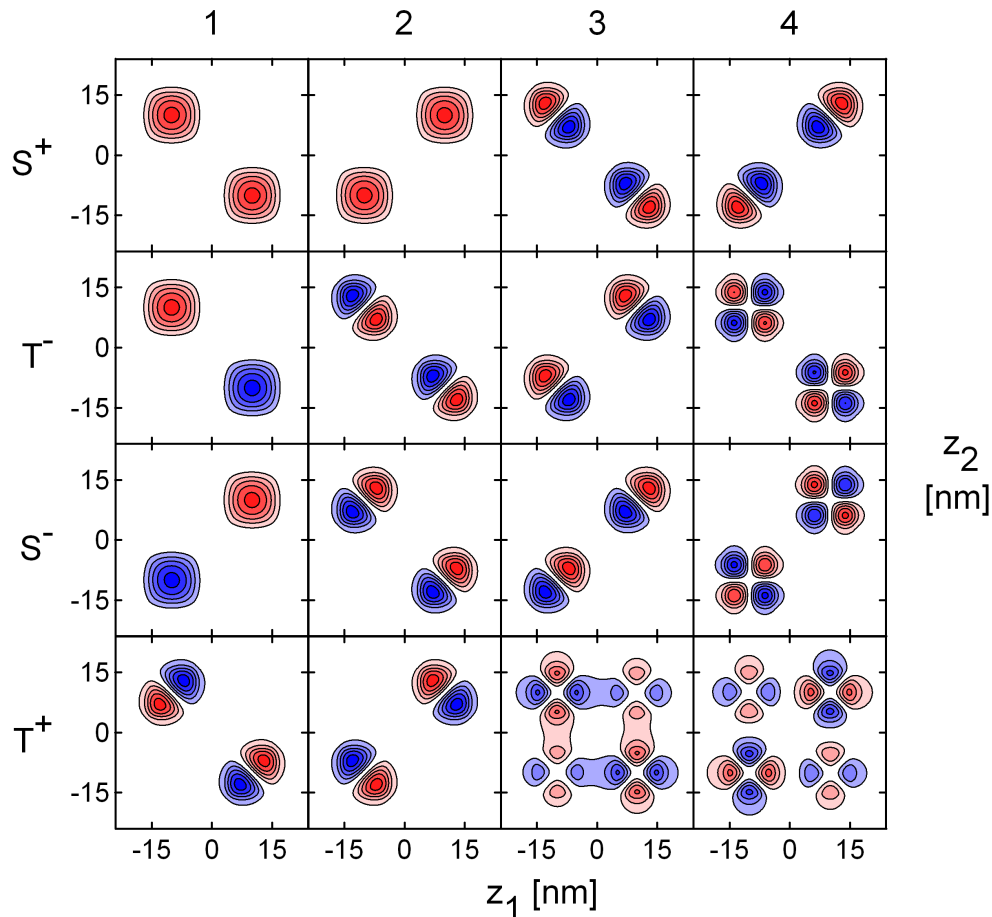
Dla małych szerokości bariery sprzężenie tunelowe pomiędzy studniami jest bardzo silne. Elektrony łatwo tunelują przez barierę i można je z dużym prawdopodobieństwem spotkać w tej samej studni. Dlatego degeneracja pojawiająca się w zakresie wąskich barier ma ten sam charakter, co w pojedynczej kropce kwantowej o małych rozmiarach. Degeneracja pojawia się również w granicy szerokich barier. Jednak jej przyczyny są bardziej złożone niż w przypadku

degeneracji występującej w pojedynczej kropce kwantowej o dużych rozmiarach. Jak widać na rysunkach 4.3(a) i 4.3(b), w zakresie szerokich barier parom zdegenerowanych poziomów mogą odpowiadać nie tylko stan singletowy i stan trypletowy jak to było w przypadku pojedynczej kropki kwantowej, ale również dwa stany singletowe lub dwa stany trypletowe. Ponadto, w podwójnej kropce kwantowej może wystąpić nawet czterokrotna degeneracja, co widać na rysunku 4.3(b).

W zakresie szerokich barier poziomy energetyczne układu dwóch elektronów układają się w pasma. Pasma te oddziela przerwa energetyczna o szerokości kilkudziesięciu meV. Dolne pasmo można zaliczyć do niskoenergetycznej części widma, a górne pasmo do jego części wysokoenergetycznej. Dolną granicę obu pasm wyznaczają zdegenerowane poziomy energetyczne odpowiadające parom stanów, w których elektrony są rozdzielone przestrzennie. Energia tych poziomów dla bardzo szerokich barier maleje jak $\sim 1/b$. Natomiast górną granicę pasm wyznaczają zdegenerowane poziomy energetyczne par stanów, w których elektrony są zlokalizowane w tej samej kropce. Na rysunku 4.3(b) widać, że w wysokoenergetycznej części widma górna granica pasma jest rozszczepiona. Para stanów trypletowych ($3T^-$ i $2T^+$)^a leży niżej w skali energii niż para stanów singletowych ($3S^-$ i $4S^+$). Przyczyną tego rozszczepienia jest oddziaływanie wymienne, które obniża energię układu dwóch elektronów, gdy znajduje się on w stanie trypletowym (elektrony znajdują się w tej samej kropce).

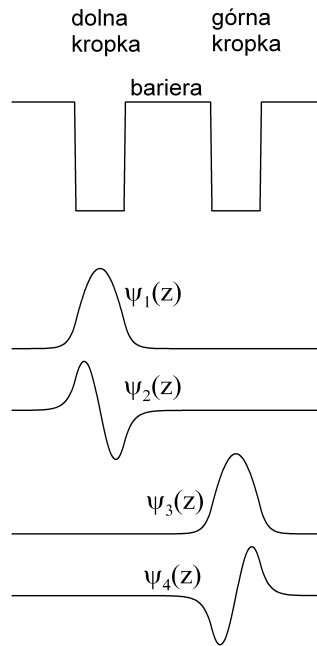
Niektóre degeneracje można wyjaśnić porównując dwuelektronowe funkcje falowe w odpowiednich stanach. Kontury dwuelektronowych funkcji falowych odpowiadających najniższemu poziomom energetycznym w podwójnej sprzężonej kropce kwantowej, w której szerokość bariery oddzielającej studnie wynosi 8 nm przedstawione są na rysunku 4.4.

^a Cyfry od 1 do 4 oznaczają kolejność stanu na skali energii w danej grupie symetrii



Rys. 4.4 Kontury dwuelektronowych funkcji falowych $\varphi(z_1, z_2)$ odpowiadających najniższym poziomom energetycznym dwóch elektronów w podwójnej sprężonej kropce kwantowej z barierą o szerokości 8 nm. Liczby na górze rysunku wyznaczają kolejność poziomów energetycznych w danej grupie symetrii. Kolorami czerwonym i niebieskim oznaczono obszary, w których funkcja falowa przyjmuje odpowiednio dodatnie i ujemne wartości.

Dwuelektronowe funkcje falowe par stanów, których energie ulegają degeneracji mają ten sam (z dokładnością do znaku) rozkład przestrzenny. Na wykresie energii (rys. 4.3(b)) widać, że w jednym przypadku dochodzi jednak aż do czterokrotnej degeneracji. Zdegenerowane są wtedy energie stanów: $1T^+$ i $2S^-$ oraz $3S^+$ i $2T^-$. W każdym z tych czterech stanów, elektrony są rozdzielone barierą i znajdują się w różnych studniach. W celu wyjaśnienia przyczyn tej degeneracji można posłużyć się przybliżeniem jednoelektronowym. W podejściu tym dwuelektronowa funkcja falowa jest konstruowana z funkcji jednoelektronowych. Na rysunku 4.4 widać, że dwuelektronowa funkcja falowa znika pomiędzy kropkami i jest zlokalizowana w każdej ze studni. Zatem do jej konstrukcji można wykorzystać jednoelektronowe rozwiązania dla dolnej i górnej kropki. Jednoelektronowe funkcje falowe użyte do konstrukcji całkowitej dwuelektronowej funkcji falowej przedstawione są na rysunku 4.5.



Rys. 4.5 Schemat potencjału uwięzienia podwójnej kropki kwantowej w kierunku podłużnym oraz funkcje falowe odpowiadające czterem najniższym jednostudniowym rozwiązaniom jednoelektronowego problemu własnego.

Konstrukcje dwuelektronowych funkcji falowych w zakresie szerokich barier, gdy dochodzi do degeneracji energii zawiera tabela 4.1. Dla skrócenia zapisu pominięto w nich czynnik normalizacyjny oraz zastosowano następującą konwencję oznaczeń:

$$\Phi = \Phi(z_1, z_2)$$

$$\Psi_a \Psi_b = \Psi_a(z_1) \Psi_b(z_2) \quad \text{gdzie: } a, b = 1, \dots, 4$$

Tabela 4.1 Pary stanów, których energie są zdegenerowane w granicy szerokich barier i odpowiadające im dwuelektronowe funkcje falowe będące kombinacją czterech najniższych energetycznie rozwiązań jednoelektronowych.

Pary zdegenerowanych stanów		Dwuelektronowa funkcja falowa
1	$1S^+$ $1T^-$	$\phi_{1S^+} = \psi_1\psi_3 + \psi_3\psi_1$ $\phi_{1T^-} = \psi_1\psi_3 - \psi_3\psi_1$
2	$1S^-$ $2S^+$	$\phi_{1S^-} = \psi_1\psi_1 - \psi_3\psi_3$ $\phi_{2S^+} = \psi_1\psi_1 + \psi_3\psi_3$
3	$1T^+$ $2S^-$	$\phi_{1T^+} = [\psi_1\psi_4 - \psi_4\psi_1] + [\psi_2\psi_3 - \psi_3\psi_2]$ $\phi_{2S^-} = [\psi_1\psi_4 + \psi_4\psi_1] + [\psi_2\psi_3 + \psi_3\psi_2]$
4	$3S^+$ $2T^-$	$\phi_{3S^+} = [\psi_1\psi_4 + \psi_4\psi_1] - [\psi_2\psi_3 + \psi_3\psi_2]$ $\phi_{2T^-} = [\psi_1\psi_4 - \psi_4\psi_1] - [\psi_2\psi_3 - \psi_3\psi_2]$
5	$2T^+$ $3T^-$	$\phi_{2T^+} = [\psi_1\psi_3 - \psi_3\psi_1] - [\psi_2\psi_4 - \psi_4\psi_2]$ $\phi_{3T^-} = [\psi_1\psi_3 - \psi_3\psi_1] + [\psi_2\psi_4 - \psi_4\psi_2]$
6	$3S^-$ $4S^+$	$\phi_{3S^-} = [\psi_1\psi_3 + \psi_3\psi_1] - [\psi_2\psi_4 + \psi_4\psi_2]$ $\phi_{4S^+} = [\psi_1\psi_3 + \psi_3\psi_1] + [\psi_2\psi_4 + \psi_4\psi_2]$

Dwuelektronowe funkcje falowe par stanów, których energie są zdegenerowane lub bliskie degeneracji stanowią kombinacje tych samych iloczynów $\psi_a\psi_b$. Obliczając wartość oczekiwaną energii oddziaływania w układzie $\langle \phi | V_{\text{eff}}(z_{12}) | \phi \rangle$ można w prosty sposób pokazać, że jest ona równa całce oddziaływania kulombowskiego, gdy elektrony znajdują się w różnych kropkach. Znika wówczas całka wymiany, co spowodowane jest brakiem przekrywania się określonych funkcji jednoelektronowych. W takim przypadku energia układu nie zależy od symetrii spinowej dwuelektronowej funkcji falowej. Przykładem takiej sytuacji jest dwukrotna degeneracja energii w stanie podstawowym oraz czterokrotna degeneracja energii w stanach oznaczonych w tabeli 4.1 jako pary 3 i 4. Oddziaływanie wymienne staje się istotne, gdy elektrony są zlokalizowane w tej samej studni. Jest ono przyczyną rozszczepienia singletowych i trypletowych poziomów energetycznych oznaczonych w tabeli 4.1 jako pary 5 i 6. Widoczna w

tym przypadku degeneracja energii pary stanów trypletowych oraz pary stanów singletowych spowodowana jest wyłącznie istnieniem symetrii przestrzennej. Natomiast symetria spinowa zapobiega powstaniu degeneracji wyższego stopnia.

5. Układ kilku elektronów w podwójnej sprzężonej kropce kwantowej

Sztuczne atomy i molekuly są obiektami, które nie tylko wykazują szereg ciekawych właściwości fizycznych, ale pozwalają także testować różne modele teoretyczne lub metody obliczeniowe. Często do opisu własności wieloelektronowych kropek kwantowych wykorzystuje się metody pola średniego. Ich zastosowanie pozwala sprowadzić problem wieloelektronowy do problemu jednoelektronowego, w którym oddziaływanie pomiędzy elektronami opisywane jest przy pomocy samouzgodnionego potencjału efektywnego. Spośród wszystkich metod pola średniego największą wydajnością obliczeniową charakteryzują się metody funkcjonałów gęstości. Jedną z nich jest metoda LSDA (*Local Spin Density Approximation*). W przypadku kropek kwantowych o symetrycznym potencjale uwięzienia zewnętrznego jest ona zazwyczaj stosowana w wersji, w której narzucona jest symetria potencjału uwięzienia na jednoelektronowe funkcje falowe. Jest to tzw. ograniczona metoda LSDA (R-LSDA).

Symetrię zgodną z symetrią potencjału zewnętrznego powinna posiadać całkowita wieloelektronowa funkcja falowa. Funkcje jednoelektronowe tej symetrii nie muszą wykazywać i w rezultacie potencjały efektywne mogą różnić się symetrią od potencjału zewnętrznego. Ograniczona metoda LSDA dobrze oszacowuje tylko energie układów zawierających wiele elektronów. Natomiast zastosowanie jej w układach kilkuelektronowych może dawać gorsze oszacowanie energii całkowitej określonych konfiguracji elektronowych. W efekcie może to prowadzić do otrzymania nieprawidłowej konfiguracji stanu podstawowego [68]. Wada ta usunięta została w tzw. nieograniczonej metodzie LSDA (U-LSDA), w której jednoelektronowe funkcje falowe mogą łamać symetrie zewnętrznego potencjału uwięzienia. Dzięki temu uzyskuje się także lepsze niż w R-LSDA oszacowanie energii układu [69].

W dalszej części rozdziału przedstawione są wyniki uzyskane w metodzie U-LSDA dla dwóch, trzech i czterech elektronów uwięzionych w podwójnej sprzężonej kropce kwantowej o symetrii cylindrycznej. Potencjał uwięzienia kropki w kierunku podłużnym stanowią dwie identyczne prostokątne studnie potencjału o szerokości $Z=12$ nm i głębokości $V_0=200$ meV rozdzielone barierą. Natomiast w kierunku poprzecznym do osi kropki ma on charakter potencjału oscylatora harmonicznego, dla którego odległości pomiędzy poziomami energetycznymi elektronu wynoszą $\hbar\omega = 10$ meV. W całym obszarze sprzężonej kropki wartość stałej dielektrycznej jest równa $\epsilon=12.4$ a masa efektywna elektronu wynosi $m_e^* = 0.067$ jak dla arsenku galu.

Porównanie wyników otrzymanych w metodzie U-LSDA z wynikami dokładnymi pozwala określić warunki, w jakich funkcje falowe użyte w U-LSDA odtwarzają właściwą symetrię potencjału uwięzienia. W układzie dwóch elektronów rozwiązanie dokładne uzyskano dokonując najpierw separacji ruchu środka masy i ruchu względnego, a następnie rozwiązując numerycznie równanie własne dla ruchu względnego. Natomiast dla układu trzech i czterech elektronów uwięzionych w podwójnej kropce wykonano obliczenia stosując metodę mieszania konfiguracji. Funkcja falowa układu otrzymana w tej metodzie zawiera pełną informację o korelacji w kierunku podłużnym, dlatego wyniki w niej uzyskane można uznać za dokładne.

5.1. Metody użyte do rozwiązania problemu N-elektronowego

5.1.1. Separacja ruchu środka masy i ruchu względnego

W układzie dwóch elektronów uwięzionych w kropce o parabolicznym potencjale uwięzienia bocznego, można odseparować ruch środka masy w kierunku poprzecznym od ruchu w kierunku podłużnym i ruchu względnego [A2]. Hamiltonian układu w przybliżeniu masy efektywnej można wtedy wyrazić jako sumę hamiltonianu opisującego ruch środka masy w kierunku poprzecznym:

$$\hat{H}_{cm}(\vec{\rho}_{cm}) = -\frac{\hbar^2}{2M} \nabla_{\vec{\rho}_{cm}}^2 + \frac{M\omega^2}{2} \rho_{cm}^2 \quad (5.1)$$

oraz hamiltonianu opisującego ruch względny i ruch w kierunku podłużnym:

$$\begin{aligned} \hat{H}_{wz}(\vec{\rho}_{12}, z_1, z_2) = & -\frac{\hbar^2}{m_e^*} \nabla_{\vec{\rho}_{12}}^2 + \frac{m_e^* \omega^2}{4} \rho_{12}^2 - \frac{\hbar^2}{2m_e^*} \left(\frac{\partial^2}{\partial z_1^2} + \frac{\partial^2}{\partial z_2^2} \right) \\ & + V_z(z_1) + V_z(z_2) + \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_o r_{12}} \end{aligned} \quad (5.2)$$

gdzie: $\nabla_{\bar{\rho}}^2$ oznacza laplasjan dla kierunku poprzecznego, $\bar{\rho}_{cm} = (x_1 + x_2, y_1 + y_2)/2$ oraz $\bar{\rho}_{12} = (x_1 - x_2, y_1 - y_2)$ oznaczają współrzędne środka masy oraz współrzędne względne w kierunku poprzecznym, a $V_z(z)$ jest potencjałem uwięzienia w kierunku podłużnym. Problem własny operatora \hat{H}_{cm} posiada rozwiązanie analityczne w postaci funkcji falowych dwuwymiarowego oscylatora harmonicznego [70]. Stanom własnym odpowiadają energie:

$$E_{cm} = (2n + |\ell| + 1)\hbar\omega \quad (5.3)$$

gdzie: n i ℓ są odpowiednio radialną oraz orbitalną liczbą kwantową.

Natomiast problem własny hamiltonianu \hat{H}_{wz} nie posiada rozwiązań w postaci analitycznej i dlatego rozwiązywany jest on numerycznie. Po zapisaniu hamiltonianu \hat{H}_{wz} we współrzędnych cylindrycznych można odseparować zależność kątową przypisując jego stanom własnym określoną z-ową składową momentu pędu. Zmniejsza to liczbę zmiennych niezależnych do trzech. Po dokonaniu separacji części kątowej, problem własny rozwiązywany jest na trójwymiarowej siatce dyskretnej przy użyciu metody czasu urojonego [65]. Rozwiązanie numeryczne można uzyskać z dowolnie zadaną dokładnością, dzięki czemu wyniki uzyskane przy pomocy separacji ruchu środka masy i ruchu względnego można traktować jako dokładne.

5.1.2. Metoda mieszania konfiguracji.

W problemie 3 oraz 4 elektronów zastosowanie metody separacji ruchu środka masy i ruchu względnego nie pozwala na jego bezpośrednie rozwiązanie numeryczne z powodu dużej liczby zmiennych niezależnych. Dlatego w celu uzyskania dokładnego rozwiązania problemu własnego układu zawierającego więcej niż dwa elektrony, zastosowano metodę mieszania konfiguracji. W metodzie tej hamiltonian układu N -elektronowego jest diagonalizowany w bazie, której elementami są wieloelektronowe funkcje falowe. Mają one postać pojedynczych wyznaczników Slatera, które konstruowane są z różnych konfiguracji jednoelektronowych funkcji falowych. Konfiguracje te dobierane są tak, aby uwzględnione zostały efekty korelacyjne w kierunku podłużnym (oś kropki). Rozważmy hamiltonian układu N -elektronowego:

$$\hat{H} = \sum_{i=1}^N \hat{h}(\vec{r}_i) + \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0} \sum_{i=1}^N \sum_{j>i}^N \frac{1}{r_{ij}} \quad (5.4)$$

w którym operator \hat{h} jest hamiltonianem jednoelektronowym:

$$\hat{h} = \hat{h}_z + \hat{h}_{x,y} \quad (5.5)$$

Ponieważ daje się on przedstawić w postaci sumy dwóch składników:

$$\hat{h}_z = -\frac{\hbar^2}{2m_e^*} \frac{d^2}{dz^2} + V_z(z) \quad (5.6)$$

oraz

$$\hat{h}_{x,y} = -\frac{\hbar^2}{2m_e^*} \left(\frac{d^2}{dx^2} + \frac{d^2}{dy^2} \right) + \frac{m_e^* \omega'^2}{2} (x^2 + y^2) \quad (5.7)$$

funkcje własne hamiltonianu jednoelektronowego (5.5) można zapisać w postaci iloczynu funkcji będących rozwiązaniami problemu własnego dla kierunku podłużnego $f_v(z)$ i dla kierunku poprzecznego $g_\mu(x, y)$:

$$\psi_\alpha(\vec{r}) = f_v(z) g_\mu(x, y) \quad (5.8)$$

Funkcje własne f_v otrzymano w wyniku numerycznej diagonalizacji macierzy hamiltonianu (5.6) na siatce dyskretnej [71].

Uzyskane w metodzie Mieszania Konfiguracji funkcje falowe odpowiadające najniższym poziomom energetycznym układu kilku elektronów powinny odtwarzać wszystkie symetrie dokładnej funkcji falowej dla kierunku podłużnego. Aby w rozważanym przypadku założenie to było spełnione, wystarczy użyć do konstrukcji wyznaczników Slatera jedynie czterech najniższych energetycznie rozwiązań problemu własnego operatora (5.6). Ze względu na małą szerokość pojedynczej studni (12 nm) różnice energii pomiędzy kolejnymi poziomami wzbudzonymi elektronu są na tyle duże, że ich wkład do rozwiązania jest zanedbywalny i można je pominąć w obliczeniach. W ten sposób liczba elementów w bazie zostaje ograniczona. Pomimo to funkcje falowe układu uzyskane w metodzie Mieszania Konfiguracji zawierają pełną informację o korelacji elektronowej dla kierunku podłużnego.

Funkcje falowe g_μ są rozwiązaniami dla dwuwymiarowego oscylatora harmonicznego o częstości ω' . W ogólności wartość parametru ω' może być mniejsza od ω ze względu na

optymalizację energii całkowitej. Wariacja tego parametru obniża energię oddziaływania pomiędzy elektronami uwięzionymi w tej samej studni.

W rachunkach ograniczono się do użycia funkcji falowych stanów o momencie pędu równym 0:

$$g_0 = \sqrt{\frac{2\beta}{\pi}} \exp(-\beta(x^2 + y^2)) \quad (5.9)$$

oraz momencie pędu równym $\pm \hbar$:

$$g_{\pm 1} = \frac{2\beta}{\sqrt{\pi}} (x \pm iy) \exp(-\beta(x^2 + y^2)) \quad (5.10)$$

gdzie: $\beta = \frac{m_e^* \omega'}{2}$

Funkcje falowe $f_\nu(z)$ i $g_\mu(x, y)$ w połączeniu z dwoma stanami własnymi z-owej składowej operatora spinu tworzą bazę 24 jednoelektronowych ortogonalnych spinorbitali. Stany kilkuelektronowe są stanami własnymi z-owej składowej całkowitego momentu pędu, operatora parzystości oraz operatora kwadratu całkowitego spinu \hat{S}^2 i z-owej składowej całkowitego spinu \hat{S}_z . Spośród wszystkich wyznaczników Slatera $24!/((24-N)!N!)$, które mogą być skonstruowane z tych 24 spinorbitali wybierane są tylko te, które posiadają wymaganą parzystość przestrzenną i są stanami własnymi operatora \hat{S}_z . Stany odpowiadające różnym wartościom własnym operatora \hat{S}^2 można zidentyfikować badając ich degenerację w odniesieniu do wartości własnych operatora \hat{S}_z .

Funkcje bazowe używane są do wyliczenia elementów macierzowych oddziaływania kulombowskiego, które mają postać:

$$C_{abcd} = \int d^3\vec{r}_1 d^3\vec{r}_2 \psi_a^*(\vec{r}_1) \psi_b^*(\vec{r}_2) \frac{1}{r_{12}} \psi_c(\vec{r}_1) \psi_d(\vec{r}_2) \quad (5.11)$$

gdzie: a,b,c,d= -1,0,1 są magnetycznymi liczbami kwantowymi, które odpowiadają stanom jednoelektronowym (wzory 5.9 i 5.10).

Wykonanie całkowania wyrażenia (5.11) po zmiennych x_1, y_1, x_2, y_2 w sposób pokazany w rozdziale 2 pozwala przekształcić je do prostszej postaci:

$$C_{abcd} = \int dz_1 dz_2 f_a(z_1) f_b(z_2) V_{eff}^{abcd}(z_{12}) f_c(z_1) f_d(z_2) \quad (5.12)$$

którego wartość obliczono numerycznie. Postać efektywnego kwazijednowymiarowego potencjału oddziaływania kulombowskiego V_{eff}^{abcd} zależy od użytych jednoelektronowych funkcji falowych dla kierunku poprzecznego. Dla funkcji falowych danych wzorami (5.9) i (5.10) potencjał ten można otrzymać wykonując całkowanie oddziaływania kulombowskiego (5.11) po zmiennych poprzecznych w sposób pokazany w rozdziale 2. W rachunkach użyto następujących postaci potencjału efektywnego:

$$V_{eff}^{0000}(z) = \sqrt{\beta\pi} \operatorname{erfcx}(\sqrt{\beta z^2}) \quad (5.13)$$

$$V_{eff}^{1010}(z) = \sqrt{\beta\pi} (3/4 - \beta z^2 / 2) \operatorname{erfcx}(\sqrt{\beta z^2}) + \beta z / 2 \quad (5.14)$$

$$V_{eff}^{1001}(z) = \sqrt{\beta\pi} (1/4 + \beta z^2 / 2) \operatorname{erfcx}(\sqrt{\beta z^2}) - \beta z / 2 \quad (5.15)$$

$$V_{eff}^{1(-1)1(-1)}(z) = \sqrt{\beta\pi} (11/16 - \beta z^2 / 4 + \beta^2 z^4 / 4) \operatorname{erfcx}(\sqrt{\beta z^2}) + 3\beta z / 8 - \beta^2 z^3 / 4 \quad (5.16)$$

$$V_{eff}^{1(-1)(-1)1}(z) = \sqrt{\beta\pi} (11/16 + 3\beta z^2 / 4 + \beta^2 z^4 / 4) \operatorname{erfcx}(\sqrt{\beta z^2}) - 5\beta z / 8 - \beta^2 z^3 / 4 \quad (5.17)$$

gdzie: $\operatorname{erfcx}(x) = \exp(x^2) \operatorname{erfc}(x)$, a $\operatorname{erfc}(x)$ jest uzupełniającą funkcją błędu.

5.1.3. Metoda LSDA.

W przybliżeniu LSDA równanie własne operatora energii elektronu^a znajdującego się w stanie kwantowym μ , w efektywnych jednostkach atomowych

($Ha^* = Ha m_e^*/\epsilon^2$, $a_b^* = a_b \epsilon/m_e^*$) ma postać [72,73]:

$$\left(-\frac{1}{2}\nabla^2 + V_{eff}^\mu\right)\psi_\mu = \epsilon_\mu\psi_\mu \quad (5.18)$$

Hamiltonian jednoelektronowy (5.18) nie zawiera jawnej zależności od spinu, dlatego można odseparować część spinową od części przestrzennej. Ponieważ potencjał uwięzienia bocznego ma symetrię cylindryczną, przyjęto że rozwiązania jednoelektronowe posiadają określoną z-ową składową momentu pędu. Jednoelektronową funkcję falową będącą rozwiązaniem równania 5.18 i spełniającą powyższe założenia można przedstawić w postaci:

$$\psi_{nm\sigma} = \varphi_n(r, z)e^{im\phi} \chi_\sigma \quad (5.19)$$

gdzie: n - numeruje kolejność poziomów energetycznych o określonej magnetycznej i spinowej liczbie kwantowej, $m=0, \pm 1, \pm 2, \dots$ jest magnetyczną liczbą kwantową, σ jest rzutem spinu elektronu na oś z , a zmienne r i z oznaczają radialną i z -ową składową położenia elektronu.

Rzut całkowitego spinu układu N elektronów na oś z jest równy: $S_z = \sum_{i=1}^N \sigma_i$ a rzut całkowitego

momentu pędu: $M_z = \sum_{i=1}^N m_i$ (w jednostkach \hbar).

Potencjał efektywny we wzorze (5.18) jest sumą potencjału uwięzienia $V_{ext}(\vec{r})$, potencjału Hartree $V_H([\rho]; \vec{r})$ oraz potencjału wymiennie-korelacyjnego $V_{xc}^\sigma([\rho_\uparrow, \rho_\downarrow]; \vec{r})$. W rachunkach uwzględniono dodatkowo poprawkę ograniczającą samooddziaływanie elektronu, której sposób obliczania przyjęto zgodnie z pracą [74]. Potencjał efektywny dla danego spin-orbitalu można zapisać w następującej postaci:

^a Równanie to zwane jest często równaniem Kohna-Shama

$$V_{eff}^{nm\sigma}(\vec{r}) = \left\{ V_{ext}(\vec{r}) + V_H([\rho]; \vec{r}) + V_{xc}^{\sigma}([\rho_{\uparrow}, \rho_{\downarrow}]; \vec{r}) \right\} - \left\{ V_{xc}^{\sigma}([\rho_{nm\sigma}, 0]; \vec{r}) + V_H([\rho_{nm\sigma}]; \vec{r}) \right\} \quad (5.20)$$

gdzie: $\rho_{nm\sigma}(\vec{r}) = |\varphi_{nm\sigma}(\vec{r})|^2$ jest gęstością prawdopodobieństwa dla elektronu o spinie σ

znajdującego się w stanie μ , $\rho_{\sigma}(\vec{r}) = \sum_{n,m} \rho_{nm\sigma}$ jest gęstością elektronową dla rzutu spinu σ

na oś z, a $\rho(\vec{r}) = \rho_{\uparrow}(\vec{r}) + \rho_{\downarrow}(\vec{r})$ jest całkowitą gęstością elektronową układu.

Energia całkowita wyraża się wzorem:

$$E = \sum_{n,m,\sigma} \left(\varepsilon_{nm\sigma} - \langle \varphi_{nm\sigma} | V_{eff}^{nm\sigma}(\vec{r}) | \varphi_{nm\sigma} \rangle \right) + \int d^3\vec{r} \rho(\vec{r}) \varepsilon_{xc}[\rho_{\uparrow}, \rho_{\downarrow}] \quad (5.21)$$

gdzie: $\varepsilon_{xc}[\rho_{\uparrow}, \rho_{\downarrow}]$ oznacza energię wymiennie-korelacyjną przypadającą na jeden elektron. W

metodzie LSDA można ją przybliżyć zamieniając na sumę energii wymiennej i energii

korelacyjnej: $\varepsilon_{xc} = \varepsilon_x + \varepsilon_c$. Ponieważ musi być jednocześnie spełniona relacja:

$$V_{xc}^{\sigma} = \frac{\partial [\rho \varepsilon_{xc}]}{\partial \rho_{\sigma}},$$

potencjał wymiennie-korelacyjny można potraktować jako sumę potencjału

wymiennego i potencjału korelacyjnego. W rachunkach energię wymiany przypadającą na jeden

elektron obliczano według wzoru: $\varepsilon_x = -0.9305 \rho_{\sigma}^{1/3}$. Natomiast potencjał korelacyjny i

energję korelacyjną wyznaczano w sposób zaproponowany przez Perdew i in. z parametryzacją podaną przez Ceperleya i in. [74, 75].

Potencjał Hartree otrzymywany jest w wyniku numerycznego rozwiązania równania Poissona na dwuwymiarowej siatce dyskretnej (r_i, z_j) metodą relaksacyjną. Rozmiar siatki (pułła obliczeniowego) w kierunku r i z został tak dobrany, by wartość modułu funkcji falowej zniknęła na jej brzegach z powodu istnienia barier utworzonych przez potencjał uwięzienia. Dzięki znikaniu funkcji falowej poza obszarem siatki można wyznaczyć warunek brzegowy dla równania Poissona poprzez bezpośrednie całkowanie po jej wnętrzu:

$$V_H(r, z) \Big|_{\substack{r=R_{\max} \\ \text{lub} \\ z=\pm Z_{\max}}} = \int_0^{R_{\max}-\Delta r} dr' r' \int_{-Z_{\max}+\Delta z}^{Z_{\max}-\Delta z} dz' \int_0^{2\pi} d\phi \frac{\rho(r', z')}{\sqrt{r^2 + r'^2 - 2rr' \cos \phi + (z - z')^2}} \quad (5.22)$$

Jako dodatkowy warunek na osi ($r=0$) przyjęto zerowanie się pochodnej potencjału Hartree.

Jednoelektronowy problem własny (5.18) rozwiązywany jest numerycznie przy użyciu metody czasu urojonego na dwuwymiarowej siatce dyskretnej. Jednoczesne zastosowanie tej metody obliczeniowej wraz z ortogonalizacją Schmidta umożliwia uzyskanie wzbudzonych stanów jednoelektronowych.

W dalszej części rozdziału konfiguracje elektronowe w metodzie LSDA zapisywane są w postaci, w której wyszczególnione są wszystkie zajmowane przez elektrony orbitale. Liczba kwantowa n może przyjmować kolejno wartości: 1, 2, 3... i numeruje kolejne poziomy energetyczne o określonej z -owej składowej momentu pędu. Tę ostatnią wielkość oznaczono używając małych liter: s, p, d, .. ($l=0, 1, 2, \dots$ w jednostkach \hbar). Przykładowo konfiguracja $1s^2$ oznacza dwuelektronowy stan singletowy z $M_z=0$.

Jeżeli początek układu odniesienia („0” na osi z) zostanie umieszczony w środku bariery oddzielającej sprzężone kropki, wtedy potencjał uwięzienia jest symetryczny względem zmiany znaku z -owej współrzędnej. Operator parzystości komutuje więc z hamiltonianem układu, a całkowita funkcja falowa powinna posiadać określoną parzystość. Jednak nie wszystkie symetrie układu wieloelektronowego przenoszą się na funkcje jednoelektronowe. W metodzie LSDA efektywny potencjał oddziaływania elektron-elektron w równaniu (5.18) może nie posiadać określonej symetrii. W takim przypadku nie będą jej posiadać również jednoelektronowe funkcje falowe. Obniżenie symetrii tych funkcji związane jest z uwzględnieniem części efektów korelacyjnych i zazwyczaj prowadzi do obniżenia energii całkowitej obliczonej w metodzie LSDA [69].

W sprzężonej kropce kwantowej, dla której wykonywane są rachunki, silny potencjał uwięzienia bocznego ($\hbar\omega = 10$ meV) znacznie ogranicza wpływ korelacji elektronowej na kształt funkcji jednoelektronowych w kierunku poprzecznym. Można więc założyć, że oddziaływanie kulombowskie tylko nieznacznie zaburza kształt jednoelektronowych funkcji falowych w tym kierunku. Funkcje te mogą jednak łamać symetrię potencjału uwięzienia w kierunku podłużnym.

Symetrie rozwiązań jednoelektronowych muszą wpływać na własności wieloelektronowej funkcji falowej, ponieważ są one używane do jej konstrukcji. W celu określenia wpływu efektów korelacyjnych na jednoelektronowe własności funkcji falowej

układu posłużono się dwiema wielkościami pomocniczymi tj.: parzystością jednoelektronową oraz prawdopodobieństwem względnym. Wartości oczekiwane operatora parzystości jednoelektronowej oraz prawdopodobieństwa względne uzyskane w metodzie LSDA można następnie porównać z wynikami dokładnymi. Takie porównanie pozwala sprawdzić w jakim stopniu wieloelektronowa funkcja falowa układu uzyskana w tej metodzie odtwarza jednoelektronowe własności dokładnej funkcji falowej.

Operator parzystości jednoelektronowej jest zdefiniowany następująco: operator ten działając na N-elektronową funkcję falową układu zmienia znak z-owej składowej jednego z elektronów. W ogólności wartość oczekiwana tego operatora może zmieniać się w sposób ciągły w zakresie od 1 do -1.

Jeśli N-elektronową funkcję falową zapiszemy w postaci wyznacznika Slatera skonstruowanego z funkcji jednoelektronowych, wtedy wartość oczekiwana parzystości jednoelektronowej jest średnią arytmetyczną wartości oczekiwanych parzystości N jednoelektronowych funkcji falowych:

$$\langle \Psi | \hat{p}_i | \Psi \rangle = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \iiint_{-\infty}^{\infty} dx dy dz \psi_i^*(x, y, z) \psi_i(x, y, -z) \quad (5.23)$$

Gdy elektrony uwięzione w kropce obsadzają wyłącznie stany parzyste, wtedy parzystość jednoelektronowa jest równa jedności. Natomiast, gdy elektrony oprócz stanów parzystych obsadzają także stany nieparzyste, wtedy wartość oczekiwaną operatora parzystości

jednoelektronowej można wyrazić przy pomocy prostego wzoru $\langle \hat{p}_i \rangle = \frac{N_S - N_A}{N_S + N_A}$ gdzie: N_S

oraz N_A to liczba stanów parzystych i nieparzystych w układzie.

Drugą wielkością użytą do opisu własności jednoelektronowych jest prawdopodobieństwo względne. W podwójnej sprzężonej kropce kwantowej są tylko dwa obszary, w których z dużym prawdopodobieństwem mogą przebywać elektrony tj. w dolnej lub w górnej kropce. Dolna kropka zawarta jest w obszarze Ω_1 ($z < 0$) a górna kropka znajduje się w obszarze Ω_2 ($z > 0$). W przypadku dwóch elektronów, prawdopodobieństwo znalezienia jednego elektronu w dolnej kropce, a drugiego w górnej (lub odwrotnie) można otrzymać z poniższego wzoru :

$$P_{12} + P_{21} = \int_{\Omega_1} d^3\vec{r}_1 \int_{\Omega_2} d^3\vec{r}_2 \Psi^* \Psi + \int_{\Omega_2} d^3\vec{r}_1 \int_{\Omega_1} d^3\vec{r}_2 \Psi^* \Psi \quad (5.24)$$

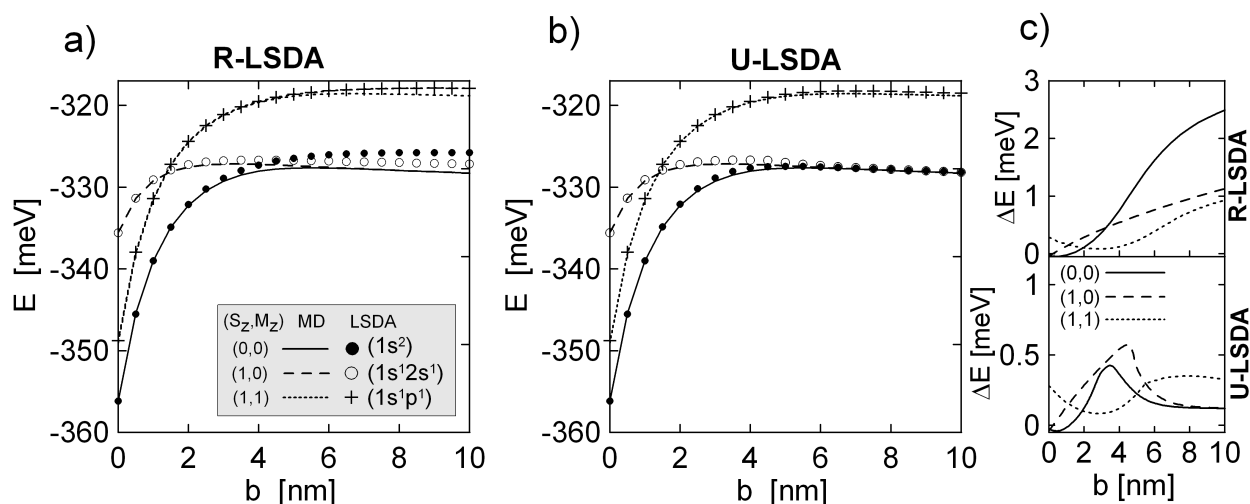
W celu skrócenia zapisu, przyjęto następujące oznaczenie określające prawdopodobieństwo względne: $P(1|1) = P_{12} + P_{21}$, gdzie pierwsza liczba w nawiasie kwadratowym oznacza ilość elektronów w dolnej kropce, a druga liczba określa liczbę elektronów w górnej kropce. W analogiczny sposób można określić prawdopodobieństwo znalezienia dwóch elektronów w tej samej kropce:

$$P(0|2) = P_{02} + P_{20} = \int_{\Omega_2} d^3\vec{r}_1 \int_{\Omega_2} d^3\vec{r}_2 \Psi^* \Psi + \int_{\Omega_1} d^3\vec{r}_1 \int_{\Omega_1} d^3\vec{r}_2 \Psi^* \Psi \quad (5.25)$$

Powyższe wzory można prosto uogólnić na przypadek większej liczby elektronów. Suma wszystkich prawdopodobieństw względnych jest równa jedności.

5.2. Dwa elektrony

Rysunki 5.1(a) i 5.1(b) przedstawiają przebiegi trzech najniższych poziomów energetycznych układu dwóch elektronów uwięzionych w podwójnej kropce kwantowej. Energie obliczono przy użyciu metody separacji ruchu środka masy i ruchu względnego oraz metod R-LSDA i U-LSDA. Błędy energii dwóch ostatnich metod w funkcji szerokości bariery zamieszczono na rysunku 5.1(c).

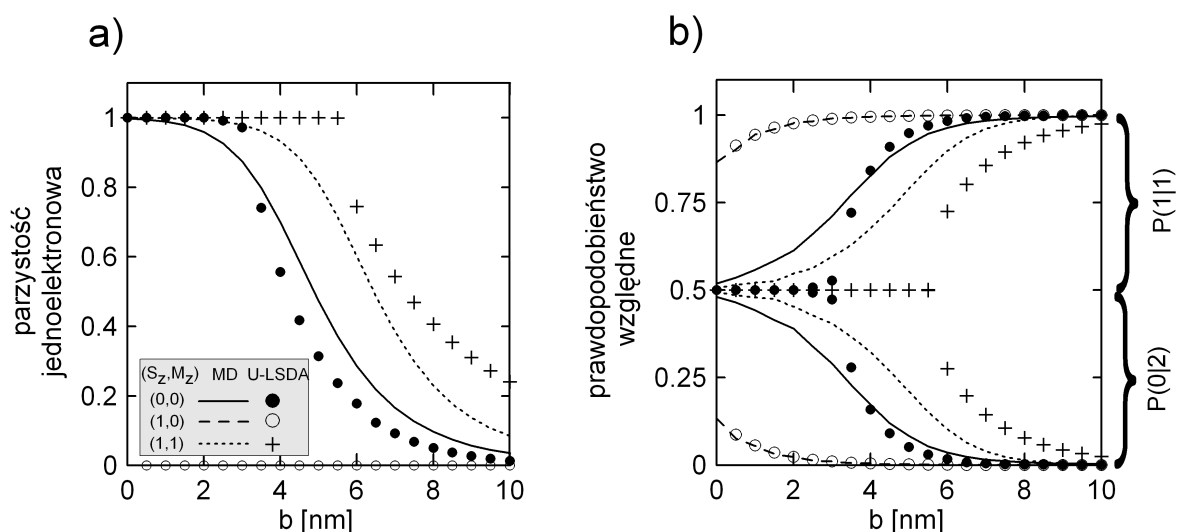


Rys. 5.1 Zależności energii trzech najniższych poziomów energetycznych układu dwóch elektronów od szerokości bariery oddzielającej kropki, obliczone przy użyciu metody dokładnej (MD) oraz (a) metody R-LSDA i (b) metody U-LSDA (oznaczenia jak na rysunku a). (c) Błędy energii w metodzie R-LSDA i w metodzie U-LSDA.

W zakresie małych i średnich szerokości barier, stanowi podstawowemu dwóch elektronów uwięzionych w podwójnej kropce odpowiada konfiguracja z $S_z=0$ i $M_z=0$. Natomiast w granicy szerokich barier, gdy układ znajdujący się w stanie trypletowym z $M_z=0$ ma taką samą energię jak w stanie singletowym. Energia stanu podstawowego staje się wtedy dwukrotnie zdegenerowana. Na rysunku 5.1(a) widać, że obliczone przy użyciu metody R-LSDA energie trzech najniższych poziomów energetycznych niewiele odbiegają od dokładnych wartości energii, gdy bariera jest wąska. Zwiększanie szerokości bariery powoduje jednak wzrost błędów energii w tej metodzie w każdym z tych trzech stanów (rys. 5.1(c)). Skutkiem tego jest zmiana konfiguracji stanu podstawowego z $S_z=0$ i $M_z=0$ na $S_z=1$ i $M_z=0$, do której dochodzi, gdy szerokość bariery przekracza 4.2 nm. W zakresie wąskich barier, błędy energii układu w określonych stanach w metodzie U-LSDA są takie same jak w metodzie R-LSDA.

Metoda U-LSDA może jednak uwzględniać korelację elektronową w większym stopniu niż w metodzie R-LSDA. Na rysunku 5.1(c) widać, że w zakresie szerokich barier błędy energii w tej metodzie są nawet kilkukrotnie mniejsze niż w metodzie R-LSDA. Dzięki temu odtwarza ona prawidłową kolejność poziomów energetycznych.

Pomimo poprawnego odtwarzania energii w metodzie U-LSDA, uzyskane w niej funkcje falowe układu nie odtwarzają w pełni symetrii układu. Można się o tym przekonać analizując obliczone przy użyciu metody U-LSDA i metody dokładnej zmiany wartości oczekiwanych parzystości jednoelektronowej oraz wartości prawdopodobieństw względnych w funkcji szerokości bariery. Ich zależności przedstawione są na rysunkach 5.2(a) i 5.2(b).



Rys. 5.2 (a) Wartości oczekiwane parzystości jednoelektronowej całkowitej funkcji falowej w trzech najniższych stanach energetycznych układu dwóch elektronów w zależności od szerokości bariery oddzielającej kropki. (Uwaga: na rysunku linia przerywana jest niewidoczna, ponieważ pokrywa się z dolną osią poziomą)

(b) Zależności wartości prawdopodobieństw względnych od szerokości bariery obliczone, przy użyciu metody dokładnej i metody U-LSDA (oznaczenia jak na rysunku a).

W metodzie dokładnej wartości parzystości jednoelektronowej w stanie singletowym maleją, gdy szerokość bariery rośnie. W granicy zerowej bariery są one bliskie jedności, natomiast dla bardzo szerokich barier parzystość jednoelektronowa w tym stanie dąży monotonicznie do zera. Na rysunku 5.2(b) widać, że wartości prawdopodobieństwa $P(1|1)$ w tym stanie są zawsze większe od wartości $P(0|2)$. Oznacza to, że elektrony unikają siebie nawzajem, a wzrost szerokości bariery wzmacnia ten efekt. Dla bardzo szerokich barier, gdy sprzężenie tunelowe całkowicie zanika, elektrony zostają rozdzielone.

Funkcje falowe uzyskane metodą U-LSDA nie zachowują się tak samo. W obszarze wąskich barier parzystość jednoelektronowa oraz prawdopodobieństwa względne w stanie

singletowym pozostają stałe. Zaczynają się one zmieniać dopiero, gdy szerokość bariery przekracza 2 nm. Gdy bariera oddzielająca kropki jest węższa, rachunek wykonany metodą U-LSDA pozostawia układ elektronowy w stanie nieskorelowanym, w którym jednoelektronowe funkcje falowe mają określoną parzystość. W zakresie małych i średnich szerokości bariery wartości parzystości jednoelektronowej oraz prawdopodobieństw względnych w tym stanie obliczone przy użyciu metody U-LSDA odbiegają znacząco od wartości dokładnych. Metoda ta odtwarza przebiegi parzystości jednoelektronowej oraz prawdopodobieństw względnych w stanie singletowym dopiero w zakresie szerokich barier.

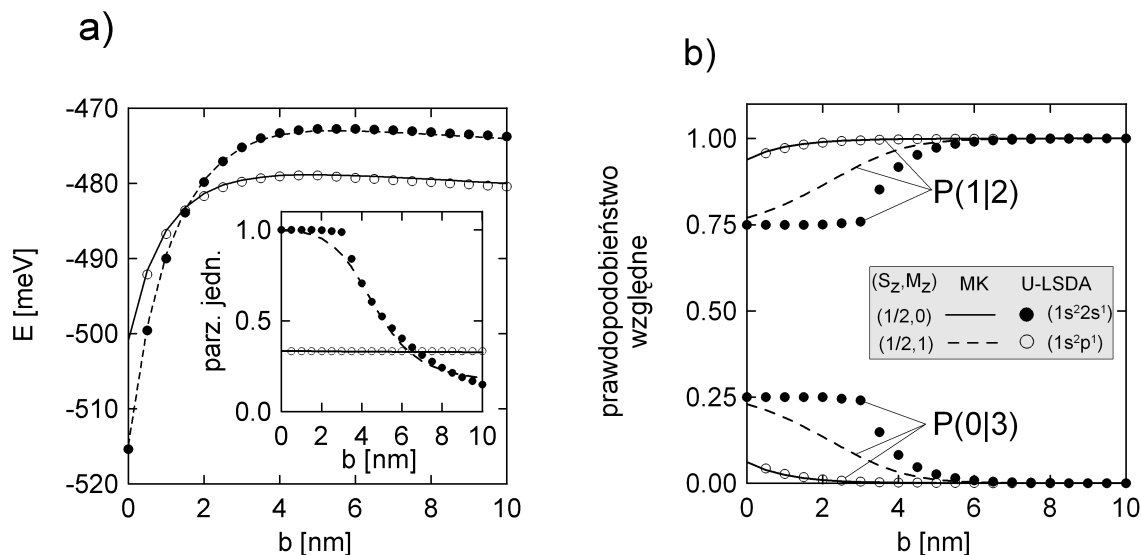
Metoda U-LSDA nie potrafi także odtworzyć prawidłowo jednoelektronowych własności funkcji falowej układu znajdującego się w stanie trypletowym z $M_z=1$. W tym przypadku różnice pomiędzy wartościami parzystości jednoelektronowej oraz wartościami prawdopodobieństw względnych otrzymanymi przy użyciu metody U-LSDA i metody dokładnej są duże nawet w zakresie szerokich barier, gdy sprzężenie tunelowe pomiędzy kropkami zanika. Na rysunkach 5.2(a) oraz 5.2(b) widać, że spośród trzech rozważanych stanów układu dwóch elektronów, metoda U-LSDA najlepiej odtwarza przebiegi parzystości jednoelektronowej oraz prawdopodobieństw względnych w stanie trypletowym z $M_z=0$. Dla dowolnej szerokości bariery oddzielającej kropki, przebiegi tych wielkości uzyskane przy użyciu obu metod pokrywają się.

Z przedstawionego porównania zależności energii trzech najniższych poziomów energetycznych układu dwóch elektronów wynika, że metoda U-LSDA jest dokładniejsza od metody R-LSDA w zakresie szerokich barier. Pozwala ona lepiej uwzględnić efekty korelacyjne, ale pomimo to może jednak nie odtwarzać prawidłowo jednoelektronowych własności funkcji falowej układu.

5.3. Trzy elektrony

W układzie trzech elektronów dwóm najniższym poziomom energetycznym odpowiadają konfiguracje z $S_z=1/2$ i $M_z=0$ oraz z $S_z=1/2$ i $M_z=1$. Rysunek 5.3(a) przedstawia energie tych poziomów w funkcji szerokości bariery obliczone przy użyciu metody U-LSDA i metody Mieszania Konfiguracji (MK). Widać na nim, że niezależnie od szerokości bariery metoda U-LSDA bardzo dobrze odtwarza energie obu poziomów. Dzięki temu w metodzie tej zmiana konfiguracji stanu podstawowego zachodzi dla tej samej szerokości bariery co w metodzie Mieszania Konfiguracji.

Przebiegi parzystości jednoelektronowej dla obu rozważanych konfiguracji elektronowych przedstawione są we wstawce zamieszczonej na rysunku 5.3(a). Natomiast rysunek 5.3(b) przedstawia prawdopodobieństwa względne w funkcji szerokości bariery.



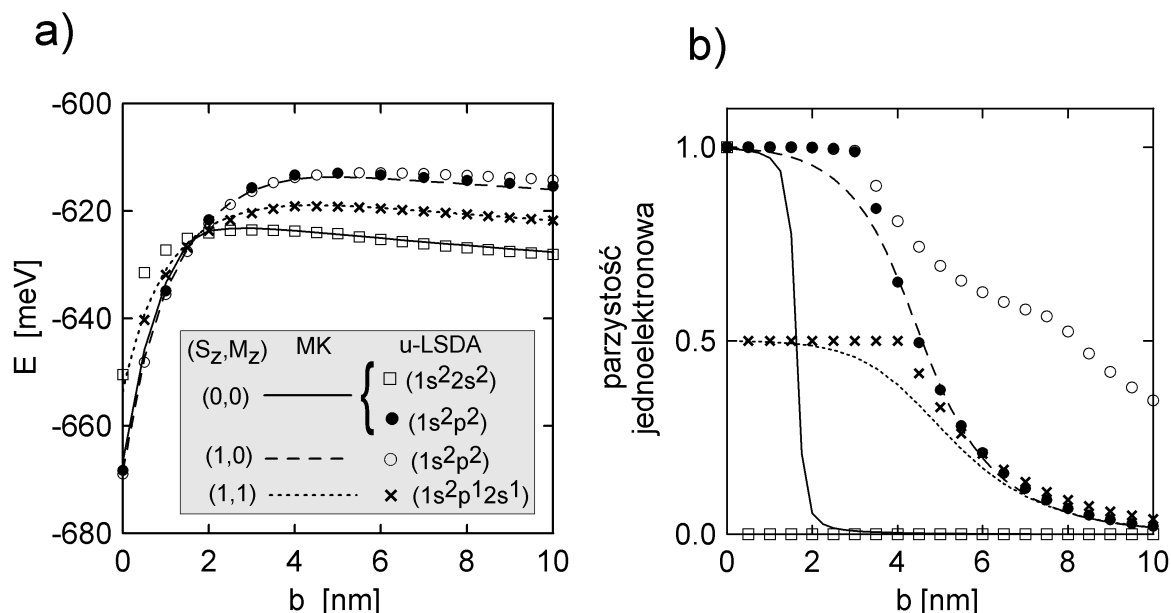
Rys. 5.3 (a) Przebiegi dwóch najniższych poziomów energetycznych układu trzech elektronów uwięzionych w podwójnej pionowej kropce kwantowej w funkcji szerokości bariery oddzielającej sprzężone kropki. Obliczenia wykonano przy użyciu metody Mieszania Konfiguracji i metody U-LSDA (oznaczenia podane na rysunku (b)). Wstawka przedstawia zależności parzystości jednoelektronowej funkcji falowej układu dla tych konfiguracji. (b) Zależności prawdopodobieństw względnych od szerokości bariery dla konfiguracji odpowiadających dwóm najniższym poziomom energetycznym układu trzech elektronów.

W metodzie dokładnej parzystość jednoelektronowa funkcji falowej układu w stanie o konfiguracji $S_z=1/2$ i $M_z=1$ jest bliska jedności dla wąskich barier i maleje, gdy szerokość bariery rośnie. Wraz ze wzrostem szerokości bariery maleje także prawdopodobieństwo $P(0|3)$, podczas gdy wartość prawdopodobieństwa $P(1|2)$ rośnie. Jak widać we wstawce na rysunku 5.3(a) parzystość jednoelektronowa funkcji falowej układu w tym stanie otrzymana w metodzie U-LSDA różni się od wyniku dokładnego jedynie w wąskim przedziale zmienności parametru b . Natomiast zakres szerokości bariery, w którym metoda U-LSDA nie odtwarza dokładnych wartości prawdopodobieństw względnych w tym stanie jest większy. Oznacza to, że wpływ efektów korelacyjnych na wartości prawdopodobieństw względnych jest większy niż na parzystość jednoelektronową. Z przebiegów parzystości jednoelektronowej oraz prawdopodobieństw względnych wynika, że niezależnie od szerokości bariery metoda U-LSDA dobrze odtwarza wartości tych wielkości w stanie o konfiguracji z $S_z=1/2$ i $M_z=0$. Zatem w układzie trzech podobnie jak w układzie dwóch elektronów, metoda U-LSDA może odtwarzać jednoelektronowe własności funkcji falowej w całym zakresie zmienności szerokości bariery

jedynie dla określonych konfiguracji elektronowych. Natomiast w pozostałych przypadkach odtwarzanie tych własności następuje dopiero w zakresie szerokich barier.

5.4. Cztery elektrony

W przypadku czterech elektronów uwięzionych w podwójnej sprzężonej kropce, trzem najniższym poziomom energetycznym układu odpowiadają następujące konfiguracje: $S_z=0$ i $M_z=0$, $S_z=1$ i $M_z=0$ oraz $S_z=1$ i $M_z=1$. Zależności energii tych poziomów od szerokości bariery obliczone przy użyciu metody Mieszania Konfiguracji oraz metody U-LSDA przedstawia rysunek 5.4(a).



Rys. 5.4 (a) Przebiegi trzech najniższych poziomów energetycznych układu czterech elektronów w podwójnej pionowej kropce kwantowej w funkcji szerokości bariery oddzielającej kropki. (b) Zależności wartości oczekiwanych parzystości jednelektronowej funkcji falowej układu czterech elektronów od szerokości bariery (oznaczenia jak na rysunku (a)).

Na rysunku tym widać, że metoda U-LSDA odtwarza dobrze energie dwóch poziomów energetycznych, którym odpowiadają konfiguracje z $S_z=0$ i $M_z=0$ oraz z $S_z=1$ i $M_z=1$. Natomiast energia układu obliczona w stanie trypletowym z $M_z=0$ jest w zakresie szerokich barier dużo wyższa od wartości dokładnych. Widać również, że widmo energii jest bardziej skomplikowane niż w przypadku dwóch lub trzech elektronów. Na przykład, w celu odtworzenia energii układu znajdującego się w pierwszym stanie singletowym z $M_z=0$, w metodzie U-LSDA należy rozpatrywać energie dwóch poziomów energetycznych. Poziomom tym odpowiadają konfiguracje: $1s^2 p^2$ dla barier o szerokości nie przekraczającej 1.7 nm, a dla szerszych barier

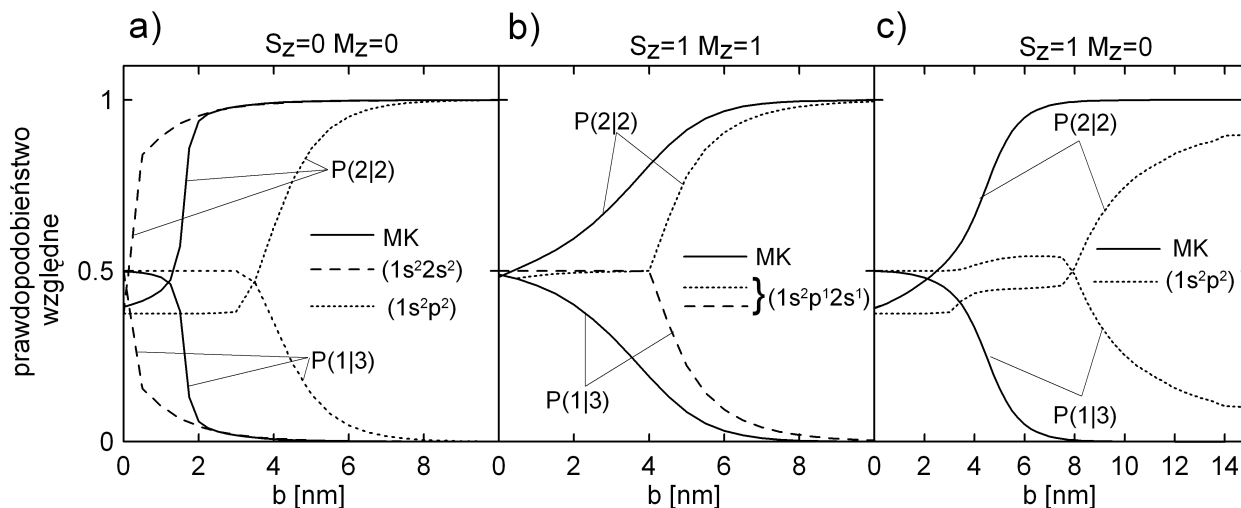
$1s^22s^2$. Wynika to z faktu, że w metodzie U-LSDA konfiguracja elektronowa danego stanu jest ustalona i nie może się samoczynnie zmieniać jak ma to miejsce w metodzie Mieszania Konfiguracji. W tej ostatniej metodzie funkcja falowa jest rozwijana w bazie, której elementami są wyznaczniki Slatera reprezentujące różne konfiguracje. Konfiguracje te uwzględniane są z różnymi wagami, które w zależności od warunków (np. szerokości bariery) mogą się zmieniać. Prawdopodobnie jest tak w przypadku funkcji falowej stanu singletowego z $M_z=0$, w której konfiguracja $1s^2p^2$ może dominować dla bardzo wąskich barier, a dla szerokich barier konfiguracją dominującą jest $1s^22s^2$.

Obliczono także wartości oczekiwane parzystości jednoelektronowej oraz wartości prawdopodobieństw względnych $P(1|3)$ i $P(2|2)$ w funkcji szerokości bariery dla trzech rozważanych konfiguracji. Przebiegi parzystości jednoelektronowej przedstawione są na rysunku 5.4(b), a przebiegi prawdopodobieństw względnych zamieszczone zostały na rysunku 5.5.

Metoda U-LSDA odtwarza parzystość jednoelektronową funkcji falowej układu oraz prawdopodobieństwa względne w stanie singletowym z $M_z=0$ w granicy zerowej bariery oraz gdy szerokość bariery przekracza 2 nm. Wartości obu wielkości odtwarzane są w pierwszym przypadku w stanie singletowym o konfiguracji elektronowej $1s^2p^2$, a w drugim przypadku w stanie o konfiguracji $1s^22s^2$. Ta kolejność odtwarzania jednoelektronowych własności symetrii w funkcji falowej układu uzasadnia przypuszczenie, że dla bardzo wąskich barier dominującą konfiguracją w funkcji falowej w stanie singletowym z $M_z=0$ uzyskaną przy pomocy metody Mieszania Konfiguracji jest $1s^2p^2$, a dla szerszych barier konfiguracją taką jest $1s^22s^2$. Metoda U-LSDA nie odtwarza zarówno parzystości jednoelektronowej jak i prawdopodobieństw względnych w stanie singletowym z $M_z=0$, gdy szerokość bariery zmienia się w zakresie od 1 do 2 nm. Wartości obu tych wielkości zmieniają się w tym zakresie szybko, ale w sposób ciągły, podczas gdy w metodzie U-LSDA zmiany następują skokowo.

Na rysunku 5.4(b) widać, że obliczone przy użyciu metody U-LSDA wartości parzystości jednoelektronowej w stanie trypletowym z $M_z=1$ różnią się znacząco od wartości dokładnych, gdy szerokość bariery zawiera się w przedziale od 3 do 6 nm. Dla innych szerokości bariery odstępstwa parzystości jednoelektronowej od wartości dokładnych są małe. Natomiast z widocznych na rysunku 5.5(b) przebiegów prawdopodobieństw względnych $P(1|3)$ i $P(2|2)$ w tym stanie, otrzymanych przy użyciu obu metod wynika, że metoda U-LSDA odtwarza wieloelektronowe własności symetrii funkcji falowej, gdy szerokość bariery przekracza 10 nm oraz w granicy zerowej bariery. Największe odstępstwa prawdopodobieństw względnych od wartości dokładnych w stanie trypletowym z $M_z=1$ występują dla barier o szerokości około 4

nm, gdy układ czterech elektronów przechodzi w metodzie U-LSDA ze stanu nieskorelowanego do stanu skorelowanego.

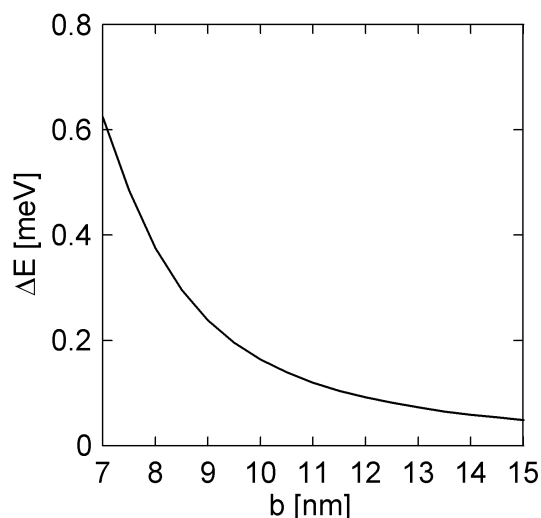


Rys. 5.5 Zależności prawdopodobieństw względnych $P(1|3)$ i $P(2|2)$ od szerokości bariery dla konfiguracji odpowiadających trzem najniższym poziomom energetycznym układu czterech elektronów uwięzionych w podwójnej pionowej kropce kwantowej. Odpowiadające określonym stanom konfiguracje elektronowe w metodzie U-LSDA zaznaczono w nawiasach.

Spośród rozważanych trzech konfiguracji układu czterech elektronów, metoda U-LSDA nie potrafi odtworzyć parzystości jednoelektronowej oraz prawdopodobieństw względnych w stanie trypletowym z $M_z=0$. Obliczone przy jej użyciu wartości parzystości jednoelektronowej oraz wartości prawdopodobieństw względnych $P(1|3)$ i $P(2|2)$ są zbliżone do wartości dokładnych, gdy szerokość bariery jest mniejsza niż 1 nm. Wzrost szerokości bariery powoduje jednak, że odstępstwa parzystości jednoelektronowej i prawdopodobieństw względnych od wartości dokładnych rosną. Tendencja ta utrzymuje się nawet dla barier o szerokości przekraczającej 3 nm, gdy jednoelektronowe funkcje falowe łamią symetrię potencjału uwięzienia. Wtedy wartości oczekiwane parzystości jednoelektronowej obliczone przy użyciu metody U-LSDA maleją, a prawdopodobieństwa względne nieznacznie rosną. Jednak jak widać na rysunku 5.5(c), wartość $P(1|3)$ jest nadal większa od wartości $P(2|2)$. Prawdopodobieństwa te nie zmieniają tej kolejności, dopóki szerokość barier nie osiąga 8 nm. Dopiero dla szerszych barier odstępstwa otrzymanych w metodzie U-LSDA wartości parzystości jednoelektronowej oraz prawdopodobieństw względnych od wartości dokładnych zaczynają się zmniejszać. Proces ten zachodzi jednak wolno i nawet dla bariery o szerokości 15 nm różnice są nadal znaczne.

Aby wyjaśnić przyczyny tak dużych odstępstw, wystarczy porównać energie układu w tym stanie otrzymane przy użyciu metody U-LSDA z energiami układu czterech elektronów o

identycznej konfiguracji, ale obliczonymi przy założeniu, że w każdej kropce przebywają dokładnie dwa elektrony. W tym drugim przypadku każdy elektron jest zlokalizowany w jednej z kropek i obsadza stan $1s$ lub $1p$. Zależność różnicy tych energii od szerokości bariery przedstawiona jest na rysunku 5.6.



Rys. 5.6 Różnica energii układu czterech elektronów w podwójnej sprzężonej kropce kwantowej i energii układu czterech elektronów uwięzionych w dwóch pojedynczych kropkach sprzężonych elektrostatycznie ($P(2|2)=1$) w funkcji szerokości bariery w stanie trypletowym z $M_z=0$ w metodzie U-LSDA.

W zakresie szerokich barier różnica energii jest niewielka, ale jej wartość jest dodatnia. Prawdopodobnie efekt ten spowodowany jest zawyżeniem wartości oddziaływania wymiennego i jednoczesnym niedoszacowaniem oddziaływania kulombowskiego pomiędzy elektronami zajmującymi orbitale $1s$ i $1p$ w stanie trypletowym z $M_z=1$. Elektrony o takim samym rzucie spinu starają się wtedy przebywać jak najdłużej w tej samej kropce ($P(1|3)>P(2|2)$). W rezultacie metoda U-LSDA nie odtwarza prawidłowej symetrii dokładnej funkcji falowej układu w zakresie szerokich barier.

5.5. Układy wieloelektronowe

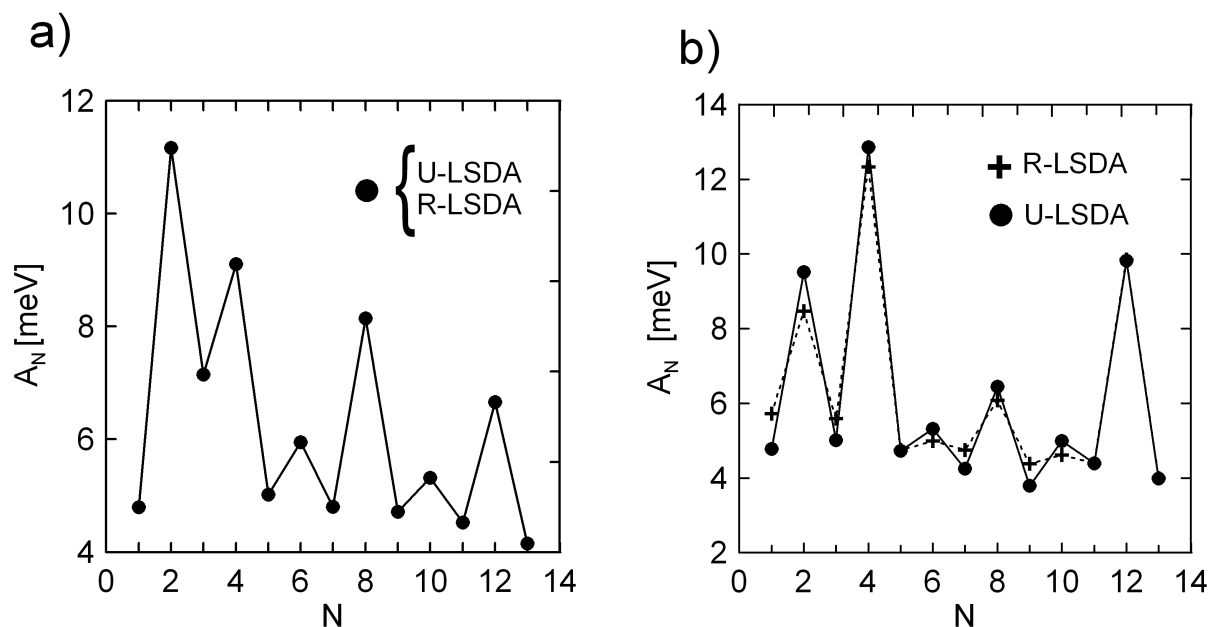
Przedyskutowane w poprzednich podrozdziałach metody R-LSDA i U-LSDA mogą być z łatwością zastosowane do obliczenia energii układów wieloelektronowych. W dalszej części tego podrozdziału przedstawione jest porównanie wyników uzyskanych przy użyciu obu tych metod dla układu zawierającego od 2 do 14 elektronów.

Energia całkowita układu nie jest wielkością mierzalną. Eksperymentalnie można jednak wyznaczyć zmiany energii układu w stanie podstawowym, gdy jest do niego dodawany lub jest z niego usuwany jeden elektron. Dzięki temu można określić energię potrzebną na przyłączenie dodatkowego elektronu czyli tak zwaną energię ładowania kropki. Wielkość tę można utożsamiać z różnicą energii jonizacji i powinowactwa elektronowego w naturalnych atomach [76,77]. Energię ładowania oblicza się według wzoru:

$$A_N = E_{N+1} - 2E_N + E_{N-1} \quad (5.26)$$

gdzie: E_{N-1} , E_N , E_{N+1} są energiami układów $N-1$, N oraz $N+1$ elektronowego w stanie podstawowym.

Energia ładowania zależy nie tylko od liczby elektronów w układzie, ale także od aktualnego rozkładu potencjału uwięzienia. Dlatego zależność energii ładowania od liczby elektronów jest charakterystyczna dla danego typu kropki. W przypadku podwójnej sprzężonej kropki kwantowej charakter tego widma zależy od szerokości bariery oddzielającej studnie potencjału. Na rysunkach 5.7(a) i 5.7(b) przedstawiono energie ładowania podwójnej pionowej kropki kwantowej, w której szerokość bariery wynosi odpowiednio 3 i 8 nm.



Rys. 5.7 Zależności energii ładowania podwójnej pionowej kropki kwantowej od liczby elektronów dla bariery o szerokości: (a) 3 nm oraz (b) 8 nm obliczone przy użyciu metody R-LSDA i metody U-LSDA.

W zakresie silnego sprzężenia tunelowego pomiędzy kropkami, jednoelektronowe funkcje falowe w metodzie U-LSDA zachowują określoną parzystość podobnie jak w metodzie

R-LSDA. Dlatego energie ładowania otrzymane przy użyciu obu tych metod są identyczne, gdy szerokość bariery wynosi 3 nm. Na rysunku 5.7(a) widać, że energia potrzebna do przyłączenia dodatkowego elektronu jest szczególnie duża dla $N=2,4,8,12$. Zamykane są wtedy kolejne powłoki: 1s, 2s, 1p, 2p. Wzrost energii widać także dla $N=6$ oraz $N=10$, gdy powłoki 1p i 2p wypełnione są do połowy.

Wzrost szerokości bariery nie powoduje zmian jakościowych w widmie energii ładowania tj. położenia pików energii są takie same jak dla podwójnej kropki z barierą 3 nm. Na rysunku 5.7(b) widać, że wyniki uzyskane w metodzie U-LSDA i w metodzie R-LSDA różnią się. Różnice w energii ładowania nie przekraczają jednak 1 meV. Okazuje się jednak, że wybór jednej z tych dwóch metod determinuje sposób, w jaki elektrony zapełniają kolejne powłoki. W metodzie U-LSDA rozpoczęcie obsadzania kolejnej powłoki następuje po całkowitym wypełnieniu poprzedniej, a ich kolejność jest następująca: 1s, 2s, 1p, 2p, 1d.... . Natomiast w metodzie R-LSDA rozpoczęcie zapełniania następnej powłoki może rozpocząć się przed całkowitym wypełnieniem poprzedniej. Tak jest w przypadku dwóch elektronów, kiedy jeden elektron obsadza stan 1s, a drugi elektron znajduje się w stanie 2s zwiększając w ten sposób wartość wypadkowego spinu ($S_z=1$). Podobna sytuacja występuje dla $N=7$ ($S_z=3/2$) i $N=8$ ($S_z=2$), gdy elektrony zaczynają obsadzać stany w powłoce 2p, podczas gdy powłoka 1p jest wypełniona tylko w połowie. Obsadzenie stanów jednocząstkowych o takim samym rzucie spinu na oś z przez dużą liczbę elektronów powoduje zwiększenie oddziaływania wymiennego i w efekcie obniżenie energii całkowitej w metodzie R-LSDA.

Gdy liczba elektronów w układzie przekracza 8, wtedy ponownie obsadzane są wolne stany w powłoce 1p. Dlatego energie ładowania uzyskane w metodzie U-LSDA i w metodzie R-LSDA widoczne na rysunku 5.7(b) są identyczne, gdy kropka zawiera 10, 11 lub 12 elektronów.

6. Ekscytonowy efekt Starka w podwójnej sprzężonej kropce kwantowej

W nanostrukturach półprzewodnikowych nośnikami ładunku mogą być zarówno elektrony w paśmie przewodnictwa jak też dziury poruszające się w paśmie walencyjnym. Dziury i elektrony mogą być wprowadzane do układu w procesie dyfuzji nośników z ich rezerwarów, jakie stanowią obszary silnie domieszkowane lub też ze zjonizowanych domieszek pochodzących z materiału półprzewodnikowego otaczającego studnię potencjału. Innym często stosowanym sposobem uzyskiwania układów złożonych z elektronów i dziur jest generowanie par elektron-dziura w wyniku absorpcji w paśmie walencyjnym fotonów o energii przekraczającej szerokość przerwy energetycznej danego półprzewodnika. Jako źródło światła stosowany jest wtedy laser. Ponieważ zachodzące jednocześnie procesy rekombinacji zmniejszają ilość dziur i elektronów, sterowanie mocą jego wiązki pozwala w pewnym stopniu kontrolować koncentrację obu typów nośników [78,79].

Ze względu na różny znak ładunku dziury i elektronu, oddziaływanie kulombowskie pomiędzy nimi ma charakter przyciągający. Dlatego w odróżnieniu od układu np. dwóch elektronów, ekscyton może tworzyć stan związany ze swobodnym ruchem środka masy układu w drutach kwantowych [80-82]. Ponadto obserwuje się je w półprzewodnikach litych, w studniach kwantowych i kropkach kwantowych [45,83-86].

Z powodu kwantowego efektu rozmiarowego, energia ekscytonu uwięzionego w nanostrukturze dowolnego typu jest wyższa od energii ekscytonu znajdującego się w materiale objętościowym półprzewodnika tego samego typu [87]. Ponadto, energia rekombinacji uzależniona jest od stanu kwantowego w jakim znajduje się ekscyton. Stany ekscytonowe, w których proces rekombinacji zachodzi poprzez emisję fotonu nazywane są stanami aktywnymi optycznie. Ich przeciwieństwem są stany nieaktywne optycznie, w których energia rekombinacji zostaje rozproszona poprzez oddziaływanie z siecią krystaliczną.

Prawdopodobieństwo rekombinacji promienistej ekscytonu w stanie kwantowym μ jest proporcjonalne do wartości poniższej całki [6]:

$$p_{\mu} = \left| \int d\vec{r}_e^3 \int d\vec{r}_h^3 \psi_{\mu}(\vec{r}_e, \vec{r}_h) \delta(\vec{r}_e - \vec{r}_h) \right|^2 \quad (6.1)$$

gdzie: $\psi_{\mu}(\vec{r}_e, \vec{r}_h)$ jest funkcją falową ekscytonu w stanie kwantowym μ , a \vec{r}_e i \vec{r}_h są współrzędnymi położenia elektronu i dziury.

Z powyższego wzoru wynika, że dla określonego stanu intensywność przejść optycznych zależy od prawdopodobieństwa znalezienia elektronu i dziury w tym samym obszarze przestrzennym. Jeżeli ekscyton w danym stanie kwantowym tworzą rozdzielone przestrzennie nośniki ładunku, wówczas rekombinacja jest zabroniona.

Z uwagi na posiadany przez elektron i dziurę ładunek są one podatne na działanie pola elektrycznego. Jeżeli rozmiary układu na to pozwalają, to w polu elektrycznym o odpowiednio dużym natężeniu nośniki mogą przemieszczać się do różnych obszarów przestrzennych. Rozdzielenie elektronu i dziury spowodowałoby wtedy zanik prawdopodobieństwa rekombinacji.

Pojawia się w ten sposób możliwość sterowania intensywnością zachodzących procesów rekombinacyjnych przy pomocy pola elektrycznego.

Wpływ pola elektrycznego na widmo energetyczne ekscytonu nosi nazwę ekscytonowego efektu Starka. W warunkach, w których stosowalny jest rachunek zaburzeń zależność energii anihilacji (tworzenia) ekscytonu od natężenia pola elektrycznego w pojedynczej kropce kwantowej można opisać wyrażeniem:

$$E(F) = E(F_0) - p(F - F_0) - \beta(F - F_0)^2 \quad (6.2)$$

gdzie: F jest natężeniem zewnętrznego pola elektrycznego, F_0 jest natężeniem pola elektrycznego, dla którego energia ekscytonu przyjmuje wartość maksymalną, p jest momentem dipolowym, a β jest polaryzowalnością ekscytonu.

Zależność ta została potwierdzona eksperymentalnie dla ekscytonów uwięzionych w pojedynczych samozorganizowanych kropkach kwantowych wytworzonych w $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ na podłożu z GaAs [88,89]. Ponieważ zewnętrzne pole elektryczne stara się odseparować od siebie oba nośniki ładunku, wraz ze wzrostem jego natężenia obserwuje się także zmiany intensywności pików w widmie fotoluminescencyjnym. Jednakże ze względu na małe rozmiary pojedynczych kropek nie jest możliwe całkowite rozdzielanie nośników. Nawet dla dużych pól widoczne są jedynie efekty wynikające z deformacji funkcji falowych elektronu i dziury.

O wiele większe możliwości sterowania intensywnością pików w widmie fotoluminescencyjnym oraz energią uwalnianych fotonów powinny istnieć dla ekscytonu uwięzionego w podwójnej sprzężonej kropce kwantowej. Duży wpływ na zachowanie ekscytonu ma w tym przypadku bariera, od której szerokości uzależnione jest sprzężenie tunelowe pomiędzy kropkami [90-96]. Ponadto ze względu na większe rozmiary układu, nośniki ładunku

mogą zostać rozdzielone w polu elektrycznym o odpowiednio dużym natężeniu. Powinny wtedy występować także duże zmiany energii oddziaływania kulombowskiego, która w pojedynczych kropkach kwantowych o małych rozmiarach może zmieniać się jedynie w niewielkim zakresie. Dotychczas nie została dokładnie przebadana rola jaką odgrywa oddziaływanie kulombowskie w ekscytonowym efekcie Starka w podwójnej kropce kwantowej z szeroką barierą [97].

W dalszej części tego rozdziału zostanie przeprowadzona jakościowa analiza wpływu tego oddziaływania na proces dysocjacji ekscytonu w podwójnej sprzężonej kropce kwantowej w obecności zewnętrznego pola elektrycznego. Przyjęto, że potencjał uwięzienia rozważanej kropki stanowią dwie prostokątne studnie potencjału w kierunku podłużnym (kierunek z) oddzielone od siebie barierą. Potencjał uwięzienia bocznego (w płaszczyźnie xy) ma przebieg paraboliczny, w którym różnice pomiędzy najbliższymi jednocząstkowymi poziomami energetycznymi elektronu i dziury wynoszą odpowiednio $\hbar\omega_e$ i $\hbar\omega_h$. Układ znajduje się w polu elektrycznym o natężeniu F, którego kierunek jest zgodny z osią z. W przybliżeniu masy efektywnej hamiltonian ekscytonu jest następujący:

$$\hat{H}(\vec{r}_e, \vec{r}_h) = -\frac{\hbar^2}{2m_e^*} \nabla_{\vec{r}_e}^2 - \frac{\hbar^2}{2m_h^*} \nabla_{\vec{r}_h}^2 - \frac{\kappa}{r_{eh}} + \frac{m_e^* \omega_e^2}{2} \rho_e^2 + \frac{m_h^* \omega_h^2}{2} \rho_h^2 + V_e(z_e) + V_h(z_h) + eF(z_e - z_h) \quad (6.3)$$

gdzie: $\rho_{e(h)}^2 = x_{e(h)}^2 + y_{e(h)}^2$, $\vec{r}_{eh} = [x_e - x_h, y_e - y_h, z_e - z_h]$, a $V(z)$ oznacza potencjał uwięzienia w kierunku podłużnym.

Niestety problemu własnego hamiltonianu w powyższej postaci nie da się rozwiązać dokładnie bez zastosowania dalszych przybliżeń ze względu na dużą liczbę zmiennych niezależnych. Możliwe jest to jedynie w szczególnym przypadku, w którym zakłada się, że energia wzbudzeń uwięzienia bocznego dla elektronu i dziury jest taka sama: $\omega_e = \omega_h = \omega$. Pomimo, iż w kropkach samozorganizowanych założenie to nie jest na ogół spełnione, wykorzystano je w celu przeprowadzenia jakościowej dyskusji własności ekscytonu w podwójnej sprzężonej kropce kwantowej.

Uproszczenie rachunków uzyskuje się wprowadzając nowe zmienne określające położenie środka masy ekscytonu w kierunku poprzecznym:

$$\vec{\rho}_{cm} = \left(m_e^* x_e + m_h^* x_h, m_e^* y_e + m_h^* y_h \right) / (m_e^* + m_h^*) \quad (6.4)$$

oraz zmienne określające położenie względne elektronu i dziury w tym kierunku:

$$\vec{\rho}_{eh} = (x_e - x_h, y_e - y_h) \quad (6.5)$$

Hamiltonian ekscytonu wyrażony w nowych zmiennych separuje się na część zależną od zmiennych środka masy oraz część zależną od położenia względnego elektronu i dziury oraz zmiennych z-owych obu nośników:

$$\hat{H}(\vec{\rho}_{cm}, \vec{\rho}_{rel}, z_1, z_2) = \hat{H}_{cm}(\vec{\rho}_{cm}) + \hat{H}_{wz}(\vec{\rho}_{rel}, z_1, z_2) \quad (6.6)$$

Hamiltonian dla ruchu środka masy ma postać:

$$\hat{H}_{CM} = -\frac{\hbar^2}{2M} \nabla_{\rho_{CM}}^2 + \frac{M\omega^2}{2} \rho_{CM}^2 \quad (6.7)$$

Rozwiązaniem problemu własnego powyższego operatora energii są funkcje własne dwuwymiarowego oscylatora harmonicznego [70].

Natomiast hamiltonian dla ruchu względnego i ruchu w kierunku podłużnym jest następujący:

$$\begin{aligned} \hat{H}_{wz} = & -\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_{\vec{\rho}_{eh}}^2 - \frac{\hbar^2}{2m_e^*} \frac{\partial^2}{\partial z_e^2} - \frac{\hbar^2}{2m_h^*} \frac{\partial^2}{\partial z_h^2} + \frac{\mu\omega^2}{2} \rho_{eh}^2 \\ & + V_e(z_e) + V_h(z_h) - \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0 r_{eh}} + eF(z_e - z_h) \end{aligned} \quad (6.8)$$

gdzie: $\mu = m_e^* m_h^* / (m_e^* + m_h^*)$.

Problem własny hamiltonianu \hat{H}_{wz} rozwiązano numerycznie wykorzystując do tego celu metodę ewolucji w czasie urojonym w sposób identyczny jak w rozdziale 5 w problemie dwóch elektronów. Jako warunek brzegowy przyjęto znikanie funkcji falowej na brzegach obszaru z

powodu wystawionych barier w kierunku podłużnym oraz parabolicznego zachowania się potencjału uwięzienia w kierunku poprzecznym.

Ze względu na separowalność zmiennych, funkcję falową ekscytonu można przedstawić w postaci rozseparowanej:

$$\Psi = \Phi_{cm}(\vec{\rho}_{cm}) \varphi_{wz}(\vec{\rho}_{eh}, z_e, z_h) \quad (6.9)$$

Po podstawieniu powyższej postaci funkcji falowej ekscytonu do wzoru na prawdopodobieństwo rekombinacji (6.1) i wykonaniu całkowania po zmiennych określających położenie jednej z cząstek otrzymuje się wyrażenie:

$$p_{\mu} = \left| \int \int_{-\infty}^{\infty} dx dy \Phi_{cm}(x, y) \int_{-\infty}^{\infty} dz \varphi_{wz}(0, z, z) \right|^2 \quad (6.10)$$

Układ posiada symetrię obrotową, wobec czego wszystkie stany własne hamiltonianu \hat{H}_{wz} można sklasyfikować ze względu na określoną w układzie wartość z-owej składowej momentu pędu. Rzut całkowitego momentu pędu na oś z jest sumą z-owych składowych momentów pędu środka masy ℓ_{cm} i momentu pędu ruchu względnego ℓ_{wz} :

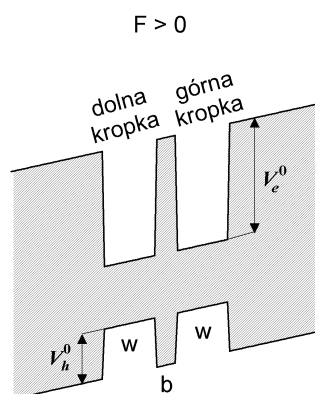
$$\ell_{tot} = \ell_{cm} + \ell_{wz} \quad (6.11)$$

W stanie z $\ell_{wz} \neq 0$, funkcja falowa ekscytonu zeruje się dla $\rho_{eh} = 0$. Elektron i dziura są wówczas przestrzennie rozdzielone i rekombinacja, której towarzyszy emisja fotonu jest zabroniona. Podobnie dla stanów z $\ell_{cm} \neq 0$ ten typ rekombinacji również nie zachodzi. We współrzędnych cylindrycznych, funkcjami własnymi oscylatora dwuwymiarowego są wielomiany Laguerre'a. Jeżeli środek masy ekscytonu znajduje się w stanie typu s ($\ell_{cm}=0$), wówczas wartość pierwszej całki we wzorze (6.10) nie zależy od tego, czy jest to stan podstawowy czy wzbudzony. Wtedy prawdopodobieństwo rekombinacji jest niezależne od wzbudzeń w zmiennych ruchu środka masy. Natomiast widmo energetyczne ekscytonu dla stanów wzbudzonych o symetrii s jest przesunięte w stronę wyższych energii o $2n\hbar\omega$, gdzie n

jest liczbą naturalną oznaczającą n-ty stan wzbudzony. W dalszej części rozdziału rozważane są stany z $l_{cm}=l_{wz}=0$, które mogą być aktywne optycznie.

Jeżeli przy braku zewnętrznego pola elektrycznego potencjał uwięzienia w kierunku podłużnym opisany jest funkcją parzystą, wówczas stany własne hamiltonianu ekscytonu można podzielić na stany parzyste i stany nieparzyste względem jednoczesnej zmiany znaku zmiennych z_e i z_h . We wzorze określającym prawdopodobieństwo rekombinacji funkcja falowa ekscytonu występuje pod całką w pierwszej potędze i dlatego jej wartość dla stanów nieparzystych jest równa 0. Stanami aktywnymi optycznie, przy braku zewnętrznego pola elektrycznego są wyłącznie stany parzyste. W obecności pola elektrycznego, które skierowane jest równoległe do osi symetrii układu dwóch kropek (oś „z”), parzystość stanów względem zmiany znaku z_e i z_h przestaje być określona, aktywizują się wtedy stany nieaktywne w zerowym polu.

Na rysunku 6.1 przedstawiono schemat potencjału uwięzienia podwójnej kropki znajdującej się w polu elektrycznym skierowanym wzdłuż osi z. Dla dodatnich wartości natężenia pola elektrycznego, dolna kropka jest energetycznie korzystniejsza dla elektronu, a dziura preferuje kropkę górną.



Rys. 6.1 Schemat potencjału uwięzienia podwójnej kropki znajdującej się w polu elektrycznym.

W dalszych rachunkach użyto parametrów materiałowych dla kropki z $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, która otoczona jest barierami z GaAs. Stała dielektryczna wynosi $\epsilon=12.5$, masa efektywna elektronu jest równa $m_e^* = 0.037 m_0$, a masa efektywna dziury $m_h^* = 0.45 m_0$ (m_0 jest masą spoczynkową elektronu w próżni). Założono, że koncentracja indu wewnątrz pojedynczej studni jest stała i wynosi 66% ($x=0.66$). Wynikająca stąd głębokość studni dla elektronu wynosi $V_e=-508$ meV a dla dziury jest równa $V_h=-218$ meV [98]. Potencjał uwięzienia w kierunku bocznym ma charakter potencjału oscylatora harmonicznego, w którym odległości pomiędzy sąsiednimi

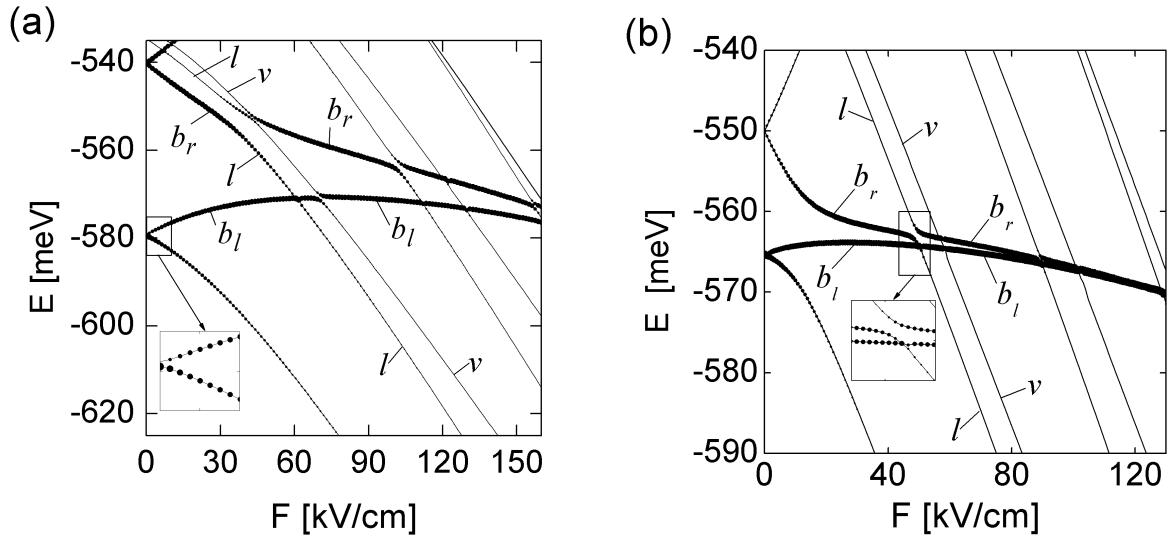
poziomami energetycznymi wynoszą $\hbar\omega=20$ meV. Szerokość obu studni jest identyczna i wynosi 6 nm.

Użyty w rachunkach model podwójnej kropki kwantowej jest uproszczony. Układy podwójnych samozorganizowanych kropek kwantowych, w których wykonuje się badania eksperymentalne, nie są nigdy idealnie symetryczne. Ponadto, występują tam pominięte w rachunku wewnętrzne naprężenia wynikające z niedopasowania stałych sieci krystalicznych arsenku indu i arsenku galu. W rezultacie nawet dla zerowego natężenia zewnętrznego pola elektrycznego istnieje niezerowy moment dipolowy. Występowanie wewnętrznego momentu dipolowego powoduje zmianę energii ekscytonu rzędu kilku meV przy natężeniu pola wynoszącym 100 kV/cm [99,100]. Efekt ten nie powinien jednak zmieniać jakościowego charakteru widma energetycznego. W rozważanym modelu można go zinterpretować jako przesunięcie widma energetycznego w funkcji natężenia pola elektrycznego.

W modelu zaniedbano także mieszanie podpasm w paśmie walencyjnym. W materiale objętościowym podpasma dziur lekkich i ciężkich mogą być zdegenerowane w pobliżu wierzchołka pasma walencyjnego [101]. Natomiast w nanostrukturach, kwantowy efekt rozmiarowy powoduje ich rozszczepienie nawet o kilkadziesiąt meV. Mieszanie podpasm można zupełnie zaniedbać, gdy promień kropki jest dużo mniejszy od ekscytonowego promienia Bohra. Najczęściej postępuje się w ten sposób, gdy stosowane jest przybliżenie masy efektywnej [102-105].

Najpoważniejszym uproszczeniem modelu jest założenie, że energia wzbudzeń uwięzienia bocznego dla elektronu i dziury jest taka sama: $\omega_e = \omega_h = \omega$. Z tego powodu prezentowane poniżej wyniki obliczeń mają charakter wyłącznie jakościowy. Ogromną zaletą modelu jest natomiast możliwość dokładnego rozwiązania problemu własnego ekscytonu z jednoczesnym uwzględnieniem pełnej korelacji elektron-dziura.

W dalszej części rozdziału przedstawione są najciekawsze wyniki wykonanych w tym modelu obliczeń. Na rysunkach 6.2(a) i 6.2(b) przedstawiono przebiegi najniższych poziomów energetycznych ekscytonu w podwójnej kropce z barierą o szerokości 2 nm oraz 4 nm w funkcji natężenia pola elektrycznego.



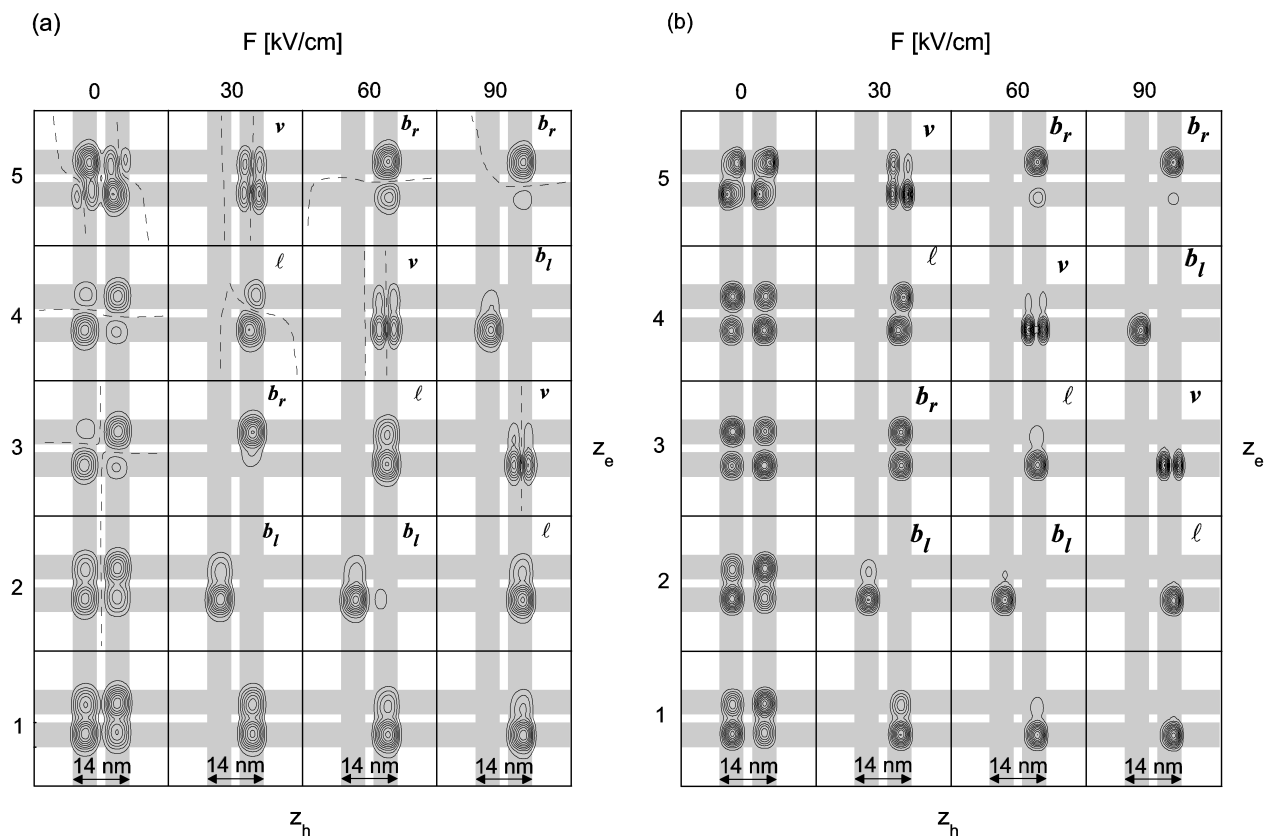
Rys. 6.2 Zależność ekscytonowych poziomów energetycznych od natężenia zewnętrznego pola elektrycznego: (a) podwójna kropka z barierą $b=2$ nm (b) podwójna kropka z barierą $b=4$ nm. Oznaczenia na rysunkach są następujące: w stanie b_ℓ elektron i dziura rekombinują w dolnej kropce, b_r oznacza stan, w którym rekombinacja zachodzi w górnej kropce, ℓ oznacza wzbudzenie ekscytonu w kierunku poprzecznym, a v oznacza wzbudzenie ekscytonu w kierunku podłużnym. Wielkość punktów na obu rysunkach jest proporcjonalna do prawdopodobieństwa rekombinacji promienistej w danym stanie.

W stanie podstawowym maleje energia ekscytonu wraz ze wzrostem natężenia pola elektrycznego. Jednocześnie maleje prawdopodobieństwo rekombinacji promienistej w tym stanie. Przy braku zewnętrznego pola elektrycznego, pierwszy stan wzbudzony jest nieparzysty i w konsekwencji jest stanem nieaktywnym optycznie. Włączenie pola powoduje zniesienie symetrii potencjału uwięzienia i prawdopodobieństwo rekombinacji promienistej tym stanie zaczyna rosnąć. Dwa najaktywniejsze optycznie stany oznaczone zostały symbolami b_ℓ i b_r . W stanie b_ℓ rekombinacja zachodzi w dolnej kropce, a w stanie b_r w górnej kropce. Na rysunkach 6.2(a) i 6.2(b) widać, że stany te wykazują tendencję do degeneracji dla bardzo dużych wartości natężenia pola elektrycznego. W tym zakresie pól, energie w obu stanach maleją, a spowodowane jest to deformacją rozkładu gęstości elektronu i dziury wewnątrz jednej z kropek, w której zlokalizowane są oba nośniki. W kropce z szerszą barierą (4 nm) degeneracja obu tych poziomów osiągana jest dla niższych wartości natężenia pola elektrycznego. Na obu rysunkach występują poziomy energetyczne, w których zależność energii od natężenia pola elektrycznego jest liniowa (rys. 6.2(b)) lub prawie liniowa (rys. 6.2(a)). Liniowość pojawia się w przypadku, gdy oba nośniki zlokalizowane są w różnych kropkach. W tych stanach prawdopodobieństwo rekombinacji jest zerowe i stany są optycznie nieaktywne.

Dodatkowe informacje o zachowaniu się ekscytonu w polu elektrycznym można uzyskać poddając analizie rozkłady jego funkcji falowych. Kontury funkcji falowej ruchu względnego $\varphi_{wz}(0, z_e, z_h)$ dla kilku najniższych poziomów energetycznych ekscytonu w podwójnej kropce kwantowej z barierą o szerokości 2 nm przedstawia rysunek 6.3(a). Natomiast rysunek 6.3(b) przedstawia kontury gęstości prawdopodobieństwa ekscytonu scałkowane po współrzędnych poprzecznych:

$$\int_0^{R_{\max}} d\rho_{eh} |\varphi_{wz}(\rho_{eh}, z_e, z_h)|^2 \rho_{eh} \quad (6.12)$$

gdzie: R_{\max} jest ustalonym w rachunkach promieniem kropki w kierunku poprzecznym
Gęstość prawdopodobieństwa daje w niektórych przypadkach więcej informacji o lokalizacji przestrzennej nośników.



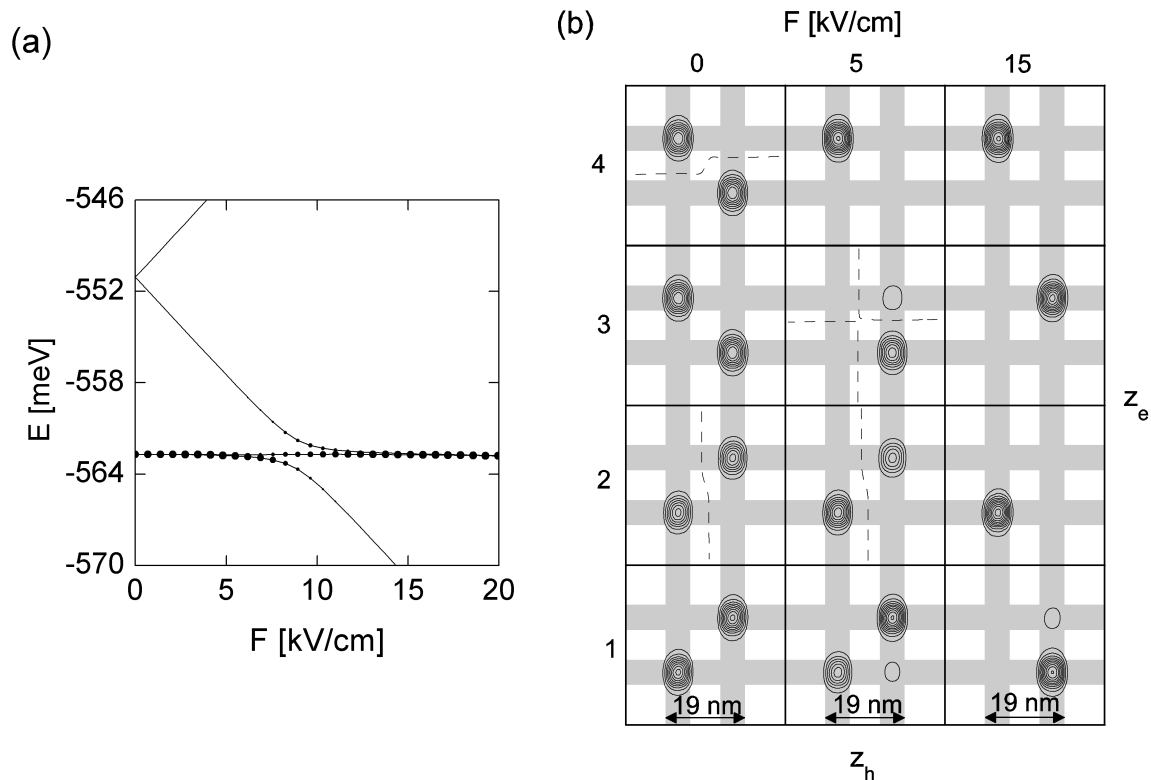
Rys. 6.3 (a) Kontury funkcji falowej ekscytonu dla $\rho_{ch}=0$ oraz (b) kontury gęstości prawdopodobieństwa ekscytonu scałkowanej po kierunku poprzecznym w podwójnej kropce kwantowej z barierą o szerokości 2 nm. Linia przerywana oznacza węzły funkcji falowej. Kolorem szarym zaznaczono obszary studni potencjału dla dziury i elektronu. Liczby z lewej strony rysunków określają kolejność stanów ekscytonu w skali energii.

W nieobecności zewnętrznego pola elektrycznego (pierwsza od lewej kolumna wykresów na rysunku 6.3) stany ekscytonowe można podzielić na parzyste i nieparzyste względem jednoczesnej zmiany znaku $z_e \rightarrow -z_e$ i $z_h \rightarrow -z_h$. Niezależnie od parzystości prawdopodobieństwo znalezienia obu cząstek w tej samej studni jest większe niż prawdopodobieństwo znalezienia ich w różnych studniach. Wynika to z przyciągającego charakteru oddziaływania kulombowskiego elektronu i dziury. Charakterystyczna jest również różnica rozkładu gęstości elektronu i dziury wynikająca ze znacznej różnicy mas efektywnych. Elektron znacznie łatwiej tuneluje przez barierę potencjału niż dziura. Funkcja falowa dziury bardzo słabo wnika w barierę, podczas gdy funkcja falowa elektronu wnika w barierę znacznie silniej. Przejawia się to bardzo wyraźnie na rysunku 6.3(b) w postaci asymetrii rozkładu gęstości prawdopodobieństwa w kierunku osi pionowej (współrzędna elektronu) i poziomej (współrzędna dziury).

Po włączeniu pola elektrycznego w stanie podstawowym ekscytonu dziura lokalizuje się w korzystniejszej dla niej energetycznie górnej kropce już dla $F=30$ kV/cm. Natomiast elektron można nadal z dużym prawdopodobieństwem znaleźć w obu kropkach. Całkowicie lokalizuje się w dolnej kropce dopiero wtedy, gdy natężenie pola elektrycznego przekracza 60 kV/cm (rys. 6.3(b)). Nośniki znajdują się wtedy w różnych kropkach i prawdopodobieństwo rekombinacji w tym stanie znika. Dla zerowego natężenia pola pierwszy stan wzbudzony jest nieparzysty. Przyczyną tego jest wzbudzenie dziury w kierunku podłużnym, którą z takim samym prawdopodobieństwem można znaleźć zarówno w górnej jak i w dolnej kropce. Ze względu na dużą masę efektywną dziury energia ekscytonu w tym stanie jest tylko o 0.25 meV wyższa niż w stanie podstawowym. Pole elektryczne niszczy symetrię potencjału uwięzienia powodując lokalizację dziury w dolnej kropce (stan b_ℓ na rys. 6.3(a)). Elektron wchodzi do tej kropki dla silniejszego pola elektrycznego i w rezultacie energia ekscytonu w tym stanie rośnie przy zmianie natężenia pola elektrycznego. Na rysunku 6.3(b) widać także duże podobieństwo rozkładów gęstości prawdopodobieństwa w stanach 3 i 4 (ℓ i b_r), gdy ekscyton znajduje się w polu elektrycznym o natężeniu 30 kV/cm. W każdym z tych stanów dziura zlokalizowana jest w górnej kropce. Stany te mieszają się ze sobą w zakresie małych natężeń pola elektrycznego i w rezultacie w widmie energetycznym widoczne jest odpychanie odpowiadających im poziomów energetycznych (rys. 6.2(a)). Wraz ze wzrostem szerokości bariery, odpychanie to staje się słabsze ze względu na ograniczenie tunelowania elektronu przez barierę oddzielającą kropki (rys. 6.2(b)).

Reorganizacja widma energetycznego dokonuje się także w wyniku przecinania się poziomów. Tak jest w przypadku czwartego i piątego stanu (ℓ i v) w pobliżu $F=45$ kV/cm oraz w przypadku drugiego i trzeciego stanu (b_ℓ i ℓ), gdy natężenie pola elektrycznego osiąga wartość 60 kV/cm (rys. 6.2(a)). Mieszanie się stanów pierwszej pary jest silnie ograniczone wzbudzeniem dziury w czwartym stanie wewnątrz pojedynczej kropki (rys. 6.3(a) i 6.3(b)). Natomiast przecinanie się poziomów energetycznych drugiej pary jest rezultatem lokalizacji dziury w dolnej (b_ℓ) oraz w górnej kropce (ℓ) co także w dużym stopniu zapobiega ich mieszanii.

O wiele bardziej interesujący przypadek stanowi ekscyton uwięziony w podwójnej kropce z szeroką barierą. Na rysunku 6.4(a) zamieszczono przebiegi czterech najniższych poziomów energetycznych ekscytonu w podwójnej kropce, w której szerokość bariery wynosi 7 nm.



Rys. 6.4 (a) Cztery najniższe poziomy energetyczne ekscytonu w podwójnej kropce kwantowej z barierą o szerokości 7 nm. (b) Kontury funkcji falowej ekscytonu $\varphi_{wz}(\rho_{eh}, z_e, z_h)$ dla $\rho_{eh}=0$. Linia przerywana oznacza węzły funkcji falowej. Kolorem szarym zaznaczono obszary obu studni kwantowych dla elektronu i dziury.

Energia ekscytonu i prawdopodobieństwo rekombinacji w stanie podstawowym nie zmieniają się, jeżeli natężenie pola elektrycznego nie przekracza wartości 5 kV/cm. Dalsze zwiększanie natężenia pola powoduje dysocjację ekscytonu i gwałtowne zmiany prawdopodobieństwa rekombinacji. Proces ten zachodzi w bardzo wąskim zakresie zmian natężenia pola. Gdy ekscyton znajduje się w pierwszym stanie wzbudzonym, wtedy jego energia w ogóle nie zależy od natężenia pola.

W celu zrozumienia przyczyn takiego zachowania układu można wykorzystać informacje jakie zawiera funkcja falowa ekscytonu. Na rysunku 6.4(b) zamieszczone są kontury funkcji falowych ekscytonu $\varphi_{wz}(0, z_e, z_h)$ dla czterech najniższych poziomów energetycznych.

W stanie podstawowym ekscytonu, oba nośniki przemieszczają się do górnej kropki w polu o niewielkim natężeniu. Energia układu nie zmienia się, ponieważ przemieszcza się jednocześnie taka sama ilość ładunku dodatniego i ujemnego.

Z tego samego powodu, nie zmienia się także energia poziomu odpowiadającego pierwszemu stanowi wzbudzonemu. W polu elektrycznym o większym natężeniu, energetycznie korzystniejsza jest jednak sytuacja, w której w stanie podstawowym ekscytonu elektron lokalizuje się w dolnej kropce, a dziura w górnej kropce. Powoduje to dysocjację ekscytonu i zanik prawdopodobieństwa rekombinacji. Natomiast w pierwszym stanie wzbudzonym zachodzi proces odwrotny. Wzrost natężenia pola elektrycznego powoduje, że prawdopodobieństwo rekombinacji w tym stanie rośnie. Również drugi stan wzbudzony, który początkowo jest nieaktywny optycznie, staje się aktywny, gdy natężenie pola jest odpowiednio duże. Energie obu poziomów odpowiadających tym dwóm stanom wzbudzonym dla dużych pól nie zmieniają się. Oba nośniki lokalizują się w tej samej kropce tj. w górnej lub w dolnej. Z powodu oddziaływania nośników ładunku z polem elektrycznym, maleje wtedy energia elektrostatyczna jednej z cząstek, ale jest to całkowicie kompensowane przez wzrost energii elektrostatycznej drugiej cząstki. W rezultacie energia ekscytonu znajdującego się w takim stanie jest stała, gdy natężenie pola elektrycznego zmienia się w określonym zakresie.

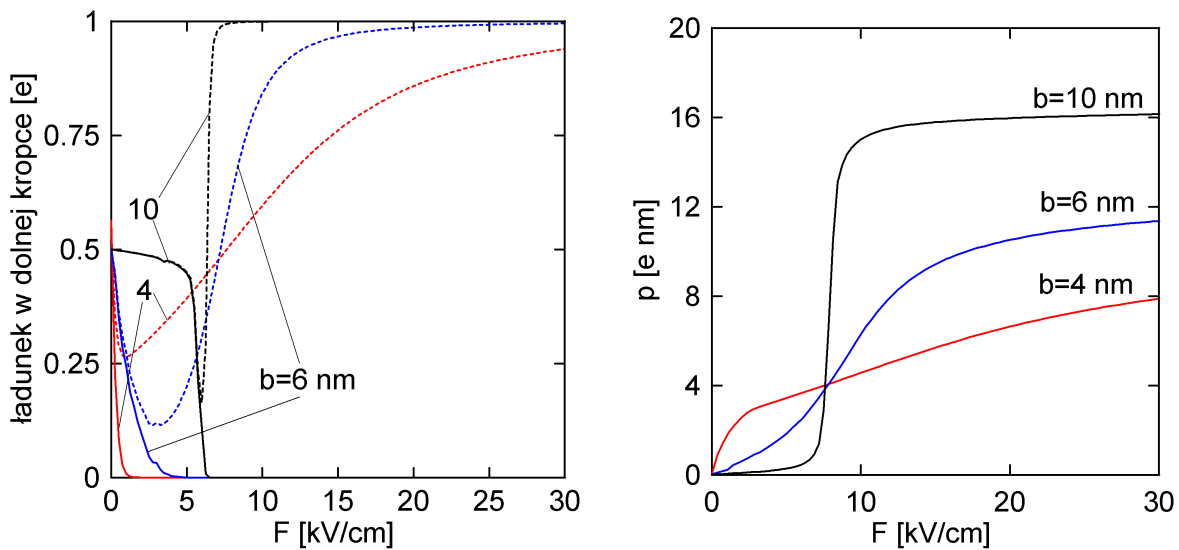
6.1. Rola oddziaływania kulombowskiego w procesie dysocjacji ekscytonu pod wpływem pola elektrycznego

Dla małych wartości natężenia pola elektrycznego, energia ekscytonu uwięzionego w podwójnej kropce z szeroką barierą nie zmienia się. Z analizy rozkładu funkcji falowej

ekscytonu w stanie podstawowym wynika, że spowodowane jest to prawdopodobnie równoczesnym przemieszczaniem się takiej samej ilości ładunku dodatniego i ładunku ujemnego z dolnej do górnej kropki. Dla elektronu oddziaływującego z polem elektrycznym przebywanie w górnej kropce jest niekorzystne. Wynika stąd, że lokalizacja elektronu w górnej kropce jest skutkiem przyciągającego oddziaływania z dziurą. Oddziaływanie kulombowskie może zatem odgrywać kluczową rolę w efekcie Starka i w procesie dysocjacji ekscytonu uwięzionego w podwójnej kropce. Proces dysocjacji ekscytonu można prześledzić analizując ilość zgromadzonego ładunku w jednej z kropek. Dzięki temu łatwo można pokazać jak dziura i elektron reagują na zmiany natężenia pola elektrycznego. Na rysunku 6.5(a) przedstawiono zależność ilości ładunku zgromadzonego w dolnej kropce od natężenia zewnętrznego pola elektrycznego. Natomiast rysunek 6.5(b) przedstawia przebiegi momentów dipolowych w funkcji natężenia pola elektrycznego dla kilku szerokości bariery. Wartość momentu dipolowego obliczono wykorzystując poniższy wzór [61]:

$$p = e(\langle z_e \rangle - \langle z_h \rangle) \quad (6.13)$$

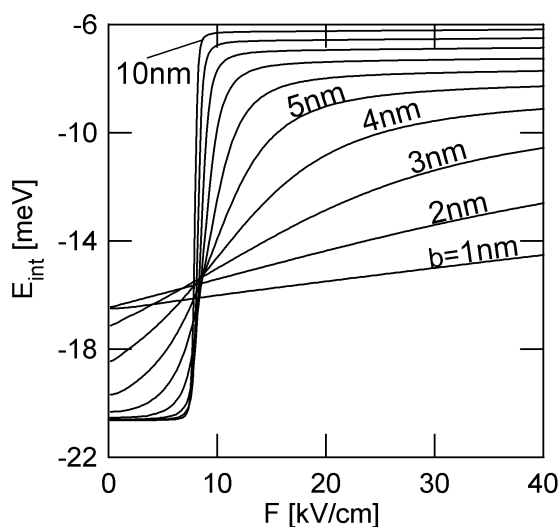
gdzie: $\langle z_e \rangle$ i $\langle z_h \rangle$ są wartościami oczekiwanymi położenia elektronu i dziury, e jest ładunkiem elementarnym.



Rys. 6.5 (a) Ilość ładunku zgromadzonego w dolnej kropce w zależności od natężenia zewnętrznego pola elektrycznego. Linia przerywana odpowiada ładunkowi ujemnemu a linia ciągła ładunkowi dodatniemu (b) Zależność wartości momentu dipolowego ekscytonu od natężenia pola elektrycznego.

Przy braku pola elektrycznego niezależnie od szerokości bariery w każdej studni zgromadzona jest taka sama ilość ładunku dodatniego i ładunku ujemnego. Wynika to z symetrii potencjału uwięzienia. Włączenie pola elektrycznego powoduje, że górna kropka staje się energetycznie korzystniejsza dla dziury. Gdy szerokość bariery oddzielającej kropki nie jest duża (4 nm), wtedy dziura lokalizuje się w górnej kropce pod wpływem pola elektrycznego o niewielkim natężeniu. Sprzężenie tunelowe pomiędzy kropkami powoduje, że elektron można z dużym prawdopodobieństwem znaleźć w obu kropkach. Dlatego dziura po lokalizacji w jednej kropce dalej może silnie oddziaływać z elektronem. Zależność wartości momentu dipolowego od natężenia pola elektrycznego ma w tym przypadku charakter monotoniczny (rys. 6.5(b)). Sytuacja zmienia się, gdy bariera staje się bardzo szeroka i sprzężenie tunelowe pomiędzy kropkami znika. W podwójnej kropce z barierą o szerokości 10 nm, nawet w polu o natężeniu 5 kV/cm ilość ładunku dodatniego w dolnej kropce jest tylko nieznacznie mniejsza od 0.5 e. Wystarczy jednak niewielki wzrost natężenia pola powyżej wartości 5 kV/cm, aby dziura została przeniesiona do górnej kropki. Na rysunku 6.5(a) widać, że identycznie zaczyna się wtedy zmieniać ilość ładunku ujemnego w dolnej kropce. W tym zakresie wartość momentu dipolowego ekscytonu jest bliska zera. Przyczyną takiego zachowania jest przyciągający charakter oddziaływania kulombowskiego. Powoduje ono, że elektron przemieszcza się do niekorzystnej energetycznie dla niego kropki. W wyniku dalszego zwiększania natężenia pola elektron wraca do dolnej kropki. Energia oddziaływania z polem elektrycznym przewyższa wówczas energię oddziaływania kulombowskiego. Skokowy wzrost wartości momentu dipolowego ekscytonu dla tego przypadku, widoczny na rysunku 6.5(b), jest skutkiem dużych zmian wartości oczekiwanych położenia dziury i położenia elektronu występujących w niewielkim zakresie zmian natężenia pola elektrycznego.

W zależności od szerokości bariery w różnym stopniu zmianom podlega energia oddziaływania elektron-dziura. Energie oddziaływania kulombowskiego elektronu i dziury w stanie podstawowym ekscytonu w funkcji natężenia pola elektrycznego przedstawia rysunek 6.6.



Rys. 6.6 Energie oddziaływania kulombowskiego elektronu i dziury w funkcji natężenia pola elektrycznego dla różnych szerokości bariery oddzielającej studnie w podwójnej kropce kwantowej.

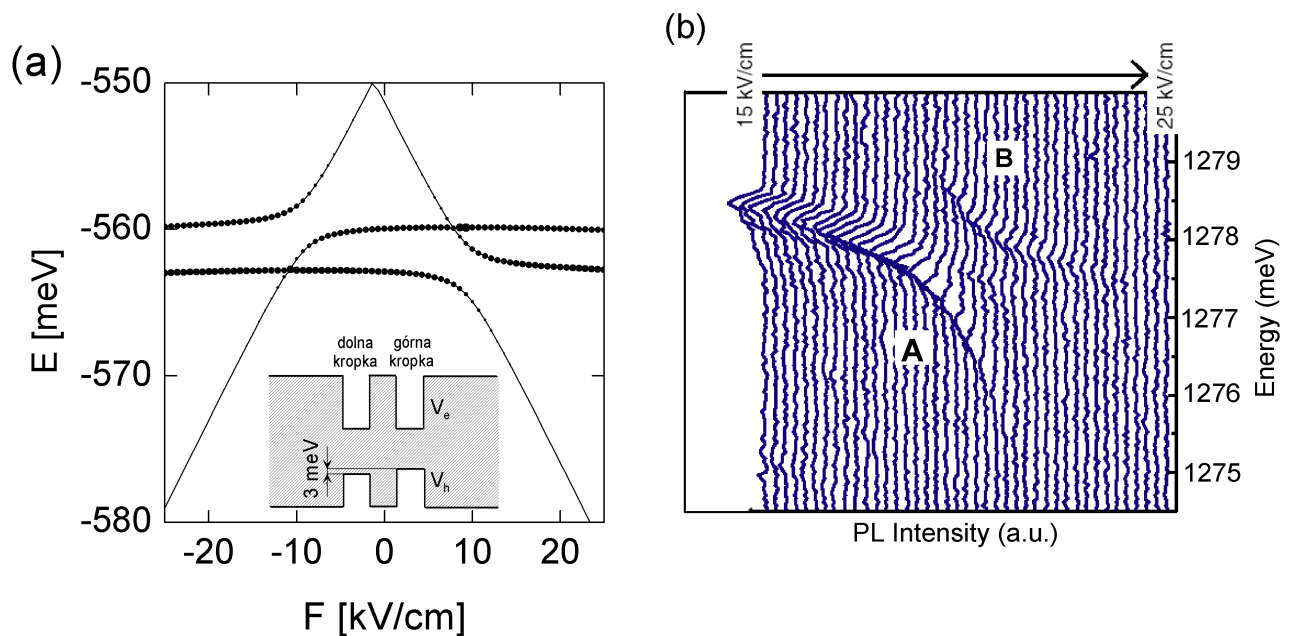
Przy braku pola elektrycznego wartość bezwzględna energii oddziaływania kulombowskiego rośnie wraz ze wzrostem szerokości bariery. Osiąga ona maksimum, gdy szerokość bariery zaczyna przekraczać 7 nm. Elektron i dziura zlokalizowane są wtedy w tej samej kropce. Włączenie pola elektrycznego powoduje, że zmienia się rozkład przestrzenny potencjału, w jakim poruszają się nośniki ładunku. Wzrost natężenia pola elektrycznego powoduje, że wartość bezwzględna energii oddziaływania kulombowskiego maleje. Jej zmiany pod wpływem pola elektrycznego uzależnione są od szerokości bariery. Im szersza bariera, tym większe zmiany wartości energii oddziaływania są obserwowane dla tego samego zakresu zmienności natężenia pola elektrycznego. W przypadku bardzo szerokich barier energia oddziaływania zmienia się skokowo. Skok energii oddziaływania przesuwa się przy wzroście szerokości bariery w stronę mniejszych wartości natężenia pola elektrycznego.

6.2. Ekscytonowy efekt Starka w podwójnej sprzężonej kropce kwantowej o niesymetrycznym potencjale uwięzienia

Kropki samozorganizowane tworzą się w postaci wysepek z powodu naprężeń pojawiających się w warstwie zwilżającej podłoże. Naprężenia te wynikają z niedopasowania stałych sieciowych obu warstw. W kropkach tego typu jak np. w $In_xGa_{1-x}As$ na podłożu z GaAs, naprężenia oraz niejednorodność rozkładu indu wewnątrz kropki powodują deformację

potencjału uwięzienia. Wskutek tego, nawet przy braku zewnętrznego pola elektrycznego ekscyton posiada niezerowy moment dipolowy [106-108]. Sheng i in. wykazali przy użyciu metody **kp**, że efekt ten prowadzi w sprzężonych samozorganizowanych kropkach kwantowych do lokalizacji dziury w jednej z kropek. Natomiast elektron z dużym prawdopodobieństwem można nadal znaleźć zarówno w dolnej jak i w górnej kropce [109]. W przybliżeniu masy efektywnej nie można uwzględnić rzeczywistej struktury naprężeń. Dopóki jednak rozważania ograniczają się tylko do jakościowego opisu zachowania ekscytonu w podwójnej kropce, można w tym modelu w bardzo prosty sposób zasymulować efekty wynikające z istnienia naprężeń w kropkach samozorganizowanych. Lokalizację dziury w jednej z kropek, przy braku pola elektrycznego, można osiągnąć zakładając niesymetryczny rozkład potencjału uwięzienia podwójnej sprzężonej kropki kwantowej.

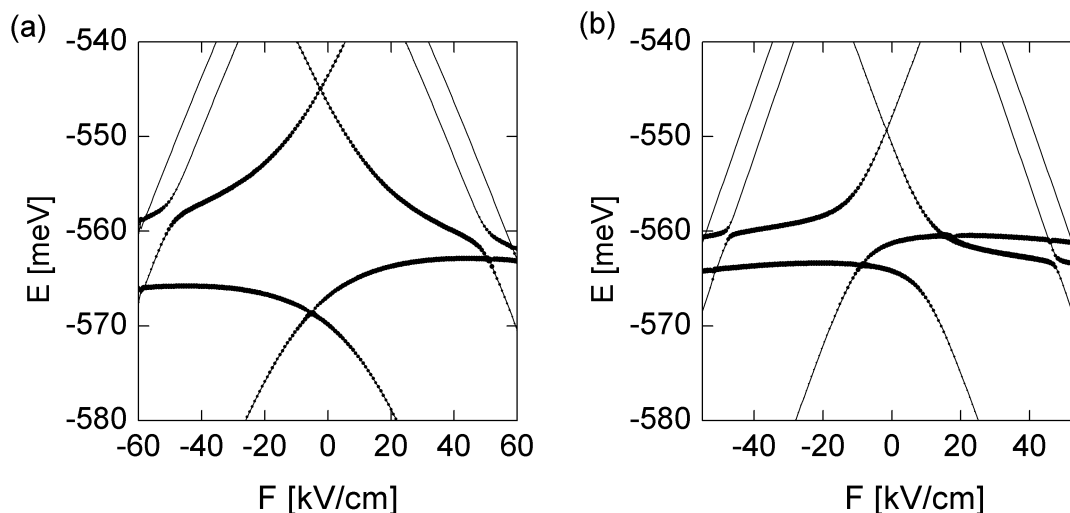
Przebiegi energii dla ekscytonu w funkcji natężenia pola elektrycznego uzyskane dla niesymetrycznego potencjału uwięzienia przedstawia rysunek 6.7(a). Niewielką asymetrię do potencjału podwójnej kropki wprowadzono zmniejszając dla dziury głębokość potencjału dolnej kropki o 3 meV (w stosunku do głębokości potencjału górnej kropki).



Rys. 6.7 (a) Energie trzech najniższych poziomów energetycznych ekscytonu w podwójnej kropce kwantowej o niesymetrycznym potencjale uwięzienia dla dziury w funkcji natężenia pola elektrycznego. Szerokość bariery oddzielającej kropki wynosi 6 nm. Wstawka przedstawia schemat potencjału uwięzienia w kierunku wzrostu kropki. (b) Widmo fotoluminescencyjne ekscytonu uwięzionego w podwójnej sprzężonej kropce kwantowej uzyskane eksperymentalnie przez Krennera i in. [110].

W kropce z symetrycznym potencjałem uwięzienia, dla małych natężeń pola elektrycznego energia stanu podstawowego była dwukrotnie zdegenerowana. Wprowadzenie asymetrii do potencjału uwięzienia dziury znosi degenerację dwóch najniższych poziomów energetycznych ekscytonu. W stanie podstawowym oba nośniki lokalizują się w górnej kropce, a w pierwszym stanie wzbudzonym przebywają one w dolnej kropce. Przy zerowym natężeniu pola elektrycznego pierwszy stan wzbudzony jest aktywny optycznie. Asymetria potencjału spowodowała także zniesienie degeneracji energii pierwszego i drugiego stanu wzbudzonego w zakresie średniego natężenia pola. W rezultacie dla dodatnich wartości natężenia pola zmiana kolejności poziomów w widmie energetycznym następuje w wyniku przecięcia się dwóch poziomów wzbudzonych. Natomiast dla ujemnych wartości natężenia pola reorganizacja widma energetycznego następuje w wyniku przecięcia się dwóch najniższych poziomów energetycznych.

Odpychanie się dwóch najniższych poziomów energetycznych w zakresie średniego natężenia pola zostało potwierdzone eksperymentalnie przez Krennera i in. [110]. Na rysunku 6.7(b) zamieszczone jest widmo fotoluminescencyjne ekscytonu uwięzionego w podwójnej kropce pochodzące z tej pracy. Widać na nim, że intensywność pików obu poziomów rzeczywiście zależy od natężenia pola elektrycznego. Energia najniższego poziomu nie jest stała w zakresie małych natężeń pola elektrycznego, lecz maleje ona liniowo przy jego zmianie. Efekt ten spowodowany jest istnieniem niezerowego momentu dipolowego, którego źródłem są naprężenia obecne wewnątrz kropki. Ponadto autorzy pracy twierdzą, że odległość pomiędzy odpychającymi się poziomami można kontrolować ustalając odpowiednio szerokość bariery oddzielającej kropki. Efekt ten także został przewidziany w rozważanym bardzo uproszczonym modelu podwójnej kropki [A6,A7]. Rysunki 6.8(a) i 6.8(b) przedstawiają przebiegi najniższych poziomów energetycznych ekscytonu w podwójnej kropce z niesymetrycznym potencjałem uwięzienia dla dziury w funkcji natężenia pola elektrycznego dla małych szerokości bariery.



Rys. 6.8 Energie najniższych poziomów energetycznych ekscytonu w podwójnej kropce kwantowej z niesymetrycznym potencjałem uwięzienia dla dziury. Szerokość bariery wynosi: (a) 3 nm (b) 4.5 nm.

Odległość pomiędzy odpychającymi się poziomami silnie zależy od szerokości bariery. Gdy szerokość bariery rośnie, wtedy odległość między nimi maleje. Za efekt ten odpowiedzialne jest tunelowanie elektronu pomiędzy kropkami (tunelowanie dziury jest ograniczone z powodu jej dużej masy).

6.3. Trionowy efekt Starka w podwójnej sprzężonej kropce kwantowej

Ekscytony charakteryzują się skończonym czasem życia. Jeżeli są wytwarzane w kropce kwantowej w wyniku absorpcji światła laserowego, to ich ilość w danej chwili zależy w dużym stopniu od natężenia wiązki laserowej. Jednak całkowita liczba elektronów i dziur znajdujących się aktualnie w obszarze kropki zależy również od przestrzennego rozkładu pola elektrycznego. Pole elektryczne może ułatwiać przejście do obszaru kropki nadmiarowych elektronów lub dziur pochodzących np. ze zjonizowanych domieszek zawartych w barierach zewnętrznych. W kropce może wówczas dojść do utworzenia naładowanych ekscytonów tzw. trionów. Trion tworzy ekscyton, do którego przyłączony jest jeden elektron lub pojedyncza dziura. Jego naturalnym odpowiednikiem jest jon H^- . W odróżnieniu od sztucznej molekuly czy ekscytonu, w trionie można wyróżnić dwa rodzaje wiązań. Jednym z nich jest wiązanie kowalencyjne, które tworzą cząstki tego samego typu np. dwa elektrony. Drugi typ wiązania ma charakter jonowy i tworzy go para elektron-dziura.

W sprzężonych samozorganizowanych kropkach kwantowych wytworzonych w InGaAs potencjał uwięzienia w kierunku poprzecznym do osi kropki jest znacznie silniejszy od potencjału uwięzienia w kierunku wzrostu [98]. Można więc założyć, że ruch nośników w kierunku poprzecznym jest zamrożony i skupić się wyłącznie na analizie efektów wynikających z kwantyzacji ruchu nośników w kierunku podłużnym zgodnym z osią kropki. Podejście takie zostało zaprezentowane w tej pracy w rozdziale trzecim i czwartym, gdy rozpatrywano układ dwóch elektronów.

W dalszej części tego rozdziału zostanie zaprezentowane rozwiązanie problemu ujemnie naładowanego trionu w opisanym powyżej modelu adiabatycznym w przybliżeniu masy efektywnej. Rozważania ograniczone są do stanu podstawowego ujemnego trionu, w którym podukład dwóch elektronów znajduje się w stanie singletowym. W celu dalszego uproszczenia problemu założono, że potencjał uwięzienia bocznego dla obu elektronów i dziury ma charakter potencjału oscylatora harmonicznego. W przybliżeniu masy efektywnej hamiltonian ujemnie naładowanego trionu przyjmuje następującą postać:

$$\hat{H}^{X^-} = \hat{H}_{e_1} + \hat{H}_{e_2} + \hat{H}_h - \frac{\kappa}{r_{e_1h}} - \frac{\kappa}{r_{e_2h}} + \frac{\kappa}{r_{12}} + V_e(z_{e_1}) + V_e(z_{e_2}) + V_h(z_h) \quad (6.14)$$

gdzie: r_{e_1h}, r_{e_2h} są względnymi odległościami pomiędzy dziurą a pierwszym i drugim elektronem, $V(z)$ jest potencjałem uwięzienia w kierunku podłużnym.

Hamiltonany jednocząstkowe występujące w powyższym równaniu mają postać:

$$\hat{H}_{e(h)} = -\frac{\hbar^2}{2m_{e(h)}^*} \nabla_{\vec{r}_{e(h)}}^2 + \frac{m_{e(h)}^* \omega_{e(h)}}{2} (x_{e(h)}^2 + y_{e(h)}^2) \quad (6.15)$$

Jeżeli ruch nośników w kierunku poprzecznym zostaje zamrożony i separuje się od ich ruchu w kierunku podłużnym, wówczas funkcję falową można przedstawić postaci rozseparowanej:

$$\Psi(\vec{r}_{e_1}, \vec{r}_{e_2}, \vec{r}_h) = \psi(x_{e_1}, y_{e_1}) \psi(x_{e_2}, y_{e_2}) \psi(x_h, y_h) \times \varphi\left(\begin{matrix} e_1 \\ e_2 \\ h \end{matrix}\right) \quad (6.16)$$

gdzie: $\psi(x, y)$ są jednocząstkowymi funkcjami falowymi stanu podstawowego

dwuwymiarowego oscylatora harmonicznego, które można wyrazić przy pomocy wzoru (2.6).

Równanie własne trionu:

$$\left(\hat{H}^{X^-} - E \right) \Psi(\vec{r}_{e_1}, \vec{r}_{e_2}, \vec{r}_h) = 0 \quad (6.17)$$

należy pomnożyć lewostronnie przez $\psi^*(x_{e_1}, y_{e_1})\psi^*(x_{e_2}, y_{e_2})\psi^*(x_h, y_h)$ i scałkować po zmiennych określających położenie każdej z cząstek w kierunku poprzecznym. Po wykonaniu tej operacji otrzymuje się hamiltonian układu zależny jedynie od zmiennych z-owych cząstek:

$$\begin{aligned} \hat{H}_{\text{eff}}^{X^-} = & -\frac{\hbar^2}{2m_e^*} \left(\frac{\partial^2}{\partial z_{e_1}^2} + \frac{\partial^2}{\partial z_{e_2}^2} \right) - \frac{\hbar^2}{2m_h^*} \frac{\partial^2}{\partial z_h^2} + V_e(z_{e_1}) + V_e(z_{e_2}) + V_h(z_h) \\ & - V_{\text{eff}}^{\text{eh}}(z_{e_1} - z_h) - V_{\text{eff}}^{\text{eh}}(z_{e_2} - z_h) \\ & + V_{\text{eff}}^{\text{ee}}(z_{e_1} - z_{e_2}) + eF(z_{e_1} + z_{e_2} - z_h) + 2\hbar\omega_e + \hbar\omega_h \end{aligned} \quad (6.18)$$

gdzie: $V_{\text{eff}}^{\text{ee}}(z)$ jest efektywnym kwazijednowymiarowym potencjałem oddziaływania wyrażającym się wzorem (2.21), a $V_{\text{eff}}^{\text{eh}}(z)$ jest jego wersją uwzględniającą wyrażenie (2.23) stosowaną dla nośników o różnych masach.

W rozważanym modelu jednowymiarowym zaniedbana została korelacja ruchu nośników w kierunku poprzecznym. Dopóki jednak rozważania ograniczają się wyłącznie do stanu podstawowego trionu, korelacja tego typu ma drugorzędne znaczenie.

Równanie własne ujemnego trionu rozwiązano numerycznie przy użyciu metody czasu urojonego. Energie liczone są względem krawędzi pasma przewodnictwa oraz pasma walencyjnego materiału bariery. W rachunkach użyto identycznego potencjału uwięzienia dla elektronu i dziury oraz identycznych parametrów materiałowych jak w problemie ekscytonu uwięzionego w symetrycznej podwójnej kropce kwantowej.

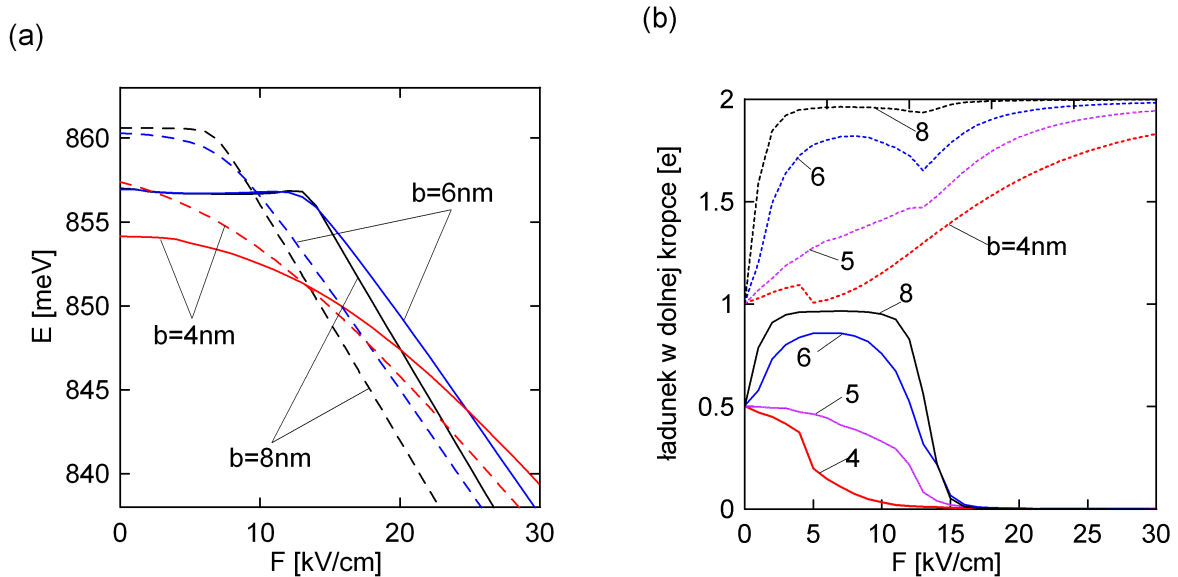
Rysunek 6.9(a) przedstawia energie rekombinacji trionu oraz ekscytonu uzyskane w modelu jednowymiarowym. Energie rekombinacji trionu obliczono według wzoru:

$$E_r^{X^-} = E^{X^-} - E^e + E_g \quad (6.19)$$

gdzie: E^{X^-} jest energią trionu, E^e jest energią elektronu (w stanie podstawowym) pozostałego po rekombinacji elektronu i dziury, a $E_g = 1.42 eV$ jest szerokością przerwy energetycznej w GaAs (materiale bariery). Natomiast energię rekombinacji ekscytonu wyznaczono zgodnie z poniższym wzorem:

$$E_r^X = E^X + E_g \quad (6.20)$$

gdzie: E^X jest energią ekscytonu w stanie podstawowym.



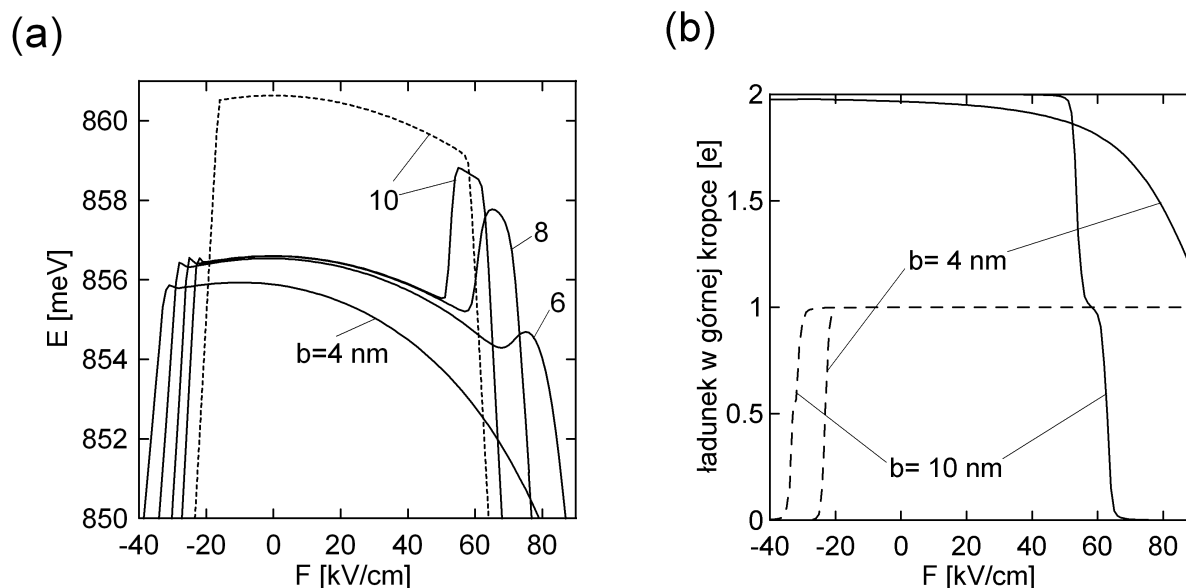
Rys. 6.9 (a) Energie rekombinacji ujemnie naładowanego trionu i ekscytonu w funkcji natężenia pola elektrycznego w podwójnej symetrycznej kropce kwantowej. Linie przerywane reprezentują energie rekombinacji ekscytonu, a linie ciągłe energie rekombinacji trionu. (b) Ilość ładunku zgromadzonego w dolnej kropce w zależności od natężenia pola elektrycznego. Linie przerywane oznaczają ładunek ujemny, a linie ciągłe ładunek dodatni.

Wskutek zwiększenia szerokości bariery energia rekombinacji trionu rośnie. Jej wzrost zostaje zatrzymany, gdy bariera osiąga szerokość 6 nm. Energia rekombinacji osiąga wtedy maksimum, a ponadto nie ulega zmianie, jeżeli natężenie pola elektrycznego jest niższe od 13 kV/cm. Przekroczenie tej wartości natężenia pola powoduje dysocjację trionu i liniowy spadek jego energii. Rekombinacja jest wtedy zabroniona ze względu na lokalizację elektronów i dziury w różnych kropkach. Dla dowolnej szerokości bariery energia rekombinacji trionu jest niższa od energii rekombinacji ekscytonu. Ponadto ekscyton dysocjuje przy prawie dwukrotnie niższym natężeniu pola elektrycznego niż trion.

Mechanizm dysocjacji trionu można przeanalizować podobnie jak w przypadku ekscytonu, badając ilość ładunku zgromadzonego w jednej z kropek. Rysunek 6.9(b) przedstawia ilość dodatniego i ujemnego ładunku zgromadzonego w dolnej kropce. Zachowanie się nośników pod wpływem przyłożonego pola elektrycznego najłatwiej przedyskutować dla przypadku trionu znajdującego się w kropce z bardzo szeroką barierą np. dla $b=8$ nm. Przy braku zewnętrznego pola elektrycznego ładunek dodatni i ujemny jest równomiernie rozdzielony pomiędzy obie studnie. Pod wpływem pola elektrycznego o niewielkim natężeniu, elektrony lokalizują się w dolnej kropce. Do kropki tej przechodzi także dziura przyciągana przez elektrony. Nośniki przebywają w tej samej kropce i rekombinacja nie jest zabroniona. Lokalizacji dziury w dolnej kropce towarzyszy wzrost jej energii elektrostatycznej wynikający z oddziaływania z polem elektrycznym. Jednakże przyciągające oddziaływanie kulombowskie dziury z elektronami może być silniejsze, jeśli natężenie pola elektrycznego nie jest zbyt duże. Ilość ładunku zgromadzonego w dolnej kropce nie ulega wówczas większym zmianom. Wzrost natężenia pola elektrycznego powoduje ostatecznie przejście dziury do górnej kropki. Zmniejsza się wtedy w niewielkim stopniu ilość ładunku ujemnego zgromadzonego w dolnej kropce. Dziura przechodząc do górnej kropki pociąga za sobą elektrony. Efekt ten jest wyraźniejszy w przypadku kropki z barierą o szerokości 6 nm. Przemieszczaniu się elektronów do górnej kropki efektywnie przeciwdziała pole elektryczne i w rezultacie dochodzi do dysocjacji trionu.

Trion tworzą trzy cząstki i dlatego mechanizm jego dysocjacji jest odmienny od mechanizmu dysocjacji ekscytonu w podwójnej symetrycznej kropce z szeroką barierą. W ekscytonie to dziura lokalizowała się w jednej z kropek pod wpływem niewielkiego natężenia pola elektrycznego. Pociągała za sobą elektron, który był następnie przenoszony do górnej kropki pod wpływem pola elektrycznego.

Zupełnie inaczej przebiega proces dysocjacji ujemnego trionu w kropce o niesymetrycznym potencjale uwięzienia. Na rysunku 6.10(a) przedstawiono energie rekombinacji trionu w kropce o niesymetrycznym potencjale uwięzienia. Szerokość górnej kropki wynosi jak poprzednio 6 nm, a szerokość dolnej kropki została zmniejszona do 4 nm. Zależności ładunku zgromadzonego w górnej (szerszej) kropce od natężenia pola elektrycznego przedstawia rysunek 6.10(b).



Rys. 6.10 (a) Energie rekombinacji ujemnie naładowanego trionu w funkcji natężenia zewnętrznego pola elektrycznego w kropce z niesymetrycznym potencjałem uwięzienia. Dla porównania linią przerywaną zaznaczono energię rekombinacji ekscytonu w podwójnej kropce z barierą o szerokości 10 nm. (b) Ładunek zgromadzony w górnej kropce w funkcji natężenia pola elektrycznego. Linia przerywana oznacza ładunek dodatni, a linia ciągła ładunek ujemny.

Energia rekombinacji trionu uwięzionego w podwójnej niesymetrycznej kropce kwantowej maleje monotonicznie przy wzroście natężenia pola elektrycznego, gdy szerokość bariery nie wygasza całkowicie możliwości tunelowania elektronu przez barierę (4 nm). W wyniku zwiększania szerokości bariery w widmie energetycznym pojawia się skok energii dla dodatnich wartości natężenia pola. Jak widać na rysunku 6.10(a), jego położenie oraz wysokość uzależnione są od szerokości bariery. Dla coraz szerszych barier wartość tego lokalnego maksimum energii rekombinacji rośnie i przesuwa się w kierunku niższych wartości natężenia pola elektrycznego.

Na rysunku 6.10(b) widać, że przy braku zewnętrznego pola elektrycznego oba elektrony i dziura zlokalizowane są w górnej kropce. Dla bardzo szerokiej bariery (10 nm) nośniki pozostają w tej kropce nawet, gdy natężenie pola elektrycznego jest duże. Wynika to z dużej różnicy poziomów jednocząstkowych w obu kropkach. Najniższy poziom energetyczny w dolnej (węższej) kropce leży znacznie powyżej najniższego poziomu w górnej (szerszej) kropce. Dopiero, gdy natężenie pola elektrycznego zmienia się w zakresie pomiędzy 50 a 55 kV/cm, jeden z elektronów przechodzi do dolnej kropki. Następuje wtedy skokowy wzrost energii rekombinacji trionu. W górnej kropce pozostaje para elektron-dziura, która tworzy ekscyton. Energia układu złożonego z ekscytonu i dodatkowego elektronu jest niższa niż energia

neutralnego ekscytonu, co widać na rysunku 6.10(a). Przyczyną tego jest różnica w energii oddziaływania kulombowskiego elektron-dziura i elektron-elektron. Rozmycie funkcji falowej dziury jest mniejsze niż rozmycie funkcji falowej elektronu z powodu znacznie większej masy efektywnej dziury. Dlatego oddziaływanie kulombowskie elektron-dziura jest silniejsze niż oddziaływanie elektron-elektron. Gdy w dolnej kropce zlokalizowany jest już jeden elektron, przejście drugiego elektronu do tej kropki jest utrudnione ze względu na silne odpychające oddziaływanie kulombowskie. Dlatego drugi elektron przechodzi do dolnej kropki, gdy natężenie pola elektrycznego zaczyna przekraczać 65 kV/cm. Na rysunku 6.10(a) widać, że dysocjacja ekscytonu następuje dla niższej wartości natężenia pola elektrycznego. W przypadku podwójnej kropki z węższą barierą (4 nm), sprzężenie tunelowe dla elektronu jest silniejsze i zlokalizowanie tylko jednego elektronu w dolnej kropce następuje dla o wiele wyższego natężenia pola elektrycznego. Zatem niezależnie od szerokości bariery, mechanizm dysocjacji ujemnego trionu w podwójnej kropce z niesymetrycznym potencjałem uwięzienia jest dwuetapowy.

7. Podsumowanie i wnioski

Celem pracy było otrzymanie teoretycznego opisu własności sztucznych molekuł i układów ekscytonowych w pojedynczych i w sprzężonych kropkach kwantowych. Jako obiekt rozważań wybrano kropki kwantowe o geometrii cylindrycznej. W pionowych kropkach kwantowych tego typu potencjał uwięzienia bocznego może być znacznie silniejszy od potencjału uwięzienia w kierunku jej osi. Wówczas poprzeczne stopnie swobody uwięzionych nośników ładunku zostają zamrożone, co oznacza że oddziaływanie kulombowskie nie zaburza jednoelektronowych funkcji falowych w kierunku poprzecznym. Korzystając z tego założenia w rozdziale drugim pokazano sposób, w jaki można uzyskać efektywny potencjał oddziaływania kulombowskiego. Argumentem takiego potencjału jest względne położenie nośników w jednym wymiarze przestrzennym. Zależy on także od parametru, którego wartość uzależniona jest od rozmycia jednocząstkowych funkcji falowych w kierunku poprzecznym do osi kropki. W granicy dużych odległości pomiędzy cząstkami wartość efektywnego kwazijednowymiarowego potencjału dąży asymptotycznie do wartości jednowymiarowego potencjału kulombowskiego. Podobnie zachowują się w tym zakresie przedstawione w tym rozdziale potencjały modelowe zawierające co najmniej jeden parametr dopasowania. Nie odtwarzają one jednak przebiegu potencjału efektywnego w zakresie małych i średnich odległości, czyli dla odległości rzędu kilku-kilkunastu nanometrów. Użycie dowolnego z tych potencjałów modelowych w obliczeniach może więc być źródłem znacznych błędów, jeżeli gęstość gazu elektronowego jest duża. Przykładem takiej sytuacji może być np. ekscyton uwięziony w drucie kwantowym. Z powodu silnego przyciągania kulombowskiego, dziura i elektron lokalizują się w tym samym obszarze przestrzennym i w efekcie ich funkcje falowe przekrywają się. Z drugiej strony, użycie w obliczeniach efektywnego kwazijednowymiarowego potencjału oddziaływania kulombowskiego czy też potencjałów modelowych powinno dawać identyczne wyniki, gdy gęstość przestrzennego rozkładu ładunku jest mała. Zastosowanie efektywnego kwazijednowymiarowego potencjału oddziaływania kulombowskiego nie ogranicza się wyłącznie do układów o symetrii cylindrycznej i parabolicznym potencjale uwięzienia bocznego. Jak pokazano w rozdziale drugim, identyczny przebieg potencjału oddziaływania otrzymano numerycznie dla dwóch elektronów uwięzionych w kropce kwantowej o kwadratowym przekroju poprzecznym. Sugeruje to, że postać tego potencjału jest uniwersalna w układach kwazijednowymiarowych. Należy tu jednak podkreślić fakt, że potencjał ten ma charakter

przybliżony. Dokładność tego przybliżenia jest tym lepsza, im silniejszy jest potencjał uwięzienia bocznego.

W rozdziałach trzecim oraz czwartym przedyskutowane zostały układy dwóch elektronów uwięzionych w pojedynczej oraz w podwójnej pionowej sprzężonej kropce kwantowej z parabolicznym potencjałem uwięzienia bocznego. W obu przypadkach obliczenia wykonano w modelu jednowymiarowym z użyciem efektywnego kwazjednowymiarowego potencjału oddziaływania. Zaletą takiego podejścia jest redukcja liczby zmiennych niezależnych, dzięki czemu możliwe jest dokładne numeryczne rozwiązanie problemu własnego układu dwóch elektronów. Z drugiej strony, wadą tego modelu jest to, że ruch elektronów jest skorelowany tylko w kierunku podłużnym, natomiast pozostałe efekty korelacyjne są pomijane.

W pojedynczej kropce kwantowej o małych rozmiarach korelacja elektronowa jest zanedbywalna, gdyż energia uwięzienia zdecydowanie dominuje nad oddziaływaniem kulombowskim elektronów. Jednak rola korelacji rośnie w miarę zwiększania się rozmiarów podłużnych kropki. Gdy kropka staje się odpowiednio duża, dochodzi do rozdzielenia elektronów i utworzenia molekuly Wignera. Obliczenia przeprowadzone w modelu jednowymiarowym przy użyciu ograniczonej metody Hartree-Focka pokazują, że w wyniku całkowitego zaniechania korelacji elektronowej utworzenie molekuly Wignera nie jest możliwe. Natomiast w nieograniczonej metodzie Hartree-Focka możliwość taka istnieje dzięki częściowemu uwzględnieniu efektów korelacyjnych. Procesowi tworzenia się molekuly Wignera w nieograniczonej metodzie Hartree-Focka towarzyszy równoczesne zmniejszenie błędu energii układu w stanie podstawowym. Efekty korelacyjne wynikające z ruchu elektronów w kierunku podłużnym mają decydujące znaczenie dla własności elektronowych struktur kwazjednowymiarowych. Zmniejszenie gęstości gazu elektronowego i pojawienie się wyspowego rozkładu gęstości prawdopodobieństwa w granicy dużych rozmiarów pojedynczej kropki kwantowej jest przyczyną występowania degeneracji poziomów energetycznych. Zdegenerowane stają się poziomy energetyczne odpowiadające stanom singletowym i trypletowym, których rozkłady dwuelektronowych gęstości ładunku charakteryzują się identyczną symetrią przestrzenną. Degeneracja energii w stanach singletowych i trypletowych pojawia się także w granicy małych rozmiarów pojedynczej kropki. Przyczyną tej degeneracji jest niezmienniczość hamiltonianu układu dwóch elektronów względem zamiany współrzędnych środka masy i ruchu względnego pojawiająca się w warunkach, gdy oddziaływanie kulombowskie jest małe w porównaniu z energią uwięzienia i można je zaniechać.

Gdy dwa elektrony zostaną umieszczone w podwójnej sprzężonej kropce kwantowej, wówczas właściwości takiego układu uzależnione są od szerokości bariery oddzielającej studnie

potencjału. Jeżeli bariera jest bardzo wąska (ok. 1 nm), sprzężenie tunelowe pomiędzy kropkami jest bardzo silne i z dużym prawdopodobieństwem można znaleźć oba elektrony w tej samej studni. Wraz ze wzrostem szerokości bariery powodującym ograniczenie tunelowania elektronów przez barierę rośnie rola korelacji elektronowej. Elektrony znajdujące się w podwójnej kropce zostają rozdzielone, gdy szerokość bariery przekracza 6 nm. Zatem zwiększanie szerokości bariery wywołuje ten sam efekt, co zwiększanie rozmiarów w przypadku pojedynczej kropki. Również w tym przypadku tylko nieograniczona metoda Hartree-Focka potrafi odtworzyć wyniki dokładne w zakresie silnie skorelowanym. Zastosowanie ograniczonej metody Hartree-Focka prowadzi do uzyskania błędnych wyników. Podobnie jak w przypadku dwóch elektronów znajdujących się w pojedynczej kropce, błąd tej metody ma charakter ilościowy ze względu na złe oszacowanie energii układu oraz jakościowy, ponieważ elektrony nie mogą być rozdzielone.

Jeżeli potencjał uwięzienia w kierunku podłużnym jest parzysty, to w granicy szerokiej bariery energie w stanach wzbudzonych układu dwóch elektronów stają się zdegenerowane. W tym przypadku możliwa jest nawet czterokrotna degeneracja. Ruch obu elektronów jest wtedy silnie skorelowany. W stanie podstawowym układu elektrony są rozdzielone. Natomiast w wyższych stanach wzbudzonych elektrony mogą znajdować się w tej samej kropce, ponieważ musi być spełniony warunek ortogonalności funkcji falowych dwóch dowolnych stanów układu. W rezultacie poziomy energetyczne odpowiadające kolejnym parom stanów są od siebie wyraźnie odseparowane.

Zastosowany do problemu dwóch elektronów model jednowymiarowy jest ograniczony, gdyż nie uwzględnia możliwości wzbudzeń w kierunku poprzecznym. W przypadku większej liczby cząstek wzbudzenia takie mogą pojawiać się nawet w stanie podstawowym układu. Dlatego do rozwiązania problemu własnego układu złożonego z większej liczby cząstek zastosowano metodę funkcjonału gęstości w przybliżeniu lokalnym (LSDA). Wyniki obliczeń wykonanych przy użyciu metody LSDA w układzie dwóch, trzech i czterech elektronów znajdujących się w podwójnej pionowej kropce kwantowej o symetrii cylindrycznej przedstawione zostały w rozdziale piątym. Większość prac teoretycznych dotyczących obliczeń wykonanych przy użyciu jednej z metod funkcjonału gęstości ogranicza się do analizy energii stanu podstawowego układu. Zazwyczaj pomijane są kwestie związane z własnościami funkcji falowej układu. Dlatego w rozdziale piątym duży nacisk położono na analizę własności funkcji falowej układu kilku elektronów uzyskanej w metodzie LSDA. W celu ułatwienia takiej analizy wprowadzono pomocnicze wielkości tj. parzystość jednoelektronową oraz prawdopodobieństwo

względne. Aby uzyskać odpowiedź, na ile wyniki uzyskane w tej metodzie są dokładne, porównano je z wynikami uzyskanymi w metodzie mieszania konfiguracji.

Okazuje się, że zastosowanie metody LSDA w wersji, w której funkcje jednoelektronowe mogą łamać symetrię potencjału zewnętrznego, pozwala na uzyskanie dużej dokładności przy liczeniu energii nie tylko w stanie podstawowym, ale również w przypadku kilku najniższych energetycznie stanów wzbudzonych. Zgodność energii nie przenosi się jednak na zgodność funkcji falowych. W ogólności, metoda LSDA odtwarza własności dokładnej funkcji falowej jedynie w dwóch skrajnych przypadkach tj. w granicy zerowej oraz bardzo szerokiej bariery. W tym drugim przypadku obie kropki, w których są zlokalizowane elektrony można traktować jakby były od siebie odseparowane. Elektrony z przeciwnych kropek oddziałują ze sobą jedynie poprzez oddziaływanie kulombowskie. Dlatego w granicy szerokiej bariery układ można traktować jako dwa podukłady. Każdy podukład składający się z elektronów przebywających w tej samej kropce można z drugiej strony traktować jako układ, w którym ruch elektronów jest nieskorelowany ze względu na dużą energię kinetyczną wynikającą z małych rozmiarów podłużnych kropek. Korelacja elektronowa powoduje w tym przypadku złamanie symetrii w funkcjach jednoelektronowych i w rezultacie lokalizację elektronów w osobnych kropkach. Własności funkcji falowych uzyskanych w metodzie LSDA wykazują największe odstępstwa, gdy zwiększa się szerokość bariery przechodząc z jednego do drugiego zakresu. Jedynie w kilku przypadkach wartości oczekiwane operatora parzystości jednoelektronowej oraz wartości prawdopodobieństw względnych zgadzają się z wartościami dokładnymi dla dowolnej szerokości bariery. Zgodność ta jest jednak przypadkowa. Pojawia się ona wówczas, gdy do konstrukcji funkcji falowej układu używane są co najmniej dwie jednoelektronowe funkcje falowe, których części spinowe są identyczne, natomiast części przestrzenne tych funkcji falowych są ortogonalne (wyłączając z tego zależność kątową). Podobną sytuację stwierdzono w przypadku rozkładów dwuelektronowej gęstości prawdopodobieństwa uzyskanych w metodzie czasu urojonego i w metodzie Hartree-Focka w modelu jednowymiarowym dla stanu trypletowego.

W rozdziale szóstym przedyskutowane zostały własności ekscytonu i ujemnie naładowanego trionu w podwójnej pionowej kropce kwantowej. Ze względu na bardzo uproszczony model kropki kwantowej i przyjęte założenia, wyniki tych obliczeń mają charakter wyłącznie jakościowy. Uzyskane wyniki wskazują na ważną rolę, jaką odgrywa oddziaływanie kulombowskie w procesie dysocjacji zarówno neutralnego, jak i ujemnie naładowanego ekscytonu. Pole elektryczne wpływa znacząco na wielkość sprzężenia tunelowego pomiędzy kropkami. Pojawiająca się w ten sposób możliwość kontroli sprzężenia tunelowego przy użyciu

pola elektrycznego ogranicza się jednak wyłącznie do elektronu. Dziura łatwo lokalizuje się w jednej z kropek pod wpływem pola o niewielkim natężeniu, które w tym zakresie bardzo słabo wpływa na zmianę sprzężenia tunelowego elektronu. Wynika to z różnicy mas efektywnych tych nośników ładunku. Dziura ze względu na dużą masę (w stosunku do elektronu) jest bardziej podatna na działanie pola elektrycznego. Natomiast elektron ze względu na małą masę efektywną bardzo łatwo penetruje wąską barierę. W rezultacie zależność energii ekscytonu od natężenia pola elektrycznego w stanie podstawowym tylko nieznacznie różni się od przebiegu parabolicznego jaki obserwuje się w pojedynczej kropce. Wraz ze zwiększaniem szerokości bariery zanika sprzężenie tunelowe pomiędzy kropkami i rośnie rola korelacji elektron-dziura. Dziura i elektron lokalizują się w tej samej studni potencjału, co powoduje wzrost energii oddziaływania kulombowskiego. Jeżeli wartość natężenia pola elektrycznego nie przekracza kilkunastu kV/cm, wówczas wzajemne przyciąganie się elektronu i dziury skutecznie przeciwdziała dysocjacji ekscytonu. Jak pokazano w rozdziale szóstym, wprowadzenie asymetrii mającej częściowo symulować naprężenia występujące w kropkach samozorganizowanych, powoduje rekonfigurację widma energetycznego ekscytonu w efekcie Starka. Dla dodatnich wartości natężenia pola elektrycznego dysocjacji ekscytonu w stanie podstawowym towarzyszy wzrost prawdopodobieństwa rekombinacji w pierwszym stanie wzbudzonym. Stan wzbudzony staje się w ten sposób stanem aktywnym optycznie. W tym zakresie poziomy energetyczne odpowiadające obu tym stanom wyraźnie się odpychają. Przewidziany teoretycznie efekt odpychania dwóch najniższych poziomów energetycznych wraz towarzyszącą mu zmianą aktywności optycznej obu stanów ekscytonu pod wpływem pola elektrycznego, został zaobserwowany eksperymentalnie przez Krennera i in. [110]. W eksperymencie tym widoczny jest także wyraźny wpływ wewnętrznych naprężeń na widmo energetyczne ekscytonu. Naprężenia indukują moment dipolowy o stałej wartości. W rezultacie w widmie fotoluminescencyjnym można wyróżnić obszary, w których energia ekscytonu maleje liniowo przy zwiększaniu natężenia pola elektrycznego zarówno w stanie podstawowym, jak i w stanie wzbudzonym.

Również na podstawie wyników obliczeń przeprowadzonych dla ujemnie naładowanego ekscytonu (trionu) w podwójnej kropce można stwierdzić, że oddziaływanie kulombowskie jest tym czynnikiem, który ma decydujący wpływ na zachowanie się układu poddanego działaniu zewnętrznego pola elektrycznego. Otrzymane wyniki wskazują na istnienie dwóch mechanizmów dysocjacji ujemnie naładowanego trionu w zależności od geometrii potencjału uwięzienia. W podwójnej kropce kwantowej o symetrycznym potencjale uwięzienia proces dysocjacji ma podobny charakter jak w przypadku neutralnego ekscytonu. Gdy jednak sprzężone

kropki różnią się kształtem, wówczas rozpad takiego kompleksu pod wpływem pola elektrycznego następuje poprzez przeniesienie elektronów jednego po drugim z szerszej kropki do węższej. Takie zachowanie się układu powoduje charakterystyczny skok energii rekombinacji trionu w stanie podstawowym dla dodatnich wartości natężenia pola elektrycznego. Podobny efekt został zaobserwowany w eksperymencie przeprowadzonym przez Oulton i in. [111]. W dwóch przypadkach zauważono wzrost energii rekombinacji, przy zwiększaniu natężenia pola elektrycznego. Jednakże rejestrowane w tym eksperymencie fotony pochodziły z dolnej, a więc węższej kropki. Prawdopodobnie oznacza to, że rekombinacja jednego z elektronów i dziury zachodziła w stanie wzbudzonym trionu. Niestety, ze względu na ograniczenia jakie wynikają z zastosowania modelu jednowymiarowego użytego do rozwiązania problemu ujemnego trionu, hipoteza ta nie została zweryfikowana.

Powyższa dyskusja zawartych w pracy wyników obliczeń wskazuje, że przestrzenna korelacja oddziaływujących ze sobą nośników ładunku ma istotny wpływ na własności sztucznych molekuł w pojedynczych i sprzężonych kropkach kwantowych. W takich układach można sterować „wielkością korelacji” zmieniając rozmiary pojedynczej kropki kwantowej lub szerokość bariery w podwójnej kropce. W skrajnym przypadku silnej korelacji w pojedynczych kropkach kwantowych dochodzi do rozkładu sztucznego atomu na molekułę Wignera.

Pominięcie znacznej części efektów korelacyjnych w ograniczonej metodzie Hartree-Focka czy w ograniczonej metodzie LSDA prowadzi zarówno do błędów ilościowych w wyznaczeniu poziomów energetycznych jak i błędów jakościowych polegających na zamianie kolejności poziomów singletowego i trypletowego. Z tego powodu powyższe metody nie przewidują także możliwości utworzenia molekuły Wignera, gdy układ elektronowy znajdujący się w stanie singletowym staje się silnie skorelowany.

Użycie w obliczeniach metod pola średniego tzw. nieograniczonych, takich jak UHF, czy U-LSDA pozwala na lepsze uwzględnienie efektów korelacyjnych. Metody te pozwalają na złamanie przez funkcje falowe symetrii potencjału zewnętrznego. Jest to wystarczające, by uniknąć zamiany poziomów energetycznych singletowego i trypletowego w układzie dwóch elektronów. Ponadto, jak pokazano w pracy, przy użyciu metody U-LSDA można również dobrze odtworzyć kilka najniższych poziomów energetycznych w układach wieloelektronowych.

Przy stopniowym zwiększaniu udziału korelacji (w funkcji rozmiaru pojedynczej kropki lub szerokości bariery w kropce podwójnej) obie metody naśladują z pewnym opóźnieniem rozwiązania dokładne. W obszarze słabej i silnej korelacji metody te dają w większości przypadków poprawne funkcje falowe. W obszarze pośrednich korelacji, funkcje falowe mogą

nie posiadać właściwej symetrii, nawet w przypadku gdy energia poziomu jest dobrze odtworzona.

Zmieniając szerokość bariery w podwójnych kropkach kwantowych można również sterować korelacją elektron-dziura w układach ekscytonowych. Analiza zachowania się takich układów poddanych działaniu zewnętrznego pola elektrycznego wskazuje, że korelacja elektron-dziura (kulombowska) może być kontrolowana w szerokim zakresie. Pojawiająca się w ten sposób możliwość sterowania intensywnością zachodzących procesów rekombinacyjnych może znaleźć praktyczne zastosowanie w inżynierii kwantowej.

Literatura autorska

- [A1] Bednarek S., Szafran B., Chwiej T., Adamowski J.: *Effective interaction for charge carriers confined in quasi-one-dimensional nanostructures*, *Phys. Rev. B.* 68, 45328 (2003).
- [A2] Bednarek S., Chwiej T., Adamowski J., Szafran B.: *Artificial molecules in coupled and single quantum dots*, *Phys. Rev. B.* 67, 205316 (2003).
- [A3] Szafran B., Peeters F. M., Bednarek S., Chwiej T., Adamowski J.: *Spatial ordering of charge and spin in quasi-one-dimensional Wigner molecules*, *Phys. Rev. B* 70, 35401(2004).
- [A4] Bednarek S., Chwiej T., Adamowski J., Szafran B.: *Correlation in Two-Electron Systems in Coupled Quantum Dots*, *Acta Phys. Pol. B* 34, 637(2003).
- [A5] Bednarek S., Szafran B., Chwiej T., Adamowski J.: *Electron Pairs and Excitons in Quasi-One-Dimensional Nanostructures*, *Acta Phys. Pol. A* 103, 567 (2003).
- [A6] Szafran B., Chwiej T., Peeters F.M., Bednarek S., Adamowski J., Partoens B.: *Exciton and negative trion dissociation by an external electric field in vertically coupled quantum dots*, *Phys. Rev. B* (w druku), cond-mat/0503244.
- [A7] Chwiej T., Bednarek S., Adamowski J., Szafran, B., Peeters F.M.: *Coulomb-interaction driven anomaly in the Stark effect for an exciton in vertically coupled quantum dots*, *J. Lumin.* 112, 122 (2005).
- [A8] Szafran B., Chwiej T., Peeters F.M., Bednarek S., Adamowski J.: *Stability of negative and positive trions in quantum wires*, *Phys. Rev. B* (w druku), cond-mat/050125

Literatura

- [1] Tarucha S., Austing D. G., Honda T., van der Hage R. J., Kouwenhoven L. P.: *Phys. Rev. Lett.* 77, 3613 (2001).
- [2] Reimann S. M., Manninen M.: *Rev. Mod. Phys.* 74, 1283 (2002).
- [3] Banin U., Lee C. J., Guzelian A.A., Kadavanich A.V., Alivisatos A.P., Jaskólski W., Bryant G.W., Efros Al. L., Rosen M.: *J. Chem. Phys.* 109, 2306 (1998)
- [4] Gangopadhyay S., Nag B. R.: *Nanotechnology* 8, 14 (1997).
- [5] Gerald Bastard: *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*, Les Editions de Physique, Les Ulis (1988).
- [6] Jacak L., Hawrylak P., Wójs A.: *Kropki kwantowe*, Oficyna Wydawnicza Politechniki Wrocławskiej, Wrocław (1996).
- [7] Kouwenhoven L. P., Austing D. G., Tarucha S.: *Rep. Prog. Phys.* 64, 701 (2001).
- [8] Filinov A. V., Peeters F. M., Riva C., Lozovik Y.E., Bonitz M.: *Few-Body Systems* 34, 149-154 (2004).
- [9] Kogan A., Granger G., Kastner M. A., Goldhaber-Gordon D., Shtrikman H.: *Phys. Rev. B* 67, 113309 (2003).
- [10] Ferry D.K., Khoury M., Gerousis C., Rack M.J., Gunther A., Goodnick S.M.: *Physica E* 9, 69-75 (2001).
- [11] Grundmann M.: *Physica E* 5, 167 (2000).
- [12] Klimov V. I., Mikhailovsky A. A., Xu S., Malko A., Hollingsworth J. A., Leatherdale C. A., Eisler H. J., Bawendi M. G.: *Science* 13, 290 (2000).
- [13] Bailey R.E., Smith A. M., Nie S.: *Physica E* 25, 1 (2004).
- [14] Lent C. S., Isaksen B.: *IEEE Trans. Elec. Dev.* 50, 1890 (2003).
- [15] Orlov A. O., Amlani I., Kumamuru R. K., Ramasubramaniam R., Toth G., Lent C. S., Bernstein G. H., Snider G. L.: *Appl. Phys. Lett.* 77, 295 (2000).
- [16] Goddard W. A., Brenner D. W., Lyshevski S. E., Iafrate G. J.: *Handbook of nanoscience, enrineering and technology*, CRC Press, (2003).
- [17] Elzerman J.M., Hanson R., Greidanus J.S., van Beveren L.H., De Franceschi S., Vandersypen L.M., Tarucha S., Kouwenhoven L.P.: *Physica E* 25, 135-141 (2004).

-
- [18] Waugh F.R., Berry M.J., Mar D.J., Westervelt R.M., Campman K.L., Gossard A.C.: *Phys. Rev. Lett.* 75, 705 (1995).
- [19] Krahn R., Gudmundsson V., Heyn C., Heitmann D.: *Phys. Rev. B* 63, 195303 (2001).
- [20] Maranowski K. D., Gossard A. C., Unterrainer K., Gornik E.: *Appl. Phys. Lett.* 69, 3522 (1996).
- [21] Matagne P., Leburton J.P., Austing D.G., Tarucha S.: *Physica E* 13, 679 (2002).
- [22] Koskinen M., Manninen M., Reimann S. M.: *Phys. Rev. Lett.* 79, 1389 (1997).
- [23] Sasaki S., Austing D.G., Tarucha S.: *Physica B* 256-258, 157-160 (1998).
- [24] Kouwenhoven L.P., Oosterkamp T.H., Tarucha S., Austing D.G., Honda T.: *Physica B* 249-251, 191-196 (1998).
- [25] Motohisa J., van der Wiel W.G., Elzerman J.M., De Franceschi S., Nakajima F., Ogasawara Y., Fuku T., Kouwenhoven L.P.: *Physica E* 13, 687 (2002).
- [26] Tarucha S., Honda T., Austing D.G., Tokura Y., Muraki K., Oosterkamp T.H., Janssen J.W., Kouwenhoven L.P.: *Physica E* 3, 112 (1998).
- [27] Hatano T., Stopa M., Yamaguchi T., Ota T., Yamada K., Tarucha S.: *Phys. Rev. Lett.* 93, 66806 (2004)
- [28] Reimann S.M., Persson M., Lindelof P.E., Brack M.: *Z. Phys. B* 101, 377 (1996).
- [29] De Franceschi S., Sasaki S., Elzerman J. M., van derWiel W. G., Tarucha S., Kouwenhoven L. P.: *Phys. Rev. Lett.* 86, 878 (2001).
- [30] van der Wiel W. G., De Franceschi S., Elzerman J. M., Fujisawa T., Tarucha S., Kouwenhoven L. P.: *Rev. Mod. Phys.* 75, 1-22 (2003).
- [31] Bakkers E. P. A. M., Hens Z., Zunger A., Franceschetti A., Kouwenhoven L. P., Gurevich L., Vanmaekelbergh D.: *Nano Lett.* 1, 551 (2001).
- [32] Brodsky M., Zhitenev N.B., Ashoori R. C., Pfeiffer L. N., West K.W.: *Phys. Rev. Lett.* 85, 2356 (2000).
- [33] Zhitenev N. B., Brodsky M., Ashoori R. C., Pfeiffer L. N., West K. W.: *Science* 285, 30 (1999).
- [34] Ashoori R. C.: *Nature* 379, 413 (1996).
- [35] Maksym P.A., Imamura H., Mallon G.P., Aoki H.: *J.Phys: Condens. Matter* 12, R299 (2000).
- [36] Kouwenhoven L. P., Oosterkamp T. H., Danoesastro M. W. S., Eto M., Austing D. G., Honda T., Tarucha S.: *Science* 278, 1788-1792 (1997).

-
- [37] Tarucha S., Austing D.G., Sasaki S., Tokura Y., Elzerman J.M., van der Wiel W., de Franceschi S., Kouwenhoven L.P.: *Physica E* 10, 45 (2001).
- [38] Imamura H., Aoki H., Maksym P. A.: *Physica B* 256-258, 194 (1998).
- [39] Austing D.G., Tamura H., Tokura Y., Muraki K., Amaha S., Ono K., Tarucha S.: *Physica E* 10, 112 (2001).
- [40] Tarucha S., Austing D.G., Sasaki S., Tokura Y., van der Wiel W., Kouwenhoven L.P.: *Appl. Phys. A* 71, 367–378 (2000).
- [41] Austing D.G., Tokura Y., Tarucha S., Oosterkamp T.H., Janssen J.W., Danoesastro M.W.S., Kouwenhoven L.P.: *Physica E* 6, 358 (2000).
- [42] Hansen W., Smith T.P., Lee K.Y., Hong J.M., Knoedler C.M.: *Appl. Phys. Lett.* 56, 168 (1990).
- [43] Jones R.O., Gunnarsson O.: *Rev. Mod. Phys.* 61, 689 (1989).
- [44] Szafran B., Adamowski J., Bednarek S.: *Phys. Rev. B* 61, 1971 (2000).
- [45] Skolnick M.S., Mowbray D.J.: *Physica E* 21, 155-163 (2004).
- [46] Jin P., Li C. M., Zhang Z. Y., Liu F. Q., Chen Y. H., Ye X. L., Xu B., Wang Z. G.: *Appl. Phys. Lett.* 85, 2791 (2004).
- [47] Timp G.: *Nanotechnology*, Springer-Verlag, New York, 1999.
- [48] Ohlsson B.J., Bjork M.T., Persson A.I., Thelander C., Wallenberg L.R., Magnusson M.H., Deppert K., Samuelson L.: *Physica E* 13, 1126 (2002).
- [49] Bjork M.T., Ohlsson B.J., Sass T., Persson A.I., Thelander C., Magnusson M.H., Deppert K., Wallenberg L.R., Samuelson L.: *Appl. Phys. Lett.* 80, 1058 (2002).
- [50] Bachtold A., Strunk C., Salvetat J.P., Bonard J. M., Forro L., Nussbaumer T., Schonenberger C.: *Nature* 397, 673 (1999).
- [51] Derycke V., Martel R., Appenzellet J., Avouris P.: *Nano Lett.* 1, 453 (2001).
- [52] Ashoori R.C., Stormer H.L., Weiner J.S., Pfeiffer L.N., Pearton S.J., Baldwin K.W., West K.W.: *Phys. Rev. Lett.* 68, 3088(1992).
- [53] Tokura Y., Kouwenhoven L.P., Austing D.G., Tarucha S., *Physica B* 246, 83 (1998).
- [54] Bryant G. W.: *Phys. Rev. Lett.* 59, 1140 (1987).
- [55] Jauregui K., Hausler W., Kramer B.: *Europhys. Lett.* 24. 581 (1993).
- [56] Schulz H.J.: *Phys. Rev. Lett.* 71, 1864 (1993).
- [57] Fabrizio M., Gogolin A.O., Scheidl S.: *Phys Rev. Lett.* 72, 2235 (1994).
- [58] Egger R., Grabert H.: *Phys. Rev. B* 55, 9929 (1997).
- [59] Zhang F.C., Das Sarma S.: *Phys. Rev. B* 33, 2903 (1986).

-
- [60] Fuchs C., von Baltz R.: *Phys. Rev. B* 63, 085318 (2001).
- [61] Baker J.A., O'Reilly E.P.: *Phys. Rev. B* 61, 13840 (2000).
- [62] Esser A., Zimmermann R., Runge E.: *Phys. Stat. Sol.* 227, 317-330 (2001).
- [63] Szafran B., Adamowski J., Bednarek S.: *Physica E* 5, 185 (2000).
- [64] Austing D.G., Honda T., Muraki K., Tokura Y., Tarucha S.: *Physica B* 249-251, 206 (1998).
- [65] Davies K. T., Flocard H., Krieger S., Weiss M. S.: *Nucl. Phys. A* 342, 112 (1980).
- [66] Yannouleas C., Landman U.: *Eur. Phys. J. D* 16, 373-380 (2001).
- [67] Yannouleas C., Landman U.: *Int. J. Quan. Chem.* 90, 699-708 (2002).
- [68] Wensauer A., Steffens O., Suhrke M., Rössler U.: *Phys. Rev. B* 62, 2605 (2000).
- [69] Harju A., Rasanen E., Saarikoski H., Puska M. J., Nieminen R. M., Niemela K.: *Phys.Rev. B* 69, 153101 (2004).
- [70] Greiner W.: *Quantum mechanics - an introduction*, Springer, New York (1994).
- [71] Salejda W.: *Algebraiczne metody rozwiązywania równania Schrodingera*, Wydawnictwo Naukowe PWN, Warszawa (2002).
- [72] Kohn W., Sham L.J.: *Phys. Rev.* 140, A1133 (1965).
- [73] Tong B.Y., Sham L.J.: *Phys. Rev.* 144, 1 (1966).
- [74] Perdew J.P., Zunger A.: *Phys. Rev. B* 23, 5048 (1981).
- [75] Ceperley D.M., Alder B.J.: *Phys. Rev. Lett.* 45, 566 (1980).
- [76] Iafrate G.J., Hess K., Krieger J.B., Macucci M.: *Phys. Rev. B* 52, 10737 (1995).
- [77] Melnikov D.V., Chelikowsky J.R.: *Phys. Rev. B* 69, 113305(2004).
- [78] Guffarth F., Rodt S., Schliwa A., Potschke K., Bimberg D.: *Physica E* 25, 261-270 (2004).
- [79] Schmidt O.G., Rastelli A., Kar G.S., Songmuang R., Kiravittaya S., Stoffel M., Denker U., Stuer S., Zrenner A., Grutzmacher D., Nguyen B.Y., Wennekers P.: *Physica E* 25, 280-287 (2004).
- [80] Szymanska M. H., Littlewood P. B., Needs R. J.: *Phys. Rev. B* 63, 205317 (2000).
- [81] Schuster R., Hajak H., Reinwald M., Wegscheider W., Schuh D., Bichler M., Abstreiter G.: *Physica E* 21, 236-240 (2004).
- [82] Tsurumachi N., Son C. S., Kim T. G., Hikosaka K., Komori K., Ogura M.: *Physica E* 21, 300-303 (2004).
- [83] Pauc N., Calvo V., Eymery J., Fournel F., Magnea N.: *Phys. Rev. Lett.* 92, 236802 (2004).

-
- [84] Yu P.W., Reynolds D.C., Sanders G.D., Bajaj K.K., Stutz C.E., Evans K.R.: *Phys. Rev. B* 43, 4344(1991).
- [85] Orlita M., Grill R., Zvára M., Döhler G. H., Malzer S., Byszewski M., Soubusta J.: *Phys. Rev. B* 70, 075309 (2004).
- [86] Heller W., Bockelmann U., Abstreiter G.: *Phys. Rev. B* 57, 6270 (1998).
- [87] Heitz R., Stier O., Mukhametzhanov I., Madhukar A., Bimberg D.: *Phys. Rev. B* 62, 11017 (2000).
- [88] Fry P.W., Itskevich I. E., Mowbray D. J., Skolnick M. S., Finley J. J., Barker J. A., O'Reilly E. P., Wilson L. R., Larkin I. A., Maksym P. A., Hopkinson M., Al-Khafaji M., David J. P. R., Cullis A. G., Hill G., Clark J. C.: *Phys. Rev. Lett.* 84, 733 (2000).
- [89] Finley J.J., Sabathil M., Oulton R., Tartakovskii A.I., Mowbray D.J., Skolnick M.S., Liew S., Migliorato M., Hopkinson M., Vogl P.: *Physica E* 21, 199-203 (2004).
- [90] Ortner G., Schwab M., Borri P., Langbein W., Woggon U., Bayer M., Fafard S., Wasilewski Z., Hawrylak P., Lyanda-Geller Y.B., Reinecke T.L., Forchel A.: *Physica E* 25, 256-267 (2004).
- [91] Langbein W., Borri P., Woggon U., Schwab M., Bayer M., Fafard S., Wasilewski Z., Hawrylak P., Stavarache V., Reuter D., Wieck A.D.: *Physica E* 26, 400-407 (2005).
- [92] Cho E.T., Lee H.D., Lee D.W., Lee J.I., Jung S.I., Yoon J.J., Leem J.Y., Han I.K.: *Physica E* 26, 276-280 (2005).
- [93] Inada M., Umezu I., Vaccaro P.O., Yamada S., Sugimura A.: *Physica E* 21, 317-321 (2004).
- [94] Nakaoka T., Tatebayashi J., Arakawa Y.: *Physica E* 21, 409-413 (2004).
- [95] Sasakura H., Adachi S., Muto S., Song H.Z., Miyazawa T., Nakata Y.: *Physica E* 21, 511-515 (2004).
- [96] Ortner G., Bayer M., Kress A., Forchel A., Lyanda-Geller Y.B., Reinecke T.L.: *Physica E* 21, 171-174 (2004).
- [97] Troiani F., Hohenester U., Molinari E.: *Phys. Rev. B* 65, 161301 (2002).
- [98] Szafran B., Bednarek S., Adamowski J.: *Phys. Rev. B* 64, 125301 (2001).
- [99] Patane A., Levin A., Polimeni A., Schindler F., Main P. C., Eaves L., Henini M.: *Appl. Phys. Lett.* 77, 2979 (2000).
- [100] Raymond S., Reynolds J. P., Merz J. L., Fafard S., Feng Y., Charbonneau S.: *Phys. Rev. B* 58, 13 415 (1998).
- [101] Marvin L. Cohen, Chelikowsky J. R.: *Electronic structure and optical properties of*

semiconductors, Springer, Berlin (1988).

- [102] Masumoto Y., Takagahara T.: *Semiconductor quantum dots. Physics, spectroscopy and applications*, Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg (2002).
- [103] Halonen V., Chakraborty T., Petilainen P.: *Phys. Rev. B* 45, 5980 (1992).
- [104] Szafran B., Stébé B., Adamowski J., Bednarek S.: *Phys. Rev. B* 66, 165331 (2002).
- [105] Bellucci D., Troiani F., Goldoni G., Molinari E.: *Phys. Rev. B* 70, 205332 (2004).
- [106] Finley J. J., Sabathil M., Vogl P., Abstreiter G., Oulton R., Tartakovskii A. I., Mowbray D. J., Skolnick M. S., Liew S. L., Cullis A. G., Hopkinson M.: *Phys. Rev. B* 70, 201308 (2004).
- [107] Sugisaki M., Ren H.W., Nair S. V., Nishi K., Masumoto Y.: *Phys. Rev. B* 66, 235309 (2002).
- [108] Warburton R. J., Schulhauser C., Haft D., Schaflein C., Karrai K., Garcia J. M., Schoenfeld W., Petroff P. M.: *Phys. Rev. B* 65, 113303 (2002).
- [109] Sheng W., Leburton J.P.: *Phys. Rev. Lett.* 88, 167401 (2002).
- [110] Krenner H. J., Sabathil M., Clark E. C., Kress A., Schuh D., Bichler M., Abstreiter G., Finley J. J.: *Phys. Rev. Lett.* 94, 057402 (2005).
- [111] Oulton R., Tartakovskii A.I., Ebbens A., Finley J.J., Mowbray D.J., Skolnick M.S., Hopkinson M.: *Physica E* 26, 302-307 (2005).